Université de Rouen

U.F.R. des Sciences et Techniques

École doctorale « SPMII »

THÈSE

Discipline : *Physique*
Spécialité : *Sciences des Matériaux*

présentée par

Etienne TALBOT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE ROUEN

Etude des propriétés magnétiques de multicouches Fe/Dy par simulations numériques Monte Carlo

soutenue le 4 décembre 2007 devant le jury composé de

P. MANGIN	Directeur de Recherche CNRS	Président
D. GIVORD	Directeur de recherche CNRS	Rapporteur
H. KACHKACHI	Maître de Conférences	Rapporteur
A. THIAVILLE	Directeur de Recherche CNRS	Examinateur
D. LEDUE	Professeur	Examinateur
P.E. BERCHE	Maître de Conférences	Examinateur

Groupe de Physique des Matériaux, UMR CNRS 6634
Université de Rouen

A Dorothée,
A mes parents,

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Pierre Emmanuel Berche qui a encadré cette thèse et suivi ce travail au quotidien. La confiance et le soutien qu'il m'a apportés durant ces trois ans ont été un élément moteur de ce travail. Merci pour la patience, la disponibilité et la bonne humeur dont tu as fait preuve durant ces trois années. Mes remerciements vont également vers Denis Ledue qui a dirigé cette thèse. Il m'a fait profiter de toutes ces compétences en simulation Monte Carlo et en magnétisme, et s'est soucié de l'avancement des mes travaux tout au long ces trois années. Il a toujours fait preuve d'enthousiasme, de bonne humeur et d'encouragements qui m'ont remotivé dans les périodes difficiles.

Je tiens également à remercier l'ensemble des membres du jury pour avoir accepté d'évaluer mon travail de thèse. Merci à M. Philippe Mangin, Directeur du Laboratoire Léon Brillouin, d'avoir accepté la présidence du jury de cette thèse, à MM. Dominique Givord, Directeur de Recherche à l'Institut Néel et Hamid Kachkachi, Maître de Conférences à l'Université de Versailles d'avoir avoir accepté d'être rapporteur de ma thèse et à M. André Thiaville, Directeur de Recherche au Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay, d'avoir prie part à ce jury.

Je remercie également M. Didier Blavette, directeur du Groupe de Physique des Matériaux, de m'avoir accueilli au sein du laboratoire et de m'avoir permis de réaliser ma thèse avec les meilleures conditions matérielles et scientifiques.

Je tiens également à adresser mes remerciements à Catherine Bordel et Alexandre Tamion pour leurs analyses des résultats expérimentaux et les encouragements qu'ils ont manifesté pour la simulation.

Ce travail n'aurait pas été possible sans Renaud Patte qui a toujours été disponible pour résoudre, parfois dans l'urgence, les problèmes de codes et de calculateur. Renaud, un grand merci, même si ton physique "pas facile" cache des compétences insoupçonnées.

Je souhaite également remercier le personnel du Centre de Ressources Informatiques de Haute Normandie qui m'a fourni une aide technique de grande qualité.

J'adresse un remerciement particulier à Cristelle Pareige avec qui j'ai partagé le bureau et qui a toujours été de bon conseil et qui a su me soutenir durant ces trois années. Elle a été d'un aide précieuse pour l'enseignement et sa glace à la framboise est un vrai régale, mais j'attend toujours mon crumble au abricot !

Cette thèse n'aurait pas été la même sans mes camarades thesard : Johann, mon binôme de "café-clope", Xavier, Matthieu et Mickael. Courage, c'est bientôt fini pour vous aussi.

Je souhaite également bonne chance à tous les thésards du laboratoire avec qui j'ai partagé de (longues) pauses cafés. Merci en particulier à Auriane pour sa tarte aux framboises (qui a un goût de trop peu en cette fin de thèse), Adeline et Stéphane.

Je ne saurais oublier les personnes qui ont contribué à la bonne ambiance du labo durant cette thèse, en salle café ou au détour d'un couloir, et qui ont contribué à faire de ces trois

années une période inoubliable. Je pense tout particulièrement à Rodrigue et Manu, mais la liste est longue. Enfin une mention spéciale pour les plus grands "taxeurs" de clopes du labo : Hubert, Bertrand et Williams. Merci a tous !

Enfin, je remercie ceux qui m'ont indirectement aidé : mes parents, Edouard, Laurence, Sam, Charles, Mélanie, Cyril, PJ, Antoine et Nicolas.

Les derniers mots reviendront à Dorothée qui m'a soutenue durant toutes ces années et pour qui "ma présence physique, mais mon absence cérébrale" n'a pas du être facile au quotidien. Merci pour tout ce que tu m'as apporté d'inestimable.

Table des matières

Table des matières **4**

Introduction **8**

Chapitre 1 GENERALITES **10**
1.1 Intérêt des multicouches métaux de transition - terres rares 12
1.2 Rappels de magnétisme 12
1.2.1 Propriétés magnétiques du fer, du dysprosium et de l'yttrium 12
1.2.1.1 Le fer (Fe) 12
1.2.1.2 Le dysprosium (Dy) 14
1.2.1.3 L'yttrium (Y) 15
1.2.2 Interactions d'échange dans les composés métaux de transition - terres rares 16
1.2.2.1 Rappels théoriques 16
1.2.2.2 Interaction d'échange métal de transition - métal de transition . 17
1.2.2.3 Interaction d'échange terre rare - terre rare 17
1.2.2.4 Interaction d'échange métal de transition - terre rare 19
1.2.3 Anisotropie magnétique des métaux de transition et des terres rares . . . 20
1.2.3.1 Anisotropie magnétique dans les métaux de transition 21
1.2.3.2 Anisotropie magnétique dans les terres rares 21
1.3 Propriétés magnétiques de couches minces et multicouches amorphes métaux de transition - terres rares 23
1.3.1 Interactions d'échange 23
1.3.2 Anisotropie magnétique 25
1.3.2.1 Anisotropie aléatoire 25
1.3.2.2 Anisotropie dans les couches minces 27
1.4 Propriétés structurales et magnétiques de couches minces et multicouches amorphes Fe-Dy 28
1.4.1 Propriétés structurales 29
1.4.2 Propriétés magnétiques 32
1.4.2.1 Structure magnétique 32
1.4.2.2 Température de Curie 32
1.4.2.3 Influence de l'épaisseur 33
1.4.2.4 Anisotropie magnétique 35
1.4.3 Conclusion sur les multicouches Fe/Dy 36
1.5 Propriétés structurales et magnétiques des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ 38
1.5.1 Propriétés structurales 38
1.5.2 Propriétés magnétiques 39

1.5.2.1 Anisotropie magnétique des super-réseaux Terre Rare - Fe_2 en couche mince . . . 39
1.5.2.2 Interaction d'échange et ordre magnétique . . . 39
1.5.2.3 Propriétés magnétiques sous champ appliqué . . . 40

Chapitre 2 MODELE ET SIMULATION NUMERIQUE 42
2.1 Modèle . . . 44
2.1.1 Description de la structure multicouche . . . 44
2.1.2 Modèle de spins . . . 45
2.1.3 Hamiltonien du système . . . 47
2.1.3.1 Energie d'échange . . . 47
2.1.3.2 Energie d'anisotropie . . . 47
2.1.3.3 Energie Zeeman . . . 48
2.1.3.4 Energie magnétique totale . . . 48
2.2 Simulations numériques . . . 48
2.2.1 Généralités sur la méthode Monte Carlo . . . 48
2.2.2 Théorie . . . 49
2.2.3 Simulation des propriétés magnétiques à l'équilibre . . . 49
2.2.3.1 Algorithme de Metropolis . . . 49
2.2.3.2 Méthode du recuit simulé . . . 50
2.2.3.3 Calcul des grandeurs thermodynamiques à chaque température 52
2.2.4 Simulation de cycles d'hystérésis . . . 53
2.2.4.1 Méthode Monte Carlo quantifiée en temps . . . 53
2.2.4.2 Cycles d'hystérésis . . . 54
2.2.5 Moyenne sur les configurations . . . 56

Chapitre 3 PROPRIETES MAGNETIQUES DES COUCHES MINCES ET MULTICOUCHES AMORPHES Fe-Dy SANS ANISOTROPIE MAGNETIQUE 58
3.1 Modélisation des systèmes purs . . . 60
3.1.1 Valeurs des spins . . . 60
3.1.1.1 Le fer . . . 60
3.1.1.2 Le dysprosium . . . 61
3.1.2 Fer pur et Dysprosium pur (amorphes) . . . 61
3.2 Alliages amorphes Fe-Dy en couches minces . . . 63
3.2.1 Variation thermique de l'aimantation . . . 65
3.2.2 Variation de la température de Curie . . . 67
3.3 Multicouches Amorphes Fe/Dy . . . 68
3.3.1 Profil de concentration . . . 69
3.3.2 Paramètres magnétiques . . . 70
3.3.3 Influence du profil de concentration . . . 72
3.3.3.1 Variation thermique de la susceptibilité magnétique . . . 72
3.3.3.2 Variation thermique de l'aimantation . . . 74
3.3.3.3 Profil magnétique . . . 76
3.3.4 Modélisation du profil de concentration de l'aimantation dans les multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm) sous champ magnétique . . . 79
3.3.4.1 Résultats expérimentaux . . . 79
3.3.4.2 Modèle de simulation . . . 81
3.3.4.3 Résultats numériques . . . 81

3.4 Conclusion 85

Chapitre 4 ANISOTROPIE MAGNETIQUE DANS LES MULTICOUCHES AMORPHES Fe/Dy 88

4.1 Description du modèle 90
4.1.1 Modèle de Mergel 90
4.1.2 Modélisation des amas 91
4.1.3 Paramètres numériques 93
4.2 Etude d'alliages amorphes : influence de l'anisotropie aléatoire 93
4.3 Multicouches Fe/Dy sans anisotropie aléatoire : influence des amas 97
4.3.1 Mise en ordre des amas 97
4.3.2 Influence du profil de concentration 98
4.3.3 Influence de la température 99
4.4 Multicouches Fe/Dy avec anisotropie aléatoire et en présence d'amas 102
4.4.1 Profil d'aimantation 102
4.4.1.1 Profil de concentration abrupt 102
4.4.1.2 Profil de concentration linéaire 105
4.4.1.3 Profil de sonde 107
4.4.1.4 Alliage homogène 110
4.4.2 Influence de la concentration d'amas 110
4.4.3 Conclusion 111
4.5 Cycles d'hystérésis - comparaison à l'expérience 113
4.5.1 Modèle de Stoner Wohlfarth 113
4.5.2 Anisotropie magnétique uniaxiale 115
4.5.2.1 Formation de parois de domaines à l'interface 116
4.5.2.2 Paramètres numériques 117
4.5.2.3 Profil Abrupt 118
4.5.2.4 Profil de sonde 124
4.5.2.5 Profil Alliage 127
4.5.2.6 Conclusion préliminaire 128
4.5.3 Amas sans anisotropie magnétique aléatoire 128
4.5.3.1 Profil abrupt 129
4.5.3.2 Profil de sonde 130
4.5.4 Amas et anisotropie magnétique aléatoire : modèle de Mergel 130
4.5.4.1 Profil abrupt 131
4.5.4.2 Profil de sonde 136
4.5.4.3 Conclusion sur le modèle d'amas et l'anisotropie perpendiculaire 141
4.6 Conclusion du chapitre 143

Chapitre 5 CYCLES D'HYSTERESIS DE SUPER-RESEAUX $DyFe_2/YFe_2$ 146

5.1 Modèle de simulation 148
5.2 Résultats expérimentaux 150
5.3 Résultats numériques 154
5.3.1 Influence de l'épaisseur 155
5.3.1.1 Super-réseau [$DyFe_2$(2)/YFe_2(1)] 156
5.3.1.2 Super-réseau [$DyFe_2$(1)/YFe_2(1)] 157
5.3.1.3 Super-réseau [$DyFe_2$(1)/YFe_2(2)] 158
5.3.1.4 Super-réseau [$DyFe_2$(1)/YFe_2(4)] 158
5.3.1.5 Processus de retournement 160

5.3.2 Influence de la température 160
5.4 Conclusion 164

Conlusion **166**

Annexe A Calcul analytique des champs de retournement de l'aimantation **168**
A.1 Anisotropie magnétique uniaxiale 169
A.2 Cas de l'anisotropie magnétique aléatoire 171
A.3 Cas de l'anisotropie magnétique dans les amas ordonnés 172

Liste des tableaux **173**

Table des figures **174**

Bibliographie **184**

Introduction

L'étude des composés intermétalliques à base de métaux de transitions (MT) et de terres rares (TR) a constitué un vaste domaine de recherche au cours de ces quarante dernières années. La mise en évidence d'une anisotropie magnétique perpendiculaire dans les alliages amorphes CoGd et FeGd par Chaudhari *et al.* en 1973 a suscité un véritable engouement autour de ces systèmes tant pour leurs applications potentielles en tant que matériaux pour le stockage magnétique que d'un point de vue fondamental sur le magnétisme bidimensionnel.

Les travaux récents de Tamion *et al.* en 2006 sur le rôle des interfaces sur l'apparition d'une aimantation perpendiculaire dans des multicouches amorphes Fe/Dy ont motivé notre étude. En effet, ils ont mis en évidence que la nature de l'interface, liée à la température d'élaboration des multicouches, est l'un des paramètres déterminants pour ce qui concerne l'apparition d'une aimantation perpendiculaire. L'hypothèse formulée alors est que l'anisotropie magnétique perpendiculaire observée dans ces systèmes résulterait pour une part de l'existence d'un ordre pseudo-cristallin à courte distance et d'autre part du fort couplage spin-orbite sur les sites de dysprosium.

L'objectif principal de cette étude est de construire un modèle réaliste de multicouches amorphes Fe/Dy étudiées par Tamion *et al.* afin de valider - éventuellement - cette hypothèse et d'approfondir l'étude sur les contributions nécessaires à l'obtention d'une anisotropie magnétique perpendiculaire en reproduisant les cycles d'hystérésis expérimentaux et de proposer une interprétation de ces cycles en fonction des profils de concentration aux interfaces. Nous nous baserons pour cela sur un modèle d'anisotropie développé par Mergel *et al.* qui proposent l'existence d'une contribution en moyenne suivant une direction uniaxiale et d'une contribution de direction aléatoire résultant de la nature amorphe des composés.

Le premier chapitre est consacré à des rappels de magnétisme concernant les interactions d'échange, l'anisotropie magnétique et l'influence d'une structure amorphe sur les propriétés magnétiques des composés métalliques. Nous présentons également les propriétés structurales et magnétiques des couches minces et multicouches amorphes Fe/Dy ainsi que celles des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ que nous avons également modélisés dans le cadre de cette thèse.

Nous procédons dans le second chapitre à la description du modèle de simulation numérique que nous avons mis en oeuvre. Nous détaillons les méthodes Monte Carlo que nous avons choisies 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.

Dans le troisième chapitre, nous présentons une étude préliminaire par simulations numériques Monte Carlo des propriétés des couches minces et multicouches Fe/Dy sans anisotropie magnétique. Dans un premier temps, le choix des paramètres magnétiques est précisé par une étude des composés purs dans l'état amorphe, avant de valider notre modèle sur des alliages homogènes Fe/Dy. Nous étudions également l'influence du profil de concentration dans la direction perpendiculaire aux couches pour les multicouches Fe/Dy. Enfin nous terminons ce chapitre par

l'utilisation de notre modèle dans le but de confirmer des résultats expérimentaux d'analyse de réflectométrie de neutrons polarisés.

Le quatrième chapitre, qui constitue le chapitre principal de cette thèse, traite de l'étude par simulations numériques Monte Carlo des multicouches Fe/Dy présentant une anisotropie magnétique sur les sites de Dy. Nous décrivons tout d'abord le modèle d'anisotropie que nous avons choisi afin de rendre compte de l'existence dans certaines conditions d'une aimantation perpendiculaire. Ce modèle se compose de deux composantes de l'anisotropie magnétique : la première correspond à une contribution en moyenne uniaxiale, la seconde est une anisotropie de direction aléatoire qui tient compte de la nature amorphe des multicouches étudiées. Dans le cadre de ce modèle, nous examinons en particulier le profil d'aimantation en épaisseur en fonction du profil de concentration relié à la température d'élaboration des échantillons. Dans une seconde partie, nous présentons les résultats de simulation des cycles d'hystérésis sur les multicouches Fe/Dy pour différents modèles d'anisotropie magnétique. Nous comparons nos résultats aux cycles mesurés expérimentalement pour en déduire à partir de notre modèle les paramètres physiques à l'origine de l'anisotropie magnétique perpendiculaire (nature des interfaces et modèle d'anisotropie magnétique).

Le cinquième chapitre concerne l'étude des propriétés magnétiques de super-réseaux $DyFe_2$ / YFe_2 par simulations numériques Monte Carlo. 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. Nous décrivons le modèle simple de simulation que nous avons développé pour ces systèmes, puis nous présentons les différents processus de retournement de l'aimantation observés en fonction en particulier de l'épaisseur des couches.

Chapitre 1

GENERALITES

1.1 Intérêt des multicouches métaux de transition - terres rares

Les systèmes intermétalliques à base de métaux de transition (MT) et de terres rares (TR) ont constitué un domaine de recherche très vaste en raison de leur intérêt tant sur le plan fondamental que sur le plan appliqué. En effet, les alliages amorphes MT-TR en couches minces donnent lieu à des propriétés de magnétisme bidimensionnel en raison de la dissymétrie aux surfaces et aux interfaces. Parallèlement, de nombreuses recherches ont été effectuées en vue d'applications potentielles dans le domaine de l'enregistrement magnéto-optique à haute densité, des capteurs magnétiques, etc...

Dans ce contexte, les multicouches MT/TR ont fait l'objet de nombreuses études en raison des caractéristiques particulièrement intéressantes de ces systèmes. En effet, l'influence des interactions d'échange dues aux MT leur confère une température de Curie supérieure à la température ambiante, permettant ainsi à ces multicouches d'être aimantées à l'ambiante. Elles présentent également un champ coercitif élevé, une forte rotation Kerr ainsi qu'une forte aimantation. Cependant, leur propriété la plus intéressante est sans doute la forte anisotropie magnétique donnant lieu dans certains cas à une aimantation perpendiculaire au plan des couches.

1.2 Rappels de magnétisme

1.2.1 Propriétés magnétiques du fer, du dysprosium et de l'yttrium

1.2.1.1 Le fer (Fe)

Le fer (Fe) appartient à la série des métaux de transition, c'est-à-dire qu'il possède une sous-couche *3d* incomplète. La structure électronique de l'atome isolé est $[\mathrm{Ar}]3d^6 4s^2$. Sa structure cristalline est cubique centrée (CC) en dessous de 1184K ($a = 2,8664$Å à 300K). Son rayon atomique vaut $r_{\mathrm{Fe}} = 1,27$Å.

Les électrons *3d* des métaux de transition sont décrits par le modèle des électrons itinérants. Ce sont des électrons de conduction délocalisés qui sont responsables du magnétisme des métaux de transition. Ils subissent fortement les perturbations extérieures et notamment l'effet du champ cristallin. Le moment magnétique du fer sera donc très sensible à son environnement. Le moment magnétique des métaux de transition, et plus particulièrement celui du fer, résulte de la différence de remplissage des bandes *3d* de spins "up" ($\uparrow$) et "down" ($\downarrow$), ce qui conduit à des valeurs non entières du moment magnétique en magnétons de Bohr μ_{B} ($\mu_{\mathrm{B}} = \frac{e\hbar}{2mc}$) (figure 1.1).

L'importance du couplage de champ cristallin par rapport au couplage spin-orbite "bloque" presque totalement le moment cinétique orbital ($L = 0$). Seule la contribution de spin intervient dans le moment magnétique total $\mathbf{m}$:

$$\mathbf{m} = \mathbf{m_S} = -2\mu_{\mathrm{B}}\mathbf{S}, \tag{1.1}$$

où $\mathbf{S}$ est le moment cinétique de spin. Le spin de Fe vaut $S_{\mathrm{Fe}} = 1,1$, son facteur de Landé est $\mathrm{g}_{\mathrm{Fe}} = 2$, soit un moment magnétique de fer de $m_{\mathrm{Fe}} = 2,2\mu_{\mathrm{B}}$.

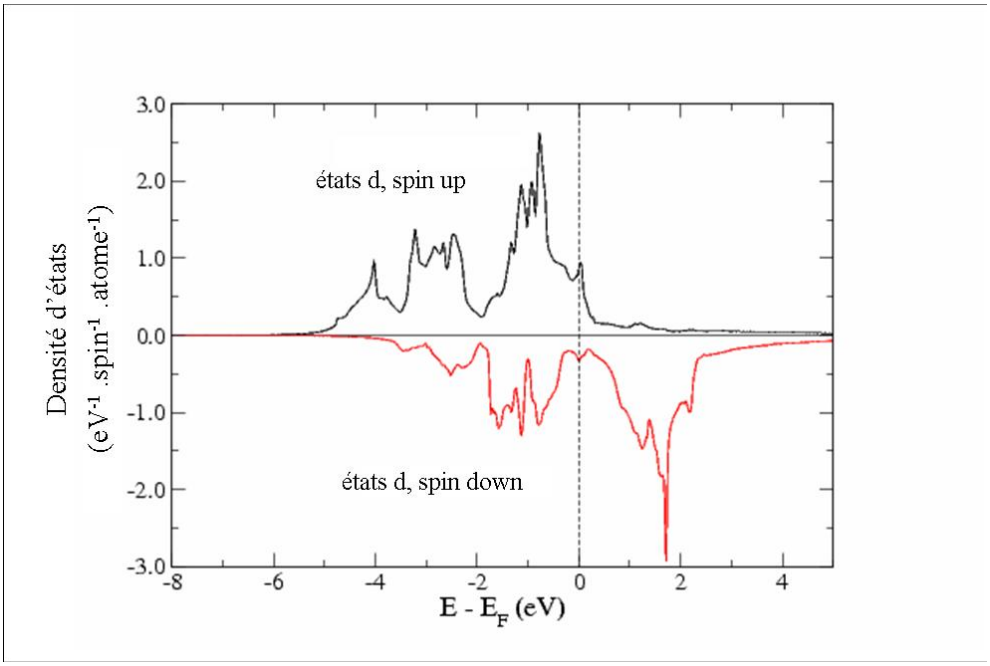

FIGURE 1.1 – Densité d'états en fonction de l'énergie pour les spins *3d* "up" (↑) et "down" (↓) dans le cas du fer cubique centré.

Le fer α (cubique centré) présente un ordre ferromagnétique en dessous de $T_C = 1044$K (T_C est la température de Curie) et une phase paramagnétique au-dessus de cette température [Kittel 1972, Trémolet de Lacheisserie 2000*a*] ; il est donc magnétiquement ordonné à température ambiante. Les films minces et plus généralement les systèmes dont une dimension au moins est nanométrique peuvent avoir des propriétés magnétiques différentes de celles des échantillons massifs. En effet, la coordinence réduite en surface peut induire un recouvrement moindre des fonctions d'onde des électrons *d* ainsi qu'une réduction de largeur de la bande ou une augmentation de la densité d'états au niveau de Fermi $D(E_F)$. Ces effets peuvent engendrer un moment magnétique plus grand et éventuellement induire du ferromagnétisme dans des 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 [Freeman 1987, Ohnishi 1985].

Du point de vue structural, il n'est pas rare de trouver le fer sous forme amorphe dans les multicouches Fe-TR [Sato 1987]. En effet, la formation de couches minces de faible épaisseur ne permet pas toujours aux atomes de s'ordonner chimiquement et de former les structures cristallographiques du fer à l'équilibre (cubique centré ou cubique à faces centrées). L'état magnétique de la structure amorphe peut alors être très différent de celui de l'état cristallisé, avec une température de Curie plus faible. La diminution de cette température de transition est généralement attribuée à la forte influence du désordre structural sur l'interaction d'échange entre atomes de fer qui dépend très fortement des distances inter-atomiques [Hansen 1989].

1.2.1.2 Le dysprosium (Dy)

Le dysprosium (Dy) appartient à la série des lanthanides ou terres rares, qui sont caractérisées par une sous-couche *4f* incomplète. Sa structure électronique est $[\mathrm{Xe}]4f^9 5d^1 6s^2$. Il cristallise selon une structure hexagonale compacte (HCP) ($a = 3,591\text{Å}$; $c = 5,650\text{Å}$ à température ambiante) et son rayon atomique est de $r_{\mathrm{Dy}} = 1,77\text{Å}$. Le Dy est une terre rare dite "lourde" car sa sous-couche *4f* est plus qu'à moitié remplie ($4f^9$).

Le magnétisme des terres rares, qui résulte des sous-couches *4f*, est dit "localisé". Dans le cristal, ces 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 1.2). 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.

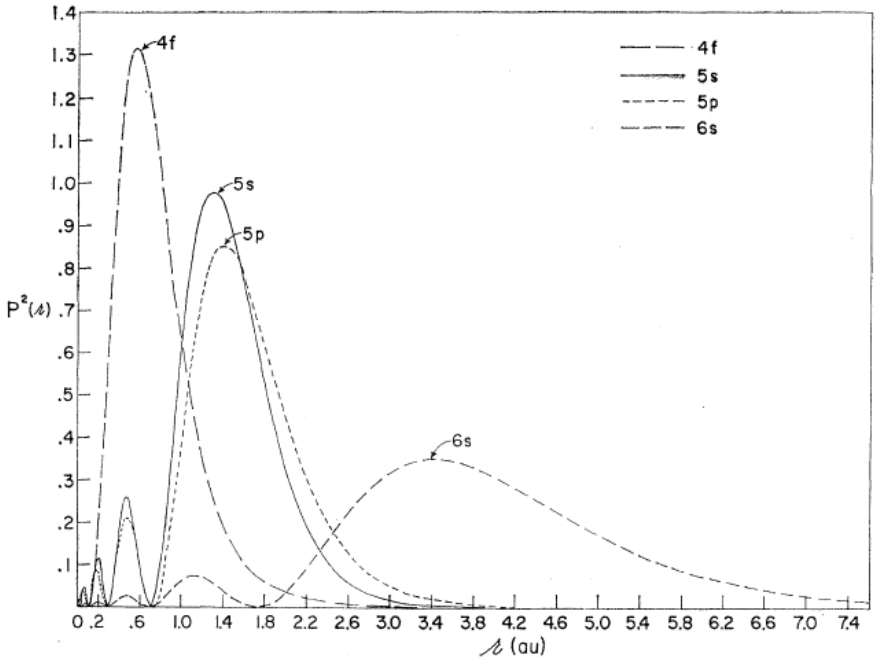

FIGURE 1.2 – Représentation schématique de la densité de charge des orbitales pour un atome de Gd [Freeman 1962].

Par ailleurs, le moment magnétique atomique expérimental du métal est très proche de la valeur théorique de l'ion trivalent Dy^{3+} (de structure électronique $[\mathrm{Xe}]4f^9$). 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 [Dumesnil 1995].

Du fait du fort couplage spin-orbite, le moment cinétique orbital **L**, qui n'est pas bloqué par le champ cristallin contrairement à celui du fer, et le moment de spin **S** de l'ion sont liés ; le moment cinétique total **J** est donc :

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}. \tag{1.2}$$

Le moment magnétique total $\mathbf{m}$ est alors la somme de la contribution du moment cinétique orbital $\mathbf{m_l}$ et de la contribution du moment cinétique de spin $\mathbf{m_s}$:

$$\mathbf{m} = \mathbf{m_l} + \mathbf{m_s} = -\mu_B(\mathbf{L} + 2\mathbf{S}). \tag{1.3}$$

En utilisant le théorème de Wigner - Eckart, on peut également exprimer $\mathbf{m}$ en fonction du moment cinétique total $\mathbf{J}$:

$$\mathbf{m} = -g\mu_B\mathbf{J}, \tag{1.4}$$

où $g = 1 + \dfrac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$ est le facteur de Landé atomique.

Tout se passe comme s'il y avait proportionnalité entre $\mathbf{L}+2\mathbf{S}$ et $\mathbf{L}+\mathbf{S}$ du fait de la précession très rapide du vecteur $\mathbf{L}+2\mathbf{S}$ autour de $\mathbf{J}$; seule la projection de $\mathbf{m}$ sur $\mathbf{J}$ doit donc être prise en compte puisqu'elle seule subsiste en moyenne dans le temps.

Les valeurs numériques du moment cinétique de spin (S), du moment cinétique orbital (L), du moment cinétique total (J), du facteur de Landé (g) et du moment magnétique de l'atome de Dy sont reportées dans le Tableau 1.1.

n (nombre d'électrons *4f*)	S	L	J	g	moment magnétique théorique à saturation par atome (μ_B)	moment magnétique observé par atome (μ_B)
9	5/2	5	15/2	4/3	10	10,33

TABLEAU 1.1 – Propriétés de l'ion trivalent Dy^{3+} dans l'état fondamental.

La valeur théorique du moment magnétique à saturation (gJ) diffère de la valeur observée car elle ne tient pas compte de la contribution des électrons de conduction.

Le Dy est ferromagnétique en dessous de $T_C = 89$K. Pour $T_C < T < T_N = 179$K, (T_N est la température de Néel), le dysprosium présente un ordre hélicoïdal [Koehler 1972] : les moments magnétiques d'un même plan (perpendiculaire à l'axe $\mathbf{c}$ de la structure hexagonale) sont alignés ferromagnétiquement, mais entre deux plans, il existe une déviation angulaire régulière θ (figure 1.3) entre les directions des moments magnétiques. Cet ordre hélicoïdal résulte de l'interaction d'échange aux seconds plans voisins.

1.2.1.3 L'yttrium (Y)

La structure électronique de l'yttrium (Y) est $[Kr]4d^15s^2$ et il cristallise suivant une structure hexagonale compacte ($a = 3,65$Å ; $c = 5,73$Å à température ambiante). Son rayon atomique vaut $r_Y = 1,80$Å. Il est considéré comme une terre rare dont la couche *4f* est vide. L'ion yttrium du fait de sa structure de gaz rare et de sa taille se comporte comme les lanthanides, bien qu'appartenant aux éléments *d*. Ainsi, il porte un moment magnétique proche de 0.

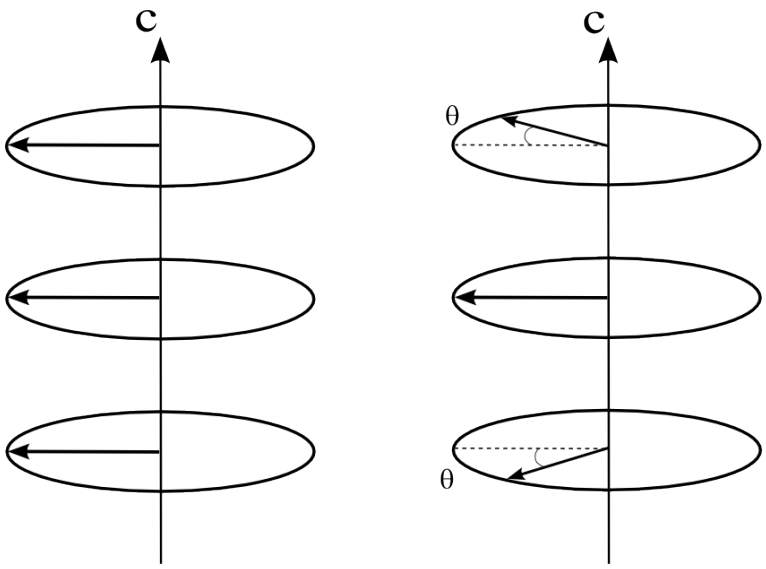

FIGURE 1.3 – Ordre magnétique dans le dysprosium ; à gauche, $T < T_C$: ordre ferromagnétique ; à droite, $T_C < T < T_N$: ordre hélimagnétique.

1.2.2 Interactions d'échange dans les composés métaux de transition - terres rares

1.2.2.1 Rappels théoriques

Certains matériaux présentent un ordre ferromagnétique en dessous d'une température donnée. Cet ordre magnétique est caractérisé par une aimantation spontanée. Le modèle de Heisenberg [Heisenberg 1928] consiste à supposer que cette aimantation spontanée résulte du couplage entre les moments magnétiques localisés sur chaque atome. Le Hamiltonien d'interaction de Heisenberg s'écrit :

$$\hat{H}_{ij} = -J_{ij}(\hat{S}_i \cdot \hat{S}_j), \tag{1.5}$$

où $\hat{S}_i$, $\hat{S}_j$ représentent les opérateurs de moment cinétique de spin des atomes i et j reliés respectivement aux moments magnétiques de ces mêmes atomes par les relations :

$$\hat{m}_i = -\mathrm{g}_i \mu_B \hat{S}_i, \tag{1.6}$$

$$\hat{m}_j = -\mathrm{g}_j \mu_B \hat{S}_j, \tag{1.7}$$

et où J_{ij} est appelée intégrale d'échange entre les deux atomes i et j. Cette interaction, d'origine quantique (liée au principe de Pauli), est de nature électrostatique. Elle est très intense, mais à courte portée.

Le traitement classique des interactions magnétiques conduit à remplacer les opérateurs par des vecteurs à trois composantes réelles (S_x,S_y,S_z) et le Hamiltonien d'interaction par une énergie d'interaction. La relation (1.5) devient :

$$E_{ij} = -J_{ij}(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j), \tag{1.8}$$

où $\mathbf{S}_i$ et $\mathbf{S}_j$ représentent les vecteurs de spin des atomes i et j.

Dans les métaux, ce sont les électrons de conduction qui sont responsables des interactions d'échange, mais les cas des métaux de transition (*3d*) et des terres rares (*4f*) sont à différencier en raison de leurs structures électroniques très différentes. Il existe trois types d'interactions d'échange dans ces structures :

- l'interaction MT-MT entre les moments du sous-réseau MT ;
- l'interaction TR-TR entre les moments du sous-réseau TR ;
- l'interaction MT-TR entre les moments des deux sous-réseaux.

1.2.2.2 Interaction d'échange métal de transition - métal de transition

L'interaction d'échange directe entre atomes de métal de transition provient du fort recouvrement des orbitales *3d* qui sont spatialement étendues. Il en résulte une forte interaction MT-MT qui détermine principalement la température de transition magnétique des composés de Fe-TR [Duc 1997]. Cependant, il existe également une contribution du type RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya et Yosida qui sera présentée ensuite) par l'intermédiaire des électrons de conduction *4s* qui peut être négligée en première approximation.

Dans le cas du fer, l'analyse de la structure de bande [Néel 1936] a montré qu'une coordinence locale faible (structure non compacte) conduit à des interactions ferromagnétiques fortes et qu'une coordinence locale forte (structure compacte) conduit à des interactions ferromagnétiques faibles, voire antiferromagnétiques [Kübler 1981, Néel 1936]. Le diagramme de Slater-Néel montre qualitativement la variation de l'interaction d'échange en fonction de la distance entre les orbitales *3d* dans les métaux de transition (figure 1.4). Les interactions sont ferromagnétiques pour une distance interatomique $d_{\mathrm{Fe-Fe}} > 0,247\mathrm{nm}$ et antiferromagnétiques en dessous. Les distances interatomiques moyennes Fe-Fe sont supérieures à $0,247\mathrm{nm}$ pour différentes compositions d'alliages amorphes Fe-Tb [Mergel 1993] ce qui implique que, en moyenne, $J_{\mathrm{Fe-Fe}} > 0$. Cependant, la nature amorphe des composés MT-TR auxquels nous nous intéressons ici conduit à d'importantes fluctuations des distances interatomiques autorisant localement des intégrales d'échange négatives entre atomes de Fe. Ainsi, c'est l'environnement des atomes de fer qui détermine l'intensité et le signe de l'interaction d'échange Fe-Fe. Dans les alliages amorphes, les fluctuations des distances interatomiques ainsi que celles de la coordinence locale entraînent des fluctuations des interactions d'échange d'un site à l'autre, ce qui a pour conséquence directe de modifier sensiblement la valeur de la température de transition des alliages amorphes par rapport à leurs homologues cristallins [Heiman 1976*a*, O'Handley 1987]. La figure 1.5 illustre ce phénomène dans le cas d'alliages Fe-Gd [Heiman 1976*b*].

1.2.2.3 Interaction d'échange terre rare - terre rare

Les couches *4f* sont des couches internes spatialement localisées autour des sites atomiques sur des distances inférieures aux distances interatomiques. Le recouvrement des fonctions d'onde *4f* est insuffisant pour permettre un couplage direct entre les moments magnétiques voisins. L'interaction entre ces moments magnétiques localisés portés par chaque atome de TR ne peut donc se faire que par un mécanisme indirect. Ce couplage se produit par le biais des électrons de conduction (*5d* et *6s*) qui interagissent localement avec les électrons *4f*. Il s'agit d'un mécanisme d'interaction d'échange indirect qui a été introduit par Ruderman et Kittel [Ruderman 1954], puis développé par Kasuya [Kasuya 1956] et Yosida [Yosida 1957] (interaction RKKY).

Il y a alors polarisation de la bande de conduction créant en tout point une aimantation des électrons de conduction. Tout se passe donc comme si l'intégrale d'échange J_{ij} dépendait de la

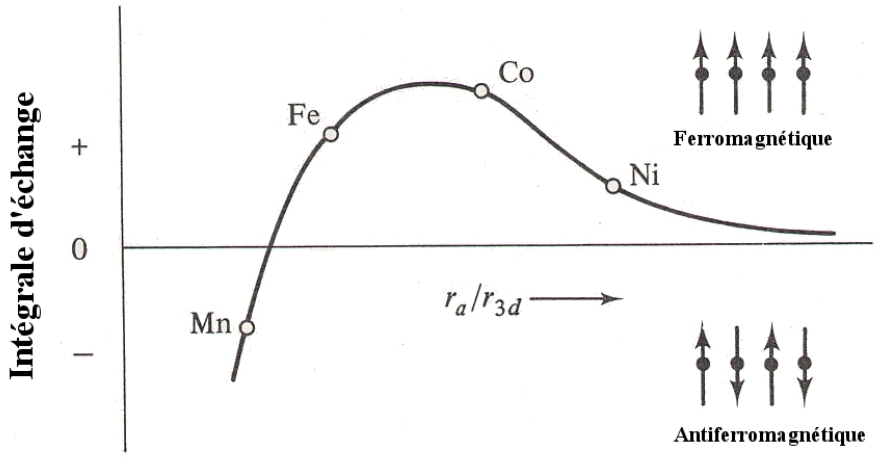

FIGURE 1.4 – Représentation schématique de la variation de l'interaction d'échange en fonction du rapport entre la distance entre 2 atomes (r_a) et le rayon de l'orbitale *3d* (r_{3d}) [Trémolet de Lacheisserie 2000*a*].

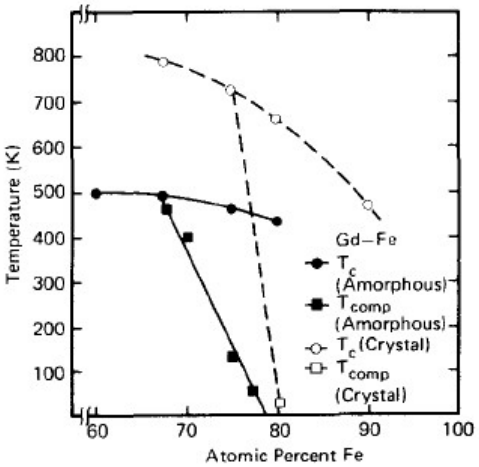

FIGURE 1.5 – Température de Curie et température de compensation d'un alliage Fe-Gd cristallin et amorphe [Heiman 1976*b*].

distance r_{ij} entre les deux moments magnétiques en interaction, selon :

$$J_{\mathrm{TR-TR}}(r_{ij}) \propto (D(E_{\mathrm{F}}))^{4/3} \frac{\cos(2k_{\mathrm{F}} r_{ij})}{k_{\mathrm{F}} r_{ij}^3},$$

où $D(E_{\mathrm{F}})$ représente la densité d'états au niveau de Fermi et k_{F} est le vecteur d'onde de Fermi. Cette intégrale d'échange oscillante amortie est alternativement positive et négative (figure 1.6).

De façon générale, les fonctions d'onde des électrons *4f* localisées conduisent à de faibles interactions d'échange et donc de faibles températures de Curie. Dans les composés MT-TR, l'interaction entre atomes de terres rares est généralement la plus faible [Duc 1997].

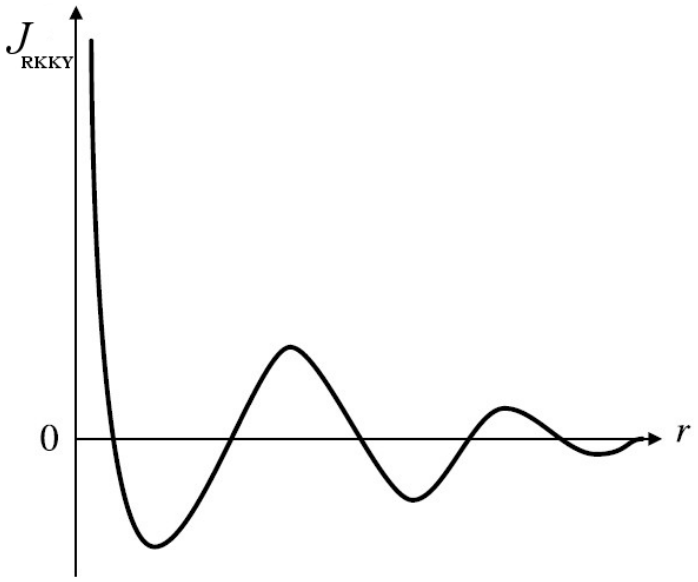

FIGURE 1.6 – Représentation schématique de l'oscillation de l'interaction d'échange de type RKKY entre deux moments magnétiques distants de r.

1.2.2.4 Interaction d'échange métal de transition - terre rare

L'interaction entre un atome de métal de transition et un atome de terre rare provient du couplage entre le moment magnétique des électrons itinérants *3d* du métal de transition et le moment magnétique localisé *4f* de la terre rare. Campbell [Campbell 1972] fut le premier à souligner que l'interaction MT-TR, bien qu'indirecte, ne peut être de type RKKY car elle ne permettrait pas d'interpréter de façon adéquate les résultats expérimentaux. Il proposa un mécanisme où interviennent deux types d'interactions :

- une interaction directe intra-atomique ferromagnétique entre les moments *4f* et *5d* de la terre-rare. Cette interaction *4f*-*5d* agit comme un champ intense et contribue à augmenter le moment *5d* de la TR. Cependant, son effet serait négligeable sans une hybridation des bandes *5d* de la TR et *3d* du MT 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 repose sur une hybridation des bandes de conduction *3d* et *5d*, et la polarisation des électrons *5d* (formation d'un moment *5d* induit). Selon Campbell, c'est l'interaction d'échange directe entre les électrons de conduction *3d* du MT et *5d* de la TR qui contrôle ce couplage. Ce phénomène fut confirmé par Brooks et *al* [Brooks 1991*a*, Brooks 1991*b*].

La nature du couplage entre un atome de MT et un atome de TR est alors déterminée par le signe du couplage spin-orbite au niveau électronique *4f*. Il est antiparallèle dans le cas des terres rares légères et parallèle dans le cas des terres rares lourdes. Ce mécanisme est représenté schématiquement sur la figure 1.7 dans le cas de terres rares lourdes.

Des études d'alliages cristallins MT-TR ont montré que l'interaction d'échange $|J_{\mathrm{MT-TR}}|$ croît et le moment magnétique du MT diminue lorsque la concentration en atomes de TR augmente [Hansen 1989, Heiman 1976*b*]. Ce phénomène s'explique par l'accroissement de l'hybridation *3d*-*5d* quand la concentration en TR croît et a pour conséquences :

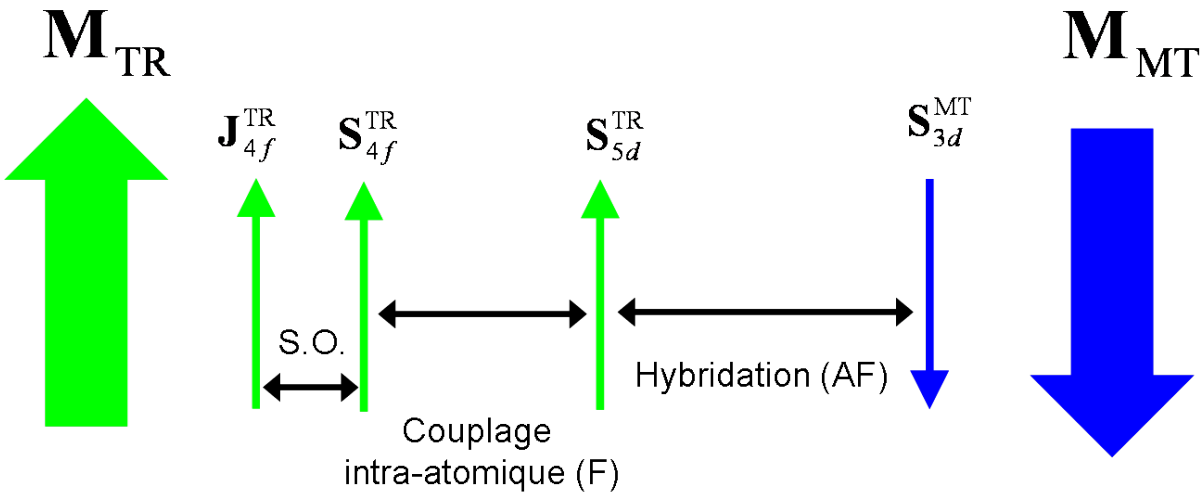

FIGURE 1.7 – Représentation schématique des interactions entre les moments magnétiques MT-TR lourde. S.O. représente le couplage spin-orbite, F et AF représentent respectivement des interactions ferromagnétiques et antiferromagnétiques.

- 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 $|J_{\mathrm{MT-TR}}|$,
- de diminuer le moment magnétique du MT et d'augmenter l'interaction $J_{\mathrm{MT-MT}}$.

Les interactions entre les électrons *4f* et *3d* dépendent étroitement de cet effet d'hybridation qui est également observé dans le cas des alliages amorphes MT(Co,Fe)-TR(Dy,Ho)-métalloïde(B,Si) [Driouch 1995, Lassri 1990].

L'interaction MT-TR reste relativement faible par rapport à l'interaction MT-MT. Elle participe cependant à la structure magnétique des composés MT-TR. En particulier, elle permet de transmettre la forte anisotropie magnétocristalline des atomes de TR aux atomes de MT à basse température [Duc 1997, Franse 1993].

1.2.3 Anisotropie magnétique des métaux de transition et des terres rares

Dans un matériau ferromagnétique, l'apparition de l'ordre magnétique résulte des interactions d'échange qui favorisent l'alignement parallèle des spins voisins. Cependant, il existe une contribution, plus faible énergétiquement, qui tend à orienter les moments magnétiques suivant des directions préférentielles appelées directions de facile aimantation. Cette contribution est connue sous le nom d'énergie d'anisotropie magnétique, et traduit la dépendance de l'énergie interne du système en fonction de la direction de l'aimantation. Il existe principalement deux types d'anisotropie magnétique : l'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie de forme. Nous nous intéresserons ici uniquement à l'anisotropie magnétocristalline dont l'intensité est beaucoup plus importante dans les composés impliquant des TR. Les moments magnétiques atomiques interagissent avec le champ cristallin créé par les ions environnants par le biais du couplage spin-orbite. Ainsi, la configuration du nuage électronique autour de l'ion magnétique est celle qui minimise les répulsions coulombiennes avec les nuages électroniques des atomes voisins. Une conséquence de cette interaction avec le réseau est l'apparition de l'anisotropie

magnétocristalline.

1.2.3.1 Anisotropie magnétique dans les métaux de transition

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline de volume peut être décrite phénoménologiquement par un développement en puissances paires des cosinus directeurs de l'aimantation (α_1, α_2, α_3) par rapport aux axes principaux du cristal (symétrie cubique). On considère alors que l'énergie d'anisotropie magnétocristalline ne dépend que de l'orientation de l'aimantation, alors qu'en réalité le champ cristallin a un effet sur l'orientation et sur le module de l'aimantation. Pour un cristal cubique tel que le fer, la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline (E_{MC}) prend la forme :

$$E_{\mathrm{MC}} = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_1^2\alpha_1^2) + ... \tag{1.9}$$

où les coefficients K_i sont des constantes d'anisotropie qui dépendent de la température.

Pour le fer α, K_1 et K_2 sont positifs (respectivement $4,8.10^4\mathrm{J/m^3}$ et $5.10^3\mathrm{J/m^3}$) ; l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est alors minimale lorsque l'aimantation est orientée selon un axe quaternaire $< 001 >$ ([001], [100] ou [010]).

Pour les éléments 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 ($0,2\mu_{\mathrm{B}}$ sur $2,2\mu_{\mathrm{B}}$) pour le moment magnétique par atome de fer [Wohlfarth 1980]. C'est la raison pour laquelle l'anisotropie magnétocristalline dans les métaux *3d* est en général faible, notamment par rapport aux terres rares.

1.2.3.2 Anisotropie magnétique dans les terres rares

Nous avons vu que les terres rares (et le Dy en particulier) cristallisent généralement suivant une structure hexagonale. L'énergie de champ cristallin est alors environ 100 fois plus faible que l'énergie du couplage spin-orbite. De plus, le champ cristallin ne bloque pas le moment cinétique orbital des électrons du niveau *4f*. L'anisotropie magnétocristalline dans les terres rares réside donc dans le couplage entre le nuage électronique *4f* et la distribution de charges extérieures, de symétrie hexagonale. Le positionnement des orbitales électroniques *4f* tend à minimiser l'énergie en rapprochant au maximum leurs électrons des ions positifs du réseau du fait des interactions coulombiennes. L'orientation privilégiée du moment magnétique est donc directement liée à l'orientation des orbitales électroniques *4f* (figure 1.8). Afin de déterminer l'énergie d'anisotropie, on utilise la méthode des opérateurs de Stevens [Stevens 1952] qui donne, dans le cas de la symétrie hexagonale, une densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline de la forme [Briss 1966] :

$$E_{\mathrm{MC}} = K_1 \sin^2\theta + K_2 \sin^4\theta + K_3 \sin^6\theta + K_4 \sin^6\theta \cos^6\phi + ... \tag{1.10}$$

où les K_i sont des constantes d'anisotropie qui dépendent de la température et les angles θ et ϕ sont définis sur la figure 1.9.

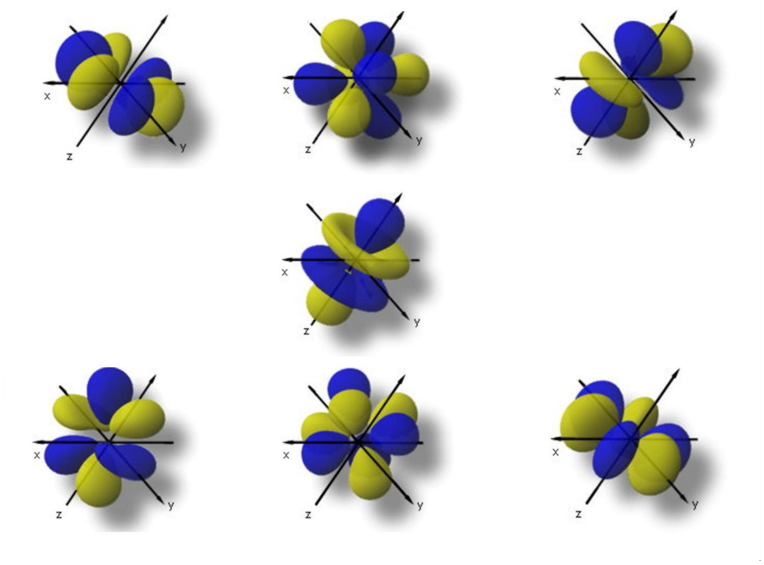

FIGURE 1.8 – Représentation des orbitales *4f*.

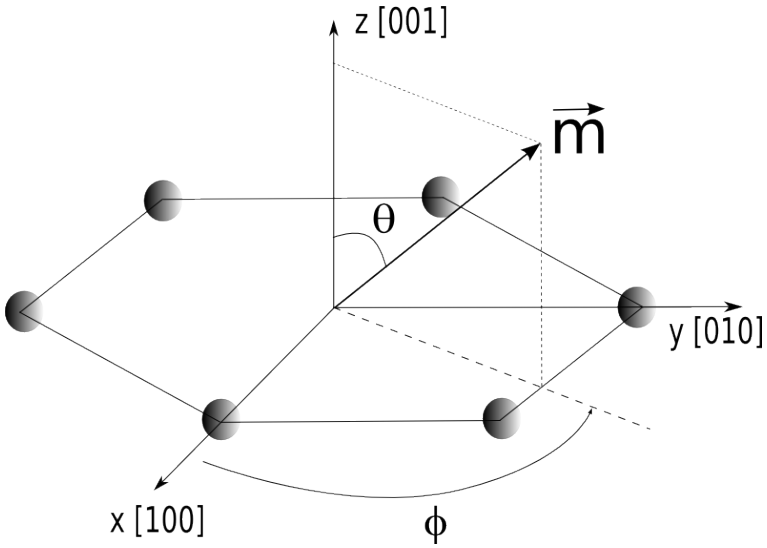

FIGURE 1.9 – Définition des angles θ et ϕ en symétrie hexagonale. θ correspond à l'angle entre l'aimantation et l'axe [001] de la structure hexagonale. L'angle ϕ est l'angle entre la projection de l'aimantation dans le plan perpendiculaire à l'axe [001] et l'axe [100] du réseau.

En symétrie hexagonale, le premier terme est d'ordre deux et ne dépend que de l'angle entre l'aimantation locale et l'axe de plus haute symétrie, ici l'axe [001] de symétrie d'ordre 6. Le terme suivant est d'ordre 4 et est d'au moins un ordre de grandeur plus petit. C'est pourquoi pour ce type de réseau cristallin on exprime généralement la densité d'énergie d'anisotropie à l'aide du seul terme d'ordre deux qui ne fait intervenir qu'un seul axe de symétrie :

$$E_{\mathrm{MC}} = K_1 \sin^2 \theta. \tag{1.11}$$

Du signe de K_1 dépend donc la direction de l'aimantation du cristal. Le dysprosium, de coefficient K_1 négatif ($K_1 = -8,06.10^7 \mathrm{J/m}^3$ à 0K), présente une direction de facile aimantation

perpendiculaire à l'axe c, c'est-à-dire dans le plan de base.

La constante d'anisotropie K_1 peut varier de quelques dizaines de J/m^3 dans les matériaux doux à $10^7 - 10^8 J/m^3$ dans certaines terres rares. Pour les métaux *3d* de symétrie cubique (nickel, fer), ces constantes sont de l'ordre de $10^3 - 10^4 J/m^3$.

Enfin, signalons que l'intensité de ces constantes d'anisotropie diminue très rapidement en fonction de la température et dépend fortement de la symétrie du cristal.

1.3 Propriétés magnétiques de couches minces et multicouches amorphes métaux de transition - terres rares

Par définition, une structure amorphe est caractérisée par une absence d'ordre topologique à longue distance. Les propriétés magnétiques, fortement dépendantes de l'environnement de chacun des atomes, peuvent donc être très différentes dans les composés amorphes de ce qu'elles sont dans les composés cristallins.

1.3.1 Interactions d'échange

Dans l'approximation du champ moléculaire avec des interactions d'échange limitées aux premiers voisins, on peut exprimer la température de Curie par :

$$T_C = \frac{J(r)ZS(S+1)}{3k_B}, \tag{1.12}$$

où $J(r)$ représente l'interaction d'échange entre les premiers voisins, Z est le nombre de premiers voisins et S est le moment magnétique de spin.

Le désordre local affecte fortement les interactions d'échange via la distribution des distances entre atomes proches voisins. Ce phénomène se traduit par des fluctuations des interactions d'échange autour d'une valeur moyenne [Handrich 1969] de la forme :

$$J_{ij} = < J_{ij} > + \Delta J_{ij}, \tag{1.13}$$

où $< J_{ij} >$ correspond à l'interaction d'échange moyenne et ΔJ_{ij} est l'écart par rapport à cette interaction moyenne entre les sites i et j. On observe alors une modification des courbes de variation thermique de l'aimantation entre les composés cristallin et amorphe d'un même matériau (figure 1.10).

On définit le paramètre δ rendant compte de l'amplitude des fluctuations des interactions d'échange par :

$$\delta = \frac{\Delta J_{ij}}{< J_{ij} >}. \tag{1.14}$$

On constate sur la figure 1.11 que la variation thermique de l'aimantation est ainsi fortement corrélée à l'amplitude des fluctuations des interactions d'échange.

Afin de calibrer les fluctuations des interactions d'échange autour de leurs valeurs moyennes, il est nécessaire de connaître l'amplitude des distributions des distances interatomiques

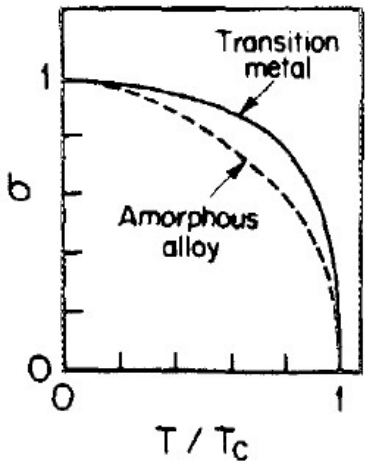

FIGURE 1.10 – Représentation schématique de l'aimantation réduite en fonction de la température réduite dans le cas de composés cristallisé et amorphe [Tsuei 1976].

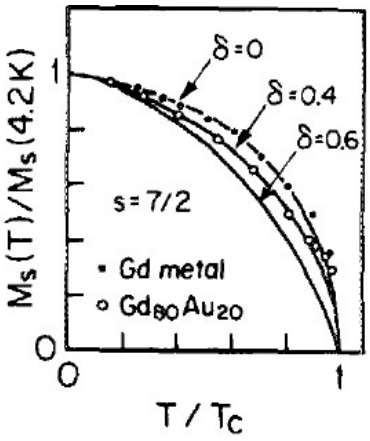

FIGURE 1.11 – Influence de l'amplitude des fluctuations des interactions d'échange (δ) dans des films minces amorphes GdAu sur l'aimantation réduite en fonction de la température réduite [O'Handley 1987].

entre atomes plus proches voisins ($P(r)$). En accord avec la courbe de Bethe-Slater qui indique comment varie l'interaction d'échange en fonction de la distance entre deux atomes, il est alors possible d'estimer qualitativement la variation de l'interaction d'échange en fonction de la distance entre plus proches voisins. On constate qu'en particulier une diminution de la distance entre atomes peut conduire à des interactions d'échange antiferromagnétiques (figure 1.4).

Dans les métaux de transition, le moment magnétique est très sensible aux perturbations de son environnement ; son intensité peut donc parfois être modifiée dans les structures amorphes, contrairement au moment magnétique des métaux de terres rares qui, étant localisé, est beaucoup moins sensible à son environnement. Les fluctuations locales du moment magnétique total (métaux *3d*) et des interactions d'échange peuvent alors jouer un rôle important dans les processus de mise en ordre magnétique dans les alliages amorphes.

1.3.2 Anisotropie magnétique

1.3.2.1 Anisotropie aléatoire

La nature amorphe de la structure induit également des modifications de l'anisotropie magnétique. Harris et *al.* ont montré qu'un "champ cristallin" équivalent existait à une échelle de quelques angströms dans les structures chimiquement désordonnées (modèle HPZ) [Harris 1973]. L'intensité et le signe du couplage entre ce champ local et les moments magnétiques sont principalement déterminés par l'interaction spin-orbite. L'absence d'axes privilégiés donne naissance à une anisotropie magnétique de direction aléatoire dans les alliages amorphes à base de TR en raison des fortes fluctuations du champ local. Dans les composés amorphes MT-TR, ce phénomène conduit à la distribution des moments magnétiques de TR autour d'une direction moyenne [Coey 1976] en raison de la compétition entre le fort couplage entre atomes de métaux de transition et la forte anisotropie magnétique aléatoire sur les sites de terre rare. Il apparaît alors différentes structures magnétiques non colinéaires dites spérimagnétiques ou spéromagnétiques en fonction du nombre d'électrons *4f* de la TR (figure 1.12).

