

**RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE**

*MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR  
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE*

**UNIVERSITÉ MENTOURI-CONSTANTINE  
FACULTÉ DES SCIENCES EXACTES  
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE**

N d'ordre :

Série :

*THÈSE*

*PRESENTÉE POUR OBTENIR LE DIPLOME DE DOCTORAT EN  
PHYSIQUE*

**SPÉCIALITE : SCIENCES DES MATÉRIAUX**

**THÈME**

**ÉTUDE DES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES SUPER-  
RÉSEAUX DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> PAR LA MÉTHODE MONTE CARLO**

Par : SAOUSEN DJEDAI

Soutenue le : / /2015

Devant le jury :

Président :	K. MIROUH	Prof.	Université de Constantine 1
Directeur de thèse :	P. E. BERCHE	M. C.	Université de Rouen
Examineurs :	A. CHARI	Prof.	Université de Constantine 1
	A. NOURI	Prof.	Université Oum El Bouaghi
	M. F. MOSBAH	Prof.	École polytechnique Constantine
	O. KHALFALLAH	Prof.	Université de Constantine 1

*A mon ange gardien !*  
**Mourad,**

# Remerciements

*"Nous aurons le destin que nous aurons mérité."*

**Albert Einstein**

*"Soyons reconnaissants aux personnes qui nous donnent du bonheur ; elles sont les charmants jardiniers par qui nos âmes sont fleuries."*

**Marcel Proust**

Les mots me manquent pour exprimer ma gratitude envers Dr. Pierre Emmanuel BERCHE qui fut pour moi un directeur de thèse attentif et disponible malgré ses nombreuses charges. Sa compétence, sa rigueur scientifique, ses précieux conseils et sa clairvoyance m'ont beaucoup appris. Ils ont été et resteront les moteurs de mon travail de chercheur. Je tenais à te remercier de l'accueil que tu m'avais réservé et du temps que tu m'avais consacré lors de mon stage de dix-huit mois et même après au sein du laboratoire, le Groupe de Physique des Matériaux (GPM). Je te suis très reconnaissante pour la confiance que tu m'avais accordée et je connais l'importance de ton indéfectible soutien aussi bien sur le plan humain que scientifique dans ce travail de thèse qui a eu des moments difficiles.

Je remercie Monsieur K. MIROUH, Professeur à l'université Mentouri de Constantine, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse. Je lui témoigne ma gratitude.

J'adresse mes sincères remerciements aux membres de mon jury de thèse, Monsieur A. CHARI, Professeur à l'université Mentouri de Constantine, Monsieur O. KHALFALLAH, Professeur à l'université Mentouri de Constantine, Monsieur A. NOURI, Professeur à l'université d'Oum El Bouaghi et Monsieur M. F. MOSBAH, Professeur à l'école polytechnique Constantine. Vous me faites l'honneur de juger ce travail, veuillez trouver ici l'expression de mes sincères remerciements et de mon profond respect.

Atteindre mon objectif n'aurait pas été possible sans l'aide et la gentillesse du Monsieur A. BOUDJADA Professeur et chef de département de physique à l'université Mentouri de Constantine, qui a pris conscience de la difficulté de ma situation, il a su être à l'écoute et trouver les mots pour me rassurer, je désire grandement le remercier.

J'associe à ces remerciements Monsieur M. S. AÏDA Professeur à l'université Mentouri de Constantine, pour son aide ces conseils et surtout sa gentillesse Je lui remercie pour tout cela.

J'ai réalisé ce travail de thèse dans le cadre d'un programme franco-algérien de formation supérieur en France (PROFAS) qui m'a permis d'effectuer un séjour de dix huit mois dans le laboratoire du Groupe de Physique des Matériaux (GPM), à Rouen. A mon arrivée, Monsieur D. BLAVETTE en était le directeur. Je le remercie de m'y avoir accueillie.

Cette étude a été possible grâce à l'accès accordé au Centre de Ressources Informatiques de Haute Normandie (CRIHAN) qui m'a fourni une aide technique de grande qualité, je remercie vivement tout son équipe.

Merci à Renaud PATTE pour l'aide technique et informatique et surtout sa bonne humeur.

Je tiens également à remercier les personnes avec lesquelles j'ai pu collaborer durant cette thèse. Messieurs G. J. BOWDEN et P. A. J. de GROOT Professeurs à l'université de Southampton au Royaume Uni qui m'ont invité dans leur laboratoire de Physique et Astronomie, merci pour l'intérêt que vous avez immédiatement porté à mon travail. Merci pour les discussions enrichissantes et pour les petits Kit Kat avec le thé chaud.

Un **grand Merci** aux personnes qui ont cru en moi et qui m'ont permis d'arriver au bout de cette thèse.

Enfin, aujourd'hui, c'est la fierté de mes proches, de ma famille qui me fait plaisir, celle de mon mari et de mon fils (ses yeux qui brillent d'innocence me donne la force de continuer mon chemin). Yazid merci pour ton courage d'avoir supporter mes moments difficiles et de m'encourager. Ta présence et ta disponibilité m'ont été précieuses, merci beaucoup pour tout ton soutien, ta compréhension, ta patience.... C'est avec plaisir que je te dédie cette thèse.

Un grand merci à toi Mourad, tu m'as fait partager depuis toujours ta passion pour la science. A toi mon frère, pour qui mon avenir compte tant, merci de m'avoir soutenue moralement tout au long de mes études. J'espère que ton petit bout de chou réalisera tes rêves.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans l'expression de mon très profond amour pour ma mère et mon père, pour l'ensemble de ce que je leur dois, et leur affection. Merci mille fois.

Chère mère, tu ne liras pas ma thèse mais je te la raconterais.

Une pensée pour terminer ces remerciements pour toi mon père qui n'a pas vu l'aboutissement de mon travail, mais je sais que tu en aurais été très fier de ta fille !!!

***Merci !***



# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>1</b>
<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Généralités sur les propriétés magnétiques des métaux de transition et des terres-rares</b>	<b>10</b>
1.1 Généralités sur les matériaux magnétiques . . . . .	10
1.1.1 Les matériaux magnétiques . . . . .	10
1.1.1.1 Matériaux magnétiques durs . . . . .	11
1.1.1.2 Matériaux magnétiques doux . . . . .	12
1.2 Magnétisme des métaux de transition et des terres-rares . . . . .	13
1.2.1 Les métaux de transition $3d$ . . . . .	13
1.2.1.1 Le fer . . . . .	16
1.2.1.2 Anisotropie magnétique dans les métaux de transition . . . . .	18
1.2.2 Les terres-rares . . . . .	20
1.2.2.1 Le dysprosium . . . . .	22
1.2.2.2 L'yttrium . . . . .	24
1.2.2.3 Anisotropie magnétique dans les terres-rares . . . . .	24
1.3 Propriétés magnétiques de composés intermétalliques . . . . .	27
1.3.1 Interactions d'échange . . . . .	29
1.3.1.1 Interactions d'échange dans les MT . . . . .	30
1.3.1.2 Interactions d'échange dans les TR . . . . .	31
1.3.1.3 Interactions d'échange entre MT et TR . . . . .	32
1.3.2 Anisotropie magnétique dans les multicouches . . . . .	34
1.3.2.1 Anisotropie de forme . . . . .	34
1.3.2.2 Anisotropie magnétocristalline . . . . .	35

1.3.2.3	Anisotropie d'interface . . . . .	36
1.3.2.4	Anisotropie magnéto-élastique . . . . .	37
1.3.2.5	Anisotropie induite par la méthode de dépôt . . . . .	38
<b>2</b>	<b>Simulations numériques et modélisation</b>	<b>41</b>
2.1	Méthode de simulation Monte Carlo . . . . .	42
2.1.1	Généralités . . . . .	42
2.1.2	Description de la Méthode Monte Carlo . . . . .	42
2.1.3	Simulation des propriétés magnétiques à l'équilibre . . . . .	44
2.1.3.1	Algorithme de Metropolis . . . . .	44
2.1.3.2	Organigramme de l'algorithme de Metropolis . . . . .	46
2.1.3.3	Méthode du recuit simulé . . . . .	47
2.1.3.4	Impact du choix de la température et du nombre d'itérations sur l'évolution du système . . . . .	50
2.1.3.5	Calcul des grandeurs thermodynamiques à chaque température	51
2.1.4	Simulation de cycles d'hystérésis . . . . .	52
2.1.4.1	Méthode Monte Carlo quantifiée en temps . . . . .	52
2.2	Modélisation des super-réseaux DyFe <sub>2</sub> / YFe <sub>2</sub> . . . . .	54
2.2.1	Modélisation de la structure des super-réseaux . . . . .	54
2.2.2	Hamiltonien . . . . .	55
2.2.3	Paramètres magnétiques . . . . .	56
<b>3</b>	<b>Propriétés structurales et magnétiques des super-réseaux</b>	
	<b>DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub></b>	<b>61</b>
3.1	Propriétés structurales des super-réseaux DyFe <sub>2</sub> /YFe <sub>2</sub> . . . . .	62
3.2	Propriétés magnétiques des super-réseaux DyFe <sub>2</sub> /YFe <sub>2</sub> . . . . .	64
3.2.1	Anisotropie magnétique . . . . .	65
3.2.2	Configuration magnétique . . . . .	67
3.3	Synthèse bibliographique des résultats expérimentaux . . . . .	68
3.3.1	Propriétés mesurées à basse température . . . . .	69
3.3.1.1	Faible épaisseur de YFe <sub>2</sub> . . . . .	69
3.3.1.2	Épaisseur intermédiaire . . . . .	70

3.3.1.3	Forte épaisseur de $\text{YFe}_2$ . . . . .	71
3.3.2	Influence de la température . . . . .	73
<b>4</b>	<b>Propriétés magnétiques des super-réseaux <math>\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2</math> par simulations Monte Carlo</b>	<b>79</b>
4.1	Simulation des cycles d’hystérésis . . . . .	79
4.1.1	Propriétés mesurées à basse température . . . . .	79
4.1.1.1	Paramètres numériques . . . . .	80
4.1.1.2	Scénario de type « bloc dur » . . . . .	81
4.1.1.3	Scénario de type « exchange spring » . . . . .	83
4.1.1.4	Retournement en premier lieu de la phase dure . . . . .	92
4.1.2	Propriétés mesurées à haute température . . . . .	99
4.1.2.1	Scénario de type « bloc dur » . . . . .	99
4.1.2.2	Scénario de type « exchange spring » . . . . .	100
4.1.2.3	Retournement en premier lieu de la phase dure . . . . .	102
	<b>Conclusion Générale</b>	<b>112</b>
	<b>A Liste des communications scientifiques</b>	<b>119</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>121</b>
	<b>Liste des figures</b>	<b>123</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>130</b>



# Introduction

Les matériaux magnétiques sont depuis longtemps utilisés dans de nombreuses applications technologiques. Un grand nombre d'études ont été effectuées en physique du solide sur des systèmes composés de deux matériaux magnétiques mis en contact. Cette thématique a été étudiée dès 1956 par Meiklejohn et Bean [1] puis par Louis Néel dans les années 1960 [2], mais elle n'a connu un essor particulier qu'au début des années 90 et reste toujours un sujet d'actualité comme le prouve le nombre de publications dans les revues les plus prestigieuses [3]. Les phénomènes induits dans de telles structures sont également à la base de nombreuses applications, principalement dans le domaine des technologies multimédias (tête de lecture, MRAM, logique magnétique, capteurs, ...).

Les recherches entreprises ces dernières années et activement poursuivies aujourd'hui dans les laboratoires des pays industrialisés ont permis de réaliser la synthèse de nouveaux matériaux magnétiques aux performances toujours plus élevées. Cette famille de matériaux nouveaux comprend les super-réseaux métalliques magnétiques qui ont vu le jour au milieu des années 1980.

Pour notre part, nous nous sommes intéressés plus précisément au cas de systèmes composés de deux matériaux de nature magnétique identique (ferrimagnétique) ; il s'agit de super-réseaux magnétiques composés de terres rares et métaux de transition (TR-MT). Ces matériaux ont fait l'objet de très nombreuses études car ils constituent des candidats potentiels pour des applications telles que les aimants permanents haute performance [4] ou les capteurs par exemple. L'origine de leurs propriétés magnétiques exceptionnelles est due principalement à la coexistence de deux types complémentaires de magnétisme : le magnétisme localisé caractéristique des électrons  $4f$  des terres rares et le magnétisme itinérant des électrons  $3d$  des

métaux de transition tel que le fer. On outre, les terres rares possèdent généralement une forte anisotropie magnétocristalline grâce aux interactions entre leur moment orbital et le champ cristallin. Par ailleurs, les métaux de transition, quant à eux, sont dotés d'une forte aimantation et une température de Curie élevée grâce aux interactions d'échange importantes entre les ions des éléments  $3d$ .

Pour toutes ces raisons, l'étude des super-réseaux présente un intérêt à la fois fondamental pour l'étude du couplage magnétique et le développement de parois d'interfaces, mais aussi un intérêt du point de vue des applications potentielles en tant qu'aimants permanents ou capteurs magnétiques ; ils sont également des candidats potentiels pour l'élaboration de supports d'enregistrement magnétique [5, 6], de tête de lectures, etc. . .

Nous nous intéressons, dans le cadre de cette thèse, à des super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$  d'épaisseur nanométrique, élaborés par épitaxie par jet moléculaire à l'institut Jean Lamour de l'université de Lorraine (France) pour lesquels une grande diversité de comportements magnétiques a pu être observée expérimentalement. Dans certains cas, nous nous référerons à des résultats expérimentaux menés par d'autres laboratoires, en particulier celui du Pr. G. J. Bowden à Southampton. Ces super-réseaux présentent une structure cristalline appelée «phase de Laves». Ils permettent la fabrication de parois de domaines artificielles par le biais du couplage d'échange négatif à l'interface entre les couches magnétiques dures ( $\text{DyFe}_2$ ) et douces ( $\text{YFe}_2$ ), dont les caractéristiques vont dépendre très fortement des épaisseurs des couches et de la température.

Nous utilisons pour cette étude, la technique de simulation numérique Monte Carlo avec la procédure dite « time quantified » qui permet de reproduire numériquement le retournement de l'aimantation sous l'application d'un champ magnétique à différentes températures. Le modèle que l'on utilise est le modèle de Heisenberg de spins classiques dans lequel la valeur de l'anisotropie magnétique peut être contrôlée quantitativement ainsi que les différents paramètres magnétiques relatifs à chacune des espèces chimiques.

Le premier chapitre est consacré aux rappels de quelques notions de base des propriétés magnétiques de la matière. Les différentes catégories de matériaux magnétiques, ainsi que

quelques propriétés structurales et magnétiques des composés à base de métaux de transition et de terres-rares sont définies.

Nous procédons dans le second chapitre à la description du modèle de simulation numérique que nous avons mis en œuvre. Nous détaillons la méthode Monte Carlo que nous avons choisie pour l'étude des propriétés magnétiques à l'équilibre ainsi que pour la simulation de cycles d'hystérésis des échantillons soumis à un champ magnétique variable.

Le troisième chapitre s'articule en deux parties. Dans la première partie, nous présenterons les propriétés structurales des super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ . La deuxième partie décrira quant à elle les propriétés magnétiques. Le lecteur y trouvera également une description de l'influence de la réduction d'épaisseur du matériau magnétique dur sur le processus de renversement de l'aimantation à haute et à basse température. Un grand nombre de résultats expérimentaux existe sur ces systèmes et donne lieu à des cycles d'hystérésis très différents en fonction de l'épaisseur des couches et de la température de mesure. Des interprétations physiques sont proposées pour expliquer les processus de retournement atypiques pour certaines courbes d'aimantation obtenues par l'équipe de K. Dumesnil à l'université de Lorraine en France et d'autres par l'équipe de G. J. Bowden à l'université de Southampton au Royaume Uni.

Nous réalisons dans le quatrième chapitre qui constitue le chapitre principal de cette thèse une présentation des simulations qui permettent de comparer des résultats issus de mesures expérimentales avec nos résultats de simulations Monte Carlo pour les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ . Dans cette étude, nous nous intéresserons plus particulièrement aux processus de retournement de l'aimantation sous l'effet d'un champ magnétique, en fonction des épaisseurs relatives des couches magnétiques pour différentes températures. Par ailleurs, nous décrirons l'origine des différentes phases de retournement et caractériserons les parois d'interface observées.

Enfin, nous terminerons notre étude par une conclusion générale présentant la synthèse des principaux résultats et les perspectives qui peuvent être envisagées à la suite de ce travail.

# Chapitre 1



# Chapitre 1

## Généralités sur les propriétés magnétiques des métaux de transition et des terres-rares

### 1.1 Généralités sur les matériaux magnétiques

Ce chapitre est dédié aux rappels de quelques notions de base des propriétés magnétiques de la matière. Les différentes catégories de matériaux magnétiques, leurs propriétés et leurs principaux domaines d'application sont présentés, ainsi que quelques propriétés structurales et magnétiques des composés à base de métaux de transition et de terres-rares.

#### 1.1.1 Les matériaux magnétiques

Les matériaux magnétiques sont actuellement utilisés dans divers domaines tels que les aimants permanents [4] ou les supports pour l'enregistrement magnétique [5, 6] à haute densité. Ces matériaux sont caractérisés par leurs propriétés dites intrinsèques (dépendant de la composition chimique) et extrinsèques (fonction de la microstructure).

Les propriétés magnétiques influencées par les caractéristiques structurales à l'échelle atomique sont celles que l'on nomme propriétés intrinsèques telles que la température de Curie, l'aimantation à saturation et l'anisotropie magnétocristalline. Généralement, ces propriétés sont fortement liées à l'environnement et à la distance entre les atomes premiers voisins. Elles sont

indépendantes de la quantité de matière. Pour la grande majorité des applications, la température de Curie doit être supérieure à la température ambiante, ce qui implique que les matériaux concernés sont à base des éléments de transition Fe, Co, Ni. La recherche, par ailleurs, d'une forte aimantation tend à privilégier les matériaux à base de fer ou de cobalt [7].

Les propriétés magnétiques extrinsèques sont le champ coercitif et l'aimantation rémanente, déduite du cycle d'hystérésis qui représente la réponse d'un matériau à un champ magnétique appliqué. Il donne les caractéristiques magnétiques intéressantes d'un échantillon d'un point de vue global. L'aimantation rémanente est l'aimantation résiduelle en champ nul après saturation. Le champ coercitif correspond au champ opposé qu'il faut appliquer pour obtenir une aimantation nulle après que le matériau a été saturé. La coercivité est généralement liée à l'anisotropie magnétique ; elle peut être forte dans les alliages ou composés qui associent aux éléments de transition des éléments de terres-rares Nd, Dy, Y.

A partir de la forme du cycle d'hystérésis et de la valeur de la coercivité, on distingue trois grandes catégories de matériaux : matériaux magnétiques doux, durs et semi-durs. Dans notre travail, nous nous sommes intéressés uniquement aux matériaux doux et durs.

### 1.1.1.1 Matériaux magnétiques durs

Les matériaux magnétiques durs sont ferromagnétiques ou ferrimagnétiques à température ambiante, ils nécessitent un très fort champ magnétique extérieur pour atteindre la saturation. Leur aimantation peut être considérée comme rémanente et permanente, le champ coercitif  $H_C$  nécessaire pour annuler l'aimantation  $M$  dans le matériau magnétique dur est supérieur à  $10^4 A.m^{-1}$  ( $\mu_0 H_C > 125.10^{-4} T$ ) [8]. Ces matériaux ont un cycle d'hystérésis large (figure 1.1). Après l'annulation du champ extérieur, ils ont une faible perméabilité et sont difficiles à aimanter. Ils peuvent être utilisés pour la réalisation d'aimants permanents de très forte puissance, comme par exemple des alliages AlNiCo et certains alliages à base de terres-rares NdFeB [7].

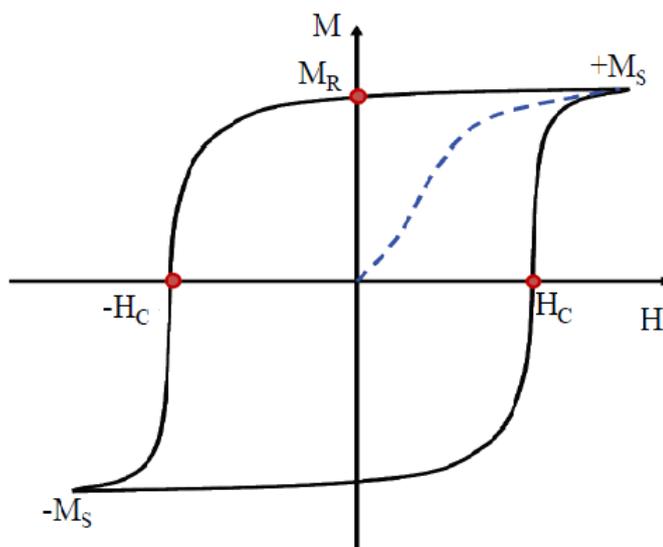


FIGURE 1.1 – Cycle d’hystérésis typique d’un matériau magnétique dur.  $H_C$  est le champ coercitif,  $M_R$  l’aimantation rémanente et  $M_S$  l’aimantation à saturation.

### 1.1.1.2 Matériaux magnétiques doux

Les matériaux magnétiques doux sont caractérisés par la capacité d’atteindre leur aimantation à saturation facilement avec un champ magnétique extérieur relativement faible. Cette aimantation persiste lorsque l’on cesse d’appliquer ce champ. Il s’agit donc d’une aimantation rémanente forte. Cependant cette aimantation se dissipe facilement sous l’action d’un champ magnétique opposé, le champ coercitif qui est inférieur à  $10^3 A.m^{-1}$  ( $\mu_0 H_C > 12,5.10^{-4} T$ ) [8]. Ces matériaux sont caractérisés par un cycle d’hystérésis étroit (figure 1.2) et ont une perméabilité très grande, ils peuvent être aimantés et désaimantés facilement. Parmi les matériaux ferromagnétiques doux, on peut citer par exemple le fer, certains alliages de fer et nickel, des ferrites  $NiFe_2O_4$  [7].

Les matériaux magnétiques doux sont utilisés pour réaliser des électroaimants ou des circuits magnétiques de machines (moteurs, génératrices, transformateurs ...).

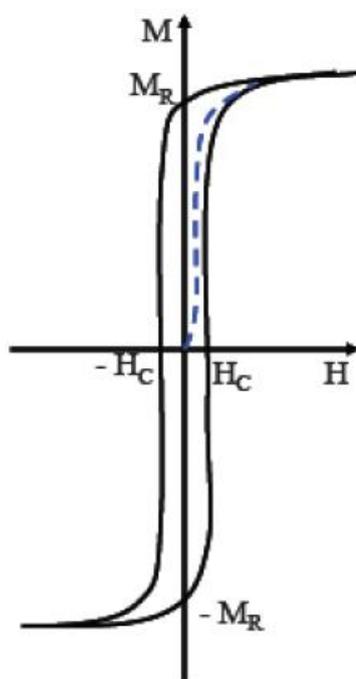


FIGURE 1.2 – Cycle d'hystérésis typique d'un matériau magnétique doux.

## 1.2 Magnétisme des métaux de transition et des terres-rares

### 1.2.1 Les métaux de transition $3d$

Les métaux de transition  $3d$  (MT) ont la particularité de posséder des orbitales  $3d$  partiellement remplies, dont les deux sous-bandes de spin majoritaire et minoritaire sont décalées en énergie. Ces orbitales  $3d$  responsables du magnétisme étant externes, elles sont fortement influencées par leur environnement atomique, leurs moments magnétiques sont délocalisés.

Entre autres propriétés que présentent les métaux de transition, c'est la possession d'une aimantation spontanée en l'absence de champ magnétique en dessous d'une certaine température dite de Curie,  $T_C$ . Cette aimantation spontanée ne peut exister que si les moments magnétiques portés par les atomes se mettent collectivement en ordre [8]. L'aimantation due au moment magnétique de spin est définie par :

$$M_s = \mu_B(n_{\uparrow} - n_{\downarrow}), \quad (1.1)$$

où  $n_{\uparrow}$  et  $n_{\downarrow}$  sont les nombres d'électrons de spin "up" ( $\uparrow$ ) et "down" ( $\downarrow$ ) et  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr qui caractérise le magnétisme d'origine électronique. Dans un modèle simple (Mott-Slater) où l'hybridation ( $s-d$ ) est négligée, la structure de bandes d'un métal ferromagnétique est constituée de :

- deux groupes de cinq bandes  $d(d_{\uparrow}, d_{\downarrow})$  identiques, mais déplacées l'une par rapport à l'autre d'une quantité  $\Delta\epsilon_d$  représentant la variation moyenne des potentiels d'échange (figure 1.3) ;
- deux bandes  $s_{\uparrow}$  et  $s_{\downarrow}$ , et également déplacées d'une quantité  $\Delta\epsilon_s$  avec  $\Delta\epsilon_s \ll \Delta\epsilon_d$ .

Le magnétisme des métaux de transition a donc pour origine le remplissage différent des deux sous bandes  $d$ . On distingue des ferromagnétiques forts comme le cobalt et nickel pour lesquels la bande  $d_{\uparrow}$  est pleine ( $n_{d_{\uparrow}} = 5$ ) et des ferromagnétiques faibles tel que le fer pour lesquels aucune des deux bandes ( $d_{\uparrow}$ ) et ( $d_{\downarrow}$ ) n'est pleine.

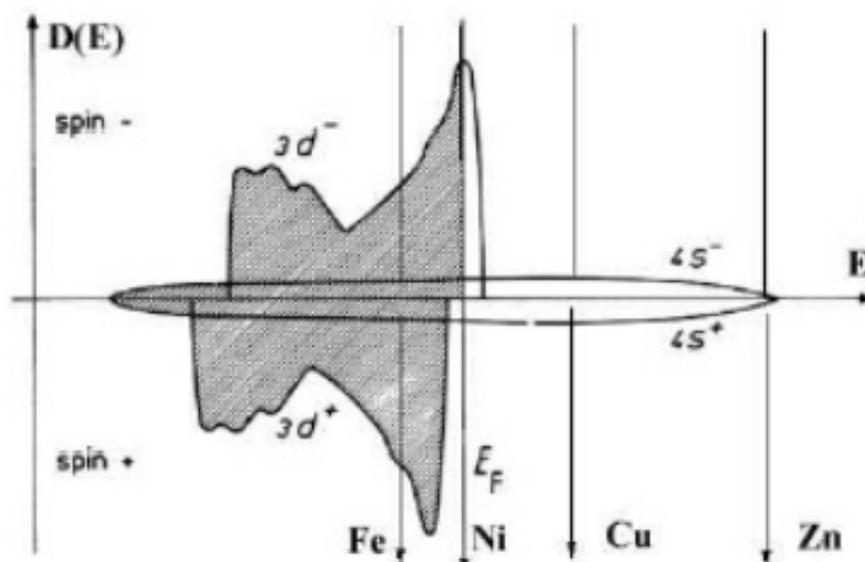


FIGURE 1.3 – Représentation schématique de la variation de la densité d'états  $D(E)$  en fonction de l'énergie  $E$  pour les électrons  $3d$  et  $4s$ . La zone grisée correspond au remplissage jusqu'au niveau de Fermi (celui-ci est représenté dans le cas du fer, du nickel, du cuivre et du zinc) [9].

## I. Généralités sur les propriétés magnétiques des métaux de transition et des terres-rares

Une approche phénoménologique du ferromagnétisme montre que la condition d'apparition du ferromagnétisme est définie par la compétition entre :

- le gain d'énergie d'interaction associée au déséquilibre entre les populations des deux types de spins qui occupent les bandes  $3d$  (principe de Pauli) ;
- l'accroissement d'énergie cinétique lié au transfert d'électrons depuis les bandes  $3d_{\downarrow}$  vers les bandes  $3d_{\uparrow}$ .

Le critère d'apparition du ferromagnétisme qui découle de cette compétition est le critère de Stoner [10] à  $T = 0$  K, qui stipule qu'un gaz d'électrons est ferromagnétique si l'inégalité :

$$I.N(\epsilon_F) \succ 1 \quad (1.2)$$

est vérifiée, où  $I$  est un coefficient qui décrit le couplage d'échange répulsif entre les électrons des bandes de spins opposés et  $N(\epsilon_F) = N_{\uparrow}(\epsilon_F) + N_{\downarrow}(\epsilon_F)$  est la densité d'états au niveau de Fermi  $\epsilon_F$  (figure 1.4).

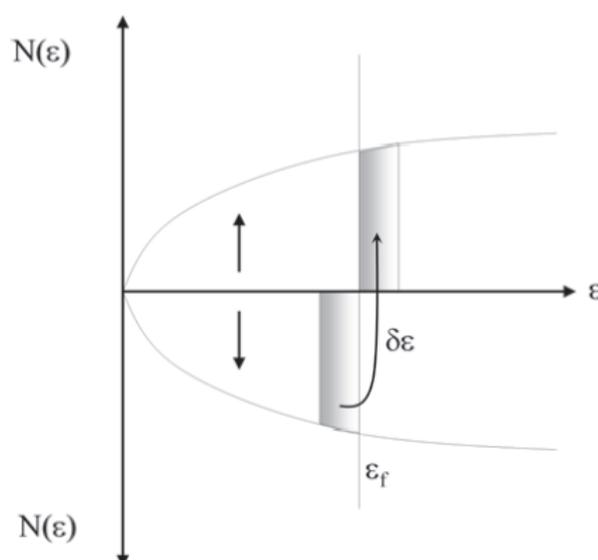


FIGURE 1.4 – Déplacement d'une quantité  $\delta\epsilon$  d'électrons de conduction depuis la bande de spin ( $\downarrow$ ) vers la bande de spin ( $\uparrow$ )[8].

### 1.2.1.1 Le fer

Parmi les métaux de transition, on s'intéresse particulièrement au fer (Fe) qui possède une sous-couche  $3d$  incomplète. La structure électronique de son atome isolé est :  $[Ar]3d^64s^2$ . Sa structure cristalline est cubique centrée (cc) en dessous de la température 1184 K avec un paramètre de maille  $a = 2,8664 \text{ \AA}$  à 300 K ; son rayon atomique vaut  $r_{Fe} = 1,27 \text{ \AA}$ . Le magnétisme du fer est décrit par le modèle des électrons itinérants, ce qui fait que les électrons de conduction délocalisés sont les responsables du magnétisme. Le moment magnétique du fer est très sensible à son environnement , il résulte de la différence de remplissage des bandes  $3d$  de spin "up" ( $\uparrow$ ) et de spin "down" ( $\downarrow$ ) ce qui conduit à des valeurs non entières du moment magnétique en magnétons de Bohr  $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e}$  (figure1.5).

En raison de l'importance du couplage du champ cristallin par rapport au couplage spin-orbite, seule la contribution du spin intervient dans le moment magnétique total  $M$  :

$$M = M_s = -2\mu_B S, \quad (1.3)$$

avec le spin de Fe qui vaut  $S_{Fe} = 1,1$  son facteur de Landé est  $g_{Fe} = 2$ , ce qui donne un moment magnétique de fer  $m_{Fe}$  :

$$m_{Fe} = 2,2\mu_B. \quad (1.4)$$

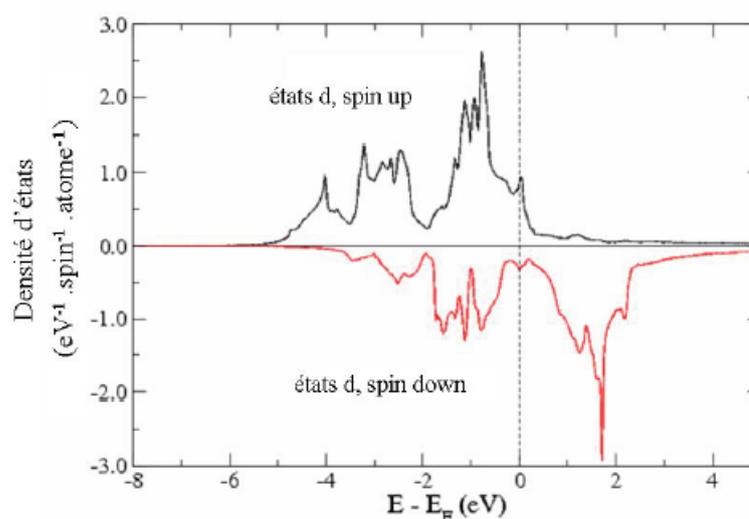


FIGURE 1.5 – Densité d'états en fonction de l'énergie pour les spins  $3d$  "up" ( $\uparrow$ ) et les spins  $3d$  "down" ( $\downarrow$ ) dans le cas du fer cubique centré [8].

## I. Généralités sur les propriétés magnétiques des métaux de transition et des terres-rares

Le fer  $\alpha$  (cubique centré) présente un ordre ferromagnétique en dessous de la température de Curie  $T_C = 1044$  K, et une phase paramagnétique au dessus de cette température [8]; il est donc magnétiquement ordonné à température ambiante. Les films minces et plus généralement les systèmes dont l'une des dimensions est de l'ordre de grandeur du nanomètre peuvent avoir des propriétés magnétiques différentes de celles des corps massifs. La réduction de la coordinence en surface provoque un recouvrement moindre des fonctions d'onde des électrons  $d$  ainsi qu'une réduction de largeur ou une augmentation de la densité d'états au niveau de Fermi  $D(E_F)$ . Par conséquent, ces effets peuvent induire un ordre ferromagnétique dans les films minces de métaux qui ne s'ordonnent pas magnétiquement en volume à ces températures. Par exemple, le moment magnétique du fer en surface est plus grand que celui observé en volume [11–13]. Le tableau 1.1 compare les moments magnétiques en volume et en surface du fer.

	Fe( $\mu_B/at$ )
Surface (100)	2,98
Surface (110)	2,65
Volume	2,15

Tableau 1.1 – Moments magnétiques en  $\mu_B/at$  de volume et de surface pour le fer [11–13].

Le moment magnétique approche la valeur obtenue pour l'atome libre au fur et à mesure que la dimensionnalité et la coordinence sont réduites. Ainsi, lorsque l'on passe du matériau massif à la surface (100) puis à la chaîne linéaire puis à l'atome isolé, le tableau 1.2 résume ces différentes valeurs du moment magnétique [13, 14].

	Volume	surface (100)	chaîne linéaire	Atome isolé
$m_{Fe}(\mu_B/at)$	2,15	2,98	3,3	4,0

Tableau 1.2 – Les valeurs du moment magnétique du Fe en fonction de la diminution de la dimensionnalité et de la coordinence [13, 14].

### 1.2.1.2 Anisotropie magnétique dans les métaux de transition

Pour les métaux de transition dont le magnétisme provient des électrons  $3d$ , l'énergie de champ cristallin est environ 100 fois plus grande que l'énergie du couplage spin-orbite. Le champ cristallin bloque le moment cinétique orbital de ces éléments. Cependant, une faible contribution orbitale subsiste ( $0,2\mu_B$  sur  $2,2\mu_B$ ) pour le moment magnétique par atome de fer [15]. C'est la raison pour laquelle l'anisotropie magnétocristalline dans les métaux  $3d$  est en général faible, notamment par rapport aux terres rares.

Les métaux de transition cristallisent souvent dans une structure cubique comme par exemple Fe ou Ni. L'énergie d'anisotropie magnétocristalline d'un cristal à symétrie cubique peut s'écrire comme un développement en puissances paires des cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes principaux du cristal. Pour les cristaux cubiques (Fe, Ni) le premier terme non nul est d'ordre 4 et l'énergie d'anisotropie s'écrit :

$$E_a = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2, \quad (1.5)$$

où  $K_1$  et  $K_2$  sont les constantes d'anisotropie et  $(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$  sont les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes cubiques. Pour les cristaux hexagonaux (Co), le premier terme non nul du développement est d'ordre 2, et l'expression de l'énergie d'anisotropie est :

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^6 \theta + K_4 \sin^6 \theta \cos^6 \phi + \dots \quad (1.6)$$

où  $\theta$  et  $\phi$  sont les angles usuels en coordonnées sphériques, l'axe polaire étant choisi parallèle à l'axe  $c$  du cristal (figure 1.6).

Dans le cas du système cubique, en ne tenant compte que des termes de plus bas degré, les valeurs de  $K_1$  et  $K_2$  sont déterminées expérimentalement et dépendent fortement de la température. Le tableau 1.3 rassemble les valeurs à température ambiante des constantes d'anisotropie du fer (cc), du cobalt (hc), et du nickel (cfc) [15].

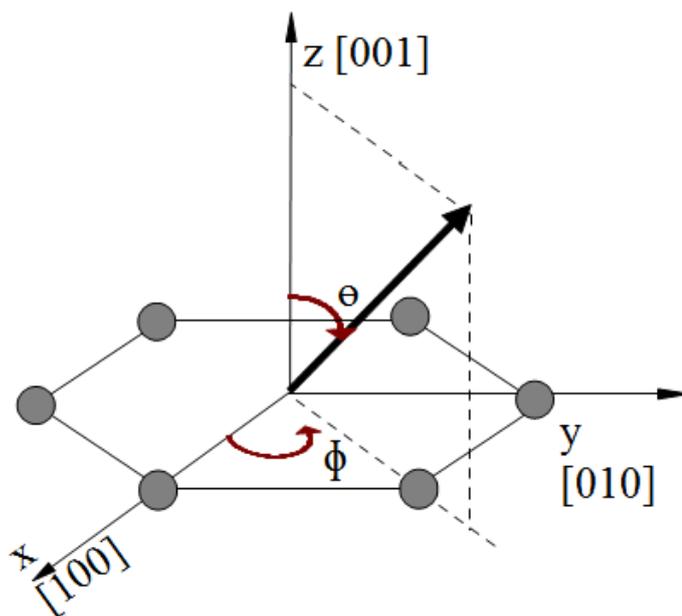


FIGURE 1.6 – Définition des angles  $\theta$  et  $\phi$  en symétrie hexagonale.  $\theta$  correspond à l'angle entre l'aimantation et l'axe  $[001]$  de la structure hexagonale. L'angle  $\phi$  est l'angle entre la projection de l'aimantation dans le plan  $(Oxy)$  perpendiculaire à l'axe  $[001]$  du réseau.