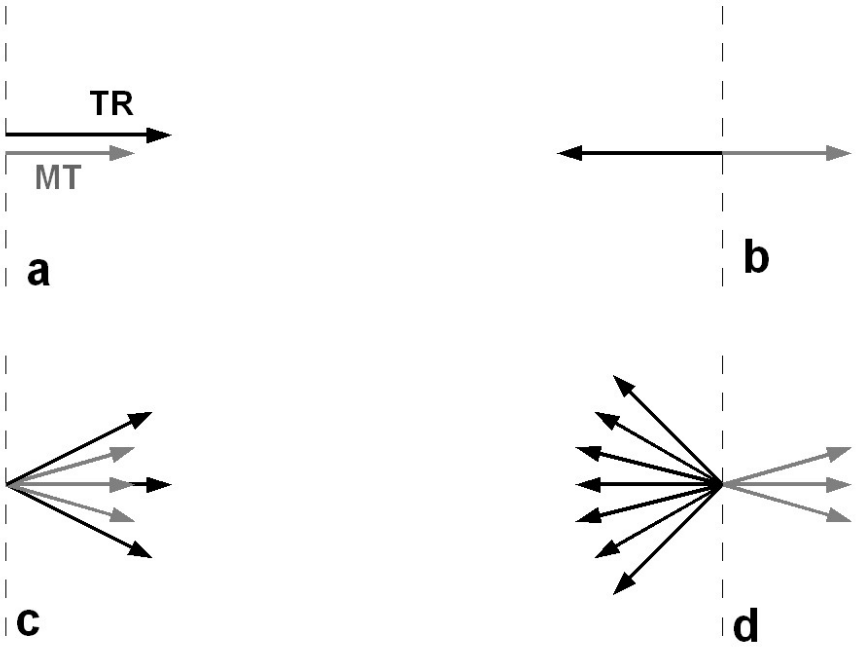

FIGURE 1.12 – Représentation schématique des différentes structures magnétiques observées dans les alliages amorphes MT-TR ((a) ordre ferromagnétique, (b) ordre ferrimagnétique, (c) ordre spéromagnétique, (d) ordre spérimagnétique).

La nature de la structure magnétique dans les alliages MT-TR dépend principalement de deux contributions : le signe du couplage d'échange entre le métal de transition et la terre rare et l'importance du terme d'anisotropie magnétique par rapport à l'échange (J/D).

Sellmyer et *al.* ont rassemblé ces effets dans un modèle simple [Sellmyer 1985] dont le Hamiltonien s'écrit :

$$H = -\sum_{<i,j>} (< J_{ij} > +\Delta J_{ij})\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \sum_i D_i(\mathbf{n}_i \cdot \mathbf{S}_i)^2. \tag{1.15}$$

Le premier terme correspond à l'interaction d'échange isotrope entre les sites i et j incluant l'effet des fluctuations (ΔJ_{ij}), le second terme représente l'effet de la distribution des axes locaux d'anisotropie où $\mathbf{n_i}$ est un vecteur unitaire suivant la direction d'anisotropie locale.

Le diagramme représenté figure 1.13 illustre la diversité des structures magnétiques possibles en fonction du poids des interactions d'échange, de leurs fluctuations et de l'anisotropie magnétique sur les atomes de terres rares.

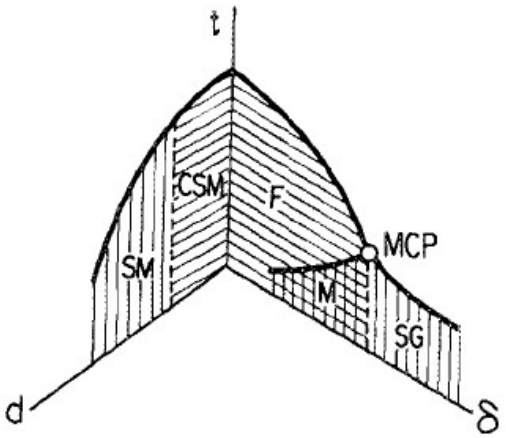

FIGURE 1.13 – Diagramme de phase en fonction des paramètres $t = \frac{k_B T}{J_{ij}}$, $d = \frac{D}{J_{ij}}$, $\delta = \frac{\Delta J_{ij}}{J_{ij}}$ illustrant les différentes structures magnétiques. SM représente une structure spéromagnétique ou spérimagnétique, CSM représente un état spéromagnétique corrélé, F représente une structure ferromagnétique, SG représente une structure verre de spin c'est-à-dire avec une frustration magnétique importante et M représente une phase mixte F et SG [Sellmyer 1985].

Lorsque l'on est en présence d'une structure spérimagnétique, il est possible de quantifier l'angle d'ouverture du cône formé par les moments magnétiques de la terre-rare. Si ceux-ci sont uniformément distribués à l'intérieur d'un cône d'angle α, la valeur moyenne du moment de la TR est donnée par l'expression [Coey 1976, Gu 1990, Ishio 1993] :

$$m_{\mathrm{TR}} = \frac{1 + \cos(\alpha/2)}{2} \times m_{\mathrm{TR}}^{\text{ion libre}}. \tag{1.16}$$

Le demi-angle de cône évolue alors de façon monotone en fonction de l'aimantation de la terre-rare à température nulle comme le montre la figure 1.14.

Expérimentalement, il existe une grande disparité dans les valeurs de D_{Dy} rencontrées dans la littérature (Tableau 1.2). Nous la considèrerons donc comme un paramètre variable dans notre modèle.

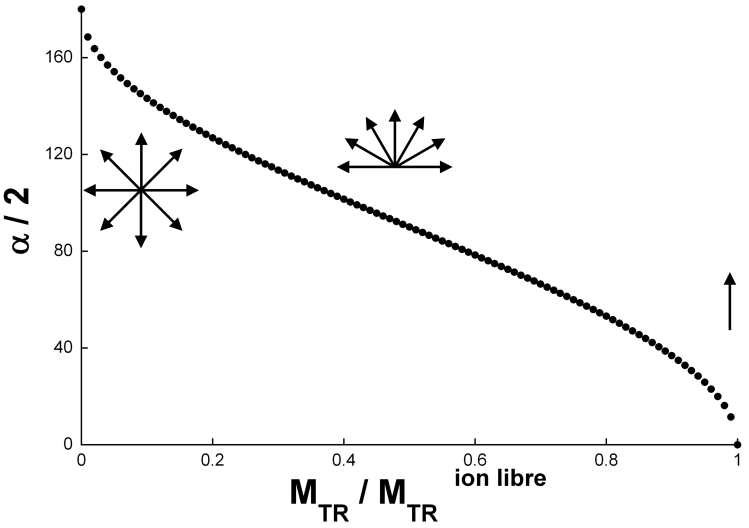

FIGURE 1.14 – Evolution du demi-angle de cône de dispersion des moments magnétiques de terrerare en fonction de l'aimantation du sous-réseau de TR.

Système	$D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ (K)
Multicouches Dy/Co	$0,15$K [Shan 1990a]
Alliages $\mathrm{Fe}_x\mathrm{Y}_{1-x}$ et DyNi_3	5K [Coey 1978]
Alliages DyAg	$1,1$K à 5K [Ferrer 1978]
Multicouches Fe/Tb	14K [Wang 1993]
Alliages MT-TR	6K [Moorjani 1984]
Alliages DyNi	$2,9$K à 5K [Hellman 1999]

TABLEAU 1.2 – Valeurs mesurées expérimentalement du coefficient d'anisotropie magnétique ion-simple pour le Dy.

1.3.2.2 Anisotropie dans les couches minces

L'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les alliages amorphes en couches minces à base de métaux de transition et de terres rares a été observée pour la première fois dans le cas d'alliages amorphes GdCo sous forme de couches minces en 1973 [Chaudhari 1973]. Cette découverte suscita un nouvel engouement dans la communauté du magnétisme pour les alliages MT-TR amorphes.

Afin d'expliquer l'existence de cette anisotropie magnétique perpendiculaire (AMP) dans les couches minces et multicouches amorphes MT-TR, de nombreux mécanismes ont été proposés. Cependant, aucun modèle ne permet de refléter l'ensemble des observations expérimentales faites sur ces systèmes et en particulier le fait que la direction d'anisotropie, planaire ou perpendiculaire, dépend de la nature de la TR. Nous établissons ci-dessous la liste des principaux modèles :

- **anisotropie liée aux interactions dipolaires** [Fu 1991]. Ce modèle, basé sur le "pair-model" énoncé par Van Vleck et *al.* [van Vleck 1937] fait l'hypothèse que l'AMP proviendrait des effets dipolaires des paires MT-TR en surface. Ce modèle semble bien adapté pour les alliages amorphes Gd-Fe, mais ne permet pas d'expliquer la forte anisotropie perpendiculaire dans le cas d'alliages avec le Tb et le Dy. De plus, l'effet des surfaces ne peut à lui seul être à l'origine de l'anisotropie perpendiculaire [Jaswal 1992].
- **anisotropie magnéto-élastique**. L'AMP résulterait des contraintes entre le substrat et l'échantillon au cours du dépôt [Katayama 1977, Takagi 1979, Tsunashima 1978, Yamada 2002, Zwingman 1976]. Ce modèle est trop fortement dépendant de la méthode d'élaboration et ne permet pas de rendre compte de l'ensemble des résultats expérimentaux.
- **anisotropie d'orientation des liaisons chimiques**. Ce modèle suppose que l'AMP résulte d'une distribution anisotrope de l'orientation des liaisons chimiques généré par les contraintes d'élaboration [Hirscher 1990, Suzuki 1987, Yan 1991]. Cependant, ce modèle semble peu crédible puisqu'il conduirait à une anisotropie indépendante de la TR en contradiction avec de nombreux résultats expérimentaux.
- **anisotropie liée à la croissance colonnaire** [Mizoguchi 1979]. Elle n'a jamais été vraiment vérifiée expérimentalement et ne permet pas de retrouver quantitativement l'amplitude de l'anisotropie mesurée expérimentalement.
- **anisotropie des corrélations de paires**. L'arrangement perpendiculaire au plan des liaisons MT-TR serait à l'origine de l'anisotropie perpendiculaire [van Dover 1985, Gambino 1978, Robinson 1989, Sato 1986]. Cependant, ce modèle est indépendant de la terre rare et n'a été vérifié que pour l'élaboration par pulvérisation cathodique. Il est étroitement lié au modèle d'anisotropie dû aux interactions dipolaires.
- **anisotropie structurale locale** [Harris 1992, Mergel 1993]. La croissance plan par plan est susceptible de permettre la formation de petites cellules cristallisées, de structure ordonnée du type $MT_3 - TR$ ou $MT_5 - TR$, définissant en moyenne un axe d'anisotropie perpendiculaire au plan des couches. Des mesures d'EXAFS [Bordel 1997, Harris 1992] ont corroboré cette hypothèse en montrant l'existence d'un ordre local dans des alliages Fe-Tb. L'anisotropie magnétique résulterait de l'existence d'un ordre pseudo-cristallin via le fort couplage spin-orbite.

C'est ce dernier modèle qui a notre préférence puisqu'il semble être le plus adapté afin d'expliquer les résultats expérimentaux de Tamion et *al.* qui nous serviront de référence dans le cadre de cette étude.

1.4 Propriétés structurales et magnétiques de couches minces et multicouches amorphes Fe-Dy

Les propriétés structurales et magnétiques des multicouches à base de métaux de transition-terres rares sont intimement corrélées aux paramètres et à la technique d'élaboration. En effet, ces propriétés dépendent fortement de l'épaisseur des couches de Fe et de Dy et de la température du substrat en cours d'élaboration, c'est-à-dire de la nature de l'interface (rugosité et interdiffusion en particulier).

Les travaux qui nous serviront de référence ici sont ceux réalisés par A. Tamion au Groupe de Physique des Matériaux dans le cadre de sa thèse sur les multicouches Fe/Dy [Tamion 2005].

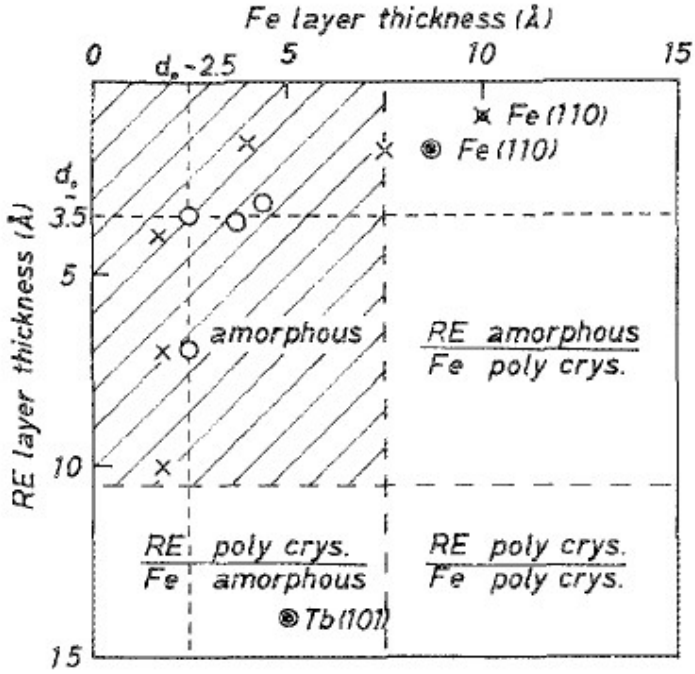

FIGURE 1.15 – Structure de films minces Fe-TR en fonction des épaisseurs des couches de fer et de terre rare. Les symboles renvoient à : ∘ structure en couches, × structure sous forme d'alliage, • constituant de la phase cristalline. La partie hachurée indique la zone de composition de formation des amorphes [Sato 1987].

1.4.1 Propriétés structurales

L'épaisseur des couches est l'un des paramètres déterminants du point de vue de la nature cristallographique des couches donc des propriétés magnétiques des multicouches.

Le dysprosium est considéré comme amorphe tant que l'épaisseur des couches e_{Dy} est inférieure à $15 - 20$Å [Shan 1988, Yoden 1988] ; au-delà de cette valeur, le dysprosium cristallise selon une structure hexagonale (hcp).

Le fer est amorphe en dessous d'une épaisseur critique e^{c}_{Fe} et cristallise sous la forme fer α (CC) au-dessus de cette valeur. Cette épaisseur critique dépend de l'épaisseur des couches de dysprosium voisines. Elle a été estimée à 20Å dans le cas des multicouches Fe/Dy [Yoden 1988]. D'autres auteurs l'ont estimée à 15Å [Shan 1988] ou encore à 8Å [Sato 1987] (figure 1.15). Cette valeur a également été évaluée sur des multicouches Fe/Tb entre 10 et 32Å en fonction de l'épaisseur de Tb et de la température de dépôt [Cherifi 1990, Honda 1991, Yamauchi 1988].

Dans les multicouches Fe-Dy, il existe une forte diffusion des atomes de fer dans les couches voisines, ce qui a pour effet de créer des interfaces mixtes en Fe et en Dy. Ces interfaces peuvent être considérées comme des alliages amorphes Fe-Dy de composition modulée (généralement sinusoïdale) [Kirby 1991, Shan 1990*b*]. D'autres auteurs considèrent que la zone interfaciale est un alliage Fe-Dy avec une composition fixe. Ainsi, Tappert et *al.* ont estimé que cette interface était de composition $\mathrm{Fe}_{0,78}\mathrm{Dy}_{0,22}$ sur une épaisseur de 16Å [Tappert 1996].

Nous avons représenté sur la figure 1.16 les résultats d'analyses en sonde atomique tomographique (SAT) réalisées par Tamion et *al.* qui montrent la reconstruction tridimensionnelle d'une multicouche Fe/Dy et le profil de concentration des éléments présents pour différentes

températures d'élaboration. Ces analyses à l'échelle atomique mettent clairement en évidence la diffusion atomique aux interfaces dépendant de la température.

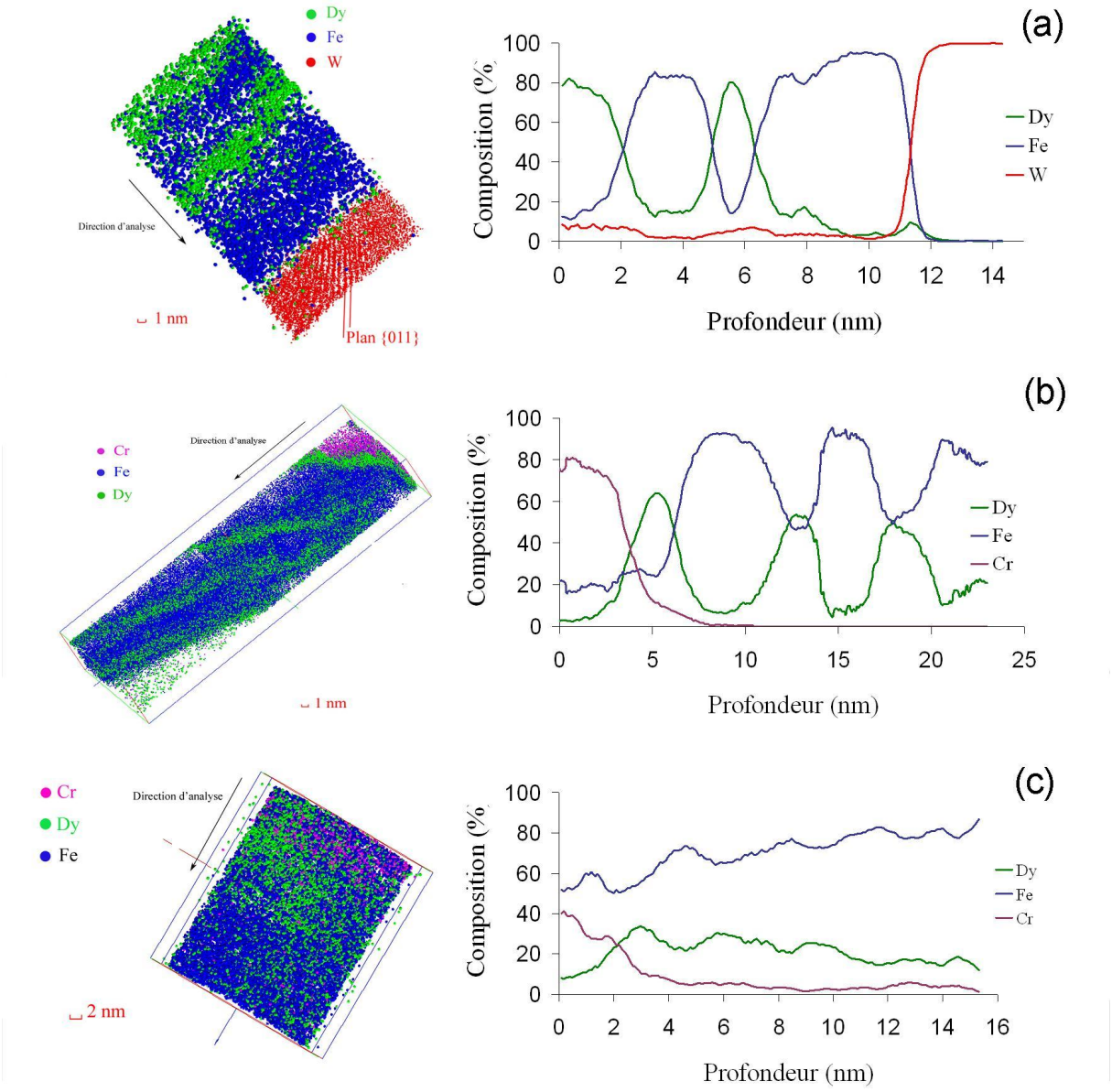

FIGURE 1.16 – Reconstruction tridimensionnelle de multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm) après analyse en sonde atomique et profil de concentration le long de la multicouche pour différentes températures de substrat ((a) $T_S = 320K$; (b) $T_S = 570K$; (c) $T_S = 870K$) [Tamion 2005].

Nous constatons à partir de ces trois analyses que la température de substrat durant l'élaboration des multicouches est un paramètre essentiel qui détermine la nature des interfaces et de la multicouche. En effet, plus la température du substrat T_S augmente, plus les atomes de fer diffusent et plus les interfaces sont épaisses, jusqu'à perdre la structure en couches pour la

température de substrat la plus élevée (figure 1.16(c)). La plus forte diffusion des atomes de fer est bien évidemment due à sa taille inférieure à celle du Dy. Nous remarquons également en observant les profils de concentration associés aux reconstructions 3D des volumes analysés que l'on n'obtient pas de plans purs (en Fe ou en Dy). On peut même constater que pour des températures de substrat supérieures à 570K la concentration maximale des couches de Dy est de l'ordre de 50%.

Ces analyses nous permettent de déterminer plus précisément les caractéristiques structurales principales des multicouches Fe/Dy étudiées ici. Pour une température de substrat de 320K (figure 1.16(a)), on remarque que l'extension des interfaces est d'environ 1nm, et il ne semble pas y avoir de dissymétrie entre les interfaces Fe/Dy et Dy/Fe. Ce résultat est en désaccord avec les résultats obtenus sur des multicouches Fe/Tb élaborées par pulvérisation cathodique [Richomme 1996, Veiller 2000]. On notera que les concentrations maximum en Fe et en Dy sont de l'ordre de 85% au centre des couches. Cependant, des analyses complémentaires ont révélé l'existence de couches quasiment pures en Fe, c'est-à-dire contenant moins de 5% de Dy au centre de la couche de Fe.

Pour une température de substrat de 570K (figure 1.16(b)), on note que la structure en couches est toujours conservée, mais le mélange chimique semble avoir augmenté considérablement par rapport à l'analyse précédente. Le fer envahit l'ensemble de la multicouche, l'interface est plus diffuse que précédemment et il est difficile de conclure sur la symétrie des interfaces.

Enfin, dans le cas où la température de substrat est de 870K (figure 1.16(c)), la structure en couches a totalement disparu. La composition globale de la structure est alors de 23% de Dy et de 77% de Fe. De plus, La composition dans la "couche" de dysprosium est proche de celle d'un alliage Fe_2Dy. La structure est globalement constituée de deux types de zones distinctes : des zones "riches" en Dy ($\sim$ 30%) et des zones pratiquement dépourvues de Dy.

Ces observations sur l'évolution de la structure en fonction de la température d'élaboration sont confirmées sur les clichés de microscopie électronique en transmission (MET) présentés sur la figure 1.17 qui permettent également d'observer une cristallisation partielle lorsque la température d'élaboration est la plus importante.

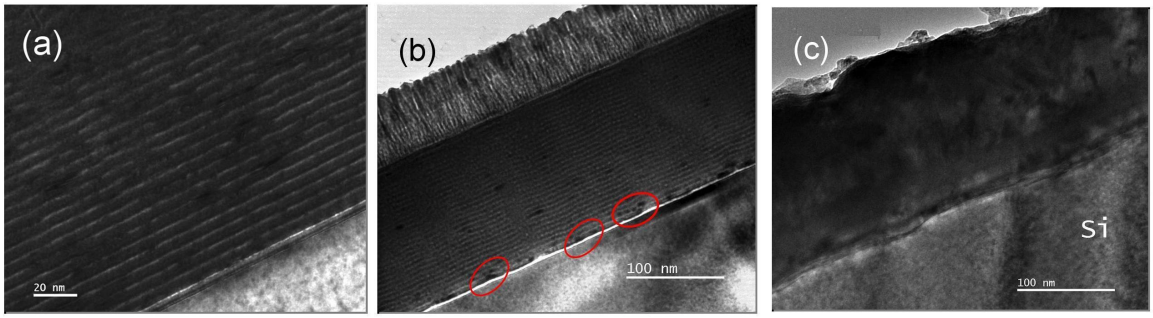

FIGURE 1.17 – Clichés de microscopie électronique en transmission d'une multicouche (Fe 3nm/Dy 2nm) pour différentes températures de substrat ((a) $T_S = 320K$; (b) $T_S = 570K$; (c) $T_S = 870K$) [Tamion 2005]. Dans le cas de l'échantillon élaboré à 570K, les cristallites de Fe α à proximité du substrat sont entourés en rouge.

Sur ces clichés, le fer apparaît en noir et le dysprosium en contraste clair. Pour les deux clichés où la température est inférieure à 600K (figure 1.17(a) et (b)), la structure en couches est conservée, avec l'apparition de cristallites de Fe α à proximité du substrat. Pour $T_S = 870$K (figure 1.17(c)), le cliché de MET confirme les analyses en SAT, c'est-à-dire qu'il y a destruction de la structure en couches au profit d'un mélange composé d'alliage Fe_2Dy dans une matrice de Fe α.

En conclusion, les caractéristiques structurales des multicouches Fe/Dy de faible épaisseur sont très difficiles à prévoir a priori. La nature cristallographique des couches (amorphe ou cristallisé), la nature et la rugosité des interfaces sont fortement dépendantes des paramètres d'élaboration. Nous pouvons cependant retenir que pour de faibles épaisseurs (de Fe et de Dy), les couches peuvent être considérées comme globalement amorphes avec des interfaces d'autant plus larges et diffuses que la température de substrat est élevée (en restant néanmoins en deçà d'une température de substrat qui conduit à une disparition de la structure en couches).

1.4.2 Propriétés magnétiques

1.4.2.1 Structure magnétique

Selon les épaisseurs de couches et la nature des interfaces, les propriétés magnétiques des multicouches Fe/Dy seront très différentes (existence d'une anisotropie magnétique planaire ou perpendiculaire, valeur de la température de transition, ...).

Par ailleurs, nous avons déjà souligné le fait que la structure magnétique à basse température résulte de la compétition entre le couplage d'échange MT/TR et l'intensité du terme d'anisotropie magnétique de la TR. Dans le cas des multicouches Fe/Dy, l'orientation des moments magnétiques est déterminée par la compétition entre la forte anisotropie magnétique aléatoire sur les sites de Dy et les intégrales d'échange négatives entre les atomes de Fe et de Dy, ce qui conduit à un alignement antiparallèle en moyenne des moments magnétiques des espèces chimiquement différentes avec une dispersion conique (spérimagnétisme) représentée schématiquement sur la figure 1.18.

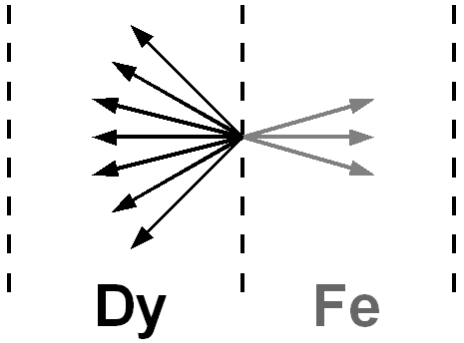

FIGURE 1.18 – Structure schématique de l'ordre spérimagnétique dans les multicouches Fe/Dy.

1.4.2.2 Température de Curie

L'état amorphe influence fortement les propriétés magnétiques des composés Fe-Dy, et notamment la température de mise en ordre magnétique (température de Curie, T_C). Dans le cas

du fer pur, cette température de Curie est fortement diminuée par rapport au fer cristallin (CC) bien que sa valeur ne soit pas clairement établie. Il semble qu'elle soit fortement influencée par l'élément d'alliage et la structure des échantillons. Les différentes valeurs de la température de mise en ordre magnétique du fer amorphe relevées dans la littérature sont reportées dans le tableau 1.3.

Nature des échantillons	T_C du fer amorphe
multicouches Fe/Dy	260K [Tappert 1996]
multicouches Fe/TR	270K [Heiman 1976*b*]
alliages Fe-métalloïde	320K [Egami 1984]
poudre de fer	580K [Grinstaff 1993]
fer pur	295K [Long 1998]

TABLEAU 1.3 – Température de Curie du fer amorphe dans différents composés.

Dans le cas du dysprosium pur amorphe, sa température de transition magnétique est légèrement supérieure à celle du cristal ($T_C^{\text{Dy amorphe}} = 110\text{K}$, $T_C^{\text{Dy cristallin}} = 85\text{K}$) [Tappert 1996]. Cependant, il faut noter que le dysprosium cristallin présente une phase hélimagnétique, c'est-à-dire partiellement ordonnée, entre 85K et 178K.

De façon générale, on constate expérimentalement que la température de Curie des alliages amorphes $\text{Fe}_{X_{\text{Fe}}}\text{TR}_{1-X_{\text{Fe}}}$ dépend fortement de la concentration de Fe (ou de TR) (figure 1.19) ce que l'on retrouvera dans l'expression des interactions d'échange puisque la température de Curie leur est directement proportionnelle.

1.4.2.3 Influence de l'épaisseur

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'anisotropie magnétique des multicouches dépend sensiblement des paramètres et des conditions de dépôt. Ainsi, Shan et Sellmyer [Shan 1990*a*] ont montré que la direction d'anisotropie est fortement corrélée à l'épaisseur de la bicouche, et notamment à l'épaisseur de la couche de fer par rapport à celle de dysprosium (figure 1.20). Ils observent un basculement de la direction d'anisotropie dans le plan à température ambiante pour une épaisseur de fer comprise entre 20Å et 30Å.

Les épaisseurs respectives des couches de fer et de dysprosium vont influer sur le sous-réseau dominant à une température donnée. Selon les épaisseurs de couches déposées, c'est-à-dire selon la concentration équivalente en Fe (ou en Dy) dans la multicouche, on peut se trouver dans trois domaines distincts dans lesquels le sous-réseau magnétiquement dominant est différent (figure 1.21).

Il existe un rapport $\alpha_c = (e_{\text{Fe}}/e_{\text{Dy}})_{\text{comp}}$ pour lequel on observe une compensation magnétique à une température donnée. Il est possible de calculer ce rapport à 0K puisque le rapport des épaisseurs est directement lié à la concentration de chaque élément dans la structure ; à $T = 0\text{K}$, $(e_{\text{Fe}}/e_{\text{Dy}})_{\text{comp}} = 1,68$. Ce rapport traduit la forte différence d'intensité entre les valeurs des moments magnétiques de fer et de dysprosium et la plus grande densité volumique d'atomes de

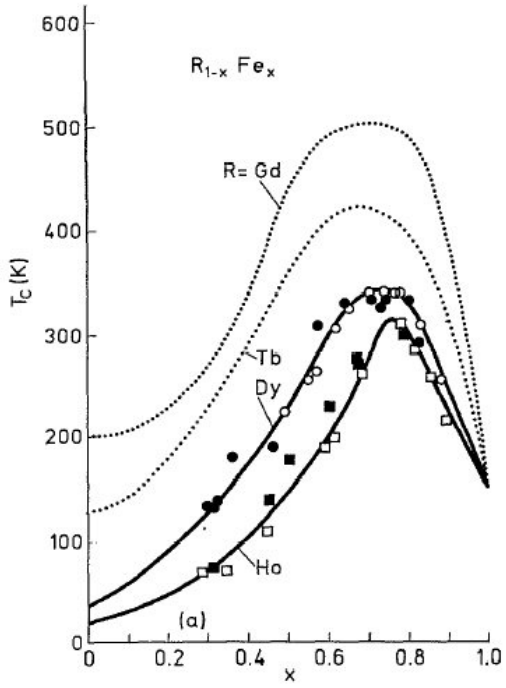

FIGURE 1.19 – Variation de la température de Curie pour des alliages amorphes en couches minces $Fe_{X_{Fe}}TR_{1-X_{Fe}}$ avec TR=Gd,Tb,Dy,Ho [Hansen 1991].

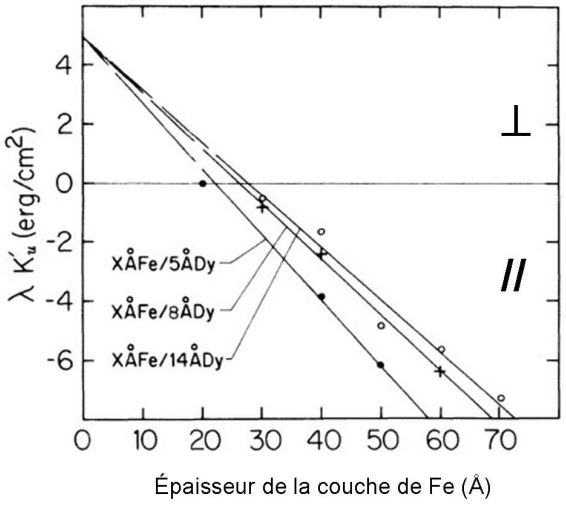

FIGURE 1.20 – Constante d'anisotropie magnétique mesurée multipliée par l'épaisseur de la bicouche en fonction de l'épaisseur de la couche de fer sur des multicouches Fe/Dy pour différentes épaisseurs de la couche de Dy à 300K [Shan 1990*a*].

fer. De manière plus générale, si le rapport des épaisseurs est supérieur à α_c, alors l'aimantation est dominée par le sous-réseau de fer dès la mise en ordre. Au contraire, si ce rapport est inférieur à α_c, alors le sous-réseau de dysprosium contrôle les processus d'aimantation dès les hautes températures.

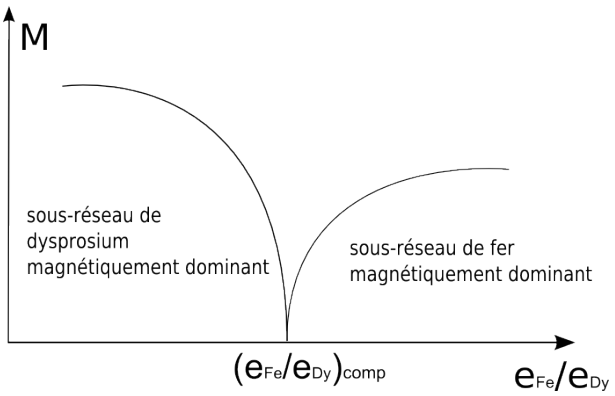

FIGURE 1.21 – Représentation schématique du sous-réseau dominant du point de vue magnétique en fonction du rapport des épaisseurs de fer et de dysprosium de la multicouche à $T = 0$K.

Il existe un domaine d'épaisseur pour lequel le rapport $e_{\mathrm{Fe}}/e_{\mathrm{Dy}}$ conduit à la présence d'une compensation magnétique T_{comp}. L'aimantation du sous-réseau de fer domine pour $T_{\mathrm{comp}} < T < T_{\mathrm{C}}$ et le sous-réseau de dysprosium domine en dessous de T_{comp}. La température de compensation décroit au fur et à mesure que le rapport $e_{\mathrm{Fe}}/e_{\mathrm{Dy}}$ diminue.

Ces résultats sur la domination des sous-réseaux selon l'épaisseur des couches sont identiques que l'on considère des alliages homogènes ou des multicouches de même composition.

1.4.2.4 Anisotropie magnétique

L'une des propriétés particulièrement intéressante des multicouches Fe/Dy est l'existence d'une anisotropie magnétique perpendiculaire dans certaines conditions. Des études récentes sur des multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm) montrent que l'anisotropie magnétique perpendiculaire n'évolue pas de façon monotone en fonction de la température d'élaboration [Tamion 2005]. Dans certains cas, on peut se trouver en présence d'une anisotropie planaire ou d'une anisotropie perpendiculaire (figure 1.22). L'anisotropie magnétique est quantifiée par la constante d'anisotropie uniaxiale K_{u} définie par :

$$K_{\mathrm{u}} = K_1 + 2\frac{K_1^{\mathrm{S}}}{\lambda}, \tag{1.17}$$

où K_1 est la constante d'anisotropie uniaxiale magnéto-cristalline, K_1^{S} est la constante d'anisotropie de surface et λ est l'épaisseur d'une bicouche.

Comme le montre la figure 1.22 qui représente la constante d'anisotropie uniaxiale K_{u} en fonction de la température d'élaboration pour différentes températures de mesure, il existe une forte corrélation entre la structure chimique (figure 1.16) et l'anisotropie magnétique macroscopique de la multicouche.

L'ensemble des analyses structurales et magnétiques réalisées permettent de relier l'évolution de l'anisotropie magnétique perpendiculaire à la structure, par l'intermédiaire de la température d'élaboration des multicouches. Nous avons représenté de façon schématique sur la figure 1.23 l'évolution de la structure et de la direction d'anisotropie en fonction de la température d'élaboration.

Ces résultats montrent que l'anisotropie magnétique est perpendiculaire pour une température d'élaboration comprise entre 500 et 700K, c'est-à-dire pour une multicouche amorphe

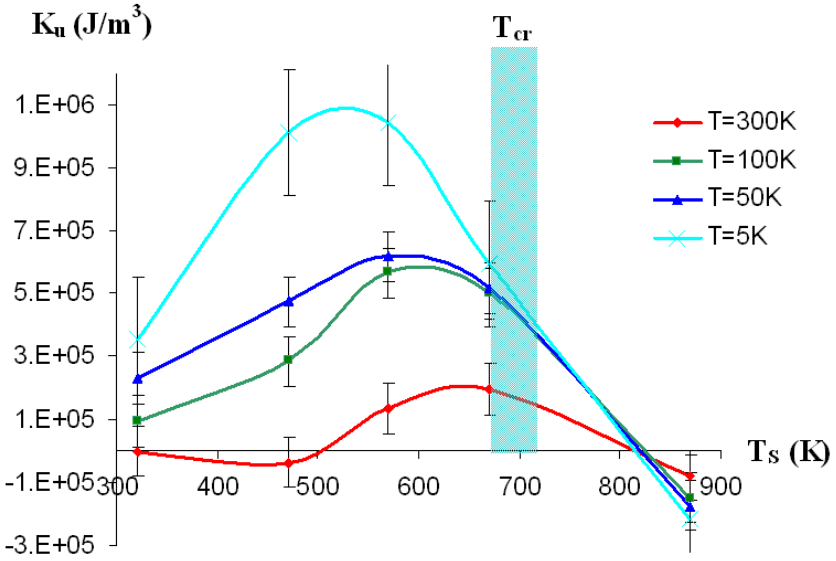

FIGURE 1.22 – Variation de la constante d'anisotropie uniaxiale K_u en fonction de la température d'élaboration T_S pour différentes températures de mesure. T_{CR} correspond à la température de cristallisation estimée des multicouches.

avec une forte diffusion du Fe en particulier. La cristallisation (même partielle) de la multicouche au-dessus de 700K favorise l'obtention d'une anisotropie planaire (d'origine dipolaire ou magnéto-cristalline liée à la phase Fe_2Dy).

1.4.3 Conclusion sur les multicouches Fe/Dy

La température d'élaboration et l'épaisseur des couches déposées influencent fortement la nature de l'interface. Nous modéliserons cette interface par un alliage modulé en composition (sinusoïdale ou linéaire), la multicouche présentant alors des zones aux comportements magnétiques différents.

Dans le cas des multicouches de faible épaisseur (quelques plans atomiques), la structure est globalement amorphe. La nature de l'interface est alors fortement influencée par la température d'élaboration (une température d'élaboration élevée conduit à une interface diffuse, tandis qu'une faible température d'élaboration donne lieu à des interfaces plus abruptes). C'est dans ce domaine des faibles épaisseurs que l'anisotropie magnétique perpendiculaire est généralement observée.

La présence de couches cristallines de fer n'est pas à exclure même pour des épaisseurs relativement faibles (quelques nanomètres). Ces couches peuvent modifier considérablement le comportement magnétique de la multicouche du fait de la forte augmentation des interactions d'échange du fer cristallin par rapport à celles du fer amorphe.

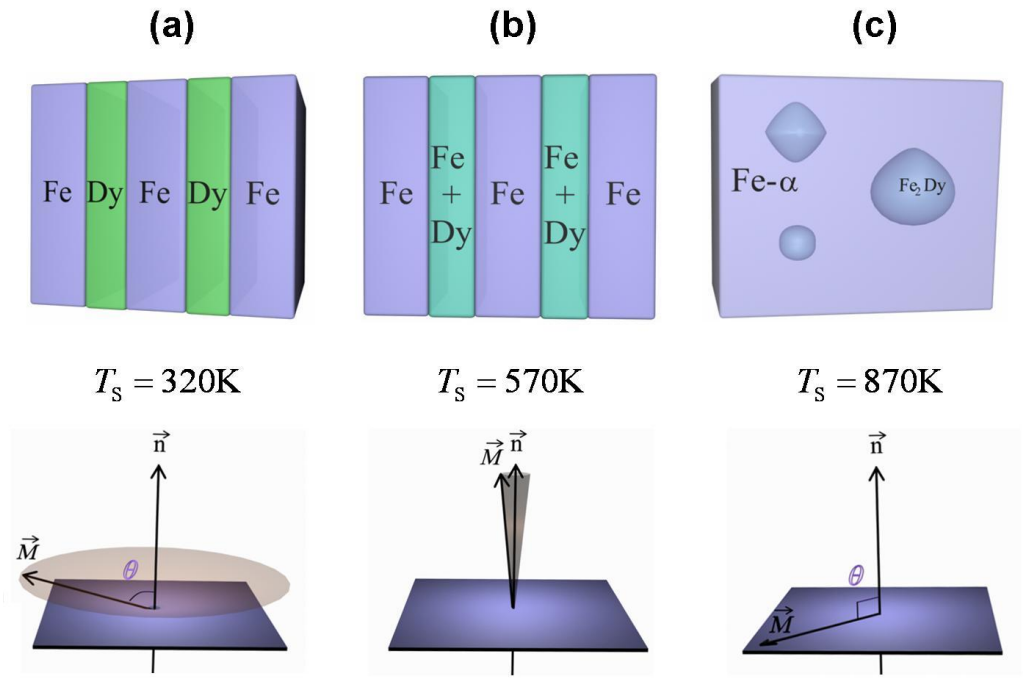

FIGURE 1.23 – Représentation schématique de l'évolution de la direction de l'aimantation et de la structure des échantillons en fonction de la température de substrat ((a) $T_S = 320K$; (b) $T_S = 570K$; (c) $T_S = 870K$).

Si l'épaisseur des couches est plus importante, on se trouve en présence de couches de fer et de dysprosium bien cristallisées (sous la forme respectivement de fer α et de dysprosium hcp). L'interface est alors constituée d'un alliage amorphe de faible épaisseur par rapport aux couches cristallines de Fe et de Dy. Les propriétés magnétiques de ces systèmes auront des caractéristiques magnétiques proches de celles des deux espèces chimiques dominantes.

Notre étude sera essentiellement consacrée au domaine des faibles épaisseurs de couches, c'est-à-dire avec des couches amorphes ou très partiellement cristallisées. C'est dans ce domaine que nous étudierons l'anisotropie magnétique des multicouches et alliages homogènes amorphes Fe/Dy.

1.5 Propriétés structurales et magnétiques des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$

Les hétérostructures intermétalliques MT-TR permettent la fabrication de parois de domaines artificielles par le biais du couplage d'échange négatif à l'interface entre les couches dures et douces. Des exemples typiques de tels composés sont les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ constitués d'une alternance de couches ferrimagnétiques dures ($DyFe_2$) et de couches ferrimagnétiques douces (YFe_2). Avant de présenter les propriétés magnétiques de ces systèmes, nous ferons un bref rappel des propriétés structurales des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$. L'étude de tels super-réseaux présente à la fois un intérêt fondamental pour l'étude du couplage magnétique et le développement de parois d'interface, mais aussi un intérêt industriel pour les applications potentielles en tant qu'aimants permanents ou capteurs magnétiques.

1.5.1 Propriétés structurales

Les composés $DyFe_2$ et YFe_2 présentent une structure cristallographique de type "Phases de Laves", et cristallisent dans le réseau cubique de type $MgCu_2$. Cette structure peut être décrite simplement en considérant deux sous-réseaux : un réseau de terre rare de type diamant, cubique à faces centrées avec le quart des sites tétraédriques occupé, et un réseau d'atomes de fer qui est un empilement de tétraèdres reliés par leurs sommets. Ces tétraèdres de fer viennent combler les sites tétraédriques vacants du réseau de terre rare (figure 1.24).

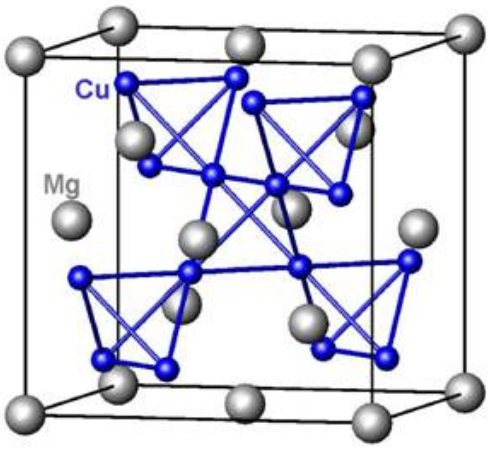

FIGURE 1.24 – Maille élémentaire cubique des structures de phases de Laves $MgCu_2$. Les atomes de TR occupent les sites de Mg (en gris) et les atomes de Fe ceux de Cu (en bleu).

Les paramètres de maille des composés étudiés ici, à température ambiante, sont de $7,364$Å pour la phase YFe_2 et de $7,324$Å pour la phase $DyFe_2$ [Beaujour 2001*b*, Sawicki 2000*b*].

Dans le cadre de cette étude, nous nous sommes intéressé aux propriétés magnétiques obtenues par simulation numérique de super-réseaux synthétisés sous forme de couches minces, c'est-à-dire que chacune des couches a une épaisseur de quelques nanomètres au maximum.

1.5.2 Propriétés magnétiques

Les propriétés magnétiques des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ en couches minces dépendent principalement des épaisseurs respectives des couches, ainsi que de la température. Ainsi, elles dépendent d'une part de l'épaisseur relative de la couche dure par rapport à la couche douce, mais également de l'épaisseur nominale de chacune des couches. Nous présenterons un certain nombre de résultats expérimentaux sur les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ pour quelques jeux d'épaisseurs à différentes températures d'analyse.

Nous avons vu précédemment que l'yttrium est un atome non magnétique. Cependant, dans ce type de structure, on lui affecte généralement un moment magnétique faible induit par la polarisation due aux atomes de Fe. Le moment magnétique atomique de l'Y est estimé à $0,67 \pm 0,04\ \mu_B$ [Ritter 1989].

1.5.2.1 Anisotropie magnétique des super-réseaux Terre Rare - Fe_2 en couche mince

Dans les composés massifs $DyFe_2$ et YFe_2, l'anisotropie magnétique est uniaxiale dans les directions respectives [001] et [111]. Pour la couche dure, cette forte anisotropie résulte de l'interaction de champ cristallin avec l'ion de terre rare Dy [Bowden 1968]. Dans le cas de la couche douce, cette anisotropie est nettement plus faible, voire négligeable. L'élaboration de super-réseaux par épitaxie par jet moléculaire induit des contraintes dans la couche mince qui a pour conséquence de réorienter la direction de facile aimantation de la couche dure à haute température [Oderno 1996, Sawicki 2000*a*]. Elle passe de la direction [001] à basse température à la direction $[1\bar{1}0]$ à température ambiante.

1.5.2.2 Interaction d'échange et ordre magnétique

Afin de modéliser ces super-réseaux, il est nécessaire de prendre en considération toutes les interactions d'échange entre les différents types d'atomes magnétiques :

- l'interaction d'échange positive entre les atomes de Fe ($J_{Fe-Fe} > 0$) ;
- l'interaction d'échange positive entre les atomes de Dy ($J_{Dy-Dy} > 0$) ;
- l'interaction d'échange négative entre les atomes de Fe et les atomes de Dy ($J_{Fe-Dy} < 0$).

En raison de la forte interaction d'échange entre atomes de fer, la température de Curie de ces systèmes est d'environ 600K [Beaujour 2001*b*, Sawicki 2000*b*]. De plus, du fait des propriétés magnétiques de chaque élément, on peut résumer les propriétés de l'état fondamental par les points suivants :

- la couche de $DyFe_2$ est la couche magnétique dure, elle présente un ordre ferrimagnétique avec une aimantation dominée par le Dy ;
- la couche de YFe_2 est la couche magnétique douce, elle présente un ordre ferrimagnétique avec une aimantation dominée par le Fe.
- le couplage interfacial est contrôlé par l'interaction d'échange Fe-Fe entre couches. On a donc une configuration antiparallèle entre les aimantations de la couche de $DyFe_2$ et de YFe_2.

L'état fondamental de ces super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ est représenté schématiquement sur la figure 1.25(a).

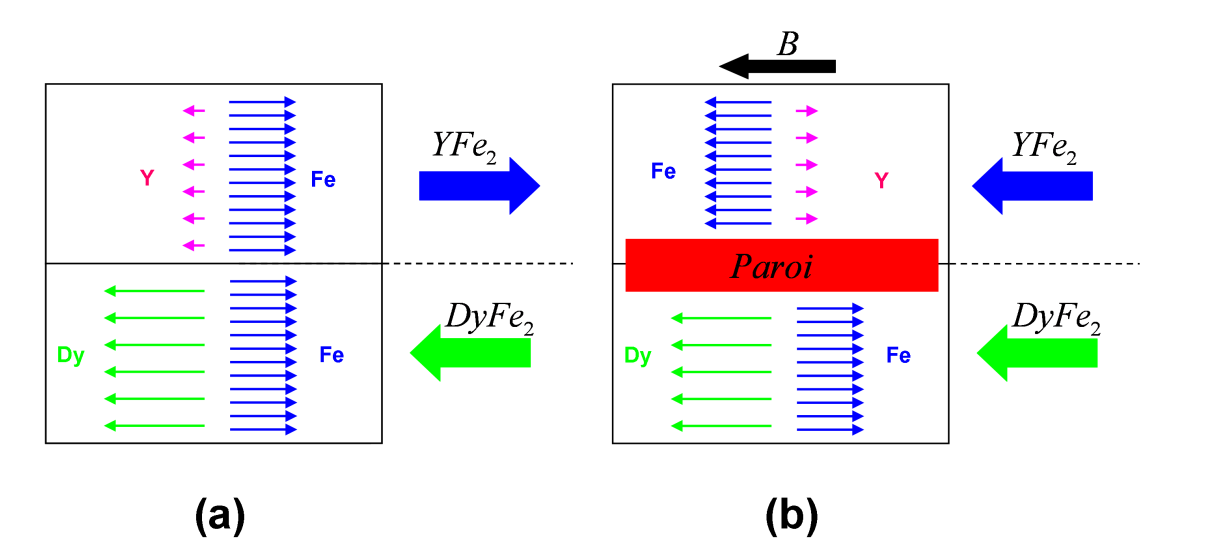

FIGURE 1.25 – Représentation schématique de l'ordre magnétique des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ ((état fondamental ; (b) état stable en présence d'un champ magnétique extérieur).

1.5.2.3 Propriétés magnétiques sous champ appliqué

Sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, la contribution Zeeman peut fortement modifier l'équilibre énergétique. En effet, en plus du couplage effectif antiferromagnétique entre les aimantations des couches de $DyFe_2$ et de YFe_2, il apparaît un terme d'énergie Zeeman qui tend à aligner tous les moments magnétiques dans la direction du champ appliqué. On aura donc une compétition entre ces différents termes énergétiques, compétition qui dépendra des épaisseurs des couches mais aussi de la température de mesure. En fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué, on peut observer la création d'une paroi d'interface, c'est-à-dire une zone de transition permettant d'accommoder les contraintes générées par cette compétition énergétique (figure 1.25(b)).

La création de cette paroi est principalement contrôlée, d'une part par la compétition énergétique due au champ magnétique, à l'échange et à l'anisotropie de la couche dure, d'autre part par les épaisseurs relatives des couches. Dans une approche continue, on peut estimer la dimension caractéristique de la paroi par l'expression :

$$\delta(B) = \pi\sqrt{\frac{A}{K + MB}}, \tag{1.18}$$

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 par unité de volume, M est l'aimantation de l'échantillon et B est le champ magnétique appliqué [Trémolet de Lacheisserie 2000*b*].

Chapitre 2

MODELE ET SIMULATION NUMERIQUE

Jusqu'aux années 1960, la communauté scientifique utilisait essentiellement deux approches complémentaires : la théorie et l'expérimentation. Il restait néanmoins un inconvénient de taille : la résolution analytique des modèles physiques réalistes donc très complexes pour décrire finement les comportements expérimentaux. L'évolution récente (ces quarante dernières années) des ordinateurs et des algorithmes et plus précisément de l'expérimentation numérique a permis en partie de pallier à cette difficulté, même si les temps de calculs peuvent demeurer longs dans certains cas.

Notre travail porte ici sur l'étude des propriétés magnétiques d'un système métallique mixte MT/TR par simulation numérique. Il s'agit de modéliser la structure et les interactions dominantes et de choisir l'algorithme approprié pour réaliser cette étude. Pour la détermination des propriétés physiques à l'équilibre, nous avons retenu la méthode Monte Carlo 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 ou la susceptibilité magnétique. Dans un deuxième temps, pour la réalisation de cycles d'hystérésis, nous avons adopté la méthode MC quantifiée en temps qui permet de simuler la barrière d'énergie afin d'accéder aux grandeurs physiques hors équilibre.

2.1 Modèle

2.1.1 Description de la structure multicouche

Afin de décrire aussi fidèlement que possible la structure expérimentale des multicouches Fe/Dy et $DyFe_2/YFe_2$, nous avons considéré des atomes localisés aux noeuds d'un réseau cubique à faces centrées. En effet, la coordinence de ce réseau ($Z = 12$) correspond à celle généralement observée dans les alliages amorphes MT-TR [Driouch 1995, Grinstaff 1993, Hansen 1989, Hasegawa 1974, Hatta 1985, Heiman 1976*b*, Honda 1994, Lassri 1996, Mimura 1978]. 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. Les fluctuations des distances interatomiques pour les multicouches amorphes sont implicitement incluses dans les intégrales d'échange comme nous le verrons par la suite.

La structure est une multicouche du type $k \times (A_mB_n)$, c'est-à-dire qu'elle est constituée d'un empilement successif de m plans d'atomes A et de n plans d'atomes B répété avec une période k (figure 2.1). Toutefois, il convient de noter que notre modèle ne prend pas en compte la différence de volume entre les différentes espèces chimiques ($r_{\mathrm{Dy}} = 1,77$Å $r_{\mathrm{Fe}} = 1,27$Å et $r_{\mathrm{Y}} = 1,80$Å) [Kittel 1972] mais les concentrations globales définies expérimentalement sont respectées. Cela signifie que la densité d'atomes par plan est la même, mais on adapte le nombre de plans et la concentration par plan afin de satisfaire les concentrations expérimentales.

Afin de tenir compte de la diffusion atomique dans les plans voisins et particulièrement au voisinage des interfaces, nous avons la possibilité d'introduire un profil de concentration le long de la multicouche (dans la direction de croissance des échantillons), ce qui permet de modéliser chaque plan atomique par un alliage bidimensionnel de composition variable A_xB_{1-x}. Nous avons considéré des profils de concentration réalistes ou au contraire "idéalisés" afin d'étudier l'influence de la composition de l'interface sur les propriétés magnétiques. Le choix et les caractéristiques des différents profils de concentration utilisés seront donnés au chapitre 4 pour l'étude des multicouches Fe/Dy et au chapitre 5 pour l'étude des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$.

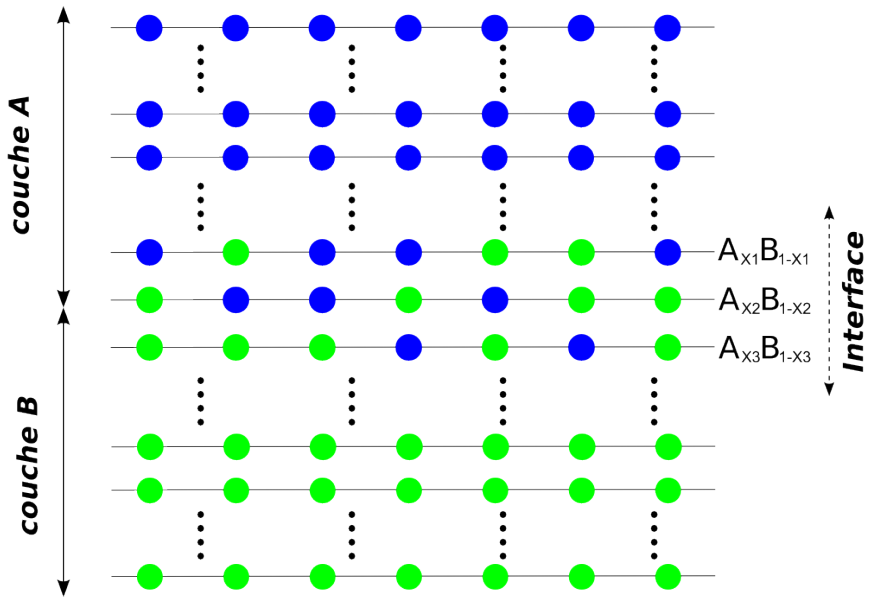

FIGURE 2.1 – Représentation schématique d'une multicouche A_mB_n avec une interface diffuse.

Les conditions de bords sont susceptibles de jouer un rôle sur les propriétés magnétiques obtenues. Dans un système de taille finie avec conditions de bords libres, les atomes de surface ont un environnement différent des atomes de "coeur" car il leur manque des voisins. La direction des moments magnétiques en surface peut donc être différente de celle qu'ils auraient s'il n'y avait pas de dissymétrie de leur environnement (surtout s'il y a de la frustration magnétique). Dans l'étude des systèmes périodiques, le choix des conditions aux limites périodiques s'impose sauf dans le cas où la frustration magnétique pourrait conduire à des structures magnétiques dont la périodicité est incommensurable avec celle du réseau. Dans notre cas, chaque plan atomique étant non frustré puisque les interactions d'échange sont limitées aux premiers voisins, nous avons toujours choisi des conditions aux limites périodiques dans les plans (Oxy). Nous avons choisi des conditions de bords libres suivant la direction (Oz) (figure 2.2).

2.1.2 Modèle de spins

Il existe plusieurs modèles de spins classiques comme par exemple le modèle d'Ising dans lequel le spin ne peut prendre que deux orientations ("up" ou "down"), ou le modèle XY dans lequel le spin est autorisé à prendre n'importe quelle orientation dans le plan (Oxy). Ce dernier modèle, encore appelé modèle planaire de Heisenberg, correspond à une anisotropie planaire extrême tandis que le modèle d'Ising correspond à une anisotropie uniaxiale extrême.

Le modèle que nous avons choisi dans le cadre de cette étude est le modèle de spins de Heisenberg [Heisenberg 1928] pour lequel toutes les directions de l'espace sont possibles. Chaque spin $\mathbf{S}_i$ est un vecteur à trois composantes (S_x, S_y, S_z).

L'énergie d'échange entre deux moments cinétiques de spins dans le cadre de ce modèle est alors :

$$E_{ij} = -J_{ij}(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j), \tag{2.1}$$

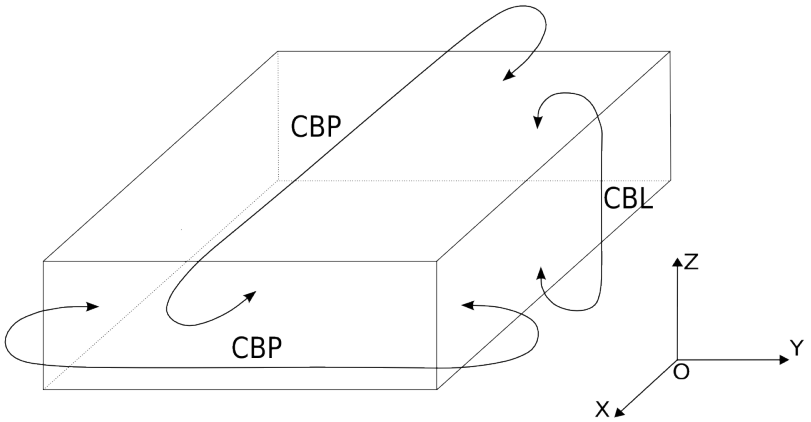

FIGURE 2.2 – Illustration des conditions aux limites de l'échantillon : conditions de bords périodiques (CBP) dans le plan (Oxy) et conditions de bords libres dans la direction de croissance des échantillons (Oz).

où J_{ij} représente l'intégrale d'échange entre les atomes i et j.

Les spins $\mathbf{S}_i$ sont reliés aux moments magnétiques des atomes i par :

$$\boldsymbol{\mu}_i = -\mathrm{g}_i \mu_\mathrm{B} \mathbf{S}_i \quad \text{si l'atome } i \text{ est un MT,} \tag{2.2}$$

$$\boldsymbol{\mu}_i = -\frac{\mathrm{g}_i}{\mathrm{g}_i - 1} \mu_\mathrm{B} \mathbf{S}_i \quad \text{si l'atome } i \text{ est une TR,} \tag{2.3}$$

où g_i est le facteur de Landé de l'atome i et μ_B le magnéton de Bohr.

En effet, dans le cas d'une terre-rare, il est possible d'exprimer le moment cinétique de spin en fonction du moment cinétique total selon :

$$(\mathrm{g}_\mathrm{TR} - 1)\mathbf{J}_\mathrm{TR} = \mathbf{S}_\mathrm{TR}. \tag{2.4}$$

Comme de Gennes l'a proposé [de Gennes 1959], l'énergie d'échange 2.1 dans le cas des TR devient alors :

$$E_{ij} = -J_{ij}(\mathrm{g}_\mathrm{TR} - 1)^2(\mathbf{J}_i \cdot \mathbf{J}_j). \tag{2.5}$$

Nous avons choisi ce modèle car il est établi que les multicouches et alliages amorphes Fe/TR et en particulier Fe/Dy présentent une structure spérimagnétique dans laquelle les moments magnétiques des atomes de fer et de dysprosium ne sont pas nécessairement colinéaires. Dès lors, il est nécessaire de laisser a priori toutes les orientations possibles pour les moments magnétiques de fer et de dysprosium. De plus, le choix du modèle de Heisenberg permettra d'étudier l'influence d'un terme d'anisotropie magnétique dans le hamiltonien sur les grandeurs magnétiques et sur l'orientation des moments magnétiques. Enfin, ce modèle est le plus pertinent pour l'étude des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ puisque nous nous intéresserons en particulier au développement des parois d'interface.

Harris et *al.* ont montré que ce modèle était particulièrement bien adapté pour décrire le comportement magnétique de multicouches MT-TR [Harris 1973], et Sakurai et *al.* ont montré que le système de spins de Heisenberg se prêtait favorablement à l'étude de systèmes à base de métaux de transition [Sakurai 1994].

2.1.3 Hamiltonien du système

L'énergie magnétique totale du système est la somme de différentes contributions : l'énergie d'échange, l'énergie d'anisotropie magnétique et l'énergie Zeeman.

2.1.3.1 Energie d'échange

L'énergie d'échange totale est donnée par :

$$E_{\text{ech}} = -\sum_{<i,j>} J_{ij}(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) = -\sum_{<i,j>} J_{ij}(S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + S_i^z S_j^z). \tag{2.6}$$

Dans le cas des multicouches Fe/Dy, les interactions d'échange J_{ij} sont définies par des distributions gaussiennes autour d'une valeur moyenne $< J >$ avec une largeur caractéristique de la distribution notée ΔJ comme l'illustre la figure 2.3. Le paramètre ΔJ correspond en fait à l'intervalle contenant 99% de la population, c'est-à-dire à $< J > \pm 3\sigma$.

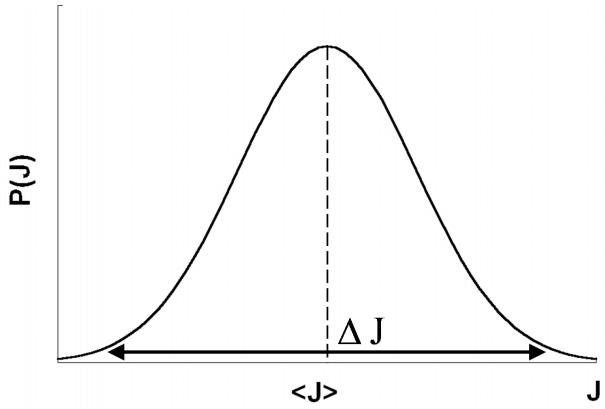

FIGURE 2.3 – Représentation schématique de la distribution gaussienne des interactions d'échange autour de leur valeur moyenne.

Les interactions d'échange et les énergies sont exprimées en Kelvin (K), la conversion des Kelvin en Joules se faisant en multipliant les valeurs des J_{ij} et des énergies par la constante de Boltzmann ($k_{\text{B}} = 1,38054 \times 10^{-23}\text{J} \cdot \text{K}^{-1}$).

2.1.3.2 Energie d'anisotropie

Dans l'étude préliminaire de ce travail (chapitre 3), nous n'avons pas introduit de terme d'anisotropie magnétique dans le Hamiltonien classique de notre modèle afin d'observer tout d'abord l'influence des paramètres magnétiques et des profils de concentration sur les propriétés étudiées. Par la suite, à partir du chapitre 4, afin de rendre compte de l'existence d'une

anisotropie magnétique macroscopique, nous avons introduit dans le Hamiltonien un terme d'anisotropie de type "ion-simple" sur les sites de TR. L'énergie d'anisotropie totale s'exprime alors selon :

$$E_a = -\sum_i D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{n}_i)^2, \tag{2.7}$$

où D_i représente le coefficient d'anisotropie local de l'atome i et $\mathbf{n}_i$ est un vecteur unitaire indiquant la direction d'anisotropie de l'atome i. Le signe du coefficient D_i définit le type d'anisotropie :

- si $D_i > 0$, l'énergie d'anisotropie est minimale lorsque le spin $\mathbf{S}_i$ s'oriente parallèlement à l'axe local de facile aimantation $\mathbf{n}_i$ (anisotropie uniaxiale) ;
- si $D_i < 0$, l'énergie d'anisotropie est minimale (nulle) lorsque le spin $\mathbf{S}_i$ s'oriente suivant une direction perpendiculaire à l'axe local de facile aimantation $\mathbf{n}_i$ (anisotropie planaire).

2.1.3.3 Energie Zeeman

Nous souhaitons également étudier l'évolution des propriétés magnétiques sous l'influence d'un champ magnétique extérieur afin de confronter nos résultats de simulation numérique aux résultats expérimentaux. Nous devons alors introduire un terme d'interaction Zeeman sous la forme :

$$E_{\mathrm{Z}} = -\mu_0 \mathbf{H} \cdot \sum_i \mathbf{m}_i, \tag{2.8}$$

où $\mathbf{m}_i$ est le moment magnétique de l'atome i et $\mathbf{H}$ est l'excitation magnétique appliquée.

2.1.3.4 Energie magnétique totale

L'énergie magnétique totale tenant compte des différentes contributions est finalement la somme de ces termes successifs :

$$E = -\sum_{<i,j>} J_{ij}(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) - \sum_i D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{n}_i)^2 - \mu_0 \mathbf{H} \cdot \sum_i \mathbf{m}_i. \tag{2.9}$$

2.2 Simulations numériques

2.2.1 Généralités sur la méthode Monte Carlo

Le calcul des grandeurs magnétiques s'effectue au moyen de simulations numériques Monte Carlo (MC) dans l'ensemble canonique. On utilisera la méthode de recuit simulé [Hoare 1979, Kirkpatrick 1983, Wille 1985], 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 [Heermann 1990, Landau 2000, Metropolis 1953]. La simulation débute initialement à haute température dans la phase paramagnétique à partir d'une configuration magnétique initiale aléatoire.

2.2.2 Théorie

La méthode Monte Carlo fait partie des méthodes stochastiques. Elle est basée sur le principe des chaînes de Markov. Cette méthode consiste à générer une suite de n configurations $(X_1, ..., X_n)$ pour laquelle 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 Ω et correspond à un ensemble de N spins $X = (\mathbf{S}_1, ..., \mathbf{S}_j, ..., \mathbf{S}_N)$.

La probabilité de transition $W(X \to X')$ de l'état X vers l'état X' doit satisfaire la relation dite "condition de stationnarité" :

$$\forall X', X \in \Omega, \sum_{X'} W(X', X)P(X') = \sum_{X'} W(X, X')P(X). \tag{2.10}$$

Cette relation exprime l'égalité des probabilités de transition d'un état X vers un état X' et d'en partir. Dans les faits, cette condition (relation 2.10) est généralement remplacée par une autre plus restrictive appelée "condition de réversibilité microscopique" :

$$W(X', X)P(X') = W(X, X')P(X). \tag{2.11}$$

2.2.3 Simulation des propriétés magnétiques à l'équilibre

2.2.3.1 Algorithme de Metropolis

L'algorithme de Metropolis est un algorithme particulier de la méthode Monte Carlo dans 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) [Metropolis 1953]. La distribution de probabilité à l'équilibre, à la température T, est alors :

$$P_T(X) = \frac{e^{-E(X)/k_\mathrm{B}T}}{\sum_X e^{-E(X)/k_\mathrm{B}T}}, \tag{2.12}$$

et la condition de réversibilité microscopique conduit à :

$$\frac{W(X \to X')}{W(X' \to X)} = \exp\Big(\frac{-\Delta E}{k_\mathrm{B}T}\Big), \tag{2.13}$$

avec $\Delta E = E(X') - E(X)$.

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

$$X = (\mathbf{S}_1, ..., \mathbf{S}_i, ..., \mathbf{S}_N) \to X' = (\mathbf{S}_1, ..., \mathbf{S'}_i, ..., \mathbf{S}_N).$$

Le choix de Metropolis consiste à prendre $W(X \to X') = \min\Big\{1, \exp\big(\frac{-\Delta E}{k_\mathrm{B}T}\big)\Big\}$ qui vérifie la relation 2.13.

Il en résulte que :

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

• **Organigramme de l'algorithme de Metropolis**

1. Détermination d'une configuration magnétique initiale aléatoire.
2. Choix aléatoire d'un spin $\mathbf{S}_i$ et tirage aléatoire d'une nouvelle orientation $\mathbf{S}_i^{'}$.
3. Calcul de la variation d'énergie associée à la rotation $(\mathbf{S}_i \rightarrow \mathbf{S}_i^{'})$:

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

4. Calcul de la probabilité de la transition $W(X \rightarrow X') = \min\Big\{1, \exp\big(\frac{-\Delta E}{k_B T}\big)\Big\}$.
5. Tirage d'un nombre aléatoire r compris entre 0 et 1 :
   - si $r \leq W(X \rightarrow X')$, la transition est acceptée et il y a réorientation du spin de l'atome i ;
   - si $r > W(X \rightarrow X')$, la transition est refusée et le spin $\mathbf{S}_i$ de l'atome i n'est pas modifié.
6. Retour à l'étape 2.

Si le système contient N spins, les opérations 2 à 6 sont alors répétées N fois afin d'examiner en moyenne chacun des spins : ceci constitue une itération ou un **pas Monte Carlo**. Dans notre modèle, les spins sont examinés aléatoirement et non dans un ordre précis afin de ne pas introduire d'anisotropie artificiellement.

2.2.3.2 Méthode du recuit simulé

La technique du recuit simulé a été introduite par Kirkpatrick et *al.* [Kirkpatrick 1983]. Elle consiste à appliquer l'algorithme de Metropolis à chaque température, c'est-à-dire à suivre l'évolution d'un système (magnétique dans notre cas) lorsque l'on fait décroître la température, et à déterminer les configurations magnétiques qui minimisent l'énergie du système.

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 ΔE) 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. Le système se met donc en ordre progressivement lorsque la température décroît et finit par se figer dans un état stable (ou métastable) lorsque la température tend vers 0K. L'intérêt de la technique du recuit simulé est de refroidir lentement le système ce qui permet en principe au système 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 (configuration d'énergie minimale), 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 2.4).

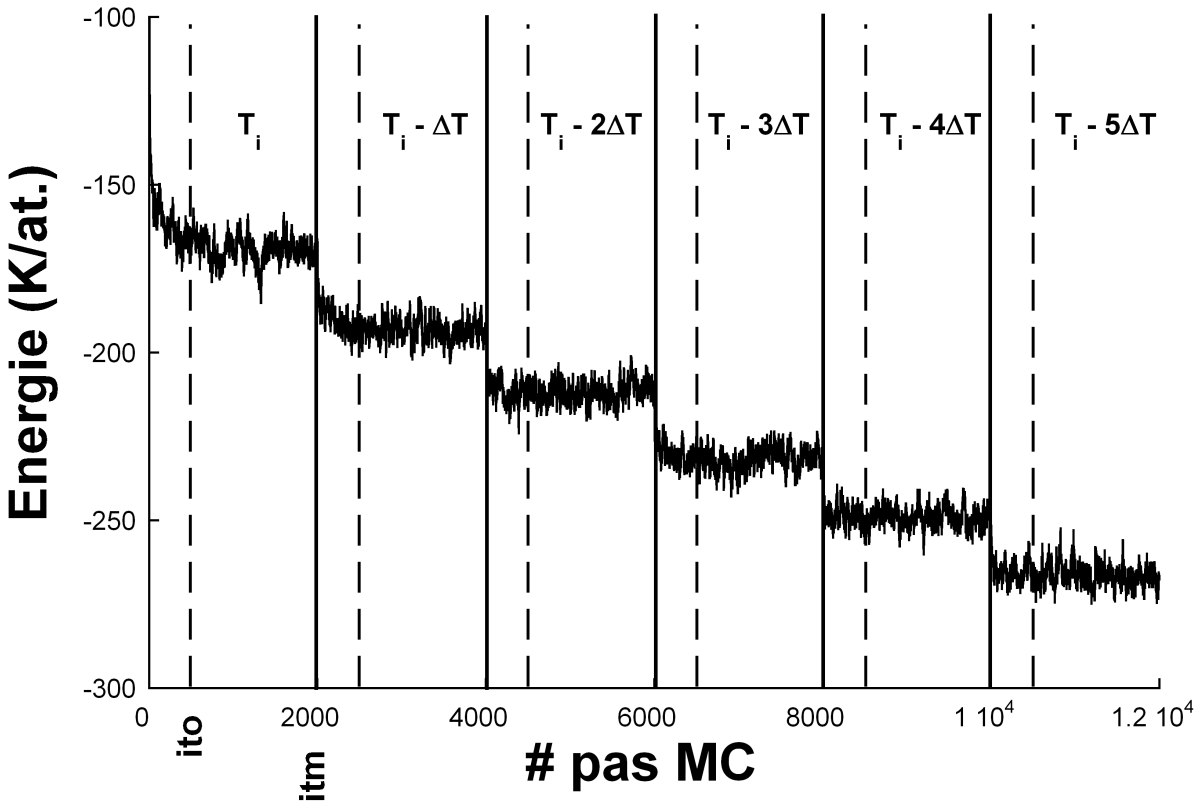

FIGURE 2.4 – Représentation schématique de la variation d'énergie au cours du processus de recuit simulé. ito correspond au nombre d'itérations consacrées à la thermalisation, itm est le nombre total d'itérations, la température décroît de ΔT.

Evolution en température et nombre d'itérations

Les paramètres d'évolution en température (la température initiale T_i et le pas en température ΔT) doivent être correctement choisis de façon à ce que le système converge vers l'une des configurations les plus stables à basse température. La température initiale doit être suffisamment élevée pour que toutes les configurations locales soient équiprobables. On impose généralement une température initiale supérieure à la température de transition magnétique pour ne pas bloquer le système dans un minimum local de l'énergie.

Le paramètre le plus important correspond au choix du pas en température. En effet, si la vitesse de refroidissement est trop élevée, on applique au système un phénomène de trempe, on le gèle ainsi dans une configuration correspondant à un minimum relatif d'énergie différent de l'état fondamental.

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 et est tel que $\Delta T \leq 10\mathrm{K}$ afin d'avoir un bon compromis entre un refroidissement suffisamment lent et des temps de calculs raisonnables. Si un 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. En particulier, si l'on désire étudier l'évolution du système avec une grande précision autour de la température de transition dans le cas de l'étude des

phénomènes critiques par exemple, on utilisera un grand nombre de pas MC mais sur une faible gamme de températures autour de la transition ($T_\mathrm{i} > T_\mathrm{C} > T_\mathrm{f}$). Au contraire, si l'on souhaite uniquement déterminer l'état stable à très basse température, on balayera une large gamme de températures et un refroidissement lent mais avec un relativement faible nombre d'itérations à chaque température.

2.2.3.3 Calcul des grandeurs thermodynamiques à chaque température

On se place dans l'hypothèse ergodique, c'est-à-dire que les configurations magnétiques sont explorées au cours de la simulation avec une probabilité égale à celle donnée par la densité de probabilité d'équilibre $P_T(X)$. Les moyennes statistiques ($\langle\rangle_T$) peuvent alors être estimées par le calcul des moyennes temporelles.

- **Energie interne magnétique par atome :**

$$U(T) = \frac{1}{N}\langle E\rangle_T \approx \frac{1}{\mathrm{itm}-\mathrm{ito}} \sum_{\mathrm{it}=\mathrm{ito}+1}^{\mathrm{itm}} \frac{E(\mathrm{it})}{N}, \tag{2.14}$$

  où $E(\mathrm{it})$ est l'énergie magnétique totale à la fin de la it $^{\mathrm{ème}}$ itération à la température T.
- **Vecteur moment magnétique par atome :**

$$\mathbf{m}(T) = \langle \boldsymbol{\mu}\rangle_T = \frac{1}{\mathrm{itm}-\mathrm{ito}} \sum_{\mathrm{it}=\mathrm{ito}+1}^{\mathrm{itm}} \boldsymbol{\mu}(\mathrm{it}), \tag{2.15}$$

  où $\boldsymbol{\mu}(\mathrm{it})$ désigne le moment magnétique par atome (exprimé en magnétons de Bohr) du système à la fin de la it $^{\mathrm{ème}}$ itération à la température T :

$$\boldsymbol{\mu}(\mathrm{it}) = -\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} \boldsymbol{\mu}_i. \tag{2.16}$$

  où $\boldsymbol{\mu}_i$ est le moment magnétique (exprimé en magnétons de Bohr) de l'atome i tel que :

$$\boldsymbol{\mu}_i = -\mathrm{g}_i \mathbf{S}_i \quad \text{si l'atome } i \text{ est un MT,} \tag{2.17}$$

$$\boldsymbol{\mu}_i = -\frac{\mathrm{g}_i}{\mathrm{g}_i - 1}\mathbf{S}_i \quad \text{si l'atome } i \text{ est une TR.} \tag{2.18}$$

- **Aimantation par atome :**
  Nous définissons l'aimantation par atome comme étant la moyenne de la norme du moment magnétique par atome (exprimé en magnétons de Bohr) :

$$M(T) = \langle \mu\rangle_T = \left\langle \left[\left(\mu_x\right)^2 + \left(\mu_y\right)^2 + \left(\mu_z\right)^2 \right]^{1/2} \right\rangle_T. \tag{2.19}$$

- **Chaleur spécifique par atome :**
  La chaleur spécifique par atome est déduite des fluctuations de l'énergie par atome E à la température T :

$$C(T) = \frac{dU(T)}{dT} = \frac{\langle E^2\rangle_T - \langle E\rangle_T^2}{N k_\mathrm{B} T^2}. \tag{2.20}$$

– **Susceptibilité par atome en champ nul :**
La susceptibilité magnétique par spin en champ nul est déduite des fluctuations de la norme du moment magnétique par atome à la température T :

$$\chi(T) = \lim_{H\to 0} \frac{1}{\mu_0}\left(\frac{\partial M}{\partial H}\right)_T = \frac{\left\langle \mu^2 \right\rangle_T - \left\langle \mu \right\rangle_T^2}{k_{\mathrm{B}}T} \times N. \tag{2.21}$$

2.2.4 Simulation de cycles d'hystérésis

2.2.4.1 Méthode Monte Carlo quantifiée en temps

Cette méthode a été développée dans le but d'étudier le temps de relaxation d'un moment magnétique sous champ magnétique, ce qui nécessite d'établir une correspondance entre le nombre d'itérations MC et le temps physique. Elle a été appliquée à l'étude du phénomène de nucléation (modèle d'Ising) [Nowak 1999], à la détermination de cycles d'hystérésis thermiquement activés pour des matériaux présentant des propriétés magnéto-optiques [Lyberatos 1996], ou encore à des systèmes de spins en interaction [Hinzke 2000*b*, Hinzke 2000*a*].

La méthode Monte Carlo basée sur l'algorithme de Metropolis standard décrite ci-dessus est bien adaptée à l'étude des systèmes à l'équilibre thermodynamique. En effet, elle permet a priori d'explorer toutes les configurations possibles en ne tenant pas compte des barrières d'énergie à franchir lors de la rotation individuelle de chaque spin. Cette méthode standard n'est donc pas adaptée a priori 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 MC quantifiée en temps (ou méthode du cône) [Chubykalo 2003, Nowak 2000, Smirnov-Rueda 2000]. Cette méthode présente l'intérêt de permettre l'étude de la dynamique de l'aimantation sur des temps assez longs contrairement à la dynamique de Langevin [Brown 1963], car 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 MC et le temps physique (equation 2.22).

$$\delta t = \frac{R^2(1+\alpha^2)\mu_{\mathrm{S}}}{20 k_{\mathrm{B}} T \alpha \gamma} \tag{2.22}$$

où R est le rayon du cône, α , μ_{S} est le moment magnétique à saturation, γ est la rapport gyromagnétique

Des méthodes Monte Carlo proposant des essais de rotation d'un angle faible autour de la direction initiale d'un spin ont déjà été proposées [Binder 1978] dans le but d'augmenter l'efficacité de l'algorithme de Metropolis à basse température. En effet, en proposant une nouvelle orientation aléatoire, la variation d'énergie associée est généralement grande et la transition est souvent refusée à basse température. Afin d'améliorer l'efficacité de l'algorithme, on propose alors une nouvelle orientation dans un cône d'angle faible autour de la position initiale, ce qui permet d'obtenir des variations d'énergie plus petites et donc d'accepter plus souvent les transitions proposées.

Cet algorithme consiste à proposer la rotation d'un seul spin à la fois, cependant la nouvelle orientation proposée n'est plus choisie aléatoirement dans tout l'espace. La nouvelle orientation $(\mathbf{S}_i')$ du spin $\mathbf{S}_i$ au site i est alors déterminée en deux étapes (figure 2.5) :

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 :

$$\mathbf{S}_i' = \frac{\mathbf{S}_i + \mathbf{u}}{||\mathbf{S}_i + \mathbf{u}||}. \tag{2.23}$$

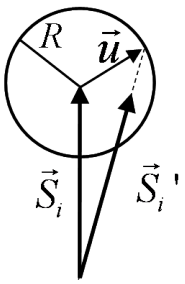

FIGURE 2.5 – Représentation schématique du tirage aléatoire de la nouvelle orientation $\mathbf{S}_i'$ du spin $\mathbf{S}_i$ à l'intérieur d'un cône.

L'angle du cône est introduit par le paramètre numérique R afin de permettre des rotations plus ou moins importantes qui rendent compte de l'agitation thermique. A chaque essai de rotation d'un spin, la nouvelle orientation (aléatoire) est autorisée dans un intervalle $\theta_0 \pm \delta$, où θ_0 est l'angle azimutal du spin avant l'essai de rotation. Comme précédemment la rotation est acceptée avec la probabilité $W(X \to X') = \min\Big\{1, \exp\big(\frac{-\Delta E}{k_\mathrm{B}T}\big)\Big\}$.

2.2.4.2 Cycles d'hystérésis

La simulation MC de cycles d'hystérésis consiste à suivre l'évolution de la composante suivant le champ appliqué de l'aimantation du système en fonction de l'intensité et de la direction du champ magnétique à une température fixée. On débute avec une configuration aléatoire des moments magnétiques du système et on applique le champ magnétique d'intensité maximale afin de partir de la structure stable sous champ. Puis, on diminue l'intensité du champ magnétique d'un pas constant (ΔB). Chaque pas MC suit l'organigramme suivant :

1. Choix aléatoire d'un spin $\mathbf{S}_i$.
2. Choix aléatoire d'un vecteur $\mathbf{u}$.
3. Calcul de la nouvelle orientation $\mathbf{S}_i' = \frac{\mathbf{S}_i + \mathbf{u}}{||\mathbf{S}_i + \mathbf{u}||}$.
4. Calcul de la variation d'énergie associée à la transition $(\mathbf{S}_i \to \mathbf{S}_i')$:

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

5. Calcul de la probabilité de la transition $W(X \to X') = \min\Big\{1, \exp\big(\frac{-\Delta E}{k_\mathrm{B}T}\big)\Big\}$.
6. Tirage d'un nombre aléatoire r compris entre 0 et 1 :
   – si $r \leq W(X \to X')$, la transition est acceptée et il y a réorientation du spin de l'atome i ;

– si $r > W(X \rightarrow X')$, la transition est refusée et le spin $\mathbf{S}_i$ de l'atome i n'est pas modifié.

7. Retour à l'étape 1.

On effectue cette procédure N fois (où N est le nombre de spins du système) à chaque pas MC.

Le choix du nombre de pas MC à chaque valeur de champ doit laisser suffisamment de temps aux moments magnétiques pour passer d'un état métastable (ou stable) à un autre état métastable (ou stable) lorsque le champ varie de ΔB.

Nous allons ci-dessous illustrer deux cas typiques extrêmes pour lesquels la méthode standard conduit à des résultats faux.

Dans un système de spins sans interaction avec anisotropie uniaxiale, chaque moment magnétique "voit" une barrière d'anisotropie magnétique indépendante des orientations des autres. Le retournement de chaque moment magnétique à 0K intervient donc pour une valeur unique du champ magnétique $B_C = \frac{2DS^2}{M_S}$(modèle de Stoner-Wohlfarth) où D est la constante d'anisotropie uniaxiale, S est la valeur du spin et M_S est l'aimantation à saturation. L'algorithme de Metropolis standard, qui propose des rotations dans tout l'espace, permet donc d'accepter des retournements des moments magnétiques correspondant à $\Delta E > 0$ sans voir la barrière d'anisotropie. Le résultat de la simulation dépend alors fortement du nombre de pas MC même à 0K et peut conduire à $B_C = 0$ (figure 2.6). Il faut donc utiliser la méthode MC quantifiée en temps pour décrire une dynamique qui rend compte de l'existence des barrières d'énergies.

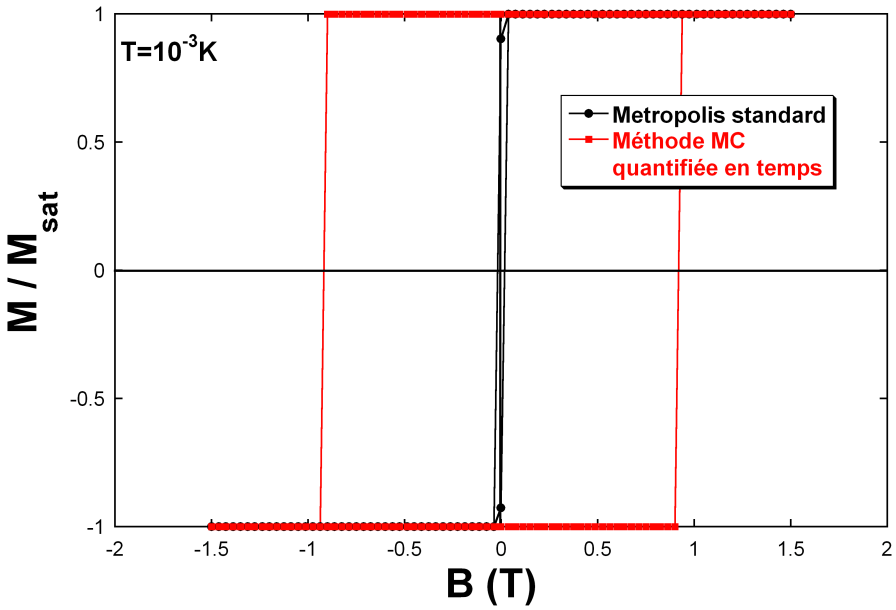

FIGURE 2.6 – Cycles d'hystérésis simulés avec l'algorithme de Metropolis standard et la méthode quantifiée en temps pour une assemblée de spins sans interaction à $T = 10^{-3}$K avec une anisotropie magnétique uniaxiale (nombre de pas MC = 2000+2000).

Pour un système de spins sans interaction dont le spin vaut $S = 2,5$, dont l'aimantation à saturation vaut $M_S = 10\mu_B$ et dont la constante d'anisotropie uniaxiale vaut $D = 0,5$K, la simulation conduit à la valeur du champ de retournement théorique de $B_C = \frac{2DS^2}{M_S} = 0,94$T.

Pour un système de spins en interaction, le franchissement de la barrière d'anisotropie ne peut se produire en raison des interactions d'échange. En effet, les rotations d'angles impor-

tants proposées par l'algorithme de Metropolis standard seront refusées systématiquement à basse température puisque l'énergie d'échange domine. Cependant, un grand nombre d'essais de rotation seront refusés et il faudra effectuer un grand nombre de pas MC pour parvenir à retourner l'aimantation du système. La méthode du cône est alors plus efficace puisqu'elle n'autorise que de petites rotations qui ont une probabilité importante de se réaliser. Nous illustrons cette situation par la figure 2.7 qui représente un cycle d'hystérésis simulé dans le cas d'un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ avec une anisotropie magnétique uniaxiale ($D_{Dy}/k_B = 1K$) sur les sites de Dy à $T = 1K$ effectués avec l'algorithme de Metropolis standard et la méthode quantifiée en temps. Pour ce système, le champ de retournement est $B_C = \frac{2X_{Dy}D_{Dy}S_{Dy}^2}{M_{ferrimagnetique}}$. Dans ce cas, nous avons $S_{Dy} = 2,5$ et $M_{ferrimagnetique} = 2,32\mu_B$.

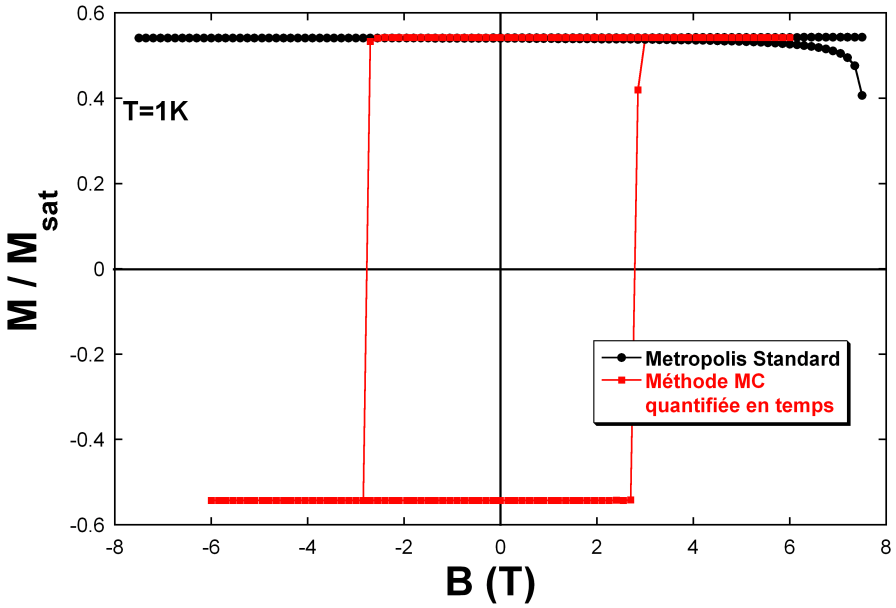

FIGURE 2.7 – Cycles d'hystérésis simulés avec l'algorithme de Metropolis standard et la méthode quantifiée en temps pour un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ avec une anisotropie magnétique uniaxiale sur les sites de Dy à $T = 1K$ (nombre de pas MC = 2000+10000).

Le cycle réalisé avec la méthode quantifiée en temps est caractéristique d'un comportement d'un échantillon à forte anisotropie uniaxiale (cycle carré) et dont la valeur du champ de retournement correspond à la valeur théorique du modèle de rotation uniforme de l'aimantation. La simulation effectuée avec l'algorithme de Metropolis standard ne donne pas lieu à un retournement de l'aimantation qui semble figée dans l'état saturé. Il faudrait augmenter considérablement le nombre de pas MC pour obtenir le retournement de l'aimantation [Ledue 2004].

2.2.5 Moyenne sur les configurations

Les systèmes étudiés ici sont chimiquement désordonnés et présentent également des interactions magnétiques désordonnées (anisotropie magnétique aléatoire et distribution gaussienne des interactions d'échange). Le résultat de la simulation sur un système de taille finie dépend donc de la configuration chimique, des distributions des axes d'anisotropie et des distributions des interactions d'échange, ce qui ne correspond pas à la réalité physique. Pour remédier à ce

problème, on réalise une moyenne des grandeurs physiques sur un grand nombre de configurations.

Ces simulations sont effectuées en utlisant la méthode du calcul parallèle et la bibliothèque MPI (Message Passing Interface). On modifie alors à chaque simulation le germe du générateur de nombres aléatoires, ce qui a pour conséquence de modifier les points suivants :

- configuration chimique de désordre initiale (répartition des atomes) ;
- valeur des différentes interactions d'échange ;
- directions d'anisotropie magnétique aléatoire.

Les paramètres initiaux communs restent constants pour chaque configuration. A l'issue du calcul, les grandeurs thermodynamiques sont moyennées sur l'ensemble des configurations de désordre réalisées.

Les calculs ont été effectués sur les calculateurs du Centre de Ressources Informatiques de Haute-Normandie (CRIHAN). Ils disposent de 176 processeurs Power5 d'une puissance théorique de 60Gflops/processeur (soixante milliards d'opérations en virgule flottante par seconde). La totalité du temps de calcul utilisé dans le cadre de cette thèse est d'environ 40000H monoprocesseur.

Chapitre 3

PROPRIETES MAGNETIQUES DES COUCHES MINCES ET MULTICOUCHES AMORPHES Fe-Dy SANS ANISOTROPIE MAGNETIQUE

Dans ce chapitre, nous présentons une étude préliminaire du système à base de Fe et de Dy sans anisotropie magnétique. Nous nous intéresserons dans un premier temps au comportement magnétique des systèmes purs en fer et en dysprosium afin d'ajuster les paramètres magnétiques (spins et interactions d'échange) utilisés dans les simulations aux données expérimentales. Puis, nous étudierons les propriétés magnétiques des alliages amorphes Fe_xDy_{1-x}. Enfin, nous terminerons par une étude de l'influence du profil de concentration dans les multicouches ferrimagnétiques Fe/Dy.

3.1 Modélisation des systèmes purs

Afin de modéliser au mieux les multicouches amorphes Fe/Dy nous avons tout d'abord entrepris l'étude des systèmes purs en Fe et en Dy afin d'ajuster les valeurs des spins et des interactions d'échange entre les moments magnétiques d'une même espèce chimique.

3.1.1 Valeurs des spins

Nous utiliserons les facteurs de Landé théoriques, $g_{Fe} = 2$ et $g_{Dy} = 4/3$, en accord avec ceux utilisés dans de nombreuses études d'alliages ou de multicouches Fe-TR (dont Fe-Dy) [Hansen 1991, Hatta 1985, Hwang 1997, Lassri 1996, Mimura 1976, Mimura 1978, Shan 1990*a*, Vogel 1995].

3.1.1.1 Le fer

En général, dans les composés métaux de transition - terres rares, le spin du MT décroît lorsque la concentration en TR augmente du fait de l'augmentation de l'hybridation des orbitales *3d* du MT et des orbitales *5d* de la TR (ex : $S_{Fe} = 1,1$ pour Gd_2Fe_{17} et $S_{Fe} = 0,75$ pour $GdFe_2$) [Brooks 1993, Duc 1997, Fleury-Frenette 2000, Franse 1993, Heiman 1976*b*]. De plus, la valeur du spin du fer dépend également de la nature de la terre rare constituant l'alliage (ex : $S_{Fe} = 0,75$ pour $GdFe_2$ et $S_{Fe} = 0,1$ pour YFe_2) [Lee 1975, Rhyne 1974]. Cependant, certains auteurs considèrent comme constante la valeur du spin de fer en fonction de la concentration, $S_{Fe} = 1,1$ [Hansen 1991], $S_{Fe} = 1$ [Chen 1986, Kittel 1972] ou encore $S_{Fe} = 0,735$ [Shan 1990*b*].

Notre système étant constitué d'un empilement de couches dans lequel la concentration moyenne en Fe peut varier plan par plan, nous avons choisi de prendre une valeur de spin de Fe qui dépend de la concentration locale en Fe (ou en Dy) dans le plan, en accord avec de nombreuses études d'alliages amorphes MT-TR [Gangulee 1978, Hansen 1989, Mansuripur 1986, Taylor 1977]. Nous utiliserons l'expression du spin de fer donnée par Heiman et *al.* [Heiman 1976*b*] dans le cas des alliages amorphes $Fe_{X_{Fe}}TR_{1-X_{Fe}}$:

$$S_{Fe}(X_{Fe}) = 1,1 - (1 - X_{Fe})\big[2,3 - 0,47(g_{TR} - 1)J_{TR}\big] \quad (\text{si} \quad X_{Fe} > 0,5), \tag{3.1}$$

où X_{Fe} est la concentration atomique en fer, g_{TR} est le facteur de Landé de la terre rare et J_{TR} est le moment cinétique total de la terre rare.

Dans notre cas où la terre rare est le dysprosium, l'expression du spin de fer devient :

$$S_{Fe}(X_{Fe}) = 1,1 - (1 - X_{Fe})\big[2,3 - 0,47(g_{Dy} - 1)J_{Dy}\big] \quad (\text{si} \quad X_{Fe} > 0,5), \tag{3.2}$$

avec $g_{Dy} = 4/3$ et $J_{Dy} = 15/2$, soit :

$$S_{Fe}(X_{Fe}) = 1,1 - 1,125(1 - X_{Fe}) \quad (\text{si} \quad X_{Fe} > 0,5). \tag{3.3}$$

Il en résulte que le moment magnétique de l'atome de Fe dépend de la concentration en Fe dans la structure selon :

$$\mathbf{m}_{Fe}(X_{Fe}) = -2\mu_B \mathbf{S}_{Fe}(X_{Fe}). \tag{3.4}$$

3.1.1.2 Le dysprosium

Le moment magnétique des terres rares est fortement localisé, le modèle de Heisenberg est donc approprié pour décrire les interactions entre les moments de TR. Leur moment magnétique est défini par :

$$\mathbf{m}_{TR} = -g_{TR}\mu_B \mathbf{J}_{TR} = -\frac{g_{TR}}{g_{TR} - 1}\mu_B \mathbf{S}_{TR}, \tag{3.5}$$

où $\mathbf{J}_{TR}$ représente le moment cinétique total de la terre rare.

Nous avons choisi d'utiliser les valeurs théoriques du moment de spin, du moment total et du facteur de Landé du Dy, soit $S_{Dy} = 5/2$, $J_{Dy} = 15/2$ et $g_{Dy} = 4/3$, ce qui correspond à un moment magnétique du dysprosium égal à $10\mu_B$.

Cette valeur est couramment utilisée pour l'étude des systèmes faisant intervenir le Dy, ainsi que pour les études en champ moyen [Mimura 1978, Tappert 1996]. Cependant, certains auteurs utilisent une valeur du moment magnétique du Dy inférieure à la valeur théorique du fait de l'arrangement non colinéaire des moments magnétiques dans un cône (ex : $g_{Dy}J_{Dy} = 7,3$ [Shan 1990*b*] ou $g_{Dy}J_{Dy} = 8$ [Hansen 1991]) mais cela revient alors à définir un moment effectif.

3.1.2 Fer pur et Dysprosium pur (amorphes)

Pour une valeur de spin S donnée, la température de Curie varie linéairement avec la valeur de l'interaction d'échange ($T_C \propto JS^2$) et l'on pourra ainsi choisir les valeurs moyennes $< J_{Fe-Fe} >$ et $< J_{Dy-Dy} >$ afin de retrouver les températures de Curie expérimentales des éléments purs "amorphes". Les simulations sont effectuées sur des systèmes de 14400 spins (18 plans de 800 atomes) avec 5000 pas MC de thermalisation et 10000 pas MC pour la moyenne des grandeurs thermodynamiques.

Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.4.2.2, il existe une grande disparité dans les valeurs des températures de Curie pour le fer amorphe. Nous nous baserons sur les valeurs des températures critiques $T_C = 260$K déterminée par Tappert et *al.* [Tappert 1996] et $T_C = 270$K proposée par Heiman et *al.* [Heiman 1976*b*] sur un système analogue au nôtre. Dans le cas du dysprosium amorphe, il n'existe, à notre connaissance, que peu de résultats expérimentaux qui font état de sa température critique et nous retiendrons donc la valeur de 110K relevée par Tappert et *al.* [Tappert 1996].

Comme nous l'avons mentionné précédemment, nous nous sommes inspiré des résultats expérimentaux de Heiman et *al.* pour décrire la variation des interactions d'échange et du spin de fer (S_{Fe}) avec la concentration en fer de notre système. Cependant, il nous a fallu ajuster

au mieux les interactions d'échange des composés purs afin d'obtenir les températures de Curie retenues pour notre modèle, tout en considérant la distribution gaussienne des interactions d'échange autour de leur valeur moyenne. Les valeurs $J_{\mathrm{Fe-Fe}} = 77\mathrm{K}$ et $J_{\mathrm{Dy-Dy}} = 6,5\mathrm{K}$, avec des largeurs de distributions de $\Delta J_{\mathrm{Fe-Fe}} = 100\mathrm{K}$ et $\Delta J_{\mathrm{Dy-Dy}} = 2\mathrm{K}$ (figure 3.1), nous permettent d'obtenir le maximum de susceptibilité magnétique à $280 \pm 10\mathrm{K}$ pour le fer et à $120 \pm 10\mathrm{K}$ pour le dysprosium (figure 3.2), en accord avec les températures critiques expérimentales.

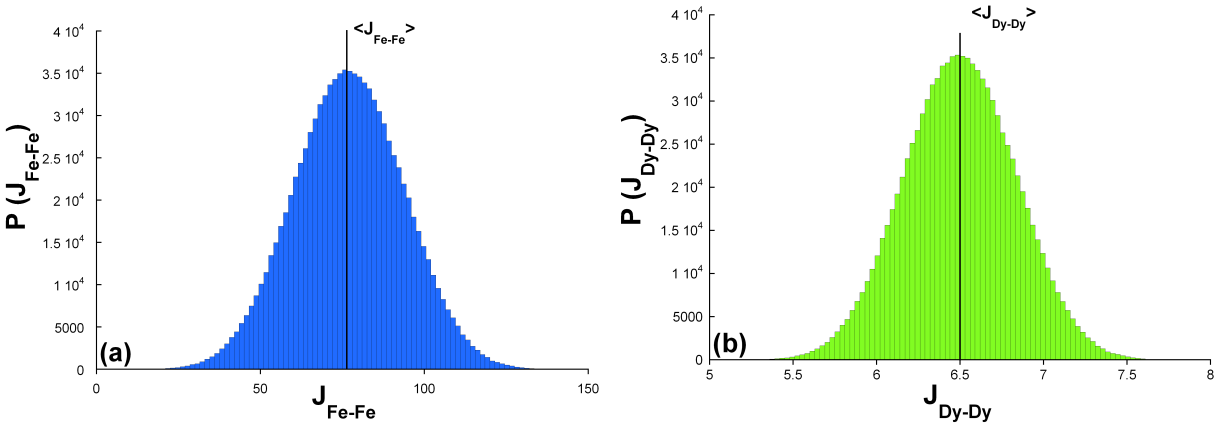

FIGURE 3.1 – Distributions des interactions d'échange ((a) $J_{\mathrm{Fe-Fe}}$; (b) $J_{\mathrm{Dy-Dy}}$).

Dans le cas du modèle de Heisenberg sur le réseau CFC avec interactions d'échange limitées aux premiers voisins ($Z = 12$), la température de transition est donnée par la relation [Ferer 1986, Nightingale 1988] :

$$\frac{k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{C}}}{J S^2} \simeq 3,160. \tag{3.6}$$

Nous obtenons avec cette expression des interactions estimées à 68K pour le Fe et 5,6K pour le Dy, qui sont en accord avec les interactions d'échange ajustées précédemment.

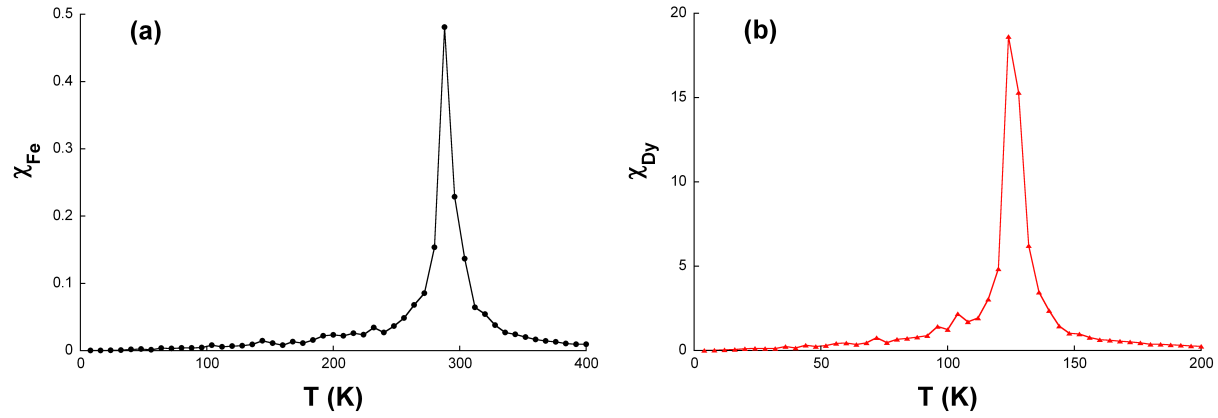

FIGURE 3.2 – Variation thermique de la susceptibilité magnétique obtenue en simulation MC pour les composés purs avec 14400 atomes ((a) Fe pur "amorphe", (b) Dy pur "amorphe").

Nous avons également représenté la variation thermique de l'énergie interne magnétique des composés monoatomiques (figure 3.3). Les énergies convergent vers la valeur de l'état fonda-

mental qui est l'état ferromagnétique lorsque la température tend vers 0K. Cette énergie par atome est donnée par :

$$E_{\text{fond}} = -\frac{< J > S^2}{2}\left[\frac{16}{18} \times 12 + \frac{2}{18} \times 8\right], \tag{3.7}$$

en tenant compte des deux surfaces libres où la coordinence est de 8 parmi les 18 plans considérés. Soit, dans le cas du fer, $E_{\text{fond}}^{\text{Fe}} = -538,32\text{K/atome}$ et dans le cas du dysprosium $E_{\text{fond}}^{\text{Dy}} = -234,72\text{K/atome}$.

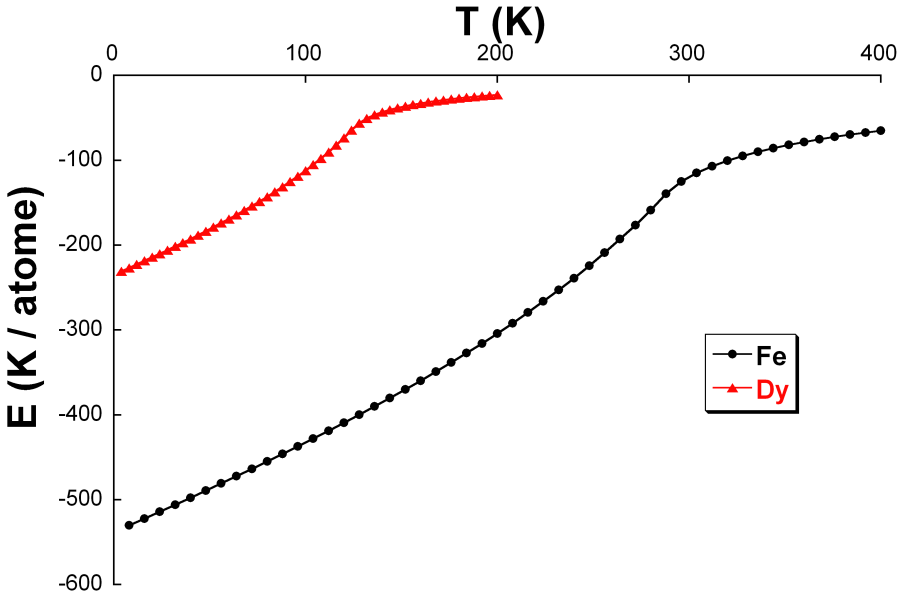

FIGURE 3.3 – Variation thermique de l'énergie interne magnétique obtenue en simulation MC pour les composés purs avec 14400 atomes.

Comme attendu, les courbes d'aimantation (figure 3.4) du fer et du dysprosium purs "amorphes" présentent une saturation à basse température correspondant à l'ordre ferromagnétique "parfait".

3.2 Alliages amorphes Fe-Dy en couches minces

Afin de décrire la variation des interactions d'échange en fonction de la concentration des éléments, nous utilisons la loi d'évolution proposée par Heiman [Heiman 1976*b*]. Nous avons adapté cette formule à notre modèle en multipliant les constantes par $5,1$ afin de retrouver les valeurs de $J_{\text{Fe-Fe}} = 77\text{K}$ et $J_{\text{Dy-Dy}} = 6,5\text{K}$ pour les systèmes purs. Nous utiliserons finalement les expressions des interactions d'échange suivantes (figure 3.5) :

$$J_{\text{Fe-Fe}}(X_{\text{Fe}}) = 77 + 449(1 - X_{\text{Fe}}) \quad \text{en K}, \tag{3.8}$$

$$J_{\text{Fe-Dy}}(X_{\text{Fe}}) = 8 - 198(1 - X_{\text{Fe}}) \quad \text{en K}, \tag{3.9}$$

$$J_{\text{Dy-Dy}}(X_{\text{Fe}}) = 6,5 \quad \text{en K}. \tag{3.10}$$

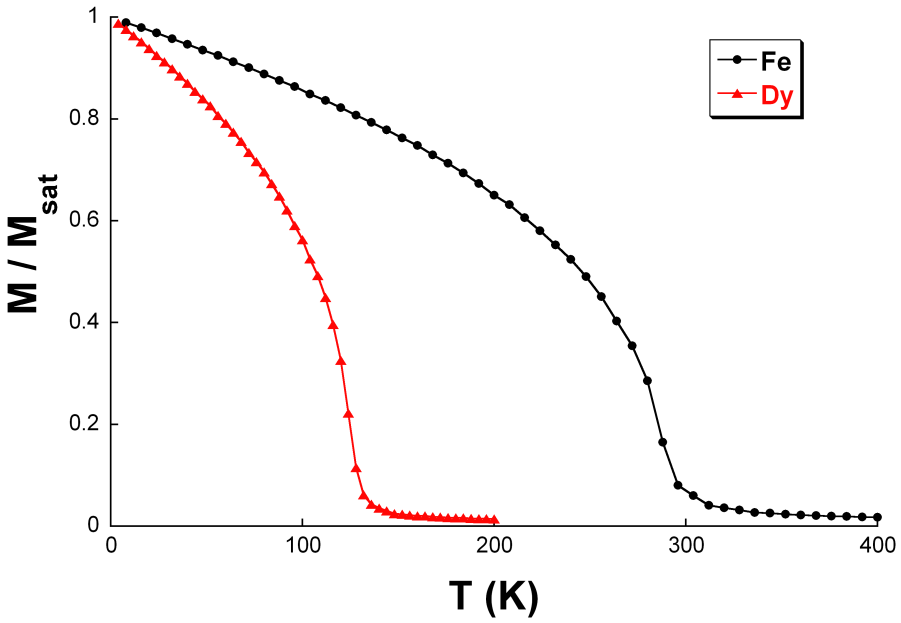

FIGURE 3.4 – Variation thermique de l'aimantation pour les composés purs obtenue en simulation avec 14400 atomes. (▲ pour le Dy pur "amorphe" et ● pour le Fe pur "amorphe").

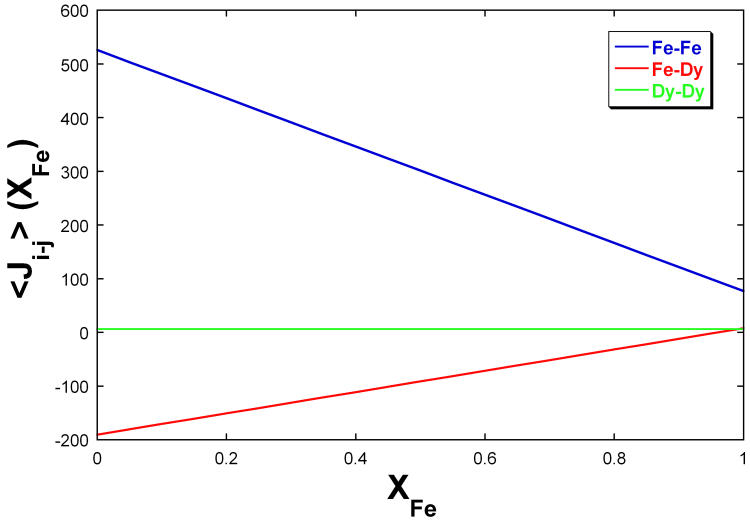

FIGURE 3.5 – Variation des interactions d'échange moyennes $J_{\mathrm{Fe-Fe}}$, $J_{\mathrm{Fe-Dy}}$ et $J_{\mathrm{Dy-Dy}}$ en fonction de la concentration en Fe.

De plus, nous avons fixé les largeurs des distributions gaussiennes des interactions d'échange à :

$$\Delta J_{\mathrm{Fe-Fe}} = 100\mathrm{K},$$

$$\Delta J_{\mathrm{Fe-Dy}} = 40\mathrm{K},$$

$$\Delta J_{\mathrm{Dy-Dy}} = 2\mathrm{K}.$$

Nous allons comparer avec les résultats expérimentaux [Hansen 1991, Mimura 1978, Veiller 1998] l'évolution de l'aimantation, de la température de Curie et de la température

de compensation en fonction de la concentration de l'alliage binaire $Fe_{X_{Fe}}Dy_{1-X_{Fe}}$, ce qui nous permettra de déterminer les domaines de composition dans lesquels chacun des deux éléments contrôle la mise en ordre.

3.2.1 Variation thermique de l'aimantation

Nous avons représenté sur la figure 3.6 la variation thermique simulée et expérimentale de l'aimantation globale d'alliages $Fe_{X_{Fe}}Dy_{1-X_{Fe}}$ pour une concentration en fer (X_{Fe}) variant de $0,56$ à $0,88$. Les courbes d'aimantation obtenues en simulation sont qualitativement en accord avec les courbes expérimentales obtenues par Hansen et *al.* [Hansen 1991].

En effet, nous pouvons observer dans les deux situations une diminution de l'aimantation à basse température lorsque la concentration en fer augmente (tant que $X_{Fe} < 0,85$) puisque, du fait des interactions antiferromagnétiques (J_{Fe-Dy}) entre les moments de fer et de dysprosium, ceux-ci vont s'orienter antiparallèlement et l'aimantation résultante, dominée par le Dy, va diminuer progressivement.

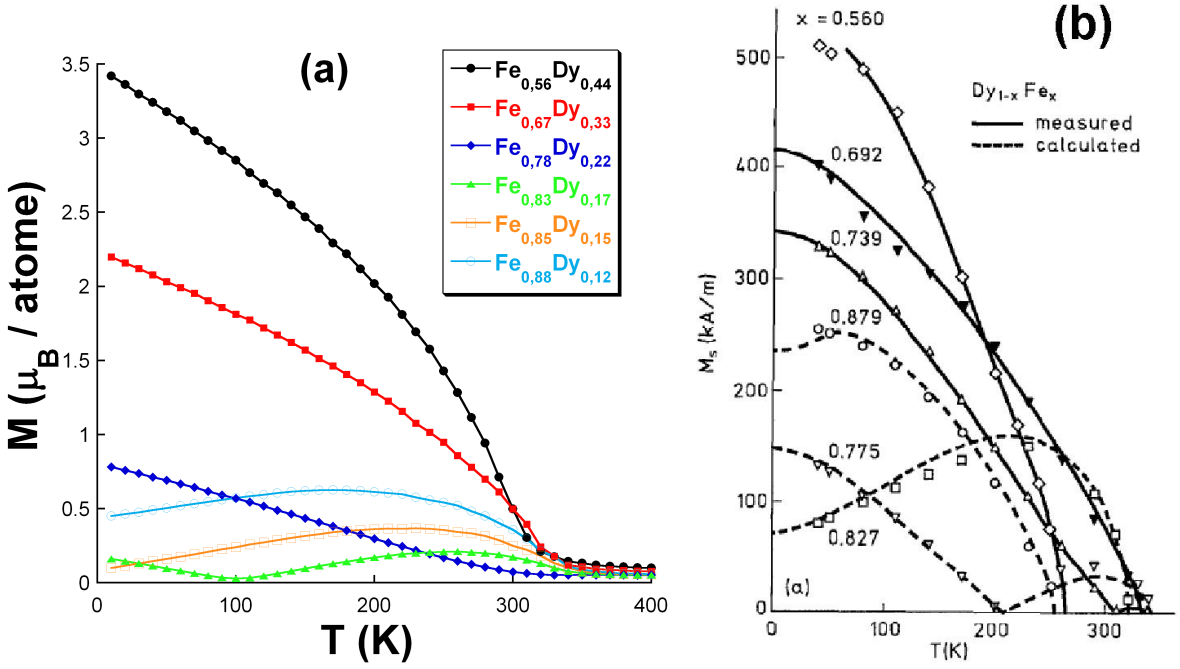

FIGURE 3.6 – Variation thermique de l'aimantation pour des alliages amorphes $Fe_{X_{Fe}}Dy_{1-X_{Fe}}$ ((a) simulation numérique (14400 atomes ; 5000+10000 pas MC), (b) résultats expérimentaux [Hansen 1991]).

La figure 3.7 montre l'évolution de l'aimantation globale et par sous-réseau pour différentes compositions de l'alliage. On constate que les sous-réseaux de Fe et de Dy s'ordonnent à des températures identiques, ce qui est logique du fait de la forte imbrication des deux sous-réseaux. Quelle que soit la concentration de l'alliage, l'aimantation globale à basse température tend vers la valeur de la configuration ferrimagnétique idéale, les moments magnétiques des deux sous-réseaux sont donc parfaitement antiparallèles.

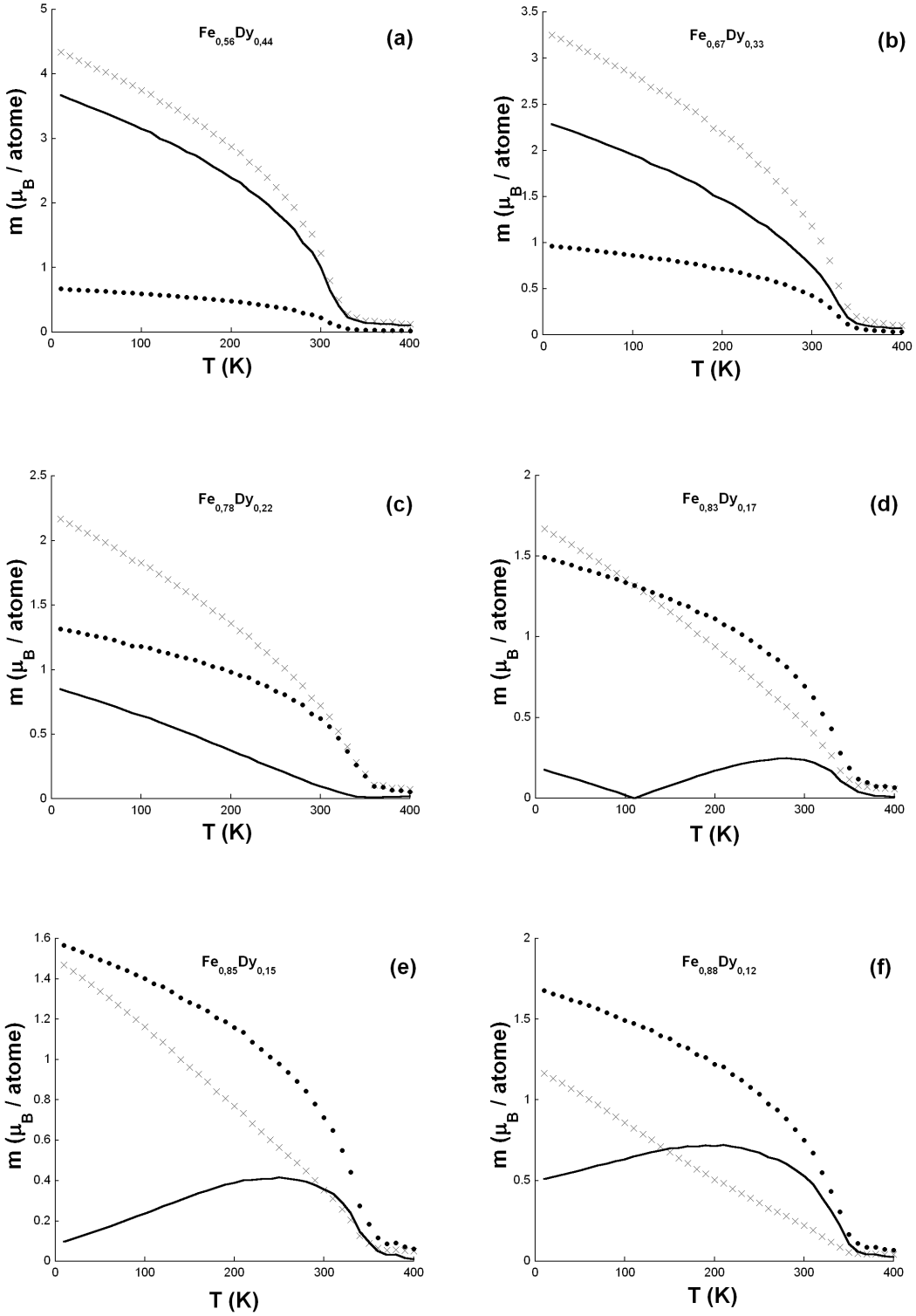

FIGURE 3.7 – Variation thermique de l'aimantation globale et par sous-réseaux (en μ_B/atome) obtenues en simulation MC pour différentes concentrations en fer dans l'alliage ($-$: aimantation globale ; $\bullet$: sous-réseau de Fe ; $\times$: sous-réseau de Dy).