Expérimentalement, il est plus difficile d'aimanter un échantillon monocristallin dans certaines directions cristallographiques que dans d'autres ; ceci est illustré par la figure 1.7. Pour le fer  $\alpha$ , la direction de facile aimantation est  $[100]$  ; cela signifie que l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est minimale lorsque le matériau est aimanté suivant cette direction.

	Fe	Co	Ni
$K_1(\text{erg.cm}^{-3})$	$4,81.10^5$	$4,12.10^6$	$-5,48.10^4$
$K_2(\text{erg.cm}^{-3})$	$1,2.10^3$	$1,43.10^6$	$-2,47.10^4$

Tableau 1.3 – Constantes d'anisotropie du fer (cc), du cobalt (hc), et du nickel (cfc) à température ambiante [15].

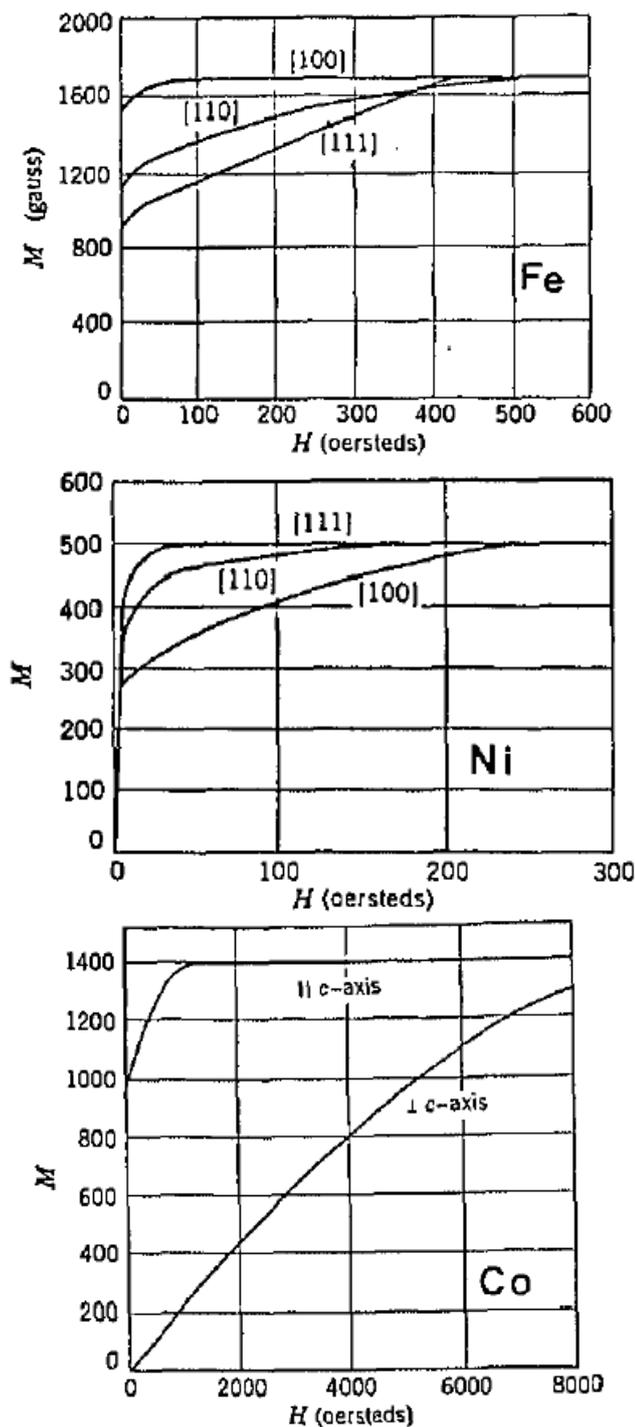


FIGURE 1.7 – Courbes d’aimantation du fer, du nickel et du cobalt massifs dans différentes directions cristallographiques [16].

## 1.2.2 Les terres-rares

La série des métaux de terres-rares (TR) s’étend du lanthane (La) au lutétium (Lu) et correspond au remplissage progressif de la couche électronique  $4f$ . Leur configuration électronique

## I. Généralités sur les propriétés magnétiques des métaux de transition et des terres-rares

---

est de la forme :  $[\text{Xe}] 4f^n 5d^1 6s^2$  où  $n = 0$  pour le lanthane et  $n = 14$  pour le lutétium. A l'état métallique, les niveaux  $5d$  et  $6s$  s'hybrident pour former une bande de conduction étendue contenant trois électrons. L'extension spatiale des orbitales  $4f$  est très faible : les électrons de cette couche sont à l'origine du magnétisme des terres rares, ils demeurent relativement isolés des autres orbitales et sont couplés entre eux par une interaction indirecte de type RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya, Yosida) [17–19]. Les terres-rares sont partagées en deux familles selon le taux de remplissage de l'orbitale  $4f$  :

- si le nombre d'électrons  $4f$  est inférieur à sept (la couche est moins qu'à moitié remplie), on les appelle terres-rares légères ;
- si la couche  $4f$  est au moins à moitié remplie ( $n \geq 7$ ), elles sont appelées terres-rares lourdes. Les terres-rares lourdes vont du gadolinium (Gd) ( $n = 7$ ) au lutétium (Lu) ( $n = 14$ ).

Hormis l'ytterbium (Yb), les terres-rares lourdes cristallisent dans une structure hexagonale compacte, dont les paramètres  $a$  et  $c$  diminuent au fur et à mesure du remplissage de la couche  $4f$  en raison des corrélations électroniques.

L'yttrium, qui se situe dans la ligne précédente de la classification périodique, présente une structure cristalline et des propriétés chimiques très proches de celles des terres-rares. Bien qu'il ne possède pas d'électrons  $4f$ , l'yttrium sera donc considéré comme une terre-rare non magnétique. Étant donné sa structure électronique et ses paramètres de réseau, il peut être placé en tête du groupe des terres-rares lourdes.

Dans la couche  $4f$ , l'interaction coulombienne est plus forte que le couplage spin-orbite. Il en découle que l'apparition des moments magnétiques peut être décrite en deux étapes :

- couplage indépendant des moments cinétiques orbitaux  $l_i$  et des spins  $s_i$  ( $i$  varie de 1 à  $n$ ) des électrons  $4f$  pour former un moment cinétique orbital total  $L$  et de spin total  $S$  :

$$L = \sum_i^n l_i, \quad S = \sum_i^n s_i \quad (1.7)$$

- couplage spin-orbite entre  $L$  et  $S$  pour former le moment angulaire total  $J = L + S$  auquel est lié le moment magnétique.

Les valeurs de  $L$ ,  $S$  et  $J$  pour l'état le plus stable sont données très classiquement par les règles de Hund [8]. Elles favorisent l'orientation anti-parallèle des moments cinétiques orbitaux et de spin dans le cas des TR légères et l'orientation parallèle pour les TR lourdes (figure 1.8).

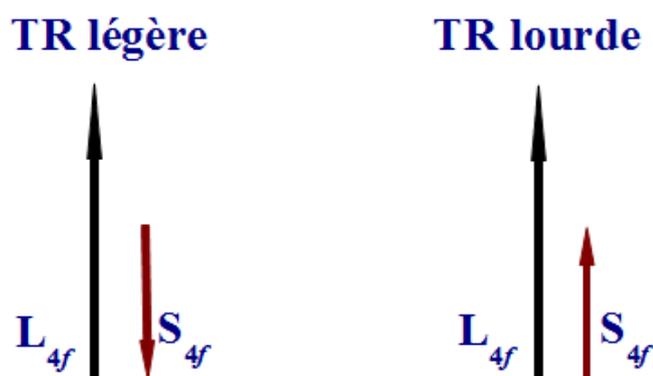


FIGURE 1.8 – Représentation schématique du couplage entre les moments cinétiques de spin et orbital  $4f$  des ions libres de terres-rares.

### 1.2.2.1 Le dysprosium

Le dysprosium (Dy) est une terre-rare lourde. Sa structure électronique est  $[Xe] 4f^9 5d^1 6s^2$ . Il cristallise selon une structure hexagonale compacte ( $hc$ ), les dimensions de sa cellule unitaire à la température ambiante sont :  $a = 3,59 \text{ \AA}$ ,  $c = 5,65 \text{ \AA}$  et son rayon atomique est  $r_{Dy} = 1,75 \text{ \AA}$ . Du point de vue magnétique, le Dy s'ordonne à  $T_N = 179 \text{ K}$  (appelée température de Néel) suivant une phase hélicoïdale dans le plan de base [20], puis devient ferromagnétique en dessous de  $89 \text{ K}$  [21] (figure 1.9).

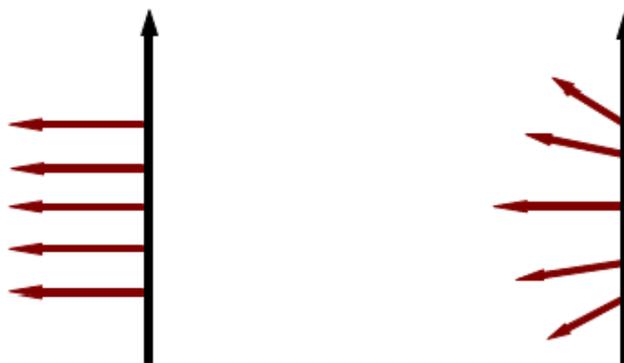


FIGURE 1.9 – Ordre magnétique dans le dysprosium ; à gauche ordre ferromagnétique ( $T < T_C$ ) ; à droite ordre hélimagnétique ( $T_C < T < T_N$ ).

Le magnétisme du dysprosium (comme toutes les terres-rares) est dit « localisé ». Dans le cristal, ses électrons restent localisés autour de leur noyau et se trouvent dans un état électronique assez proche de celui de l'atome ou de l'ion libre. Les orbitales  $4f$  sont de faible extension radiale, et ne se recouvrent donc pas entre elles (figure 1.10). De plus, les sous-couches  $5s$  et  $5p$  étant saturées, elles écrantent les couches  $4f$  des perturbations extérieures. Il ne peut donc y avoir d'échange direct entre atomes de terre-rare [22].

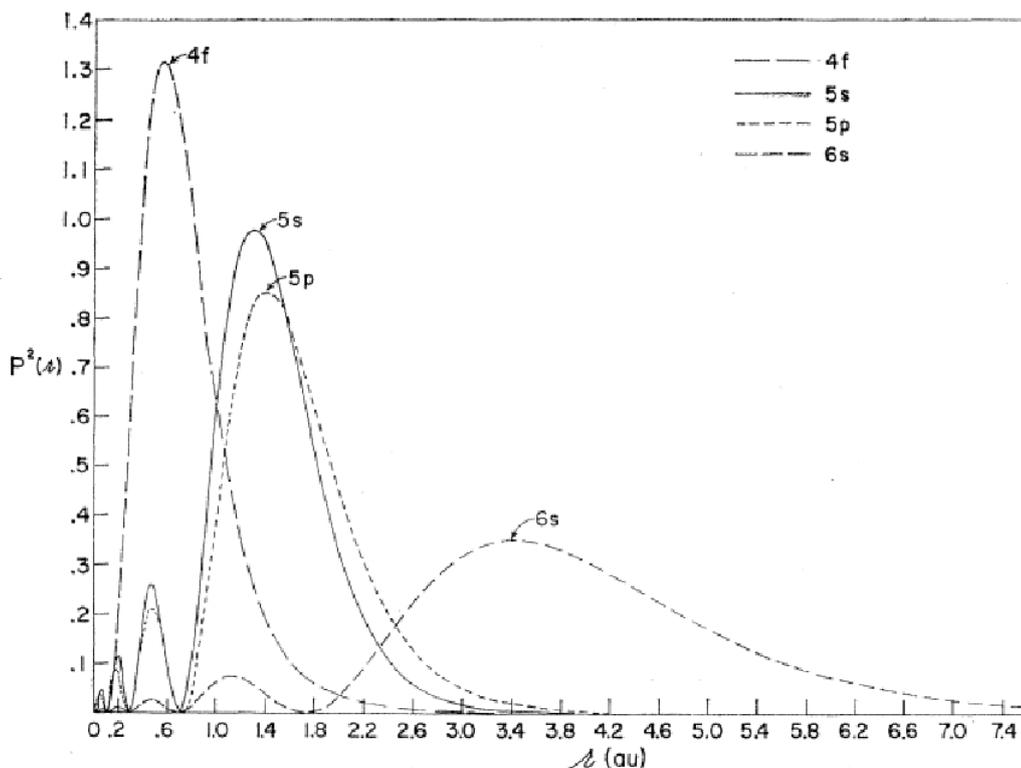


FIGURE 1.10 – Représentation schématique de la densité de charge des orbitales pour un atome de Gd qui montre le caractère fortement localisé de l'orbitale  $4f$  [23].

Le moment magnétique atomique expérimental du métal est très proche de la valeur théorique de l'ion trivalent  $Dy^{+3}$  (de structure électronique  $[Xe] 4f^9$ ). Ceci est lié au fait que les niveaux  $5d$  et  $6s$  sont étendus et se mélangent pour former une bande de conduction contenant trois électrons [24]. Les valeurs numériques sont les suivants : moment cinétique de spin ( $S = 5/2$ ), moment cinétique orbital ( $L = 5$ ), moment cinétique total ( $J = 15/2$ ), facteur de Landé ( $g = 4/3$ ), moment magnétique de l'atome de  $Dy$  théorique à saturation ( $m_{sat}^h/at = 10\mu_B$ ) et le moment magnétique observé ( $m_{sat}^{ob}/at = 10,33\mu_B$ ). On observe que la valeur théorique du moment magnétique à saturation diffère légèrement de la valeur observée car elle ne tient pas compte de la contribution des électrons de conduction [25].

### 1.2.2.2 L'yttrium

L'yttrium (Y) est un élément de structure électronique  $[Kr] 4d^1 5s^2$ . C'est un élément de transition d'apparence métallique, qui possède un comportement chimique proche de celui des lanthanides. L'yttrium est classé historiquement parmi les terres rares dont la couche  $4f$  est vide ce qui lui confère la particularité de présenter un moment magnétique très faible. Le moment magnétique atomique de l'yttrium dans le composé intermétallique  $YFe_2$  a été évalué expérimentalement à  $0,47\mu_B$  [26]. Il cristallise selon une structure hexagonale compacte ( $hc$ ), les dimensions de sa cellule unitaire à la température ambiante sont :  $a = 3,65 \text{ \AA}$ ,  $c = 5,73 \text{ \AA}$  et son rayon atomique est  $r_Y = 1,80 \text{ \AA}$ .

### 1.2.2.3 Anisotropie magnétique dans les terres-rares

La plupart des terres-rares cristallisent dans une structure hexagonale compacte ( $hc$ ). L'anisotropie magnétocristalline dans ces matériaux trouve son origine dans le couplage entre le nuage électronique  $4f$  et la distribution de charges extérieures de symétrie hexagonale.

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline dans les terres rares dépend fortement de l'orientation et de la configuration spatiale des orbitales  $4f$  (figure 1.11). L'équation 1.6 contient les termes spécifiques de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline, où les constantes  $K_i$ , appelées coefficients de Stevens [27, 28], dépendent de la température. Les angles ( $\theta$ ) et ( $\phi$ ) sont les

angles en symétrie hexagonale qui sont définis sur la figure 1.6. Le terme d'ordre 2 étant au moins dix fois supérieur au terme d'ordre 4, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline peut s'écrire, en première approximation :

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta. \quad (1.8)$$

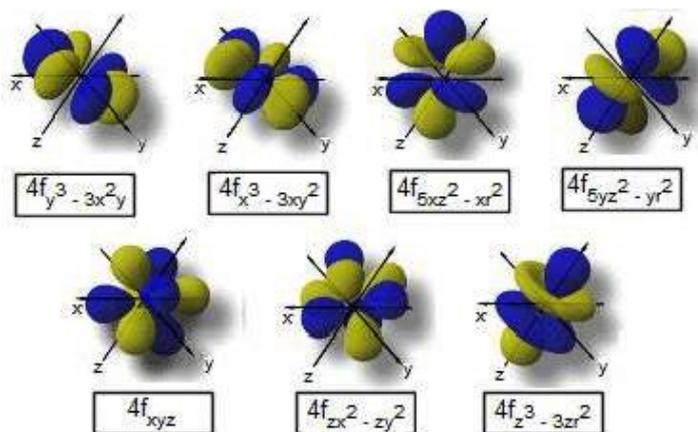


FIGURE 1.11 – Représentation des orbitales 4f [29].

La distribution spatiale des électrons des atomes de terres-rares est régie par l'échange et par le couplage spin-orbite, elle prend une forme asphérique en fonction du remplissage de la couche 4f. L'asphéricité de cette couche est caractérisée par le signe des coefficients de Stevens  $K_i$  de deuxième ordre, qui peut être positif lorsque la distribution est allongée dans la direction du moment, ou négatif lorsque la distribution est aplatie perpendiculairement à la direction de ce moment.

La distribution électronique ainsi déterminée est soumise au champ cristallin de l'environnement, lui aussi de symétrie non sphérique, notamment dans une structure uniaxiale. Ce champ cristallin est caractérisé par le paramètre de second ordre ( $A_2^0$ ) qui lui aussi peut avoir deux comportements différents (figure 1.12) [30] :

- $A_2^0 > 0$  les charges sur l'axe  $c$  sont négatives (répulsives pour les électrons), l'atome de TR peut être considéré comme aplati, perpendiculaire à l'axe  $c$  (figure 1.12 (a)) ;

- $A_2^0 < 0$  les charges sur l'axe  $c$  sont positives (attractives pour les électrons), l'atome de TR peut être considéré comme allongé le long de l'axe  $c$  (figure 1.12 (b)).

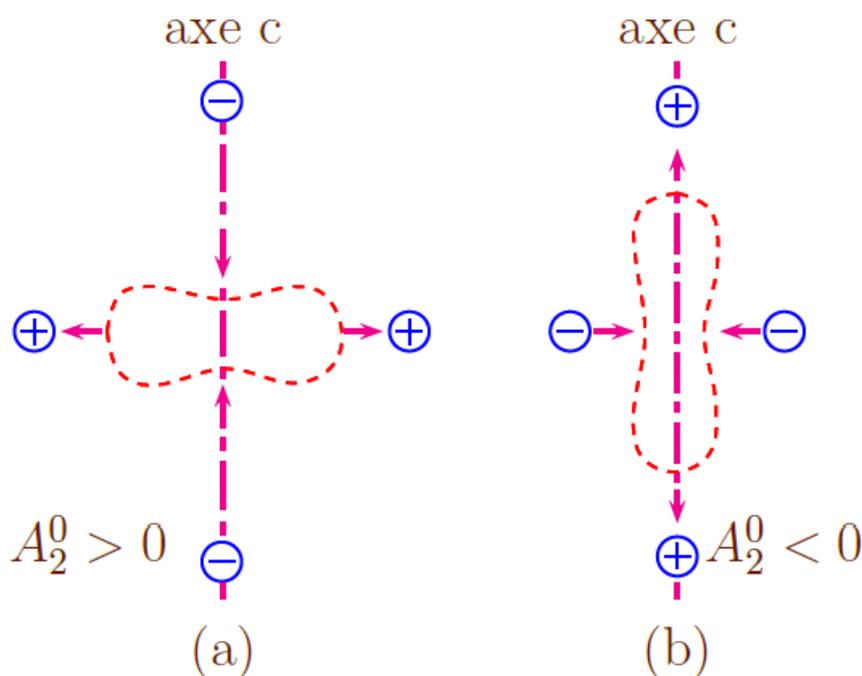


FIGURE 1.12 – Potentiel électrique créé par l'environnement cristallin dans les structures uniaxiales : (a) environnement aplati, perpendiculaire à l'axe  $c$  ; (b) environnement allongé le long de l'axe  $c$  [7].

Comme le montre la figure 1.13, d'après [31], lorsque  $K_i > 0$  la distribution est allongée dans la direction du moment comme dans le cas du samarium par exemple, et si  $K_i < 0$  la distribution est aplatie perpendiculairement à la direction du moment comme dans le cas du néodyme ou du dysprosium.

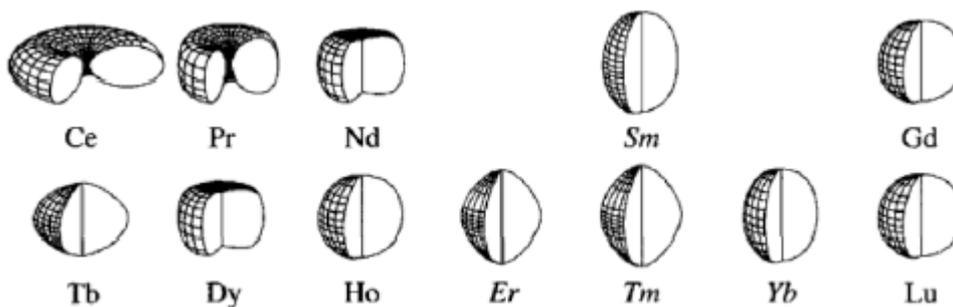


FIGURE 1.13 – Forme de la couche  $4f$  des atomes de TR.  $K_i < 0$  pour les terres-rares reportées à gauche avec une distribution aplatie.  $K_i > 0$  pour les terres-rares reportées à droite avec une distribution allongée [31].

L'orientation préférentielle se déduit des signes de  $K_i$  et de  $A_2^0$ . L'anisotropie magnétocristalline favorisée est planaire s'ils sont du même signe et axiale sinon. Dans une série de composés isostructuraux où seul l'élément de terre-rare change,  $A_2^0$  est stable. Le produit  $K_i \times A_2^0$  suffit alors à caractériser les différences d'amplitude d'interaction. Pour que l'axe  $c$  de la structure uniaxe soit de facile aimantation, la condition suivante doit être satisfaite :  $K_i \times A_2^0 < 0$ . Dans ce cas on doit avoir  $A_2^0 > 0$  avec  $K_i < 0$  (Nd) ou  $A_2^0 < 0$  avec  $K_i > 0$  (Sm) (figure 1.14).

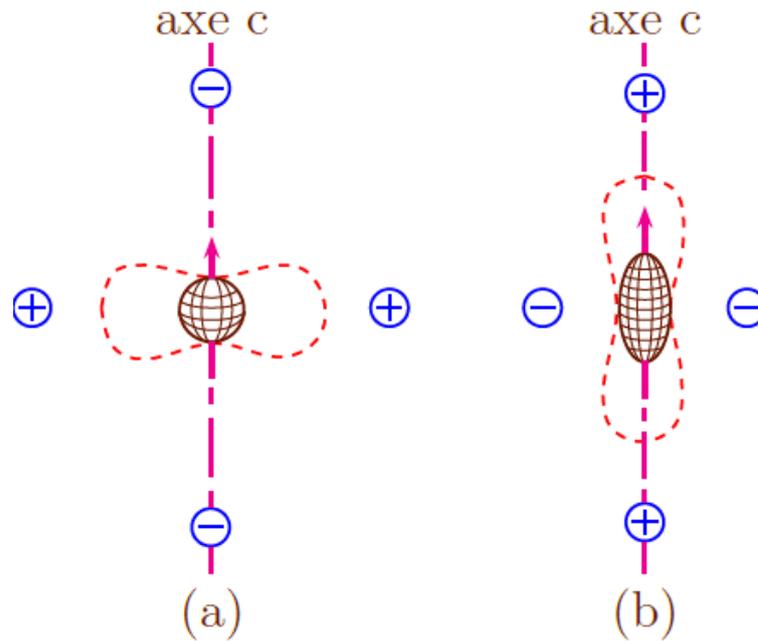


FIGURE 1.14 – Condition indispensable à l'obtention d'un axe de facile aimantation :  $A_2^0 > 0$  et  $K_i < 0$  (a) ;  $A_2^0 < 0$  et  $K_i > 0$  (b) [7].

Les terres rares présentent des constantes d'anisotropie  $K_1$  de l'ordre de  $10^7 - 10^8 J/m^3$ . Celle du Dy (de sous-couche  $4f$  presque saturée) est très supérieure à celle de l'Y (de sous-couche  $4f$  vide). A  $T = 0$  K la constante  $K_1$  du Dy est négative et vaut  $-8,06 \cdot 10^7 J/m^3$ , ce qui indique que la direction de facile aimantation est perpendiculaire à l'axe  $c$  et donc se trouve dans le plan de base (Oxy) [22].

### 1.3 Propriétés magnétiques de composés intermétalliques

Les composés intermétalliques à base de terres-rares ( $TR_n-A_m$ ) représentent une vaste famille qui peut être divisée en deux sous-groupes : celui dans lequel A porte un moment magnétique (Fe, Co...) et celui où A n'en porte pas (Al, Zn, Au...). De nombreuses études ont été

consacrées aux intermétalliques (TR-A<sub>2</sub>). Par exemple, les composés (TR-Fe<sub>2</sub>) ont été, et sont toujours, largement étudiés en raison de leurs propriétés de magnétostriction géante, ouvrant la voie à de nombreuses applications technologiques [32, 33].

Les intermétalliques composés d'éléments à base de terres-rares et de métaux de transition présentent les propriétés magnétiques les plus exceptionnelles. Ces composés mêlent les propriétés issues du magnétisme localisé de la couche 4*f* des terres-rares à celles dû au magnétisme itinérant des métaux de transition 3*d*. Les terres-rares apportent leur forte anisotropie grâce aux interactions entre leur moment orbital et le champ cristallin. Les métaux de transition apportent, quant à eux, leur forte aimantation et une température de Curie élevée grâce aux interactions d'échange importantes entre orbitales 3*d*. Cela est possible grâce au couplage (MT-TR) via les électrons de conduction *d* des deux éléments. Les interactions électron-électron sont fortes et donnent lieu à un renforcement du moment atomique. Le moment orbital *L* et le moment de spin *S* sont fortement couplés par le terme de couplage spin-orbite  $\lambda_{LS}$  [7].

L'ensemble des composés (TR-Fe<sub>2</sub>) cristallisent dans la structure cubique phase de laves de type MgCu<sub>2</sub>(C15), de groupe spatial  $Fd\bar{3}m$  (figure 1.15). Les atomes de TR occupent trois types de sites : les sommets du cube, le centre des faces et la moitié des sites tétraédriques. Ils forment ainsi une structure cubique diamant. Les atomes de fer forment un empilement de tétraèdres réguliers, reliés par leurs sommets, et sont centrés sur les sites tétraédriques non occupés par un atome de terre-rare.

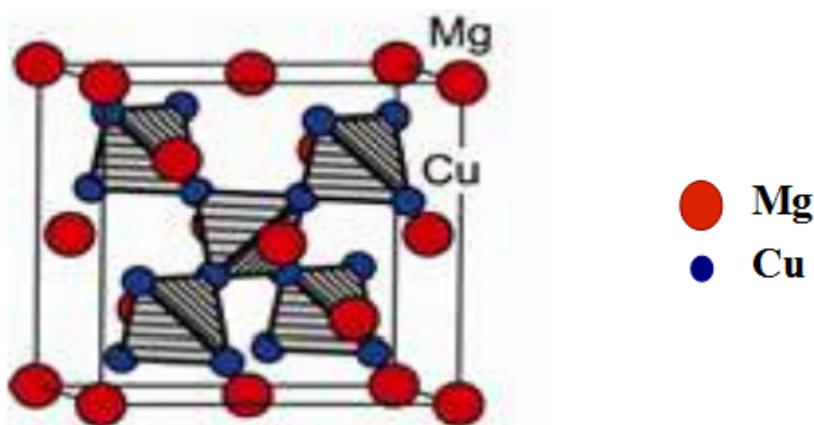


FIGURE 1.15 – Structure cubique phase de laves de type MgCu<sub>2</sub> (C15) dans laquelle cristallisent les composés (TR-Fe<sub>2</sub>) [7].

### 1.3.1 Interactions d'échange

Certains matériaux présentent un ordre magnétique en dessous d'une température donnée. Cet ordre magnétique est caractérisé par une aimantation spontanée résultant du couplage entre les moments magnétiques localisés sur chaque atome, qui vont interagir entre eux pour avoir différents comportements magnétiques tels que le ferromagnétisme, l'antiferromagnétisme et le ferrimagnétisme. Pour la description du magnétisme des composés MT-TR, on utilise un modèle prenant en compte trois types de couplages d'échange :

- l'échange  $3d - 3d$  (MT-MT) entre les moments magnétiques du sous-réseau des atomes de métal de transition ;
- l'échange  $4f - 4f$  (TR-TR) entre les moments magnétiques des atomes du réseau de terre-rare ;
- l'échange  $3d - 4f$  (MT-TR) entre les moments magnétiques des deux sous-réseaux de métal de transition-terre rare.

Les interactions entre moments magnétiques sont responsables de l'alignement des sous-réseaux de spins, elles peuvent être décrites à partir du Hamiltonien effectif de Heisenberg [34] :

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j. \quad (1.9)$$

$\mathbf{S}_i$  et  $\mathbf{S}_j$  représentent les vecteurs de spin des atomes  $i$  et  $j$  reliés respectivement aux moments magnétiques de ces mêmes atomes par les relations :

$$\mathbf{m}_i = -g_i \mu_B \mathbf{S}_i, \quad (1.10)$$

$$\mathbf{m}_j = -g_j \mu_B \mathbf{S}_j, \quad (1.11)$$

où  $J_{i,j}$  est l'intégrale d'échange entre les deux atomes  $i$  et  $j$ . Les interactions d'échange sont en général proportionnelles à  $1/r$  où  $r$  est la distance entre atomes ; elle est donc très intense

mais à courte portée, ce qui a pour conséquence qu'elle n'est généralement prise en compte qu'entre premiers voisins ce qui est symbolisé par les crochets  $\langle \rangle$  dans la somme (1.9). Le signe de l'intégrale d'échange renseigne directement sur la nature du couplage :

- si  $J_{i,j} > 0$ , les moments magnétiques s'orientent parallèlement entre eux afin de générer la configuration magnétique la plus stable énergétiquement, l'interaction est dite ferromagnétique ;
- si  $J_{i,j} < 0$ , les moments magnétiques s'orientent antiparallèlement entre eux, et l'interaction est antiferromagnétique.

### 1.3.1.1 Interactions d'échange dans les MT

Dans un métal de transition, l'interaction d'échange décrit le couplage entre deux moments intrinsèques de spins  $\mathbf{S}_i$  et  $\mathbf{S}_j$  qui est dû au fort recouvrement des orbitales  $3d$  puisque celles-ci sont spatialement étendues. En général, cette forte interaction détermine la température de transition des composés intermétalliques TR-Fe<sub>2</sub> [35].

Une analyse de la structure de bande du fer a montré que les structures non compactes (coordination locale faible) engendrent de fortes interactions ferromagnétiques alors que les structures compactes (coordination locale forte) conduisent à de faibles interactions ferromagnétiques, voire antiferromagnétiques [36, 37].

Les interactions d'échange de fer sont ferromagnétiques pour une distance interatomique supérieure à 2,47Å sinon elles sont antiferromagnétiques [38, 39]. Le diagramme de Slater-Néel montre qualitativement la variation de l'interaction d'échange en fonction du rapport entre la distance entre 2 atomes ( $r_a$ ) et le rayon de l'orbitale  $3d$  ( $r_{3d}$ ) dans les métaux de transition (figure 1.16). Dans le cas du fer, les interactions sont ferromagnétiques pour une distance interatomique  $d_{Fe-Fe} > 0,247nm$  et antiferromagnétiques en dessous.

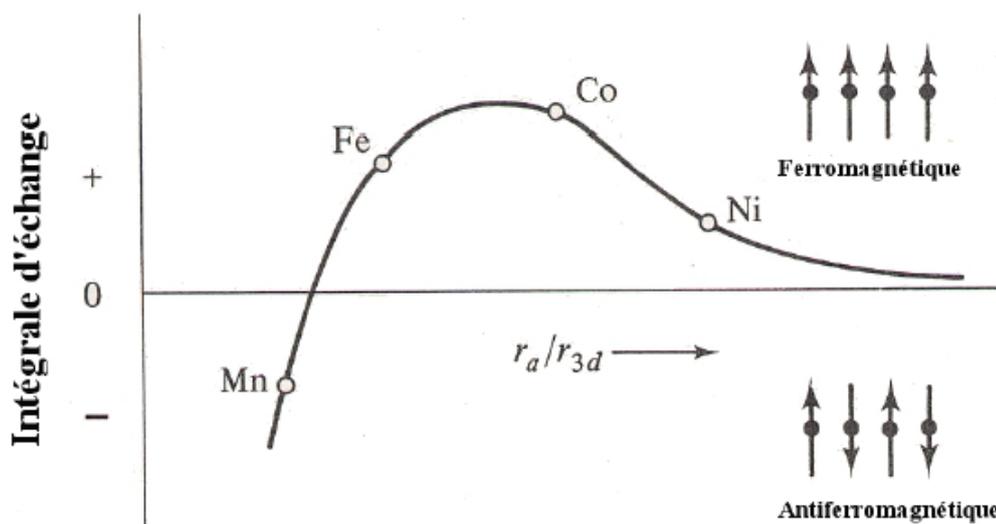


FIGURE 1.16 – Représentation schématique de la variation de l'interaction d'échange en fonction du rapport entre la distance entre 2 atomes ( $r_a$ ) et le rayon de l'orbitale 3d ( $r_{3d}$ ) [38, 39].

### 1.3.1.2 Interactions d'échange dans les TR

La conséquence de la faible extension spatiale de la couche 4*f*, qui est une couche interne localisée autour des sites atomiques d'extension inférieure aux distances interatomiques est la polarisation de spin (5*d* et 6*s*) de la bande de conduction, et l'interaction indirecte entre moments 4*f* localisés. Autrement dit, un spin  $S_i$  des électrons 4*f* localisé sur un atome  $i$  interagit avec les électrons de conduction en polarisant leur spin. Cette polarisation des spins des électrons de conduction interagit à son tour avec le spin  $S_j$  d'un atome voisin  $j$ , donnant ainsi une interaction indirecte entre les spins  $S_i$  et  $S_j$ . Il s'agit donc d'un mécanisme indirect qui a été introduit par Ruderman et Kittel en 1954, puis développé par Kasuya en 1956 et Yosida en 1957 d'où l'appellation d'interaction RKKY. L'intégrale d'échange caractérisant cette interaction est oscillante, amortie et alternativement positive et négative (figure 1.17).

De façon générale, les fonctions d'onde des électrons 4*f* localisées conduisent à de faibles interactions d'échange et donc de faibles températures de Curie.

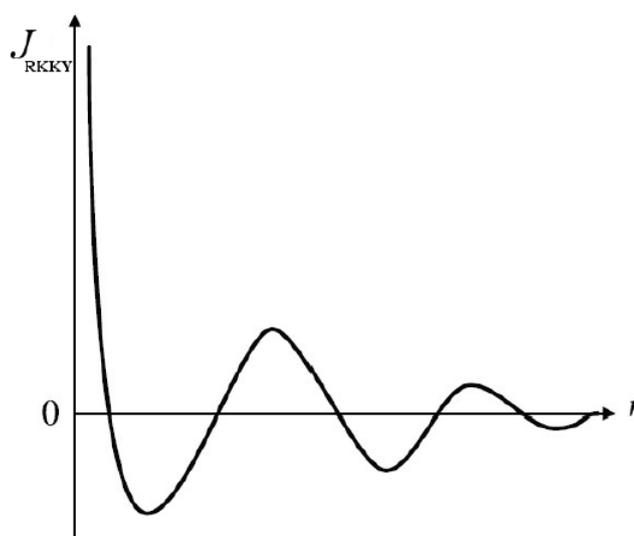


FIGURE 1.17 – Représentation schématique de l'oscillation de l'interaction d'échange de type RKKY entre deux moments magnétiques de TR distants de  $r$ .

### 1.3.1.3 Interactions d'échange entre MT et TR

L'interaction entre les atomes de terre-rare et les métaux de transition résulte du couplage entre le moment magnétique des électrons itinérants  $3d$  des MT et le moment magnétique localisé  $4f$  des TR.

I. A. Campbell [40] fut le premier à souligner que l'interaction MT-TR est un mécanisme indirect, mais différent de l'interaction RKKY car elle ne permettrait pas alors d'expliquer de façon adéquate les résultats expérimentaux. Il proposa un mécanisme d'échange où interviennent deux types d'interactions (figure 1.18) :

- une interaction locale directe intra-atomique ferromagnétique entre les moments  $4f$  et  $5d$  de la terre-rare qui contribue à augmenter le moment  $5d$  de la TR. Toutefois, son effet serait négligeable sans une hybridation des bandes  $5d$  de la terre rare et  $3d$  du métal de transition car la bande  $5d$  est quasiment vide et la bande  $3d$  est quasiment pleine ;
- une interaction antiferromagnétique directe entre les spins  $3d$  du MT et  $5d$  de la TR. Elle est basée sur une hybridation des bandes de conduction  $3d$  et  $5d$  et sur la polarisation des électrons  $5d$  de la terre-rare (formation d'un moment magnétique  $5d$  induit). D'après

I. A. Campbell, cette interaction étant prédominante, elle contrôle ce couplage.

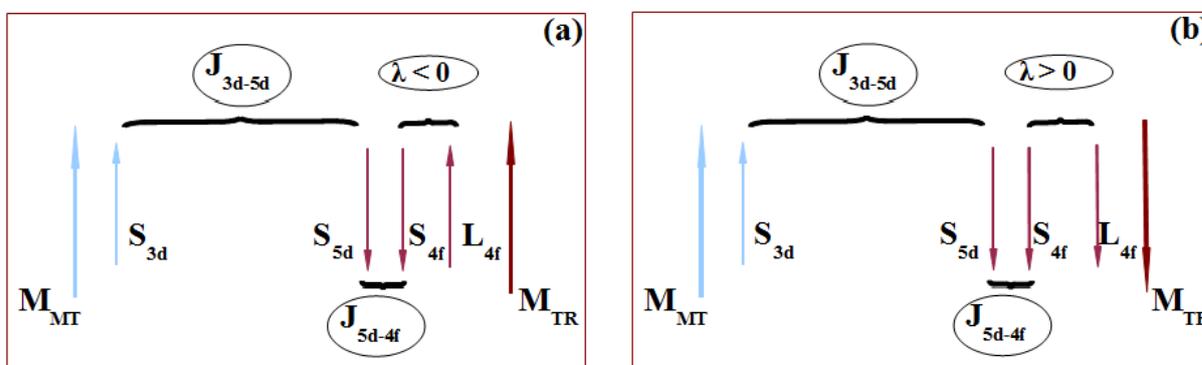


FIGURE 1.18 – Représentation schématique des interactions entre un atome de métal de transition MT et un atome de terre-rare TR ( TR légère (a) et TR lourde (b)).