On peut distinguer trois régimes en fonction de la concentration en fer :

- $X_{\mathrm{Fe}} < 0,78$: le sous-réseau de dysprosium domine à toute température (figure 3.7(a) et (b)) ;
- $0,78 \leq X_{\mathrm{Fe}} < 0,84$: il existe une compensation magnétique à température non nulle, le sous-réseau de fer domine à haute température et le sous-réseau de dysprosium domine à basse température (figure 3.7(c) et (d)) ;
- $X_{\mathrm{Fe}} \geq 0,84$: le sous-réseau de fer domine à toute température et l'aimantation du Dy varie linéairement sur toute la gamme de température (figure 3.7(e) et (f)).

3.2.2 Variation de la température de Curie

Nous avons reporté sur la figure 3.8 la variation de la température de Curie et de la température de compensation des alliages amorphes $\mathrm{Fe}_{X_{\mathrm{Fe}}}\mathrm{Dy}_{1-X_{\mathrm{Fe}}}$ en fonction de la concentration en fer. Nous avons ainsi comparé l'évolution des ces températures entre les valeurs trouvées dans la littérature [Hansen 1991, Mimura 1978] et nos résultats de simulations Monte Carlo.

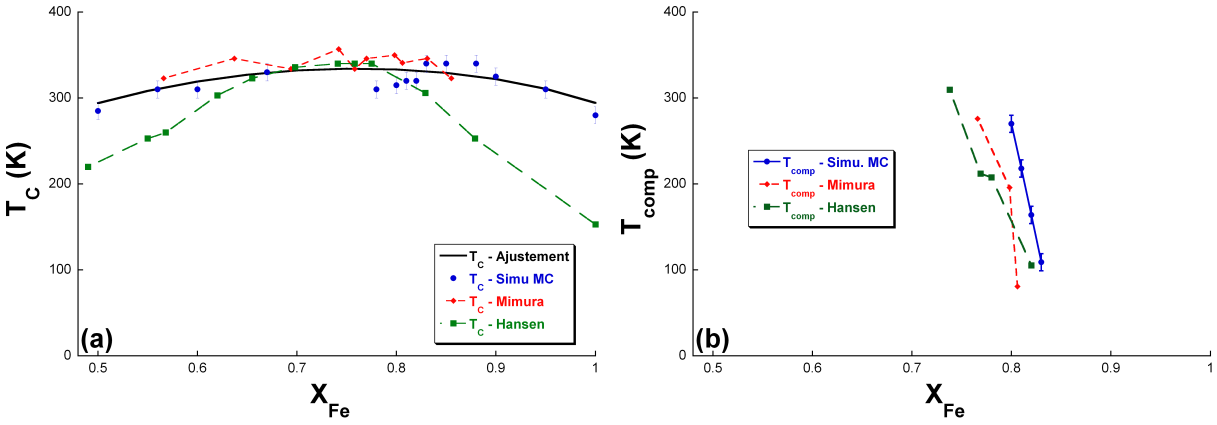

FIGURE 3.8 – Variation des températures de Curie (a) et de compensation (b) en fonction de la concentration en fer dans les alliages amorphes $\mathrm{Fe}_{X_{\mathrm{Fe}}}\mathrm{Dy}_{1-X_{\mathrm{Fe}}}$.

Sur la figure 3.8(a), la courbe en trait plein correspond à la température de Curie calculée à partir d'arguments de champ moyen sur un réseau CFC. L'expression de T_{C} est alors donnée par :

$$\begin{aligned} T_{\mathrm{C}} \approx \frac{3,16}{k_{\mathrm{B}}} \big(& p_{\mathrm{Fe-Fe}} J_{\mathrm{Fe-Fe}} S_{\mathrm{Fe}}(X_{\mathrm{Fe}})^2 \\ & + p_{\mathrm{Dy-Dy}} J_{\mathrm{Dy-Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2 \\ & + p_{\mathrm{Fe-Dy}} J_{\mathrm{Fe-Dy}} S_{\mathrm{Fe}}(X_{\mathrm{Fe}}) S_{\mathrm{Dy}} \big), \end{aligned} \tag{3.11}$$

où $p_{\mathrm{Fe-Fe}} = X_{\mathrm{Fe}}^2$, $p_{\mathrm{Dy-Dy}} = (1 - X_{\mathrm{Fe}})^2$ et $p_{\mathrm{Fe-Dy}} = 2X_{\mathrm{Fe}}(1 - X_{\mathrm{Fe}})$ correspondent respectivement à la proportion des liaisons Fe-Fe, Dy-Dy et Fe-Dy.

De plus, il est possible d'évaluer la valeur de la composition qui permet d'obtenir une compensation parfaite des aimantations des deux espèces chimiques à 0K à partir de l'expression suivante :

$$g_{Fe} S_{Fe}(X_{Fe}^{comp}) X_{Fe}^{comp} = g_{Dy} J_{Dy}(1 - X_{Fe}^{comp}). \quad (3.12)$$

Nous obtenons alors $X_{Fe}^{comp} = 0,84$ en accord avec Hansen et *al.* qui proposent $X_{Fe}^{comp} = 0,82$.

Nous remarquons tout d'abord qu'il y a un bon accord entres les valeurs expérimentales, les valeurs obtenues par simulation MC, et la valeur estimée par l'équation 3.11 des températures de Curie dans la gamme $0,5 \leq X_{Fe} \leq 0,85$. En effet, la température de Curie présente un maximum pour une concentration en fer de $0,75$, en accord avec Hansen qui prévoit un maximum de T_C pour $X_{Fe} \in [0,7; 0,8]$ pour les alliages amorphes Fe-TR [Hansen 1991].

De plus, l'évolution de la température de compensation est qualitativement en bon accord avec les résultats expérimentaux. En effet, on remarque que la température de compensation décroît rapidement lorsque la concentration en fer augmente.

Ce phénomène s'explique assez simplement par le fait qu'en augmentant la concentration de fer dans l'alliage, d'une part on diminue l'influence de l'interaction d'échange $J_{Fe-Dy} < 0$ et d'autre part on augmente le moment magnétique moyen du sous-réseau de fer ($m_{Fe} X_{Fe}$) au détriment de celui de Dy. Au-delà de la concentration de compensation, le moment magnétique moyen du sous-réseau de Dy n'est plus supérieur à celui du fer quelle que soit la température. En deçà de cette concentration, la température de compensation augmente lorsque la concentration en fer diminue.

En conclusion, notre étude des alliages amorphes homogènes $Fe_{X_{Fe}}Dy_{1-X_{Fe}}$ nous a permis de mettre en évidence que notre modèle permet de reproduire correctement les différents résultats expérimentaux. Nous pouvons ainsi valider notre choix de la dépendance en concentration de la valeur du spin de fer et des interactions d'échange que nous utiliserons par la suite dans le cas des multicouches Fe/Dy.

3.3 Multicouches Amorphes Fe/Dy

Nous allons maintenant étudier les propriétés magnétiques de multicouches amorphes Fe/Dy et nous intéresser plus particulièrement à l'influence du profil de concentration le long de la multicouche, profil de concentration relié au phénomène de diffusion atomique.

Nous avons choisi d'étudier des multicouches amorphes (Fe 3nm/Dy 2nm) qui correspondent aux échantillons élaborés dont on connaît assez précisément la cartographie atomique à partir d'analyses en sonde atomique tomographique [Tamion 2005]. Dans cette gamme d'épaisseurs, ces multicouches présentent à la fois une forte anisotropie magnétique perpendiculaire (dans certaines conditions), une température de compensation magnétique et des températures de transition proches de la température ambiante.

Avant une étude plus précise de l'anisotropie magnétique dans ces systèmes qui sera présentée dans le chapitre 4, nous allons nous efforcer de caractériser les propriétés magnétiques de multicouches Fe/Dy sans anisotropie magnétique.

Les propriétés étudiées ci-après seront essentiellement :

- la variation thermique de l'aimantation totale de la multicouche ($M(T)$) ;
- la variation thermique de l'aimantation des sous-réseaux de fer et de dysprosium ($M_{Fe}(T)$ et $M_{Dy}(T)$) ;
- la variation thermique de l'aimantation par plan ($M_i(T)$) ;
- la susceptibilité magnétique totale et par sous-réseau ($\chi(T)$, $\chi_{Fe}(T)$ et $\chi_{Dy}(T)$).

• Paramètres numériques

Les paramètres numériques utilisés dans nos simulations sont les suivants :

- nombre total d'atomes : 28800 (36 plans atomiques de 800 atomes) ;
- température initiale : $T_i = 400\text{K}$;
- température finale : $T_f = 1\text{K}$;
- pas en température : $\Delta T = 5\text{K}$;
- nombre de pas Monte Carlo de thermalisation : 20000 ;
- nombre de pas Monte Carlo pour la moyenne des grandeurs thermodynamiques : 80000 ;
- conditions de bords périodiques dans le plan des couches.

L'ensemble des résultats concernant l'influence du profil de concentration sont moyennés sur 4 configurations chimiques initiales différentes en mettant à profit l'utilisation du calcul parallèle sur les processeurs du CRIHAN (calcul parallèle).

3.3.1 Profil de concentration

Nous avons considéré différents modèles simples permettant de rendre compte de la diffusion des atomes le long de la multicouche.

Profil de concentration **abrupt**

Le premier modèle, dit "abrupt", représente des interfaces Fe/Dy (et Dy/Fe) abruptes (figure 3.9.(a)). Nous considérons dans ce cas qu'il n'y a pas de diffusion d'une espèce chimique dans la couche adjacente ; nous sommes donc en présence d'une multicouche "idéale" avec des couches pures en fer et en dysprosium.

Profil de concentration **linéaire**

Le second modèle dit "linéaire" correspond à une multicouche avec une interface diffuse dans laquelle il existe une zone pure en fer et une zone pure en dysprosium (figure 3.9.(b)). La concentration en fer au niveau de l'interface décroit linéairement entre la zone pure en Fe et celle pure en Dy.

Profil de concentration **sonde**

Le troisième profil de concentration est directement issu des résultats expérimentaux en sonde atomique tomographique [Tamion 2005] (figure 3.9.(c)). Il correspond au profil de concentration observé dans une multicouche Fe/Dy élaborée pour une température de substrat de 570K. Ce profil est caractérisé par une couche fortement concentrée en Fe, une interface diffuse, et une "couche" de Dy contenant au minimum 40% de Fe. Cependant, l'évolution de la concentration à l'interface est dissymétrique. On note que c'est ce profil de concentration qui donne lieu au maximum d'anisotropie magnétique perpendiculaire (figure 1.22).

Profil de concentration **alliage homogène**

Enfin le dernier modèle est celui correspondant à un alliage amorphe homogène $\text{Fe}_{X_{\text{Fe}}}\text{Dy}_{1-X_{\text{Fe}}}$ en couche mince (figure 3.9.(d)). Chaque plan est alors modélisé par un alliage Fe-Dy de composition identique. Dans notre cas nous avons considéré un alliage de composition $\text{Fe}_{0,67}\text{Dy}_{0,33}$, correspondant à un alliage de concentration équivalente à une bicouche (Fe 3nm/Dy 2nm).

Afin de mieux visualiser l'effet de la diffusion dans les multicouches Fe-Dy, nous avons représenté sur la figure 3.10 les multicouches simulées pour les différents profils de concentration.

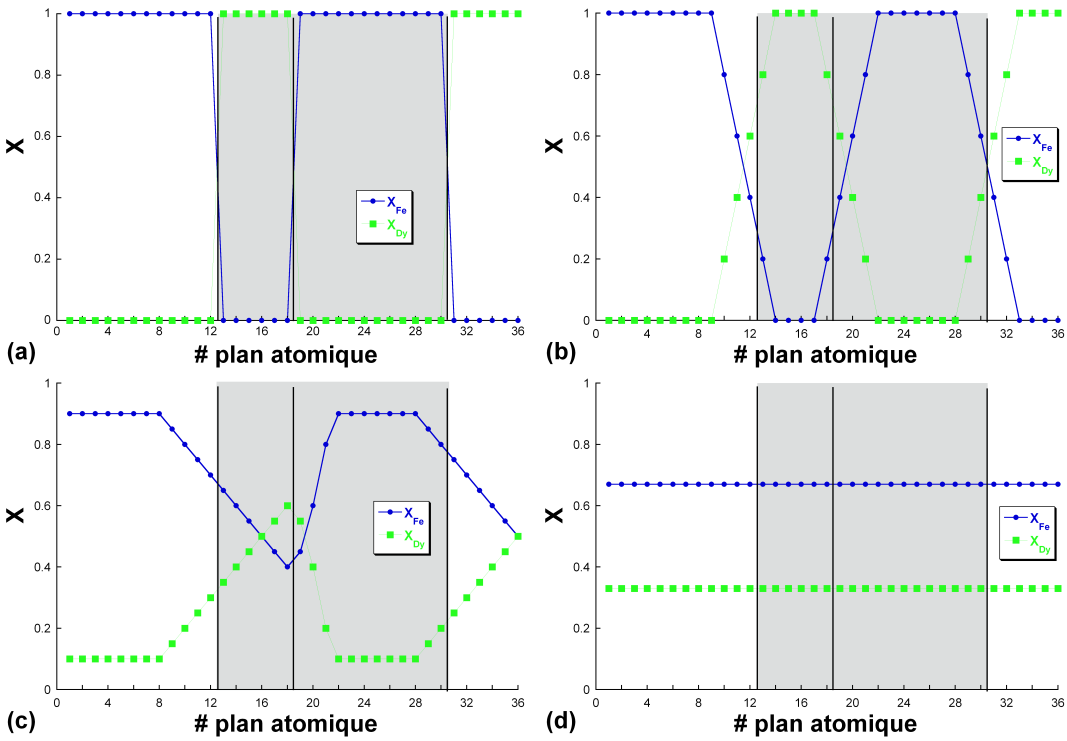

FIGURE 3.9 – Profils de concentration pour les différents modèles de multicouches considérés dans cette étude ((a) profil abrupt, (b) profil linéaire, (c) profil de sonde, (d) alliage $Fe_{67}Dy_{33}$). La bicouche sur laquelle les grandeurs physiques ont été mesurées correspond à la zone grisée.

Ceux-ci sont générés avec une structure de l'échantillon contenant 36 plans atomiques afin de décrire une multicouche (Fe 3nm/Dy 2nm) dont les épaisseurs correspondent approximativement à la situation expérimentale d'une bicouche empilée deux fois.

Dans le but de s'affranchir des effets de bords libres, nous nous intéresserons principalement aux propriétés magnétiques de la bicouche Dy/Fe se situant au centre de l'échantillon (zones grisées sur la figure 3.9).

3.3.2 Paramètres magnétiques

Le profil abrupt n'étant constitué que de plans purs de chaque espèce, les interactions d'échange dans chacune des couches sont donc entre atomes de même nature chimique ($J_{\mathrm{Fe-Fe}}$ et $J_{\mathrm{Dy-Dy}}$). L'interaction $J_{\mathrm{Fe-Dy}}$ intervient pour le couplage entre premiers voisins aux interfaces, sa valeur est choisie comme étant la moyenne entre l'interaction d'échange Fe-Fe et Dy-Dy selon :

$$J_{\mathrm{Fe-Dy}} = -\frac{J_{\mathrm{Fe-Fe}} + J_{\mathrm{Dy-Dy}}}{2}. \tag{3.13}$$

Dans le cas des profils de concentration "linéaire", "sonde" et pour l'alliage homogène, nous avons un alliage amorphe de composition modulée selon l'épaisseur qui va conduire à une variation des interactions d'échange moyennes $< J_{\mathrm{Fe-Fe}} >$ et $| < J_{\mathrm{Fe-Dy}} > |$ ainsi que de la valeur du spin de fer S_{Fe} en fonction de la concentration d'après les relations 3.8, 3.9 et 3.3.

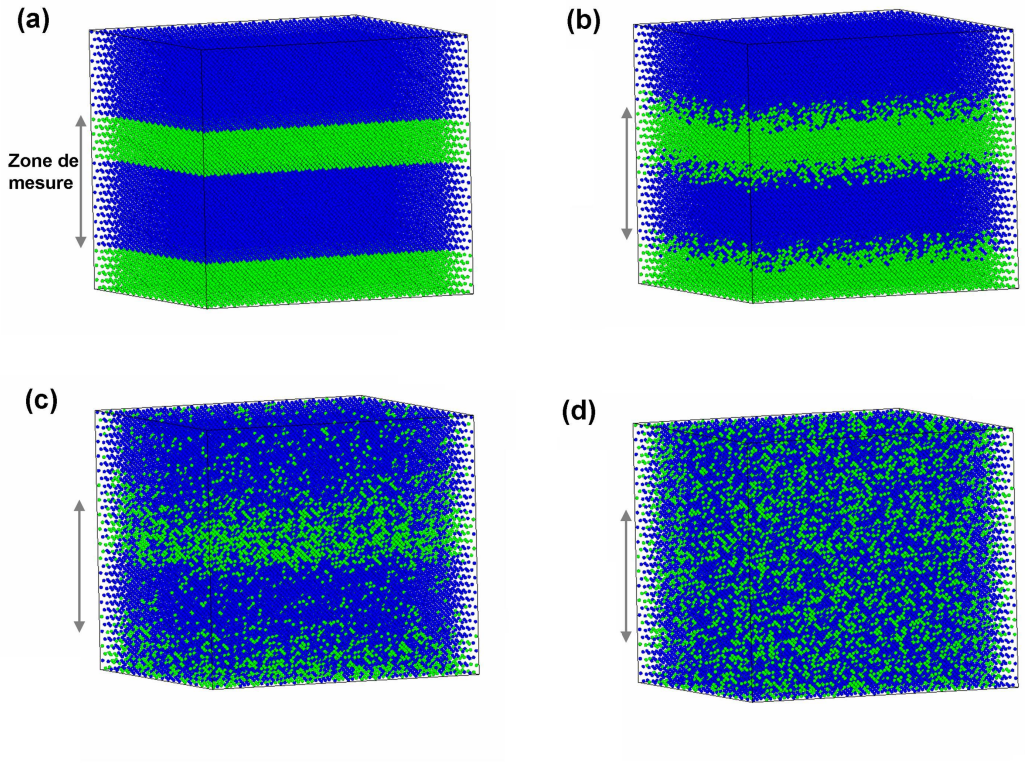

FIGURE 3.10 – Représentation des multicouches pour les différents profils de concentration utilisés - en bleu, les atomes de Fe ; en vert, les atomes de Dy - ((a) abrupt ; (b) linéaire ; (c) sonde ; (d) alliage). Pour chaque profil de concentration, la flèche indique la bicouche sur laquelle les grandeurs physiques ont été mesurées.

Pour chaque profil de concentration, plusieurs simulations partant d'une configuration magnétique initiale différente ont été effectuées afin de s'assurer de la reproductibilité des résultats.

Nous donnons dans le tableau 3.1 les valeurs des aimantations à saturation et ferrimagnétique d'une multicouche en fonction du profil de concentration considéré. L'aimantation à saturation correspond à une configuration ferromagnétique. La variation des aimantations à saturation et ferrimagnétique en fonction du profil résultent principalement de la variation de la valeur du spin de Fe en fonction de la concentration locale. Par ailleurs, on remarque que l'aimantation de ces différents échantillons dans l'état fondamental est dominée par le Dy en raison de son moment magnétique très élevé.

	Abrupt	Linéaire	Sonde	Alliage $Fe_{0,67}Dy_{0,33}$
M_{sat} (μ_B/atome)	4,80	5,08	3,79	4,28
M_{ferri} (μ_B/atome)	1,87	2,69	1,21	2,32

TABLEAU 3.1 – Aimantation à saturation et aimantation ferrimagnétique des multicouches pour les différents profils de concentration (en μ_B par atome).

3.3.3 Influence du profil de concentration

Dans un premier temps, nous nous intéresserons à l'influence de la diffusion chimique aux interfaces sur les températures de mise en ordre globale et par sous-réseau ansi qu'à la variation thermique de l'aimantation. Enfin, nous caractériserons les profils d'aimantation en épaisseur pour l'ensemble des profils de concentrations considérés.

3.3.3.1 Variation thermique de la susceptibilité magnétique

Nous avons choisi d'exploiter les courbes de susceptibilité magnétique pour déterminer les températures de mise en ordre. En effet, lors d'une transition de phase du second ordre, la susceptibilité (dérivée seconde de l'énergie libre) diverge à la température de transition ce qui permet de déterminer cette dernière avec précision.

Nous avons représenté sur la figure 3.11 la variation de la susceptibilité magnétique des bicouches Fe/Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration étudiés. On observe tout d'abord que les courbes de susceptibilité magnétique sont très différentes selon le profil de concentration étudié. En effet, on relève l'existence de un ou deux pics, plus ou moins larges, à température plus ou moins élevée.

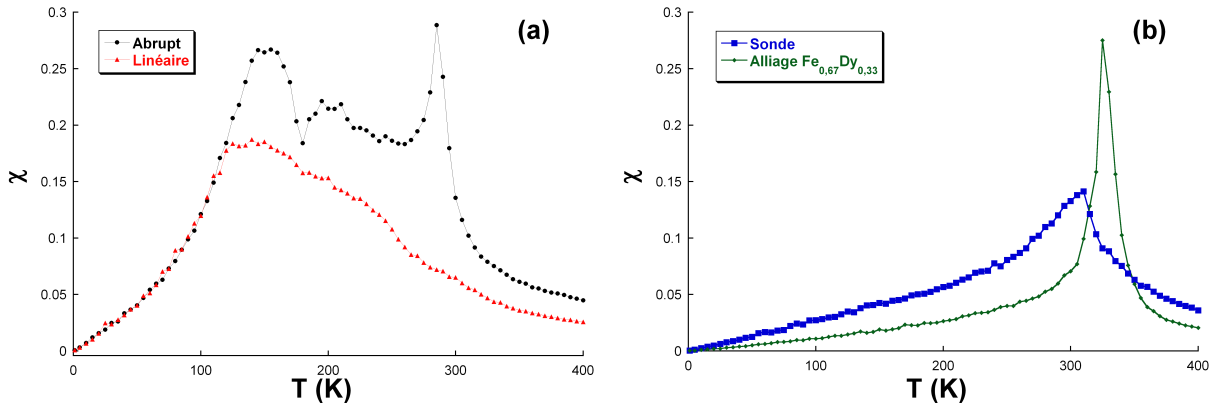

FIGURE 3.11 – Variation de la susceptibilité magnétique d'une bicouche Fe-Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration ((a) abrupt et linéaire ; (b) sonde et alliage).

Dans le cas du profil abrupt (figure 3.11.(a)), on distingue clairement deux pics marqués à $T = 285 \pm 5$K et $T = 150 \pm 10$K. Ce profil de concentration est donc caractérisé donc par deux mises en ordre distinctes mais qui ne sont pas complètement indépendantes puisque l'existence du fond continu montre qu'une mise en ordre lente intervient entre 285K et 150K. La localisation des deux pics indique que la couche de fer s'aimante en premier, à une température proche de celle de l'élément pur amorphe, puis intervient la mise en ordre du Dy.

Dans le cas du profil linéaire (figure 3.11.(a)), nous n'observons plus qu'un seul pic très étalé, ne permettant pas de distinguer la mise en ordre de chacun des éléments. On remarque cependant que le maximum de la susceptibilité se trouve à la même température que le second pic dans le cas du profil abrupt, c'est-à-dire celui correspondant à la mise en ordre du dysprosium. On constate donc une mise en ordre magnétique très progressive, dominée par le sous-réseau de Dy.

La courbe de susceptibilité magnétique dans le cas du profil de sonde (figure 3.11.(b)) présente une allure similaire à celle du profil linéaire avec un pic plus marqué à $T = 310$K décalé vers les hautes températures. Il semble donc y avoir une mise en ordre rapide à haute température.

La situation dans le cas d'un alliage homogène (figure 3.11.(b)) apparaît beaucoup plus simple. En effet, la susceptibilité magnétique ne présente qu'un seul pic étroit à haute température ($T = 330$K) indiquant que les deux espèces chimiques se mettent en ordre simultanément à haute température en raison de leur forte imbrication.

Nous avons représenté sur la figure 3.12 la variation thermique de la susceptibilité magnétique par sous-réseau pour les 4 profils de concentration étudiés.

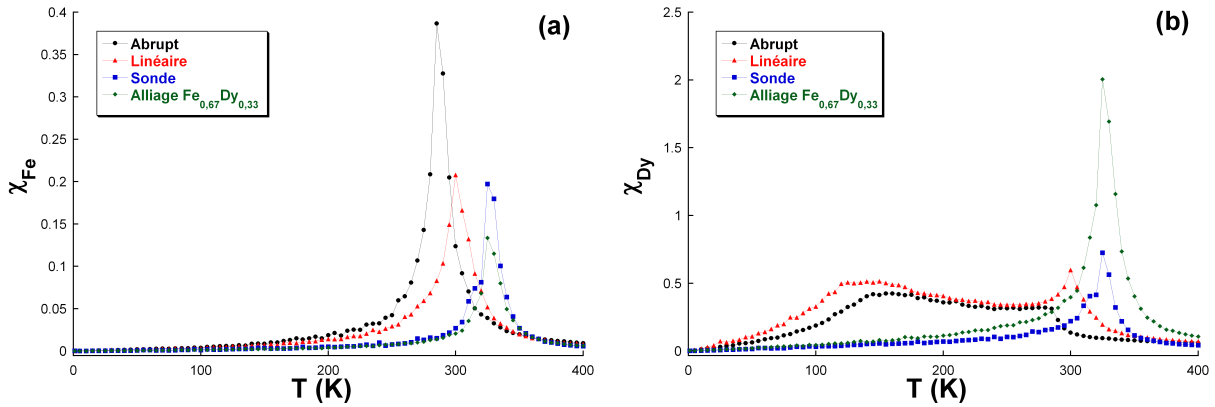

FIGURE 3.12 – Variation thermique de la susceptibilité magnétique par sous-réseau dans une bicouche Fe-Dy pour les 4 profils de concentration ((a) sous-réseau de Fe ; (b) sous-réseau de Dy).

Lorsque la diffusion augmente dans la bicouche (du profil abrupt à l'alliage), on remarque que le pic du maximum de susceptibilité magnétique du sous-réseau de Fe se décale vers les hautes températures et diminue en intensité (figure 3.12(a)). La première observation traduit une augmentation de la température de mise en ordre des moments magnétiques de Fe lorsqu'on augmente l'imbrication des deux sous-réseaux. La seconde observation, quant à elle, est liée à la diminution du nombre d'atomes se mettant en ordre collectivement par rapport au nombre d'atomes total (à la température du pic). Plus la bicouche présente une interface large et diffuse, plus la mise en ordre intervient à haute température, et plus la mise en ordre du fer induit celle du dysprosium.

La variation thermique de la susceptibilité magnétique du sous-réseau de Dy présente une évolution plus complexe que celle du sous-réseau de Fe avec le profil de concentration (figure 3.12(b)). Pour le profil abrupt, on note une augmentation rapide de la susceptibilité vers 285K et un maximum à 150K, séparés par un fond continu. La première observation traduit une faible mise en ordre des moments magnétiques de Dy, que nous pouvons attribuer aux plans de Dy d'interface soumis à l'influence de la mise en ordre de la couche de Fe. Le fond continu montre une mise en ordre progressive que nous attribuons à un effet d'aimantation de proche en proche des plans de Dy, puis le maximum de susceptibilité traduit une mise en ordre plus rapide du reste de la couche de Dy. Concernant le profil de concentration linéaire, on note la présence de deux pics qui mettent en évidence d'une part une mise en ordre à haute température des moments magnétiques de Dy situés dans les plans riches en Fe et d'autre part la mise en ordre

des plans riches en Dy. Pour le profil de sonde, on note la présence d'un pic de faible intensité vers les hautes températures (325K), suivi d'une décroissance lente traduisant ainsi une mise en ordre progressive des moments magnétiques de Dy avec la température. Enfin, le sous-réseau de Dy dans le cas de l'alliage homogène se met en ordre rapidement à haute température ce que nous avions déjà observé précédemment.

En progressant du profil abrupt à l'alliage homogène, on favorise une mise en ordre collective des deux espèces à plus haute température que celle du fer pur amorphe.

Nous rassemblons dans le tableau 3.2 la position des pics de susceptibilité magnétique de chaque sous-réseau pour les différents profils de concentration étudiés.

	Abrupt	Linéaire	Sonde	Alliage $Fe_{0,67}Dy_{0,33}$
Température du pic χ_{Fe} (K)	285	300	325	330
Température du pic χ_{Dy} (K)	150	300,140	325	330

TABLEAU 3.2 – Températures des maxima des pics de susceptibilité magnétique par sous-réseau pour les 4 profils de concentration.

Nos résultats de simulation sont en accord avec les résultats expérimentaux. En effet, la température de Curie de multicouches (Fe 3-8Å/Dy 3,6Å) a été mesurée à environ 350K [Sato 1987], elle a également été estimée à 270K sur les multicouches (Fe 15Å/Dy 30Å) [Shinjo 1989, Yoden 1988].

3.3.3.2 Variation thermique de l'aimantation

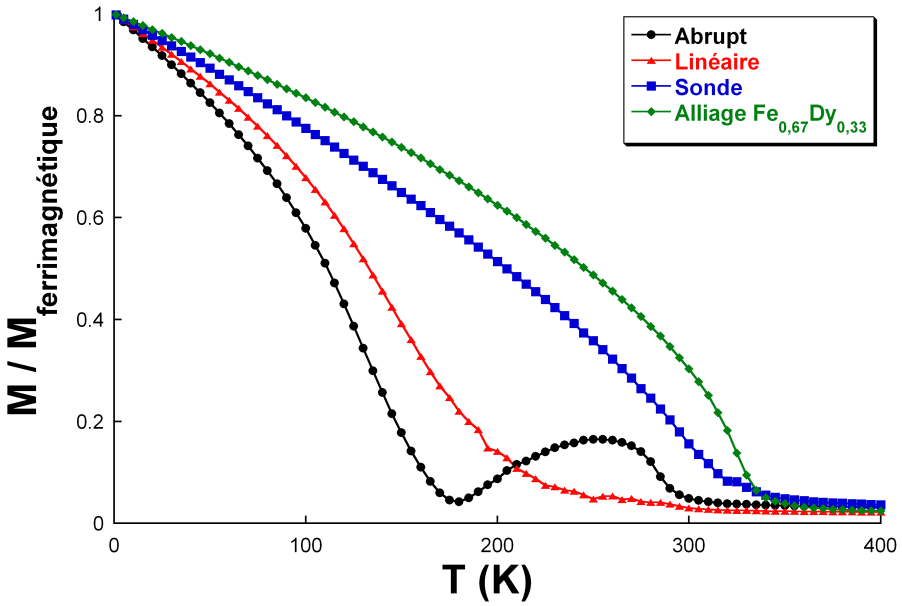

FIGURE 3.13 – Variation de l'aimantation d'une bicouche Fe-Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration. L'aimantation est rapportée à l'aimantation ferrimagnétique du système.

Nous avons représenté sur la figure 3.13 la variation de l'aimantation totale en fonction de la température pour les quatre profils de concentration considérés. De manière générale, on constate que les quatre courbes d'aimantation présentent des allures très différentes. Cependant, on remarque tout d'abord qu'à température nulle, la bicouche présente un ordre ferrimagnétique quel que soit le profil de concentration étudié.

Dans le cas des profils de concentration abrupt et linéaire, on observe la présence d'une compensation magnétique à $T_{\text{comp}}^{\text{abrupt}} = 180K$ et $T_{\text{comp}}^{\text{lineaire}} \in [270\text{K}, 300\text{K}]$. Le système est partiellement ordonné mais les deux sous-réseaux étant alignés antiparallèlement, l'aimantation résultante est nulle. En deçà de cette température de compensation, le dysprosium domine la mise en ordre. Pour les deux autres profils, nous n'observons pas de compensation magnétique ce qui signifie que dès le début de la mise en ordre, l'aimantation du dysprosium domine puisqu'il s'aimante à la même température que le fer et que son moment magnétique est approximativement 5 fois plus élevé que celui du fer.

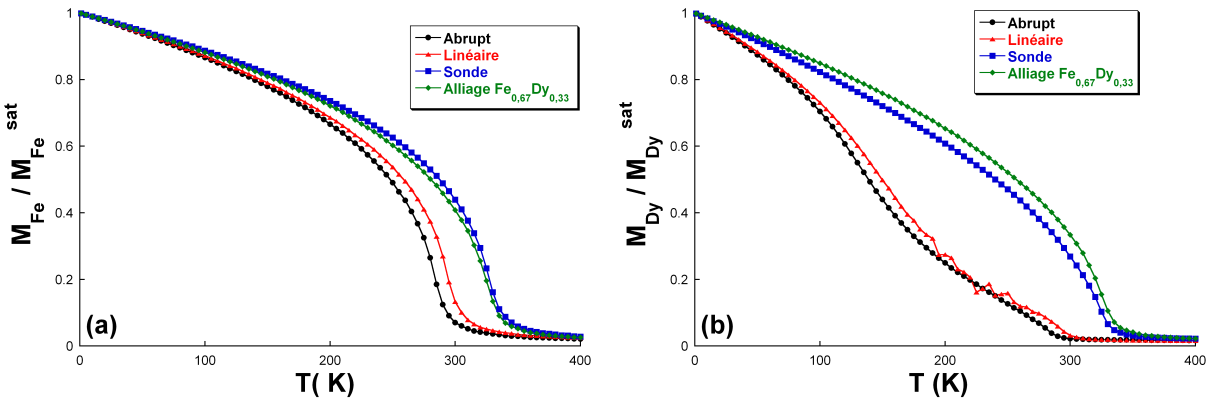

FIGURE 3.14 – Variation de l'aimantation par sous-réseau d'une bicouche Fe-Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration. L'aimantation est rapportée à l'aimantation à saturation du sous-réseau ((a) sous-réseau de Fe, (b) sous-réseau de Dy).

La figure 3.14 montre la variation thermique de l'aimantation par sous-réseau en fonction du profil de concentration. Dans un premier temps, on observe que le profil de concentration a peu d'influence sur la courbe d'aimantation du sous-réseau de fer (figure 3.14(a)). Seule la température de Curie du sous-réseau de fer évolue avec le profil de concentration comme nous l'avons vu précédemment.

L'influence du profil est nettement plus marquée sur la variation thermique des moments magnétiques de Dy (figure 3.14(b)). En effet, dans le cas du profil abrupt, on peut décomposer la mise en ordre en 2 parties : la première partie, entre 285K et 180K, pour laquelle la mise en ordre du dysprosium est "lente", résulte de la mise en ordre des moments magnétiques de Dy situés au niveau de l'interface abrupte. De proche en proche, cet effet se propage aux plans voisins. En deçà de cette température (proche de la température critique du Dy amorphe), le Dy s'aimante plus rapidement.

Dans le cas du profil linéaire, on retrouve ces deux zones mais l'inflexion est moins importante, traduisant une mise en ordre plus rapide et progressive du Dy à haute température correspondant aux atomes de Dy localisés dans l'interface diffuse.

Le cas des profils "sonde" et "alliage" ne présentent plus ces deux phases d'aimantation car les atomes de Dy sont toujours "entourés" d'atomes de fer (pas de zone pure en Dy).

3.3.3.3 Profil magnétique

Dans ce paragraphe, nous étudions plus précisément l'influence de l'interface chimique sur le profil de l'aimantation de la bicouche en examinant la variation thermique de l'aimantation par plan. Cette information n'est pas accessible expérimentalement mais elle permet néanmoins de comprendre le phénomène de propagation de la mise en ordre par le biais des interactions d'échange à courte portée.

• Profil abrupt

Nous avons représenté sur la figure 3.15 la variation de l'aimantation par plan en fonction de la température pour certains plans atomiques dans le cas du profil de concentration abrupt.

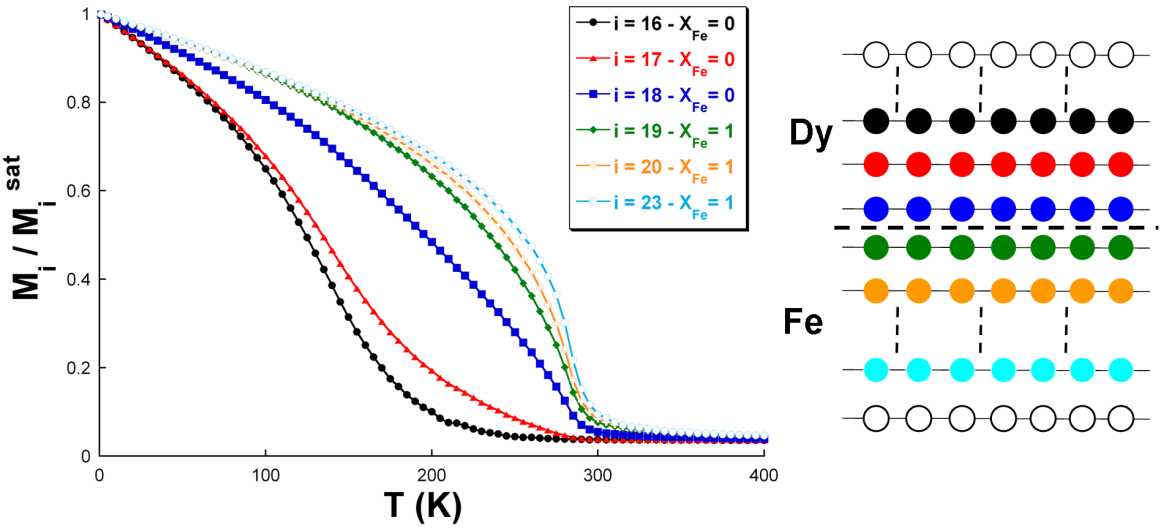

FIGURE 3.15 – Variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt.

Comme nous l'avons observé précédemment, ce sont les plans de Fe qui s'ordonnent à haute température. Nous constatons par ailleurs que la variation thermique de l'aimantation du plan de dysprosium situé à l'interface (noté $i = 18$) est très fortement influencée par la couche de fer voisine puisqu'il se met en ordre presque à la même température que les plans de Fe, et s'aimante très rapidement. Par effet de proche en proche, les plans de Dy "suivants" s'aimantent à des températures de plus en plus faibles jusqu'à l'obtention d'une température de mise en ordre proche de 250K pour les plans de Dy au coeur des couches ($i = 16$).

• Profil linéaire

Sur la figure 3.16 qui présente la variation de l'aimantation par plan en fonction de la température avec le profil de concentration linéaire, on constate tout d'abord que le comportement magnétique par plan est nettement plus complexe que dans le cas précédent. On peut cependant distinguer deux domaines, le premier pour lequel l'aimantation du plan est dominée par le fer, le second où la situation est inversée.

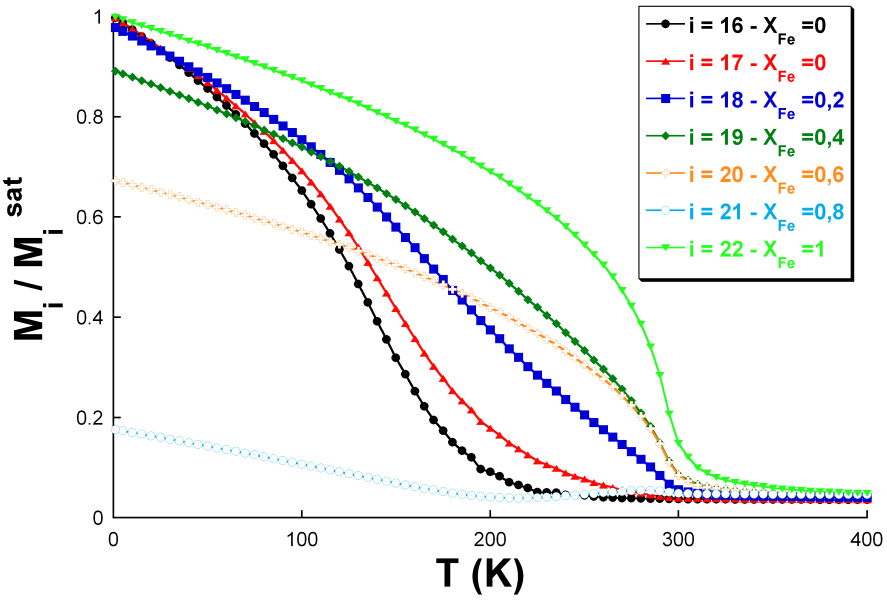

FIGURE 3.16 – Variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration linéaire.

Pour les plans de fer pur (plans 22 à 28, $X_{\mathrm{Fe}} = 1$), le comportement est analogue à celui des plans de fer dans le cas du profil de concentration abrupt, la mise en ordre de ces plans a lieu à haute température avec un comportement identique à celui du composé pur amorphe.

Les autres plans sont soumis à la forte influence des moments magnétiques de Dy répartis dans le plan puisqu'ils correspondent à des alliages $\mathrm{Fe}_{X_{\mathrm{Fe}}}\mathrm{Dy}_{1-X_{\mathrm{Fe}}}$ de concentration décroissante en fer. Dès que $X_{\mathrm{Fe}} = 0,80 < X_{\mathrm{Fe}}^{\mathrm{comp}}$, le dysprosium domine l'aimantation du plan. La mise en ordre de ces plans intervient à haute température en raison des fortes interactions d'échange Fe-Fe, induisant une mise en ordre rapide des moments magnétiques de Dy. Plus la concentration en Dy par plan augmente, plus la température de mise en ordre du plan diminue (diminution de la concentration en fer) avec une croissance de l'aimantation plus progressive que dans le cas des plans purs en Fe et Dy. Ces plans ne sont jamais saturés du fait de l'interaction d'échange Fe-Dy qui couple antiparallèlement les moments magnétiques de Fe et de Dy.

Pour les plans pur en Dy (16 et 17), la mise en ordre magnétique intervient à plus haute température que dans le cas du composé pur et que dans le cas du profil de concentration abrupt en raison de l'influence des plans adjacents.

Ces observations nous permettent de conclure que l'interface chimique est différente de l'interface magnétique. En effet, l'interface magnétique distingue les plans dont l'aimantation est contrôlée soit par le fer soit par le dysprosium.

• Profil de sonde

Nous avons tracé sur la figure 3.17 la variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde. Nous rappelons que dans ce cas, il n'existe aucun plan pur en fer ou en dysprosium, et que par conséquent aucun plan n'aura une aimantation saturée.

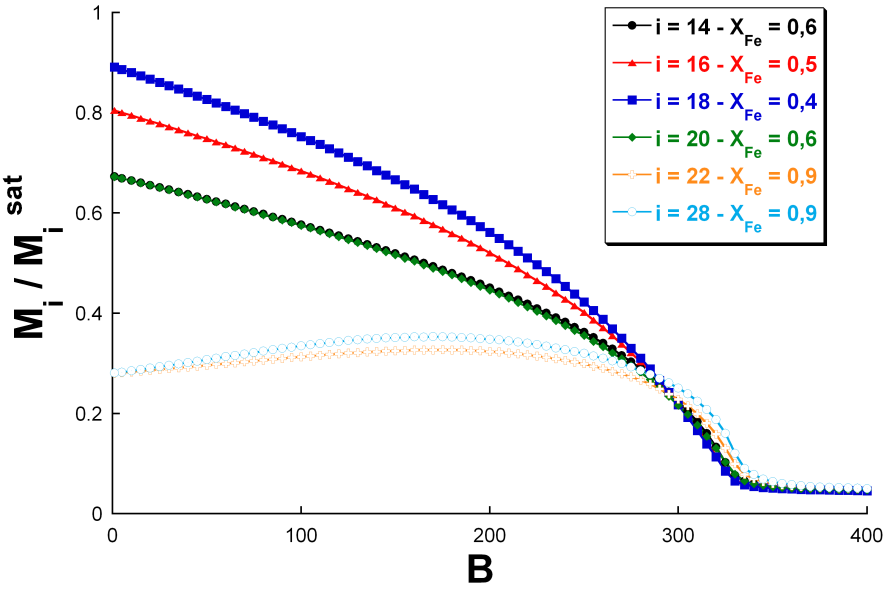

FIGURE 3.17 – Variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde.

La variation thermique de l'aimantation par plan dans ce cas est assez semblable au cas du profil linéaire, avec cependant quelques différences importantes.

Tout d'abord, concernant les plans riches en Fe ($X_{\mathrm{Fe}} = 0,90$), on remarque que l'aimantation de ces plans est faible (par rapport à la saturation). Pour les autres plans, l'aimantation est plus importante puisque la concentration en fer diminue.

Dans ce cas, nous sommes donc en présence d'une couche de 8 plans atomiques dont la mise en ordre est contrôlée par le Fe, mais dont l'aimantation est faible ($i = 22$ à 28). On a ensuite une couche dont l'aimantation est contrôlée par le dysprosium, avec une aimantation d'autant plus importante que le plan est riche en Dy.

• Alliage homogène

Dans le cas de l'alliage, puisque chaque plan atomique est modélisé par un alliage de même composition, on obtient pour chaque plan le même comportement aux effets de bords près.

On peut résumer le profil d'aimantation en épaisseur, à basse température, selon le profil de concentration considéré par la figure 3.18 qui représente le vecteur aimantation par plan. La direction du vecteur aimantation globale est ici arbitraire puisqu'en l'absence d'un terme d'anisotropie magnétique dans notre modèle, il n'y pas de direction privilégiée. Une flèche verte indique que l'aimantation du plan est dominée par le Dy, une flèche bleue indique qu'elle est dominée par le Fe. La longueur des flèches est proportionnelle à l'aimantation réduite de chaque plan.

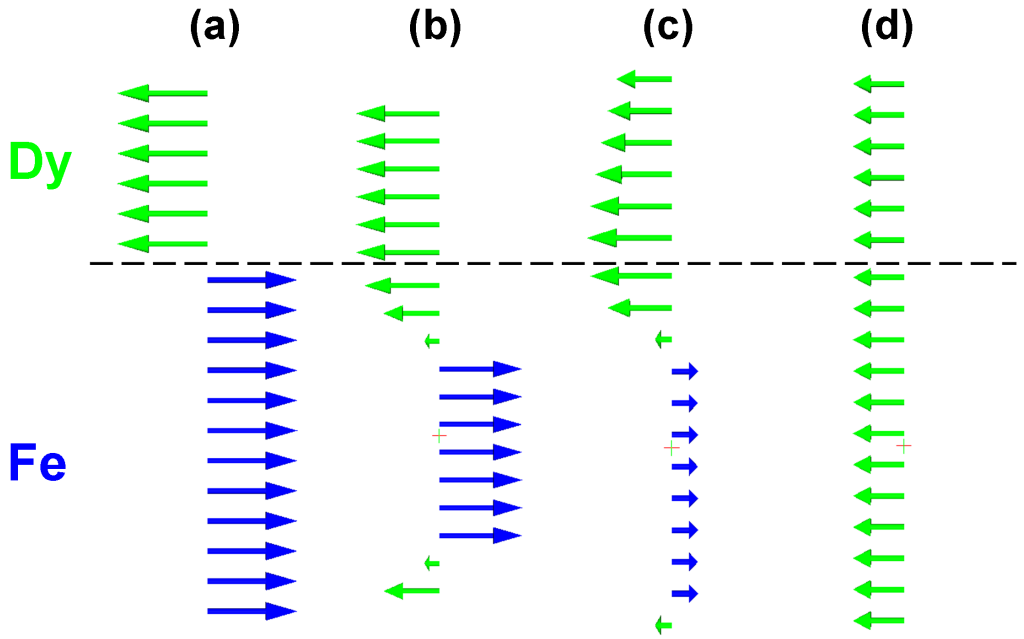

FIGURE 3.18 – Représentation du profil d'aimantation suivant l'épaisseur à basse température ((a) profil de concentration abrupt ; (b) profil de concentration linéaire ; (c) profil de sonde ; (d) Alliage homogène).

3.3.4 Modélisation du profil de concentration de l'aimantation dans les multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm) sous champ magnétique

Nous avons mis à profit le développement du modèle décrit précédemment pour réaliser des simulations du profil d'aimantation en vue de les confronter aux résultats de réflectométrie de neutrons polarisés obtenus par Tamion *et al.* [Tamion 2005, Tamion 2007].

3.3.4.1 Résultats expérimentaux

Des analyses de réflectométrie de neutrons polarisés (RNP) ont été menées sur des multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm)$_{10}$ pour des températures d'élaboration T_S = 320K et T_S = 570K dans le but de déterminer le profil d'aimantation en profondeur [Tamion 2005, Tamion 2007]. Il est important de noter que les mesures de RNP ne sont sensibles qu'à la composante planaire de l'aimantation, et qu'elles ne fourniront par conséquent pas d'information sur sa composante perpendiculaire. Les mesures ont été effectuées à T = 300K et à T = 100K avec un champ magnétique de 2T appliqué dans le plan des couches.

Nous avons représenté sur la figure 3.19 les profils d'aimantation issus des ajustements des analyses de RNP.

L'analyse des résultats pour une multicouche élaborée à 320K, c'est-à-dire présentant les interfaces les plus abruptes comme l'ont montré les analyses en sonde atomique tomographique et les clichés de microscopie électronique en transmission (chapitre 1), met en évidence un profil d'aimantation non homogène en épaisseur. L'analyse à 300K (figure 3.19(a)) révèle une zone aimantée à proximité du substrat qui correspond en fait à des plans partiellement cristallisés de

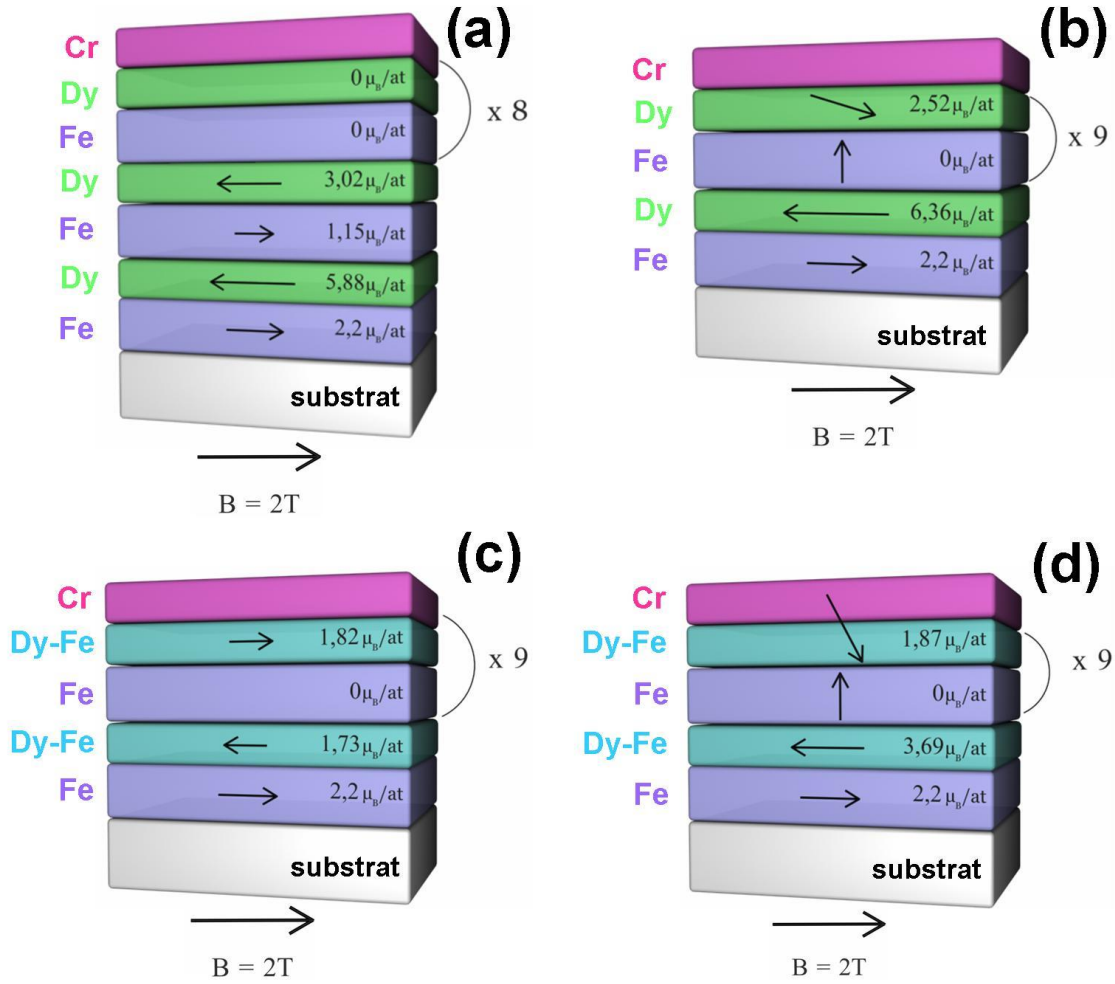

FIGURE 3.19 – Profils d'aimantation dans des multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm)$_{10}$ obtenues par ajustement des analyses de RNP ((a) $T_S = 320$K et $T = 300$K ; (b) $T_S = 320$K et $T = 100$K ; (c) $T_S = 570$K et $T = 300$K ; (d) $T_S = 570$K et $T = 100$K) [Tamion 2005]. Le substrat sur lequel les échantillons sont déposés est en blanc. La couche rose correspond à une couche protectrice de Cr.

Fe α. Les autres plans de la multicouche étant amorphes, ils ne sont pas aimantés à l'ambiante en raison de la faible température de Curie des éléments amorphes. A $T = 100$K (figure 3.19(b)), les plans proches du substrat sont toujours aimantés avec des caractéristiques de plans cristallins. Cette fois la zone amorphe, éloignée du substrat, est aimantée avec des moments magnétiques de Fe orientés dans la direction perpendiculaire au plan des couches. Les plans de Dy présentent une composante planaire de l'aimantation en raison du champ magnétique de 2T appliqué dans le plan des couches au cours de l'expérience.

Pour ce qui concerne la multicouche élaborée à 570K, sa structure à l'échelle atomique est très différente en raison de l'influence de la diffusion atomique qui donne une succession de couches de Fe et d'alliage Fe-Dy. Elle présente également un profil d'aimantation inhomogène en épaisseur principalement au niveau de la première bicouche déposée sur le substrat. Pour les deux températures d'analyse (300K et 100K), cette bicouche est caractéristique d'une bicouche cristalline avec une aimantation planaire. Les autres couches, amorphes, ont un comportement magnétique différent. A $T = 300$K (figure 3.19(c)), les couches de Fe pur sont paramagnétiques.

Les couches constituées d'un alliage Dy-Fe sont partiellement aimantées puisque la formation d'un alliage permet d'obtenir des températures de Curie supérieures à la température ambiante. A $T = 100$K (figure 3.19(d)), les couches de Fe amorphe sont aimantées perpendiculairement au plan des couches, tout comme les couches d'alliage qui cependant possèdent une faible composante planaire.

En résumé, les profils d'aimantation utilisés pour décrire les résultats de RNP permettent de mettre en évidence, pour les deux températures d'élaboration, l'existence de couches cristallines dont les propriétés magnétiques diffèrent du reste de la multicouche. Les autres couches, amorphes, sont soit paramagnétiques à l'ambiante, soit elles ont une aimantation préférentiellement perpendiculaire à basse température.

3.3.4.2 Modèle de simulation

Afin de valider les hypothèses utilisées pour l'ajustement des analyses de RNP, nous avons réalisé quelques simulations numériques à partir d'un modèle assez simple. Dans ce cadre, nous avons principalement étudié le comportement des couches à proximité du substrat afin de justifier en particulier la possibilité d'obtenir une couche de Dy partiellement aimantée à température ambiante en présence d'un champ magnétique de 2T et de couches de fer adjacentes partiellement ordonnées (on rappelle que la température de Curie du Dy amorphe est évaluée à environ 110K).

Nous utilisons pour ce faire le modèle défini précédemment avec quelques ajustements. En effet, nous avons considéré ici une tricouche avec une structure des couches liée à la température d'élaboration des échantillons (figure 3.20). Le premier modèle correspond au cas de la multicouche élaborée à 320K (figure 3.20(a)). Elle se compose d'une couche de Fe α déposée sur le substrat, d'une couche de Dy pur et d'une couche constituée de Fe α et de Fe amorphe (noté Fe a). Le second modèle (figure 3.20(b)) correspond au cas d'une température d'élaboration de 570K et comporte une couche de Fe α, une couche formée d'un alliage amorphe $Dy_{0,70}Fe_{0,30}$ et une couche constituée de Fe α et de Fe amorphe. Les épaisseurs des couches ont été choisies en conformité avec les épaisseurs expérimentales. Ces deux profils correspondent à ceux utilisés pour l'ajustement des courbes de RNP.

La modélisation du Fe cristallin dans notre modèle a nécessité l'introduction de deux interactions d'échange supplémentaires. La première ($J_{Fe^{\alpha}-Fe^{\alpha}}$) correspond à l'interaction d'échange entre atomes de Fe α plus proches voisins, la seconde correspond à l'interaction d'échange entre un moment magnétique de Fe α et un moment magnétique de Dy amorphe ($J_{Fe^{\alpha}-Dy}$). Nous les avons estimées à $J_{Fe^{\alpha}-Fe^{\alpha}} = 300$K et $J_{Fe^{\alpha}-Dy} = -60$K.

3.3.4.3 Résultats numériques

- $\underline{T_S = 320\text{K}}$

Nous avons représenté sur la figure 3.21(a) la variation de l'aimantation totale et par sous-réseau en fonction de la température, ainsi que la projection suivant la direction du champ appliqué (x) dans le cas d'une tricouche avec le profil de concentration correspondant à une multicouche élaborée à 320K.

Nous observons qu'à 300K les couches de Fe sont fortement aimantées. La couche de Fe α présente même une aimantation supérieure à celle contenant du Fe amorphe. Ce phénomène s'explique par l'interaction d'échange élevée entre les moments magnétiques de Fe α

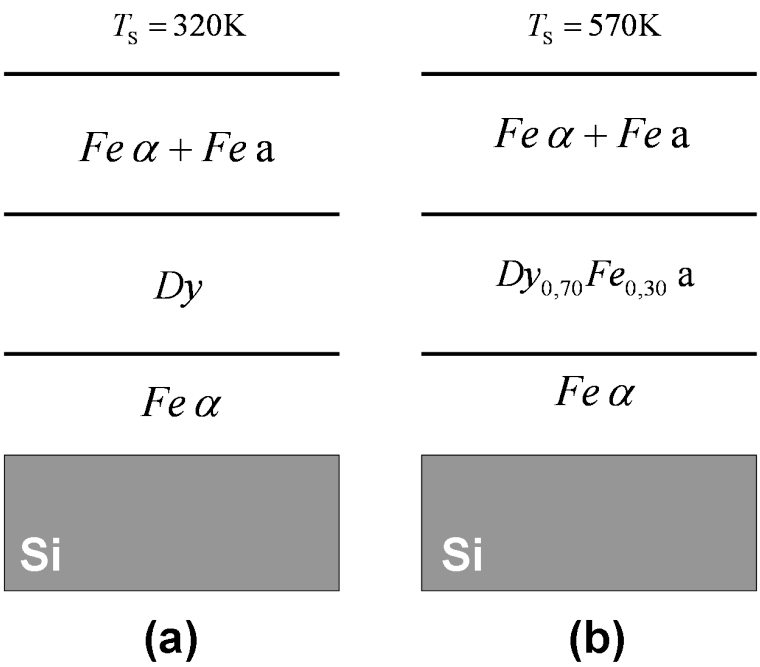

FIGURE 3.20 – Structure de la tricouche Fe/Dy/Fe utilisée dans le modèle de simulation ((a) modèle associé à une multicouche élaborée à $T_S = 320K$; (b) modèle associé à une multicouche élaborée à $T_S = 570K$).

qui induit une mise en ordre à très haute température ($T_C^{Fe\ \alpha} = 1044K$). A la température ambiante, l'aimantation totale de la tricouche est essentiellement due au Fe et est orientée dans la direction du champ magnétique. L'aimantation suivant x de la couche de Dy vaut $M^x_{Dy}(300K) \sim 2,8\mu_B$/atome, ce qui est nettement inférieur à celle introduite pour l'ajustement du profil d'aimantation expérimental ($5,88\mu_B$/atome) (figure 3.19(a)). Cependant, l'aimantation de la couche de Dy n'est pas nulle à température ambiante par effet de polarisation des couches de Fe adjacentes et en raison de l'influence du champ magnétique appliqué.

Lorsque la température diminue, le Dy s'aimante progressivement jusqu'à 150K puis plus rapidement à basse température. On retrouve ici l'effet déjà mis en évidence précédemment sur la mise en ordre décorrélée des espèces chimiques dans le cas d'une interface abrupte. A $T = 100K$, la couche de Dy est alors fortement aimantée et la projection suivant l'axe x vaut $M_{Dy}(100K) \sim 6\mu_B$/atome, en bon accord avec l'aimantation planaire de $6,36\mu_B$/atome obtenue par l'ajustement expérimental (figure 3.19(b)).

Nous pouvons résumer l'évolution en température du profil d'aimantation dans cette tricouche sur la figure 3.22. La simulation met en évidence une aimantation partielle de la couche de Dy à température ambiante due à la polarisation des deux couches de Fe adjacentes et à l'influence du champ magnétique appliqué. A basse température, la compétition entre le champ magnétique et les interactions d'échange donne lieu à un désalignement de l'aimantation par rapport à la direction du champ magnétique.

Afin de déterminer l'orientation de l'aimantation dans les couches de Dy supérieures, nous avons également étudié le cas où cette couche était entourée de deux couches de Fe amorphe. Nous avons représenté la variation des aimantations totale et par sous-réseau, ainsi que la projection dans la direction du champ pour ce cas sur la figure 3.21(b). Nous obtenons une aimantation de la couche de Dy à 100K qui a une valeur proche de celle obtenue dans le cas

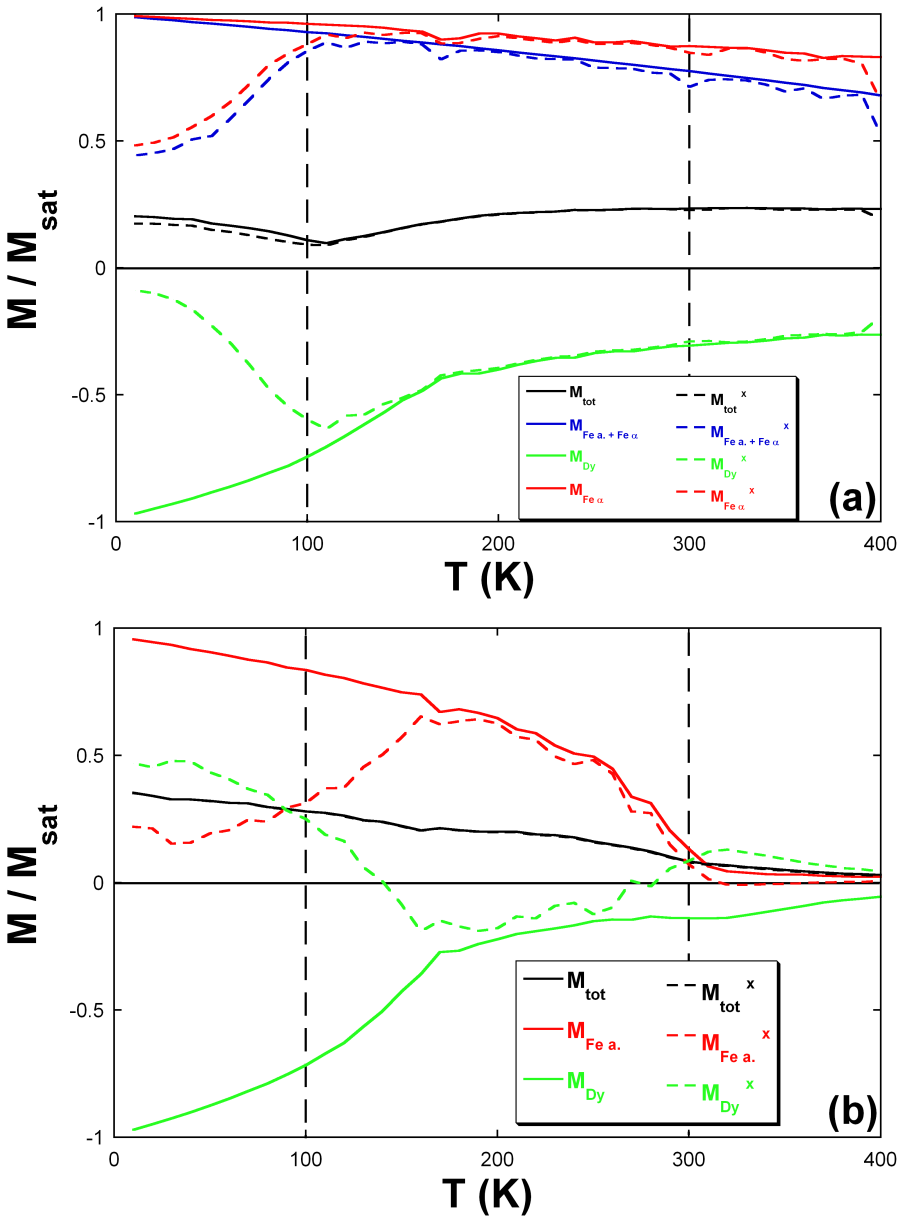

FIGURE 3.21 – Variation de l'aimantation totale et par sous-réseau, ainsi que la projection suivant la direction du champ magnétique appliqué (x) pour une tricouche correspondant à une température d'élaboration de 320K ((a) la tricouche est composée d'une couche de Fe α et d'une couche de Fe α - Fe amorphe ; (b) les deux couches de Fe sont amorphes).

précédent ($M_{\mathrm{Dy}}(100\mathrm{K}) \sim 7,1\mu_{\mathrm{B}}$/atome). La mise en ordre de la couche de Dy à basse température semble être indépendante de la nature cristallographique des couches de Fe adjacentes. Cependant, la valeur de la projection de l'aimantation suivant la direction du champ semble y être plus sensible (cas où l'on a des couches de Fe amorphe : $M^x_{\mathrm{Dy}}(100\mathrm{K}) \sim 2,5\mu_{\mathrm{B}}$/atome ; cas où l'on a des couches de Fe α : $M^x_{\mathrm{Dy}}(100\mathrm{K}) \sim 6\mu_{\mathrm{B}}$/atome). De plus le signe de cette projection est opposé entre les deux cas, en accord avec les résultats expérimentaux (figure 3.19(b)). Une interprétation de ce phénomène réside dans la compétition entre l'interaction Zeeman et les interactions d'échange.

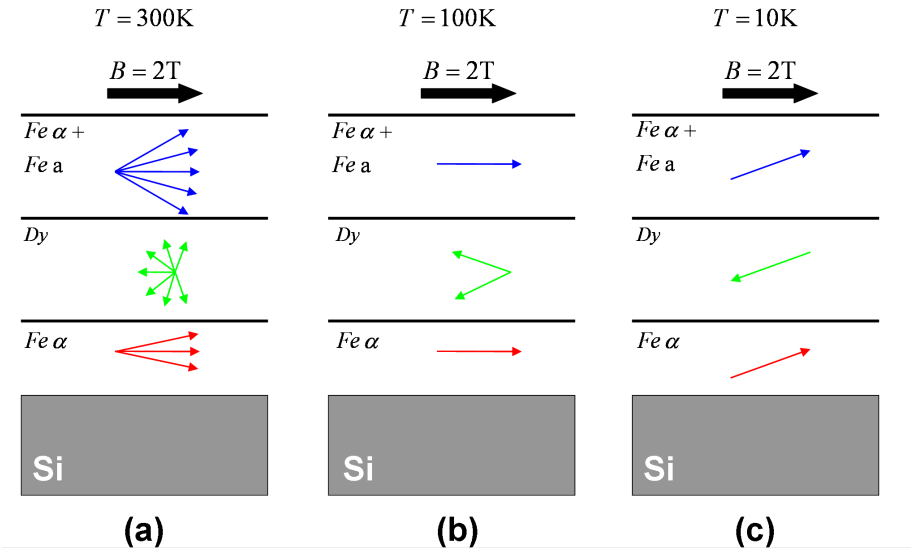

FIGURE 3.22 – Représentation schématique du profil d'aimantation en fonction de la température pour un profil associé à une multicouche élaborée à 320K.

• $\underline{T_S = 570\text{K}}$

Dans le cas du second profil de concentration, correspondant à une multicouche élaborée à 570K, la variation thermique de l'aimantation totale et par sous-réseau est présentée sur la figure 3.23.

Nous observons tout d'abord que les aimantations des couches de Fe sont semblables au cas précédent. Pour la couche constituée d'un alliage $Fe_{0,30}Dy_{0,70}$, l'aimantation représentée ici est renormée à l'aimantation ferrimagnétique de cet alliage, c'est-à-dire à $6,8\mu_B$/atome. On obtient pour ce profil une projection de l'aimantation dans la direction du champ magnétique de $M^x_{Dy-Fe}(300\text{K}) \sim 0,95\mu_B$/atome. A $T = 100$K, les couches sont fortement aimantées, cependant, les composantes de l'aimantation suivant x sont plus faibles ($M^x_{Dy-Fe}(100\text{K}) \sim 2\mu_B$/atome). L'évolution du profil de l'aimantation en fonction de la température est représentée sur la figure 3.23(a,b,c).

Notre modèle ne permet pas de rendre compte d'une aimantation perpendiculaire puisque nous n'avons pas introduit de terme d'anisotropie magnétique dans le Hamiltonien. Nous mettons seulement en évidence le fait que la compétition entre l'énergie Zeeman et les énergies d'échange peut donner lieu à une aimantation qui n'est pas colinéaire au champ magnétique appliqué à basse température et à une aimantation partielle du Dy même à une température supérieure à sa température de mise en ordre.

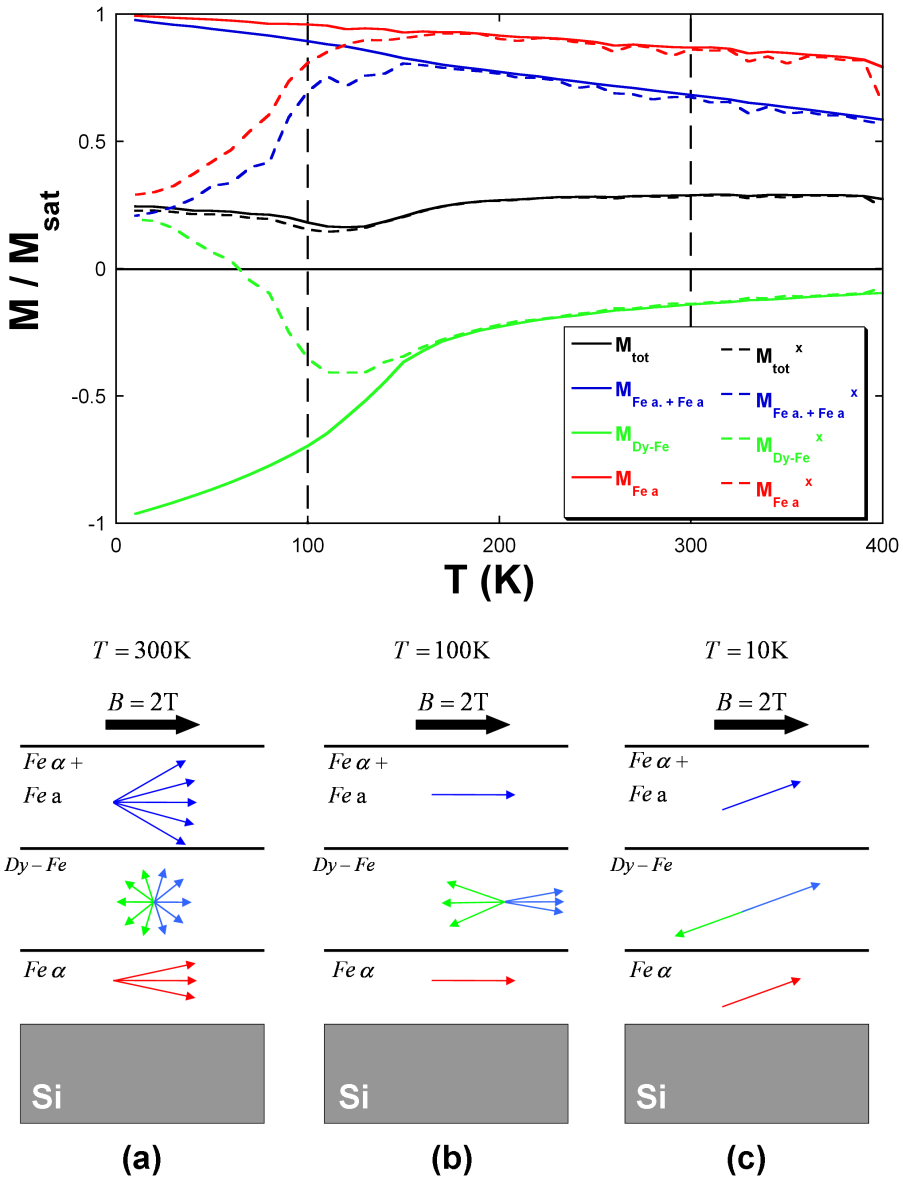

FIGURE 3.23 – Variation de l'aimantation totale et par sous-réseau, ainsi que la projection suivant la direction du champ magnétique appliqué (x) pour une tricouche élaborée à 570K ; (a,b,c) représentation schématique du profil d'aimantation en épaisseur en fonction de la température.

3.4 Conclusion

Nous avons élaboré un modèle qui permet de rendre compte des processus d'aimantation dans les alliages amorphes Fe-Dy en bon accord avec les résultats expérimentaux. Cette partie de notre étude nous a permis de valider les choix des interactions d'échange, et plus particulièrement leur dépendance avec la concentration locale.

Quel que soit le profil de concentration considéré, ce sont les atomes de Fe qui sont responsables de la mise en ordre (totale ou partielle) de la bicouche au voisinage de la température ambiante. L'influence de l'interaction d'échange Fe-Dy permet de mettre en ordre un plan de Dy pur à l'interface d'une bicouche abrupte. En raison de la diffusion atomique dans la bicouche, le profil d'aimantation n'est pas homogène. Cependant, il est important de distinguer

l'interface chimique qui sépare les couches riches en Fe de celles riches en Dy avec l'interface magnétique qui sépare les couches dont l'aimantation est dominée par le Fe ou par le Dy. En effet, comme nous l'avons montré dans l'étude des alliages homogènes FeDy, il existe une concentration ($X_{\mathrm{Fe}} = 0,84$) pour laquelle on observe une compensation magnétique à basse température. C'est cette concentration qu'il faut alors considérer comme étant le paramètre pertinent pour définir l'interface magnétique.

De plus nous avons constaté que la température de Curie augmente avec l'épaisseur de l'interface diffuse puisque l'on passe d'une situation où les mises en ordre des deux espèces chimiques sont décorrélées dans le cas d'un profil de concentration abrupt à la situation où la mise en ordre est globale dans le cas d'un alliage.

Chapitre 4

ANISOTROPIE MAGNETIQUE DANS LES MULTICOUCHES AMORPHES Fe/Dy

Ce chapitre est consacré à l'étude par simulation Monte Carlo des propriétés magnétiques des multicouches Fe/Dy en présence d'anisotropie magnétique sur les sites de dysprosium. Nous traiterons de l'influence de l'anisotropie magnétique aléatoire sur l'ordre magnétique non colinéaire. Nous étudierons également la direction de l'aimantation dans le cadre d'un modèle d'anisotropie magnétique constitué de deux types d'anisotropie.

Nous décrirons tout d'abord le modèle d'anisotropie magnétique que nous avons considéré, puis nous étudierons les propriétés à l'équilibre avant de terminer ce chapitre avec l'étude des cycles d'hystérésis et la comparaison aux résultats expérimentaux.

Les principales propriétés qui seront étudiées dans ce chapitre sont :

- la variation thermique de l'aimantation totale et par sous-réseau ($M(T)$) ;
- la variation thermique de l'aimantation par plan ;
- le profil d'aimantation en épaisseur ;
- l'influence de l'anisotropie aléatoire sur les cycles d'hystérésis.

4.1 Description du modèle

4.1.1 Modèle de Mergel

L'anisotropie magnétique dans les multicouches Fe/Dy concerne principalement les sites de TR, on négligera donc les contributions plus faibles (anisotropie magnétique des atomes de fer, anisotropie de forme, ...). Cependant, l'introduction d'un terme d'énergie d'anisotropie magnétique aléatoire ne peut permettre de reproduire l'orientation perpendiculaire de l'aimantation, c'est pourquoi nous devons introduire une autre contribution énergétique de l'anisotropie magnétique.

Pour cela, nous nous sommes concentré sur le modèle de Mergel [Mergel 1993] qui suppose l'existence de petites cellules cristallisées dans les multicouches amorphes. Ce modèle permet de donner une origine physique à l'existence d'une anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches MT/TR.

Mergel et *al.* proposent un modèle d'anisotropie structurale locale afin d'expliquer l'origine de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches d'alliages à base de métaux de transition et de terres rares. L'hypothèse de ce modèle est que durant la croissance plan par plan de la multicouche, il y aurait formation de petites cellules planaires hexagonales définissant en moyenne un axe préférentiel perpendiculaire au plan des couches. Ces cellules auraient des structures similaires à celle du cristal relaxé. C'est un modèle d'ordre à courte distance, à l'échelle de quelques distances interatomiques. La structure relaxée crée une contribution supplémentaire de champ électrostatique sur les sites de TR avec une composante moyenne perpendiculaire au plan des couches, conduisant à une anisotropie magnétique perpendiculaire via le couplage spin-orbite. Le maximum d'anisotropie magnétique perpendiculaire est alors attendu pour la composition donnant le maximum de cellules hexagonales. Ce modèle est à rapprocher du modèle de corrélation de paires qui suppose une répartition anisotrope des paires [Harris 1992].

Des mesures d'EXAFS [Bordel 1997, Harris 1992] ont corroboré cette hypothèse en montrant l'existence d'un ordre local dans les alliages Fe-Tb supposés amorphes et homogènes. Plus récemment, Tamion et *al.* ont montré que ce modèle semblait être le plus à même d'expliquer les résultats expérimentaux sur l'existence d'une anisotropie magnétique perpendiculaire lorsque la

température d'élaboration des échantillons est de 570K, les autres modèles étant mis en défaut. L'anisotropie magnétique perpendiculaire résulterait donc, via le fort couplage spin-orbite sur les sites de TR, d'un ordre pseudo-cristallin local dans les alliages MT-TR.

En effet, le moment magnétique de terre rare s'oriente perpendiculairement au plan du substrat dans le cas du Dy en raison de la symétrie de l'orbitale *4f* de la terre rare dans ce type de structure cristalline. Par l'effet du couplage entre les deux espèces chimiques (anti-parallèle dans notre cas), le moment magnétique du métal de transition s'oriente également perpendiculairement au plan (figure 4.1).

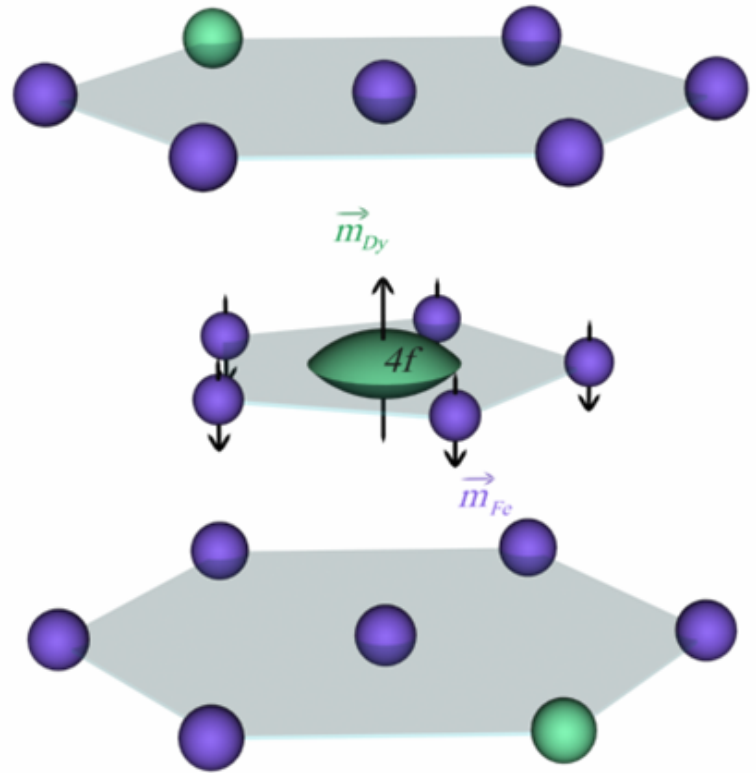

FIGURE 4.1 – Représentation schématique de l'arrangement des atomes dans les amas cristallisés dans le cadre du modèle de Mergel [Mergel 1993].

4.1.2 Modélisation des amas

Nous avons choisi, dans cette approche, de modéliser ces petites cellules cristallisées par des amas composés de 13 atomes (un atome et ses 12 premiers voisins du réseau CFC) comme le montre la figure 4.2.

L'atome central est un atome de Fe, les quatres voisins de celui-ci appartenant au même plan sont également des atomes de Fe. Parmi les 8 autres atomes restants, on distribue aléatoirement entre 2 et 4 atomes de Dy afin d'avoir une concentration en dysprosium comprise entre 15 et 30% ce qui permet d'obtenir une gamme de concentration proche de celle des composés cristallisés définis FeDy ($DyFe_2$, $DyFe_3$, Dy_6Fe_{23} et Dy_2Fe_{17}), les autres sites étant alors occupés par des atomes de Fe. Dans ces amas, on impose sur les sites de terre rare une direction d'anisotropie colinéaire à la direction de la liaison entre l'atome de Fe central et l'atome de Dy considéré (figure 4.2). Les autres sites de Dy, c'est-à-dire ceux qui n'appartiennent pas aux amas, sont

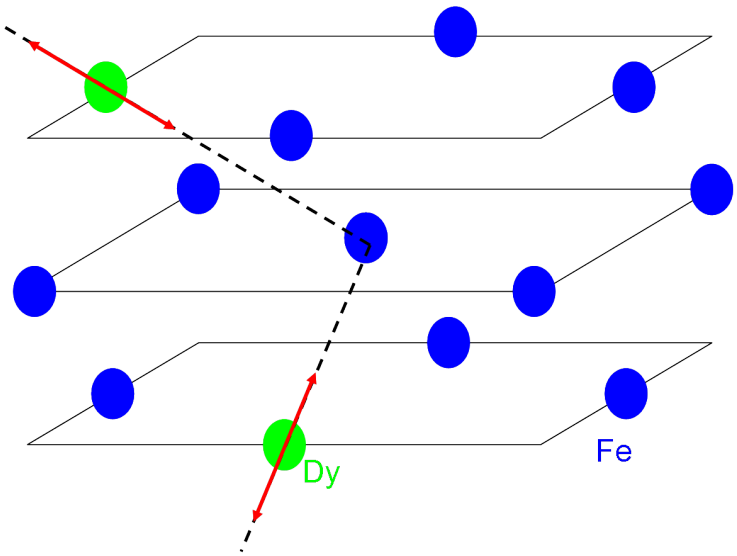

FIGURE 4.2 – Représentation schématique des amas introduits dans notre modèle avec en bleu les atomes de Fe, en vert les atomes de Dy, les flèches rouges représentent les directions d'anisotropie magnétique locale.

dotés d'une anisotropie de direction aléatoire, en accord avec les observations expérimentales faites sur les terres rares dans les composés amorphes. Nous avons considéré la même valeur du coefficient d'anisotropie D_{Dy} sur tous les sites de Dy.

De plus, afin de tenir compte de la présence de Fe cristallin dans ces cellules, nous avons considéré que l'interaction d'échange entre les moments magnétiques de Fe appartenant aux amas était plus importante que celle du cas amorphe. Nous l'avons estimée, à partir de la température de Curie du Fe α et de la température du modèle de Heisenberg dans le réseau CFC (equation 3.6), à $J^{\mathrm{amas}}_{\mathrm{Fe-Fe}} = 230\mathrm{K}$.

L'énergie totale du système peut donc s'écrire :

$$E_{\mathrm{tot}} = -\sum_{<i,j>} J_{ij}(\mathbf{S}_i.\mathbf{S}_j) - D_{\mathrm{Dy}}\left\{\sum_{\mathrm{Dy}\in\mathrm{amas}} (\mathbf{S}_i.\mathbf{z}_i)^2 + \sum_{\mathrm{Dy}\in\mathrm{matrice}} (\mathbf{S}_i.\mathbf{n}_i)^2\right\}, \tag{4.1}$$

où $\mathbf{z}_i$ est un vecteur unitaire dans une direction d'anisotropie locale des amas et $\mathbf{n}_i$ est un vecteur unitaire indiquant une direction d'anisotropie locale aléatoire.

La concentration d'amas localement ordonnés varie entre 5% et 20%, elle correspond au nombre d'atomes constituant les amas rapporté au nombre total d'atomes dans la bicouche. On peut également définir la concentration d'atomes de Dy appartenant aux amas, c'est-à-dire de sites ayant une direction d'anisotropie magnétique non aléatoire, rapporté au nombre total d'atomes dans la bicouche ($C^{\mathrm{total}}_{\mathrm{Dy\ amas}}$) ou rapporté au nombre total d'atomes de Dy ($C^{\mathrm{Dy}}_{\mathrm{Dy\ amas}}$). Ces concentrations sont regroupées dans le tableau 4.1.

Par ailleurs, la localisation des amas dépend du profil de concentration. Dans le cas du profil de concentration abrupt, les amas seront répartis aléatoirement parmi les quatre plans d'interface (deux plans d'interface de la couche de Fe et deux plans d'interface de la couche de Dy). Pour les profils plus diffus (sonde et alliage) qui ne comptent aucun plan pur, les amas sont distribués aléatoirement dans l'ensemble de la bicouche. Enfin, compte tenu de la répartition

Concentration d'amas	5%	10%	20%
$C^{\text{total}}_{\text{Dy amas}}$	$1,1\%$	$2,3\%$	$4,6\%$
$C^{\text{Dy}}_{\text{Dy amas}}$	$3,4\%$	$6,9\%$	$13,8\%$

TABLEAU 4.1 – Concentration d'atomes de Dy appartenant aux amas ($C^{\text{total}}_{\text{Dy amas}}$) et concentration d'atomes de Dy appartenant aux amas par rapport au nombre total d'atomes de Dy ($C^{\text{Dy}}_{\text{Dy amas}}$) pour différentes concentrations d'amas.

des atomes en fonction du profil de concentration, il n'est pas possible de générer des structures avec plus de 5% d'amas dans le cas du profil de concentration abrupt.

4.1.3 Paramètres numériques

L'ensemble des simulations effectuées pour l'étude de la variation thermique de l'aimantation des multicouches Fe/Dy a été réalisé avec les paramètres numériques suivants :

- nombre total d'atomes : 28800 (36 plans atomiques de 800 atomes) ;
- température initiale : $T_i = 400\text{K}$;
- température finale : $T_f = 1\text{K}$;
- pas en température : $\Delta T = 10\text{K}$;
- nombre de pas Monte Carlo de thermalisation : 5000 ;
- nombre de pas Monte Carlo pour la moyenne des grandeurs thermodynamiques : 10000 ;
- conditions aux bords périodiques dans le plan des couches ;
- nombre de configurations chimiques initiales : 20 à 100.

Les différents paramètres variables sont :

- le profil de concentration ;
- la concentration d'amas ordonnés ;
- la valeur de la constante d'anisotropie magnétique sur les sites de Dy (D_{Dy}).

Les paramètres utilisés pour la simulation Monte Carlo de cycles d'hystérésis seront donnés dans la section 4.5.

4.2 Etude d'alliages amorphes : influence de l'anisotropie aléatoire

Nous avons considéré un alliage amorphe $Fe_{67}Dy_{33}$ avec une direction d'anisotropie magnétique aléatoire sur chaque site de Dy pour différentes valeurs du coefficients d'anisotropie magnétique D_{Dy}.

Nous avons représenté sur la figure 4.3 la variation thermique de l'aimantation globale et par sous-réseau de l'alliage pour $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 1, 5, 10, 20, 50, 100\text{K}$. Les résultats sont moyennés sur 20 configurations chimiques initiales différentes.

Nous constatons tout d'abord que l'introduction d'un terme d'anisotropie aléatoire sur les sites de Dy, quelle que soit la valeur du coefficient d'anisotropie, n'induit pas de modification de

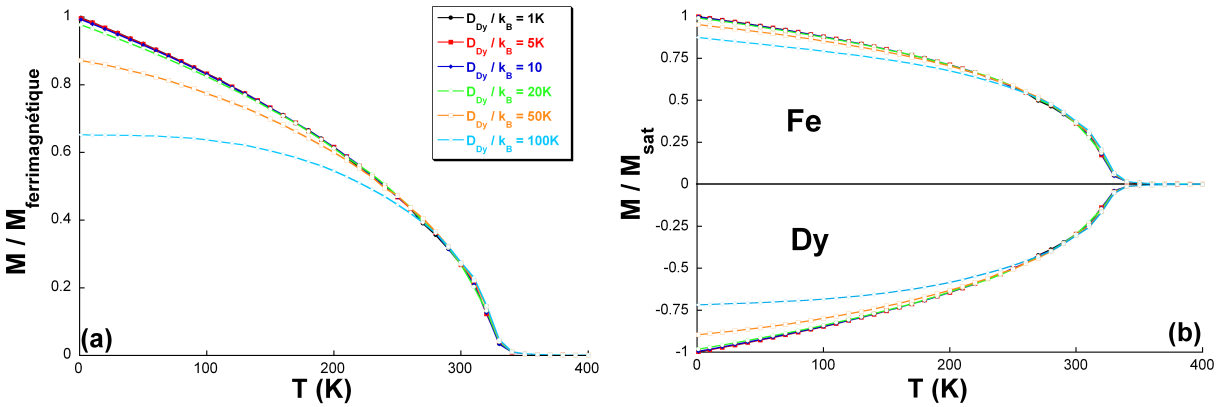

FIGURE 4.3 – Variation thermique de l'aimantation globale et par sous-réseau d'un alliage amorphe $Fe_{67}Dy_{33}$ en fonction de D_{Dy} ((a) aimantation totale ; (b) aimantation par sous-réseau).

la température de Curie ($T_C = 330$K). Comme nous l'avons vu précédemment, la mise en ordre intervient à haute température pour les deux espèces chimiques mais est initiée par le sous-réseau de fer. La direction de l'aimantation demeure quelconque puisque le terme d'anisotropie aléatoire n'induit pas de direction préférentielle.

Par ailleurs, l'aimantation globale à basse température diminue lorsque le coefficient d'anisotropie augmente, ce qui indique que l'ordre à basse température ne correspond plus à un état ferrimagnétique. Pour des valeurs de $D_{Dy}/k_B \geq 20$K, il apparait que l'ordre magnétique à basse température présente une dispersion des moments magnétiques de Dy et/ou de Fe autour de la direction moyenne. En observant la variation thermique de l'aimantation par sous-réseau (figure 4.3(b)), on constate, comme attendu, que la diminution de l'aimantation est toujours plus importante sur le sous-réseau de Dy que sur celui du Fe. On note également l'existence d'une température que l'on peut assimiler à une température de gel pour les valeurs élevées de la constante d'anisotropie magnétique (à partir de $D_{Dy}/k_B = 100$K). En-deçà de cette température, l'aimantation n'évolue plus et l'ordre magnétique non colinéaire semble gelé.

Nous avons regroupé dans le tableau 4.2 les valeurs des aimantations globale et par sous-réseau à $T = 1$K pour les différentes valeurs de D_{Dy}/k_B.

D_{Dy}/k_B (K)	1	5	10	20	50	100
$M(1K)/M_{ferri}$	0,998	0,997	0,993	0,977	0,872	0,653
$M_{Fe}(1K)/M_{sat}^{Fe}$	0,998	0,998	0,996	0,990	0,951	0,874
$M_{Dy}(1K)/M_{sat}^{Dy}$	0,998	0,997	0,994	0,981	0,895	0,718

TABLEAU 4.2 – Valeur de l'aimantation réduite globale et par sous-réseau à $T = 1$K en fonction de D_{Dy}/k_B.

• Mécanismes

La compétition entre l'énergie d'échange des paires Dy-Dy et l'énergie d'anisotropie magnétique aléatoire va conduire au développement de structures aspéromagnétiques sur le sous-réseau de Dy (figure 1.18). Sous l'effet du couplage $J_{\mathrm{Fe-Dy}}$, cette dispersion va se transmettre partiellement au sous-réseau de Fe, donnant lieu à des structures spérimagnétiques. Cependant, la dispersion des moments magnétiques des deux sous-réseaux dépend de la valeur relative des interactions d'échange par rapport à la valeur du coefficient d'anisotropie magnétique. On peut résumer l'influence de chaque interaction par la figure 4.4.

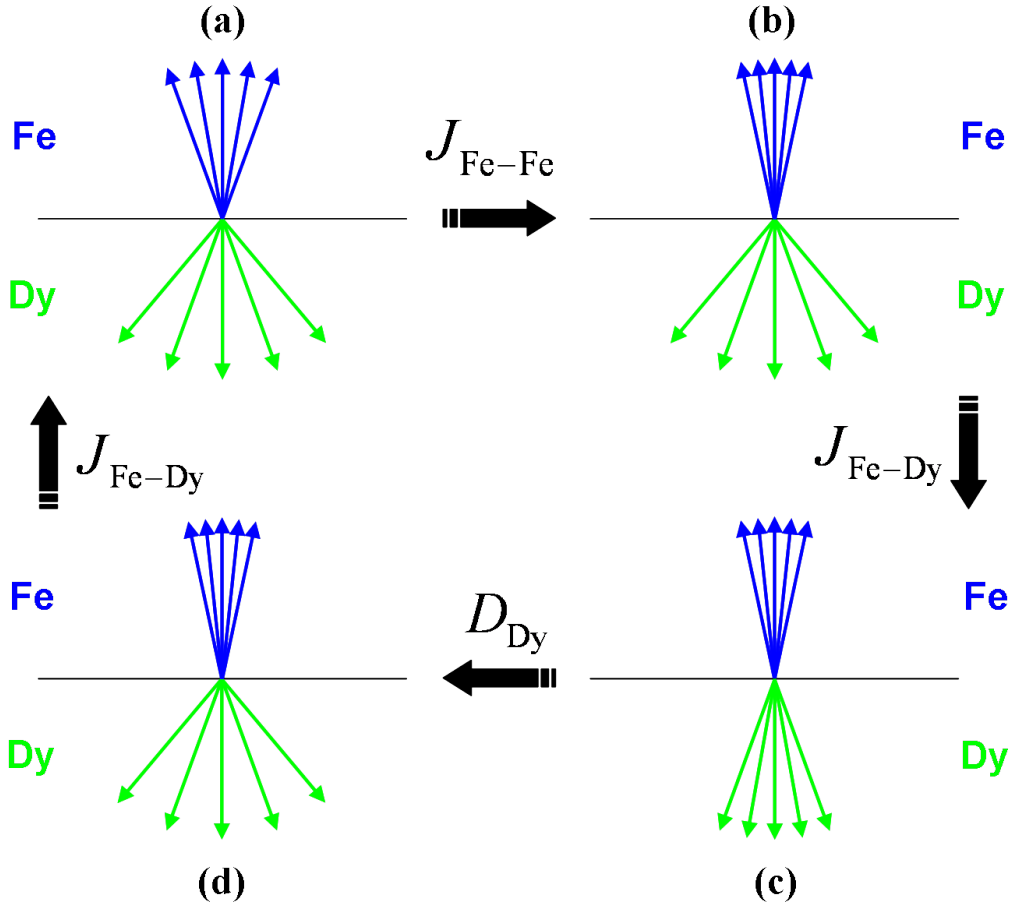

FIGURE 4.4 – Représentation schématique de l'influence de chaque interaction sur la structure spérimagnétique.

Partant d'une structure spérimagnétique donnée ((figure 4.4(a)), l'état d'équilibre est conditionné par les effets suivants :

- l'interaction $J_{\mathrm{Fe-Fe}}$ referme le cône des moments magnétiques de Fe ((figure 4.4(b)) ;
- l'interaction $J_{\mathrm{Fe-Dy}}$ referme le cône des moments magnétiques de Dy ((figure 4.4(c)) ;
- l'anisotropie magnétique aléatoire (D_{Dy}) ouvre le cône des moments magnétiques de Dy ((figure 4.4(d)) ;
- l'interaction $J_{\mathrm{Fe-Dy}}$ ouvre le cône des moments magnétiques de Fe ((figure 4.4(a)).

De plus, l'influence de l'anisotropie aléatoire intervient à d'autant plus haute température que le coefficient d'anisotropie est élevé. Ce phénomène s'explique par le fait que le Dy s'ordonne à la même température que le Fe du fait de la forte imbrication des deux espèces chimiques.

• Distributions des moments magnétiques

Afin d'illustrer quantitativement l'ordre magnétique non colinéaire, nous avons représenté sur la figure 4.5 les distributions des moments magnétiques de Dy à $T = 1\text{K}$ pour différentes valeurs de $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}}$.

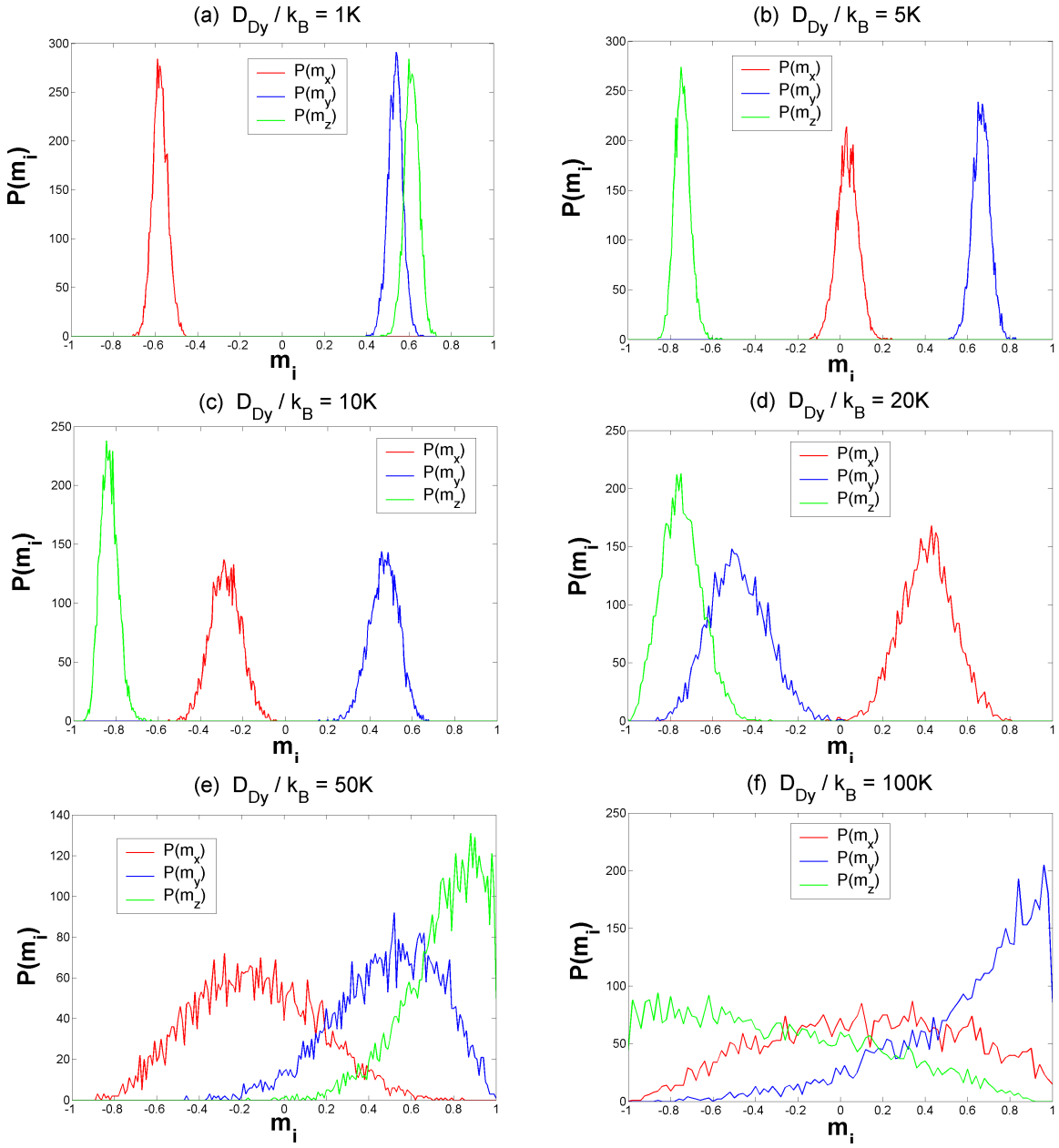

FIGURE 4.5 – Distribution des moments magnétiques (pour une configuration initiale) de Dy selon les trois composantes x, y et z en fonction de $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}}$ dans le cas d'un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ ((a) $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 1\text{K}$; (b) $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 5\text{K}$; (c) $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 10\text{K}$; (d) $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 20\text{K}$; (e) $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 50\text{K}$; (f) $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 100\text{K}$).

Si le coefficient d'anisotropie est inférieur à 20K, les distributions des moments magnétiques de Dy correspondent à des distributions gaussiennes dont la largeur augmente avec D_{Dy}. Il est alors possible de déterminer un angle maximum d'ouverture du cône par un ajustement numérique des distributions par une gaussienne. Les demi-angles de cône d'ouverture (moyennés sur 20 simulations) sur les sous-réseaux de Fe et de Dy sont regroupés dans le tableau 4.3.

D_{Dy}/k_B (K)	1	5	10	20
$\theta_{Fe}/2$ (°)	5,7	6,4	8,1	14,0
$\theta_{Dy}/2$ (°)	5,9	7,5	10,5	19,8

TABLEAU 4.3 – Demi-angle de cône de dispersion des moments magnétiques de Fe et de Dy en fonction de D_{Dy}/k_B.

Les distributions confirment que l'angle de cône du Dy est toujours supérieur à celui du Fe. Au-delà de $D_{Dy}/k_B \sim 20$K, les distributions des moments ne sont plus assimilables à des distributions gaussiennes et nous ne pouvons plus définir un angle maximum de dispersion des moments magnétiques comme nous l'avons fait précédemment.

L'anisotropie magnétique aléatoire induit donc le développement dans ces structures d'un ordre spérimagnétique nettement marqué dès lors que $D_{Dy}/k_B \geq 20$K. Les moments magnétiques de Dy et de Fe sont alors dispersés de façon non uniforme à l'intérieur d'un cône centré sur la direction moyenne de l'aimantation. Nos résultats sont cependant en contradiction avec l'hypothèse usuelle supposant que la distribution des moments magnétiques à l'intérieur d'un cône est uniforme [Coey 1976, Gu 1990, Ishio 1993].

4.3 Multicouches Fe/Dy sans anisotropie aléatoire : influence des amas

Comme nous l'avons vu précédemment, le modèle le plus adapté à la description des résultats expérimentaux qui nous servent de référence est le modèle de Mergel. Ce modèle, qui repose sur l'existence d'amas cristallisés de très petite dimension, permet de comprendre, dans certaines conditions, l'obtention d'une aimantation dans la direction perpendiculaire. Nous avons donc étudié l'influence de l'introduction des amas sur la direction de l'aimantation afin d'évaluer la façon dont évolue la composante perpendiculaire de l'aimantation en fonction des paramètres variables du modèle (D_{Dy}, concentration d'amas et profil de concentration). Pour cela, nous avons considéré uniquement de l'anisotropie magnétique selon les liaisons Fe-Dy sur les sites de Dy appartenant aux amas, en l'absence d'anisotropie aléatoire.

L'ensemble des résultats présentés dans cette partie résultent de simulations effectuées sur un grand nombre de configurations chimiques initiales différentes (entre 20 et 100).

4.3.1 Mise en ordre des amas

Nous avons représenté sur la figure 4.6 la variation thermique de l'aimantation des atomes de Fe et de Dy constituant les amas dans le cas d'une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas et $D_{Dy}/k_B = 10$K (moyenne sur 100 configurations initiales différentes).

On remarque que les atomes de Fe et de Dy constituant les amas s'ordonnent à haute température (≈ 300K). Dans ce cas particulier du profil abrupt, on note même que la température de mise en ordre des atomes appartenant aux amas est légèrement supérieure à celle d'une

couche de Fe isolée. Ceci s'explique simplement par le rôle de l'interaction d'échange Fe-Dy qui, comme nous l'avons vu précédemment, favorise une mise en ordre à plus haute température que dans le cas du fer pur (effet d'alliage). Le fait important est la mise en ordre rapide et à haute température des atomes de Dy des amas.

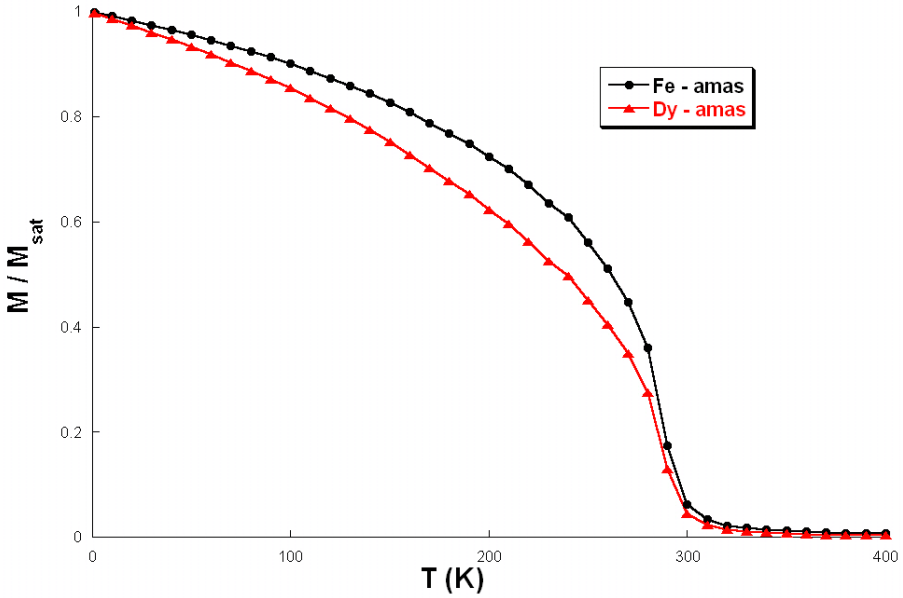

FIGURE 4.6 – Variation thermique de l'aimantation des atomes de Fe et de Dy constituant les amas dans le cas d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas et $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10\mathrm{K}$ (moyenne sur 100 configurations initiales différentes).

Nous ne présentons pas les résultats ici, mais cette observation se retrouve systématiquement, quel que soit le profil de concentration étudié, la concentration d'amas et la valeur du coefficient d'anisotropie magnétique.

4.3.2 Influence du profil de concentration

Nous avons représenté sur la figure 4.7 la distribution (obtenue à partir de 100 simulations) à très basse température ($T = 1\mathrm{K}$) de la composante perpendiculaire de l'aimantation du sous-réseau de Dy pour les différents profils de concentration.

On remarque tout d'abord que l'aimantation est perpendiculaire quel que soit le profil de concentration, la concentration d'amas et dès lors que le coefficient d'anisotropie magnétique est supérieur ou égal à 5K. En effet, chaque histogramme présente une distribution piquée sur $M_z^{\mathrm{Dy}}/M_{\mathrm{sat}}^{\mathrm{Dy}} \sim 1$, c'est-à-dire que l'ensemble des 100 configurations chimiques initiales donne lieu à une aimantation perpendiculaire à basse température. On peut cependant noter une légère influence de la constante d'anisotropie magnétique $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$. On observe une augmentation significative de la composante perpendiculaire avec le coefficient d'anisotropie magnétique, c'est-à-dire la disparition des pics de plus faible amplitude au profit du pic principal ($M_z^{\mathrm{Dy}}/M_{\mathrm{sat}}^{\mathrm{Dy}} \in [0,98;1,00]$). Pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 20\mathrm{K}$, et quel que soit le profil de concentration, on note l'existence d'un pic unique en $M_z^{\mathrm{Dy}}/M_{\mathrm{sat}}^{\mathrm{Dy}} = 1$, traduisant une excellente reproductibilté et fiabilité de nos résultats, définissant clairement une aimantation perpendiculaire à basse température.

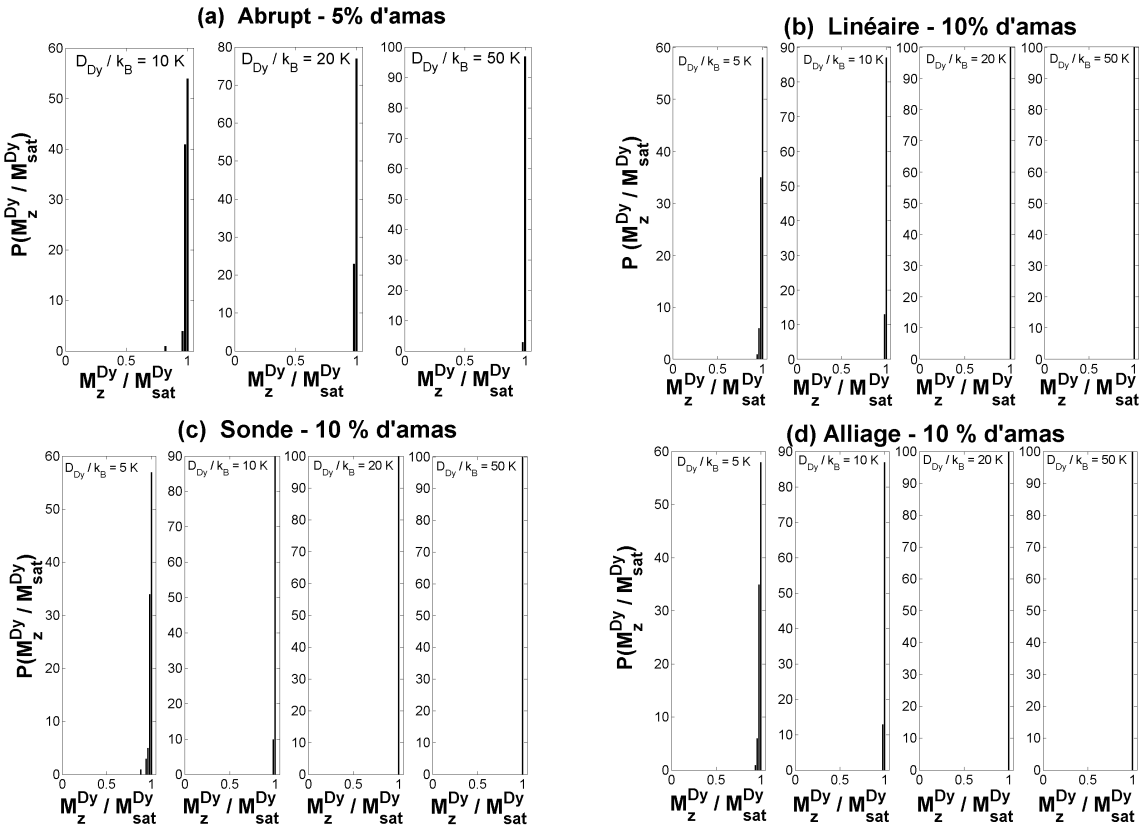

FIGURE 4.7 – Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation réduite à $T = 1$K d'une multicouche avec un profil de concentration ((a) abrupt contenant 5% d'amas, (b) linéaire avec 10% d'amas, (c) sonde avec 10% d'amas (d) alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ avec 10% d'amas (moyenne sur 100 configurations)).

Nous vérifions à partir de ces résultats que l'introduction d'amas même en faible proportion dans la bicouche donne lieu à une aimantation globalement perpendiculaire à basse température. Il est à noter toutefois que pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} < 5$K, certaines configurations métastables peuvent apparaître.

4.3.3 Influence de la température

Nous avons représenté sur la figure 4.8 la distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation en fonction du coefficient d'anisotropie magnétique pour une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas à différentes températures.

On remarque que les distributions se reserrent lorsque la température diminue, conduisant à une aimantation perpendiculaire à basse température. Par ailleurs, les distributions s'affinent autour de $M_z^{\mathrm{Dy}}/M_{\mathrm{sat}}^{\mathrm{Dy}} = 1$ lorsque la constante d'anisotropie magnétique augmente. Ces deux phénomènes sont étroitement liés. A haute température ($T = 250$K), la valeur de la constante d'anisotropie détermine la direction de l'aimantation (isotrope pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$K, perpendiculaire pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K). Cette évolution de la composante perpendiculaire de l'aimantation en fonction de la température et du coefficient d'anisotropie magnétique se retrouve sur l'ensemble des profils de concentration considérés dans cette étude.

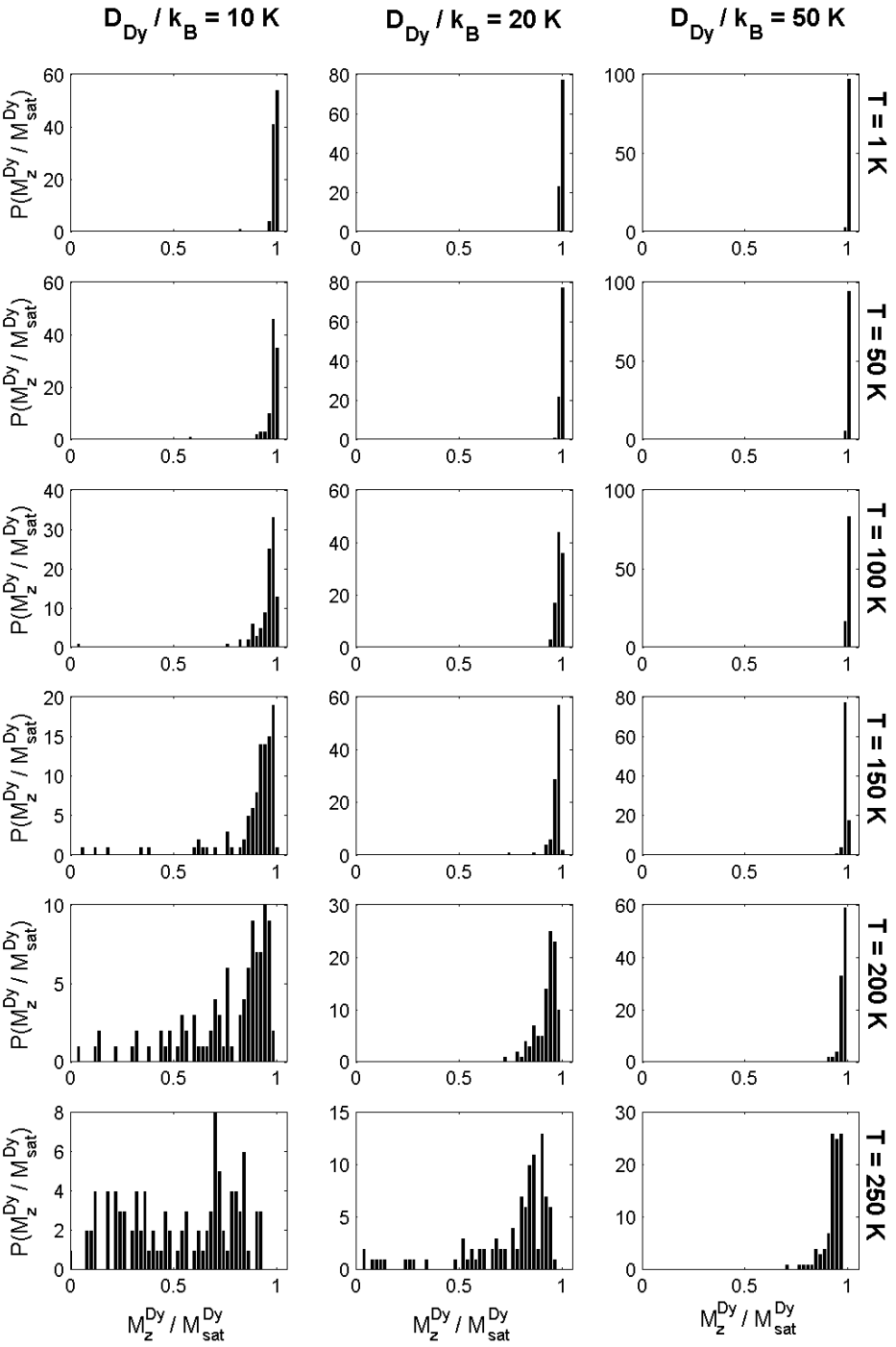

FIGURE 4.8 – Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation du sous-réseau de Dy d'une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas en fonction de la température ($T = 1, 50, 100, 150, 200, 250$K) pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10, 20, 50$K (moyenne sur 100 configurations).

De façon complémentaire, nous avons représenté sur la figure 4.9 les distributions de la composante perpendiculaire de l'aimantation du sous-réseau de Dy à $T = 250$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K avec les différents profil de concentration. Quel que soit le profil, en moyenne, l'aimantation est globalement perpendiculaire au plan des couches. Cependant, on observe des différences significatives des distributions en fonction du profil de concentration. En effet, la distribution est plus large dans le cas du profil de concentration abrupt comparativement aux profils plus mélangés (sonde et alliage) mais il convient de noter que les multicouches avec le profil abrupt ne contiennent que 5% d'amas. Avec le modèle d'amas utilisé, le mélange chimique semble privilégier la direction perpendiculaire dès la mise en ordre.