Des études sur les alliages cristallins MT-TR ont montré que l'interaction d'échange  $|J_{MT-TR}|$  croît et que le moment magnétique du MT diminue lorsque la concentration en atomes de TR augmente [41, 42]. Ce phénomène s'explique par l'accroissement de l'hybridation  $3d - 5d$  lorsque la concentration en TR augmente, et a pour conséquences :

- de polariser les électrons  $5d$  de la TR (existence d'un spin induit  $S_{5d}$ ) ;
- de renforcer le couplage  $3d - 5d$ , donc d'augmenter l'interaction  $|J_{MT-TR}|$  ;
- de diminuer le moment magnétique du MT et d'augmenter l'interaction  $J_{MT-MT}$ .

Elle permet de transmettre la forte anisotropie magnétocristalline des atomes de TR aux atomes de MT à basse température [35, 43].

Finalement, les moments magnétiques atomiques des TR sont orientés antiparallèlement à ceux des MT, ce qui caractérise une interaction antiferromagnétique. En conclusion, dans les composés intermétalliques MT-TR, les moments magnétiques des atomes de terres-rares ont un arrangement ferromagnétique, il en est de même pour les moments des atomes du métal de transition tandis que les moments magnétiques atomiques de terres-rares présentent vis-à-vis de ceux du métal de transition un ordre antiferromagnétique.

### 1.3.2 Anisotropie magnétique dans les multicouches

Les multicouches magnétiques présentent des comportements différents et des fonctionnalités nouvelles par rapport aux matériaux massifs, notamment l'anisotropie magnétique exaltée. Deux principaux types d'interactions sont à l'origine de l'anisotropie magnétique :

- l'interaction dipolaire (de longue portée) est à l'origine de l'anisotropie de forme, qui tend à orienter l'aimantation suivant la plus grande dimension de l'échantillon ;
- l'interaction spin-orbite couple l'aimantation au réseau cristallin ; elle donne lieu à l'anisotropie magnétocristalline qui traduit l'existence d'un terme d'énergie libre dépendant de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallins.

A courte distance les interactions dipolaires entre moments magnétiques sont négligeables devant les interactions d'échange. Nous les négligerons donc dans le cadre de cette étude mais nous tiendrons compte de l'influence de l'anisotropie magnétocristalline qui joue un rôle important dans les multicouches étudiées ici.

#### 1.3.2.1 Anisotropie de forme

L'anisotropie de forme (appelée aussi anisotropie dipolaire) correspond à la contribution des charges magnétiques fictives en surface (ou aux interfaces). L'énergie d'interaction dipolaire entre deux moments magnétiques  $\mathbf{m}_i$  et  $\mathbf{m}_j$  s'écrit :

$$E_{ij} = \frac{\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5}. \quad (1.12)$$

Cette interaction est anisotrope, car elle dépend de la direction des spins. Dans l'approximation du milieu continu, l'énergie dipolaire est alors l'énergie d'interaction entre l'aimantation et le champ dipolaire.

Dans le cas d'un film infini aimanté uniformément, le champ dipolaire est créée par de pseudo-charges magnétiques situées sur les surfaces du film, avec des densités valant respectivement  $+M_s \cos \theta$  et  $-M_s \cos \theta$  où  $M_s$  est l'aimantation et  $\theta$  l'angle entre la direction de l'aimantation et la normale au film. Dans le cas où l'aimantation est uniforme, l'énergie dipolaire prend la forme d'une anisotropie effective, proportionnelle au volume  $V$  du film :

$$E_{dip} = V2\pi M_s^2 \cos^2 \theta. \quad (1.13)$$

Le champ créé par les "pseudocharges" magnétiques est opposé à la composante normale de l'aimantation, et vaut  $4\pi M_s$  lorsque celle-ci est perpendiculaire au plan ; ce champ, appelé champ démagnétisant, s'oppose à l'aimantation, et l'oblige à s'orienter parallèlement au plan.

Dans le cas général où l'aimantation est non uniforme, l'énergie dipolaire est non locale, et prend une forme beaucoup plus compliquée que celle de l'équation (1.13). Cependant, les résultats obtenus par Draaisma et al [44] sur les couches minces mettent en évidence la validité de l'approximation du milieu continu.

### 1.3.2.2 Anisotropie magnétocristalline

Considérons un cristal cubique : sa haute symétrie interdit les termes d'anisotropie d'ordre inférieur à 4 ; par contre, si nous prenons une couche mince (001) de ce cristal cubique, la symétrie est brisée, puisque la direction perpendiculaire au film n'est plus équivalente aux autres axes cubiques ; un terme d'anisotropie d'ordre 2 est alors permis. Par ailleurs, ce terme d'ordre 2 doit tendre vers zéro pour une épaisseur tendant vers l'infini, de façon à retrouver la situation du cristal massif.

L. Neel a été le premier à s'intéresser à l'anisotropie magnétocristalline résultant de cette rupture de symétrie [45, 46]. Il a considéré l'anisotropie d'atomes situés à la surface d'un cristal massif, à l'aide d'un modèle phénoménologique simple, il a montré que l'environnement dissymétrique de ces atomes leur confère une anisotropie différente de celle d'atomes situés à l'intérieur du cristal.

Dans les couches minces cet environnement est souvent modifié par rapport au matériau massif, induisant une anisotropie magnétique spécifique, qui donne lieu à deux contributions, l'anisotropie d'interface et l'anisotropie magnéto-élastique.

### 1.3.2.3 Anisotropie d'interface

L'anisotropie correspondante est confinée à la (ou aux) première(s) couche(s) atomique(s), de sorte qu'elle est décrite non pas par une densité volumique, mais par une densité surfacique. L'énergie d'anisotropie d'atomes de surface peut être 100 à 1000 fois plus importante que celle des atomes de volume ! Il s'agit donc d'un effet de surface quantitativement très important, et susceptible de conséquences spectaculaires.

Dans le cas d'une surface de haute symétrie ((001) ou (111)), l'anisotropie de surface est uniaxiale, et la densité surfacique correspondante peut s'écrire :

$$\frac{E_s}{S} = K_s \sin^2 \theta, \quad (1.14)$$

où  $\theta$  est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan, et  $K_s$  est une constante d'anisotropie de surface. Conventionnellement, chacune des deux surfaces (ou interfaces) du film contribue avec une constante d'anisotropie, de sorte que l'énergie d'anisotropie totale prend la forme :

$$E_a = [V(K_v - 2\pi M_s^2) + S(K_{s_1} + K_{s_2})] \sin^2 \theta. \quad (1.15)$$

Dans l'équation (1.15)  $K_{s_1}$  et  $K_{s_2}$  sont les constantes d'anisotropie respectives des deux interfaces,  $K_v$  la constante d'anisotropie de volume (qui peut être non nulle, par exemple pour un cristal *hc*), et  $(-V2\pi M_s^2 \sin^2 \theta)$  est l'anisotropie d'origine dipolaire. Dans une étude expérimentale de l'anisotropie (par mesure de couple, ou par résonance ferromagnétique), la quantité mesurée est généralement une constante volumique effective  $K_v^{eff}$ , donnée par :

$$K_v^{eff} = K_v - 2\pi M_s^2 + \frac{(K_{s_1} + K_{s_2})}{e}, \quad (1.16)$$

où  $e$  est l'épaisseur du film. L'anisotropie effective varie linéairement en fonction de  $\frac{1}{e}$ .

Etant donné que  $K_V$  est généralement inférieur à  $2\pi M_s^2$ , ce dernier terme est dominant aux épaisseurs importantes, de sorte que la direction de facile aimantation est parallèle au plan. En revanche, si le terme de surface  $K_s$  est positif, il peut, en dessous d'une épaisseur critique  $e_c$ , surpasser l'anisotropie dipolaire, et donner lieu à une direction de facile aimantation perpendiculaire au plan. La valeur de l'épaisseur critique est :

$$e_c = \frac{2K_s}{2\pi M_s^2 - K_V}. \quad (1.17)$$

La dépendance linéaire en  $1/e$  de l'anisotropie a été observée pour la première fois par Gradmann et Müller [47], pour des films d'alliage  $Ni_{48}Fe_{52}$ . Dans le cas d'un film, la valeur indiquée pour l'anisotropie de surface  $K_s$  correspond à la valeur moyenne sur les deux interfaces, elle varie largement d'un système à l'autre, y compris en signe ; toutefois, l'ordre de grandeur observé est toujours compris entre 0,1 et  $1 \text{ erg.cm}^{-2}$ , ce qui correspond précisément à l'évaluation de Néel [45, 46].

Les épaisseurs critiques au-dessous desquelles on obtient un axe de facile aimantation perpendiculaire au plan sont très faibles (généralement 1 ou 2 plans atomiques) ; la valeur la plus importante (environ 6 plans atomiques) est celle observée par Chappert et *al.* [48] sur les films Au/Co/Au qui sont étudiés également par P. Bruno [49].

Dans le cas des surfaces de basse symétrie comme le fer (110) pour des épaisseurs inférieures à environ  $100 \text{ \AA}$ , Prinz et *al* [50], et Gradmann et *al* [51] ont observé un changement d'axe de facile aimantation dans le plan de  $[001]$  à  $[1\bar{1}0]$ , l'observation d'une telle anisotropie constitue ainsi une évidence de la structure monocristalline.

#### 1.3.2.4 Anisotropie magnéto-élastique

L'énergie magnéto-élastique est une correction faite à l'énergie magnéto-cristalline et liée à une déformation de la maille cristalline, en taille et/ou en symétrie. Dans le massif, la déformation est appliquée par un opérateur extérieur au système pendant une mesure. Dans une

couche mince, il existe toujours des déformations même en l'absence d'opérateur extérieur, car le substrat ou la sous-couche de dépôt, d'une symétrie et taille de maille cristalline (ou amorphe) données, contraint au cours de la croissance le matériau magnétique déposé, d'une autre symétrie et/ou taille de maille.

Les contraintes liées au refroidissement ou au réchauffement d'une couche après sa fabrication peuvent également être importantes. Il s'ensuit dans la couche magnétique un champ de déformation statique, généralement non homogène [52]. Son intensité peut atteindre plusieurs pourcents en couches minces. Au premier ordre, l'énergie d'anisotropie magnéto-élastique est linéaire avec les différentes déformations :  $K_{mel} \sim B_{mel}\varepsilon$ , avec  $\varepsilon \sim 1/e$ , impliquant que la variation de l'anisotropie magnéto-élastique  $K_{mel}$  avec l'épaisseur de la couche mince  $e$  est donc similaire à celle de l'anisotropie d'interface.

### 1.3.2.5 Anisotropie induite par la méthode de dépôt

Le choix ou l'optimisation d'une méthode de dépôt sont d'autres moyens courants pour ajuster l'anisotropie à une valeur différente de celle du massif. Par exemple, l'anisotropie perpendiculaire des composés TbFeCo amorphes [53] utilisés pour l'enregistrement magnéto-optique est induite par le dépôt par pulvérisation cathodique, par une structuration ou une incorporation de gaz [52]. Une anisotropie selon un axe du plan peut être induite par un dépôt sous incidence oblique, par une structuration de la surface de dépôt comme par exemple pour les disques durs. Un autre exemple dans le cas des matériaux doux est le Permalloy ( $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ ) [54] pour lequel on observe une anisotropie induite par un dépôt sous champ magnétique.

# Chapitre 2



## Chapitre 2

# Simulations numériques et modélisation

La simulation numérique se situe à mi-chemin entre la théorie et l'expérience sans pour autant se substituer à l'une ou l'autre. Théorie, simulation et expérience sont entre elles dans un rapport d'interdépendance. La simulation a besoin d'un modèle théorique pour sa formulation et de résultats expérimentaux pour sa validation. Sa démarche tient à la fois de l'approche théorique et de la démarche expérimentale. La façon dont les simulations sont menées et analysées a conduit à la qualifier "d'expériences numériques". C'est sa double fonction d'outil théorique et d'expérience numérique qui lui donne toute sa richesse et permet de dire qu'elle constitue une troisième voie scientifique complémentaire de la théorie et de l'expérience.

Ce chapitre est destiné à décrire les techniques de modélisation des propriétés magnétiques d'un système intermétallique à base de métaux de transition MT et de terres rares TR par simulation numérique. Il s'agit de modéliser la structure et les interactions prépondérantes, et de choisir l'algorithme adapté pour réaliser cette étude. Pour la détermination des propriétés physiques à l'équilibre, dans un premier temps, nous avons utilisé la méthode Monte Carlo MC dans l'ensemble canonique qui nous permet d'accéder aux principales grandeurs physiques, telles que l'énergie magnétique, l'aimantation, l'aimantation par plan, la chaleur spécifique et la susceptibilité magnétique. Dans un deuxième temps, pour la détermination de cycles d'hystérésis qui constituent une information essentielle du point de vue expérimental, nous avons adopté la méthode Monte Carlo quantifiée en temps qui permet de simuler la barrière d'énergie afin d'accéder aux grandeurs physiques hors équilibre.

## 2.1 Méthode de simulation Monte Carlo

### 2.1.1 Généralités

La naissance de la méthode Monte Carlo MC remonte au comte de Buffon qui, en 1777, posa le problème célèbre dit « des aiguilles » que Laplace reformula en 1812 pour en déduire une méthode de calcul de  $\pi$  basée sur la réalisation d'expériences répétées [55]. L'origine véritable de cette méthode est liée à l'apparition des premiers ordinateurs et à leur utilisation dans le cadre des projets secrets du département de la défense des États-Unis dans les années 1940 – 1945. Le développement de la méthode de Monte Carlo s'est effectué, sous l'impulsion de J. Von Neumann, S. Ulam et N. Metropolis notamment, lors de la Seconde Guerre mondiale et des recherches sur la fabrication de la bombe atomique à Los Alamos (projet Manhattan). Ces chercheurs ont notamment utilisé des méthodes probabilistes pour résoudre des équations aux dérivées partielles ; le nom de cette méthode a alors été proposé, en référence aux jeux de hasard pratiqués dans un célèbre casino de Monaco.

### 2.1.2 Description de la Méthode Monte Carlo

La simulation Monte Carlo est une technique numérique qui permet notamment d'évaluer des intégrales multidimensionnelles, dont le calcul des grandeurs magnétiques dans l'ensemble canonique fait partie. On utilisera la méthode de recuit simulé [56–58], qui consiste en un refroidissement lent de l'échantillon. L'équilibre thermodynamique à chaque température correspondant à la minimisation de l'énergie libre du système est obtenu au moyen de l'algorithme de Metropolis [59–61]. La simulation débute initialement à haute température dans la phase paramagnétique, à partir d'une configuration magnétique initiale aléatoire.

La méthode Monte Carlo est une méthode stochastique. Elle est basée sur le principe des chaînes de Markov. Cette méthode consiste à générer une suite de  $n$  configurations  $(X_1, \dots, X_n)$  de telle sorte que la densité de probabilité  $P_n(X)$  converge vers une densité d'équilibre  $P(X)$ . Dans notre cas, chaque configuration  $X$  est un élément de l'espace des phases  $\Omega$  et correspond

à un ensemble de  $N$  spins  $X = (S_1, \dots, S_j, \dots, S_N)$ . La probabilité de transition  $W(X \rightarrow X')$  de l'état  $X$  vers l'état  $X'$  doit satisfaire la relation dite "condition de stationnarité" :

$$\forall X, X' \in \Omega, \quad \sum_{X'} W(X', X) P(X') = \sum_{X'} W(X, X') P(X). \quad (2.1)$$

Cette relation exprime l'égalité des probabilités de transition d'un état  $X$  vers un état  $X'$  et d'un état  $X'$  vers un état  $X$ , que l'on peut formuler autrement : le nombre de déplacements acceptés quittant l'état  $X$  doit être exactement égal au nombre de déplacements conduisant à l'état  $X$  à partir de tous les autres états  $X'$ .

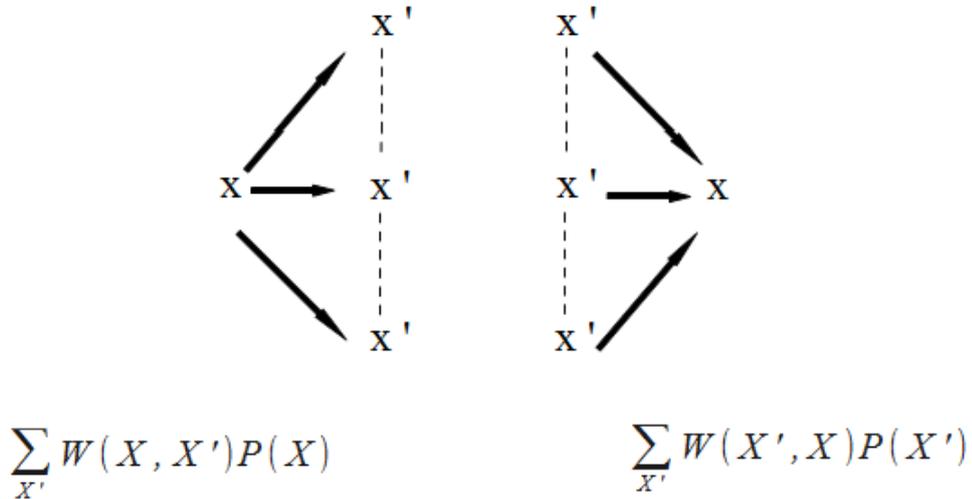


FIGURE 2.1 – Représentation schématique de déplacements acceptés quittant et conduisant à l'état  $X$ .

Dans les faits, cette condition (relation 2.1) est généralement remplacée par une autre plus restrictive appelée "condition de réversibilité microscopique" :

$$W(X', X) P(X') = W(X, X') P(X). \quad (2.2)$$

Il s'agit d'une condition suffisante mais non nécessaire pour assurer la convergence vers  $P(X)$ . Il existe de fait une grande liberté dans le choix des probabilités de transition pour une même distribution d'équilibre.

## 2.1.3 Simulation des propriétés magnétiques à l'équilibre

### 2.1.3.1 Algorithme de Metropolis

Dans la pratique, en raison de la dimension de l'espace des phases, nous sommes incapables de déterminer directement la fonction de partition

$$Z(N, V, T) = \int e^{\left(\frac{-E}{k_B T}\right)} dV = \int \dots \int e^{\left(\frac{-E(p^N, q^N)}{k_B T}\right)} dp^N dq^N \quad (2.3)$$

de l'ensemble canonique (système dont le nombre de particules et la température sont constants et qui échange uniquement de la chaleur avec l'extérieur à la température  $T$ ) d'un système composé de  $N$  particules.

Par exemple dans le cas du modèle d'Ising bidimensionnel de 1024 spins (réseau carré de  $32 \times 32$  spins), la somme dans  $Z$  comprend  $2^{1024} \sim 10^{308}$  termes ! Le calcul exact, même avec un ordinateur, ne permet pas de dépasser un système de taille  $8 \times 8$  soit 64 spins !

En revanche, nous sommes en mesure de calculer la moyenne canonique d'une grandeur physique par l'utilisation de l'algorithme de Metropolis, qui est un algorithme particulier de la méthode Monte Carlo [61]. La distribution de probabilité à l'équilibre, à la température  $T$ , est alors :

$$P_T(X) = \frac{e^{-\frac{E(X)}{k_B T}}}{\sum_X e^{-\frac{E(X)}{k_B T}}} \quad , \quad (2.4)$$

et la condition de réversibilité microscopique conduit à :

$$\frac{W(X \rightarrow X')}{W(X' \rightarrow X)} = \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad , \quad (2.5)$$

avec

$$\Delta E = E(X') - E(X) \quad . \quad (2.6)$$

Dans l'algorithme de Metropolis, le passage d'une configuration  $X$  à une configuration  $X'$  se fait par rotation d'un seul spin à la fois :

$$X = (S_1, \dots, S_i, \dots, S_N) \rightarrow X' = (S_1, \dots, S'_i, \dots, S_N) \quad (2.7)$$

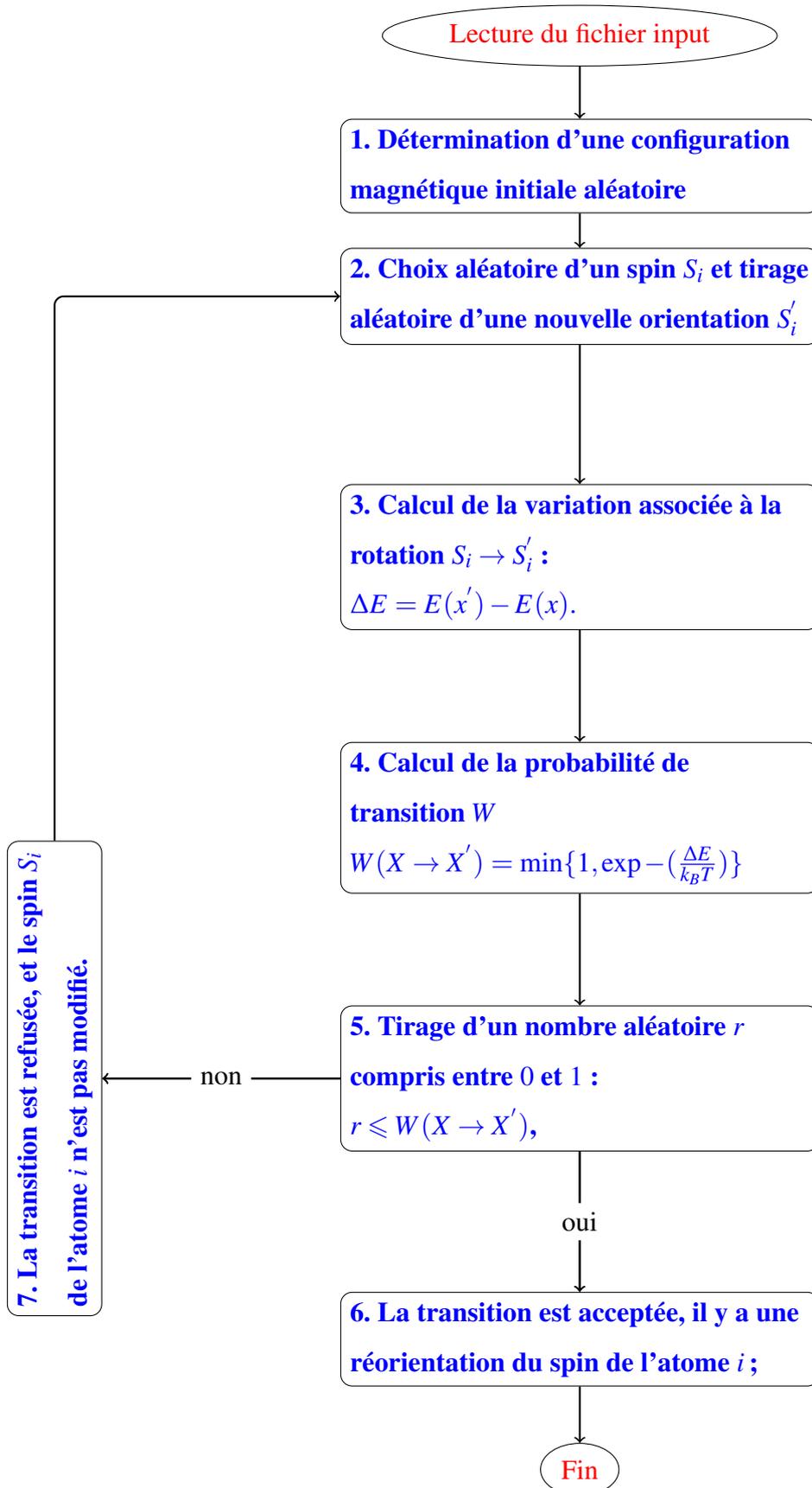
Le choix de Metropolis consiste à prendre  $W(X \rightarrow X')$  qui vérifie la relation (2.5), d'où :

$$W(X \rightarrow X') = \min\left\{1, \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right)\right\}. \quad (2.8)$$

Il en résulte que :

- si  $\Delta E \leq 0$ , la transition qui correspond à une diminution de l'énergie a toujours lieu ;
- si  $\Delta E \geq 0$ , la transition qui correspond à une augmentation de l'énergie peut se produire avec une probabilité  $\exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) < 1$ , afin de tenir compte de l'agitation thermique.

## 2.1.3.2 Organigramme de l'algorithme de Metropolis



Si le système contient  $N$  spins, les opérations 2 à 6 sont alors répétées  $N$  fois afin d'examiner en moyenne une fois chacun des spins : ceci constitue une itération ou un pas Monte Carlo. Le choix du nombre de pas MC, à chaque valeur du champ magnétique, doit permettre aux spins d'avoir suffisamment de temps pour passer d'un état à un autre. Par ailleurs, dans notre modèle les spins sont examinés aléatoirement et non dans un ordre précis pour ne pas introduire d'anisotropie artificiellement.

### 2.1.3.3 Méthode du recuit simulé

Les systèmes naturels évoluent spontanément vers un minimum de l'énergie libre ( $F = U - TS$ ) qui contient l'énergie interne du système  $U$  et le terme entropique  $TS$ . Pour déterminer ce minimum de l'énergie libre, le système explore toutes les configurations possibles de l'espace des phases. Du point de vue numérique, le problème qui se pose à nous est donc de savoir comment déterminer ce minimum de l'énergie globale.

La méthode la plus utilisée aujourd'hui est celle du « Recuit Simulé » dite également « relaxation lente » introduite par Kirkpatrick et al [56–58]. Cette méthode a permis de résoudre des problèmes très complexes pour lesquels les méthodes déterministes sont rapidement confrontées au problème de piégeage dans des minima locaux. Elle s'inspire directement de la thermodynamique statistique d'où son idée de simuler numériquement une opération de recuit thermique.

A température nulle, le système évolue à partir d'une configuration vers la (ou les) configuration(s) d'énergie la plus basse par une méthode de type gradient. Par conséquent, dans le cas d'un système frustré, la configuration atteinte est le plus souvent un état métastable, dont l'énergie est supérieure à celle du minimum absolu. Le système est en quelque sorte piégé dans ce minimum local (figure 2.2).

A haute température, les processus probabilistes permettent au système de franchir les barrières d'énergie séparant les vallées [62]. Le caractère probabiliste des changements de configurations peut permettre au système de remonter la pente et de ressortir du bassin d'attraction d'un minimum relatif, pour accéder à un autre bassin plus profond. Idéalement, pour

se rapprocher du minimum, il faudrait que la température soit assez grande pour permettre au système de franchir les barrières et qu'elle soit assez faible pour qu'il soit malgré tout attiré vers le fond des vallées.

De façon imagée, on peut décrire le processus de recherche du minimum d'énergie de la façon suivante : il est possible d'envisager une double dynamique : celle de la recherche des minima à température fixée, ainsi qu'une dynamique de diminution de la température. Si l'on part d'une température élevée, toutes les configurations sont accessibles et le système n'a qu'une faible préférence pour les états de faible énergie.

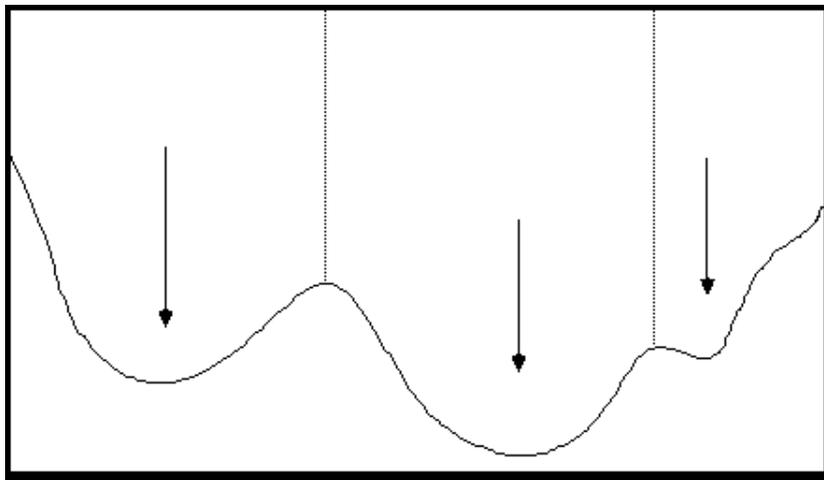


FIGURE 2.2 – Représentation d'un paysage arbitraire d'énergie. Suivant les positions des minima locaux, indiquées par les flèches, la dynamique aboutit à température nulle dans un quelconque des minima relatifs, séparés par les barrières indiquées en pointillés.

En diminuant progressivement la température, on permet au système de rechercher des bassins d'attractions relativement larges au début, tout en lui évitant d'être piégé par les attracteurs métastables. Le nombre des configurations accessibles dépend de la température : aux températures moyennes le système semble surtout sensible aux traits les plus grossiers du paysage dynamique (figure 2.2). En diminuant lentement la température, on évite de piéger le système dans des vallées d'énergie élevée, pour l'envoyer vers les bassins les plus importants et les plus profonds, là où les baisses ultérieures de température le précipiteront vers les minima.

Dans notre cas où le système est magnétique, nous suivons son évolution à chaque température en appliquant l'algorithme de Metropolis afin de déterminer les configurations magnétiques minimisant globalement l'énergie du système. La méthode débute à haute température (au-dessus de la température de transition magnétique pour ne pas figer le système dans un minimum local de l'énergie) dans l'état désordonné. Puis le système est refroidi lentement afin de provoquer sa mise en ordre progressive avec la diminution de la température.

A haute température, le système est désordonné (état paramagnétique) puisque la probabilité de transition  $W(X \rightarrow X')$  est proche de 1 (quelle que soit la variation d'énergie  $\Delta E$ ) et toutes les configurations locales sont équiprobables.

A basse température, la probabilité de transition est quasiment nulle pour toutes les configurations qui ne diminuent pas l'énergie du système. Donc il se met en ordre progressivement lorsque la température décroît et finit par se figer dans un état stable (ou métastable) lorsque la température tend vers 0 K.

L'importance de la technique du recuit simulé (relaxation lente) est de refroidir lentement le système ce qui lui permet de ne pas rester bloqué dans un minimum relatif de l'énergie et donc de converger vers le minimum absolu, c'est-à-dire vers l'état fondamental du système, du moins tant que le système ne présente pas trop de frustration. A chaque température, on observe un temps de thermalisation correspondant au temps nécessaire pour que le système atteigne l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire pour qu'il oublie la configuration magnétique initiale à la température considérée (figure 2.3).

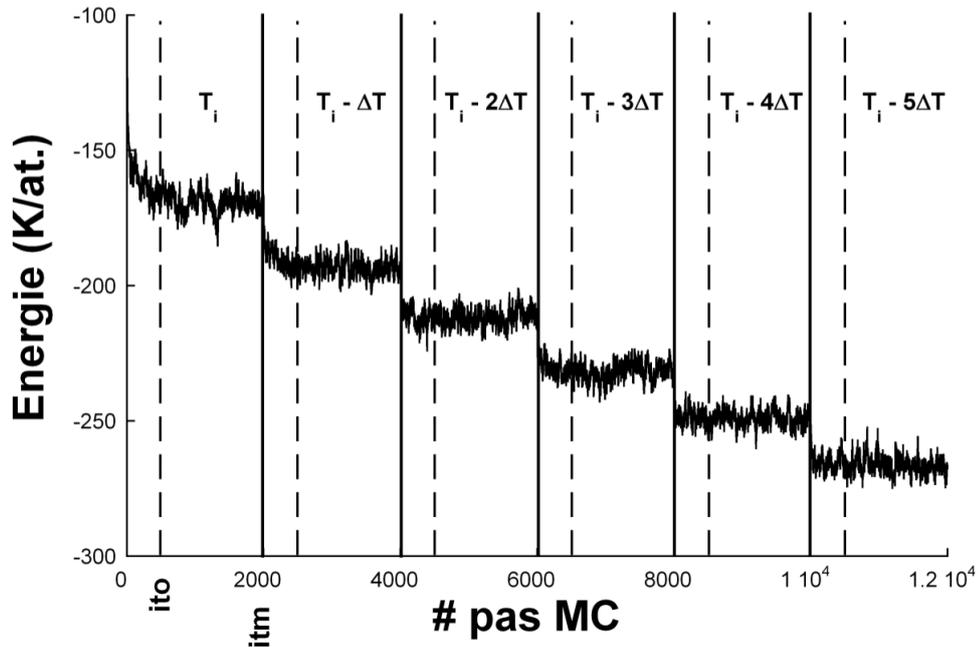


FIGURE 2.3 – Représentation schématique de la variation d'énergie au cours du processus de recuit simulé en fonction du nombre de pas MC simulés .  $ito$  correspond au nombre d'itérations consacrées à la thermalisation,  $itm$  est le nombre total d'itérations, la température décroît périodiquement de  $\Delta T$  [22].

#### 2.1.3.4 Impact du choix de la température et du nombre d'itérations sur l'évolution du système

Pour que le système converge vers l'une des configurations les plus stables à basse température, on doit choisir correctement les paramètres d'évolution en température, c'est-à-dire la température initiale  $T_i$  et le pas en température  $\Delta T$ . Afin que toutes les configurations locales soient équiprobables la température initiale doit être suffisamment élevée. Pour cela, on impose généralement une température initiale supérieure à la température de transition magnétique, afin de ne pas bloquer le système dans un minimum local de l'énergie. Par ailleurs, afin qu'il ne soit pas gelé dans une configuration correspondant à un minimum relatif d'énergie différent de l'état fondamental dans le cas où la vitesse de refroidissement est trop élevée, il est nécessaire de bien choisir le pas en température  $\Delta T$ .

Dans ces conditions, nous avons choisi d'appliquer une décroissance linéaire de la température ( $T_{K+1} = T_K - \Delta T$ ). Le pas en température est constant durant toute la simulation,

$\Delta T \leq 10\text{K}$ , afin d'avoir un bon accord entre un refroidissement suffisamment lent et des temps de calcul raisonnables. Si le système est grand ou fortement frustré, il sera nécessaire de réaliser un grand nombre de pas Monte Carlo de thermalisation (*ito*) afin de converger vers l'énergie du système à la température considérée.

Le choix du nombre total de pas Monte Carlo (*itm*) à chaque température dépend du type d'étude que l'on souhaite réaliser. Par exemple, on utilise un grand nombre de pas Monte Carlo sur une faible gamme de températures autour de la température de transition ( $T_i > T_c > T_f$ ) si l'on s'intéresse aux propriétés critiques. Mais si l'on souhaite seulement déterminer l'état stable à très basse température, on parcourra une large gamme de températures et un refroidissement lent avec un faible nombre d'itérations à chaque température [22].

### 2.1.3.5 Calcul des grandeurs thermodynamiques à chaque température

Les configurations magnétiques sont examinées au cours de la simulation avec une probabilité égale à celle donnée par la distribution de probabilité à l'équilibre  $P_T(X)$ , d'après l'hypothèse d'ergodicité. Dans ce cas, les moyennes statistiques  $\langle \rangle_T$  peuvent alors être déterminées par le calcul des moyennes temporelles. Le tableau 3.1 ci-dessous présente les expressions des grandeurs thermodynamiques par atome pour les configurations magnétiques explorées.

Énergie interne magnétique	$U(T) = \frac{1}{N} \langle E \rangle_T \approx \frac{1}{(itm)-(ito)} \sum_{it=ito+1}^{itm} \frac{E(it)}{N},$
Vecteur moment magnétique	$\mathbf{m}(T) = \langle \boldsymbol{\mu} \rangle_T = \frac{1}{(itm)-(ito)} \sum_{it=ito+1}^{itm} \boldsymbol{\mu}(it),$
Aimantation	$M(T) = \langle \ \boldsymbol{\mu}\  \rangle_T = \langle [\mu_x^2 + \mu_y^2 + \mu_z^2]^{1/2} \rangle_T,$
Susceptibilité magnétique en champ nul	$\chi(T) = \lim_{H \rightarrow 0} \frac{1}{\mu_0} \left( \frac{\partial M}{\partial H} \right)_T = \frac{\langle \mu^2 \rangle_T - \langle \mu \rangle_T^2}{k_B T} N,$
Chaleur spécifique	$C(T) = \frac{dU(T)}{dT} = \frac{\langle E^2 \rangle_T - \langle E \rangle_T^2}{N k_B T^2}.$

Tableau 2.1 – Expressions des grandeurs thermodynamiques par atome pour les configurations magnétiques explorées.

Dans ce tableau :

- $E(it)$  est l'énergie magnétique totale à la fin de la  $it^{\text{ème}}$  itération à la température  $T$  ;
- $\mu(it)$  désigne le moment magnétique par atome (exprimé en magnétons de Bohr) du système à la fin de la  $it^{\text{ème}}$  itération à la température  $T$  :

$$\mu(it) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mu_i. \quad (2.9)$$

## 2.1.4 Simulation de cycles d'hystérésis

### 2.1.4.1 Méthode Monte Carlo quantifiée en temps

L'étude du temps de relaxation d'un moment magnétique sous champ magnétique nécessite une méthode pour établir une correspondance entre le nombre d'itérations MC et le temps physique. Cette méthode est baptisée méthode Monte Carlo quantifiée en temps. Elle a été appliquée à l'étude du phénomène de nucléation (modèle d'Ising) [63] et à des systèmes de spins en interaction [64, 65].