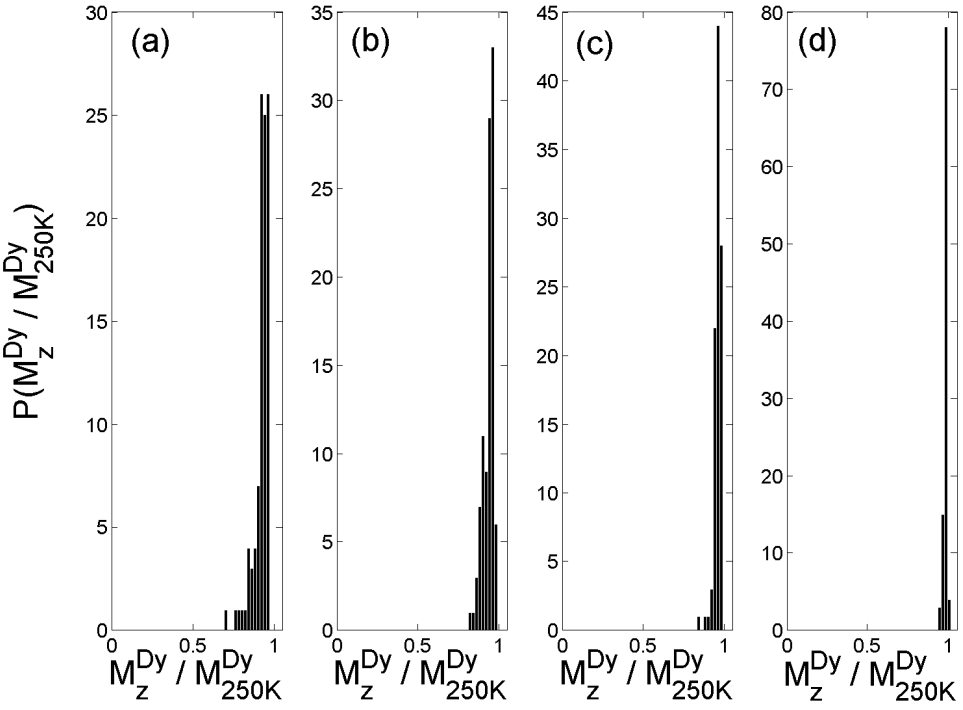

FIGURE 4.9 – Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation du sous-réseau de Dy à $T = 250$K et pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K en fonction du profil de concentration ((a) abrupt 5% ; (b) linéaire 10% ; (c) sonde 10 % ; (d) alliage 10 % (moyenne sur 100 configurations)).

Seuls les sites de Dy qui constituent les amas ordonnés sont dotés d'une anisotropie magnétique, c'est-à-dire une proportion très faible de sites sur l'ensemble de la bicouche (tableau 4.1). L'influence de l'anisotropie magnétique en fonction de la température est principalement déterminée par la valeur de la constante d'anisotropie magnétique. Plus cette constante est élevée, plus l'anisotropie joue un rôle important à haute température.

Le profil de concentration joue également un rôle important sur la direction de l'aimantation. Son influence se décompose principalement en trois effets :

- température de mise en ordre, en particulier pour le sous-réseau de Dy ;
- répartition spatiale des amas ordonnés (localisés à l'interface dans le cas du profil abrupt, distribution homogène dans le volume pour les profils sonde et alliage) ;
- interactions d'échange en fonction du profil (par l'intermédiaire de la concentration par plan).

La direction de l'aimantation, induite par la contribution de l'anisotropie magnétique des atomes de Dy appartenant aux amas, se transmet à l'ensemble des moments magnétiques via les différentes interactions d'échange. L'imbrication des deux sous-réseaux et la répartition spatiale des amas va donc influencer fortement la direction de l'aimantation durant la mise en ordre. Un profil diffus favorisera une mise en ordre globale des moments magnétiques suivant la même direction dès les hautes températures, contrairement à un profil plus abrupt pour lequel la mise en ordre des deux espèces chimiques est décorrélée.

On peut alors conclure sur l'influence des amas en mettant clairement en évidence une direction perpendiculaire de l'aimantation à basse température pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 5\mathrm{K}$. Un profil de concentration diffus favorise, par effet de mélange, une mise en ordre plus globale dans la direction perpendiculaire à haute température.

Ces résultats sont en accord avec les résultats expérimentaux qui ont montré qu'une multicouche avec un profil de concentration diffus présente une aimantation perpendiculaire à plus haute température qu'une multicouche avec des interfaces "abruptes" [Tamion 2005].

4.4 Multicouches Fe/Dy avec anisotropie aléatoire et en présence d'amas

Nous allons étudier dans cette partie les propriétés d'équilibre des multicouches amorphes Fe/Dy dans le cadre de notre modèle d'anisotropie magnétique d'amas ordonnés. Nous nous intéresserons plus particulièrement à la compétition entre l'anisotropie aléatoire des atomes de Dy de la matrice et l'anistropie magnétique des atomes de Dy constituant les amas à basse température en fonction du profil de concentration, de la concentration d'amas et de la valeur de la constante d'anisotropie magnétique sur les sites de Dy. Enfin nous terminerons par étudier l'influence de la température sur les structures magnétiques [Talbot 2008].

4.4.1 Profil d'aimantation

Nous avons effectué cette étude pour les quatre profils de concentration (abrupt, linéaire, sonde et alliage), et pour une constante d'anisotropie magnétique $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ variant de 1K à 50K. Nous nous attacherons particulièrement à décrire les configurations magnétiques obtenues dans les cas présentant une structure spérimagnétique.

4.4.1.1 Profil de concentration abrupt

Nous avons représenté sur la figure 4.10 la variation thermique de l'aimantation totale et par sous-réseau d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas pour un coefficient d'anisotropie variant de 1K à 50K.

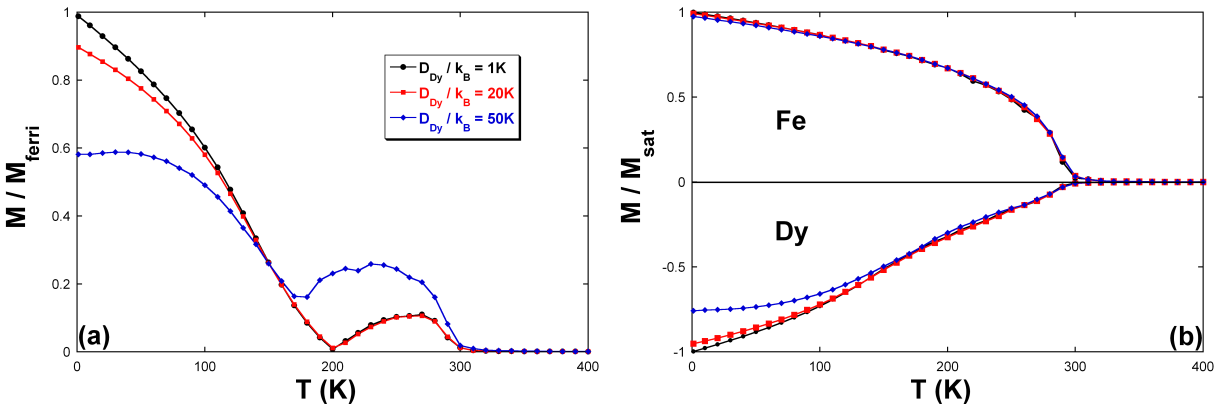

FIGURE 4.10 – Variation thermique de l'aimantation totale (a) et par sous-réseau (b) d'une multicouche avec un profil abrupt contenant 5% d'amas pour différentes valeurs du coefficient d'anisotropie magnétique.

Nous observons tout d'abord que la valeur de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ ne modifie pas la valeur de la température de Curie, mais augmente celle de la température de compensation (figure 4.10(a)) qui se situe à 200K. En effet, comme nous l'avons vu précédemment, la mise en ordre à haute température correspond à celle des moments magnétiques de Fe, qui ne sont pas influencés par l'anisotropie magnétique des sites de Dy. Ici, ce sont les amas ordonnés situés à l'interface qui favorisent une mise en ordre à plus haute température des plans de Dy d'interface. On remarque également que l'aimantation diminue lorsque $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ augmente pour des températures inférieures à la température de compensation magnétique. L'aimantation n'est donc plus ferrimagnétique à basse température dès que $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} > 1\mathrm{K}$.

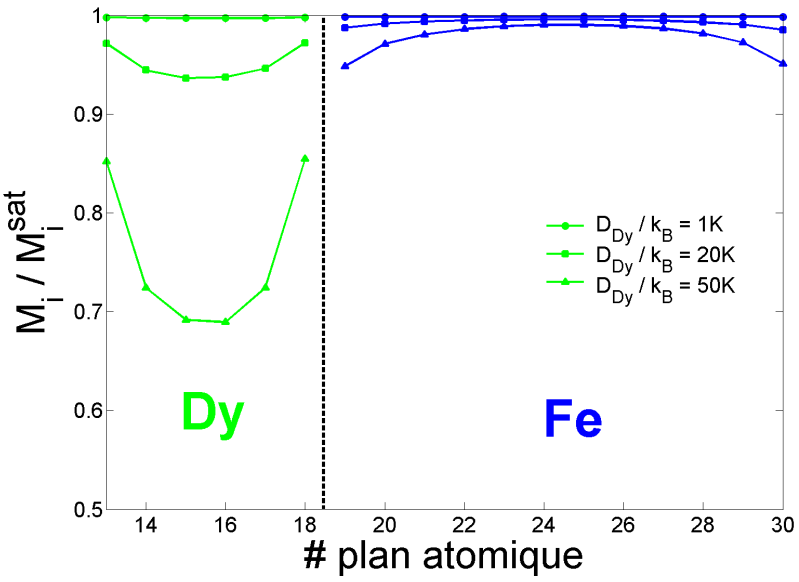

FIGURE 4.11 – Aimantation par plan à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1, 20, 50\mathrm{K}$ d'une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas (moyenne sur 20 configurations).

La figure 4.10(b) qui représente la variation thermique de l'aimantation par sous-réseau montre que la valeur du coefficient d'anisotropie n'influe pas sur la mise en ordre du Fe, qui

commence toujours à haute température. Le sous-réseau de Fe s'ordonne jusqu'à un ordre ferromagnétique à température nulle. Cependant, la situation est différente pour le sous-réseau de Dy, puisque l'on observe que la valeur de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ modifie significativement la valeur de son aimantation en deçà de la température de compensation. La valeur de l'aimantation diminue quand $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ augmente, et ce phénomène intervient à une température d'autant plus élevée que $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ est grand. On notera cependant que la mise en ordre à haute température des plans de Dy situés à l'interface n'est pas modifiée.

Nous pouvons en conclure que la diminution de l'aimantation totale de la bicouche provient en fait de l'influence de l'anisotropie aléatoire sur la couche de Dy, le sous-réseau de fer n'étant pas concerné par ce phénomène. Nous avons donc apparition d'un ordre magnétique non colinéaire à basse température sur le sous-réseau de Dy, et ce dès les faibles valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$.

Afin de décrire plus précisément l'influence de l'anisotropie aléatoire le long de la bicouche, nous avons représenté sur la figure 4.11 la valeur de l'aimantation par plan à $T = 1\mathrm{K}$ pour trois valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$.

Comme nous l'avons vu précédemment, le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ correspond à un ordre ferrimagnétique à basse température, ce que l'on confirme par l'aimantation par plan qui est saturée correspondant à un ordre ferromagnétique par plan. Pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 20\mathrm{K}$ et $50\mathrm{K}$, les aimantations par plan varient, principalement dans la couche de Dy, et au niveau de l'interface. En effet, comme nous pouvons l'observer pour le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 20\mathrm{K}$, le sous-réseau de Fe est saturé pour les plans de coeur et faiblement désaligné aux interfaces. L'aimantation par plan du sous-réseau de Dy n'est jamais saturée, et diminue en s'éloignant de l'interface. L'évolution est comparable pour le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50\mathrm{K}$, avec une diminution plus rapide des aimantations par plan dans la couche de Dy, et une diminution plus importante de l'aimantation des plans de Fe à l'interface, c'est-à-dire en interaction directe avec la couche de Dy.

Nous avons représenté sur la figure 4.12 la distribution des moments magnétiques de quatre plans différents pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50\mathrm{K}$.

On peut ainsi déterminer avec une assez bonne précision la répartition spatiale des moments autour de la direction perpendiculaire en fonction de l'épaisseur. Les plans de Dy (figure 4.12(a) et (b)) sont caractérisés par une distribution étalée. La dispersion des moments magnétiques augmente lorsqu'on s'éloigne de l'interface du fait de l'influence décroissante du couplage d'échange d'interface au profit de la contribution importante de l'anisotropie aléatoire. Pour le plan de Fe situé à l'interface (figure 4.12(c)), la distribution est peu élargie traduisant ici une faible dispersion des moments magnétiques de fer autour de la direction moyenne de l'aimantation. Cet effet résulte du couplage Fe-Dy à l'interface qui transmet partiellement l'effet de l'anisotropie aléatoire au sous-réseau de Fe. Les plans de fer pur "éloignés" de l'interface (figure 4.12(d)) montrent une distribution piquée qui met en évidence l'ordre ferromagnétique saturé déjà observé précédemment. On notera également que ces distributions mettent en évidence une mise en ordre préférentielle dans la direction perpendiculaire au plan des couches.

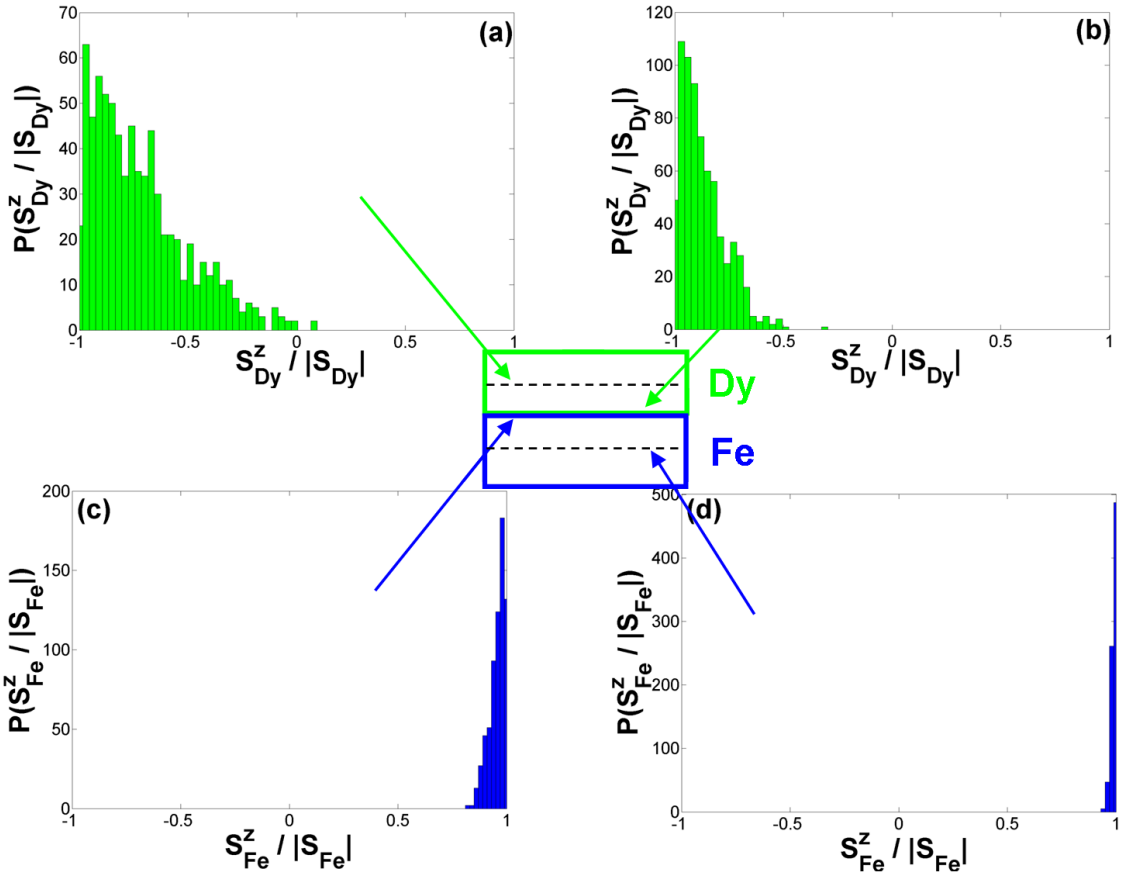

FIGURE 4.12 – Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation réduite pour une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K ((a) plan 15 - Dy (coeur) ; (b) plan 18 - Dy (interface) ; (c) plan 19 - Fe (interface) ; (d) plan 25 - Fe (coeur)).

Nous avons représenté schématiquement sur la figure 4.13 l'évolution de l'ordre magnétique le long de la bicouche pour ces trois coefficients d'anisotropie différents.

En résumé, nous mettons en évidence l'existence d'un profil d'aimantation le long de la direction perpendiculaire au plan des couches. Cet ordre non colinéaire est principalement contrôlé par l'énergie d'anisotropie aléatoire qui disperse fortement les moments magnétiques de Dy autour de la direction perpendiculaire de l'aimantation.

4.4.1.2 Profil de concentration linéaire

Nous avons représenté sur la figure 4.14 la variation thermique de l'aimantation totale et par sous-réseau d'une bicouche avec un profil de concentration linéaire contenant 5% d'amas pour un coefficient d'anisotropie variant de 1K à 50K.

L'influence du coefficient d'anisotropie magnétique sur la variation thermique de l'aimantation dans le cas d'un profil de concentration linéaire est semblable au cas du profil de concentration abrupt à basse température. L'ordre magnétique à basse température est toujours sperimagnétique avec une dispersion principalement des moments magnétiques de Dy. Comme précédemment, nous n'observons pas de modification de la température de mise en ordre.

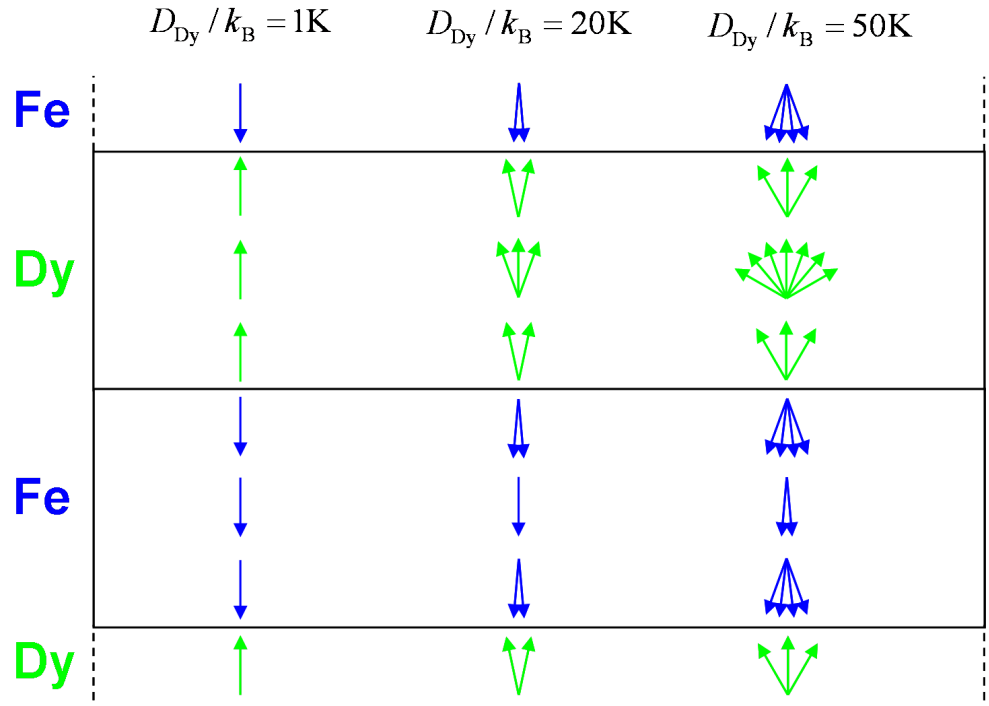

FIGURE 4.13 – Représentation schématique du profil magnétique à basse température d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas en fonction du coefficient d'anisotropie magnétique.

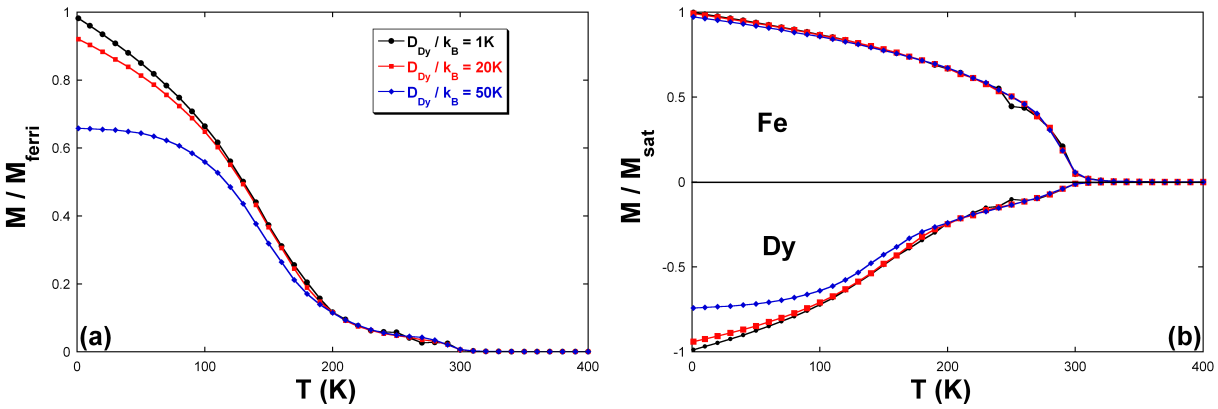

FIGURE 4.14 – Variation thermique de l'aimantation totale (a) et par sous-réseau (b) d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de concentration linéaire contenant 5% d'amas en fonction du coefficient d'anisotropie magnétique sur les sites de Dy.

Nous avons représenté sur la figure 4.15 la variation de l'aimantation par plan à $T = 1$K pour trois valeurs du coefficient d'anisotropie magnétique d'une bicouche avec un profil de concentration linéaire contenant 5% d'amas. Le cas $D_{Dy}/k_B = 1$K, correspond toujours à une aimantation saturée dans l'ensemble des plans. Pour $D_{Dy}/k_B = 20$K et 50K, l'aimantation du sous-réseau de Fe par plan se décompose en deux zones. La première zone, où l'ordre est ferromagnétique, correspond aux plans riches en Fe. La seconde zone est caractérisée par une aimantation par plan qui décroit avec la concentration en Fe en raison de l'effet de l'anisotropie aléatoire et de l'interaction d'échange Fe-Dy. De même, pour les moments magnétiques de Dy,

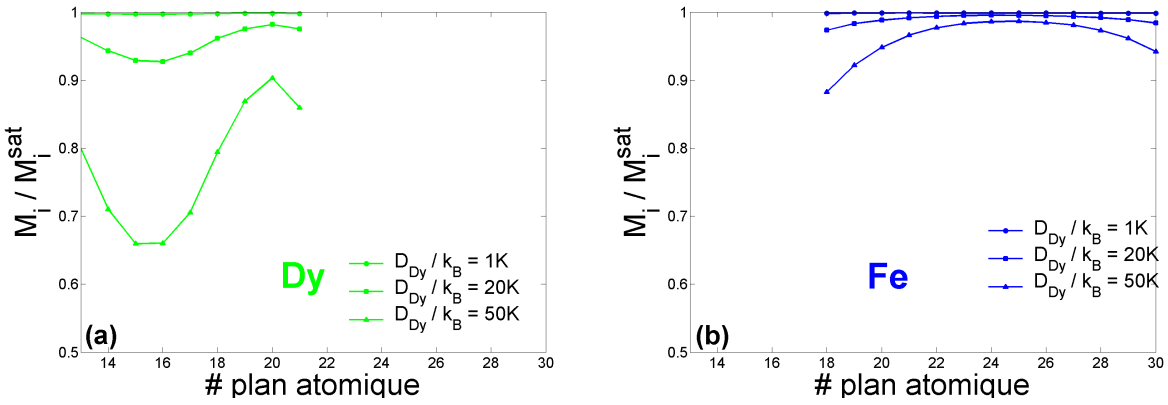

FIGURE 4.15 – Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1, 20, 50$K d'une bicouche avec un profil de concentration linéaire contenant 5% d'amas (moyenne sur 20 configurations) ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe).

on retrouve une situation similaire au cas du profil de concentration abrupt, c'est-à-dire une diminution de l'aimantation du Dy par plan au fur et à mesure que la concentration en Fe diminue. Le profil d'aimantation est également non homogène en épaisseur et présente une allure similaire au cas du profil de concentration abrupt.

4.4.1.3 Profil de sonde

Nous avons réprésenté sur la figure 4.16 la variation thermique de l'aimantation globale et par sous-réseau d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas et pour différentes valeurs du coefficient d'anisotropie magnétique. Comme pour les cas précédents, nous n'observons pas de modification de la température de mise en ordre (330K), et l'aimantation totale du système diminue lorsque $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ augmente. Par ailleurs, les courbes d'aimantation par sous-réseau nous indiquent ici une différence notable avec le cas du profil abrupt. En effet, on note que pour des valeurs importantes de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ le sous-réseau de Fe n'est plus saturé à basse température, le sous-réseau de Dy quant à lui évolue comme dans le cas du profil abrupt avec néanmoins une amplitude plus faible. Nous pouvons en conclure que comme précédemment, lorsque $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ augmente, l'ordre magnétique à basse température devient non colinéaire, et l'on observe même un ordre non colinéaire sur le sous-réseau de Fe lorsque $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K [Talbot 2007].

Nous avons représenté sur la figure 4.17 l'aimantation par plan et par espèce pour cette bicouche. Concernant tout d'abord le sous-réseau de fer (figure 4.17(b)), l'aimantation par plan n'est pas homogène le long de la multicouche. On observe un minimum de l'aimantation pour le plan $i = 17$ ($X_{\mathrm{Fe}} = 0,45$) pour lequel existe donc un ordre non colinéaire, et un maximum de l'aimantation pour les plans $i = 24$ à 26 ($X_{\mathrm{Fe}} = 0,90$) pour lesquels l'ordre magnétique est faiblement dispersé. Pour le sous-réseau de Dy (figure 4.17(a)), l'évolution de l'aimantation par plan des atomes de Dy est plus complexe et peut se décomposer en trois zones. La première pour laquelle l'aimantation varie peu ($i = 13$ à 20), puis l'aimantation diminue en évoluant vers les plans riches en Fe et passe par un minimum de l'aimantation pour $X_{\mathrm{Fe}} = 0,90$. Enfin, la dernière zone, pour laquelle l'aimantation par plan augmente à nouveau quand on se situe dans des plans plus riches en Dy.

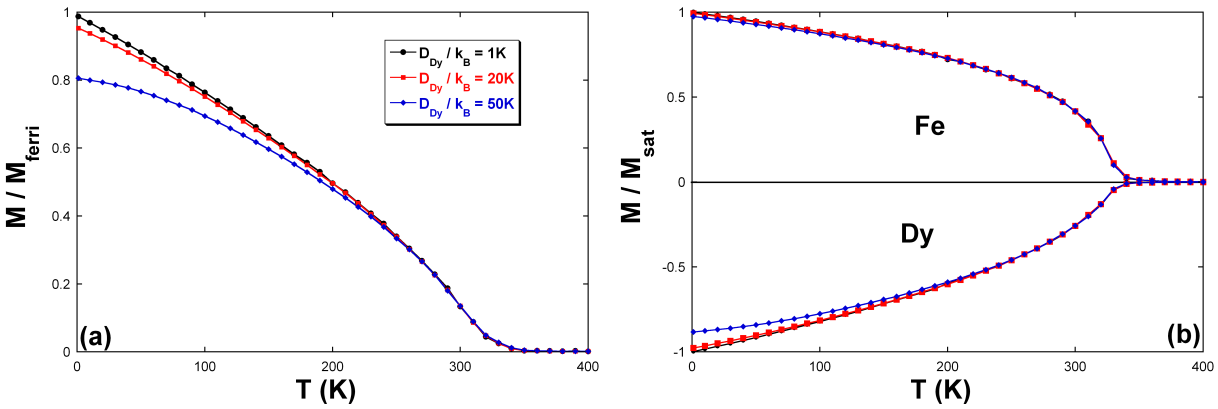

FIGURE 4.16 – Variation thermique de l'aimantation totale (a) et par sous-réseau (b) d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas pour différentes valeurs du coefficient d'anisotropie.

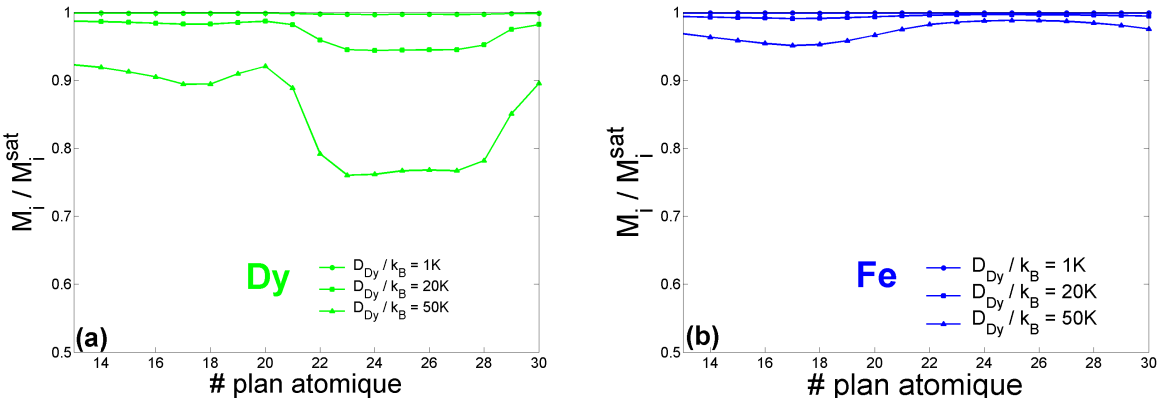

FIGURE 4.17 – Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1, 20, 50$K d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas (moyenne sur 20 configurations) ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe).

L'évolution de ces aimantations à basse température est à relier à la compétition entre les différents termes énergétiques et aux concentrations de ces plans. En effet, comme nous l'avons décrit précédemment, ce profil correspond à une zone où la concentration en Dy augmente, suivi d'une une zone où la concentration en Dy diminue rapidement, enfin une zone riche en Fe ($\mathrm{Fe}_{0,90}\mathrm{Dy}_{0,10}$). Le poids de chaque interaction est alors fortement dépendant du plan considéré. Nous avons représenté sur la figure 4.18 l'énergie de chaque interaction en fonction du plan atomique (i.e. de la concentration) afin d'illustrer les compétitions en jeu dans chaque plan. Les valeurs des différentes énergies en présence pour quelques plans sont regroupées dans le tableau 4.4.

Dans la zone riche en fer (plan 22 à 28), l'énergie d'échange Fe-Fe domine et la concentration en Dy est faible ($X_{\mathrm{Dy}} = 0,10$). L'ordre est ferromagnétique sur le sous-réseau de Fe. Pour le plan 24 par exemple ($X_{\mathrm{Fe}} = 0,90$), le couplage Fe-Dy est faible, les moments magnétiques de Fe demeurent fortement parallèles entre eux contrairement aux moments magnétiques de Dy qui sont dispersés en raison du rapport élevé entre les énergies d'anisotropie aléatoire et d'échange sur le sous-réseau de Dy ($E^{\mathrm{Dy}}_{\mathrm{Anis.\ aléat.}}/E^{\mathrm{Dy-Dy}}_{\mathrm{éch.}} \sim 30$ pour $D_{\mathrm{Dy}/k_{\mathrm{B}}} = 20$K).

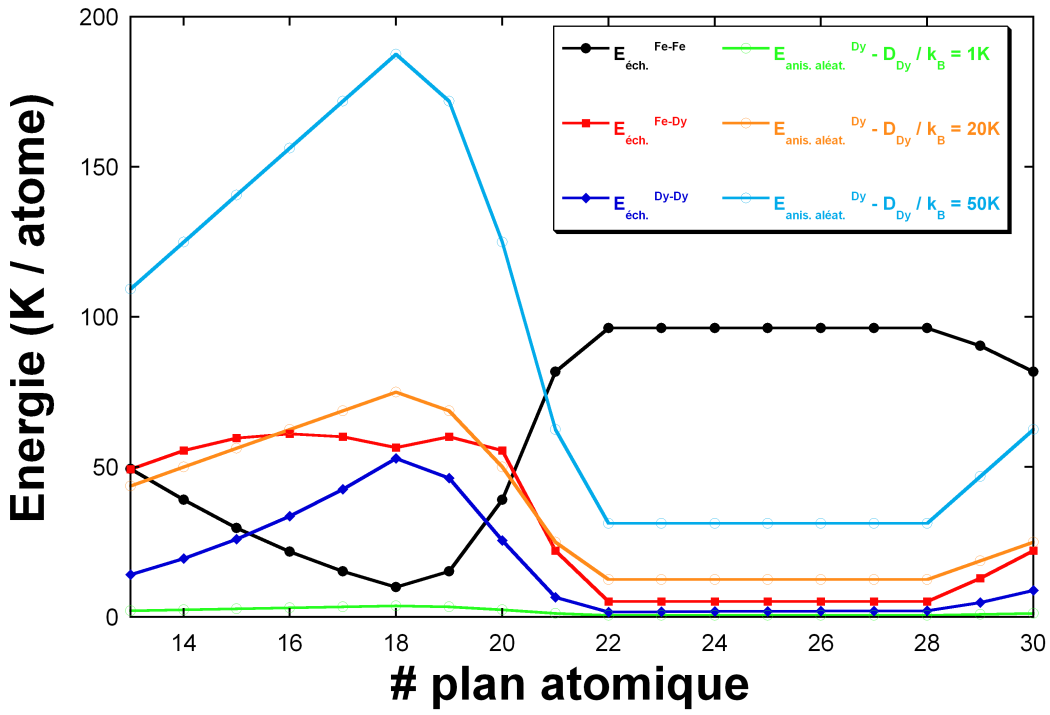

FIGURE 4.18 – Energie par atome d'une bicouche en fonction du plan atomique avec un profil de sonde. $E_{\text{éch.}}^{\text{Fe-Fe}}$: énergie d'échange des paires Fe-Fe ; $E_{\text{éch.}}^{\text{Fe-Dy}}$: énergie d'échange des paires Fe-Dy ; $E_{\text{éch.}}^{\text{Dy-Dy}}$: énergie d'échange des paires Dy-Dy ; $E_{\text{Anis. aléat.}}^{\text{Dy}}$: énergie d'anisotropie aléatoire pour $D_{\text{Dy}/k_{\text{B}}} = 1$, 20 et 50K.

plan	X_{Fe}	$E_{\text{Anis. aléat.}}^{\text{Dy}}$ (K)	$E_{\text{éch.}}^{\text{Dy-Dy}}$ (K)	$E_{\text{éch.}}^{\text{Fe-Dy}}$ (K)	$E_{\text{éch.}}^{\text{Fe-Fe}}$ (K)
13	0,65	43,75	4,97	49,25	49,34
17	0,45	68,75	12,28	60,09	15,19
24	0,9	12,50	0,41	5,24	86,29
30	0,8	25,00	1,63	22,12	81,73

TABLEAU 4.4 – Energie d'anisotropie magnétique aléatoire et énergies des interactions d'échange pour 4 plans typiques dans le cas du profil de sonde pour $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 20\text{K}$.

En diminuant la concentration en fer (plan 17), l'énergie d'échange Fe-Dy augmente. On transmet alors le désalignement aux moments magnétiques de Fe. Parallèlement, le rapport $E_{\text{Anis. aléat.}}^{\text{Dy}} / E_{\text{éch.}}^{\text{Dy-Dy}}$ décroit, et les moments magnétiques de Dy sont moins dispersés. L'évolution gobale de l'aimantation par plan dans la couche de Fe s'explique par l'évolution du rapport $E_{\text{Anis. aléat}}^{\text{Dy}}/(E_{\text{éch.}}^{\text{Dy-Dy}} + E_{\text{éch.}}^{\text{Fe-Dy}} + E_{\text{éch.}}^{\text{Fe-Fe}})$ qui augmente fortement avec la concentration en Dy par plan. Ce rapport passe de $0,14$ pour $X_{\text{Fe}} = 0,90$ à $0,75$ pour $X_{\text{Fe}} = 0,45$.

On peut noter que ces résultats sont en accord avec les observations expérimentales effectuées à partir des expériences de réflectométrie de neutrons polarisés sur des multicouches Fe/Dy (section 3.3.4) [Tamion 2005]. En effet, l'ajustement des spectres de neutrons a permis de mettre en évidence l'existence d'un profil d'aimantation inhomogène suivant l'épaisseur.

4.4.1.4 Alliage homogène

Nous présentons enfin le cas d'un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$, qui nous permettra de comparer l'influence des amas au cas de l'anisotropie aléatoire (section 4.2) sur l'ordre magnétique non colinéaire.

Nous avons représenté sur la figure 4.19 les distributions des moments magnétiques de Dy dans le cas d'un alliage homogène avec 20% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50\mathrm{K}$.

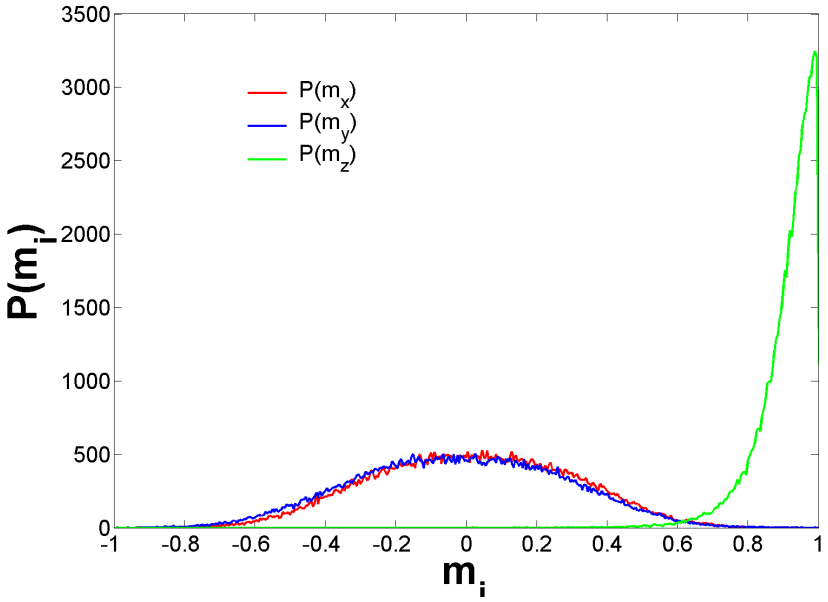

FIGURE 4.19 – Distribution des moments magnétiques de Dy selon les trois composantes m_x, m_y et m_z pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50\mathrm{K}$ dans le cas d'un alliage homogène avec 20% d'amas à $T = 1\mathrm{K}$.

Nous remarquons dans ce cas que les distributions sont identiques à celle obtenues dans l'étude de l'anisotropie aléatoire (section 4.2). L'ordre magnétique à basse température est toujours spérimagnétique et homogène en épaisseur comme nous l'avons mis en évidence précédemment. Par ailleurs, dans le cadre de notre modèle d'amas ordonnés, on observe un alignement des moments magnétiques de Dy dans la direction perpendiculaire au plan des couches. L'ordre spérimagnétique est identique à celui déterminé dans l'étude de l'anisotropie aléatoire pour toutes les valeurs du coefficient d'anisotropie magnétique mais avec une direction de l'aimantation perpendiculaire.

4.4.2 Influence de la concentration d'amas

Nous avons représenté sur la figure 4.20 la variation thermique de l'aimantation d'un alliage pour différentes concentrations d'amas ordonnés pour le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50\mathrm{K}$ afin de déterminer l'influence de la concentration sur l'ordre magnétique.

Nous remarquons que l'aimantation globale n'évolue pas de façon significative avec la concentration d'amas. Cependant, l'aimantation à basse température ne correspond pas à un état ferrimagnétique. Comme dans le cas précédent, l'anisotropie aléatoire donne lieu à un ordre spérimagnétique à basse température. De plus, comme nous avons déjà pu le voir dans le cadre

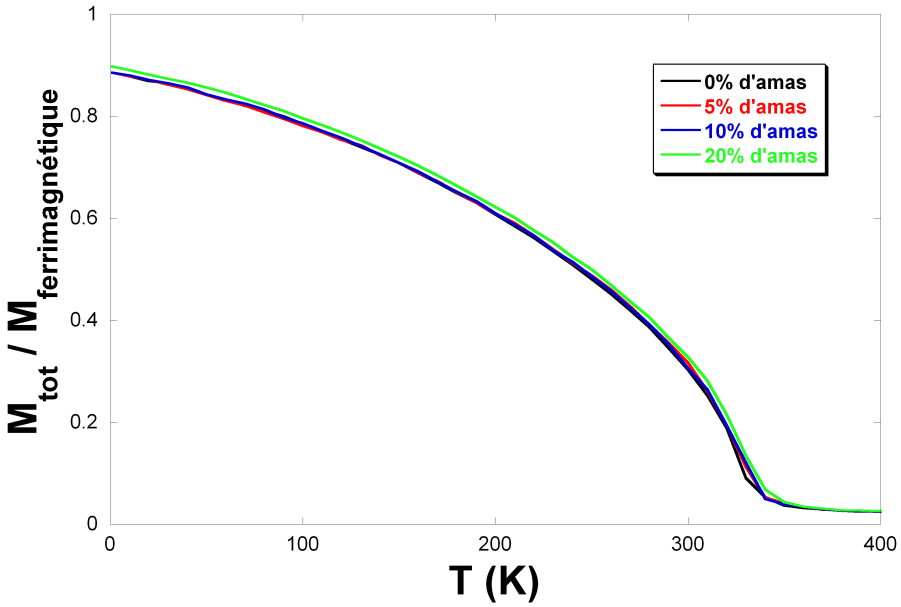

FIGURE 4.20 – Variation thermique de l'aimantation d'un alliage $Fe_{0,67}Dy_{0,33}$ pour $D_{Dy}/k_B = 50K$ en fonction de la concentration d'amas dans la structure.

de l'étude des systèmes avec anisotropie aléatoire, le spérimagnétisme est homogène suivant l'épaisseur dans le cas de l'alliage du fait de l'imbrication homogène des deux sous-réseaux.

Dans le cas du profil le plus proche de la situation expérimentale (profil de sonde), nous avons étudié l'influence de la concentration d'amas pour $D_{Dy}/k_B = 10K$ sur la direction de l'aimantation à basse température. La figure 4.21 montre que la direction de l'aimantation à basse température est fortement corrélée à la concentration d'amas ordonnés dans la bicouche. La direction de l'aimantation est perpendiculaire à basse température pour une concentration de 20%, alors qu'elle est fortement dispersée pour 5% d'amas. Cette dispersion est le signe de l'existence de configurations métastables qui rendent difficile la convergence de nos simulations. Nous avons vérifié qu'en augmentant sensiblement le nombre de pas MC utilisés, on retrouvait un plus grand nombre de configurations dont l'aimantation est dans la direction perpendiculaire. Il semble donc que la direction de l'aimantation résulte en partie du rapport entre le nombre de sites de Dy appartenant aux amas et ceux appartenant à la matrice. Nous ne le présentons pas ici mais l'évolution des distributions de la composante perpendiculaire de l'aimantation en fonction de la concentration d'amas est analogue dans le cas de l'alliage, et dans le cas du profil linéaire.

4.4.3 Conclusion

Nous avons tout d'abord montré que l'ordre magnétique à basse température le long de la bicouche n'ést pas homogène et qu'il est fortement conditionné par le profil de concentration, c'est-à-dire qu'il dépend fortement des compétitions énergétiques locales. On peut ainsi observer différentes configurations magnétiques stables à basse température avec un ordre ferromagnétique ou aspéromagnétique sur chaque sous-réseau et/ou par plan. Le profil de concentration abrupt est celui qui présente le spérimagnétisme le plus prononcé sur le sous-réseau de Dy. Nous avons vérifié que notre modèle conduisait à une anisotropie effective perpendiculaire.

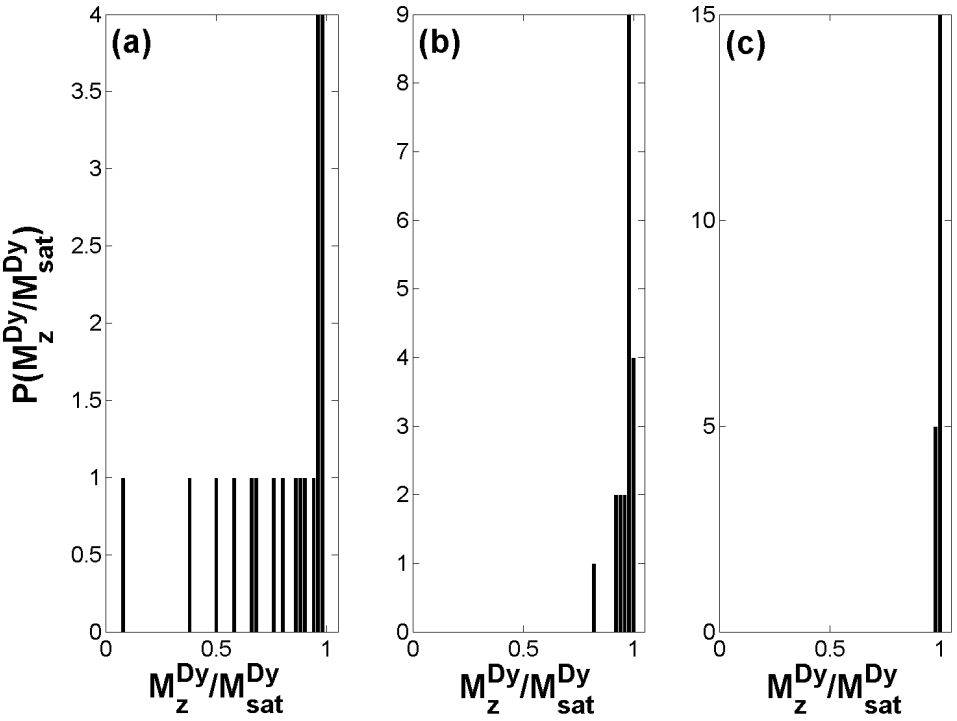

FIGURE 4.21 – Distribution moyennée sur 20 configurations de la composante perpendiculaire de l'aimantation des atomes de Dy à $T = 1$K pour une bicouche avec un profil de sonde avec $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$K en fonction de la concentration d'amas ((a) 5% d'amas ; (b) 10% d'amas ; (c) 20% d'amas).

Nous avons également mis en évidence le fait que la répartition des moments magnétiques dans le cône de dispersion n'était pas uniforme, en contradiction avec de nombreux modèles. Cependant, la dispersion est toujours plus importante sur le sous-réseau de Dy que sur le sous-réseau de Fe, puisque l'anisotropie magnétique aléatoire ne concerne que les atomes de terre rare.

Nous avons regroupé dans le tableau 4.5 la nature de l'ordre magnétique par sous-réseau en fonction du profil de concentration et de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$. Nous avons défini l'aimantation d'un sous-réseau comme étant aspéromagnétique si son aimantation réduite (M/M_{sat}) est inférieure à $0,98$.

L'introduction des amas Fe-Dy cristallisés permet de rendre compte de l'existence d'une aimantation globalement perpendiculaire, et ce dès une faible concentration (5%) et avec un coefficient d'anisotropie magnétique de faible amplitude $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 5$K. Ces résultats corroborent l'hypothèse de Mergel sur l'origine de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les systèmes MT/TR sans toutefois exclure l'existence d'autres origines possibles. On peut noter ainsi que d'autres études ont également mentionné l'existence d'une fraction de sites à anisotropie magnétique uniaxiale et une contribution d'anisotropie aléatoire afin d'expliquer l'évolution de l'aimantation perpendiculaire dans des multicouches Fe/Tb [Richomme 1996, Trhlik 1996, Trhlik 1997].

Profil	espèce	$\frac{D_{\mathrm{Dy}}}{k_{\mathrm{B}}} = 1\mathrm{K}$	$\frac{D_{\mathrm{Dy}}}{k_{\mathrm{B}}} = 5\mathrm{K}$	$\frac{D_{\mathrm{Dy}}}{k_{\mathrm{B}}} = 10\mathrm{K}$	$\frac{D_{\mathrm{Dy}}}{k_{\mathrm{B}}} = 20\mathrm{K}$	$\frac{D_{\mathrm{Dy}}}{k_{\mathrm{B}}} = 50\mathrm{K}$
Abrupt	Fe	F	F	F	F	F
	Dy	F	F	S	S	S
Linéaire	Fe	F	F	F	F	S
	Dy	F	F	S	S	S
Sonde	Fe	F	F	F	F	S
	Dy	F	F	F	S	S
Alliage	Fe	F	F	F	S	S
	Dy	F	F	F	S	S

TABLEAU 4.5 – Résumé sur la nature de l'ordre magnétique par sous-réseau à $T = 1\mathrm{K}$ en fonction du profil de concentration et de la valeur de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ (F=ferromagnétique ($M/M_{sat} > 0,98$) ; S=aspéromagnétique ($M/M_{sat} \leq 0,98$)).

4.5 Cycles d'hystérésis - comparaison à l'expérience

La dernière partie de ce chapitre est consacrée à la simulation Monte Carlo de cycles d'hystérésis. Nous étudierons l'évolution des processus de retournement de l'aimantation en fonction du modèle d'anisotropie magnétique et du profil de concentration. Enfin nous comparerons nos résultats aux observations expérimentales.

4.5.1 Modèle de Stoner Wohlfarth

Dans sa forme la plus simple, le modèle de Stoner-Wohlfarth décrit le retournement du moment magnétique total d'une particule ferromagnétique sous l'effet d'un champ magnétique appliqué à 0K. L'hypothèse de ce modèle est que toute variation de l'aimantation ne peut résulter que d'une rotation uniforme de tous les moments magnétiques conduisant ainsi à une norme de l'aimantation constante au cours du retournement [Aharoni 2000, Stoner 1948].

On considère un monocristal ferromagnétique de forme ellipsoïdale dont le grand axe Oz est colinéaire à l'axe de facile aimantation (figure 4.22). Il est placé dans un champ magnétique noté $\mathbf{H}$ de direction quelconque. Dans ce cas, l'anisotropie magnétocristalline uniaxiale et l'anisotropie de forme agissent conjointement dans le même sens. Les énergies mises en jeu sont alors :

- anisotropie de forme : $E_{dip} = \frac{1}{2}\mu_0[N_{\parallel}M_S^2 + (N_{\perp} - N_{\parallel})M_S^2 \sin^2\theta]$,
- anisotropie magnétocristalline : $E_A = K_1 \sin^2\theta$,
- interaction Zeeman : $E_Z = -\mu_0 M_S H \cos(\theta - \varphi)$,

où M_S est l'aimantation à saturation, $N_{\parallel}$ et $N_{\perp}$ sont les coefficients de champ démagnétisant dans les directions parallèle et perpendiculaire à l'axe de facile aimantation, K_1 est la constante

d'anisotropie magnétocristalline uniaxiale, θ est l'angle entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation et φ est l'angle entre le champ et l'axe de facile aimantation (figure 4.22).

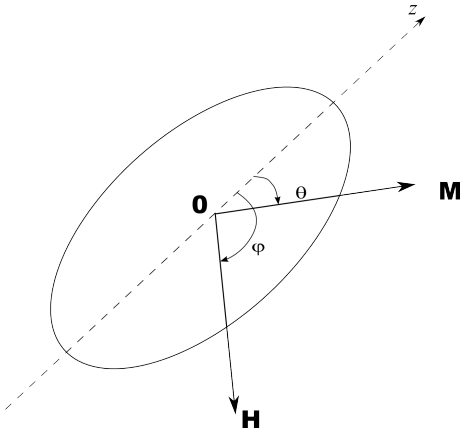

FIGURE 4.22 – Définition des angles θ et φ pour un monocristal ferromagnétique de forme ellipsoïdale.

L'énergie totale du système, qui est la somme de ces trois composantes, s'écrit alors (à une constante additive près) :

$$E = \frac{1}{2}\mu_0(N_\perp - N_\parallel)M_S^2 \sin^2\theta + K_1 \sin^2\theta - \mu_0 M_S H \cos(\theta - \varphi), \tag{4.2}$$

soit :

$$E = K \sin^2\theta - \mu_0 M_S H \cos(\theta - \varphi), \tag{4.3}$$

avec : $K = \frac{1}{2}\mu_0(N_\perp - N_\parallel)M_S^2 + K_1$.

En utilisant les variables réduites :

$$\varepsilon = \frac{E}{K} \quad \text{et} \quad h = \frac{\mu_0 M_S H}{2K}, \tag{4.4}$$

l'énergie totale du système s'écrit finalement :

$$\varepsilon = \sin^2\theta - 2h\cos(\theta - \varphi). \tag{4.5}$$

Avant le retournement de l'aimantation, le système se trouve dans un miminum local, c'est-à-dire que la dérivée première de l'énergie s'annule :

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial \theta} = 2\sin\theta\cos\theta + 2h\sin(\theta - \varphi) = 0, \tag{4.6}$$

soit :

$$2\sin\theta\cos\theta = \sin 2\theta = -2h\sin(\theta - \varphi). \tag{4.7}$$

Le retournement se produit pour un champ h tel que le minimum local et le maximum local se réunissent en un point, c'est-à-dire que la barrière d'énergie devient nulle. En ce point, la dérivée seconde de l'énergie totale du système est alors nulle de telle sorte que :

$$\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \theta^2} = 2\cos 2\theta + 2h\sin(\theta - \varphi) = 0, \tag{4.8}$$

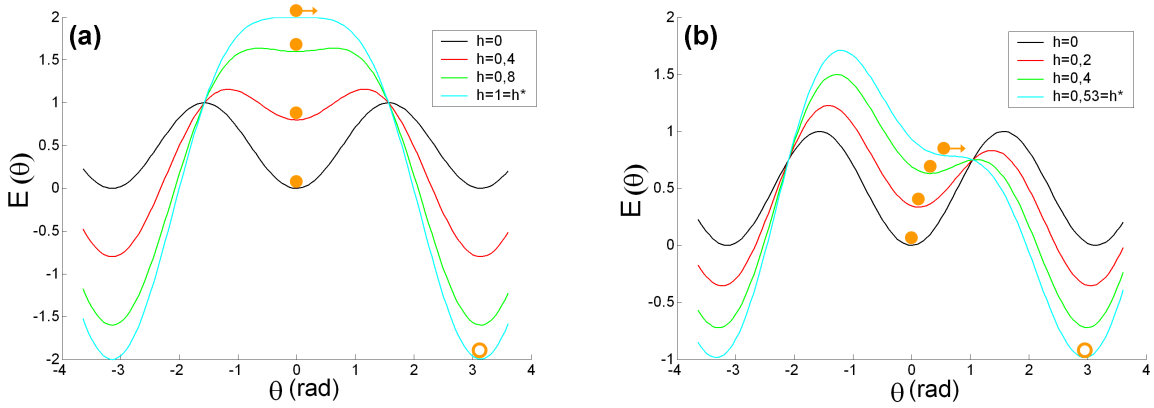

FIGURE 4.23 – Energie totale du système en fonction de l'angle θ et du champ réduit h ((a) $\varphi = \pi$; (b) $\varphi = 5\pi/6$). Le minimum local est indiqué par le point orange.

soit :

$$\cos 2\theta = -h\cos(\theta - \varphi). \tag{4.9}$$

La résolution des équations 4.7 et 4.9 donne les valeurs de l'angle (θ^*) et du champ de retournement (h^*). A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure 4.23 l'évolution de l'énergie du système en fonction de l'angle θ et du champ h pour deux situations différentes ((a) $\varphi = \pi$; (b) $\varphi = 5\pi/6$). On visualise ainsi directement l'évolution de la barrière d'énergie en fonction du champ appliqué.

On obtient également l'évolution du champ de retournement à 0K en fonction de l'angle du champ appliqué :

$$h^* = \frac{1}{(\sin^{2/3}\varphi + \cos^{2/3}\varphi)^{3/2}}. \tag{4.10}$$

Il est cependant important de noter qu'il existe d'autres modes de retournement cohérent de l'aimantation suivant des processus non uniformes. En fonction des interactions en présence, le système adoptera le mode de retournement le plus favorable du point de vue énergétique. Les plus connus sont le retournement par flambage ("buckling") [Aharoni 1968, Frei 1957, Trémolet de Lacheisserie 2000*a*] (figure 4.24(a)) et le retournement par enroulement de l'aimantation locale ("curling") [Brown 1957, Frei 1957, Trémolet de Lacheisserie 2000*a*] (figure 4.24(b)).

4.5.2 Anisotropie magnétique uniaxiale

Nous avons étudié dans un premier temps les processus de retournement de l'aimantation sous champ magnétique sur des multicouches Fe/Dy en fonction du profil de concentration dans le cas simple d'une anisotropie magnétique uniaxiale sur chaque site de Dy. En effet, nous avons fait le choix de valider notre modèle et la technique de simulation numérique utilisée dans un cas simple avant l'étude du système plus complexe qui nous intéresse. A notre connaissance, il n'y a que peu d'études de cycles d'hystérésis par simulations Monte Carlo qui aient déjà été réalisées sur des multicouches MT/TR. Cependant, nous pourrons nous référer à certains travaux concernant la simulation de cycles d'hystérésis sur des alliages $TbFe_2$ [Chi 1977] et l'étude d'amas MT-TR [Wang 2001].

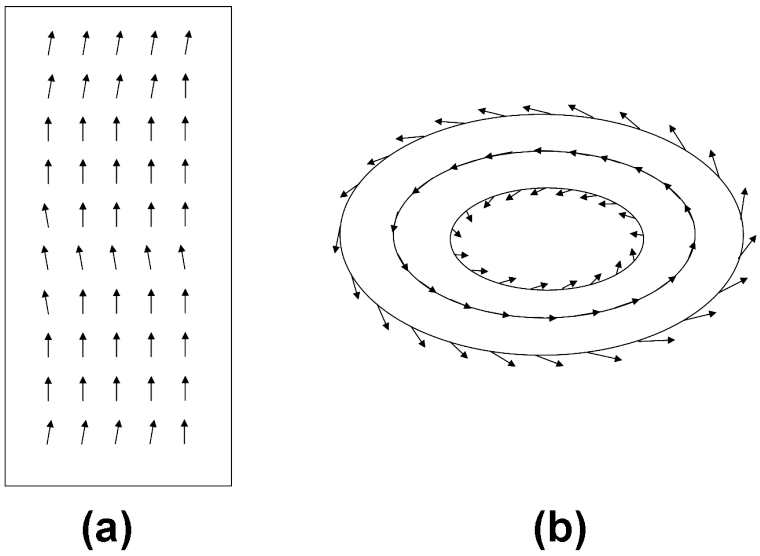

FIGURE 4.24 – Représentation schématique des modes de retournement non uniforme de l'aimantation ((a) flambage ("buckling") ; (b) enroulement ("curling")).

Dans une première partie, nous allons nous focaliser sur le cas d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt, puis nous nous intéresserons aux profils plus diffus.

4.5.2.1 Formation de parois de domaines à l'interface

Dans les systèmes multicouches, le retournement de l'aimantation de chaque couche peut intervenir pour des champs magnétiques différents, et donner lieu à la formation d'une paroi de domaine à l'interface. En champ nul, la structure magnétique stable est donnée par le signe des interactions d'échange (dans notre cas elle est ferrimagnétique). Sous l'application d'un champ magnétique, la structure magnétique résulte de la compétition entre l'échange et l'interaction Zeeman. Une transition peut alors se produire à un certain seuil (B_{SF}) entre un état d'alignement antiparallèle des aimantations de chacune des couches ($B < B_{\mathrm{SF}}$) vers un état où il y a formation d'une paroi à l'interface dans la couche magnétique douce ($B > B_{\mathrm{SF}}$). Cette transition est couramment appelée transition de "spin-flop" [Trémolet de Lacheisserie 2000*b*]. En augmentant l'intensité du champ, on comprime ainsi la paroi formée à l'interface pour tendre vers l'état saturé suivant le champ magnétique.

Dans le cadre du modèle continu, le profil de la paroi est alors donné par l'équilibre entre les interactions d'échange au sein de la paroi :

$$\Gamma_{\mathrm{ech}} = -\frac{A}{2}\frac{\partial^2\theta}{\partial z^2}, \tag{4.11}$$

et le couplage entre l'aimantation et le champ magnétique est :

$$\Gamma_Z = M(z).B.\sin\theta, \tag{4.12}$$

où A est la constante d'échange et z est l'axe perpendiculaire de la multicouche. Pour $z < 0$, $M = M_{\mathrm{Fe}}$, et pour $z > 0$, $M(z) = M_{\mathrm{Dy}}$. La constante A est définie par la relation :

$$A = \frac{ZJS^2}{a}, \tag{4.13}$$

où Z est le nombre d'atomes premiers voisins, J est l'interaction d'échange et a est la distance entre atomes premiers voisins.