La méthode Monte Carlo basée sur l'algorithme de Metropolis standard présentée ci-dessus est très utile pour étudier des systèmes à l'équilibre thermodynamique. En ne tenant pas compte des barrières d'énergie à franchir lors de la rotation individuelle de chaque spin, elle permet a priori de prospecter toutes les configurations possibles. Cette méthode standard n'est donc pas adaptée à l'étude de la dynamique de retournement de l'aimantation donc à la simulation de cycles d'hystérésis. Par conséquent, nous avons choisi d'utiliser ici la méthode Monte Carlo quantifiée en temps, dite méthode du cône [66–68].

Contrairement aux méthodes qui utilisent la dynamique de Langevin [69], cette méthode permet d'étudier la dynamique de l'aimantation sur des temps assez longs, puisqu'elle ne tient pas compte de la précession des moments magnétiques autour du champ local. Cela signifie qu'elle permet de décrire la dynamique de l'aimantation dans le cas de barrières d'énergie à

franchir importantes, cas dans lesquels la précession joue un rôle négligeable.

De plus, cette méthode permet dans certains cas de donner une correspondance entre un pas Monte Carlo et le temps physique à partir de la relation suivante [70] :

$$\delta_t = \frac{R^2(1 + \alpha^2)\mu_s}{20k_B T \alpha \gamma}, \quad (2.10)$$

où  $R$  est le rayon du cône d'angle  $\alpha$ ,  $\mu_s$  est le moment magnétique à saturation,  $\gamma$  est le rapport gyromagnétique.

A basse température, la proposition d'une nouvelle orientation aléatoire d'un spin implique une variation d'énergie associée généralement grande. Par conséquent, la transition est souvent rejetée. Afin d'améliorer l'efficacité de l'algorithme de Metropolis, des méthodes Monte Carlo proposent à basse température des essais de rotation d'un angle faible autour de la direction initiale d'un spin [71], ce qui autorise des variations d'énergie plus petites afin d'accepter plus souvent les transitions proposées.

Cet algorithme consiste à proposer la rotation d'un seul spin à la fois, tandis que la nouvelle orientation proposée n'est plus choisie aléatoirement dans tout l'espace (figure 2.4). La nouvelle orientation ( $\mathbf{S}'_i$ ) du spin  $\mathbf{S}_i$  au site  $i$  est alors déterminée en deux étapes :

1. tirage aléatoire avec une distribution de probabilité constante d'un vecteur unitaire  $\mathbf{u}$  pointant dans une sphère de rayon  $R$  ;
2. addition du vecteur unitaire  $\mathbf{u}$  au spin  $\mathbf{S}_i$ , puis renormalisation.

Le nouveau spin  $\mathbf{S}'_i$  est alors donné par :

$$\mathbf{S}'_i = \frac{\mathbf{S}_i + \mathbf{u}}{\|\mathbf{S}_i + \mathbf{u}\|}, \quad (2.11)$$

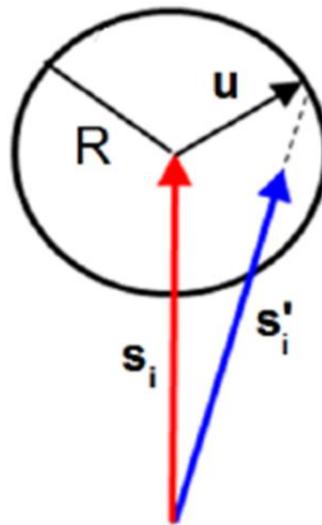


FIGURE 2.4 – Principe de la méthode Monte Carlo quantifiée en temps.

A chaque essai de rotation d'un spin, la nouvelle orientation est dans un intervalle  $\theta_0 \pm \delta$ , où  $\theta_0$  est l'angle azimutal du spin avant l'essai de rotation. Cette dernière est acceptée avec la probabilité présentée dans l'équation (2.8).

## 2.2 Modélisation des super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/ YFe<sub>2</sub>

Afin d'étudier les propriétés magnétiques des super-réseaux intermétalliques MT-TR par simulation numérique, nous avons modélisé la structure du système étudié. Pour les mesures à l'équilibre, nous avons eu recours à la méthode Monte Carlo et à l'algorithme Metropolis dans l'ensemble canonique, afin d'accéder aux principales grandeurs physiques que sont l'énergie magnétique, l'aimantation, la chaleur spécifique et la susceptibilité magnétique. Dans le but de simuler les cycles d'hystérésis, nous avons utilisé la méthode Monte Carlo quantifiée en temps, présentée précédemment.

### 2.2.1 Modélisation de la structure des super-réseaux

Le réseau est cubique à faces centrées où les atomes sont situés sur les nœuds et distribués sur les différents sites. En réalité, notre modèle ne tient pas compte des positions cristallographiques ; nous considérons uniquement le nombre et la nature des voisins ainsi que les

interactions magnétiques et nous générons une quadricouche comme l'empilement périodique de couches de composition  $TR_{1/3}MT_{2/3}$  affectée de conditions de bords périodiques dans les trois directions de l'espace. Les interfaces sont abruptes (figure 2.5) ce qui n'est pas très éloigné de la situation expérimentale puisque les échantillons sont élaborés par épitaxie par jet moléculaire et l'on observe une très faible interdiffusion aux interfaces.

Les grandeurs physiques ne sont calculées que sur la bicouche centrale afin de limiter les effets d'asymétrie dans l'empilement des couches, et de se rapprocher au plus près de la configuration des échantillons expérimentaux qui sont des multicouches périodiques.

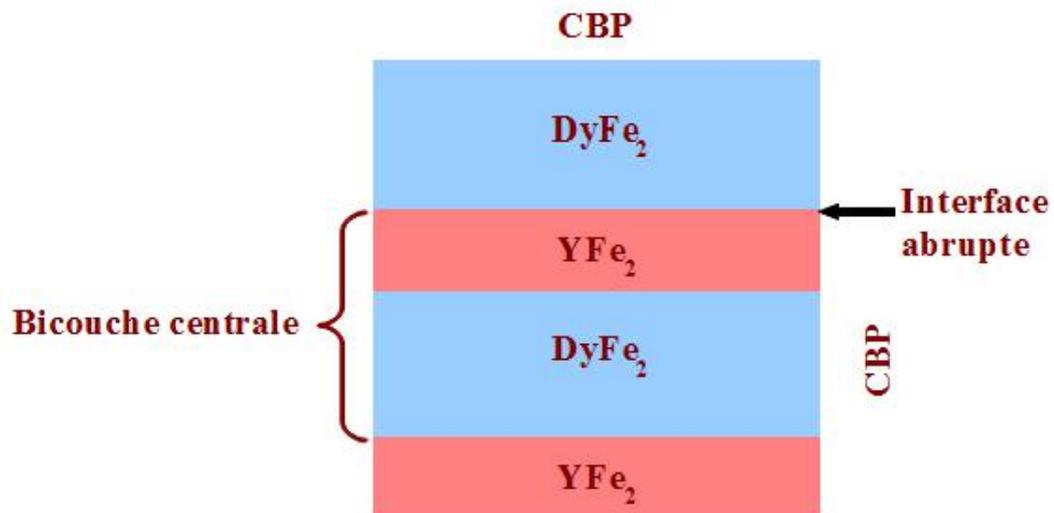


FIGURE 2.5 – Représentation schématique de l'échantillon modélisé.

### 2.2.2 Hamiltonien

Nous utilisons le modèle de spins vectoriels de Heisenberg [34] autorisant toute rotation des spins dans l'espace ; le modèle est donc adapté à l'étude des structures magnétiques non colinéaires, telles que les super-réseaux  $DyFe_2/YFe_2$ . L'énergie magnétique de ces super-réseaux est la résultante de trois contributions : l'énergie d'échange, l'anisotropie magnétocristalline et l'effet Zeeman. En présence d'un champ magnétique appliqué, le Hamiltonien du système

s'écrit donc :

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle}^N J_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - D(Dy) \sum_{i \in Dy} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{x}_i)^2 - D(Y) \sum_{i \in Y} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{x}_i)^2 - \mu_0 \mathbf{B} \cdot \sum_i \mathbf{m}_i. \quad (2.12)$$

La première somme concerne uniquement les sites  $i$  et  $j$  premiers voisins,  $D(Dy)$  est la constante d'anisotropie du dysprosium,  $D(Y)$  est la constante d'anisotropie de l'yttrium,  $\mu_0$  est la perméabilité magnétique du vide,  $\mathbf{B}$  est l'excitation magnétique extérieure,  $x_i$  est l'axe d'anisotropie et  $\mathbf{m}_i$  le moment magnétique de l'atome  $i$  exprimé en  $\mu_B$  (magnéton de Bohr).

### 2.2.3 Paramètres magnétiques

Dans ces systèmes, chaque atome d'yttrium porte un faible moment magnétique qui résulte de la polarisation due aux atomes de Fe. La contribution de l'aimantation du sous-réseau  $YFe_2$  est estimée expérimentalement à  $0,9 \mu_B/\text{atome}$  et est dominée par le Fe [72]. On a fait le choix de garder les valeurs du moment de Fe égal à  $2,2 \mu_B/\text{atome}$  dans les couches de  $DyFe_2$  et d' $YFe_2$  également, dans le but de ne pas introduire de paramètres supplémentaires dans notre modèle.

Dans ces conditions, la valeur du moment magnétique d'Y est égale à  $1,7 \mu_B/\text{atome}$  avec une orientation antiparallèle à celle des moments de Fe. Expérimentalement, cette valeur élevée du moment d'Y à très basse température n'est certainement pas réaliste mais il faut noter que c'est l'aimantation de la couche d' $YFe_2$  prise dans sa globalité qui doit être comparée aux mesures expérimentales.

Comme nous n'avons pas d'information sur le spin et le facteur de Landé pour l'atome d'yttrium, nous avons choisi une valeur de spin de 1,1 et un facteur de Landé de 1,5, ce qui fait que le moment magnétique par atome d'yttrium vaut  $1,65 \mu_B$ . Les paramètres magnétiques théoriques pour les trois espèces chimiques - le fer, le dysprosium et l'yttrium - sont résumés dans le tableau 2.2.

Pour la couche ferrimagnétique dure de  $DyFe_2$ , le moment magnétique moyen est dominé par le Dy, il vaut  $1,86 \mu_B/\text{atome}$ . Ces valeurs d'aimantation pour les couches de  $DyFe_2$  et  $YFe_2$  sont en bon accord avec celles utilisées par Bowden et al [73].

Paramètre magnétique	Fe	Dy	Y
Spin	1,1	2,5	1,1
Facteur de Landé	2	4/3	1,5
Moment magnétique ( $\mu_B$ /atome)	2,2	10	1,65

Tableau 2.2 – Paramètres magnétiques utilisés dans le modèle pour le fer, le dysprosium et l'yttrium.

Dans ces structures parfaitement cristallisées, nous avons ajusté les valeurs des différentes interactions d'échange entre premiers voisins à partir des arguments suivants. La température de Curie est principalement déterminée par l'interaction d'échange forte entre les moments magnétiques de Fe. Nous l'avons ainsi estimée à  $J_{\text{Fe-Fe}}/k_B = 280$  K, en lien avec la valeur couramment utilisée dans les études de simulation Monte Carlo avec un modèle de spins de Heisenberg portant sur le  $\text{Fe}_\alpha$ . De plus, compte tenu des études sur les multicouches Fe/Dy nous avons repris les mêmes valeurs pour les interactions d'échange  $J_{\text{Fe-Dy}}$  et  $J_{\text{Dy-Dy}}$  [70].

Dans le cas de l'Y, il est nécessaire que les interactions d'échange soient suffisamment importantes pour conserver un ordre ferrimagnétique au sein d'un même plan sous champ magnétique appliqué. Les différentes interactions d'échange utilisées dans notre modèle sont données dans le tableau 2.3.

$i - j$	Fe-Fe	Fe-Dy	Dy-Dy	Fe-Y	Y-Y	Dy-Y
$J_{i-j}/k_B(\text{K})$	280	-41,75	6,5	-41,75	50	10

Tableau 2.3 – Valeurs des interactions d'échange de notre modèle pour les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ .

Sur les sites de Dy existe une forte anisotropie magnétique uniaxiale. Sa direction est une direction cristallographique appartenant au plan des couches. Nous avons fixé arbitrairement la direction de facile aimantation suivant la direction  $Ox$  appartenant au plan des couches, puisque nous n'avons pas modélisé la structure cristallographique réelle de ces super-réseaux. L'ensemble des cycles d'hystérésis effectués par la suite seront réalisés en appliquant le champ magnétique suivant cette direction. Afin de nous trouver dans la bonne gamme de valeurs de champs de retournement, nous avons ajusté la valeur du coefficient d'anisotropie magnétique

du Dy qui est estimé à  $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 2 \text{ K}$ . Cette valeur va rester constante durant toute notre étude. Comme l'anisotropie magnétique uniaxiale de la couche magnétique douce est d'environ deux ordres de grandeur plus faible que celle de la couche magnétique dure [74], elle sera négligée dans le cadre de nos simulations.

# Chapitre 3



# Chapitre 3

## Propriétés structurales et magnétiques des super-réseaux

### $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$

Les hétérostructures composées d'un matériau magnétique dur et d'un matériau magnétique doux permettent la fabrication de parois de domaines artificielles par le biais d'un couplage d'échange à l'interface. Des exemples typiques de tels composés sont les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$  constitués d'une alternance de couches de matériaux ferrimagnétiques durs  $\text{DyFe}_2$  et de couches ferrimagnétiques douces  $\text{YFe}_2$ . Les caractéristiques intrinsèques de chaque alliage, combinées aux interactions d'échange aux interfaces, donnent naissance à des comportements magnétiques particulièrement originaux. Dans ces systèmes, il est généralement admis que le renversement d'aimantation s'effectue par le développement de parois dans le matériau doux, suivi du retournement irréversible de l'aimantation du matériau dur.

L'objectif de ce chapitre est d'étudier l'influence de la réduction d'épaisseur du matériau dur sur le processus de renversement de l'aimantation. Dans la première partie, nous présentons quelques propriétés générales des alliages  $\text{DyFe}_2$  et  $\text{YFe}_2$ , puis dans la deuxième partie, nous passons en revue un ensemble de résultats expérimentaux dans le cadre d'études effectuées par l'équipe de K. Dumesnil à l'université de Lorraine en France et par l'équipe de G. J. Bowden à l'université de Southampton au Royaume Uni.

### 3.1 Propriétés structurales des super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>

Les deux alliages DyFe<sub>2</sub> et YFe<sub>2</sub>, composants des super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>, appartiennent à la famille des hétérostructures intermétalliques TR-Fe<sub>2</sub> et cristallisent dans la structure cubique de type MgCu<sub>2</sub>, appelée phase de laves [43]. Dans notre cas, cette phase peut être construite en remplaçant deux atomes de fer, au sein d'un empilement compact, par un atome de terre-rare, soit le dysprosium pour la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub>, soit un atome d'yttrium pour la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>, opération dite : « du double remplacement ». A partir de la séquence initiale ...ABC...ABC..., on obtient la structure cubique à faces centrées caractérisée par le groupe spatial  $Fd\bar{3}m$  type (MgCu<sub>2</sub>, C15) (Fig 1.15).

Les atomes de terre-rare (Dy, Y) apparaissent sur trois types de sites : aux sommets du cube, aux centres des faces et sur la moitié des sites tétraédriques. Le squelette de terre-rare (Dy et Y) ainsi constitué est celui d'une structure cubique diamant. Les atomes de fer sont agencés en un empilement de tétraèdres réguliers reliés par leur sommets et de symétrie ponctuelle rhomboédrique  $\bar{3}m$ . Les tétraèdres sont centrés sur la seconde moitié des sites tétraédriques non occupés par les atomes de terre-rare (Fig 3.1).

Le paramètre de maille des phases de laves varie de 7,217 Å pour LuFe<sub>2</sub> à 7,467 Å pour PrFe<sub>2</sub>. Le tableau 3.1 rassemble les valeurs des paramètres de maille pour des composés qui ont été étudiés à température ambiante par V. Oderno. Malgré la complexité de la structure, il apparaît que tous les sites de fer d'une part et de terre-rare d'autre part, sont chimiquement équivalents. Ces distances peuvent être comparées aux plus petites distances rencontrées dans les métaux purs de Fe ou de terre-rare :

- la plus petite distance entre atomes de fer dans les phases de laves, soit environ 2,6 Å, est supérieure de 5% à celle dans le fer pur *bcc* (2,47 Å) ;
- la plus petite distance entre atomes de terre-rare à titre d'exemple le Dy dans les phases de laves, soit environ 3,2 Å, est inférieure de 13% à celle dans la structure hexagonale de

la plupart des terres-rares (3,62 Å).

Toutefois, même s'ils sont caractérisés par un environnement chimique équivalent, les atomes de fer se distinguent par la direction de l'axe de symétrie local. En effet, chaque atome a comme plus proches voisins six atomes de fer avec un axe de symétrie local selon une diagonale de cube, c'est-à-dire une direction de type [111]. La direction de croissance des couches minces de DyFe<sub>2</sub> et YFe<sub>2</sub> est [110]. Dans cette direction, les phases de laves sont constituées par l'alternance de deux types de plans régulièrement espacés. La distance entre plans est  $a\sqrt{2}/8$ , où  $a$  est le paramètre cubique du composé TR-Fe<sub>2</sub> (tableau 3.1) ; cette distance vaut 1.29 Å pour le DyFe<sub>2</sub>.

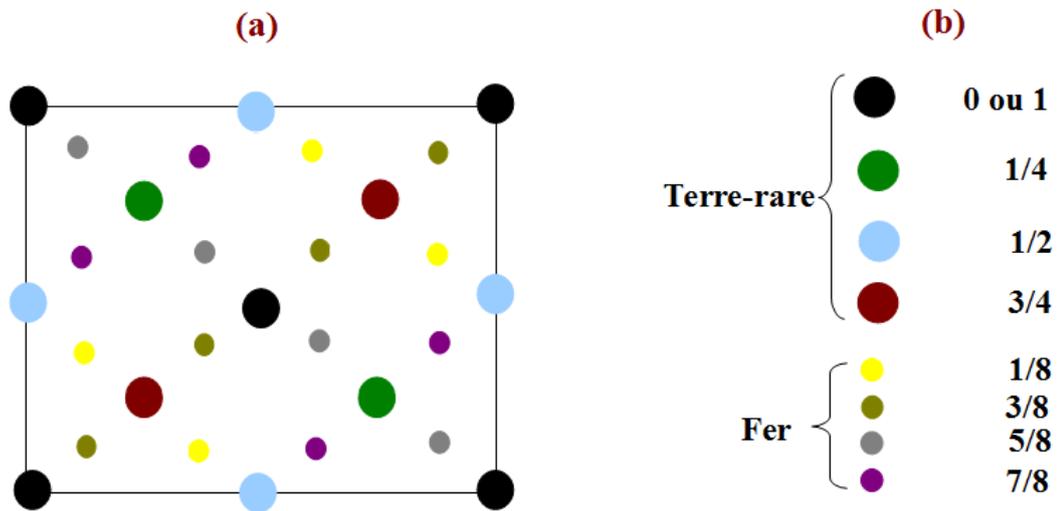


FIGURE 3.1 – (a) Projection de la maille cubique de la phase de laves (figure 1.15) sur le plan de base. (b) Différentes positions possibles des atomes de deux espèces MT et TR dans la maille cubique de la phase de laves.

Le premier plan, appelé plan de type 1, ne contient que des atomes de fer avec comme densité surfacique  $5,24 \times 10^{14}$  atomes/cm<sup>2</sup> (pour le DyFe<sub>2</sub>), la structure de ce plan est rectangulaire. Le deuxième plan, appelé plan de type 2, contient des atomes de fer et de terre rare. Ces deux éléments sont présents avec la même densité surfacique que le fer dans le plan de type 1, ce qui conduit à des plans deux fois plus denses que les plans de type 1. La structure est donc plus complexe :

- les atomes de fer s'organisent en rangées espacées de  $a$  ;

- entre deux rangées de fer s'intercalent deux rangées d'atomes de terre-rare (Dy pour la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> et Y pour la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>) ;
- la distance entre une rangée de fer et une rangée de terre-rare ( $3a/8$ ) est différente de la distance entre deux rangées de terre rare ( $a/4$ ).

Composé	YFe <sub>2</sub>	TbFe <sub>2</sub>	DyFe <sub>2</sub>	ErFe <sub>2</sub>
Paramètre (Å)	7,364	7,348	7,324	7,284

Tableau 3.1 – Valeurs des paramètres de maille pour des composés intermétalliques TR-Fe<sub>2</sub> étudiés à température ambiante [25].

### 3.2 Propriétés magnétiques des super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>

Les propriétés magnétiques des super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> en couches minces dépendent principalement des épaisseurs respectives des couches, plus précisément de l'épaisseur relative de la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) par rapport à la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>), ainsi que de la température [22].

Ces alliages intermétalliques bénéficient du fort échange entre atomes de fer et de la grande anisotropie des terres-rares, le tableau 3.2 donne les principales caractéristiques magnétiques des composés YFe<sub>2</sub> et DyFe<sub>2</sub> [25, 33] où :

- $\rho$  représente la masse volumique ;
- $\sigma$  est l'aimantation résultante ;
- $\mu_{\text{Fe}}$  est le moment magnétique porté par les atomes de fer ;
- $\langle \mu \rangle$  est l'aimantation moyenne des atomes mesurée en magnétons de Bohr ; c'est-à-dire l'aimantation totale divisée par le nombre d'atomes :  $\langle \mu \rangle = (\mu_{\text{TR}} - 2\mu_{\text{Fe}})/3$  pour une structure ferrimagnétique avec orientation opposée des moments magnétiques de fer et de terre-rare ;

- $T_C$  est la température de Curie.

En raison du fort moment magnétique porté par les atomes de dysprosium, le moment magnétique résultant dans la couche DyFe<sub>2</sub> est orienté dans le même sens que le moment de Dy. Dans le cas du composé YFe<sub>2</sub>, les atomes d'yttrium portent un faible moment magnétique en raison de la polarisation due aux atomes de fer. Globalement, les moments magnétiques vont interagir entre eux, avec le réseau cristallin et éventuellement avec un champ magnétique extérieur. Les propriétés magnétiques des alliages seront donc guidées par une compétition entre les énergies d'échange, d'anisotropie magnétocristalline, et Zeeman avec le champ magnétique extérieur.

Dans ce chapitre, nous allons présenter un certain nombre de résultats expérimentaux sur ces super-réseaux pour quelques jeux d'épaisseurs à basse et haute température.

TR-Fe <sub>2</sub>	$T_C$ (K)	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\sigma$ (emu/cm <sup>3</sup> )		$\langle \mu \rangle$ ( $\mu_B$ /at)		$\mu_{Fe}$ ( $\mu_B$ /at)
			0 K	300 K	0 K	300 K	
YFe <sub>2</sub>	542	6,68	520	520	0,93	0,93	1,40
DyFe <sub>2</sub>	635	9,28	1300	810	2,29	1,42	1,59

Tableau 3.2 – Principales caractéristiques magnétiques des composés YFe<sub>2</sub> et DyFe<sub>2</sub> [25, 33].

### 3.2.1 Anisotropie magnétique

Chaque alliage TR-Fe<sub>2</sub> possède sa direction de facile aimantation spécifique, qui dépend globalement de la structure électronique de la couche 4*f* de la terre-rare. Dans le tableau 3.3, les directions de facile aimantation de différents alliages sont déterminées essentiellement par spectroscopie Mössbauer. Ces directions de facile aimantation sont le résultat de la minimisation de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline qui s'exprime en première approximation en termes de polynômes des cosinus directeurs de la direction de l'aimantation ( $\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z$ ). L'énergie d'anisotropie magnétocristalline est invariante par rapport aux opérations de symétrie du réseau cristallin. Elle s'écrit sous forme de l'équation 1.5 (chapitre 1).

Composé	Direction de facile aimantation à 4,2 K	Direction de facile aimantation à 300 K
YFe <sub>2</sub>	[111]	[111]
DyFe <sub>2</sub>	[100]	[100]
ErFe <sub>2</sub>	[111]	[111]
TbFe <sub>2</sub>	[111]	[111]

Tableau 3.3 – Différentes directions de facile aimantation pour des composés massifs déterminées par spectroscopie Mössbauer [25].

On peut déterminer les constantes d'anisotropie à l'aide d'un magnétomètre à couple ou à partir des courbes d'aimantation. Dans le tableau 3.4, on rassemble quelques valeurs de  $K_1$  et  $K_2$ , à partir des travaux de V. Oderno et A. E. Clark [25, 33].

Composé	$K_1$ (ergs/cm <sup>3</sup> )		$K_2$ (ergs/cm <sup>3</sup> )	
	4,2 K	300 K	4,2 K	300 K
DyFe <sub>2</sub>	$4,7 \times 10^8$	$2,45 \times 10^7$	$-1,4 \times 10^9$	$-5 \times 10^6$
TbFe <sub>2</sub>	$-5,2 \times 10^8$	$-6,3 \times 10^7$	$7,3 \times 10^7$	$6 \times 10^6$
ErFe <sub>2</sub>	$-5,2 \times 10^8$	$-3,1 \times 10^6$	Négligée	Négligée

Tableau 3.4 – Valeurs expérimentales des constantes d'anisotropie pour différents composés intermétalliques mesurées aux températures 4,2 K et 300 K [25, 33].

Pour le super-réseau DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>, des études approfondies ont été réalisées, notamment sur le composé intermétallique DyFe<sub>2</sub> par G. J. Bowden [75]. Elles mettent en évidence la direction de facile aimantation suivant [100] pour une température inférieure à la température ambiante. Par ailleurs, des études effectuées par P. Raj et S. K. Kulshreshtha en utilisant la spectroscopie Mössbauer [76] montrent que la direction de facile aimantation légèrement écartée de [100] est d'une valeur comprise entre 3° et 8° à température ambiante comme à 77 K. Ces résultats pourraient s'expliquer par la présence d'impuretés dans les échantillons ce qui conduit à considérer que la direction de facile aimantation pour le composé intermétallique DyFe<sub>2</sub>, est toujours suivant [100].

### 3.2.2 Configuration magnétique

Dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>, les intégrales d'échange  $J_{\text{MT-MT}}$  et  $J_{\text{TR-TR}}$  sont positives ; en revanche, l'intégrale d'échange  $J_{\text{MT-TR}}$  est négative. Par ailleurs, la forte intégrale d'échange entre les moments magnétiques des atomes de fer,  $J_{\text{Fe-Fe}}$ , est responsable de la valeur élevée de la température de Curie, proche de 600 K [77].

En champ magnétique nul, les composés DyFe<sub>2</sub> et YFe<sub>2</sub> sont ferrimagnétiques et les interactions d'échange à l'interface entre les moments magnétiques du Dy et du Fe stabilisent fortement la configuration ferrimagnétique du super-réseau (figure 3.2(a)).

En présence d'un champ magnétique extérieur, l'équilibre énergétique du système sera perturbé par l'effet Zeeman, qui tend à aligner tous les moments magnétiques dans la direction du champ magnétique appliqué. Dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> par exemple, l'application d'un champ magnétique suffisamment intense permettra un alignement des moments magnétiques du fer avec le champ magnétique extérieur.

L'énergie totale du système est la résultante d'une compétition entre les trois termes énergétiques : énergie d'échange, énergie d'anisotropie magnétique et énergie Zeeman. Cette compétition dépend des épaisseurs des couches magnétiques, ainsi que de la température de mesure. L'application d'un champ magnétique crée une paroi d'interface, c'est-à-dire une zone de transition permettant d'accommoder les contraintes générées par cette compétition énergétique (figure 3.2(b)).

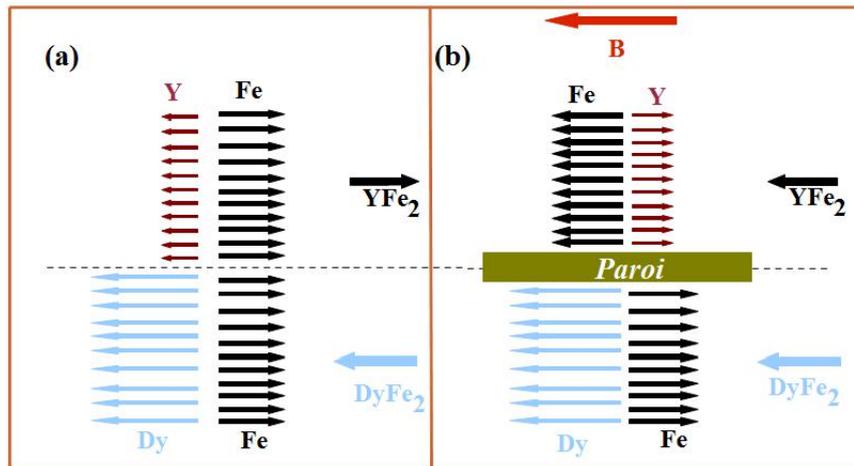


FIGURE 3.2 – Représentation schématique de l'ordre magnétique d'une bicouche du super-réseau DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> : (a) configuration ferrimagnétique en champ magnétique nul ; (b) état stable en présence d'un champ magnétique extérieur.

La création de cette paroi est contrôlée par la compétition énergétique due au champ magnétique appliqué, à l'échange et à l'anisotropie magnétique de la couche dure, et aussi par les épaisseurs relatives des couches. Une approche continue permet d'estimer la dimension caractéristique de la paroi par l'expression suivante [38] :

$$\delta(B) = \pi \sqrt{\frac{A}{K + MB}}, \quad (3.1)$$

où  $A$  est la constante d'échange effective par unité de longueur qui tient compte des différentes interactions d'échange,  $K$  est la constante d'anisotropie magnétocristalline par unité de volume,  $M$  est l'aimantation de l'échantillon et  $B$  est le champ magnétique appliqué.

Cette expression nous montre clairement comment influent les différentes constantes sur la taille de la paroi. Plus l'échange  $A$  est grand, plus la taille de la paroi augmente. En revanche, plus l'anisotropie magnétocristalline est importante, plus la paroi sera étroite puisqu'il est difficile dans ce cas d'éloigner les moments magnétiques de la direction de facile aimantation.

### 3.3 Synthèse bibliographique des résultats expérimentaux

Des études expérimentales antérieures effectuées sur les super-réseaux inter-métalliques DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> par K. Dumesnil et al [72, 74, 78–81], et d'autres par G. J. Bowden et al [73,

75, 77, 82–86], mettent en évidence une grande variété de résultats qui nous renseignent sur le comportement magnétique de ces super-réseaux. Dans le présent travail, nous nous intéresserons à l'influence de l'épaisseur relative de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> par rapport à la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>, sur le développement et la localisation des parois d'interface. Dans ce qui suit, nous allons présenter les résultats les plus importants, que nous utiliserons ensuite au chapitre 4, comme éléments de comparaison avec nos résultats de simulation.

### 3.3.1 Propriétés mesurées à basse température

#### 3.3.1.1 Faible épaisseur de YFe<sub>2</sub>

Dans le cas de faibles épaisseurs de la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>, les cycles d'hystérésis sont carrés avec un saut unique, ce qui constitue une caractéristique d'un matériau magnétique dur. Les moments magnétiques d'YFe<sub>2</sub> restent antiparallèles à ceux de DyFe<sub>2</sub> quelle que soit la valeur du champ magnétique, qui est appliqué suivant la direction de facile aimantation de la couche magnétique dure. Donc le couplage antiferromagnétique les concernant est toujours respecté, c'est le cas par exemple du super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>26</sub> [72]. Les couches du super-réseau agissent en bloc comme un matériau magnétique dur unique. Ce comportement appelé « scénario de type bloc dur » correspond à la situation où il n'y a pas de place pour qu'une paroi se développe dans la couche d'YFe<sub>2</sub>. Dans ce scénario, le retournement de l'aimantation est contrôlé par l'anisotropie magnétique de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> (figure 3.3). De nombreux cycles d'hystérésis expérimentaux révèlent un petit saut d'aimantation en champ magnétique nul. Il peut être causé par :

- l'existence de quelques couches non épitaxiées ;
- une faible désorientation de l'échantillon ;
- la contamination du substrat.

Ces effets n'existent pas dans le cadre des études de simulation, c'est pourquoi nous ne le trouverons pas sur les cycles d'hystérésis simulés qui vont être présentés dans le chapitre 4.

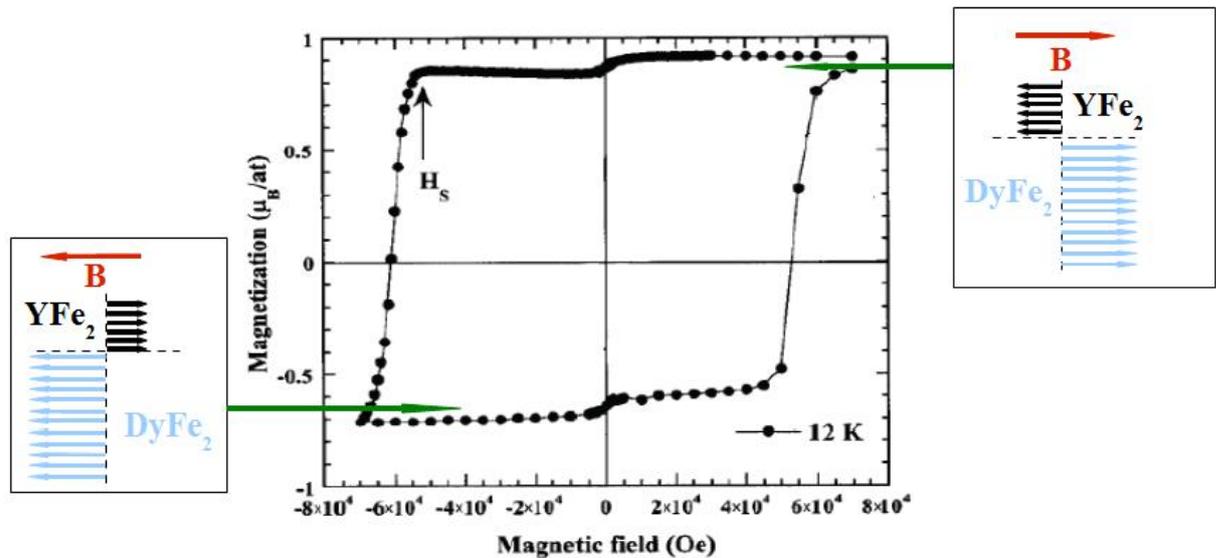


FIGURE 3.3 – Cycle d’hystérésis expérimental du super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>26</sub> [72] avec la représentation schématique de l’ordre magnétique du super-réseau.

### 3.3.1.2 Épaisseur intermédiaire

Pour des épaisseurs plus importantes de la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> du même ordre que celle de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub>, on cite quelques exemples illustrés dans des travaux publiés en 2000 par K. Dumesnil et *al* et d’autre par M. Sawicki et *al* :

[DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(13nm)]<sub>18</sub> [78], [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(10nm)]<sub>40</sub> [82]

et [DyFe<sub>2</sub>(5nm)/YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>40</sub> [83], les résultats expérimentaux montrent que le comportement magnétique du système dépend de la valeur et de la direction du champ magnétique appliqué. En effet, les cycles d’hystérésis montrent deux étapes distinctes de retournement [87] :

- la première étape en champ magnétique fort correspond à la création d’une paroi dans la couche magnétique douce [78, 82, 83], et la première phase du retournement se fait de façon progressive avec la disparition de cette paroi, en raison de la compétition énergétique entre le couplage d’échange à l’interface et l’effet Zeeman (figure 3.4 (b)) ;
- la deuxième étape en champ magnétique négatif correspond au retournement brutal de l’aimantation totale du système. Elle est contrôlée par l’anisotropie magnétique de la couche de DyFe<sub>2</sub> (figure 3.4 (c)). Ce processus de retournement est baptisé : « scénario

de type exchange spring » (figure 3.4 (a)).

Par ailleurs, les expériences de Sawicki et *al* montrent une dépendance du champ magnétique appliqué nécessaire pour la création de cette paroi en fonction de l'épaisseur nominale des couches. Ce champ magnétique caractéristique est appelé : "bending field" [82].

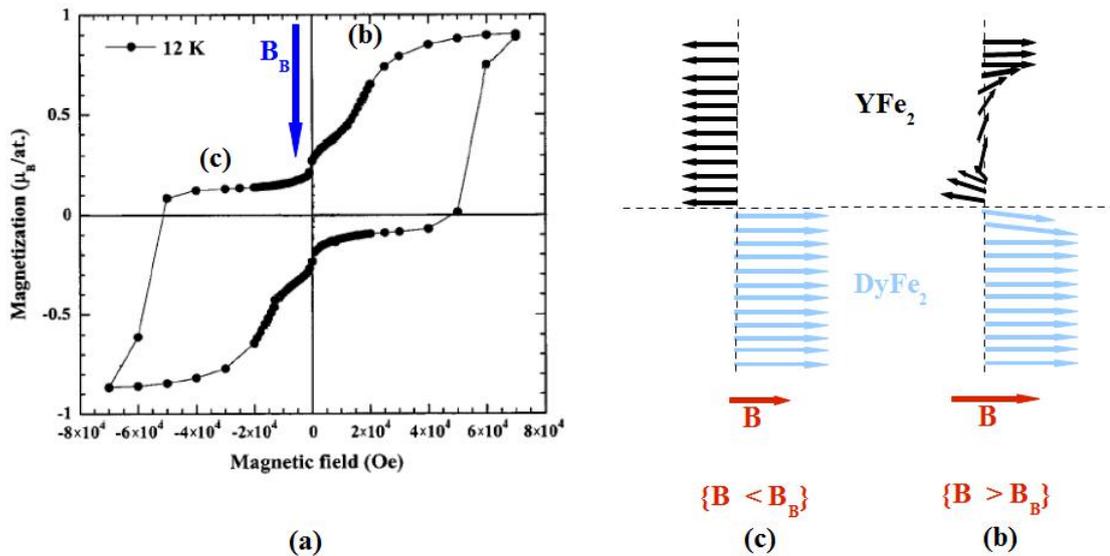


FIGURE 3.4 – (a) Cycle d'hystérésis d'un super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(13nm)]<sub>18</sub> [72]; (b, c) représentation schématique de l'ordre magnétique du super-réseau respectivement pour  $B > B_B$  et  $B < B_B$ .