La condition d'équilibre ($\Gamma_{\text{ech}} + \Gamma_Z = 0$) conduit à l'équation de Sine Gordon :

$$A\frac{\partial^2\theta}{\partial z^2} = 2.M_{\text{Fe}}.B.\sin\theta \quad \text{pour} \quad z < 0, \tag{4.14}$$

$$A\frac{\partial^2\theta}{\partial z^2} = 2.M_{\text{Dy}}.B.\sin\theta \quad \text{pour} \quad z > 0. \tag{4.15}$$

Cette équation est similaire à celle donnant le profil d'une paroi de Bloch à la différence près que l'énergie Zeeman remplace l'anisotropie uniaxiale. Ces équations, dans le cas où les deux milieux sont supposés semi-infinis, donnent une largeur de paroi (δ) et une énergie de paroi (γ) :

$$\delta = \pi\sqrt{\frac{A(M_{\text{Fe}} + M_{\text{Dy}})}{2BM_{\text{Fe}}M_{\text{Dy}}}}, \tag{4.16}$$

$$\gamma = 2\sqrt{2AB}\Big(\sqrt{M_{\text{Fe}}} + \sqrt{M_{\text{Dy}}} - \sqrt{M_{\text{Fe}} + M_{\text{Dy}}}\Big). \tag{4.17}$$

On montre également que le moment magnétique s'approche de la saturation suivant une loi du type [Dieny 1991] :

$$m_{\text{sat}} - m(B) = 2\sqrt{\frac{2A}{B}}\Big(\sqrt{M_{\text{Fe}}} + \sqrt{M_{\text{Dy}}} - \sqrt{M_{\text{Fe}} + M_{\text{Dy}}}\Big). \tag{4.18}$$

Par la suite, nous appellerons paroi d'interface toute zone où l'aimantation n'est pas colinéaire au champ magnétique appliqué.

4.5.2.2 Paramètres numériques

Les simulations des cycles d'hystérésis ont été effectuées avec les paramètres numériques suivants :

- nombre total d'atomes : 28800 (36 plans atomiques de 800 atomes) ;
- nombre de pas Monte Carlo de thermalisation : 20000 ;
- nombre de pas Monte Carlo pour la moyenne des grandeurs thermodynamiques : 20000 ;
- conditions aux bords périodiques dans le plan des couches ;

Les différents paramètres variables sont :

- le profil de concentration ;
- la concentration d'amas ordonnés ;
- la valeur de la constante d'anisotropie magnétique sur les sites de Dy (D_{Dy}) ;
- la direction du champ magnétique ;
- la température de mesure.

4.5.2.3 Profil Abrupt

Nous avons représenté sur la figure 4.25 les cycles d'hystérésis de l'aimantation totale de la multicouche pour un champ appliqué perpendiculairement et parallèlement au plan des couches à $T = 1\text{K}$ et avec $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 1\text{K}$ pour différents nombres de bicouches. La direction d'anisotropie uniaxiale est perpendiculaire au plan des couches. Dans ce cas, la valeur du champ de retournement dans le cadre d'un modèle de retournement par rotation uniforme de l'aimantation est $B_{\text{C}}^{\text{SW}} = \frac{2X_{\text{Dy}}D_{\text{Dy}}S_{\text{Dy}}^2}{M_{\text{ferrimagnétique}}} = 3,3\text{T}$, où X_{Dy} est la concentration en Dy dans la bicouche, D_{Dy} le coefficient d'anisotropie magnétique (exprimé en J) et $M_{\text{ferrimagnétique}}$ l'aimantation ferrimagnétique (exprimé en J.T^{-1}) (le détail du calcul est donné dans l'annexe A).

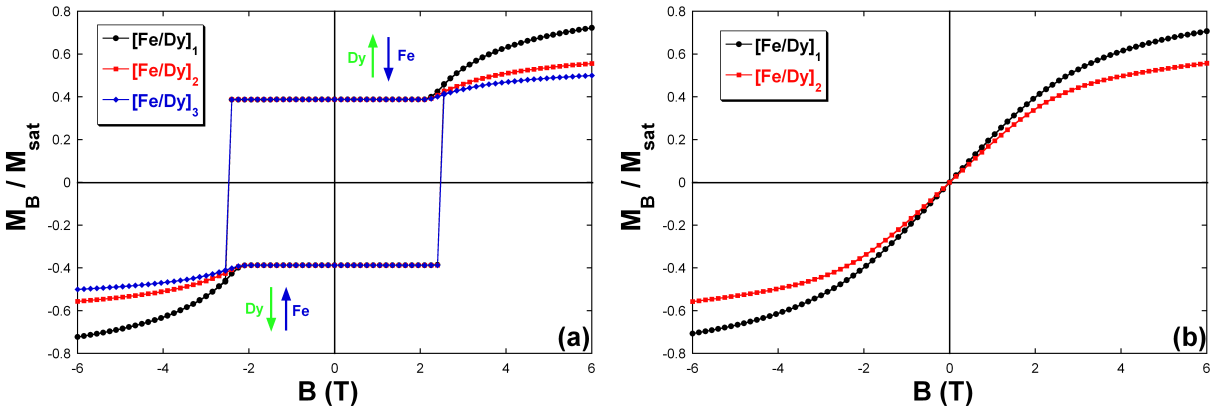

FIGURE 4.25 – Cycles d'hystérésis d'une multicouche Fe/Dy à anisotropie uniaxiale avec un profil de concentration abrupt à $T = 1\text{K}$ pour $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 1\text{K}$ en fonction du nombre de bicouches ((a) champ appliqué perpendiculairement au plan des couches ; (b) champ appliqué dans le plan des couches).

Les cycles d'hystérésis pour un champ appliqué perpendiculairement au plan des couches présentent deux zones distinctes (figure 4.25(a)). La partie en champ faible ($\mid B \mid < B_{\text{C}} = 2,45 \pm 0,15\text{T}$) présente une forme "carrée" caractéristique d'un cycle effectué suivant la direction de facile aimantation. L'aimantation totale dans cette partie du cycle correspond à l'aimantation ferrimagnétique. Au-delà de B_{C}, l'aimantation totale augmente de façon monotone avec le champ appliqué. L'aimantation totale est alors supérieure à l'aimantation ferrimagnétique et semble tendre (si l'on extrapole aux valeurs de champ très élevées) vers l'aimantation à saturation. Cependant, cette augmentation de l'aimantation est d'autant plus lente que le nombre de bicouches considéré est grand. Pour un champ magnétique appliqué dans le plan des couches (figure 4.25(b)), le cycle d'hystérésis est fermé, et la composante de l'aimantation suivant le champ magnétique suit une croissance continue avec l'intensité du champ magnétique. On remarquera également que l'aimantation totale n'atteint jamais la saturation (même à 6T), en accord avec les résultats expérimentaux qui prévoient une saturation pour des champs de l'ordre de 15-30T en raison de l'importance du couplage antiferromagnétique $J_{\text{Fe-Dy}}$. La présence d'une paroi d'interface est en accord avec de nombreuses études sur des systèmes multicouches MT/TR.

Nous avons représenté sur la figure 4.26 les cycles d'hystérésis de quelques plans de la multicouche. Concernant la première bicouche, c'est-à-dire celle pour laquelle la couche de Fe a un bord libre, la figure 4.26(a) montre que l'aimantation des plans de Fe n'est pas saturée dans la direction du champ au-delà de B_{C}. Les moments de Fe s'alignent d'autant plus avec le champ que le plan de Fe est "éloigné" de l'interface (plan 3 par rapport au plan 12). Le plan de

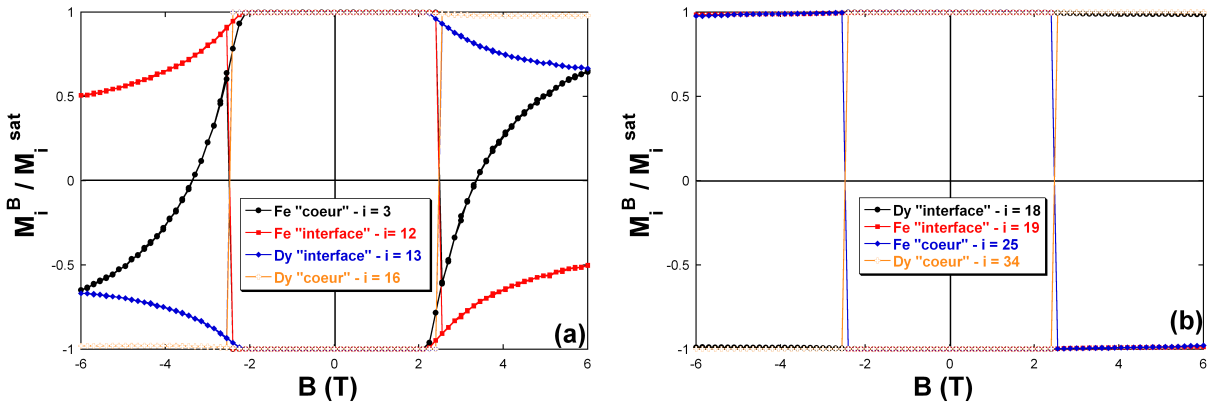

FIGURE 4.26 – Cycles d'hystérésis par plan d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt à $T = 1$K pour une période de répétition de la bicouche de 2 ((a) plans appartenant à la première bicouche ; (b) plans appartenant à la seconde bicouche).

Dy situé à l'interface se caractérise également par un désalignement, plus faible, des moments magnétiques par rapport à la direction du champ. Les cycles d'hystérésis des autres plans (figure 4.26(b)) mettent en évidence un comportement différent. Dans ce cas, les moments magnétiques de Dy et de Fe sont toujours antiparallèles. L'ordre magnétique est donc caractérisé par un ordre ferrimagnétique dans l'ensemble de la multicouche à l'exception de la première bicouche pour laquelle on constate l'existence d'une paroi d'interface dans la couche de Fe.

Les différentes configurations magnétiques discutées précédemment sont illustrées sur la figure 4.27.

Pour un fort champ magnétique appliqué (figure 4.27(a)), l'énergie Zeeman domine et privilégie un alignement de tous les moments magnétiques de Dy suivant la direction du champ. Les moments magnétiques de Fe appartenant au coeur de la multicouche demeurent antiparallèles à ceux de Dy, contrairement aux moments magnétiques de Fe appartenant à la couche ayant un bord libre 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 diminuant l'intensité du champ (figure 4.27(b)), l'ordre magnétique change peu. On note une décompression de la paroi associée à la diminution de l'énergie Zeeman. En deçà de B_C (figure 4.27(c)), et jusqu'à $B = -B_C$, on observe un ordre ferrimagnétique stable sur l'ensemble de la multicouche. Cependant, si le champ est appliqué suivant $+Oz$, les moments de Dy sont orientés suivant le sens du champ alors que si le champ est appliqué suivant $-Oz$, les moments de Dy sont antiparallèles au champ. Pour un champ appliqué supérieur à $-B_C$ (figure 4.27(d)), on a retourné la couche de Dy et créé la paroi d'interface dans la couche de Fe présentant le bord libre. Les moments magnétiques des couches de Fe de coeur se retournent en restant antiparallèles au Dy. En augmentant encore l'intensité du champ (figure 4.27(e)), on comprime à nouveau la paroi.

En conclusion, si les aimantations des couches de coeur du système demeurent antiparallèles durant le retournement et semblent se retourner suivant un mode uniforme, il apparait que la rotation est initiée par la première bicouche du système (comprenant la couche de Fe ayant un bord libre). Les compétitions énergétiques favorisent la création d'une paroi d'interface durant le retournement de la couche de Dy. Les caractéristiques de la paroi sont indépendantes du nombre de périodes de la bicouche.

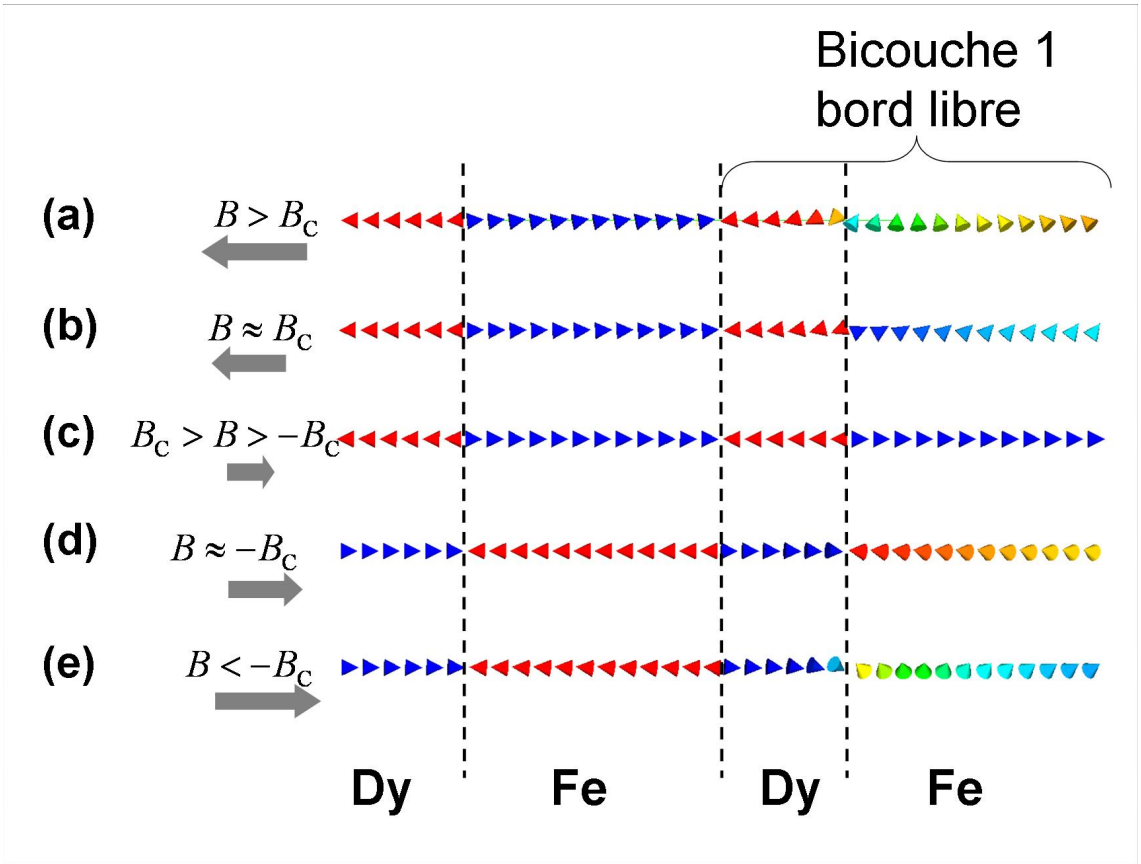

FIGURE 4.27 – Représentation de l'ordre magnétique en fonction du champ magnétique durant le retournement dans le cas d'une multicouche avec un profil abrupt à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K ((a) $B > B_{\mathrm{C}}$; (b) $B \sim B_{\mathrm{C}}$; (c) $B_{\mathrm{C}} > B > -B_{\mathrm{C}}$; (d) $B \sim -B_{\mathrm{C}}$; (e) $B < -B_{\mathrm{C}}$).

• Processus de retournement

Nous avons représenté sur la figure 4.28 la variation de la norme (a) et de la composante perpendiculaire au plan des couches (b) de l'aimantation totale et par sous-réseau en fonction du nombre de pas Monte Carlo durant le retournement.

Nous remarquons tout d'abord une variation de 5% et 10% de l'aimantation des sous-réseaux de Fe et de Dy durant le retournement et un pic étroit sur l'aimantation totale. Ces pics résultent de la méthode de simulation et n'ont pas de signification physique sur le mode de retournement de l'aimantation. En effet, la méthode de simulation utilisée propose une rotation individuelle des moments magnétiques et le système recquiert donc un certain nombre de pas Monte Carlo pour que son aimantation se retourne.

Par ailleurs, on retrouve bien que les aimantations par sous-réseau ne sont plus saturées après le retournement suite à l'apparition de la paroi. Nous verifions sur la figure 4.28(b) que la composante perpendiculaire de l'aimantation du Dy transite d'un état saturé "up" à un état saturé "down", contrairement à l'aimantation de la couche de Fe qui n'est plus saturée après le retournement (présence de la paroi). On en conclut alors que le retournement de l'aimantation n'est pas uniforme.

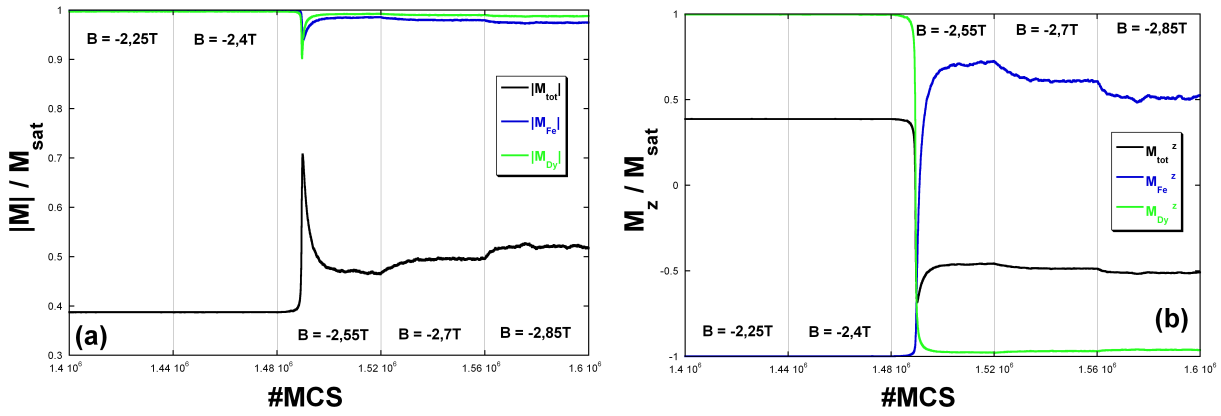

FIGURE 4.28 – Evolution de l'aimantation totale et par sous-réseau en fonction du nombre de pas Monte Carlo durant le retournement de l'aimantation d'une bicouche avec un profil abrupt pour un champ appliqué suivant la direction de facile aimantation, $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ à $T = 1\mathrm{K}$ ((a) norme de l'aimantation ; (b) composante perpendiculaire au plan des couches de l'aimantation).

• Influence de D_{Dy} sur le champ de retournement

Nous nous sommes également intéressé à l'influence du coefficient d'anisotropie magnétique uniaxiale sur le retournement, notamment sur la valeur du champ coercitif et sur l'évolution de la paroi d'interface.

Nous avons donc réalisé des cycles d'hystérésis dans la direction facile pour différentes valeurs du coefficient d'anisotropie magnétique ($D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 0,25$ à 2K). Le cycle de l'aimantation totale est représenté sur la figure 4.29(a).

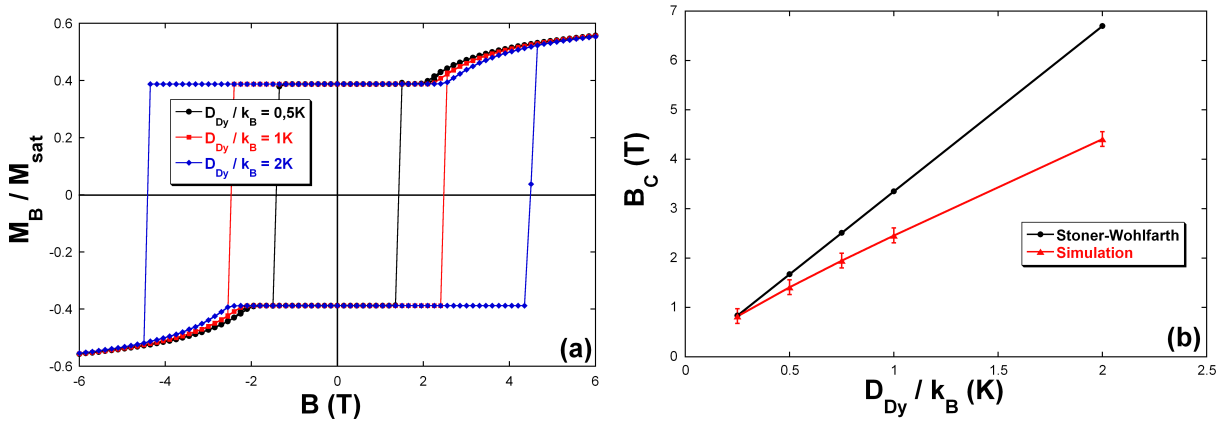

FIGURE 4.29 – (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation totale d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt à $T = 1\mathrm{K}$ pour différentes valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$. (b) Evolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique.

On observe que le retournement se produit toujours de façon abrupte et l'évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique peut toujours se décomposer en deux phases comme nous l'avons vu précédemment. Par ailleurs, nous constatons un changement de comportement pour 0,75K$< D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} <$1K. Nous avons représenté sur la figure 4.29(b) l'évolution du champ coercitif en fonction de la valeur du coefficient d'anisotropie magnétique en comparaison

avec le modèle de Stoner-Wohlfarth. Pour les valeurs les plus faibles de la constante d'anisotropie magnétique, le retournement de l'aimantation est uniforme (conservation de l'ordre ferrimagnétique), puis au-delà de $B_{SF} \sim 2,1\mathrm{T}$ (champ magnétique associé à la transition de "spin-flop"), il y a création d'une paroi d'interface dans la couche de Fe. Pour les valeurs plus élevées de D_{Dy}, la rotation n'est plus uniforme et la paroi est créée durant le retournement de l'aimantation des deux couches puisqu'on obtient un champ de retournement supérieur à $B_{SF} \sim 2,1\mathrm{T}$. Ces résultats sont en accord avec d'autres études sur la stabilité de l'ordre magnétique sous champ de multicouches ferrimagnétiques [Dantas 2004] et de multicouches couplées antiferromagnétiquement [Worledge 2004].

• Influence de la température

Nous avons représenté sur la figure 4.30(a) les cycles d'hystérésis simulés suivant la direction facile pour différentes températures dans le cas d'une bicouche avec une interface abrupte pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$. On remarque tout d'abord que l'on obtient toujours en champ nul l'aimantation de la temperature considérée déterminée au 3.3.3.2 par la variation thermique de l'aimantation. De plus, la valeur du champ coercitif diminue lorsque la température augmente, de même que la valeur de l'aimantation en champ fort. La décroissance du champ coercitif avec la température résulte principalement de l'effet de l'agitation thermique qui entraine une diminution de la constante d'anisotropie effective. Pour $T = 300\mathrm{K}$, c'est-à-dire au dessus de la température de Curie du système, on observe un cycle d'hystérésis caractéristique d'un système paramagnétique.

Nous avons réprésenté sur la figure 4.30(b) la variation du champ coercitif en fonction de la température. On observe une décroissance rapide de B_{C} à basse température, puis une évolution plus lente jusqu'à la température ambiante. Cette décroissance du champ coercitif est à relier à la variation thermique de l'aimantation de la multicouche (figure 4.30(b)) et notamment celle du sous-réseau de Dy qui diminue très rapidement avec la température (section 4.4.1) [Herpin 1968]. La variation thermique du champ coercitif semble suivre une dépendance avec le carré de l'aimantation réduite en fonction de la température (figure 4.30(c)). Des évolutions similaires ont déjà été observées sur des alliages MT/TR [Hansen 1991, Shan 1990*a*].

• Champ de saturation

Afin de voir s'il est possible de saturer l'échantillon, nous avons représenté le cycle d'hystérésis total et par sous-réseau (figure 4.31(a)) en appliquant un champ magnétique extrême $B_{\mathrm{max}} = 30\mathrm{T}$. On observe toujours un cycle qui peut se décomposer en deux zones. La zone en champ faible correspond à un ordre ferrimagnétique, tandis que la zone en champ fort correspond à la paroi d'interface qui se comprime. Cependant, même pour des valeurs très importantes du champ magnétique, on n'observe pas réellement de saturation de l'aimantation totale. L'aimantation du Fe augmente dans la direction du champ jusqu'à environ 10T puis la croissance de l'aimantation est moins rapide, en raison du processus de compression de la paroi d'interface. Même en appliquant un champ de 30T, il est impossible de casser complètement le couplage antiparallèle FeDy à l'interface et donc de saturer l'échantillon.

A partir de l'expression de l'énergie d'échange d'un atome de Fe appartenant au plan d'interface dans le cas d'une configuration ferrimagnétique parfaite :

$$E = \frac{1}{2}\frac{\mathbf{m}_{\mathrm{Fe}}}{\mathrm{g}_{\mathrm{Fe}}}\left[8J_{\mathrm{Fe-Fe}}\mathbf{S}_{\mathrm{Fe}} + 4J_{\mathrm{Fe-Dy}}\mathbf{S}_{\mathrm{Dy}}\right] = -\mathbf{m}_{\mathrm{Fe}}.\mathbf{B}_{\mathrm{loc}}, \tag{4.19}$$

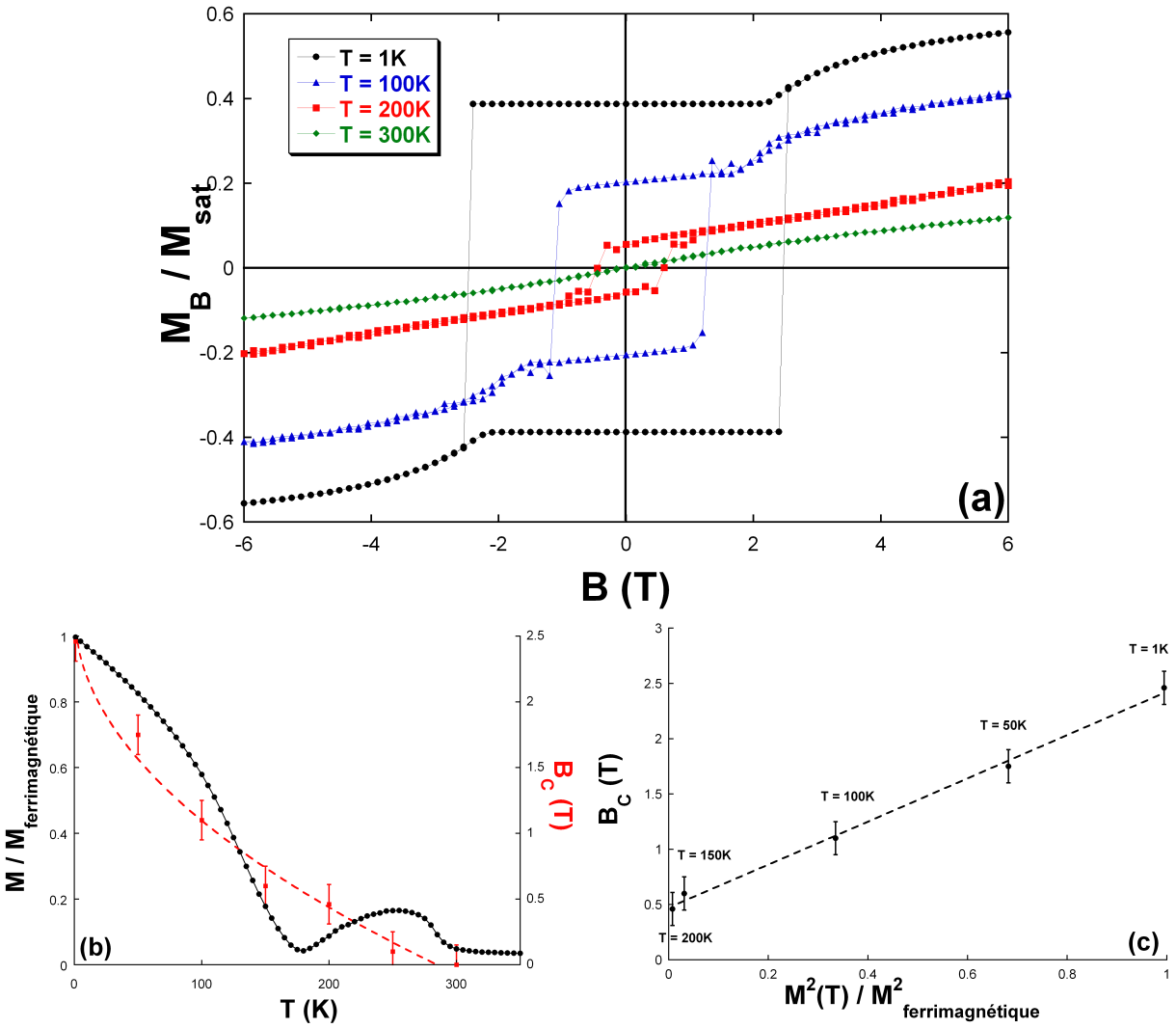

FIGURE 4.30 – (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation d'une bicouche avec un profil abrupt pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ à différentes températures. (b) Variation de l'aimantation et évolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la température (l'ajustement en pointillés est un guide visuel). (c) Variation du champ coercitif en fonction de l'aimantation réduite au carré.

on en déduit l'expression du champ local au site de Fe :

$$\mathbf{B}_{\mathrm{loc}} = -\frac{1}{2g_{\mathrm{Fe}}}\left[8J_{\mathrm{Fe-Fe}}\mathbf{S}_{\mathrm{Fe}} + 4J_{\mathrm{Fe-Dy}}\mathbf{S}_{\mathrm{Dy}}\right]. \tag{4.20}$$

Nous obtenons un champ local $B_{\mathrm{loc}} \approx 410\mathrm{T}$, ce qui traduit bien le fait qu'il faut appliquer un champ extrêmement élevé pour casser complètement le couplage Fe-Dy à l'interface.

Nous avons représenté sur la figure 4.31(b) l'évolution de la quantité $m_{\mathrm{sat}} - m(B)$ obtenue à partir de nos simulations et à partir de l'équation 4.18. Nous constatons un bon accord dans la variation de $m_{\mathrm{sat}} - m(B)$ en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué, qui nous permet de mettre en évidence une approche de la saturation suivant une loi en $\frac{1}{\sqrt{B}}$. Ce type d'évolution a déjà été observé expérimentalement sur des systèmes MT/TR [Dieny 1991]. L'écart entre les deux courbes peut être interprété comme étant dû principalement à notre modèle qui ne correspond pas à deux milieux semi-infinis.

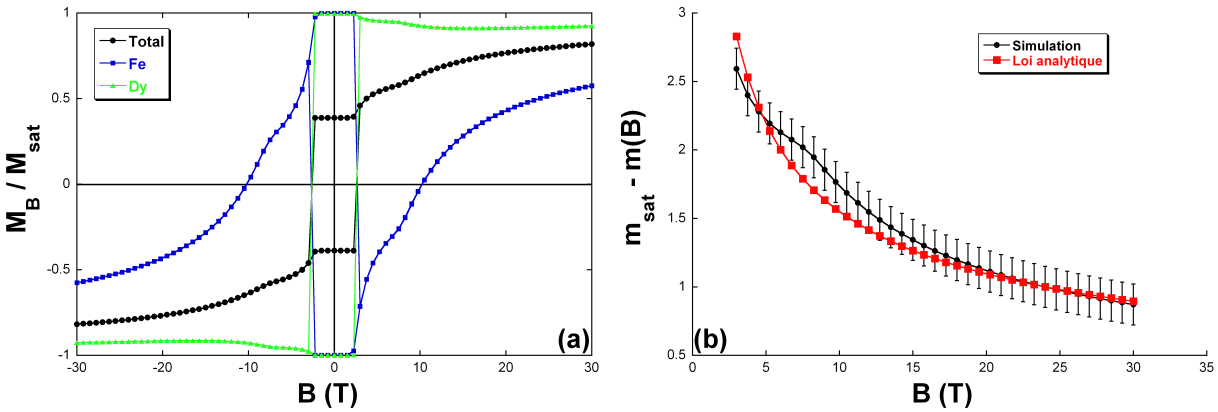

FIGURE 4.31 – (a) Cycles d'hystérésis (total et par sous-réseau) d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt à $T = 1\text{K}$ pour $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 1\text{K}$ pour un champ maximum appliqué de 30T. (b) Evolution de $m_{\text{sat}} - m(B)$ obtenue en simulation comparée à la loi analytique 4.18.

En conclusion, nos résultats montrent qu'il est impossible de casser le couplage antiparallèle à l'interface. La compétition entre les interactions d'échange et l'interaction Zeeman donne lieu à la naissance d'une paroi d'interface en champ fort. Nous avons mis en evidence également le fait que le retournement intervient pour des valeurs de champs plus faibles que celles obtenues si le retournement était uniforme. Il semble donc dans ce cas qu'un mode de retournement non collectif des moments magnétiques soit énergétiquement plus favorable dans le cas d'un profil de concentration abrupt si D_{Dy} est suffisant.

4.5.2.4 Profil de sonde

Dans le cas d'un profil de concentration plus diffus, et plus particulièrement dans le cas du profil de sonde, l'évolution de l'aimantation sous l'effet d'un champ magnétique est très différente de la situation précédente. Nous avons représenté sur la figure 4.32 le cycle d'hystérésis (total et par sous-réseau) dans le cas d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de sonde pour $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 1\text{K}$ à $T = 1\text{K}$.

Le cycle d'hystérésis de l'aimantation totale avec un champ appliqué dans la direction perpendiculaire au plan des couches présente une allure "carrée" caractéristique d'une anisotropie uniaxiale. Contrairement au cas précédent, ce cycle ne présente pas d'augmentation de l'aimantation en champ fort. Par ailleurs, on n'observe pas d'influence du nombre de bicouches considérées. Lorsque le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches, on obtient un cycle fermé caractéristique de l'application du champ magnétique dans une direction de difficile aimantation. De plus, les cycles par sous-réseau (figure 4.32(b)) montrent un alignement rigoureusement antiparallèle des deux sous-réseaux quelle que soit la valeur du champ appliqué. L'ordre est donc toujours ferrimagnétique dans la gamme de champs étudiés. Comme nous l'avons mentionné précédemment, il faudrait appliquer un champ magnétique très élevé (quelques dizaines de T) pour casser ce couplage antiferromagnétique. Dans la direction facile, le champ coercitif est estimé à $B_{\text{C}} = 3,60 \pm 0,15\text{T}$. Le champ d'anisotropie équivalent dans le cadre du modèle de rotation uniforme vaut $B_{\text{C}}^{\text{SW}} = 3,87\text{T}$ en accord avec le champ coercitif obtenu en simulation.

Afin de valider l'hypothèse d'un retournement uniforme de l'aimantation dans le cas d'un profil de sonde, nous avons représenté sur la figure 4.33 la variation du module de l'aimantation

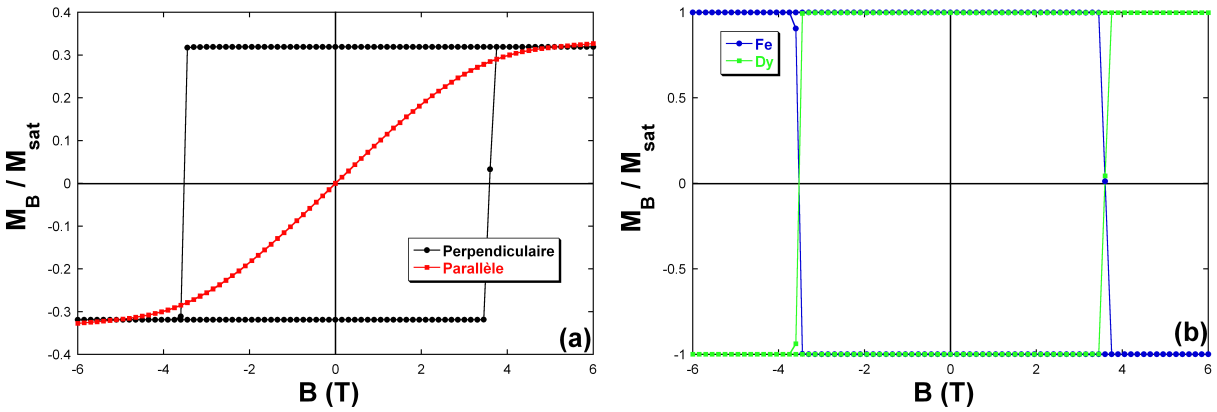

FIGURE 4.32 – Cycles d'hystérésis (total et par sous-réseau) d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de sonde pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ à $T = 1\mathrm{K}$ ((a) aimantation totale pour un champ appliqué parallèlement et perpendiculairement à la direction facile ; (b) cycles par sous-réseau dans le cas où le champ magnétique est appliqué dans la direction facile).

totale et par sous-réseau ainsi que la composante perpendiculaire des aimantations en fonction du nombre de pas Monte Carlo durant le retournement de l'aimantation.

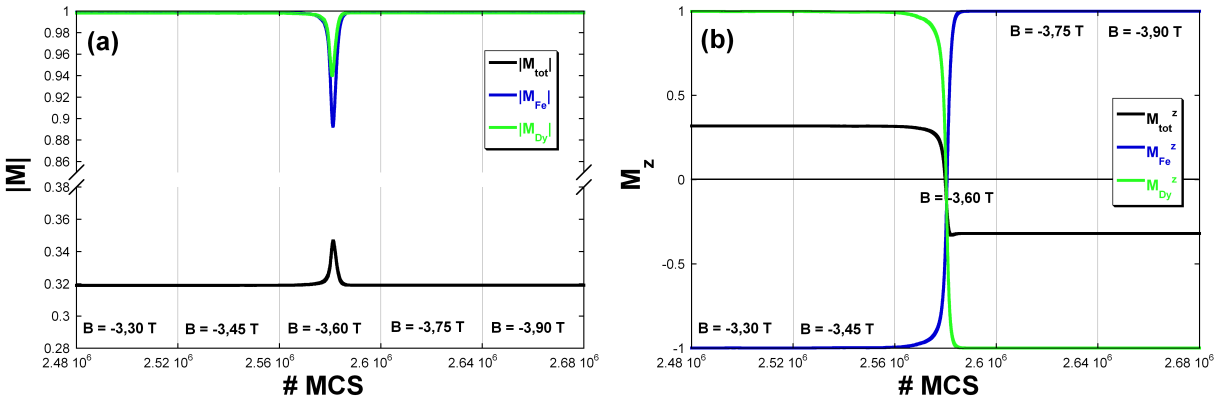

FIGURE 4.33 – Evolution de l'aimantation totale et par sous-réseau en fonction du nombre de pas Monte Carlo durant le retournement de l'aimantation d'une bicouche avec un profil de sonde, $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ à $T = 1\mathrm{K}$ ((a) norme de l'aimantation ; (b) composante perpendiculaire de l'aimantation).

On observe une diminution de moins de 11% de l'aimantation par sous-réseau durant le retournement pour une durée de 12000 pas Monte Carlo. Comme nous l'avons mentionné dans la section 4.5.2.3, cette variation de l'aimantation est liée à la méthode de simulation et n'a pas de signification physique permettant de conclure sur le mode de retournement de l'aimantation. A l'exception de cette zone, l'aimantation par sous-réseau demeure constante et saturée. L'évolution de la composante perpendiculaire des aimantations durant le retournement montre que le retournement est collectif, et que les deux états séparant le retournement sont saturés - dans la direction du champ magnétique pour le Dy, dans la direction opposée pour le Fe - (figure 4.33(b)). Nous sommes donc bien en présence d'un mode de retournement par rotation uniforme de l'aimantation, contrairement au cas du profil abrupt.

Nous avons également fait varier la valeur du coefficient d'anisotropie magnétique ($D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 0,25\mathrm{K}$ à 2K). Nous avons représenté sur la figure 4.34 les cycles d'hystérésis de l'aimantation totale en direction perpendiculaire (figure 4.34(a)) et l'évolution du champ coercitif en fonction de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ (figure 4.34(b)).

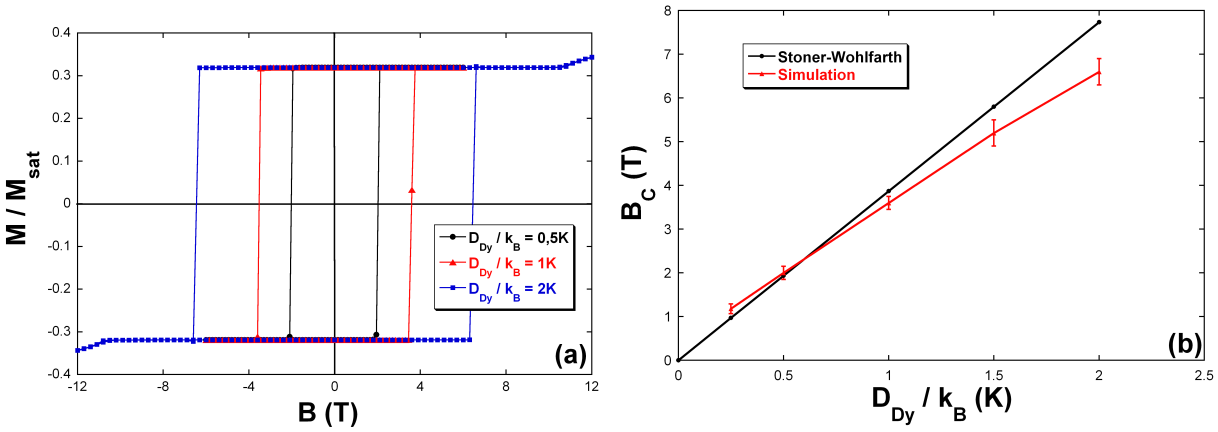

FIGURE 4.34 – (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation totale d'une bicouche avec un profil de sonde à $T = 1\mathrm{K}$ pour différentes valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$. (b) Evolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique.

Les cycles d'hystérésis montrent toujours une allure "carrée" et le champ coercitif augmente avec la constante d'anisotropie magnétique D_{Dy}. De plus, pour le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 2\mathrm{K}$, on met en évidence qu'au-delà d'un champ magnétique d'environ 10,5T, on casse partiellement le couplage Fe-Dy ce qui se traduit sur le cycle par une légère augmentation de l'aimantation totale en champ fort. On constate par ailleurs que la variation de B_{C} en fonction de D_{Dy} est en bon accord avec le modèle de Stoner-Wohlfarth si le coefficient d'anisotropie magnétique est inférieur à 1K, c'est-à-dire si le champ coercitif n'est pas trop élevé. Dans le cas contraire, le retournement de l'aimantation intervient en champ fort et la rotation n'est plus uniforme. Pour cette gamme de champs, on casse partiellement le couplage Fe-Dy, notamment dans les plans riches en Fe pour lesquels l'énergie d'échange entre les moments magnétiques de Fe et de Dy est faible.

• Influence de la température

Comme dans le cas du profil de concentration abrupt, nous avons étudié l'influence de la température de mesure sur les cycles d'hystérésis (figure 4.35(a)). L'évolution de l'aimantation en champ nul avec la température de mesure est cohérente avec les résultats obtenus précédemment sur l'étude de la variation thermique de l'aimantation (section 3.3.3.2). De plus, le cycle présente toujours une allure "carrée" caractéristique de l'anisotropie uniaxiale, quelle que soit la température. L'ordre demeure toujours ferrimagnétique et l'aimantation est dominée par le Dy.

Nous avons représenté sur la figure 4.35(b) la variation thermique de l'aimantation et l'évolution du champ coercitif en fonction de la température. Il semble que la décroissance du champ coercitif soit linéaire avec la température. Cette évolution est liée à la variation thermique de l'aimantation de la multicouche, pour laquelle nous avons montré que les moments magnétiques de Dy se mettent en ordre progressivement dès les hautes températures du fait de l'imbrication des deux sous-réseaux. Le champ coercitif semble évoluer également de façon linéaire avec l'aimantation réduite (figure 4.35(c)).

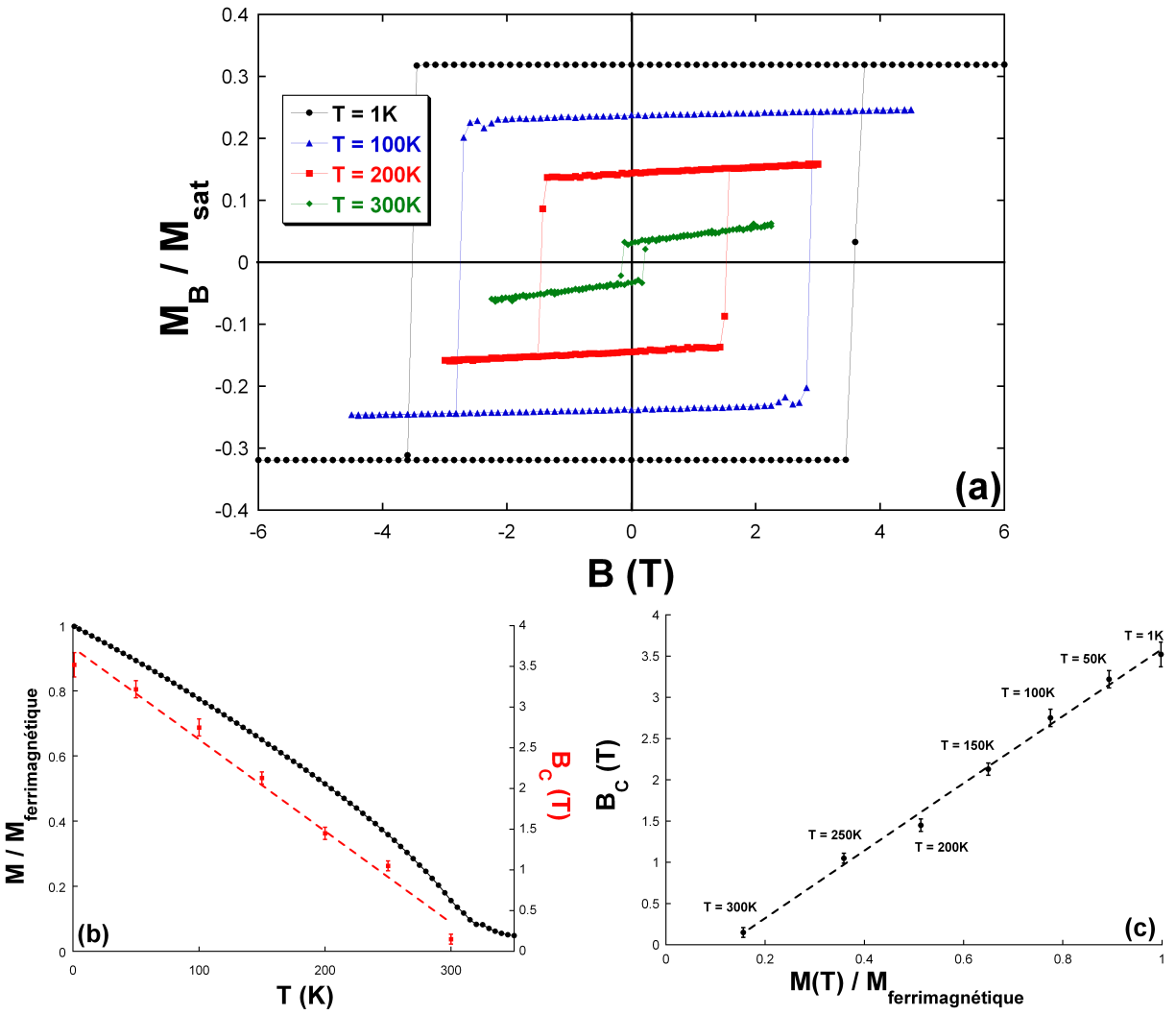

FIGURE 4.35 – (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation d'une bicouche avec un profil de sonde pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ et différentes températures de mesures. (b) Variation de l'aimantation et évolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la température (l'ajustement en pointillés est un guide visuel). (c) Variation du champ coercitif en fonction de l'aimantation réduite.

4.5.2.5 Profil Alliage

Dans le cas d'un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ (figure 4.36), les cycles d'hystérésis sont similaires au cas précédent : l'aimantation est toujours ferrimagnétique et le retournement est uniforme.

Nous obtenons un champ coercitif de $B_{\mathrm{C}} = 2,76 \pm 0,15\mathrm{T}$. Ce résultat est en bon accord avec le champ de retournement calculé pour un retournement uniforme de l'aimantation ($B_{\mathrm{C}}^{\mathrm{SW}} = 2,66\mathrm{T}$).

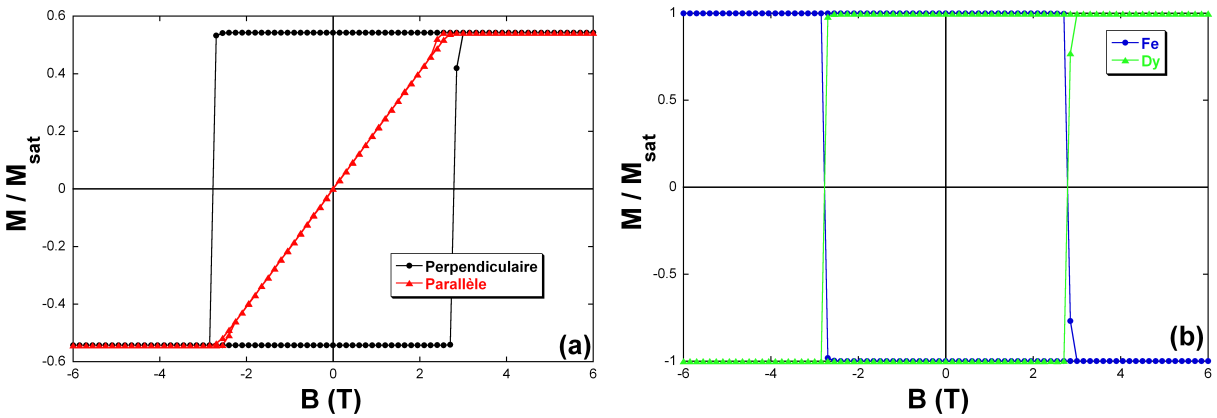

FIGURE 4.36 – Cycles d'hystérésis de l'aimantation totale et par sous-réseau d'une bicouche Fe/Dy avec un profil alliage $Fe_{67}Dy_{33}$ à $T = 1$K pour $D_{Dy}/k_B = 1$K ((a) aimantation totale pour un champ appliqué parallèlement et perpendiculairement à la direction facile ; (b) cycles par sous-réseau pour un champ colinéaire à la direction facile).

4.5.2.6 Conclusion préliminaire

Cette première partie de l'étude des cycles d'hystérésis à basse température pour des multicouches Fe/Dy avec une anisotropie magnétique uniaxiale montre qu'un profil diffus favorise un retournement uniforme de l'aimantation tandis que la présence d'interfaces "abruptes" donne lieu à un retournement progressif de la couche magnétique douce en champ fort avec la formation d'une paroi d'interface. Il est à noter que pour ce modèle d'anisotropie uniaxiale, le champ de retournement est nettement plus faible dans le cas du profil abrupt que dans le cas des profils diffus en accord avec les observations expérimentales qui montrent que l'anisotropie magnétique perpendiculaire est maximale lorsque le profil de concentration est le plus diffus.

4.5.3 Amas sans anisotropie magnétique aléatoire

Avant de comparer nos résultats aux observations expérimentales dans le cadre de notre modèle d'anisotropie d'amas, nous avons entrepris l'étude des propriétés dynamiques en ne considérant que l'influence des amas ordonnés, c'est-à-dire en n'introduisant pas d'anisotropie aléatoire sur les sites de Dy appartenant à la matrice. Nous avons réalisé cette étude sur les profils de concentration abrupt et sonde en fonction de la constante d'anisotropie magnétique et de la concentration d'amas. Les valeurs de la constante d'anisotropie D_{Dy}/k_B seront très nettement augmentées par rapport au cas avec anisotropie uniaxiale puisque les sites dotés d'une anisotropie magnétique sont beaucoup moins nombreux que précédemment. L'expression du champ de retournement de l'aimantation dans le cadre du modèle de rotation uniforme et du modèle d'amas est donnée par (voir annexe A) :

$$B_C^{SW} = \frac{X_{Dy}^{amas} D_{Dy} S_{Dy}^2}{2M_{ferrimagnetique}}. \tag{4.21}$$

4.5.3.1 Profil abrupt

Nous avons représenté sur la figure 4.37(a) les cycles d'hystérésis à basse température de l'aimantation réduite d'une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas pour différentes valeurs de la constante d'anisotropie. Le champ est appliqué dans la direction perpendiculaire au plan des couches.

Pour toutes les valeurs de D_{Dy} considérées ici, l'aimantation est toujours ferrimagnétique, avec les moments magnétiques de Dy suivant le sens du champ (et par conséquent les moments magnétiques de Fe antiparallèles au champ). Nous ne notons pas la présence d'une paroi à l'interface comme nous l'avions observée précédemment puisque dans le cas présent, le champ auquel intervient le retournement de l'aimantation est nettement inférieur au champ de "spin-flop". Cependant, on observerait cette paroi si on augmentait l'intensité du champ magnétique. On constate également que le retournement semble avoir lieu de façon uniforme avec un retournement brutal de l'aimantation totale du système.

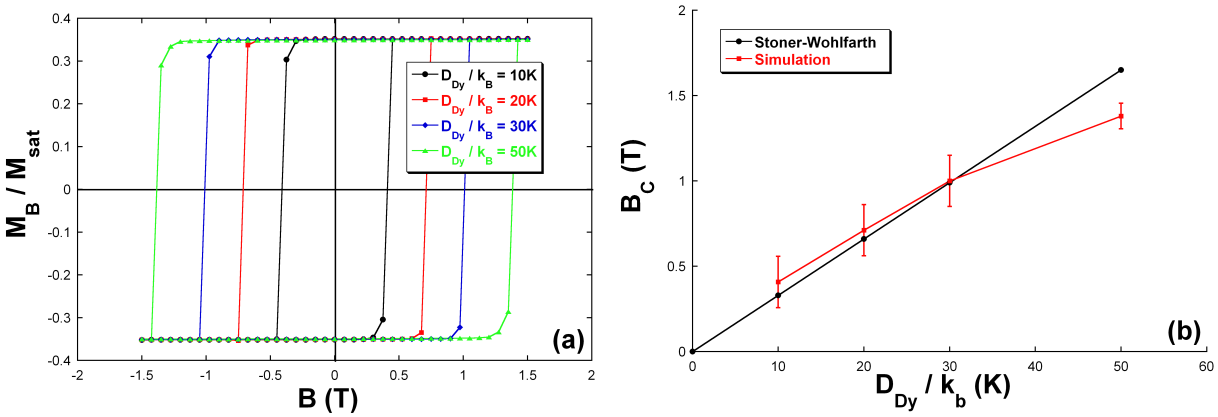

FIGURE 4.37 – (a) Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 1$K contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10, 20, 30$ et 50K. (b) Evolution du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique.

Nous avons tracé l'évolution du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique (figure 4.37(b)). Cette évolution semble linéaire jusqu'à $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K et correspond aux valeurs de champ coercitif calculées par un modèle de rotation uniforme. Au-delà ($D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} > 30$K), la valeur du champ de retournement diminue par rapport à celle calculée pour la rotation uniforme, conformément à ce que nous avions déjà observé dans le cas de l'anisotropie magnétique uniaxiale. La rotation de l'aimantation devient donc non uniforme en augmentant le coefficient d'anisotropie magnétique. Ce phénomène résulte en fait du comportement des plans de Dy pur qui ne comportent pas d'amas, et dont les moments magnétiques commencent à se retourner pour de plus faibles valeurs de champ que le champ coercitif "théorique". Les moments magnétiques de Dy de ces plans n'ont pas d'anisotropie magnétique, ils n'ont donc pas de barrière d'énergie à franchir, et pour des champs suffisamment intenses par rapport au couplage $J_{\mathrm{Dy-Dy}}$, ils peuvent se retourner progressivement en champ faible. Ce phénomène se traduit par des cycles d'hystérésis un peu moins "carrés" que dans le cas précédent.

4.5.3.2 Profil de sonde

Dans le cas du profil de sonde, nous avons étudié l'influence de la concentration d'amas sur la valeur du champ coercitif pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10\mathrm{K}$ (figure 4.38(a)) et 50K. On obtient des cycles d'hystérésis présentant la même allure que dans le cas d'une anisotropie magnétique uniaxiale, c'est-à-dire des cycles "carrés" caractérisant un état ferrimagnétique "up" ou "down".

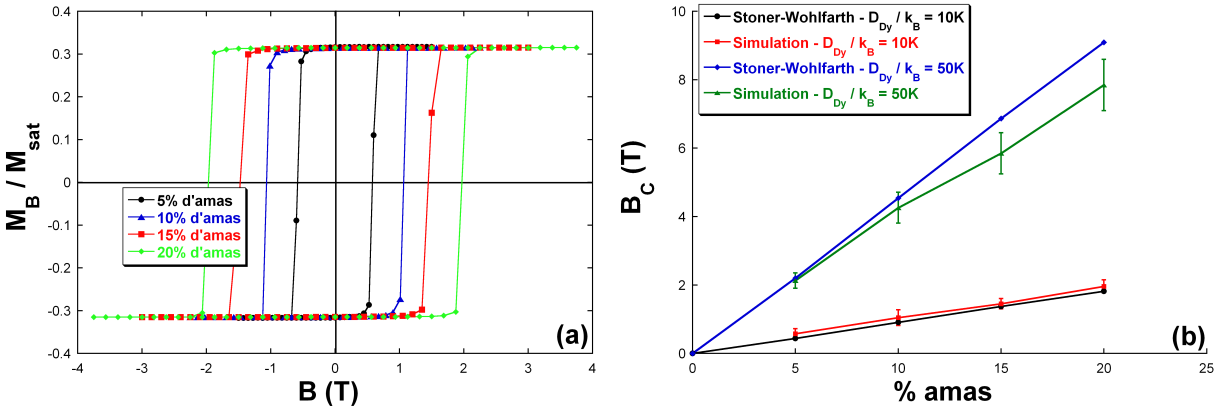

FIGURE 4.38 – (a) Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10\mathrm{K}$ pour différentes valeurs de la concentration d'amas. (b) Evolution du champ coercitif en fonction de la concentration d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$ et 50K.

De plus, comme le montre la figure 4.38(b) qui représente l'évolution du champ coercitif en fonction de la concentration d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10\mathrm{K}$ et 50K, la rotation semble être uniforme pour toutes les concentrations d'amas pour le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10\mathrm{K}$. Pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50\mathrm{K}$, le mode de retournement devient non uniforme au-delà de 10% d'amas.

En conclusion, l'introduction des amas ordonnés dans notre modèle est équivalente à l'introduction d'anisotropie uniaxiale lorsque le champ est appliqué dans la direction perpendiculaire. Les processus de retournement ne sont pas modifiés, et le champ coercitif est toujours proportionnel à la concentration d'amas (plus généralement à la concentration de sites porteurs d'une anisotropie magnétique) et à la constante d'anisotropie magnétique.

4.5.4 Amas et anisotropie magnétique aléatoire : modèle de Mergel

Nous allons maintenant nous intéresser au modèle le plus proche de la situation expérimentale en considérant le modèle d'amas ordonnés en compétition avec l'anisotropie magnétique aléatoire. Nous allons ainsi étudier les mécanismes de retournement de l'aimantation sous champ magnétique de structures spérimagnétiques. Puis, nous comparerons nos résultats de simulation aux résultats expérimentaux.

Comme nous l'avons vu précédemment, l'introduction d'amas donne lieu à une aimantation perpendiculaire à basse température. Cependant, à partir des courbes de variation thermique de l'aimantation ($M(T)$), il n'est pas possible de quantifier l'influence de la constante d'anisotropie magnétique (D_{Dy}) et notamment la compétition entre l'anisotropie des amas et l'anisotropie aléatoire de la matrice. Nous avons donc réalisé des simulations de cycles d'hystérésis sur des multicouches contenant des amas afin de mesurer l'anisotropie magnétique macroscopique de ces échantillons et d'étudier l'influence des structures spérimagnétiques sur le retournement de l'aimantation.

4.5.4.1 Profil abrupt

Nous avons représenté sur la figure 4.39 les cycles d'hystérésis (en directions perpendiculaire et parallèle au plan des couches) dans le cas d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas pour les valeurs de D_{Dy} donnant lieu à un ordre spérimagnétique significatif en champ nul et à basse température, c'est-à-dire $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 10\mathrm{K}$ (section 4.4.1.1).