### 3.3.1.3 Forte épaisseur de YFe<sub>2</sub>

Cette situation correspond à un scénario plus marginal, pour des processus de retournement plus complexes comme le montre la figure 3.5. La caractéristique principale de ce cycle est la création de la paroi dans la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub>, la paroi se développera entièrement par la suite dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>. En effet, le premier saut de l'aimantation correspond au retournement de la phase dure en premier lieu ; ce saut est caractérisé par l'existence d'une boucle en champ positif (figure 3.5). D'après J. M. L. Beaujour et *al*, l'existence du phénomène "d'exchange spring" (figure 3.6) dans la paroi localisée dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> [84] est la cause principale de :

- l'existence d'un champ coercitif négatif ;

- la partie réversible dans le cycle d'hystérésis.

Toutefois, la partie irréversible de la courbe d'aimantation est associée au retournement des moments magnétiques de la couche de DyFe<sub>2</sub>, ainsi que le développement de parois d'interface en champ magnétique faible [73, 84, 85].

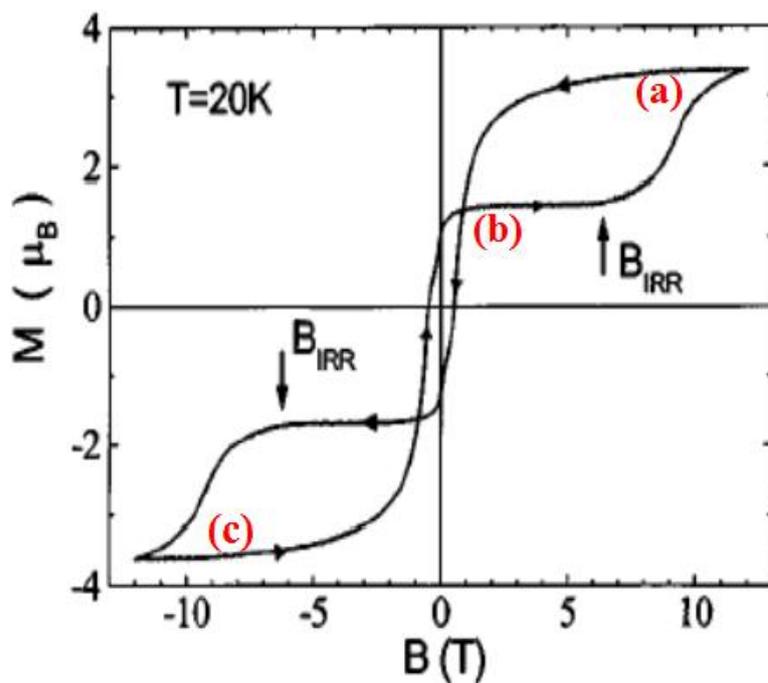


FIGURE 3.5 – Cycles d'hystérésis de super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(5nm)/YFe<sub>2</sub>(20nm)]<sub>16</sub> à  $T = 20$  K [84].

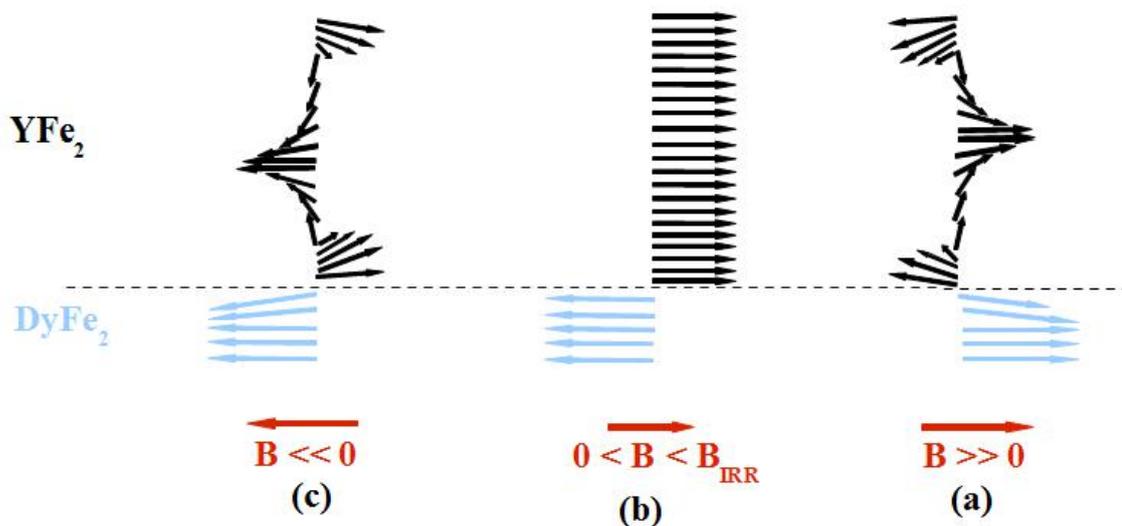


FIGURE 3.6 – Représentation schématique des moments magnétiques caractérisant le phénomène "d'échange spring" du super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(5nm)/ YFe<sub>2</sub>(20nm)]<sub>16</sub>.

### 3.3.2 Influence de la température

À haute comme à basse température, des résultats expérimentaux illustrent les trois différents scénarios : scénario de type "bloc dur", "exchange spring" et "retournement en premier lieu de la couche magnétique dure". Par ailleurs, sur le plan théorique le principe de retournement est le même pour les deux premiers scénarios (figure 3.7 (a) et (b)). Cependant, à haute température les cycles d'hystérésis sont globalement plus étroits par rapport à ceux à basse température, ce phénomène étant dû à la diminution de l'anisotropie magnétocristalline en fonction de la température.

Comme nous l'avons déjà mentionné, à basse température, le troisième scénario a un comportement magnétique spécifique. Suites à ces résultats importants, Dumesnil et *al* ont concentré leurs études sur les super-réseaux associés à ce troisième scénario, dont l'épaisseur de la couche magnétique dure est faible, tout en respectant un rapport de 1/4 entre les épaisseurs de YFe<sub>2</sub> et DyFe<sub>2</sub>, afin de garder un rapport d'énergie Zeeman constant entre les deux composés.

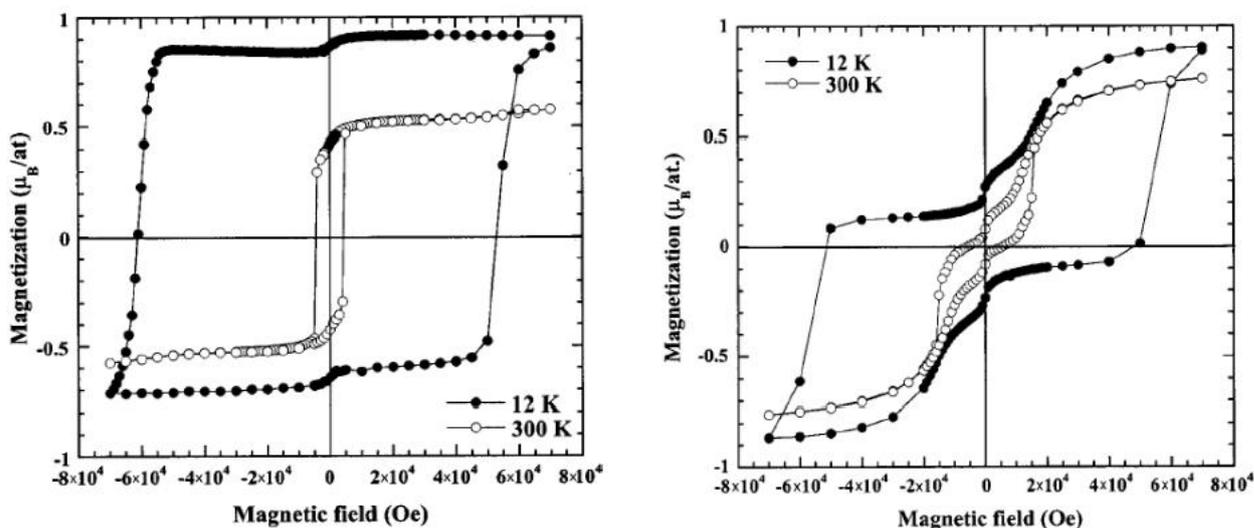


FIGURE 3.7 – Cycles d'hystérésis expérimentaux présentant un scénario de type bloc dur pour le super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>26</sub> (a), un scénario de type "exchange spring" pour le super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(13nm)]<sub>18</sub> (b) [72].

Des résultats expérimentaux importants issus des études effectuées par plusieurs équipes scientifiques, notamment ceux obtenus par Dumesnil et *al* [78–81, 88], et G. J. Bowden et

al [85, 86] mettent en évidence les points suivants :

- l'apparition de trois boucles d'hystérésis lors du retournement de l'aimantation (figure 3.8) ;
- le premier saut de l'aimantation (boucle en champ positif) correspond au retournement de la phase dure DyFe<sub>2</sub>, comme le montre la figure 3.9 ; en champ magnétique intense, les moments magnétiques de DyFe<sub>2</sub> commencent à se retourner, alors que les moments magnétiques de la couche magnétique douce sont toujours alignés parallèlement à la direction du champ magnétique appliqué ;
- la paroi d'interface est déplacée de la couche magnétique douce de YFe<sub>2</sub> à basse température vers la couche magnétique dure de DyFe<sub>2</sub> à haute température. Ce phénomène est lié à la faible valeur de la température de Curie du Dy ( $T_C(\text{Dy}) = 89 \text{ K}$ ) [85] ;
- l'existence d'une coercitivité positive ( $B_C \simeq 3.2\text{T}$  à 200 K) [22], alors qu'elle était négative à basse température pour le même jeu d'épaisseurs relatives ;
- un champ magnétique faible peut être suffisant pour retourner l'aimantation de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> ;
- la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> domine magnétiquement.

Parmi les techniques expérimentales qui ont été réalisées pour étudier le phénomène du renversement d'aimantation dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>, le dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD) au seuil L des terres rares joue un rôle particulièrement important. Cette technique permet d'analyser la contribution des moments de spin des électrons de conduction  $5d$ . Elle permet de plus de séparer les contributions du Dy et de l'Y et d'en extraire les variations en fonction du champ magnétique et de la température. La spécificité de cette technique est d'apporter une information sélective en espèce chimique, indispensable dans le cas des super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>, elle demeure globale et renseigne sur la moyenne des différentes couches d'une même espèce et sur la moyenne en épaisseur des couches. Elle apporte donc un éclairage microscopique sur le comportement magnétique du Dy et de l'Y et sur le rôle des électrons de conduction dans le mécanisme de la compensation.

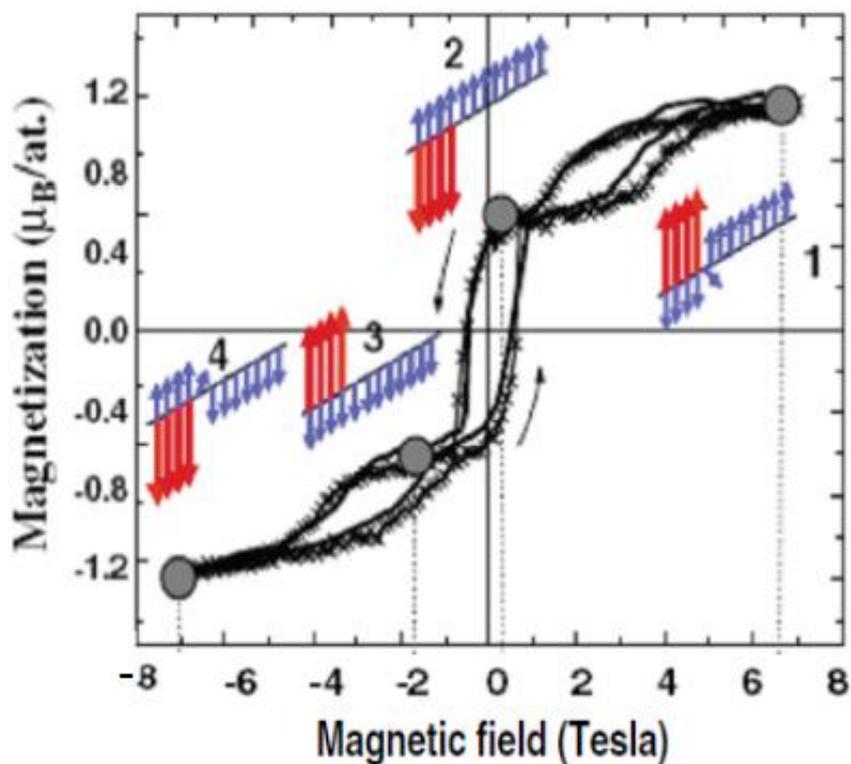


FIGURE 3.8 – Cycles d’hystérésis de super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(5nm)/YFe<sub>2</sub>(20nm)]<sub>13</sub> à T = 200 K [79].

La figure 3.9 représente l’un des résultats des travaux effectués par l’équipe de K. Dumesnil en collaboration avec l’équipe d’A. Rogalev sur la ligne ID12 de l’ESRF [79]. Ces mesures réalisées aux seuil L des éléments Dy et Y permettent de sonder séparément le renversement d’aimantation des couches de DyFe<sub>2</sub> et des couches d’YFe<sub>2</sub>. Dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> avec une faible épaisseur de matériau dur, ils ont mis en évidence une forte dépendance en température du renversement avec un mode de renversement inhabituel à haute température où le matériau dur se renverse en premier et où le matériau doux se renverse donc en champ négatif.

Dans le super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(5nm)/YFe<sub>2</sub>(20nm)]<sub>13</sub> (figure 3.9), à 200 K et sous un champ magnétique fort de ±7 T, le signal mesuré au seuil du Dy est très faible, signature d’une petite projection selon le champ magnétique de l’aimantation résultante dans la couche de DyFe<sub>2</sub>. Au contraire, pour les champs faibles, le signal au seuil du Dy est saturé. Simultanément, la projection selon le champ de l’aimantation des couches d’YFe<sub>2</sub> est presque saturée, quel que soit le champ.

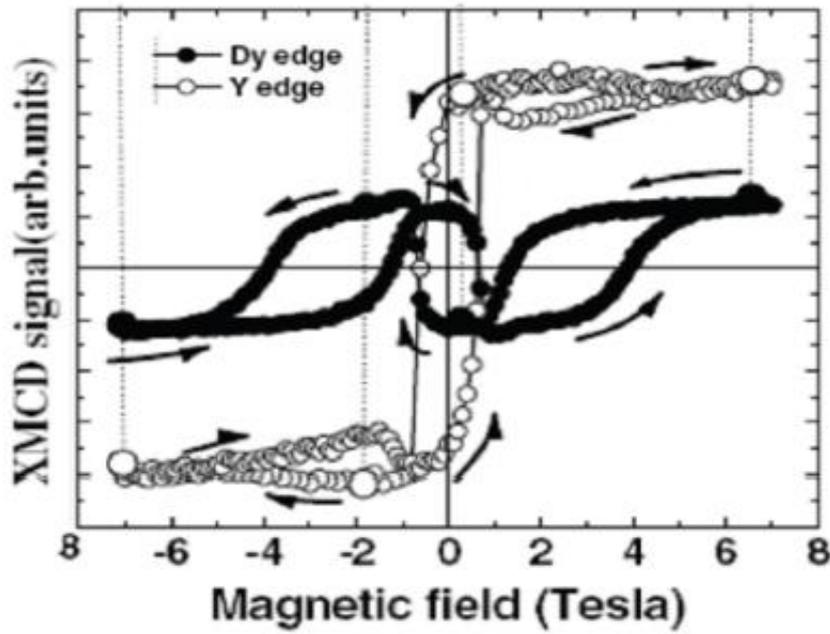


FIGURE 3.9 – Signal XMCD pour un super-réseau  $[\text{DyFe}_2(5\text{nm})/\text{YFe}_2(20\text{nm})]_{13}$  à  $T = 200\text{ K}$  au seuil L3 de l'Y et du Dy [79].

En conclusion, l'ordre magnétique dans les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$  dépend fortement du rapport entre les épaisseurs des couches magnétiques douce  $\text{YFe}_2$  et dure  $\text{DyFe}_2$ . La seule caractéristique indépendante des épaisseurs est l'existence d'un retournement brutal de l'aimantation totale du système qui est contrôlé par l'anisotropie magnétique uniaxiale du Dy.

# Chapitre 4



# Chapitre 4

## Propriétés magnétiques des super-réseaux $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ par simulations Monte Carlo

Ce chapitre est consacré à la comparaison entre les résultats expérimentaux et nos résultats de simulations Monte Carlo pour les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ . Dans cette étude, nous nous intéresserons plus particulièrement aux processus de retournement de l'aimantation sous l'effet d'un champ magnétique, en fonction des épaisseurs relatives des couches magnétiques. Par ailleurs, nous décrirons l'origine des différentes phases de retournement et caractériserons les parois d'interface. Tout au long de ce chapitre, nous allons étudier en détail les points suivants :

- l'influence des épaisseurs relatives des couches magnétiques sur le mode de retournement de l'aimantation ;
- l'influence de la température sur le mode de retournement de l'aimantation.

### 4.1 Simulation des cycles d'hystérésis

#### 4.1.1 Propriétés mesurées à basse température

A basse température et pour un jeu d'épaisseurs relatives de la couche magnétique dure  $\text{DyFe}_2$  par rapport à la couche magnétique douce  $\text{YFe}_2$ , nous allons reproduire les trois scé-

narios pour le retournement de l'aimantation observés expérimentalement que nous avons déjà présentés dans le chapitre 3.

#### 4.1.1.1 Paramètres numériques

Pour chaque scénario, les simulations des cycles d'hystérésis ont été effectuées avec des paramètres numériques fixes et d'autres variables :

##### 1. Paramètres numériques fixes

- nombre de motifs par direction  $(x,y)$  : 20 ;
- conditions de bords périodiques dans le plan des couches ;
- type d'anisotropie sur les sites de Dy : uniaxial ;
- champ initial :  $B = 12$  T ;
- direction du champ appliqué : (Ox) ;
- nombre de valeurs du champ : 100 ;
- pas en champ :  $\Delta B = 0.24$  T ;
- nombre de pas Monte Carlo pour la mise à l'équilibre : 5000 ;
- nombre de pas Monte Carlo pour la moyenne des grandeurs thermodynamiques : 10000.

##### 2. Paramètres numériques variables

- nombre de plans de DyFe<sub>2</sub> dans la bicouche centrale ;
- nombre de plans de YFe<sub>2</sub> dans la bicouche centrale ;
- température de mesure.

Le nombre des plans de couches magnétiques douces et dures dépend fortement du type de scénario à étudier par la simulation MC, et ce nombre reste toujours le même à basse comme à haute température.

#### 4.1.1.2 Scénario de type « bloc dur »

Nous avons mis en évidence le premier scénario baptisé « bloc dur » pour un super-réseau DyFe<sub>2</sub>(2)/YFe<sub>2</sub>(1) dont l'épaisseur de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> est deux fois l'épaisseur de la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>. Ces épaisseurs correspondent approximativement à 10 nm pour la couche de DyFe<sub>2</sub> et 5 nm pour la couche de YFe<sub>2</sub> qui constituent le système [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>26</sub> étudié par K. Dumesnil et *al* [72].

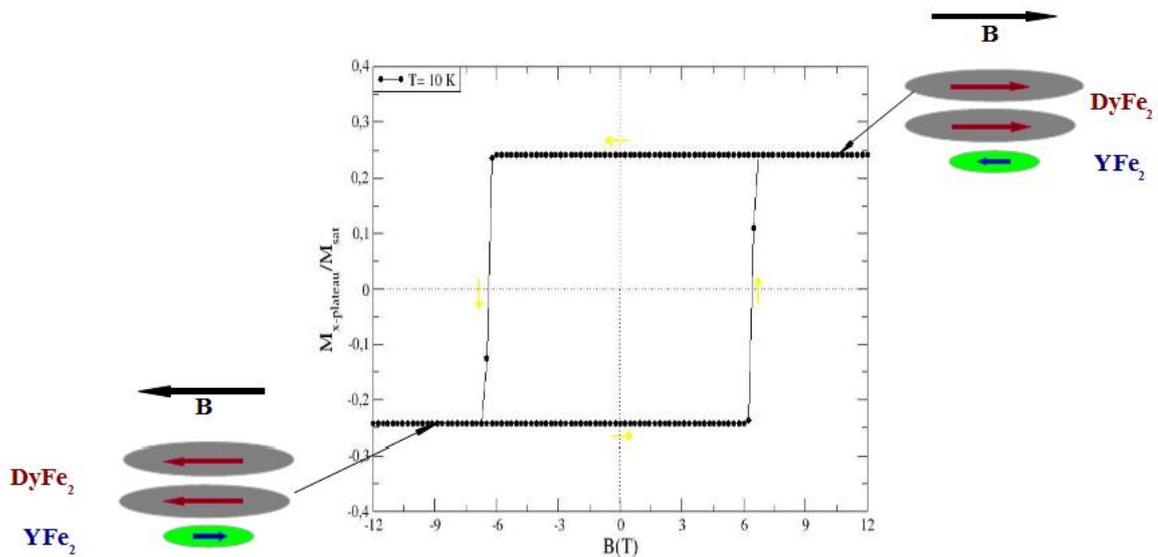


FIGURE 4.1 – Cycle d’hystérésis du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(2)/YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 10$  K, suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ), ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique dans la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) en rouge, et dans la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) en bleu.

Le cycle d’hystérésis à basse température  $T = 10$  K est « carré », il est caractérisé par une configuration ferrimagnétique stable quelle que soit la valeur du champ magnétique appliqué (figure 4.1). Le comportement magnétique de ce système présente une forte anisotropie magnétique uniaxiale due aux atomes de Dy. Par conséquent le cycle d’hystérésis est large impliquant que le super-réseau DyFe<sub>2</sub>(2)/YFe<sub>2</sub>(1) nécessite un champ coercitif important pour le désaimanter.

Afin de savoir le rôle effectué par chaque espèce chimique (Fe, Dy, Y) qui constituent le super-réseau, nous avons choisi d’étudier les cycles d’aimantation par sous-réseau pour chacune

de ces espèces chimiques. Par conséquent, leurs cycles d'hystérésis sont bien évidemment carrés quel que soit le champ magnétique appliqué (figure 4.2), les aimantations de Dy et d'Y sont saturées, impliquant que leurs moments magnétiques sont toujours colinéaires à la direction de facile aimantation [100]; il s'agit d'une conséquence évidente de la forte interaction Zeeman sur le Dy ( $m_{Dy} = 10\mu_B$ ) et de sa forte anisotropie magnétique. Quant au Fe, son aimantation est égale à  $-1$  ce qui signifie que tous les moments magnétiques de Fe sont antiparallèles aux moments magnétiques de Dy dans la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> et aux moments magnétiques d'Y dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> (figure 4.3).

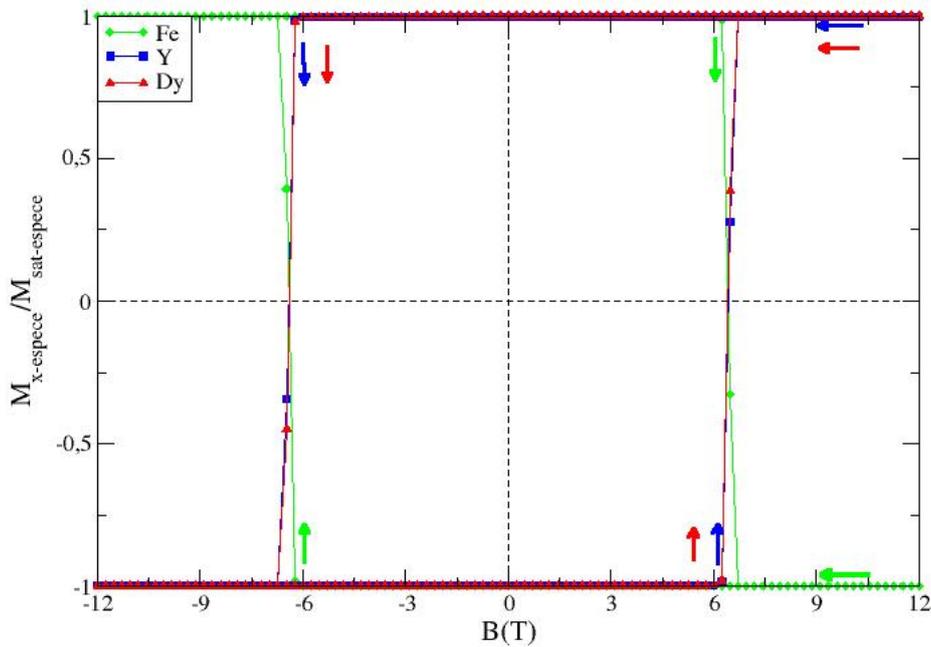


FIGURE 4.2 – Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe<sub>2</sub> (2) / YFe<sub>2</sub> (1) à  $T = 10$  K.

Le processus de retournement de l'aimantation observé pour le dysprosium, l'yttrium et le fer nous permet de constater que du point de vue énergétique, la contribution de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est dominante en raison des propriétés magnétiques des atomes de Dy. Par ailleurs, la contribution de l'énergie d'interaction d'échange à l'interface permet à stabiliser la configuration ferrimagnétique du système (figure 4.3).

D'après la figure 4.2, on constate que toutes les aimantations par espèce chimique se retournent simultanément pour la même valeur du champ  $B_C$ , ce qui traduit un comportement en bloc rigide puisque le processus de retournement est gouverné par le Dy [89–91].

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté des résultats expérimentaux sur les super-réseaux [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/ YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>26</sub> [72] qui sont en très bon accord qualitatif avec nos résultats de simulation [89–91] obtenus par un certain choix des paramètres numériques définis précédemment.

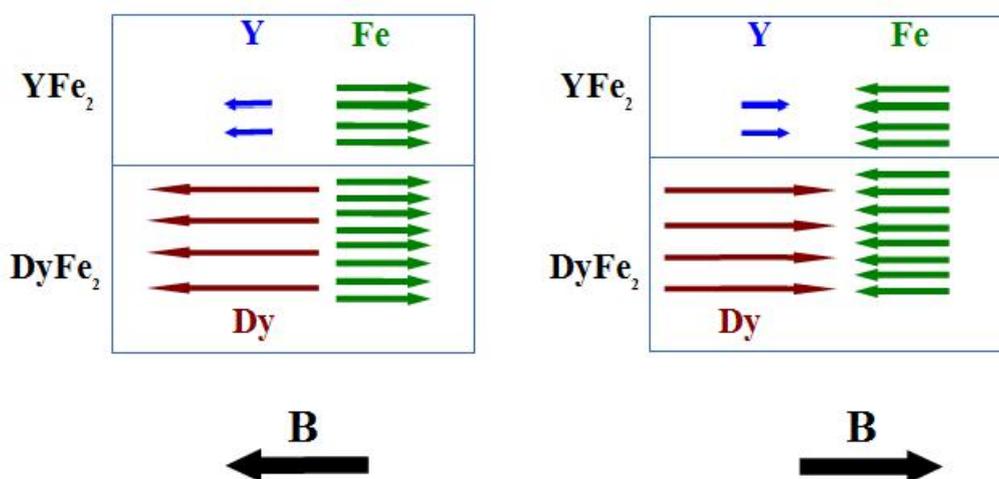


FIGURE 4.3 – Représentation schématique de la configuration magnétique stable du super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(2)/ YFe<sub>2</sub>(1)] en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué.

#### 4.1.1.3 Scénario de type « exchange spring »

Avant d'aborder les caractéristiques de ce scénario, soulignons d'abord qu'il est obtenu par deux types de super-réseaux en fonction du rapport entre les épaisseurs des deux couches magnétiques douce YFe<sub>2</sub> et dure DyFe<sub>2</sub> ; le premier s'appelle « exchange spring » de type 1 correspondant au super-réseau [DyFe<sub>2</sub> (1)/YFe<sub>2</sub>(1)] dont le rapport entre les épaisseurs des deux couches vaut 1 ; la deuxième série, quant à elle, baptisée exchange spring de type 2 [DyFe<sub>2</sub> (1)/ YFe<sub>2</sub>(2)] a un rapport ( $e_{DyFe_2} / e_{YFe_2} = 1/2$ ).

A) « Exchange spring » de type 1

Pour nos simulations, nous avons choisi le super-réseau [DyFe<sub>2</sub> (1)/ YFe<sub>2</sub>(1)] qui fait partie de ce premier type, les épaisseurs simulées correspondent approximativement à celles utilisées dans les travaux expérimentaux présentés dans le troisième chapitre : le super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(13nm)]<sub>18</sub> choisie par K. Dumesnil et *al* [78], ainsi que les échantillons utilisées par M. Sawicki et *al* [DyFe<sub>2</sub>(5nm)/YFe<sub>2</sub>(5nm)]<sub>40</sub> [82, 83].

Le retournement de l'aimantation pour le type 1 se fait en deux étapes : une première phase progressive suivie d'une étape brutale, ces deux étapes sont limitées par deux valeurs caractéristiques du champ magnétique (figure 4.4) :

- ( $B_B$ ) est la première valeur du champ magnétique qui sépare la phase progressive de décroissance de l'aimantation du plateau ;
- ( $B_{IS}$ ) est la valeur caractéristique du champ magnétique qui permet de retourner irrévérablement l'aimantation du super-réseau.

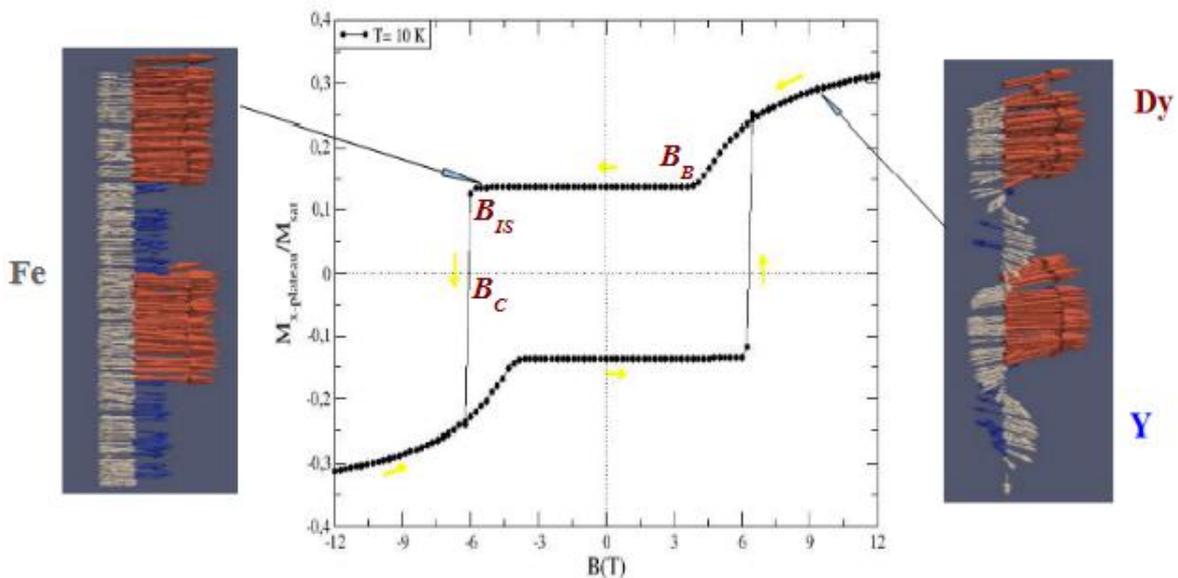


FIGURE 4.4 – Cycle d’hystérésis du super-réseau [DyFe<sub>2</sub> (1)/ YFe<sub>2</sub>(1)] à  $T = 10$  K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy, ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique des moments magnétiques de Dy en rouge, le Fe en gris et l’Y en bleu.

Pour un fort champ magnétique appliqué (figure 4.4), l'énergie Zeeman domine et privilégie un alignement de tous les moments magnétiques de Dy dans la couche magnétique dure suivant la direction du champ. Les moments magnétiques de Fe appartenant au cœur de cette couche demeurent antiparallèles à ceux de Dy, contrairement aux moments magnétiques de Fe appartenant au bord de la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) où il existe une paroi d'interface qui résulte de la compétition entre l'énergie d'échange interfaciale et l'énergie Zeeman. Cependant, il est impossible de casser le couplage antiparallèle à l'interface.

En outre, dans la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) c'est le Fe qui domine, ses moments magnétiques au bord de la couche sont alignés suivant la direction antiparallèle au champ magnétique appliqué, car ils sont soumis à l'interaction d'échange avec leurs voisins de Dy dans la couche magnétique dure. Au cœur de la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) les moments magnétiques de Fe sont parallèles au champ magnétique appliqué sous l'effet de l'énergie Zeeman dominante. Par ailleurs, les moments magnétiques de l'Y dans la couche magnétique douce demeurent antiparallèles à ceux de Fe quelle que soit leur localisation dans cette couche. En diminuant l'intensité du champ (figure 4.4), l'ordre magnétique change peu. On note une décompression de la paroi associée à la diminution de l'énergie Zeeman.

En-deçà de  $B_B$  (figure 4.4), et jusqu'à  $B = B_C$ , on observe un ordre ferrimagnétique stable sur l'ensemble de la multicouche. A fortiori, un champ appliqué inférieur à  $B_{IS}$  (figure 4.4) capable de faire retourner les moments magnétiques du système brutalement de façon irréversible, ce qui est fortement corrélée à l'anisotropie uniaxiale forte des sites de Dy.

Pour mieux localiser la paroi, nous avons représenté sur les figures 4.5 (a) et 4.6 (a) les cycles d'aimantation pour les couches magnétiques douce YFe<sub>2</sub> et dure DyFe<sub>2</sub> respectivement, pour un plan à l'interface (courbe noire) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge). D'après ces courbes, nous pouvons constater qu'en champ fort ( $B = 12$  T), la valeur de l'aimantation pour un plan à l'interface (P32) dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> est négative, indiquant que l'aimantation est orientée en partie antiparallèlement au champ magnétique appliqué, tandis que l'aimantation d'un plan au cœur de cette couche (P45) est fortement positive (figures 4.5 (a)). Cela met en évidence que les moments magnétiques de cette couche magnétique douce ne

suivent pas un alignement homogène suivant la direction du champ magnétique appliqué (figure 3.4 (b)).

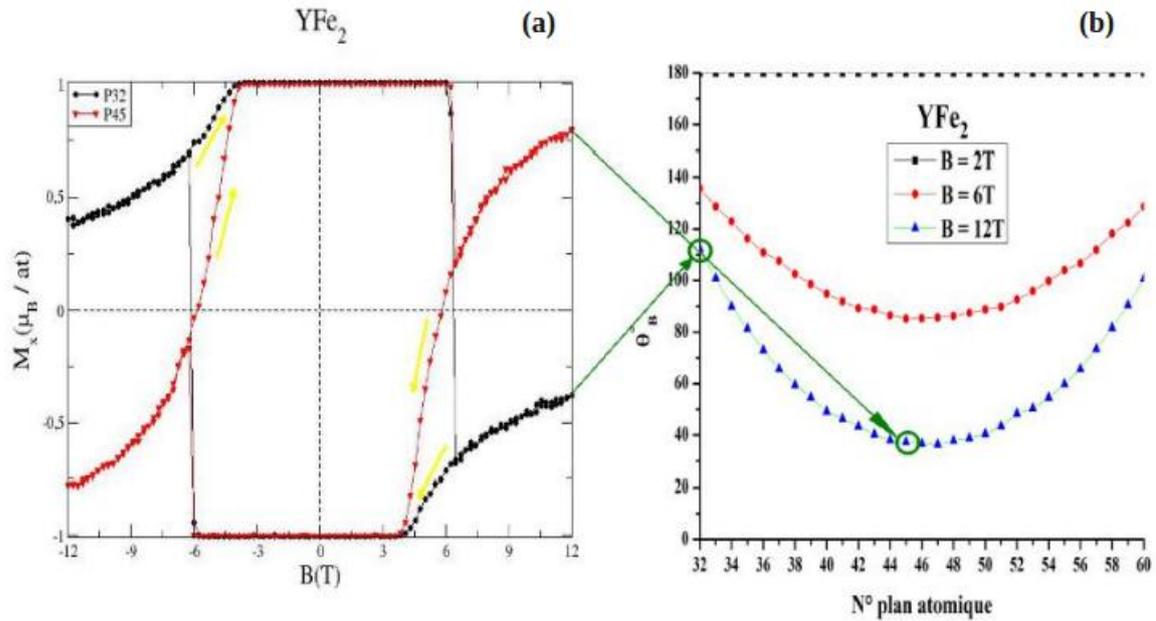


FIGURE 4.5 – (a) Cycles d’aimantation pour la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> pour un plan à l’interface (courbe noire-P32) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P45). (b) Évolution de l’angle entre l’aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction de la progression au cœur de la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué.

Pour la même valeur du champ magnétique ( $B = 12$  T), la valeur de l’aimantation que ce soit pour un plan à l’interface (P62) ou bien au cœur (P77) de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> est toujours positive avec un léger décalage entre les deux valeurs (figures 4.6 (a)), en raison de la compétition énergétique entre l’énergie Zeeman qui domine au cœur de la couche et l’énergie de l’interaction d’échange importante à l’interface. D’un point de vue quantitatif, on définit un angle  $\theta_i$  entre la direction du champ appliqué et la direction du moment magnétique du plan  $i$ .

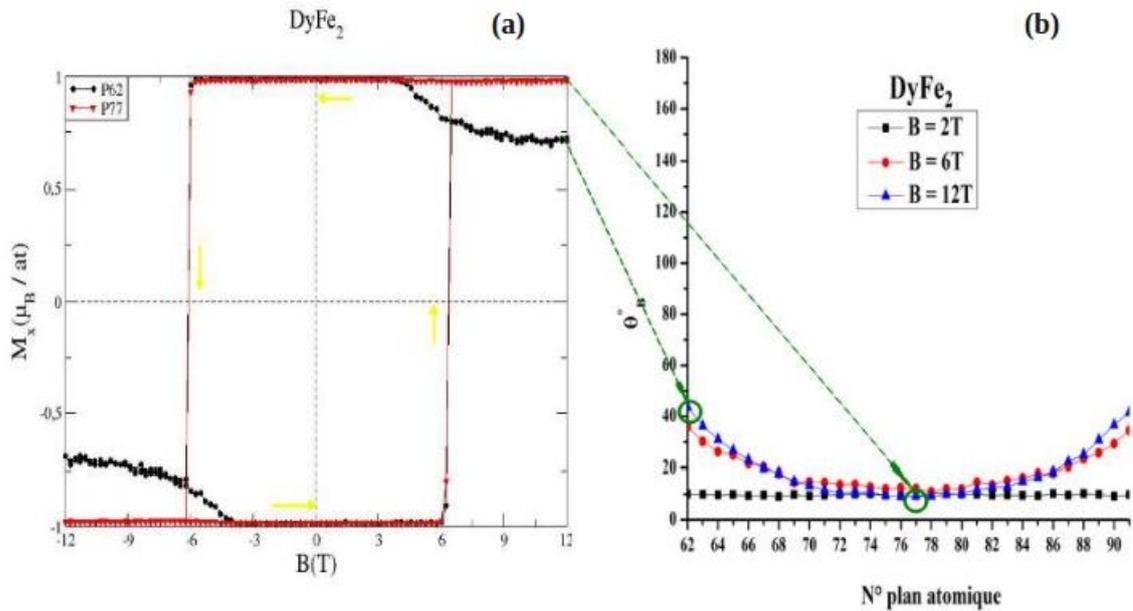


FIGURE 4.6 – (a) Cycles d’aimantation pour la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) pour un plan à l’interface (courbe noire - P62) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge - P77). (b) Évolution de l’angle entre l’aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction de la progression de la paroi au coeur de la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué.

Sur la figure 4.6 (b), il y a environ 8 plans de la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) où l’angle  $\theta$  est compris entre 10° et 41°, impliquant que la majorité des moments magnétiques du DyFe<sub>2</sub> sont pratiquement colinéaires au champ magnétique appliqué (figure 3.4 (b)). Afin de satisfaire les couplages d’échange entre premiers voisins à l’interface de la couche, les moments magnétiques font l’objet d’un léger désalignement par rapport à la direction du champ magnétique ( $\theta = 41^\circ$ ) (figure 4.6 (b)).

En effet, la variation de l’angle  $\theta$  en fonction de la profondeur des couches magnétiques est nettement marquée sur les figures 4.5 (b) et 4.6 (b) . Concernant la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> (figure 4.5 (b)), l’angle  $\theta$  dépend de la valeur du champ magnétique appliqué que se soit à l’interface ou au cœur de la couche magnétique, car en champ magnétique fort, l’angle diminue rapidement avec la profondeur, mais elle augmente progressivement lorsque le champ diminue, en champ magnétique faible ( $B = 2\text{ T}$ ) toutes les aimantations des plans sont antiparallèles à la direction du champ magnétique appliqué  $\theta = 180^\circ$  (figure 4.5 (b)).

Du point de vue de la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub>, l'angle  $\theta$  diminue rapidement avec la profondeur et la diminution progressive du champ magnétique appliqué. Or elle varie entre 41° en champ fort et 10° en champ faible ce qui implique un léger désalignement par rapport au champ magnétique, ce qui est confirmé visuellement sur la représentation du profil de l'aimantation (figure 4.7).

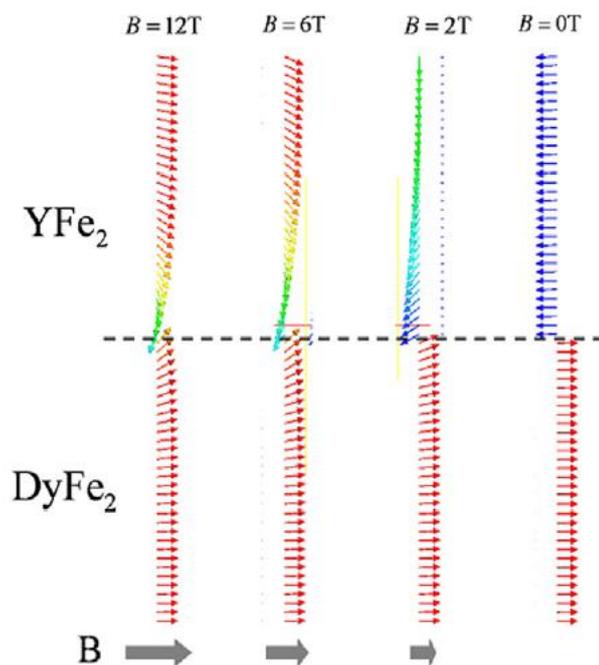


FIGURE 4.7 – Représentation du profil de l'aimantation pour différentes valeurs du champ magnétique décroissant.

En conséquence, la paroi d'interface est principalement localisée sur environ 15 plans de la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>. Ces résultats sont en très bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux [73, 82].

Afin de bien comprendre le processus de retournement de l'aimantation, il va falloir considérer l'aimantation de chaque espèce chimique (Fe, Y, Dy) dans l'ensemble du système, ce que nous avons représenté sur la figure 4.8. Partant d'une configuration en champ fort où le Dy et l'Y sont aimantés dans des directions respectivement parallèle et antiparallèle au champ (figure 4.8), ce qui implique que les moments de Fe dans les deux couches sont antiparallèles, le super-réseau évolue vers un état ferrimagnétique pour un champ inférieur à  $B_B = 4$  T. On

observe que l'évolution des aimantations est très progressive en champ fort et que la paroi se développe rapidement à partir d'un champ magnétique de 6 T environ.

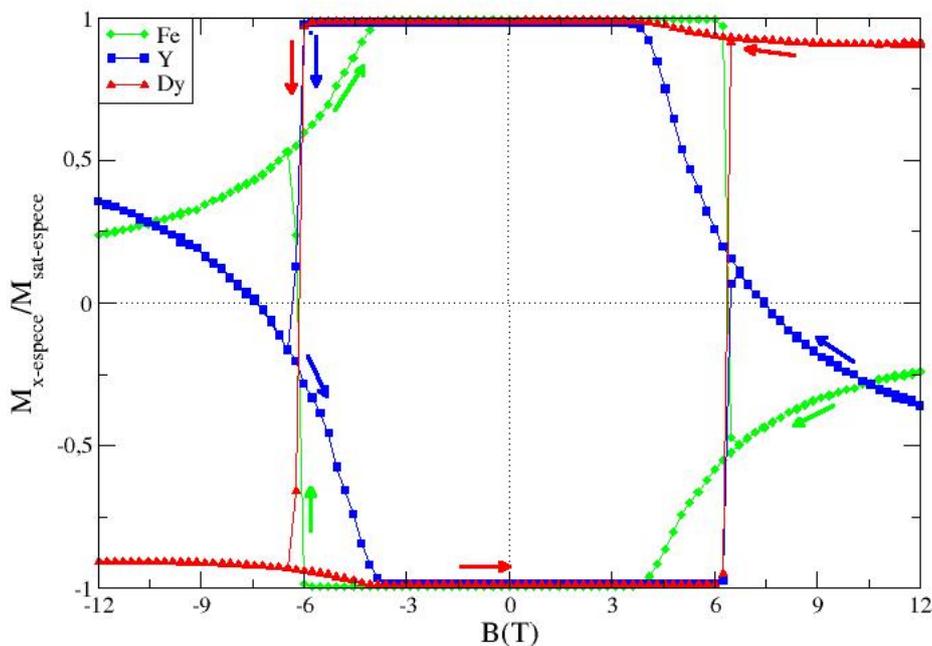


FIGURE 4.8 – Cycles d’hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1) / YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 10$  K.

Pour toutes ces raisons, il convient de signaler que nos résultats sont en très bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux [73, 78, 82, 83], et de façon similaire ils ont mis clairement en évidence les points suivants :

1. la paroi d’interface est localisée principalement dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> ;
2. un changement du comportement magnétique entre le cœur et l’interface des couches ;
3. la valeur du champ ( $B_B$ ) (environ 4 T) dépend principalement de la compétition entre l’énergie d’échange et l’énergie Zeeman ;
4. la valeur du champ ( $B_{IS}$ ) (environ 6 T) est fortement corrélée à l’anisotropie uniaxiale des sites de Dy ;

5. le retournement de l'aimantation est contrôlé par la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub>.

A) « Exchange spring » de type 2

Le super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(2)] correspond à la situation où l'épaisseur relative entre la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> et la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> vaut (1/2). Ces épaisseurs correspondent approximativement à 10 nm pour la couche de DyFe<sub>2</sub> et 20 nm pour la couche d'YFe<sub>2</sub> choisi par K. Dumesnil et *al* [88] pour [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(20nm)]<sub>13</sub>, le cycle d'hystérésis simulé à basse température ( $T = 10$  K) est représenté sur figure 4.9.

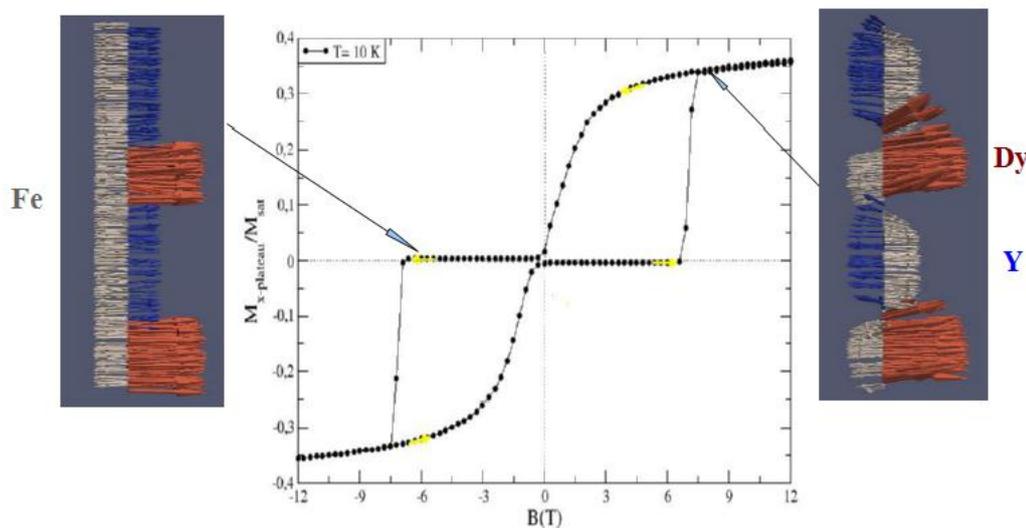


FIGURE 4.9 – Cycle d'hystérésis du super-réseau [DyFe<sub>2</sub> (1)/ YFe<sub>2</sub>(2)] à  $T = 10$  K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy, ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique des moments magnétiques de Dy en rouge, le Fe en gris et l'Y en bleu.

A nouveau, le processus de retournement de l'aimantation s'effectue en deux étapes, il est typiquement le même que celui observé dans le cas « exchange spring » de type 1. En effet, le comportement magnétique sous champ magnétique appliqué est le même dans les deux cas.

A cela s'ajoute la présence d'une compensation magnétique entre les aimantations des couches de DyFe<sub>2</sub> et de YFe<sub>2</sub> provoquée par une compétition entre l'effet de la contribution

Zeeman qui modifie l'équilibre énergétique et l'interaction d'échange, car l'application d'un champ magnétique extérieur tend à aligner tous les moments magnétiques suivant sa direction, alors que les deux couches sont couplées de façon antiferromagnétique. Par conséquent l'aimantation résultante de ce système est nulle.

Dans ce paragraphe, nous étudions plus précisément le processus de retournement de l'aimantation observé pour les moments magnétiques de chaque espèce chimique (Dy, Y et Fe). On commence tout d'abord par les moments magnétiques du Dy dans la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>). En champ magnétique fort, ils sont parallèles à la direction du champ magnétique appliqué sous l'effet de la contribution de l'énergie Zeeman dominante. Toutefois, la diminution de la valeur du champ magnétique appliqué n'oblige pas les moments magnétiques du Dy à changer leur orientation de départ, jusqu'à une certaine valeur  $B_{IS}$  du champ magnétique appliqué, à partir de laquelle les moments du Dy se retournent brusquement de façon irréversible dans la direction antiparallèle au champ magnétique appliqué ( $-Ox$ ). En effet, ce processus de retournement est observé sur un cycle d'hystérésis presque carré, particulièrement large (courbe rouge, figure 4.10), ce qui est la marque d'une caractéristique dépendant de l'anisotropie magnétique importante sur les sites de Dy à basse température.

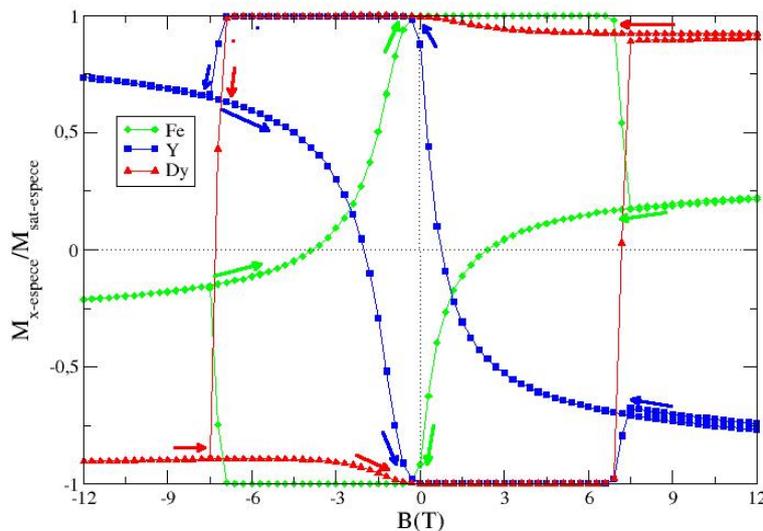


FIGURE 4.10 – Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(2) à  $T = 10$  K.

Pour un champ magnétique fort et appliqué suivant la direction de facile aimantation [100] qui est bien évidemment sa direction choisie, les moments magnétiques de l'Y dans la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) s'orientent antiparallèlement à cette direction (courbe bleue), tandis que les moment magnétiques du Fe suivent la direction du champ (courbe verte, figure 4. 10).

En diminuant la valeur du champ magnétique appliqué, les moments magnétiques de l'Y ainsi que ceux du Fe changent progressivement de direction. Sous l'effet du couplage d'échange entre les moments magnétiques, et en présence d'un champ magnétique extérieur qui tend à les aligner suivant sa direction, il y aura une compétition énergétique entre l'énergie Zeeman et l'énergie d'interaction d'échange, ce qui favorise la création d'une paroi d'interface comme une zone de transition permettant d'accommoder les contraintes générées par cette compétition énergétique, jusqu'à une valeur du champ magnétique  $B_B$ .

Ensuite, tous les moments magnétiques de l'Y s'orientent antiparallèlement à la direction du champ magnétique, précisément lorsque les moments de Fe s'orientent suivant la direction parallèle du champ magnétique que ce soit dans la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) ou dure (DyFe<sub>2</sub>), ce qui implique la configuration ferrimagnétique dans les deux couches.

Puis, les différents moments magnétiques se retournent d'une façon irréversible à la valeur  $B_{IS}$  qui dépend fortement de l'anisotropie magnétique sur les sites du Dy [73, 82].

Il s'avère que dans cette zone du champ magnétique appliqué ( $B \in ]B_B, B_{IS}[$ ), le couplage effectif antiferromagnétique entre les aimantations des deux couches magnétiques subit une compensation magnétique, ce qui est inédit. Par conséquent l'aimantation résultante de ce système est nulle ce qui est parfaitement visible sur la figure 4.9.

##### 4.1.1.4 Retournement en premier lieu de la phase dure

Ce scénario est caractérisé par un rapport entre les épaisseurs des couches magnétiques dure et douce qui vaut 0,25 et qui se réfère au super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(1)/ YFe<sub>2</sub>(4)]. Ces épaisseurs correspondent approximativement à 5 nm pour la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) et 20 nm pour la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) [84]. Le grand nombre de résultats expérimentaux

attribués à ce scénario cités dans le chapitre 3 met en évidence l'importance d'étudier ce super-réseau qui possède un comportement atypique, ce qui fait que ce scénario est le plus original parmi l'ensemble des situations rencontrées. Sa particularité réside non seulement dans son processus de retournement de l'aimantation, mais aussi dans le signe négatif du champ coercitif à basse température (figure 4.11), ce qui est inédit.

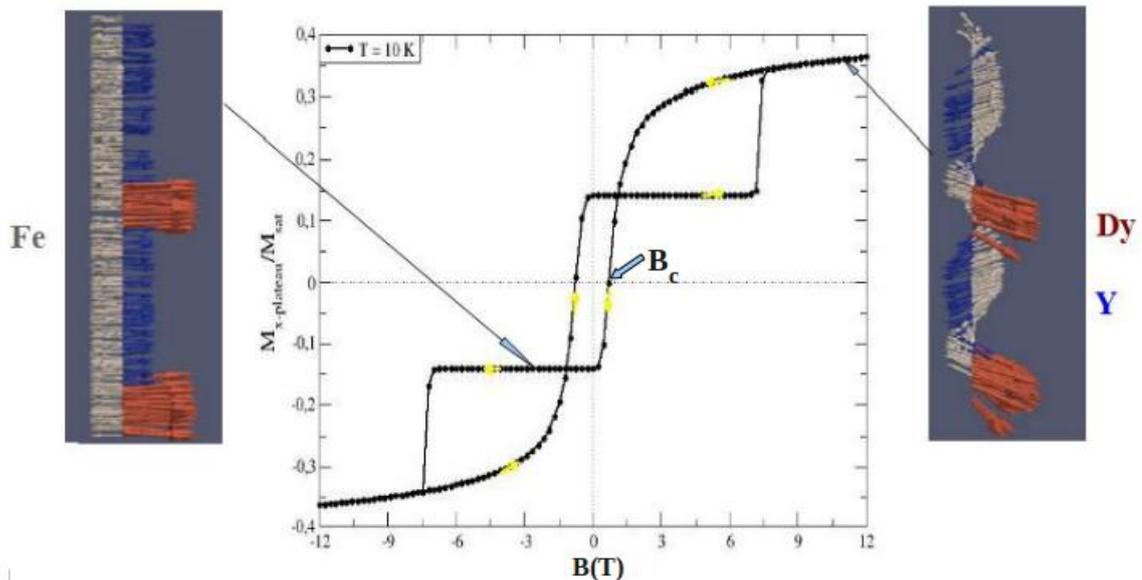


FIGURE 4.11 – Cycle d’hystérésis du super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4)] à  $T = 10$  K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy, ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique des moments magnétiques de Dy en rouge, le Fe en gris et l’Y en bleu.

Le cycle d’hystérésis de la figure 4.11 présente une évolution de l’aimantation totale du système en fonction du champ magnétique appliqué. On peut décomposer cette évolution en trois zones. Partant d’un champ magnétique fort, la première zone est caractérisée par une décroissance progressive de l’aimantation avec la diminution de l’intensité du champ ; la seconde zone met en évidence un plateau d’aimantation ; enfin, la dernière zone correspond au retournement brutal de l’aimantation du système. Une première analyse de la figure 4.11 met en évidence les principaux points suivants :

- l’existence d’un champ coercitif  $B_C$  négatif en accord avec les résultats expérimentaux [73, 84] ;

- le plateau d'aimantation  $M_{x\text{-plateau}}/M_{sat}$  a cette fois-ci une valeur négative, impliquant que c'est la couche magnétique douce qui domine magnétiquement ;
- le retournement de l'aimantation est toujours contrôlé par la couche magnétique dure et intervient à une valeur du champ de retournement irréversible  $B_{IS}$  importante.

Afin de comprendre le processus du retournement atypique attribué à ce scénario, nous avons représenté sur les figures 4.12 et 4.13 les courbes d'aimantation des couches magnétiques douce et dure, ainsi que l'évolution de l'angle  $\theta$  entre l'aimantation du plan et le champ magnétique ( $B$ ) en fonction de la profondeur pour différentes valeurs du champ magnétique à  $T = 10$  K.

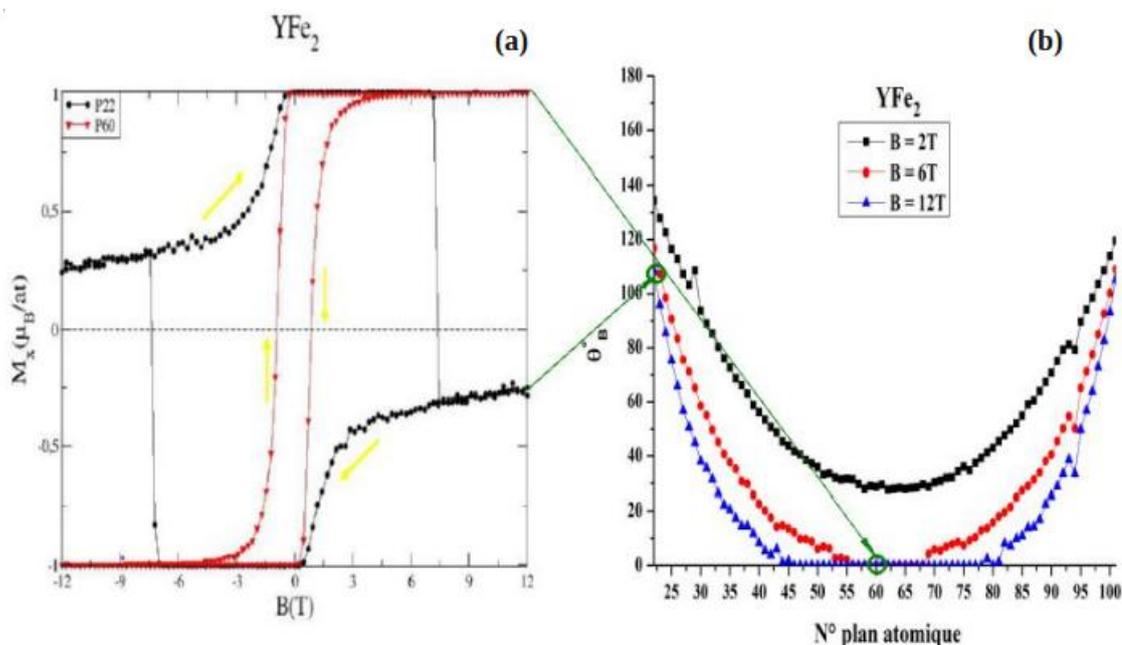


FIGURE 4.12 – (a) Cycles d'aimantation dans la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) pour un plan à l'interface (courbe noire-P22) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P60). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche.

Partant d'une configuration en champ fort où les plans au coeur de la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) (courbe rouge -P60) sont aimantés dans une direction parallèle au champ magnétique appliqué (figure 4.12(a)), on observe un angle  $\theta$  qui est nul dans une zone d'environ 35 plans puis il augmente progressivement lorsque le champ diminue (figure 4.12 (b)).

Pour une valeur du champ de 2T, l'angle  $\theta$  atteint environ  $40^\circ$ , ce qui implique que l'aimantation n'est plus colinéaire au champ magnétique et sa valeur diminue progressivement. Cependant, pour un plan à l'interface de cette couche (courbe noire -P22), l'angle  $\theta$  vaut environ  $110^\circ$  en champ fort, elle augmente progressivement lorsque l'intensité du champ diminue (figure 4.12 (b)), ce qui revient à dire qu'une paroi est développée sur environ 20 plans atomiques, principalement à l'interface de la couche magnétique douce, le constat peut être expliqué par la compétition énergétique entre le couplage d'échange qui favorise la configuration ferromagnétique entre les moments magnétiques du Fe ce qui est nettement visible sur la représentation schématique des moments magnétiques (figure 4. 11), et l'effet de l'énergie Zeeman qui tend à les aligner suivant la direction du champ magnétique appliqué. D'autre part, l'effet de l'anisotropie magnétique sur les sites de Dy joue un rôle plus important à l'interface puis cet effet diminue en pénétrant en profondeur la couche magnétique douce. On peut s'en convaincre en observant que la courbe d'aimantation d'un plan à l'interface de la couche magnétique douce (courbe noire - P22) est plus large que la courbe d'aimantation d'un plan au coeur de la même couche magnétique (courbe rouge - P60).

En ce qui concerne la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) (figure 4. 13 (a)), l'aimantation n'est pas saturée en champ magnétique fort, ni au coeur de la couche (courbe rouge – P110) où elle fait avec le champ un angle  $\theta \simeq 22^\circ$ , ni à son interface (courbe noire – P102) où l'angle  $\theta$  est plus important est vaut environ  $55^\circ$  (figure 4. 13 (b)).

Ce phénomène est lié au couplage d'échange interfacial et à la faible épaisseur de la couche magnétique dure, comme nous l'avons mis en évidence précédemment. Ainsi, le désalignement des moments magnétiques de DyFe<sub>2</sub> existe sur une épaisseur d'environ 20 plans (figure 4. 13 (b)) alors que l'épaisseur de cette couche magnétique dure est également de 20 plans. Puis l'aimantation augmente progressivement lorsque l'intensité du champ magnétique diminue jusqu'à la valeur  $B_B$  pour laquelle l'aimantation commence à s'orienter antiparallèlement au champ sous l'effet de la forte anisotropie sur les sites de Dy (figure 4. 13 (a)).

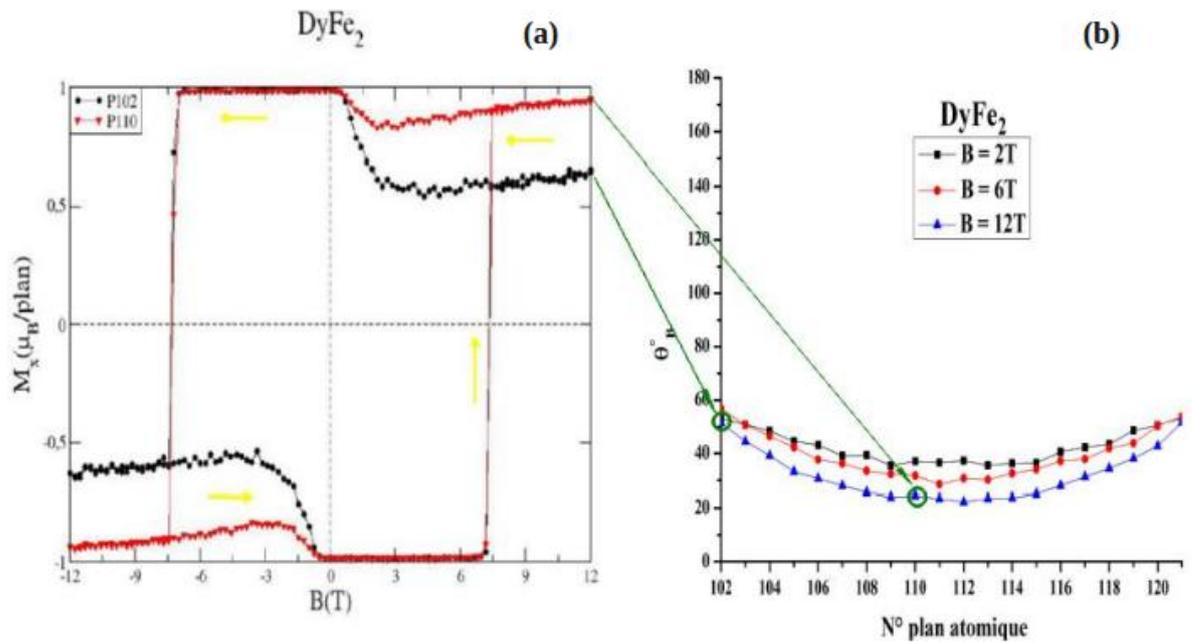


FIGURE 4.13 – (a) Cycles d’aimantation dans la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> pour un plan à l’interface (courbe noire-P102) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P110). (b) Évolution de l’angle entre l’aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche.

D’après les deux figures précédentes (4.12 et 4.13), on constate que la paroi est toujours localisée pour une bonne part dans la couche magnétique douce et elle est développée à environ 110° en champ fort. Elle se décompresse lorsque l’on diminue l’intensité du champ magnétique. On remarque cependant qu’elle pénètre cette fois un peu plus dans la couche dure. Ces résultats sont en bon accord qualitatif avec ce que l’on peut observer dans la littérature [84].

Nous représentons sur la figure 4.14 les cycles d’hystérésis par sous-réseau afin de mettre en évidence le processus de retournement observé pour chaque espèce chimique Fe, Y et Dy. Partons d’une configuration en champ fort où le Dy et l’Y sont aimantés dans des directions respectivement parallèle et antiparallèle au champ magnétique. Quant au Fe, ses moments magnétiques dans les deux couches sont antiparallèles, le super-réseau évolue vers un état ferri-magnétique pour un champ inférieur à  $B_B = 0,2$  T. On observe que l’évolution des aimantations est très progressive en champ fort et que la paroi se développe rapidement à partir d’un champ de 3T environ.

L'influence de la forte anisotropie magnétique uniaxiale du Dy est nettement visible sur la courbe d'aimantation du Dy qui a une aire plus large que celles du Fe et de l'Y, car dans la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>), c'est le Dy qui domine d'un point de vue magnétique. Ainsi, l'énergie d'anisotropie magnétique domine l'énergie Zeeman et l'énergie du couplage d'échange dans le cadre de la compétition énergétique entre ces différents termes. En revanche, elle n'a aucune influence sur les courbes d'aimantation du Fe et de l'Y, car les plans de la couche magnétique douce sont riches en Fe, par conséquent l'énergie de couplage d'échange est dominante dans ce cas.

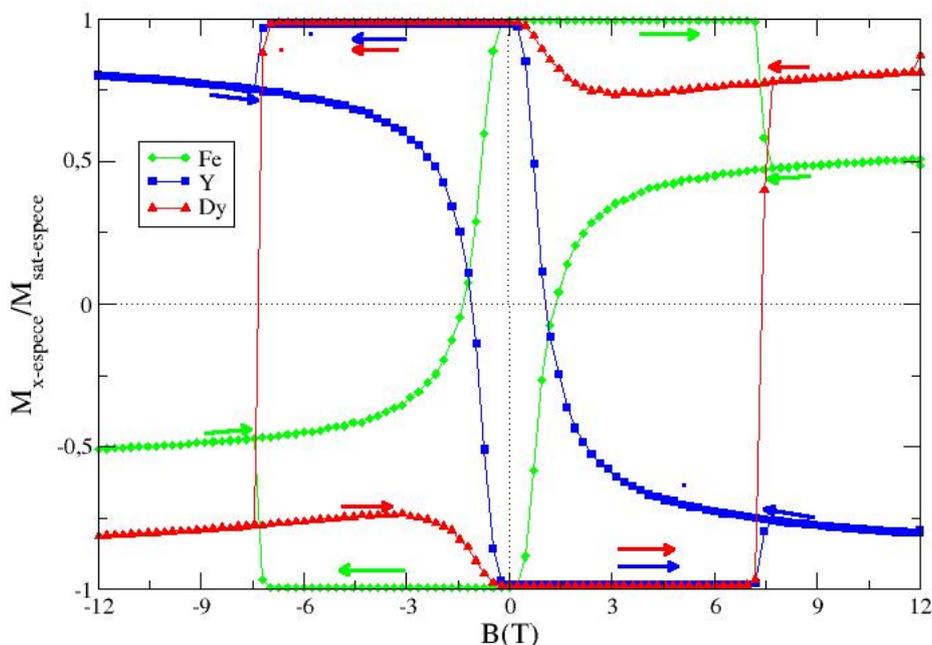


FIGURE 4.14 – Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) à  $T = 10$  K.

Finalement, notre modèle de simulation permet de reproduire l'évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique, où l'ordre magnétique dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> est fortement corrélé à l'épaisseur relative de la couche magnétique dure par rapport à la couche douce. La caractéristique indépendante des épaisseurs est l'existence d'un retournement brutal de l'aimantation totale du système qui est contrôlé par l'anisotropie magnétique uniaxiale du Dy. Même s'il existe des similitudes entre les différents cycles, on peut néanmoins mettre en

évidence des différences importantes pour ce qui concerne les structures magnétiques obtenues. En effet, on passe d'un cycle carré (figure 4.1) pour de faibles épaisseurs d'YFe<sub>2</sub> à des cycles moins habituels pour de faibles épaisseurs de DyFe<sub>2</sub>(figure 4.11).

Par ailleurs, outre le fait que le modèle que nous avons utilisé permet d'introduire des paramètres plus réalistes qui jouent un rôle non négligeable sur le phénomène d'"exchange spring" notamment les interactions d'échange dans les couches de DyFe<sub>2</sub> et d'YFe<sub>2</sub>, il permet également d'accéder à des informations plus fines que le cycle d'hystérésis global des échantillons telles que les profils d'aimantation, car on a pris en considération les intégrales d'échange entre les différentes espèces chimique (Fe, Y, Dy), ce qui n'était pas le cas dans d'autres études de simulation, par exemple celle de G. J. Bowden et *al* [73] basée sur une méthode itérative [92, 93].

Enfin, les résultats de simulation obtenus pour  $e_{\text{DyFe}_2}/e_{\text{YFe}_2} = 0,25$  (figure 4.11) révèlent la particularité de l'existence de la coercivité négative qui résulte de deux contributions :

- en dessous de  $e_{\text{DyFe}_2}/e_{\text{YFe}_2} = 0,5$ , c'est la couche magnétique douce d'YFe<sub>2</sub> qui domine d'un point de vue magnétique ;
- la paroi, localisée dans la couche douce, se décompresse très progressivement avec le champ magnétique.

Ces résultats de simulation à basse température sont en très bon accord qualitatif avec ceux obtenus par l'expérience. Nous désirons désormais étudier l'effet de l'augmentation de la température sur les différents scenarii observés.

## 4.1.2 Propriétés mesurées à haute température

Afin d'étudier l'influence de la température sur le processus de retournement de l'aimantation et sur la localisation de la paroi d'interface, nous avons conservé les mêmes valeurs des épaisseurs relatives des trois scénarios précédents pour que notre étude puisse aboutir à des comparaisons.

Nous allons par la suite présenter les résultats de simulations obtenus à haute température.

### 4.1.2.1 Scénario de type « bloc dur »

Les résultats de simulations attribués au scénario appelé « bloc dur », révèlent l'influence importante de la température sur le processus de retournement de l'aimantation, illustrée sur la figure 4.15 (a) . A haute température le cycle d'hystérésis se contracte verticalement ce qui correspond à une diminution globale de l'aimantation du système (figure 4.15 (b)); cet effet est dû à l'agitation thermique qui induit un effet de désorientation partielle des moments magnétiques les uns par rapport aux autres. On observe également une contraction horizontale où la coercivité diminue traduisant un retournement facilité de l'aimantation, puisque l'énergie nécessaire au retournement de l'aimantation est moindre à plus haute température. Cependant, le cycle d'hystérésis ne révèle aucun signe de la création - annihilation d'une paroi d'interface. Cela signifie que quelle que soit la température, le processus de retournement de l'aimantation dans ce scénario se fait en une seule fois.

En effet, le phénomène de contraction du cycle d'hystérésis est également observé dans les résultats expérimentaux [72] représentés sur la figure 3.7 (a), ce qui met en évidence le bon accord qualitatif de nos résultats de simulation avec ceux obtenus par l'étude expérimentale.

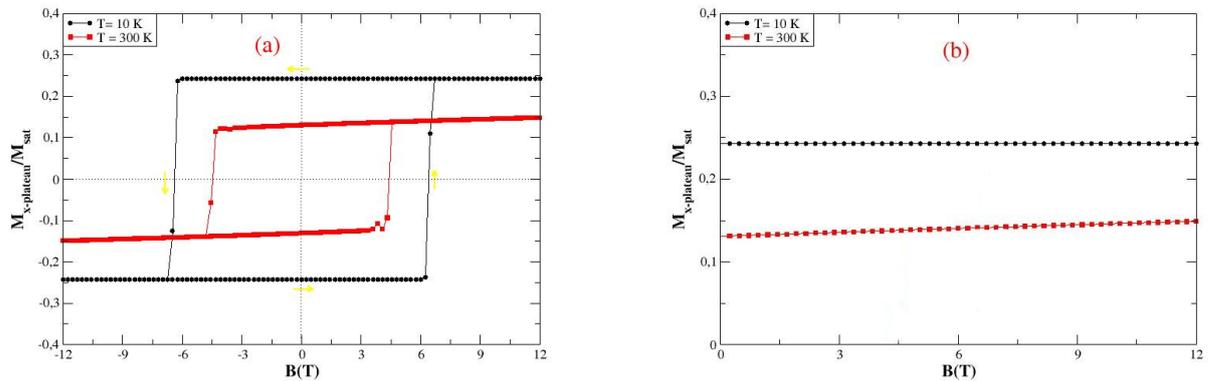


FIGURE 4.15 – (a) Cycles d’hystérésis du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(2)/YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 10$  K et  $T = 300$  K, suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). (b) Cycles d’hystérésis partiel du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(2)/YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 10$  K et  $T = 300$  K.

#### 4.1.2.2 Scénario de type « exchange spring »

On observe sur la figure 4.16 (a), Le retournement de l’aimantation pour le scénario de type « exchange spring » qui se fait en deux étapes, à basse comme à haute température : une première phase progressive suivie d’une étape brutale, ces deux étapes sont limitées par les deux valeurs caractéristiques du champ magnétique  $B_B$  et  $B_{IS}$ . Toutefois, à haute température, l’agitation thermique contribue à diminuer la valeur de l’aimantation du système (figure 4.16 (b)), ainsi que l’anisotropie magnétique qui est contrôlée par les atomes de Dy. Par conséquent le retournement de l’aimantation se fait plus facilement à haute température, tout en conservant la première zone de création-annihilation de la paroi d’interface et la zone qui correspond à la configuration ferrimagnétique du système. Par ailleurs les valeurs caractéristiques du champ magnétique  $B_B$  et  $B_{IS}$  sont plus faibles à haute température qu’à basse température.

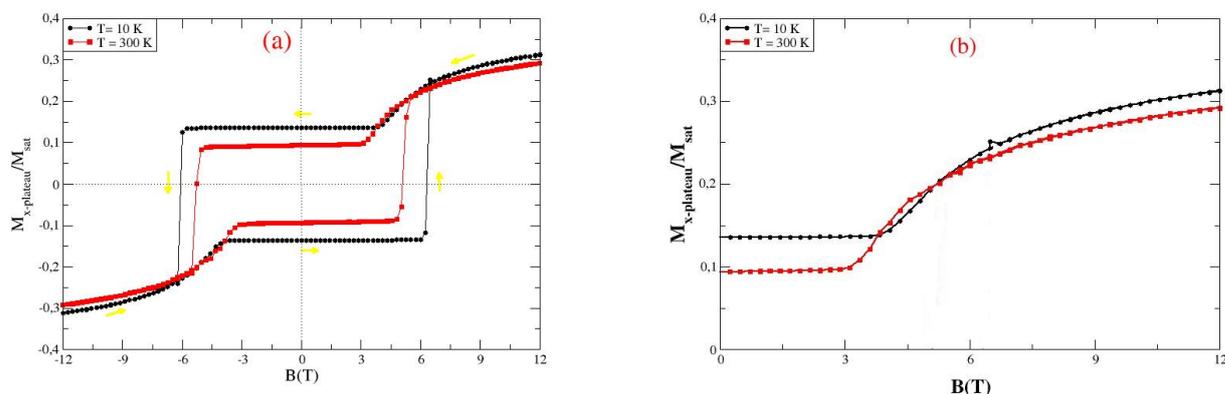


FIGURE 4.16 – (a) Cycles d’hystérésis du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 10$  K et  $T = 300$  K, suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). (b) Cycles d’hystérésis partiel du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 10$  K et  $T = 300$  K.

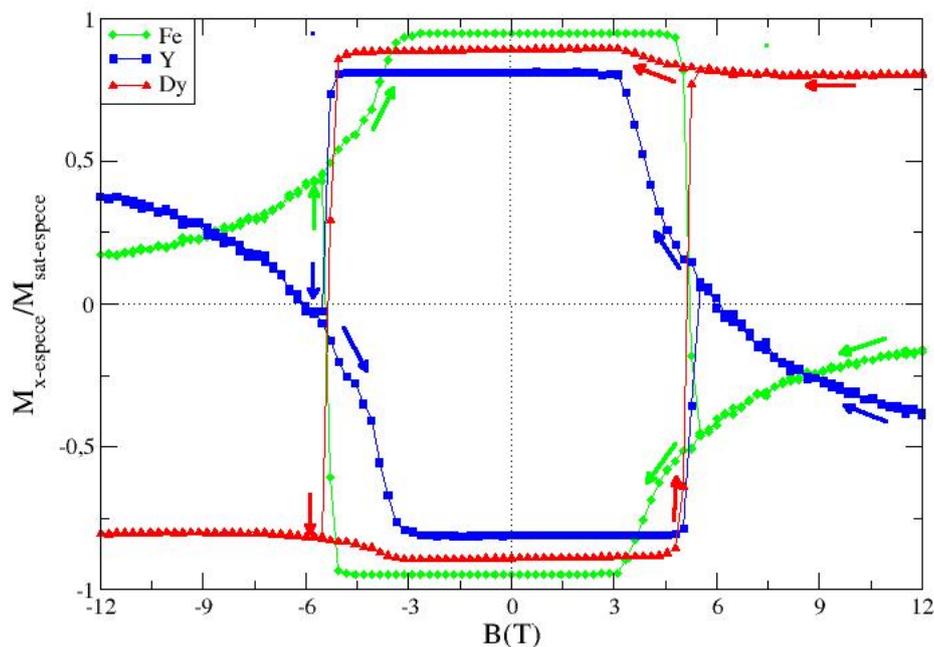


FIGURE 4.17 – Cycles d’hystérésis pour les trois espèces chimiques : l’Y, le Fe et le Dy dans une bicouche du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(1) à  $T = 300$  K.

La comparaison entre les courbes d’aimantation par sous-réseau simulées à basse température ( $T=10$  K) et à haute température ( $T=300$  K) présentées respectivement sur les figures 4.8 et

4.17, nous confirme une décroissance de la coercivité ainsi qu'une diminution de l'aimantation nettement marquée lorsque la température augmente. De plus, il est à noter que même à haute température, la paroi demeure dans la couche douce puisque le rapport entre les épaisseurs du système fait que c'est ici la couche de DyFe<sub>2</sub> qui domine magnétiquement. Ces résultats de simulation sont en bon accord qualitatif avec différents résultats expérimentaux, notamment pour le super-réseau [DyFe<sub>2</sub>(10nm)/YFe<sub>2</sub>(13nm)]<sub>18</sub> [72].

#### 4.1.2.3 Retournement en premier lieu de la phase dure

Le cycle d'hystérésis de la figure 4.18 (a) présente une évolution de l'aimantation totale du système en fonction du champ magnétique appliqué pour différentes températures. Il est à noter que les épaisseurs choisies pour avoir le cycle d'hystérésis à  $T = 200$  K, sont comparables à celles utilisées dans les études expérimentales [79]. En effet, l'évolution de l'aimantation à haute température peut être décomposée en quatre étapes. Partant d'un champ magnétique fort, la première partie est caractérisée par une décroissance progressive de l'aimantation avec la diminution de l'intensité du champ. En champ fort, la valeur de l'aimantation totale du système à basse température est plus grande que celle à haute température ce qui est clairement visible sur la figure 4.18 (b). La seconde partie met en évidence un plateau d'aimantation positif, puis ce dernier devient négatif. Enfin, la dernière partie correspond au retournement brutal de l'aimantation du système.

On observe donc que ce processus de retournement de l'aimantation est complètement différent de celui à basse température (figure 4.18), ce qui prouve l'influence de la température sur la compétition entre les différents termes énergétiques introduits dans le hamiltonien. À cela s'ajoute le changement de signe du champ coercitif qui devient positif ce qui n'était pas le cas à basse température.

les courbes d'aimantation pour les couches magnétiques douce (YFe<sub>2</sub>) et dure (DyFe<sub>2</sub>) présentées respectivement sur les figures 4.19 et 4.20 nous permettent d'expliquer en détail ce nouveau processus de retournement qui met en évidence l'apparition de trois boucles d'hystérésis à haute température (figure 4.18(a)).

Partons d'un champ magnétique fort, l'aimantation au coeur de la couche magnétique douce (courbe rouge -P60) (figure 4.19.(a)) est parallèle au champ magnétique pour 60 plans environ (figure 4.19.(b)). Rappelons que, dans cette couche, ce sont les moments magnétiques de Fe qui dominent magnétiquement, ils sont influencés par l'effet Zeeman qui est la contribution dominante d'un point de vue énergétique et il tend à aligner tous les moments magnétiques suivant la direction du champ.

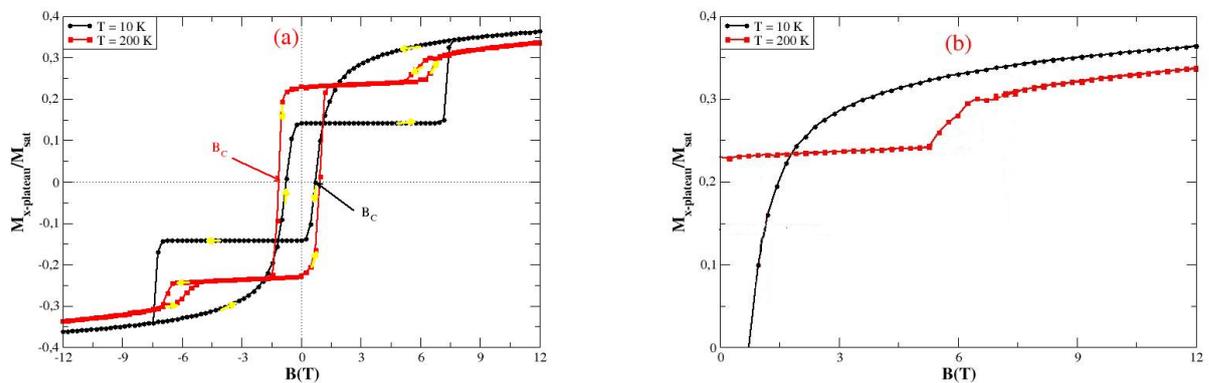


FIGURE 4.18 – (a) Cycles d'hystérésis du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) à  $T = 10$  K et  $T = 200$  K suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). (b) Cycles d'hystérésis partiel du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) à  $T = 10$  K et  $T = 200$  K.

On observe sur la figure 4.19.(a) qu'en champ fort l'aimantation magnétique d'un plan au coeur de la couche YFe<sub>2</sub> (courbe rouge -P60) est saturée, elle est stable malgré la diminution du champ magnétique, et elle reste parallèle au champ magnétique appliqué jusqu'à  $B \simeq -1,2$  T sur environ 60 plans (figure 4.19.(b)). Cependant, à l'interface, l'aimantation de YFe<sub>2</sub> augmente progressivement lorsque le champ magnétique diminue et l'angle  $\theta$  diminue progressivement dans une zone de moins de 10 plans en générant une paroi d'interface afin de satisfaire la compétition énergétique dominée par le couplage d'échange entre les moments magnétiques voisins de Fe. Cela revient à dire que dans la couche magnétique douce la paroi d'interface est développée sur seulement un huitième de l'épaisseur de la couche.

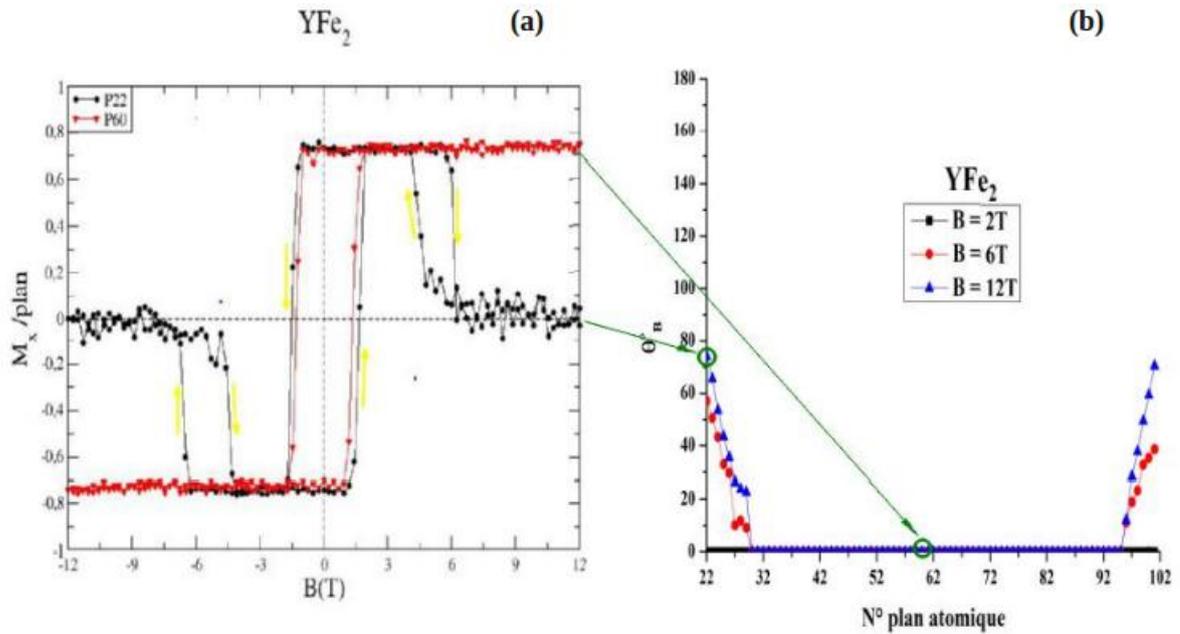


FIGURE 4.19 – (a) Cycles d’aimantation pour la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub> pour un plan à l’interface (courbe noire-P22) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P60). (b) Évolution de l’angle entre l’aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche.

La figure 4.20 (a) montre explicitement le retournement en premier lieu de la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>), car en champ magnétique fort, l’aimantation d’un plan au coeur de cette couche (courbe rouge -P110) a une valeur inférieure à celle d’un plan au coeur de la couche magnétique douce (courbe rouge -P60) (figure 4.19 (a)), puis cette valeur diminue progressivement lorsque le champ magnétique diminue, sachant qu’elle est saturée dans la couche magnétique douce. En suite, tous les moments magnétiques de DyFe<sub>2</sub> s’orientent antiparallèlement au champ et aussi aux moments magnétiques de la couche YFe<sub>2</sub> (figure 4.21) afin de satisfaire le couplage d’échange entre premiers voisins qui domine la compétition énergétique à l’interface. Puis, pour un champ  $B \simeq -1,2$  T, l’effet de l’énergie Zeeman tend à rendre tous les moments magnétiques de la couche de DyFe<sub>2</sub> parallèles au champ, et quand ce dernier atteint environ  $-6$  T les moments magnétiques se retournent brusquement et irréversiblement en suivant la direction du champ sous l’effet de l’anisotropie magnétique sur les sites de Dy.

Conformément à ce processus de retournement, sur toute la couche magnétique dure, l’angle  $\theta$  augmente progressivement lorsque le champ magnétique diminue (figure 4.20 (b)), impliquant que la paroi interfaciale demeure principalement dans la couche magnétique dure.

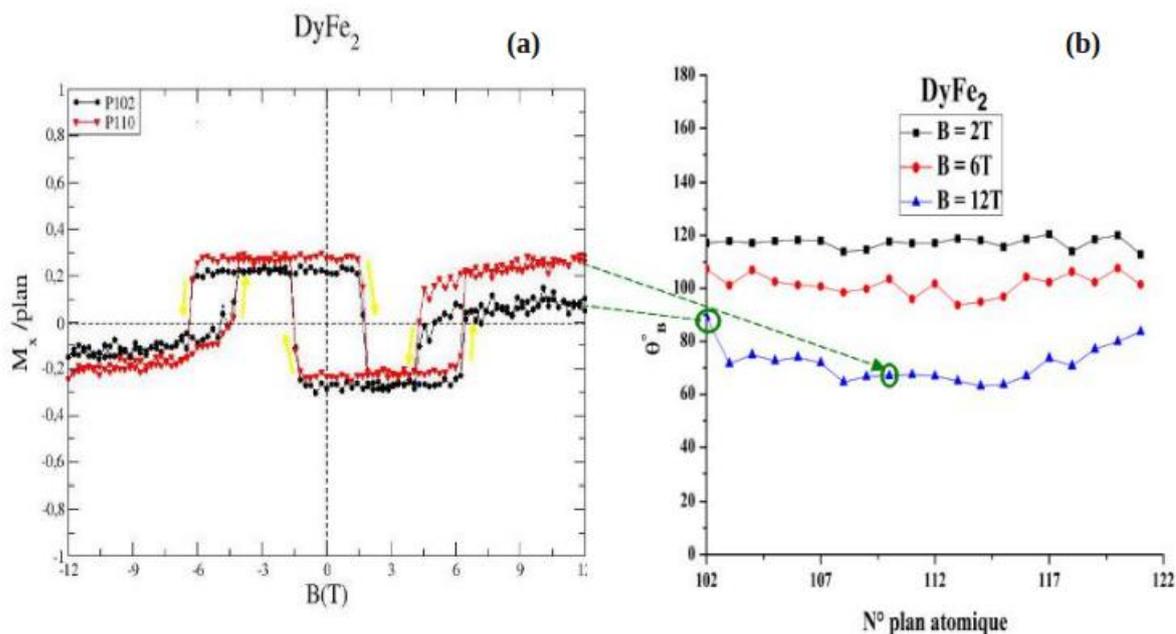


FIGURE 4.20 – (a) Cycles d’aimantation pour la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> pour un plan à l’interface (courbe noire-P102) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P110). (b) Évolution de l’angle entre l’aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche.

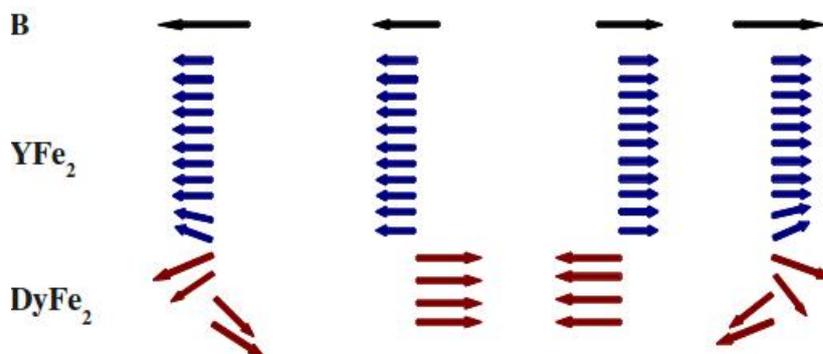


FIGURE 4.21 – Représentation schématique du profil de l’aimantation en fonction du champ magnétique.

Afin de comprendre le processus de retournement propre au fer, à l’yttrium et au dysprosium, nous nous sommes intéressés à interpréter les cycles d’hystérésis pour chacune de ces espèces chimiques.

En champ fort, les moments magnétiques du Fe sont parallèles au champ magnétique appliqué, alors que ceux d’Y sont antiparallèles. Par ailleurs, les moments magnétiques du Dy présentent un renversement d’aimantation a priori surprenant (figure 4.22), car ils s’orientent

suisant le champ magnétique quand il a une valeur intense, puis ils se retournent en sens inverse, alors que ni les moments magnétiques du Fe ni ceux d'Y n'ont modifié leur orientation. Enfin, tout le bloc se retourne en même temps.

La figure 4.22 montre explicitement que le retournement de l'aimantation se fait en premier lieu dans la couche magnétique dure, d'où la nécessité de la création de la paroi d'interface dans cette couche.

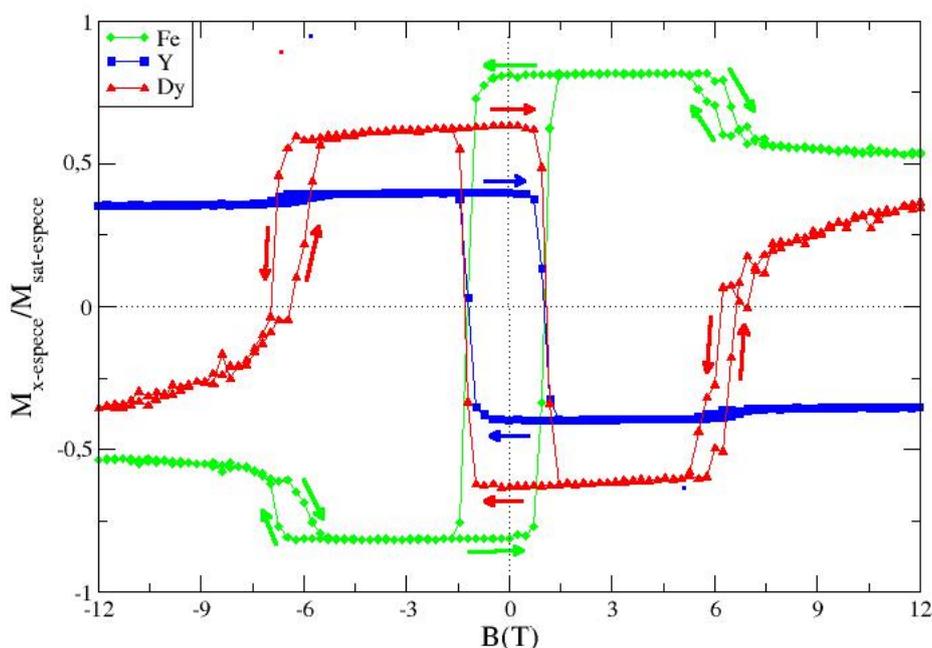


FIGURE 4.22 – Cycles d'hystérésis pour les trois espèces chimiques : l'Y, le Fe et le Dy dans une bicouche du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) à  $T = 200$  K.

On observe sur la figure 4.23 que les cycles d'hystérésis se rétrécissent de façon progressive en augmentant la température. Ce phénomène est contrôlé par les valeurs de température de Curie du fer et de dysprosium, c'est-à-dire quand la température est inférieure à celle de Curie de Dy, les moments magnétiques de la couche magnétique dure sont influencés par la forte anisotropie sur les sites de Dy et l'aimantation à saturation de cette couche atteint son maximum en champ magnétique fort, tandis que dans la couche magnétique douce c'est le Fe qui domine

d'un point de vue magnétique, et étant donné que sa température de Curie est supérieure à celle du Dy, l'aimantation de la couche magnétique douce est saturée en champ magnétique fort sans aucune fluctuation thermique.

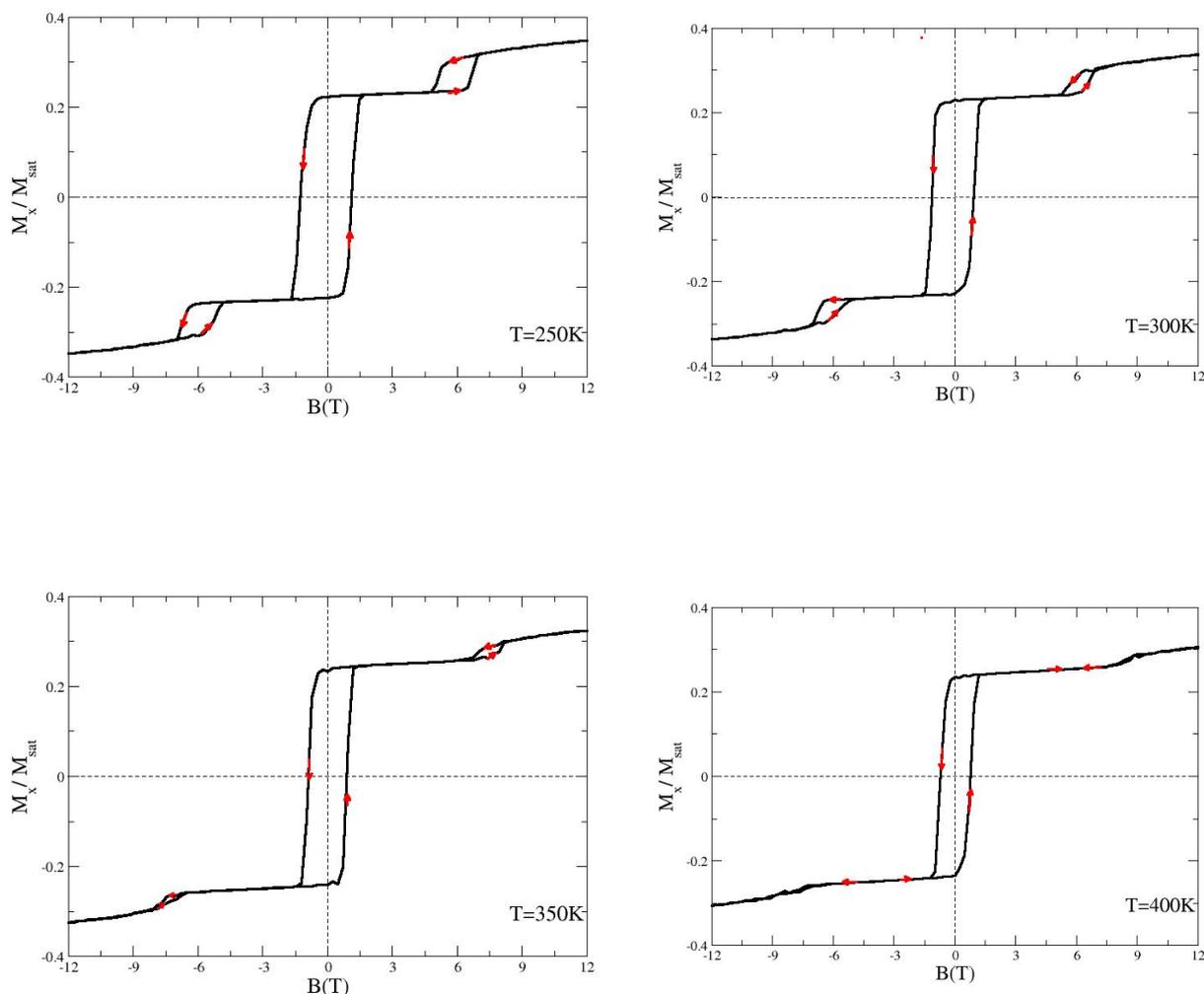


FIGURE 4.23 – Cycles d’hystérésis du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) pour différentes températures suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $O_x$ ).

Augmenter la température est une façon de perturber cet ordre magnétique et de provoquer le désordre. Cela se traduit par une diminution de l'aimantation à saturation des sous réseaux magnétiques notamment celle de la couche magnétique dure, qui devient moins magnétique au fur et à mesure de cette augmentation de température. Ce phénomène est responsable de la diminution progressive de la valeur du rapport entre l'aimantation de la couche magnétique

dure et celle de la couche magnétique douce (figure 4.24). On observe ainsi que notre résultat est compatible avec le résultat expérimental récent obtenu par J. P. Zimmermann et *al* [86].

En fait, cette diminution est la conséquence évidente de l'effet de l'agitation thermique qui contribue à désordonner le système, en particulier la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub> qui a une faible épaisseur par rapport à la couche magnétique douce riche en Fe qui domine d'un point de vue magnétique.

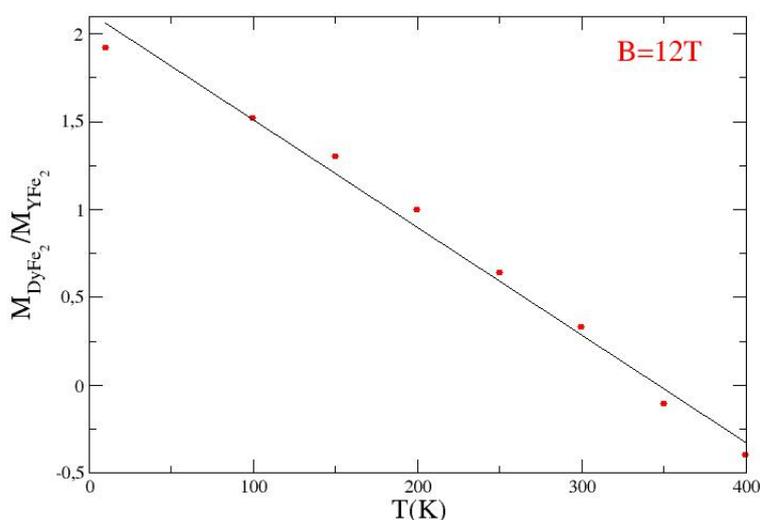


FIGURE 4.24 – Evolution du rapport entre l'aimantation de la couche magnétique dure et celle de la couche magnétique douce dans le super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) en fonction de la température.

Étant donné que le champ coercitif dépend de l'anisotropie magnétocristalline [94] et que l'énergie d'échange ainsi que l'énergie d'anisotropie magnétocristalline ne sont plus suffisantes par rapport à l'énergie thermique, le retournement de l'aimantation s'effectue spontanément en premier lieu dans la couche magnétique dure riche en Dy, et la valeur du champ coercitif diminue progressivement avec l'augmentation de la température. Les résultats de simulation sont portés graphiquement sur la figure 4.25 [91], ce qui a également été observé expérimentalement pour les super-réseaux [DyFe<sub>2</sub>(3 nm)/YFe<sub>2</sub>(12 nm)]<sub>22</sub>, [DyFe<sub>2</sub>(5 nm)/YFe<sub>2</sub>(20 nm)]<sub>13</sub>

et [DyFe<sub>2</sub>(7 nm)/YFe<sub>2</sub>(28 nm)]<sub>10</sub> [88].

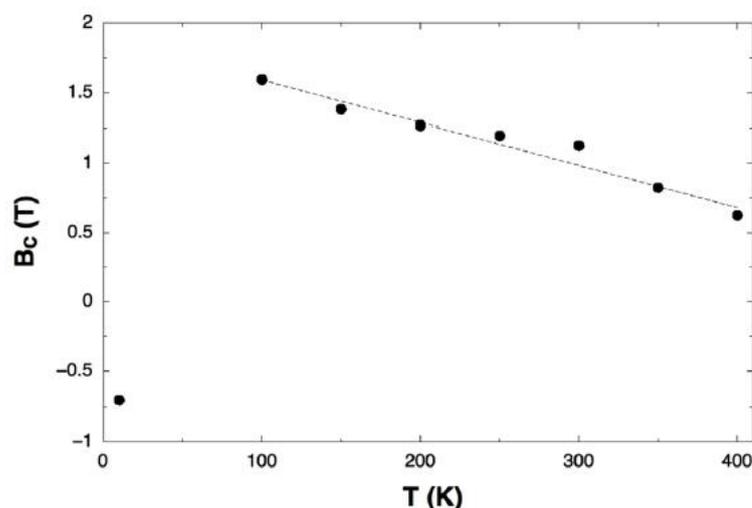


FIGURE 4.25 – Variation du champ coercitif  $B_c$  en fonction de la température pour le super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) [91].

A plus haute température encore ( $T = 400$  K), le cycle d'hystérésis simulé du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) est étroit et présente essentiellement une seule boucle (figure 4.23). Étant donné que le système est soumis à une forte agitation thermique, les deux boucles d'hystérésis secondaires disparaissent, ce qui indique qu'aucune paroi d'interface n'est présente, ni dans la couche magnétique douce YFe<sub>2</sub>, ni dans la couche magnétique dure DyFe<sub>2</sub>.

En outre, le système atteint son aimantation maximale facilement avec un champ magnétique extérieur relativement faible. Cette aimantation persiste lorsque l'on cesse d'appliquer ce champ. Il s'agit donc d'une aimantation rémanente importante. Cependant, cette aimantation se dissipe facilement sous l'action d'un faible champ coercitif. Donc, le super réseau peut être aimanté et désaimanté facilement.

Les caractéristiques de ce cycle d'hystérésis sont comparables avec celles d'un matériau magnétique doux mentionné au chapitre 1, ce qui nous permet de dire qu'à haute température les moments magnétiques du fer dans la couche magnétique douce du super-réseau DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) dominant magnétiquement le système.

En conclusion, le modèle choisi pour étudier le processus de retournement de l'aimantation dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> par simulation Monte Carlo, nous a permis d'avoir des cycles d'hystérésis qui présentent l'effet des épaisseurs relatives des deux couches magnétiques sur ce processus. Cet effet donne lieu à trois différents scénarios, dont chacun d'entre eux a son spécifique processus de retournement de l'aimantation ainsi que son profil d'aimantation. A fortiori, un rapport d'épaisseur inférieur à 1 amène la paroi d'interface à se déplacer de la couche magnétique douce (YFe<sub>2</sub>) à basse température vers la couche magnétique dure (DyFe<sub>2</sub>) à haute température, ce déplacement est nettement visible dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) appartenant au troisième scénario.

Nos simulations sont globalement en bon accord qualitatif avec les cycles d'hystérésis expérimentaux et permettent d'expliquer l'existence d'une coercivité négative à basse température lorsque l'épaisseur de la couche magnétique douce est quatre fois plus grande que celle de la couche magnétique dure.

Il est à noter que la simulation Monte Carlo nous a permis d'avoir un nombre important de cycles d'hystérésis qui présentent le processus de retournement avec plus de détail, en commençant par le comportement général du super-réseaux, puis de chaque couche magnétique, et enfin le processus de retournement de chaque espèce chimique (Fe, Dy, Y). Cette richesse en information permet d'avoir une compréhension plus fine des mécanismes.

En perspective à ce travail, il serait intéressant d'appliquer ce modèle à d'autres types de multicouches et de proposer des interprétations de cycles d'hystérésis. Il serait également intéressant d'étudier l'impact de l'anisotropie perpendiculaire au plans des couches sur leurs propriétés magnétiques. Ainsi que l'effet de l'application d'un champ magnétique perpendiculaire sur le processus de retournement.



## Conclusion Générale

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'étude des propriétés magnétiques d'un super-réseau ( $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ ) appartenant à la famille des hétérostructures intermétalliques TR- $\text{Fe}_2$  qui cristallisent dans une structure cubique de type  $\text{MgCu}_2$  appelée phase de laves. Les caractéristiques intrinsèques de chaque alliage  $\text{DyFe}_2$  (couche magnétique dure) et  $\text{YFe}_2$  (couche magnétique douce), composants des super-réseaux combinées aux interactions d'échange aux interfaces donnent naissance à des comportements magnétiques particulièrement originaux notamment le processus de retournement de l'aimantation. Dans ces systèmes, il est généralement admis que le renversement d'aimantation s'effectue par le développement de parois dans le matériau magnétique doux, suivi du retournement irréversible de l'aimantation du matériau magnétique dur.

Les résultats présentés dans cette thèse sont centrés sur la question de la dépendance du principe de retournement de l'aimantation pour les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$  en fonction de la température, ainsi que de l'épaisseur relative de la couche magnétique dure ( $\text{DyFe}_2$ ) par rapport à la couche magnétique douce ( $\text{YFe}_2$ ). Pour cette raison nous avons utilisé la méthode Monte Carlo basée sur l'algorithme Metropolis standard, qui permet d'étudier des systèmes à l'équilibre thermodynamique. En ne tenant pas compte des barrières d'énergie à franchir lors de la rotation individuelle de chaque spin, cette méthode permet a priori d'examiner toutes les configurations possibles. En revanche, elle n'est pas adaptée à l'étude de la dynamique de retournement de l'aimantation donc à la simulation de cycles d'hystérésis. Par conséquent, nous avons choisi d'utiliser ici la méthode Monte Carlo quantifiée en temps.

En outre, nous avons utilisé le modèle de spins vectoriels de Heisenberg [34] autorisant toute rotation des spins dans l'espace. Ce modèle est adapté à l'étude des structures magnétiques non colinéaires, telles que les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ . L'énergie magnétique de ces super-

réseaux est la résultante de trois contributions : l'énergie d'échange, l'anisotropie magnétocristalline et l'effet Zeeman en présence d'un champ magnétique appliqué.

Un grand nombre de résultats issus de travaux expérimentaux sur des échantillons de type "spring-magnets" montrent une forte dépendance entre le processus de retournement de l'aimantation du système et les différents ratios des épaisseurs entre la couche magnétique dure ( $\text{DyFe}_2$ ) et la couche magnétique douce ( $\text{YFe}_2$ ). En outre, ces résultats mettent en évidence l'effet de la température sur le processus de retournement de l'aimantation quelle que soit l'épaisseur relative ( $e_{\text{DyFe}_2}/e_{\text{YFe}_2}$ ) qui donne naissance à trois principaux scénarios (bloc dur, « exchange spring », retournement en premier lieu de la couche magnétique dure).

Le premier scénario baptisé « bloc dur » est un super-réseau caractérisé par une épaisseur de la couche magnétique dure deux fois plus grande que celle de la couche magnétique douce ( $\text{DyFe}_2(2)/\text{YFe}_2(1)$ ). Ces épaisseurs correspondent approximativement à 10 nm pour la couche de  $\text{DyFe}_2$  et 5 nm pour la couche de  $\text{YFe}_2$  qui constituent par exemple le système  $[\text{DyFe}_2(10\text{nm})/\text{YFe}_2(5\text{nm})]_{26}$  [72]. Le cycle d'hystérésis à basse température ( $T = 10$  K) est « carré » et caractérisé par une configuration ferrimagnétique stable quelle que soit la valeur du champ magnétique appliqué puisque le comportement magnétique de ce système présente une forte anisotropie magnétique uniaxiale due aux atomes de Dy. Par conséquent, le cycle d'hystérésis est large impliquant que le super-réseau  $\text{DyFe}_2(2)/\text{YFe}_2(1)$  nécessite un champ coercitif important pour le désaimanter.

A haute température, le cycle d'hystérésis se contracte verticalement ce qui correspond à une diminution globale de l'aimantation du système ; cet effet est dû à l'agitation thermique qui induit un effet de désorientation partielle des moments magnétiques les uns par rapport aux autres. On observe également une contraction horizontale où la coercivité diminue traduisant un retournement facilité de l'aimantation, puisque l'énergie nécessaire au retournement de l'aimantation est moindre à plus haute température. Cependant, le cycle d'hystérésis ne révèle aucun signe de la création - annihilation d'une paroi d'interface.

le le second scénario baptisé « exchange spring », est obtenu lorsque les épaisseurs de la couche magnétique douce  $\text{YFe}_2$  sont plus importantes de telle sorte qu'elles se rapprochent des épaisseurs de la couche magnétique dure  $\text{DyFe}_2$  comme :  $[\text{DyFe}_2(10\text{nm})/\text{YFe}_2(13\text{nm})]_{18}$  [78],  $[\text{DyFe}_2(10\text{nm})/\text{YFe}_2(10\text{nm})]_{40}$  [82] et  $[\text{DyFe}_2(5\text{nm})/\text{YFe}_2(5\text{nm})]_{40}$  [83]. Les résultats expérimentaux montrent que le comportement magnétique du système dépend de la valeur et de la direction du champ magnétique appliqué.

En effet, les cycles d'hystérésis présentent deux étapes distinctes de retournement [87]. la première étape en champ magnétique fort correspond à la création d'une paroi dans la couche magnétique douce [78, 82, 83], et la première phase du retournement se fait de façon progressive avec la disparition de cette paroi, en raison de la compétition énergétique entre le couplage d'échange à l'interface et l'effet Zeeman. Puis, la deuxième étape en champ magnétique négatif correspond au retournement brutal de l'aimantation totale du système. Elle est contrôlée par l'anisotropie magnétique de la couche de  $\text{DyFe}_2$ . Cependant, à haute température, les cycles d'hystérésis sont globalement plus étroits par rapport à ceux à basse température, ce phénomène étant dû à la diminution de l'anisotropie magnétocristalline en fonction de la température [72].

Le troisième scénario appelé « retournement en premier lieu de la couche magnétique dure » correspond à un scénario où l'épaisseur de la couche magnétique douce est quatre fois plus grande que celle de la couche magnétique dure. Ce scénario est plus marginal car le processus de retournement est plus complexe. La caractéristique principale de ces cycles d'hystérésis à basse température est la création de la paroi dans la couche magnétique dure ( $\text{DyFe}_2$ ), puis elle se développe entièrement dans la couche magnétique douce ( $\text{YFe}_2$ ). En effet, le premier saut de l'aimantation correspond au retournement de la phase dure en premier lieu ; ce saut est caractérisé par l'existence d'une boucle en champ positif. Une caractéristique importante de ce scénario est l'existence d'un champ coercitif négatif.

A haute température, des résultats expérimentaux importants issus des études effectuées par plusieurs équipes scientifiques, notamment ceux obtenus par Dumesnil et *al* [78–81, 88], et G. J. Bowden et *al* [85, 86] mettent en évidence l'apparition de trois boucles d'hystérésis lors du retournement de l'aimantation, la première boucle en champ positif correspond au

retournement de la phase dure  $\text{DyFe}_2$ , impliquant que la paroi d'interface est déplacée de la couche magnétique douce  $\text{YFe}_2$  à basse température vers la couche magnétique dure  $\text{DyFe}_2$  à haute température. Ce phénomène est lié à la faible valeur de la température de Curie du Dy ( $T_C(\text{Dy}) = 89 \text{ K}$ ) [85]; ce qui fait qu'un champ magnétique faible peut être suffisant pour retourner l'aimantation de la couche magnétique dure  $\text{DyFe}_2$ , il est à noter que le champ coercitif a une valeur positive cette fois-ci.

Grâce à notre modèle de simulation et en tenant compte de tous les paramètres qui peuvent jouer un rôle important dans le processus de retournement de l'aimantation, nous avons pu étudier ce processus dans les échantillons de type "spring-magnets" pour différents ratios des épaisseurs entre la couche magnétique dure et la couche magnétique douce, en se basant sur les résultats expérimentaux cités en détail dans le troisième chapitre. La comparaison entre nos résultats de simulation et ceux de l'expérience nous confirme le bon accord entre les cycles d'hystérésis des deux méthodes [89–91].

En perspective à ce travail, il serait intéressant d'appliquer ce modèle à d'autres types de multicouches comme par exemple  $\text{ErFe}_2 / \text{YFe}_2$  qui était déjà étudié en utilisant la modélisation micromagnétique [95] et de proposer des interprétations de cycles d'hystérésis. Il serait également intéressant d'étudier l'impact de l'anisotropie perpendiculaire au plan des couches sur leurs propriétés magnétiques, ainsi que l'effet de l'application d'un champ magnétique perpendiculaire sur le processus de retournement.

Aujourd'hui, de nombreux efforts de recherche concernent le développement de nouveaux systèmes pour des applications comme l'enregistrement magnétique à très haute densité. Ces études ont révélé que les systèmes « exchange spring » peuvent également être utilisés afin de surmonter le problème lié à la limite superparamagnétique rencontrés dans la technologie de stockage d'informations, l'idée étant d'ajouter une couche mince de  $\text{DyFe}_2$  dans la couche magnétique douce  $\text{YFe}_2$  ce qui est utile pour induire l'anisotropie dans cette couche. Ces recherches ont abouti à des résultats intéressants à la fois d'un point de vue expérimental et en simulation par des calculs micromagnétiques en utilisant le code (OOMMF) pour le super-réseau  $[\text{DyFe}_2(4\text{nm})/\text{YFe}_2(8\text{nm})/\text{DyFe}_2(0,8\text{nm})/\text{YFe}_2(8\text{nm})]_{20}$  [96]. Il serait intéressant d'utiliser

la simulation Monte Carlo afin d'étudier ce nouveau concept pour les systèmes « exchange spring » dans les super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>.



# **Annexe**

# Annexe A

## Liste des communications scientifiques

### Articles

- S. Djedai, E. Talbot and P.E. Berche : *A Monte Carlo study of the magnetization reversal in DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> exchange-coupled superlattices*, J. Magn.Magn. Mater. 368 :29–35, (2014).

### Conferences

#### Oraux avec publication d'actes

- P. E. Berche, S. Djedai, and E. Talbot, *Magnetic properties of exchange spring DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> superlattices by monte carlo simulations*. In MRS Online Proceedings Library, 1471 (2012), mrss 12-1471-yy02-yy04, (2012).
- S. Djedai and P. E. Berche, *Monte Carlo simulation of magnetic exchange spring system DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4)*, Journal of Physics : Conference series, 286 :012036, (2011).

### Posters

- S. Djedai, P.E. Berche and C. Dufour, *Simulation Monte Carlo du couplage d'échange dans les systèmes DyFe<sub>2</sub>(1)/YFe<sub>2</sub>(4) en fonction de la température*, Nanomagnetism and spintronics colloquium, Grenoble (France) (24/11/2010 – 25/11/2010)
- S. Djedai, P.E. Berche and C. Dufour, *Etude des propriétés magnétique de super-réseaux DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> par simulation Monte Carlo*, Colloque Louis Néel 2010, Selestat (France) (30/03/2010 – 02/04/2010)



# Liste des tableaux

1.1	Moments magnétiques en $\mu_B/at$ de volume et de surface pour le fer [11–13]. . .	17
1.2	Les valeurs du moment magnétique du Fe en fonction de la diminution de la dimensionnalité et de la coordinence [13, 14]. . . . .	17
1.3	Constantes d’anisotropie du fer (cc), du cobalt (hc), et du nickel (cfc) à température ambiante [15]. . . . .	19
2.1	Expressions des grandeurs thermodynamiques par atome pour les configurations magnétiques explorées. . . . .	51
2.2	Paramètres magnétiques utilisés dans le modèle pour le fer, le dysprosium et l’yttrium. . . . .	57
2.3	Valeurs des interactions d’échange de notre modèle pour les super-réseaux DyFe <sub>2</sub> /YFe <sub>2</sub> . . . . .	57
3.1	Valeurs des paramètres de maille pour des composés intermétalliques TR-Fe <sub>2</sub> étudiés à température ambiante [25]. . . . .	64
3.2	Principales caractéristiques magnétiques des composés YFe <sub>2</sub> et DyFe <sub>2</sub> [25, 33].	65
3.3	Différentes directions de facile aimantation pour des composés massifs déterminées par spectroscopie Mössbauer [25]. . . . .	66
3.4	Valeurs expérimentales des constantes d’anisotropie pour différents composés intermétalliques mesurées aux températures 4,2 K et 300 K [25, 33]. . . . .	66



# Liste des figures

1.1	Cycle d'hystérésis typique d'un matériau magnétique dur. $H_C$ est le champ coercitif, $M_R$ l'aimantation rémanente et $M_S$ l'aimantation à saturation. . . . .	12
1.2	Cycle d'hystérésis typique d'un matériau magnétique doux. . . . .	13
1.3	Représentation schématique de la variation de la densité d'états $D(E)$ en fonction de l'énergie $E$ pour les électrons $3d$ et $4s$ . La zone grisée correspond au remplissage jusqu'au niveau de Fermi (celui-ci est représenté dans le cas du fer, du nickel, du cuivre et du zinc) [9]. . . . .	14
1.4	Déplacement d'une quantité $\delta\varepsilon$ d'électrons de conduction depuis la bande de spin ( $\downarrow$ ) vers la bande de spin ( $\uparrow$ ) [8]. . . . .	15
1.5	Densité d'états en fonction de l'énergie pour les spins $3d$ "up" ( $\uparrow$ ) et les spins $3d$ "down" ( $\downarrow$ ) dans le cas du fer cubique centré [8]. . . . .	16
1.6	Définition des angles $\theta$ et $\phi$ en symétrie hexagonale. $\theta$ correspond à l'angle entre l'aimantation et l'axe $[001]$ de la structure hexagonale. L'angle $\phi$ est l'angle entre la projection de l'aimantation dans le plan $(Oxy)$ perpendiculaire à l'axe $[001]$ du réseau. . . . .	19
1.7	Courbes d'aimantation du fer, du nickel et du cobalt massifs dans différentes directions cristallographiques [16]. . . . .	20
1.8	Représentation schématique du couplage entre les moments cinétiques de spin et orbital $4f$ des ions libres de terres-rares. . . . .	22
1.9	Ordre magnétique dans le dysprosium ; à gauche ordre ferromagnétique ( $T < T_C$ ) ; à droite ordre hélimagnétique ( $T_C < T < T_N$ ). . . . .	23
1.10	Représentation schématique de la densité de charge des orbitales pour un atome de Gd qui montre le caractère fortement localisé de l'orbitale $4f$ [23]. . . . .	23
1.11	Représentation des orbitales $4f$ [29]. . . . .	25

1.12	Potentiel électrique crée par l'environnement cristallin dans les structures uniaxiales : (a) environnement aplati, perpendiculaire à l'axe $c$ ; (b) environnement allongé le long de l'axe $c$ [7]. . . . .	26
1.13	Forme de la couche $4f$ des atomes de TR. $K_i < 0$ pour les terres-rares reportées à gauche avec une distribution aplatie. $K_i > 0$ pour les terres-rares reportées à droite avec une distribution allongée [31]. . . . .	26
1.14	Condition indispensable à l'obtention d'un axe de facile aimantation : $A_2^0 > 0$ et $K_i < 0$ (a) ; $A_2^0 < 0$ et $K_i > 0$ (b) [7]. . . . .	27
1.15	Structure cubique phase de laves de type $MgCu_2$ (C15) dans laquelle cristallisent les composés (TR- $Fe_2$ ) [7]. . . . .	28
1.16	Représentation schématique de la variation de l'interaction d'échange en fonction du rapport entre la distance entre 2 atomes ( $r_a$ ) et le rayon de l'orbitale $3d$ ( $r_{3d}$ ) [38, 39]. . . . .	31
1.17	Représentation schématique de l'oscillation de l'interaction d'échange de type RKKY entre deux moments magnétiques de TR distants de $r$ . . . . .	32
1.18	Représentation schématique des interactions entre un atome de métal de transition MT et un atome de terre-rare TR ( TR légère (a) et TR lourde (b)). . . . .	33
2.1	Représentation schématique de déplacements acceptés quittant et conduisant à l'état X. . . . .	43
2.2	Représentation d'un paysage arbitraire d'énergie. Suivant les positions des minima locaux, indiquées par les flèches, la dynamique aboutit à température nulle dans un quelconque des minima relatifs, séparés par les barrières indiquées en pointillés. . . . .	48
2.3	Représentation schématique de la variation d'énergie au cours du processus de recuit simulé en fonction du nombre de pas MC simulés . <i>ito</i> correspond au nombre d'itérations consacrées à la thermalisation, <i>itm</i> est le nombre total d'itérations, la température décroît périodiquement de $\Delta T$ [22]. . . . .	50
2.4	Principe de la méthode Monte Carlo quantifiée en temps. . . . .	54
2.5	Représentation schématique de l'échantillon modélisé. . . . .	55

3.1	(a) Projection de la maille cubique de la phase de laves (figure 1.15) sur le plan de base. (b) Différentes positions possibles des atomes de deux espèces MT et TR dans la maille cubique de la phase de laves. . . . .	63
3.2	Représentation schématique de l'ordre magnétique d'une bicouche du super-réseau DyFe <sub>2</sub> /YFe <sub>2</sub> : (a) configuration ferrimagnétique en champ magnétique nul ; (b) état stable en présence d'un champ magnétique extérieur. . . . .	68
3.3	Cycle d'hystérésis expérimental du super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (10nm)/YFe <sub>2</sub> (5nm)] <sub>26</sub> [72] avec la représentation schématique de l'ordre magnétique du super-réseau. . . . .	70
3.4	(a) Cycle d'hystérésis d'un super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (10nm)/YFe <sub>2</sub> (13nm)] <sub>18</sub> [72] ; (b, c) représentation schématique de l'ordre magnétique du super-réseau respectivement pour $B > B_B$ et $B < B_B$ . . . . .	71
3.5	Cycles d'hystérésis de super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (5nm)/YFe <sub>2</sub> (20nm)] <sub>16</sub> à $T = 20$ K [84]. . . . .	72
3.6	Représentation schématique des moments magnétiques caractérisant le phénomène "d'échange spring" du super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (5nm)/YFe <sub>2</sub> (20nm)] <sub>16</sub> . . . . .	72
3.7	Cycles d'hystérésis expérimentaux présentant un scénario de type bloc dur pour le super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (10nm)/YFe <sub>2</sub> (5nm)] <sub>26</sub> (a), un scénario de type "échange spring" pour le super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (10nm)/YFe <sub>2</sub> (13nm)] <sub>18</sub> (b) [72]. . . . .	73
3.8	Cycles d'hystérésis de super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (5nm)/YFe <sub>2</sub> (20nm)] <sub>13</sub> à $T = 200$ K [79]. . . . .	75
3.9	Signal XMCD pour un super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (5nm)/YFe <sub>2</sub> (20nm)] <sub>13</sub> à $T = 200$ K au seuil L3 de l'Y et du Dy [79]. . . . .	76
4.1	Cycle d'hystérésis du super-réseau DyFe <sub>2</sub> (2)/YFe <sub>2</sub> (1) à $T = 10$ K, suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ), ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique dans la couche magnétique dure (DyFe <sub>2</sub> ) en rouge, et dans la couche magnétique douce (YFe <sub>2</sub> ) en bleu. . . . .	81
4.2	Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe <sub>2</sub> (2)/YFe <sub>2</sub> (1) à $T = 10$ K. . . . .	82
4.3	Représentation schématique de la configuration magnétique stable du super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (2)/YFe <sub>2</sub> (1)] en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué. . . . .	83

4.4	Cycle d'hystérésis du super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (1)/ YFe <sub>2</sub> (1)] à $T = 10$ K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy, ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique des moments magnétiques de Dy en rouge, le Fe en gris et l'Y en bleu. . . . .	84
4.5	(a) Cycles d'aimantation pour la couche magnétique douce YFe <sub>2</sub> pour un plan à l'interface (courbe noire-P32) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P45). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction de la progression au cœur de la couche magnétique douce YFe <sub>2</sub> pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué. . . . .	86
4.6	(a) Cycles d'aimantation pour la couche magnétique dure (DyFe <sub>2</sub> ) pour un plan à l'interface (courbe noire - P62) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge - P77). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction de la progression de la paroi au coeur de la couche magnétique dure (DyFe <sub>2</sub> ) pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué. . . . .	87
4.7	Représentation du profil de l'aimantation pour différentes valeurs du champ magnétique décroissant. . . . .	88
4.8	Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe <sub>2</sub> (1) / YFe <sub>2</sub> (1) à $T = 10$ K. . . . .	89
4.9	Cycle d'hystérésis du super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (1)/ YFe <sub>2</sub> (2)] à $T = 10$ K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy, ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique des moments magnétiques de Dy en rouge, le Fe en gris et l'Y en bleu. . . . .	90
4.10	Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau DyFe <sub>2</sub> (1)/YFe <sub>2</sub> (2) à $T = 10$ K. . . . .	91
4.11	Cycle d'hystérésis du super-réseau [DyFe <sub>2</sub> (1)/YFe <sub>2</sub> (4)] à $T = 10$ K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy, ainsi que la représentation schématique de la configuration magnétique des moments magnétiques de Dy en rouge, le Fe en gris et l'Y en bleu. . . . .	93

4.12 (a) Cycles d'aimantation dans la couche magnétique douce ( $\text{YFe}_2$ ) pour un plan à l'interface (courbe noire-P22) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P60). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche. . . . .	94
4.13 (a) Cycles d'aimantation dans la couche magnétique dure $\text{DyFe}_2$ pour un plan à l'interface (courbe noire-P102) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P110). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche. . . . .	96
4.14 Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ à $T = 10$ K. . . . .	97
4.15 (a) Cycles d'hystérésis du super-réseau $\text{DyFe}_2(2)/\text{YFe}_2(1)$ à $T = 10$ K et $T = 300$ K, suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). (b) Cycles d'hystérésis partiel du super-réseau $\text{DyFe}_2(2)/\text{YFe}_2(1)$ à $T = 10$ K et $T = 300$ K. . . . .	100
4.16 (a) Cycles d'hystérésis du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(1)$ à $T = 10$ K et $T = 300$ K, suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). (b) Cycles d'hystérésis partiel du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(1)$ à $T = 10$ K et $T = 300$ K. . . . .	101
4.17 Cycles d'hystérésis pour les trois espèces chimiques : l'Y, le Fe et le Dy dans une bicouche du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(1)$ à $T = 300$ K. . . . .	101
4.18 (a) Cycles d'hystérésis du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ à $T = 10$ K et $T = 200$ K suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). (b) Cycles d'hystérésis partiel du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ à $T = 10$ K et $T = 200$ K. . . . .	103
4.19 (a) Cycles d'aimantation pour la couche magnétique douce $\text{YFe}_2$ pour un plan à l'interface (courbe noire-P22) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P60). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche. . . . .	104

---

4.20 (a) Cycles d'aimantation pour la couche magnétique dure $\text{DyFe}_2$ pour un plan à l'interface (courbe noire-P102) et un plan au cœur de la couche (courbe rouge-P110). (b) Évolution de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué en fonction du numéro du plan de la couche. . . . .	105
4.21 Représentation schématique du profil de l'aimantation en fonction du champ magnétique. . . . .	105
4.22 Cycles d'hystérésis pour les trois espèces chimiques : l'Y, le Fe et le Dy dans une bicouche du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ à $T = 200$ K. . . . .	106
4.23 Cycles d'hystérésis du super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ pour différentes températures suivant la direction du champ magnétique appliqué ( $Ox$ ). . . . .	107
4.24 Evolution du rapport entre l'aimantation de la couche magnétique dure et celle de la couche magnétique douce dans le super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ en fonction de la température. . . . .	108
4.25 Variation du champ coercitif $B_c$ en fonction de la température pour le super-réseau $\text{DyFe}_2(1)/\text{YFe}_2(4)$ [91]. . . . .	109



## Bibliographie

- [1] W. H. Meiklejohn and C.P. Bean. *Physical Review*, **102** :1413, (1956).
- [2] L. Néel. *Ann. Phys. (Paris)*, **2** :61, (1967).
- [3] L. I. W. Kuch, F. Chelaru, J. Offi, M. Wang, J. Kotsugi, and Kirschner. *Nature Materials*, **5** :128, (2006).
- [4] R. Skomski and J. M. D. Coey. *Phys. Rev. B*, **48** :15812, (1993).
- [5] D. Suess, T. Schrefl, S. Fahler, M. Kirschner, G. Hrkac, F. Dorfbauer, and J. Fidler. *Appl. Phys. Lett. B*, **87** :012504, (2005).
- [6] R. H. Victora and X. Shen. *IEEE Trans. Mag*, **41** :537, (2005).
- [7] K. Younsi. « *Étude expérimentale et théorique des propriétés structurales et magnétiques des nanomatériaux  $Pr(Co,Fe)_3$*  ». Thèse de doctorat, Université de Paris-Est Creteil, (2012).
- [8] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod, (1972).
- [9] R. Pauthenet. Théorie du magnétisme. In *D175, (Techniques de l'ingénieur), Traité de Génie électrique*, (1983).
- [10] E. C. Stoner. *Proc. Roy. Soc*, **A165** :372, (1938).
- [11] A. J. Freeman and C. L. Fu. *J. Appl. Phys*, **61** :3356, (1987).
- [12] R. C. O'Handley. *J. Appl. Phys*, **R15** :62, (1987).
- [13] R. Serra. « *Moments magnétiques et structure électronique au voisinage des interfaces : étude par spectroscopie de pertes d'énergie d'électrons et calculs ab-initio* ». Thèse de doctorat, Université de Toulouse, (2009).

- [14] C. J. Fu and A. J. Freeman. *Phys. Rev. B*, **35** :3, (1987).
- [15] E. P Wohlfarth. *Ferromagnetic Materials, in : Handbook on the properties of magnetically ordered substances*. Elsevier, Amsterdam, (1980).
- [16] A. H. Morrish. *The Physical Principles of Magnetism*. John Wiley, New-York, (1965).
- [17] M. A. Ruderman and C. Kittel. *Phys. Rev*, **96** :99, (1954).
- [18] T. Kasuya. *Prog. Theor. Phys*, **16** :45, (1956).
- [19] K. Yosida. *Phys. Rev*, **106** :893, (1957).
- [20] W. Koehler. Magnetic structures of rare earth metals and alloys. In *vol. 81- 128, Plenum Press, London and New York*, (1972).
- [21] M. K. Wilkinson, W. C. Koehler, E. O. Wollan, and J. W. Cable. *J. Appl. Phys*, **48S** :32, (1961).
- [22] E. Talbot. « *Étude des propriétés magnétiques de multicouches Fe/Dy par simulations numériques Monte Carlo* ». Thèse de doctorat, Université de Rouen, (2007).
- [23] A. J. Freeman and R. E. Watson. *Phys. Rev*, **127** :2058, (1962).
- [24] K. Dumesnil. « *Couplage magnétique et effets magnétostrictifs dans des films épitaxiés et super-réseaux à base de terres rares* ». Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, (1995).
- [25] V. Oderno. « *Croissance de couches minces épitaxiées de phase de laves TR-Fe<sub>2</sub> (TR=Y, Tb, Dy, et Er) Influence des déformations épitaxiales sur l'anisotropie magnétique* ». Thèse de doctorat, École des Mines de Nancy, (1996).
- [26] O. Eriksson, L. Nordström, A. Pohl, L. Severin, A. M. Boring, and B. Johansson. *Phys. Rev. B*, **41** :11807, (1990).
- [27] R. Briss. *Symmetry and Magnetism*. Elsevier, Amsterdam, (1966).
- [28] K. H. W. Stevens. *Proc. Phys. Soc*, **A65** :209, (1952).

- 
- [29] <http://www.chimica-online.it/download/orbitale-f.htm>. (consulté en novembre 2014).
- [30] Q. Qi, Y. P. Li, and J. M. D. Coey. *J. Phys. : Condens. Matter*, **4** :8209, (1992).
- [31] A. J. Moses, M. Yasin, and M. Soinski. *J. Magn. Magn. Mater*, **133** :637, (1994).
- [32] F. Claeysen, N. Lhermet, R. Le Letty, and P. Bouchilloux. *J. All. Comp*, **258** :61, (1997).
- [33] A. E. Clark. *Magnetostrictive RFe<sub>2</sub> intermetallic compounds*, in : *Handbook on the physics and chemistry of rare earths*. North-Holland Publishing Company, (1979).
- [34] W. Heisenberg. *Z. Physik*, **49** :619, (1928).
- [35] N. H. Duc. *Intersublattice exchange coupling in the lanthanide – transition metal intermetallics*, in : *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*. Elsevier Science, Amsterdam, (1997).
- [36] L. Néel. *Ann. Phys. (Paris)*, **5** :232, (1936).
- [37] J. Kübler. *Phys. Lett*, **81** :81, (1981).
- [38] E. Trémolet de Lacheisserie. *Magnétisme. II Matériaux et applications*. EDP Sciences, (2000).
- [39] E. Trémolet de Lacheisserie. *Magnétisme. I Fondements*. EDP Sciences, (2000).
- [40] I. A. Campbell. *J. Phys. F : Met. Phys*, **2** :L47, (1972).
- [41] P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkranz, and K. Witter. *J. Appl. Phys*, **66** :756, (1989).
- [42] N. Heiman, K. Lee, R. I. Potter, and S. Kirkpatrick. *J. Appl. Phys*, **47** :2634, (1976).
- [43] J. J. M. Franse and R. J. Radwanski. *Handbook of Magnetic Materials*. North-Holland, Amsterdam, (1993).
- [44] H. J. G. Draaisma and W. J. M. de Jonge. *J. Appl. Phys*, **64** :3610, (1988).
- [45] L. Néel. *Compt. Rend. Acad. Sci*, **237** :1468, (1953).
-

- 
- [46] L. Néel. *J. Phys. Radium*, **15** :376, (1954).
- [47] U. Gradmann and J. Müller. *Phys. Stat. Sol.*, **27** :313, (1968).
- [48] C. Chappert, K. Le Dang, P. Beauvillain, H. Hurdequint, and D. Renard. *Phys. Rev. B*, **34** :3192, (1986).
- [49] P. BRUNO. « *Anisotropie magnétique et hystérisis du Cobalt à l'échelle du plan atomique : théorie et expérience* ». Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, (1989).
- [50] G. Prinz, G. T. Rado, and J. J. Krebs. *J. Appl. Phys.*, **53** :2087, (1982).
- [51] U. Gradmann, J. Korecki, and G. Waller. *J. Appl. Phys.*, **A39** :10, (1986).
- [52] O. Fruchart. *Couches minces et nanostructures magnétiques (Partie 1)*. Ed. Techniques de l'Ingénieur, (2007).
- [53] H. Sakurai<sup>1</sup>, M. Ota<sup>1</sup>, X. Liu, A. Morisako, Y. Sakurai, M. Itou, T. Nagao, and A. Koizumi. *J. Appl. Phys.*, **102** :013902, (2007).
- [54] R. W. Chantrell and K O'Grady. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **25** :1, (1992).
- [55] C. Guilpin. *Manuel de calcul numérique appliqué*. EDP sciences, (1999).
- [56] M. Hoare. *Adv. Chem. Phys.*, **40** :49, (1979).
- [57] S. Kirkpatrick, C. Gelatt, and M. Vecchi. *Science*, **220** :671, (1983).
- [58] L. Wille and J. Vennick. *J. Phys. A : Math. Gen.*, **18** :L1113, (1985).
- [59] D. Heermann. *Computer Simulation Methods*. Springer-Verlag, Berlin, (1990).
- [60] D. Landau and K. Binder. *A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics*. Cambridge University Press, (2000).
- [61] N. Metropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller, and E. Teller. *J. Chem. Phys.*, **21** :1087, (1953).
- [62] G. Weisbuch. *Dynamique des systèmes complexes : une introduction aux réseaux d'automates*. InterEditions CNRS, Paris, (1989).
-

- 
- [63] U. Nowak and D. Hinzke. *J. Appl. Phys*, **85** :4337, (1999).
- [64] D. Hinzke and U. Nowak. *Phys. Rev. B*, **61** :6734, (2000).
- [65] D. Hinzke and U. Nowak. *J. Magn. Magn. Mater*, **221** :365, (2000).
- [66] O. Chubykalo, U. Nowak, R. Smirnov-Rueda, M. A. Wongsam, R. W. Chantrell, and J. M. Gonzalez. *Phys. Rev. B*, **67** :064422, (2003).
- [67] U. Nowak, R. W. Chantrell, and E. C. Kennedy. *Phys. Rev. Lett*, **84** :163, (2000).
- [68] R. Smirnov-Rueda, O. Chubykalo, U. Nowak, R. W. Chantrell, and J. M. Gonzalez. *J. Appl. Phys*, **87** :4798, (2000).
- [69] W. F. Brown. *Phys. Rev*, **130** :1677, (1963).
- [70] E. Talbot, D. Ledue, and P.-E. Berche. *J. Appl. Phys*, **106** :023901, (2009).
- [71] K. Binder and D. W. Heermann. *Monte Carlo simulation in statistical physics*. Springer, Berlin, (1978).
- [72] K. Dumesnil, M. Dutheil, C. Dufour, and P. Mangin. *Phys. Rev. B*, **62** :1136, (2000).
- [73] G. J. Bowden, J. M. L. Beaujour, A. A. Zhukov, B. D. Rainford, P. A. J. de Groot, R. C. C. Ward, and M. R. Wells. *J. Appl. Phys*, **93** :6480, (2003).
- [74] M. R. Fitzsimmons, S. Park, K. Dumesnil, C. Dufour, R. Pynn, J. A. Borchers, J. J. Rhyne, and P. Mangin. *Phys. Rev. B*, **73** :134413, (2006).
- [75] G. J. Bowden, D. S. T. P. Bunbury, A. P. Guimaraes, and R. E. Synder. *J. Phys. C : Solid State Phys*, **1** :1376, (1968).
- [76] P. Raj and S. K. Kulshreshtha. *J. Physique*, **41** :1487, (1980).
- [77] J. M. L. Beaujour, G. J. Bowden, S. Gordeev, P. A. J. de Groot, B. D. Rainford, M. Sawicki, R. C. C. Ward, and M. R. Wells. *J. Magn. Magn. Mater*, **226** :1714, (2001).
- [78] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, and A. Rogalev. *Phys. Rev. B*, **65** :094401, (2002).
- [79] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, A. Rogalev, and F. Wilhelm. *J. Phys : Condens. Matter*, **17** :L215, (2005).
-

- [80] K. Dumesnil, C. Dufour, Ph. Mangin, M. R. Fitzsimmons, S. Park, J. J. Rhyne, A. Rogalev, and J. A. Borchers. *J. Appl. Phys*, **97** :10K108, (2005).
- [81] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, F. Wilhelm, and A. Rogalev. *J. Appl. Phys*, **95** :6843, (2004).
- [82] M. Sawicki, G. J. Bowden, P. A. J. de Groot, B. D. Rainford, J. M. L. Beaujour, R. C. C. Ward, and M. R. Wells. *Phys. Rev. B*, **62** :5817, (2000).
- [83] M. Sawicki, G. J. Bowden, P. A. J. de Groot, and B. D. Rainford. *J. Appl. Phys*, **87** :6839, (2000).
- [84] J. M. L. Beaujour, S. N. Gordeev, G. J. Bowden, P. A. J. de Groot, B. D. Rainford, R. C. C. Ward, and M. R. Wells. *Appl. Phys. Lett*, **78** :964, (2001).
- [85] K. Wang, K. N. Martin, C. G. Morrison, R. C. C. Ward, G. J. Bowden, and P. A. J. de Groot. *Appl. Phys, A*, **86** :325, (2007).
- [86] J. P. Zimmermann, G. Bordignon, R. P. Boardman, T. Fischbacher, H. Fangohr, K. N. Martin, G. J. Bowden, A. A. Zhukov, and P. A. J. de Groot. *J. Appl. Phys*, **99** :08B904, (2006).
- [87] E. E. Fullerton, J. S. Jiang, M. Grimsditch, C. H. Sowers, and S. D. Bader. *Phys. Rev. B*, **58** :12193, (1998).
- [88] K. Dumesnil, S. Fernandez, A. Avisou, C. Dufour, A. Rogalev, F. Wilhelm, and E. Snoeck. *Eur. Phys. J. B*, **72** :159, (2009).
- [89] S. Djedai and P. E. Berche. *Journal of Physics : Conference series*, **286** :012036, (2011).
- [90] P. E. Berche, S. Djedai, and E. Talbot. In *MRS Online Proceedings Library, 1471 (2012)*, *mrss 12-1471-yy02-yy04*, (2012).
- [91] S. Djedai, E. Talbot, and P. E. Berche. *JMMM*, **368** :29–35, (2014).
- [92] R. Camley and D. Tilley. *Phys.Rev. B*, **37** :3413, (1988).
- [93] R. Camley. *Phys.Rev. B*, **39** :12316, (1989).

- [94] W. C. Nunes, W. S. D. Folly, J. P. Sinnecker, and M. A. Novak. *Phys. Rev. B*, **70** :014419, (2004).
- [95] K. N. Martin, G. J. Bowden K. Wang, A. A. Zhukov, P. A. J. de Groot, J. P. Zimmermann, H. Fangohr, and R. C. C. Ward. *Appl. Phys. Lett*, **89** :132511, (2006).
- [96] D. Wang, A. R. Buckingham, G. J. Bowden, R. C. C. Ward, and P. A. J. de Groot. *Mater. Res. Express*, **1** :036110, (2014).



# دراسة الخصائص المغناطيسية لمتعدد الشبكات $DyFe_2/YFe_2$ باستعمال محاكاة مونت كارلو

## ملخص

إن المعادن غير المتجانسة المتكونة من معدن مغناطيسي صلب و آخر لين. تمكننا من صناعة حواجز مغناطيسية فاصلة اعتمادا على التفاعل الإزدواجي بين العزوم المغناطيسية لكلي المعدنين عند السطح الفاصل بينهما. نذكر على سبيل المثال متعدد الشبكات ( $DyFe_2 / YFe_2$ ) المتكون من طبقات متتالية لمعدن فيرمغناطيسي صلب ( $DyFe_2$ ) و معدن آخر فيرمغناطيسي لين ( $YFe_2$ ).

في هذا العمل قمنا بدراسة نمط رجوع المغنطة لهذا النوع من متعدد الشبكات بإنجاز نموذج حسابي يعتمد على طريقة مونت كارلو (MC) علما أن العديد من الدراسات التجريبية كانت مصدرا هاما لمعرفة تأثير التغير في درجات الحرارة، و اختلاف سمك الطبقات على نمط رجوع المغنطة لهذا النوع من متعدد الشبكات.

اعتمادا على هذه النتائج التجريبية قمنا بإنجاز نموذج نظري يعتمد أساسا على نموذج أشعة اللف الذاتي لهيزنبارك القابلة للدوران في الاتجاهات الثلاث للفضاء الهندسي، فكانت طاقة هذا النظام متكونة من طاقة التفاعل، طاقة تباين المغنطة البلورية، و تأثير زيمان إثر تطبيق حقل كهربائي خارجي.

هدفنا من هذا العمل هو دراسة تأثير التغير في درجات الحرارة و اختلاف سمك الطبقات على نمط رجوع المغنطة اعتمادا على محاكاة مونت كارلو، كما كان الحال بالنسبة للدراسات التجريبية التي أثبتت أن هذا النوع من الأنماط لا يتم إلا بخلق حواجز مغناطيسية داخل طبقات المعدن المغناطيسي اللين ( $YFe_2$ )، متبوعة بمسار عودة غير رجعي لمغنطة المعدن المغناطيسي الصلب ( $DyFe_2$ ). و هذا ما تؤكدته النتائج المتحصل عليها باستعمالنا لمحاكاة مونت كارلو (MC)، و المتمثلة بشكل خاص في منحنيات المغنطة.

**كلمات مفتاحيه :** المعادن غير المتجانسة، متعدد الشبكات، فيرمغناطيسي، طاقة تباين المغنطة البلورية،

تأثير زيمان، طاقة التفاعل، أشعة اللف الذاتي لهيزنبارك، محاكاة مونت كارلو (MC)، منحنيات المغنطة.

# STUDY OF MAGNETIC PROPERTIES IN SUPER-LATTICES DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> BY MONTE CARLO METHOD

## Abstract

The heterostructure consisted of a hard magnetic material and a soft magnetic material, allow the manufacture of artificial domain wall through an exchange coupling at the interface range. Typical examples of such compounds are superlattices DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> consist of alternating layers of hard ferrimagnetic materials DyFe<sub>2</sub> and soft ferrimagnetic layers YFe<sub>2</sub>. This thesis is evoted to study by numerical Monte Carlo simulation the process of magnetization reversal of superlattices DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>.

Previous experimental studies on inter-metallic superlattices, show a wide variety of results that tell us about the magnetic behavior of these superlattices for different temperatures and for a set thicknesses for the hard magnetic layer (DyFe<sub>2</sub>) relative to the soft magnetic layer (YFe<sub>2</sub>).

For a better understanding of magnetic behavior, we undertook a model of Heisenberg spins vector allowing any rotation of the spins in space, the model is suitable for studying non-collinear magnetic structures, such as superlattices DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>. The magnetic energy of these superlattices is the result of three contributions: the exchange energy, magnetocrystalline anisotropy and the Zeeman effect in the presence of an applied magnetic field. The objective of this work is to study the effect of the relative thickness and the influence of temperature on the magnetic properties of DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub> superlattices. In these systems, it is generally agreed that the magnetization reversal process takes place by the development of walls in the soft magnetic material (YFe<sub>2</sub>), followed by irreversible magnetization reversal of the hard magnetic material (DyFe<sub>2</sub>). The simulation of hysteresis loops allowed us to get a good qualitative agreement with experimental results.

**Keywords :** Laves phase, superlattices DyFe<sub>2</sub>/YFe<sub>2</sub>, ferrimagnetism, uniaxial magnetic anisotropy, Zeeman effect, exchange coupling, Heisenberg spins, wall interface, Monte Carlo simulation, hysteresis loop.

## Résumé

Les hétérostructures composées d'un matériau magnétique dur et d'un matériau magnétique doux permettent la fabrication de parois de domaines artificielles par le biais d'un couplage d'échange à l'interface. Des exemples typiques de tels composés sont les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$  constitués d'une alternance de couches de matériaux ferrimagnétiques durs  $\text{DyFe}_2$  et de couches ferrimagnétiques douces  $\text{YFe}_2$ . Ce travail de thèse est consacré à l'étude, par simulations numériques Monte Carlo, du processus de retournement de l'aimantation des super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ .

Des études expérimentales antérieures effectuées sur les super-réseaux inter-métalliques, mettent en évidence une grande variété de résultats qui nous renseignent sur le comportement magnétique de ces super-réseaux pour différentes températures et pour un jeu d'épaisseurs relatives de la couche magnétique dure ( $\text{DyFe}_2$ ) par rapport à la couche magnétique douce ( $\text{YFe}_2$ ).

Pour une meilleure compréhension de ce comportement magnétique, nous avons entrepris un modèle de spins vectoriels de Heisenberg autorisant toute rotation des spins dans l'espace ; le modèle est donc adapté à l'étude des structures magnétiques non colinéaires, telles que les super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ . L'énergie magnétique de ces super-réseaux est la résultante de trois contributions : l'énergie d'échange, l'anisotropie magnétocristalline et l'effet Zeeman en présence d'un champ magnétique appliqué. L'objectif de ce travail est d'étudier l'effet de l'épaisseur relative ainsi que l'influence de la température, sur les propriétés magnétiques des super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ . Dans ces systèmes, il est généralement admis que le renversement d'aimantation s'effectue par le développement de parois dans le matériau magnétique doux ( $\text{YFe}_2$ ), suivi du retournement irréversible de l'aimantation du matériau magnétique dur ( $\text{DyFe}_2$ ). La simulation de cycles d'hystérésis nous a permis d'obtenir un bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux.

**Mots Clés :** Phase de laves, super-réseaux  $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ , ferrimagnétisme, anisotropie magnétique uniaxiale, effet Zeeman, intégrale d'échange, spins de Heisenberg, paroi d'interface, simulation Monte Carlo, cycle d'hystérésis.