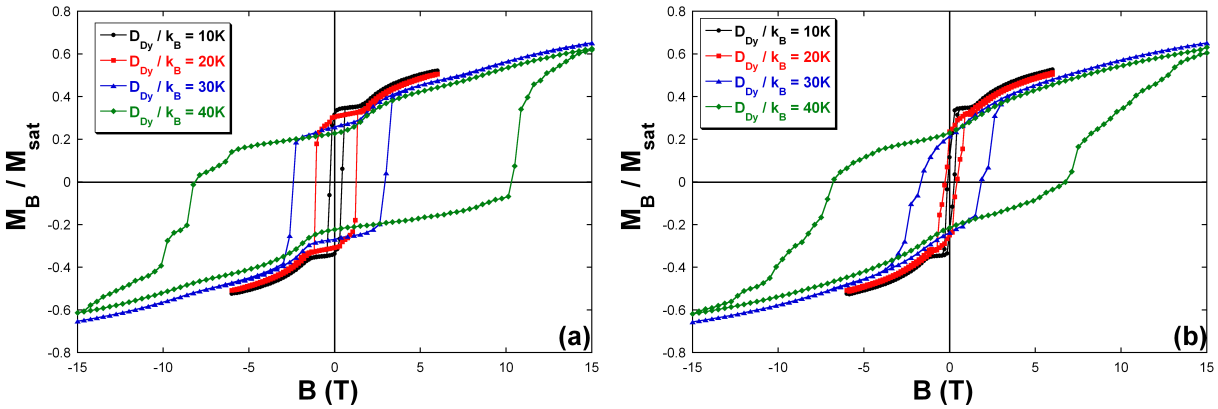

FIGURE 4.39 – Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 1\mathrm{K}$ contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$,20, 30 et 40K ((a) cycles en direction perpendiculaire ; (b) cycles en direction parallèle).

Nous notons dans un premier temps que les cycles d'hystérésis effectués dans la direction perpendiculaire (figure 4.39(a)) présentent de fortes similitudes avec ceux du cas de l'anisotropie uniaxiale étudiée précédemment si $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \leq 30\mathrm{K}$ (figure 4.25). En effet, les cycles sont ouverts et montrent un retournement en deux phases caractérisant chacune des deux couches. Le saut d'aimantation en champ faible correspond toujours à l'annihilation de la paroi d'interface dans la couche de Fe présentant le bord libre, le saut d'aimantation plus abrupt ($B_{\mathrm{C}} = 0,27 \pm 0,15\mathrm{T}$, $B_{\mathrm{C}} = 1,10 \pm 0,15\mathrm{T}$ et $B_{\mathrm{C}} = 2,6 \pm 0,4\mathrm{T}$ respectivement pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$, 20 et 30K) correspond au retournement de l'ensemble des moments magnétiques du système. Les valeurs des champs coercitifs sont supérieures à celles obtenues avec les amas ordonnés uniquement en raison de l'influence importante de l'anisotropie magnétique aléatoire si $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 30\mathrm{K}$.

Par ailleurs, nous notons ici une croissance continue de l'aimantation en champ fort, qui indique que l'ordre n'est pas ferrimagnétique et le plateau d'aimantation en champ faible n'est plus observé. Lorsque le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches (figure 4.39(b)), nous obtenons des cycles ouverts, qui ne sont plus caractéristiques d'un système à anisotropie uniaxiale perpendiculaire. L'ouverture des cycles croît avec la constante d'anisotropie magnétique et ils sont peu différents des cycles obtenus dans la direction perpendiculaire, surtout lorsque D_{Dy} augmente.

• **Champ appliqué dans la direction perpendiculaire**

Nous avons représenté sur la figure 4.40 les configurations magnétiques de la multicouche pour différentes valeurs du champ magnétique pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$.

L'ordre magnétique en champ fort ($B \approx +15\mathrm{T}$, figure 4.40(a)) est caractérisé par des moments magnétiques de Dy alignés dans la direction du champ magnétique et par des moments magnétiques de Fe constituant des parois. La couche libre de Fe forme une paroi similaire à celle mise en évidence lors de l'étude de l'anisotropie uniaxiale. La couche de Fe de coeur

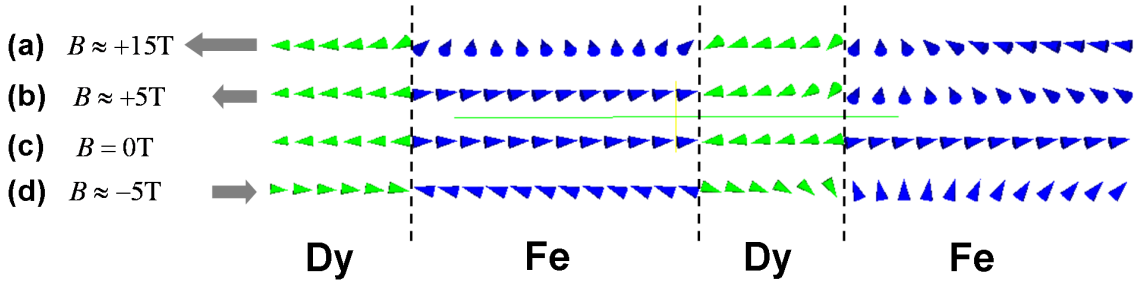

FIGURE 4.40 – Représentation de l'ordre magnétique par plan en fonction du champ magnétique durant le retournement dans le cas d'une multicouche avec un profil abrupt contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K ((a) $B \approx +15$T ; (b) $B \approx +5$T ; (c)$B = 0$T ; (d)$B \approx -5$T).

s'ordonne en créant également une paroi sous l'effet du champ magnétique élevé qui casse partiellement le couplage Fe-Dy. En diminuant l'intensité du champ magnétique (figure 4.40(b)), on détruit la paroi dans la couche de Fe de coeur, l'aimantation totale du sytème reste dominée par le sous-réseau de Dy et est suivant l'axe perpendiculaire au plan des couches. En champ nul (figure 4.40(c)), l'ordre est spérimagnétique suivant la direction Oz. La décroissance progressive de l'aimantation en champ faible résulte de l'évolution de la structure spérimagnétique lorsqu'on diminue puis retourne le champ magnétique appliqué. Enfin après le retournement de l'aimantation (figure 4.40(d)), on retrouve le même ordre magnétique que précédemment (figure 4.40(b)).

• Evolution du spérimagnétisme en fonction du champ magnétique

Afin de déterminer l'évolution de l'ordre spérimagnétique en épaisseur en fonction du champ magnétique appliqué, nous avons représenté sur la figure 4.41 la norme de l'aimantation par plan pour différentes valeurs du champ magnétique et une représentation schématique de l'ordre magnétique suivant l'épaisseur.

Pour un champ magnétique élevé ($B \approx 15$T), l'aimantation des plans de Dy évolue peu autour de $|M_i|/M_i^{\mathrm{sat}} \approx 0,95$ ce qui montre que le cône formé par les moments magnétiques est très reserré. En diminuant l'intensité du champ magnétique, on tend vers le profil d'aimantation en épaisseur obtenu précédemment (section 4.4.1.1) qui se caractérise par une dispersion des moments magnétiques plus importante au coeur de la couche de Dy. Plus l'intensité du champ diminue, plus la dispersion augmente. Elle est la plus importante juste avant le retournement de l'aimantation. Après le retournement, le cône se referme avec l'intensité du champ magnétique. L'évolution de l'aimantation par plan dans la couche de Fe est semblable à celle du Dy, la dispersion des moments magnétiques de Fe étant faible et toujours maximum pour les plans d'interface.

Par ailleurs, l'anisotropie magnétique aléatoire sur les sites de Dy induit des rotations non uniformes au sein d'un même plan. En effet, nous avons représenté sur la figure 4.42 la norme de l'aimantation et le cycle d'hystérésis de quelques plans de la multicouche. On distingue deux zones : la première où le retournement par plan est uniforme et la seconde pour laquelle les moments magnétiques de Fe et de Dy d'un même plan ne se retournent plus de manière collective puisque la norme de l'aimantation par plan varie durant le retournement. La première zone concerne les plans de Fe éloignés de l'interface (par exemple le plan 25) (figure 4.42(c)). Pour la seconde zone, on observe les variations les plus importantes de la norme de l'aimantation pour les plans de Dy les plus éloignés des interfaces (figure 4.42(a)). Ce phénomène trouve son

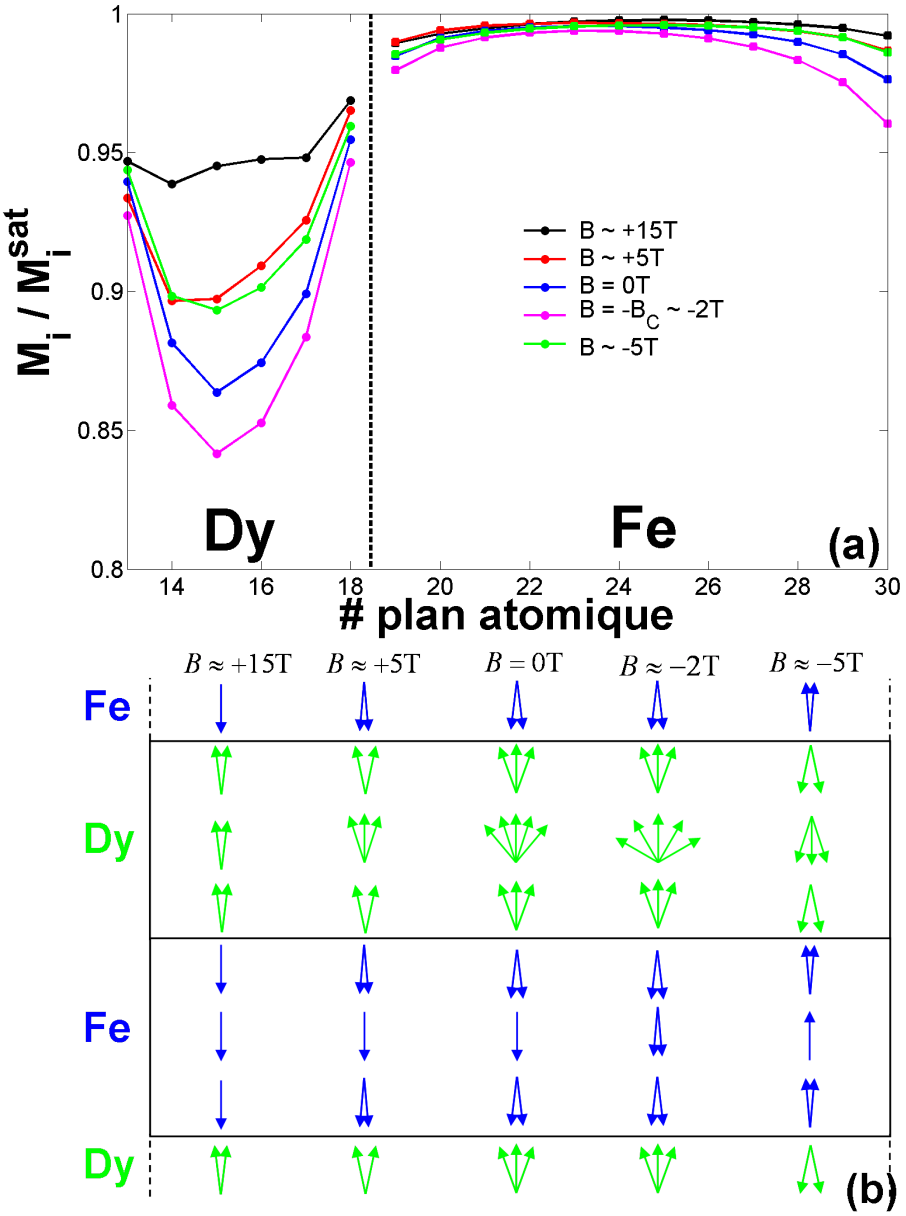

FIGURE 4.41 – (a) Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas pour différentes valeurs de champ magnétique. (b) Représentation schématique correspondante de l'évolution de l'ordre spérimagnétique pour différentes valeurs de champ magnétique.

explication dans la forte compétition entre l'anisotropie aléatoire dans la couche de Dy, l'énergie d'échange et l'énergie Zeeman. Les moments de Dy sont fortement influencés par l'anisotropie aléatoire, qui donne lieu à une forte dispersion des moments en champ nul. En champ fort, les moments de Dy s'alignent dans la direction du champ et le cône de spérimagnétisme se referme. Lorsque l'intensité du champ diminue, les moments de Dy relaxent vers leur direction locale d'anisotropie. En inversant le champ, les barrières d'anisotropie vues par chaque moment ne sont pas identiques, et le retournement intervient alors à des champs différents, ce qui sur l'ensemble de la couche de Dy donne un retournement non uniforme en épaisseur et au sein d'un même plan.

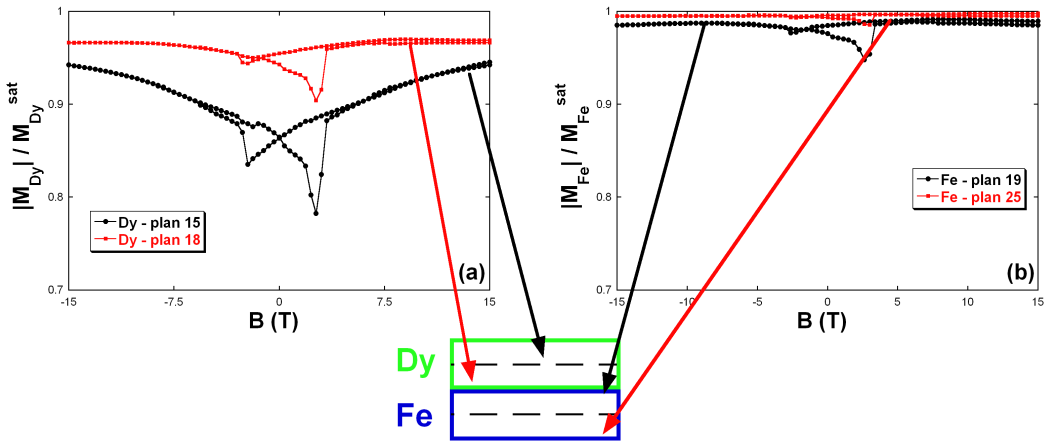

FIGURE 4.42 – Norme de l'aimantation par plan en fonction de l'intensité du champ appliqué dans la direction perpendiculaire d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 1$K contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K ((a) plans de Dy ; (b) plans de Fe).

• **Champ appliqué dans la direction parallèle**

Nous avons représenté sur la figure 4.43 l'évolution de l'ordre magnétique de la multicouche pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K lorsque le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches.

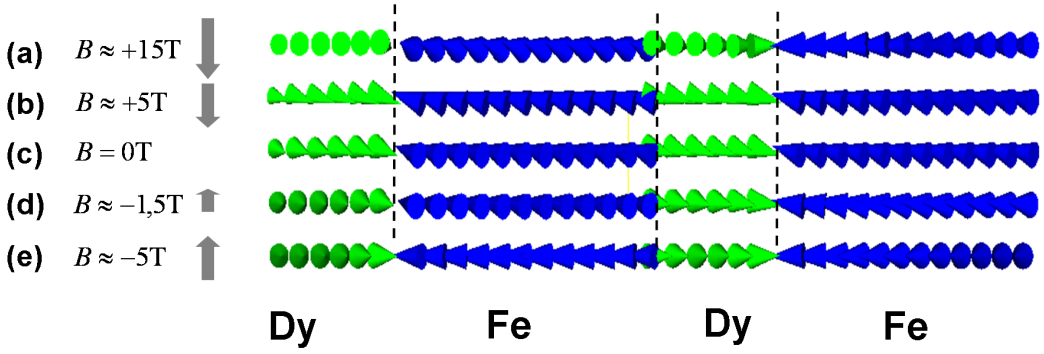

FIGURE 4.43 – Représentation de l'ordre magnétique par plan en fonction du champ magnétique durant le retournement dans le cas d'une multicouche avec un profil abrupt contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K ((a) $B \approx +15$T ; (b) $B \approx +5$T ; (c)$B = 0$T ; (d)$B \approx -5$T).

Tout d'abord en champ fort ($B \approx +15$T, figure 4.43(a)), nous obtenons un ordre magnétique très inhomogène suivant l'épaisseur. En effet, les aimantations des couches présentant un bord libre sont alignées dans la direction du champ magnétique alors que les aimantations des couches de coeur restent alignées suivant la direction perpendiculaire au plan des couches. Il existe une paroi aux interfaces afin d'accomoder cette différence d'orientation. En diminuant l'intensité du champ magnétique (figure 4.43(b, c, d)), l'ordre magnétique évolue vers un ordre spérimagnétique suivant la direction perpendiculaire, avec cependant une aimantation en champ nul qui présente une composante planaire importante. Pour des valeurs de champ inférieures au champ coercitif (figure 4.43(e)), les aimantations par plan s'orientent progressivement suivant la direction du champ magnétique.

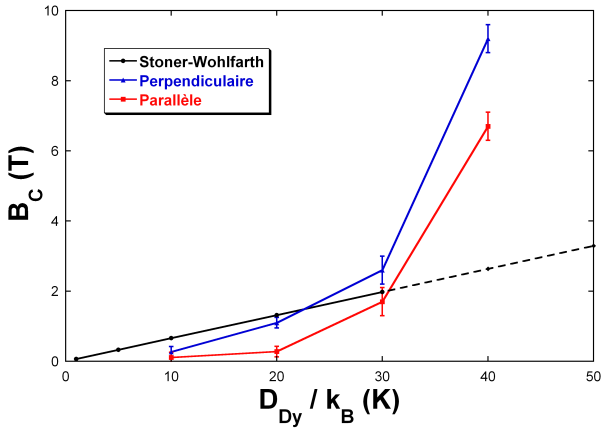

FIGURE 4.44 – Evolution du champ coercitif dans les deux directions à $T = 1$K en fonction de $D_{\mathrm{Dy}/k_{\mathrm{B}}}$ pour une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas.

• **Evolution du champ coercitif**

Dans ce cas, la faible concentration des amas, à l'origine de la composante "uniaxiale" de l'anisotropie, et les valeurs des constantes d'anisotropie que nous avons considérées ici ne peuvent expliquer à elles seules les importantes valeurs des champs coercitifs que nous obtenons. En effet, nous avons mis en évidence précédemment, dans le cas d'une anisotropie en moyenne uniaxiale venant uniquement des amas, que les champs de retournement sont inférieurs (ou égaux) au champ d'anisotropie (cas de la rotation uniforme). On peut estimer ce champ d'anisotropie par :

$$B_{\mathrm{C}}^{\mathrm{SW}} = \frac{X_{\mathrm{Dy}}^{\mathrm{amas}}.D_{\mathrm{Dy}}.S_{\mathrm{Dy}}^{2}}{2M_{\mathrm{ferrimagnetique}}}. \tag{4.22}$$

Il semble donc y avoir une contribution importante de l'anisotropie aléatoire sur les valeurs des champs coercitifs et le mode de retournement de l'aimantation.

Nous avons représenté sur la figure 4.44 la variation du champ coercitif, à $T = 1$K, dans les directions parallèle et perpendiculaire en fonction de la constante d'anisotropie pour une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas. Nous rappelons que lors de l'étude de l'anisotropie uniaxiale, nous avons mis en évidence le fait que la valeur du champ coercitif est inférieure au cas de la rotation uniforme si $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} > 30$K.

Nous pouvons distinguer deux zones. La première zone, qui correspond aux valeurs de la constante d'anisotropie inférieures à 30K, est caractérisée par un faible champ coercitif. Dans cette gamme, le mode de retournement de l'aimantation n'est pas ou peu influencé par l'anisotropie aléatoire et reste uniforme. La seconde zone correspond au cas où $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} > 30$K, pour lequel on observe une croissance rapide des valeurs du champ coercitif dans les deux directions avec la constante d'anisotropie magnétique. Cette évolution du champ coercitif est observée dans les deux directions d'application du champ magnétique et trouve son origine dans l'influence de l'anisotropie magnétique aléatoire. Le retournement s'effectue alors par une rotation non uniforme des moments magnétiques.

Nous ne pouvons pas comparer ces résultats à basse température avec les mesures expérimentales d'une multicouche présentant l'interface la plus abrupte ($T_{\mathrm{S}} = 320$K) puisque les mesures au SQUID n'ont pas permis d'atteindre les valeurs du champ coercitif pour cet échantillon

[Tamion 2005]. Cependant on peut conclure, en accord avec les résultats expérimentaux, que dans ce cas le champ coercitif est supérieur à 6T, ce que nous observons pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} > 30\mathrm{K}$. On notera que les résultats obtenus ici sont en accord avec les observations obtenues par Shan *et al* sur des multicouches Fe/Dy (de quelques angströms d'épaisseur) qui ont également constaté une forte ouverture du cycle pour un champ appliqué dans le plan [Shan 1990*a*]. Ils ont de surcroît effectué des cycles en direction perpendiculaire qui présentent deux sauts d'aimantation successifs.

• Influence de la température

Nous avons effectué des cycles d'hystérésis à une température de 100K (figure 4.45(a)) pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40\mathrm{K}$. Nous constatons deux effets principaux : lorsque le champ magnétique est appliqué dans la direction perpendiculaire au plan des couches, le cycle présente une allure semblable au cas de l'anisotropie uniaxiale. Ce cycle est carré en champ faible, c'est-à-dire caractéristique d'une anisotropie perpendiculaire, puis en champ fort on observe le développement d'une paroi d'interface. Lorsque le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches, le cycle est alors fermé et montre une évolution caractéristique d'un système à anisotropie uniaxiale pour un champ appliqué dans une direction difficile. Il y a donc un effet important de la température sur l'allure des cycles d'hystérésis. Comme nous l'avons vu au cours de l'étude de la variation thermique de l'aimantation, à $T = 100\mathrm{K}$, les moments magnétiques ne sont que faiblement influencés par l'anisotropie aléatoire (figure 4.10). L'application d'un champ magnétique est alors suffisante pour fermer le cône de spérimagnétisme.

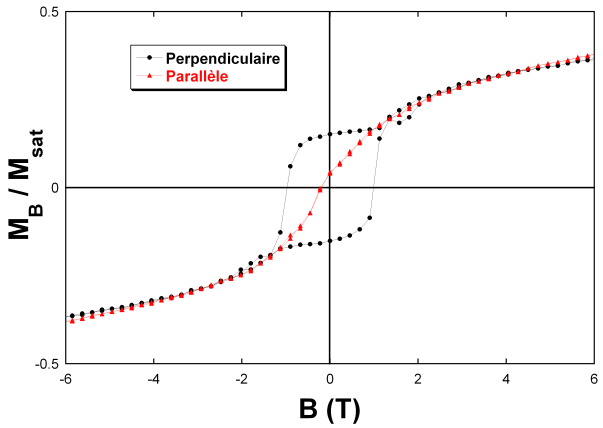

FIGURE 4.45 – Cycles d'hystérésis dans les directions parallèle et perpendiculaire au plan des couches d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 100\mathrm{K}$ contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40\mathrm{K}$.

4.5.4.2 Profil de sonde

Nous avons représenté sur la figure 4.46 les cycles d'hystérésis à $T = 1\mathrm{K}$ pour une multicouche Fe/Dy avec un profil de sonde et $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ pour différentes concentrations d'amas.

Les cycles effectués dans la direction perpendiculaire (figure 4.46(a)) montrent une allure "carrée" caractéristique d'une direction de facile aimantation perpendiculaire au plan des couches. On note également que la valeur du champ coercitif augmente fortement lorsque la concentration d'amas augmente. Lorsque le champ est appliqué dans le plan des couches (figure 4.46(b)) les cycles sont ouverts en raison de l'anisotropie aléatoire mais ils sont très différents

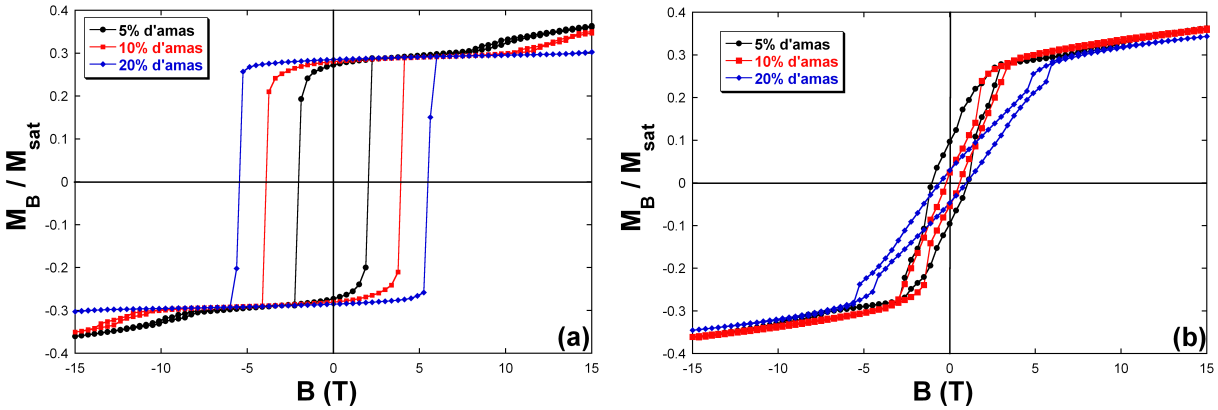

FIGURE 4.46 – Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K pour différentes concentrations d'amas ((a) cycles en direction perpendiculaire ; (b) cycles en direction parallèle).

de ceux obtenus dans la direction perpendiculaire. De plus, le champ coercitif évolue peu avec la concentration d'amas. On retrouve ici que l'anisotropie aléatoire influence essentiellement le retournement de l'aimantation lorsque le champ est appliqué dans le plan des couches. En effet, en augmentant la concentration d'amas, on diminue la proportion de sites ayant une direction d'anisotropie magnétique aléatoire et l'on tend vers un cycle en direction parallèle fermé. Ces résultats sont différents de ceux obtenus pour le profil abrupt où les cycles dans les directions perpendiculaire et parallèle sont assez proches.

Nous avons représenté sur la figure 4.47 la norme de l'aimantation par plan pour une multicouche avec un profil de sonde avec 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K à $T = 1$K pour différentes valeurs de champ magnétique.

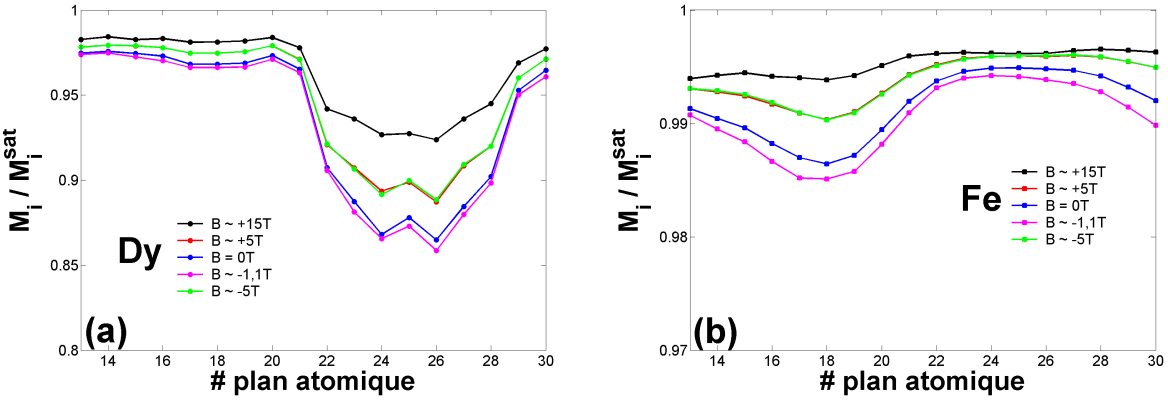

FIGURE 4.47 – Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30$K d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas pour différentes valeurs de champ magnétique ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe).

Nous obtenons globalement des profils d'aimantation suivant l'épaisseur qui présentent une allure semblable à ceux obtenus lors de l'étude des propriétés à l'équilibre (section 4.4.1.3). Les moments magnétiques sont les plus dispersés pour un champ magnétique proche du champ coercitif ($B_{\mathrm{C}} \approx 2$T). Nous avons également vérifié que la concentration d'amas ne modifie que

faiblement le profil d'aimantation spérimagnétique suivant l'épaisseur de la multicouche ; les plans sont légèrement plus aimantés quand la concentration en amas est élevée. Par ailleurs, les aimantations par plan décroissent avec l'augmentation de la constante d'anisotropie magnétique mais l'allure du profil d'aimantation en épaisseur est similaire.

Afin de déterminer avec plus de précision les différences qui interviennent sur les processus de retournement de l'aimantation, nous avons représenté sur la figure 4.48 la norme de l'aimantation par sous-réseau pour certains plans de la multicouche dans le cas $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ avec 10% d'amas. Nous avons notamment distingué un plan riche en Dy (plan 18 pour lequel $X_{\mathrm{Fe}} = 0,40$) et un plan riche en Fe (plan 25 pour lequel $X_{\mathrm{Fe}} = 0,90$).

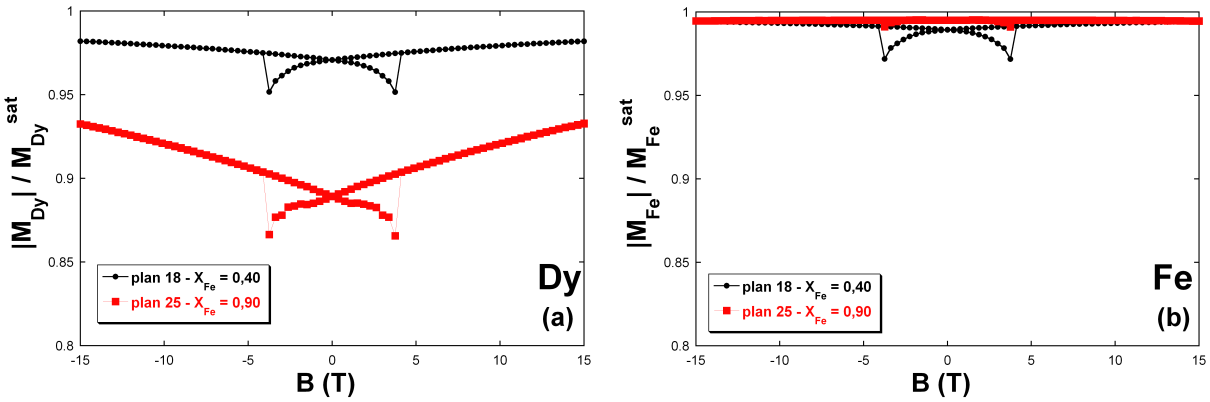

FIGURE 4.48 – Norme de l'aimantation par plan d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de sonde contenant 10% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}/k_{\mathrm{B}}} = 30\mathrm{K}$ à $T = 1\mathrm{K}$ ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe).

Pour le sous-réseau de Dy, on peut distinguer les zones riches et les zones pauvres en Dy. En effet, comme le montre la figure 4.48(a), la norme de l'aimantation varie d'autant plus au cours du retournement que le plan est riche en Fe. Pour le sous-réseau de Fe, la rotation semble uniforme dans les plans riches en Fe. Dans les autres plans (à concentration en Dy plus importante), les moments magnétiques se retournent suivant un mode non uniforme. Ce phénomène s'explique par le couplage Fe-Dy qui tend à faire suivre aux moments magnétiques de Fe les mêmes modes de retournement que ceux du Dy.

Nous nous sommes également intéressé à l'influence de la concentration d'amas et de la constante d'anisotropie magnétique en réalisant des cycles d'hystérésis. Nous avons regroupé les valeurs de champ coercitif obtenues en direction perpendiculaire sur la figure 4.49 que nous comparons aux valeurs obtenues par le modèle de rotation uniforme de l'aimantation ne prenant en compte que l'anisotropie des amas.

Quelle que soit la concentration d'amas, l'évolution du champ coercitif avec la constante d'anisotropie magnétique est semblable et peut se décomposer en deux parties. La première pour les valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} < 30\mathrm{K}$ pour 5% et 10% d'amas et $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} < 40\mathrm{K}$ pour 20% d'amas, où B_{C} suit une évolution linéaire conforme au modèle de Stoner-Wohlfarth. Au-delà, les valeurs des champs coercitifs augmentent fortement en raison de l'influence de l'anisotropie aléatoire qui contribue au champ coercitif et entraine un retournement non uniforme. Par ailleurs, nous observons une influence de la concentration d'amas ordonnés sur l'écart au modèle de Stoner-Wohlfarth (pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 30\mathrm{K}$). En augmentant la concentration d'amas ordonnés, l'écart au modèle de retournement uniforme de l'aimantation diminue, on diminue la contribution aléatoire de l'anisotropie magnétique et le retournement tend à être plus uniforme.

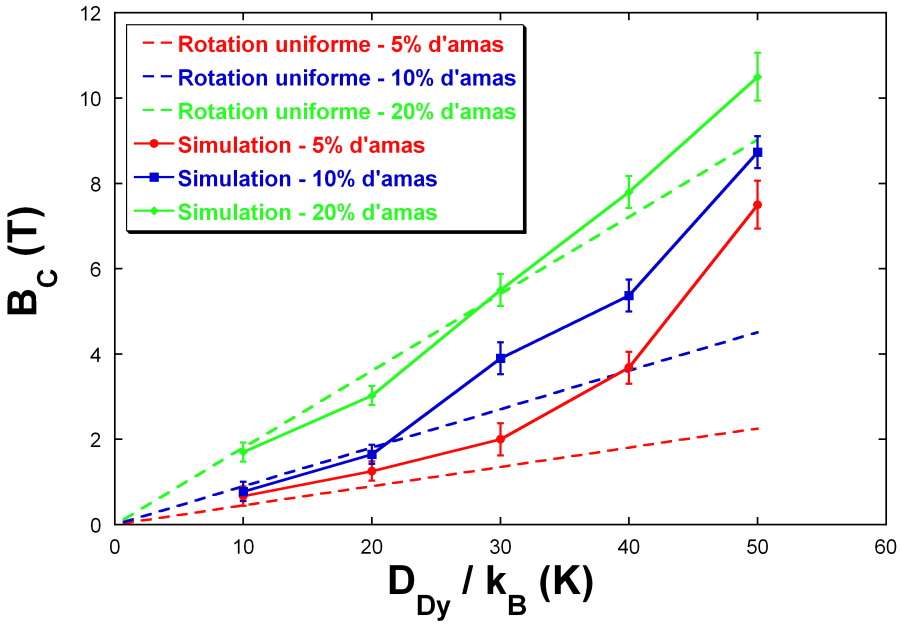

FIGURE 4.49 – Evolution du champ magnétique coercitif en fonction de la constante d'anisotropie à $T = 1$K pour une multicouche avec un profil de sonde en fonction de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ pour différentes concentrations d'amas.

L'ensemble des cycles obtenus pour les différentes concentrations d'amas et valeurs de la constante d'anisotropie magnétique ont mis en évidence une direction préférentiellement perpendiculaire de l'aimantation, en accord avec les résultats expérimentaux comme le montre la figure 4.50. La valeur de la constante d'anisotropie qui nous permet d'obtenir les résultats de simulations les plus proches des résultats expérimentaux est $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40$K et une concentration d'amas égale à 10%. C'est donc celle que l'on va conserver par la suite.

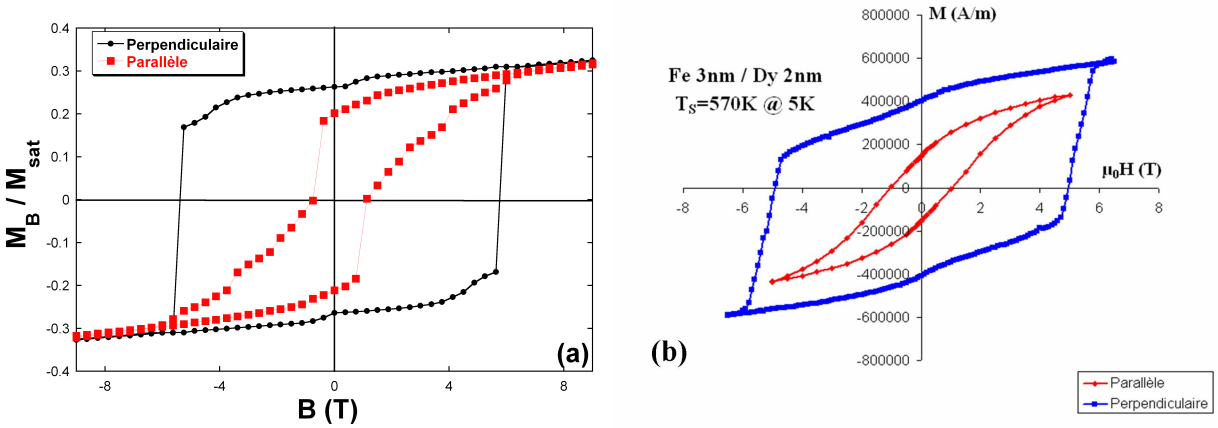

FIGURE 4.50 – (a) Cycles d'hystérésis dans les directions perpendiculaire et parallèle à $T = 1$K d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde contenant 10% d'amas et pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40$K. (b) Cycles d'hystérésis expérimentaux dans les mêmes directions à $T = 5$K d'une multicouche Fe/Dy élaborée à $T_{\mathrm{S}} = 570K$.

Nous obtenons des champs coercitifs en direction perpendiculaire et parallèle de $B_C^{\perp} = 5,5 \pm 0,3$T et $B_C^{//} = 0,9 \pm 0,3$T en bon accord avec ceux obtenus expérimentalement ($B_C^{\perp} = 5,3 \pm$T et $B_C^{//} = 1$T). Cependant, la différence essentielle porte sur le cycle expérimental en direction parallèle qui est plus "oblique".

• Influence de la température

Afin de confirmer l'accord qualitatif entre notre modèle et les résultats expérimentaux, nous avons réalisé des cycles d'hystérésis à différentes températures.

Nous avons représenté sur la figure 4.51 les cycles d'hystérésis en directions perpendiculaire et parallèle d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 10% d'amas avec $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40$K à $T = 50$, 100 et 300K que nous comparons directement aux cycles expérimentaux.

Nous observons un bon accord qualitatif de l'évolution des cycles d'hystérésis avec la température d'analyse. Sur la gamme de températures étudiées, la direction de facile aimantation est toujours perpendiculaire au plan des couches. L'augmentation de la température d'analyse nous permet de mettre en évidence une décroissance importante de l'effet de l'anisotropie aléatoire puisqu'on constate une fermeture des cycles en direction parallèle, par rapport aux cycles mesurés à très basse température (figure 4.50). De plus, on observe une diminution à la fois du champ coercitif et de l'aimantation avec la température. Les processus de retournement sont toujours contrôlés par le sous-réseau de Dy puisque pour ce profil, nous avons montré précédemment qu'il n'existait pas de compensation magnétique. L'ordre demeure ferrimagnétique (ou spérimagnétique) à toute température.

Nous avons représenté sur la figure 4.52 la variation thermique du champ coercitif mesuré avec un champ appliqué perpendiculairement au plan des couches pour les résultats expérimentaux et les résultats de simulation dans le cas d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% et 10% d'amas et $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40$K.

L'évolution du champ coercitif en fonction de la température montre un bon accord entre les simulations numériques et les résultats expérimentaux, au moins d'un point de vue qualitatif. On notera simplement une décroissance plus rapide du champ coercitif expérimental par rapport à celui obtenu par simulation. Cette concordance amène à penser que les paramètres physiques indispensables à la description des résultats expérimentaux sont effectivement un terme d'anisotropie aléatoire et un terme d'anisotropie en moyenne uniaxiale combinés à des profils de concentration dépendants de la température d'élaboration.

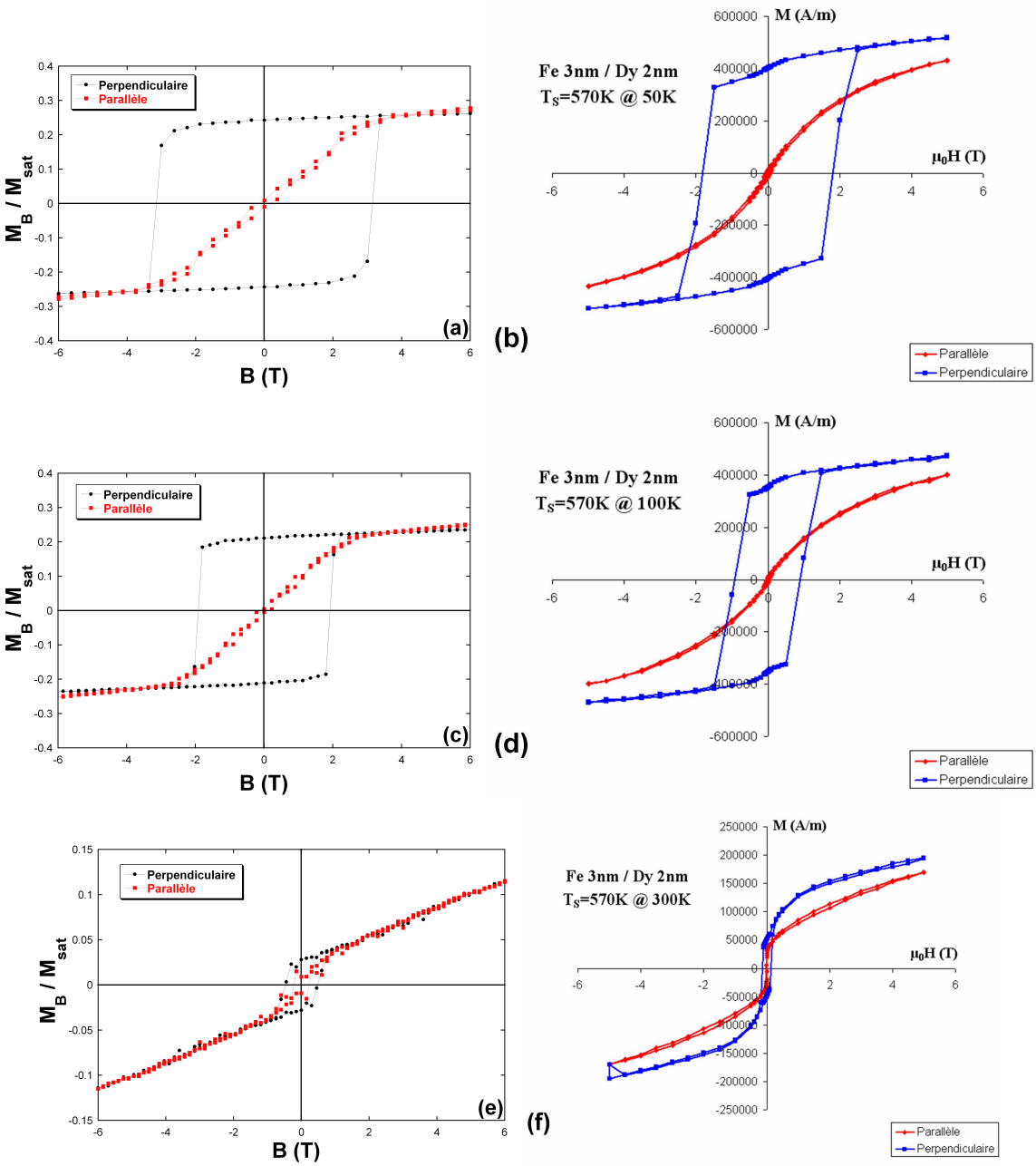

FIGURE 4.51 – (a, c, e) Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde à $T = 50$, 100 et 300K contenant 10% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40$K. (b, d ,f) Cycles d'hystérésis expérimentaux à $T = 50$, 100 et 300K pour une multicouche élaborée à $T_{\mathrm{S}} = 570$K.

4.5.4.3 Conclusion sur le modèle d'amas et l'anisotropie perpendiculaire

Les résultats numériques de cette étude des cycles d'hystérésis par simulation Monte Carlo sur un modèle d'anisotropie contenant une fraction de sites avec une anisotropie en moyenne uniaxiale et une majorité de sites avec une anisotropie aléatoire nous permettent d'émettre quelques hypothèses sur l'interprétation des résultats expérimentaux.

L'anisotropie magnétique aléatoire influence fortement les processus de retournement de l'aimantation. Pour un ordre spérimagnétique donné, la coercivité augmente par rapport au cas

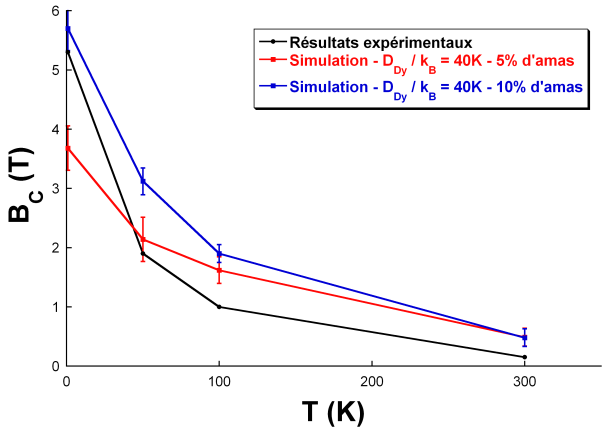

FIGURE 4.52 – Evolution du champ coercitif en direction perpendiculaire en fonction de la température pour une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% et 10% d'amas.

d'une anisotropie magnétique uniaxiale. Le retournement par rotation uniforme d'une structure ferrimagnétique peut devenir non uniforme pour une structure spérimagnétique avec une augmentation de la coercivité.

Nous avons également mis en évidence l'influence du profil de concentration sur l'anisotropie magnétique perpendiculaire. Sur l'ensemble des profils de concentration, l'anisotropie aléatoire est responsable de l'ouverture des cycles en direction parallèle à basse température. Cependant, dans le cas du profil de concentration abrupt, le cycle en direction parallèle est à peine moins ouvert que celui en direction perpendiculaire dès $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 30\mathrm{K}$, alors que pour les profils plus diffus, les résultats montrent que l'aimantation est toujours préférentiellement dans la direction perpendiculaire et que les cycles en direction parallèle sont plus refermés.

Nous avons représenté sur la figure 4.53 l'évolution du champ coercitif dans la direction perpendiculaire en fonction de l'énergie d'anisotropie magnétique "uniaxiale" par atome de Dy pour les différents modèles d'anisotropie. L'énergie d'anisotropie "uniaxiale" ne prend donc pas en compte l'énergie liée aux atomes de Dy ayant une direction aléatoire et s'exprime par :

$$E_{\mathrm{a}}^{\mathrm{uniax.}} = \frac{N_{\mathrm{Dy}}^{\mathrm{uniax}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2}{N_{\mathrm{Dy}}^{\mathrm{tot}}}, \tag{4.23}$$

où $N_{\mathrm{Dy}}^{\mathrm{uniax}}$ et $N_{\mathrm{Dy}}^{\mathrm{tot}}$ sont respectivement les nombres d'atomes de Dy ayant une direction d'anisotropie "uniaxiale" et d'atomes de Dy dans la multicouche.

Pour le profil de concentration abrupt (figure 4.53(a)), le modèle d'amas ordonnés avec anisotropie aléatoire permet d'obtenir des champs coercitifs dans la direction perpendiculaire largement supérieurs à ceux du modèle d'anisotropie uniaxiale pour des énergies d'anisotropie plus faibles. En effet, pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} > 30K$ ($E_{\mathrm{a}}^{\mathrm{uniax.}} > 6,5\mathrm{K}$), alors que la multicouche ne contient que 1,1% d'atomes ayant une direction d'anisotropie définie (contre 33% pour le cas de l'anisotropie uniaxiale), le champ coercitif croît très rapidement. Pour le profil de sonde contenant 5% d'amas ordonnés (figure 4.53(b)), l'évolution du champ coercitif en fonction de l'énergie d'anisotropie est similaire au cas du profil abrupt. Cependant, la croissance de B_{C} est plus lente que précédemment en raison de l'imbrication des deux sous-réseaux. Enfin, pour le profil de sonde avec 20% d'amas (figure 4.53(c)), l'effet de l'anisotropie magnétique aléatoire est moindre et le champ coercitif évolue approximativement de façon linéaire avec l'énergie

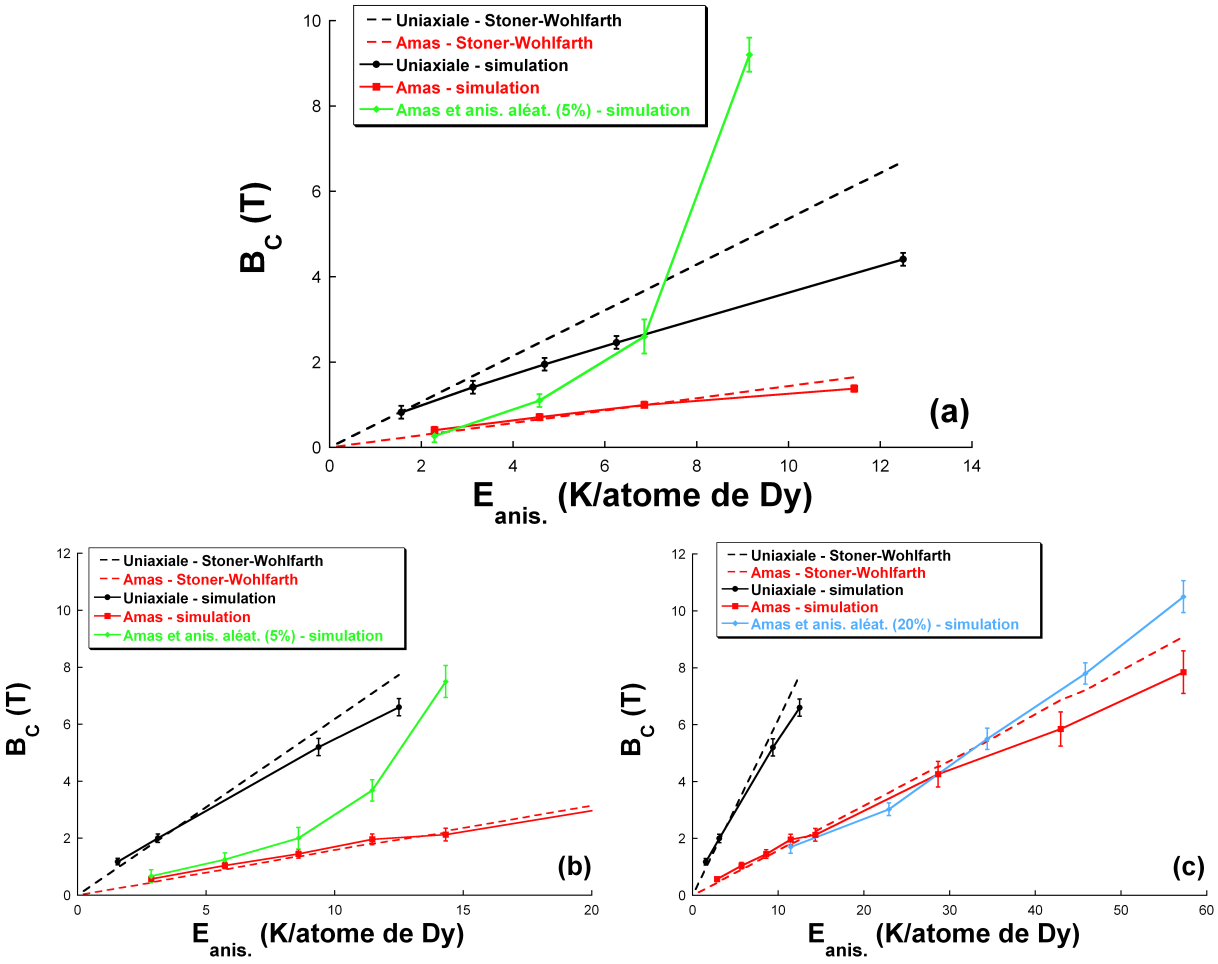

FIGURE 4.53 – Evolution du champ coercitif en fonction de l'énergie d'anisotropie magnétique "uniaxiale" par atome de Dy pour les différents modèles d'anisotropie magnétique ((a) profil abrupt avec 5% d'amas ; (b) profil de sonde avec 5% d'amas ; (c) profil de sonde avec 20% d'amas).

d'anisotropie magnétique, en accord avec le modèle de Stoner-Wohlfarth.

4.6 Conclusion du chapitre

Cette étude de l'anisotropie magnétique des multicouches amorphes Fe/Dy nous a permis de mettre en évidence l'influence des paramètres chimiques et magnétiques sur les structures magnétiques stables et les processus de retournement sous champ magnétique.

L'étude des propriétés magnétiques à l'équilibre (variation thermique de l'aimantation) nous a permis de déterminer les configurations magnétiques stables à basse température en fonction de l'intensité de la constante d'anisotropie magnétique et du profil de concentration. Pour des coefficients $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 10\mathrm{K}$ et pour un profil de concentration abrupt ou linéaire, il apparait des configurations spérimagnétiques en dessous de la température de compensation ($T_{\mathrm{comp}} = 170\mathrm{K}$). Le désalignement des moments magnétiques par rapport à la direction moyenne de l'aimantation intervient principalement sur le sous-réseau de Dy. Le profil d'aimantation en épaisseur n'est donc pas homogène. Pour les profils de concentration qui présentent une plus grande diffusion

à l'interface (sonde et alliage), nous avons également mis en évidence l'existence d'un ordre spérimagnétique à basse température pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} \geq 20\mathrm{K}$. A nouveau, le profil d'aimantation est inhomogène en épaisseur, avec une variation non monotone de l'angle de cône formé par les moments magnétiques de Dy suivant l'épaisseur. Ce phénomène est principalement lié aux compétitions énergétiques locales entre les termes d'anisotropie magnétique et d'échange, qui dépendent de la concentration. Enfin, le modèle d'anisotropie structurale locale que nous avons utilisé favorise une direction perpendiculaire de l'aimantation à basse température.

Nous avons ensuite réalisé une étude par simulation de cycles d'hystérésis afin de confronter les modèles d'anisotropie magnétique aux résultats expérimentaux. Dans un premier temps nous avons caractérisé les différentes configurations magnétiques obtenues sous champ dans le cadre d'un modèle simple d'une anisotropie magnétique uniaxiale sur les sites de Dy. Nos résultats mettent en évidence une forte influence du profil de concentration sur les processus de retournement. Pour un profil de concentration abrupt, les moments magnétiques ne se retournent pas de manière uniforme. Il existe une transition de spin-flop qui donne lieu au développement d'une paroi d'interface principalement localisée dans la couche de Fe. Un profil plus diffus permet une rotation uniforme de l'aimantation, en conservant un ordre ferrimagnétique au cours du retournement. Par ailleurs, le champ coercitif obtenu pour un profil diffus est supérieur à celui où les interfaces sont abruptes. Dans un deuxième temps, nous avons utilisé un modèle d'anisotropie d'amas ordonnés et d'anisotropie aléatoire, qui semble être le plus à même d'interpréter les résultats expérimentaux. Lorsque l'énergie d'anisotropie magnétique aléatoire n'est pas marginale, les cycles en direction parallèle au plan des couches sont ouverts. Ils sont même très semblables à ceux obtenus dans la direction perpendiculaire dans le cas du profil abrupt. Nous avons établi un bon accord qualitatif, voir quantitatif, avec les résultats expérimentaux pour le profil qui donne le maximum d'anisotropie magnétique perpendiculaire ($T_{\mathrm{S}} = 570\mathrm{K}$).

Chapitre 5

CYCLES D'HYSTERESIS DE SUPER-RESEAUX $DyFe_2/YFe_2$

Au premier chapitre, nous avons rappelé les propriétés structurales et magnétiques des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$. Dans ce dernier chapitre, nous allons étudier les propriétés magnétiques de ces super-réseaux par simulation Monte Carlo. Nous nous intéresserons plus particulièrement aux processus de retournement de l'aimantation sous l'effet d'un champ magnétique en fonction des épaisseurs relatives de chacune des couches. Nous décrirons l'origine des différentes phases de retournement et caractériserons les parois d'interface.

Dans un premier temps, nous allons décrire le modèle de simulation que nous avons utilisé pour cette étude puis, dans une seconde partie, nous présenterons les résultats expérimentaux. Enfin, nous terminerons ce chapitre par l'étude de l'influence des épaisseurs relatives des couches magnétiques et de la température sur les modes de retournement de l'aimantation.

5.1 Modèle de simulation

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ présentent une structure cristallographique de type "phase de laves". Ce type de structure est assez complexe à générer en vue d'une modélisation numérique, c'est pourquoi, afin de réaliser les premières études sur ces systèmes, nous avons fait quelques hypothèses simplificatrices.

• Structure chimique

Afin de simplifier la modélisation, nous avons choisi de ne pas tenir compte de la structure cristallographique réelle de ces super-réseaux puisqu'elle est sensée ne pas jouer un rôle essentiel sur les processus de retournement de l'aimantation. Nous avons donc modélisé chaque couche par un alliage homogène de composition $TRFe_2$ (TR=Dy ou Y) sur un réseau cubique à faces centrées.

• Paramètres magnétiques

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 1, il existe un faible moment magnétique sur chaque atome d'yttrium qui résulte de la polarisation due aux atomes de Fe. Afin d'attribuer un moment magnétique d'Y, nous nous sommes référé dans cette étude à la valeur déterminée expérimentalement de l'aimantation du sous-réseau YFe_2 estimée à $0,9\mu_B$/atome [Dumesnil 2000]. Par ailleurs, nous avons fait le choix de conserver les valeurs du moment de Fe égal à $2,2\mu_B$/atome dans les couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2 afin de ne pas introduire de paramètres supplémentaires dans notre modèle. Ces contraintes nous imposent donc la valeur du moment magnétique d'Y égale à $3 \times 0,9 - 2 \times 2,2 = 1,7\mu_B$/atome avec une orientation antiparallèle à celle des moments de fer. Expérimentalement, cette valeur élevée du moment d'Y à tres basse température n'est évidemment pas réaliste mais il convient de noter que c'est l'aimantation de la couche d'YFe_2 prise dans sa globalité qui doit être comparée aux mesures expérimentales. N'ayant pas d'information sur le spin et le facteur de Landé, nous avons choisi une valeur de spin de $1,1$ et un facteur de Landé de $1,5$, soit un moment magnétique par atome d'yttrium de $1,65\mu_B$. De plus, Nous utiliserons les paramètres magnétiques théoriques pour le fer et le dysprosium. Ces différents paramètres sont résumés dans le tableau 5.1.

Ainsi, pour la couche ferrimagnétique dure de $DyFe_2$, le moment magnétique moyen vaut $1,86\mu_B$/atome et est dominé par le Dy. Pour la couche ferrimagnétique douce de YFe_2, le moment magnétique moyen, dominé par le fer, vaut $0,93\mu_B$/atome. Ces aimantations sont en assez bon accord avec celles utilisées par Bowden *et al.* pour la modélisation de super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ où ils considèrent des moments magnétiques moyens de $2,33\mu_B$/atome et $1\mu_B$/atome respectivement pour la couche de $DyFe_2$ et de YFe_2 [Bowden 2003].

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

TABLEAU 5.1 – Paramètres magnétiques du modèle pour chaque espèce chimique.

Compte-tenu de l'orientation antiparallèle des aimantations des couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2 à basse température, le rapport des épaisseurs donnant lieu à une compensation magnétique à température nulle et en champ magnétique nul est $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,5$.

Nous avons également ajusté les valeurs des différentes interactions d'échange aux premiers voisins. On en dénombre six, celles relatives à l'Y étant inconnues. Cependant, le jeu d'interactions d'échange que nous avons considéré dans notre modèle doit satisfaire certaines contraintes physiques. Nous savons que, dans ces structures parfaitement cristallisées, 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 $J_{Fe-Fe} = 280$K, en lien avec la valeur couramment utilisée dans les études de simulations Monte Carlo avec un modèle de spins de Heisenberg portant sur du Fe α (dans le cadre des simulations réalisées afin de justifier les ajustements des mesures de diffraction de neutrons polarisés - section 3.3.4 -, nous avions estimée $J_{Fe^{\alpha}-Fe^{\alpha}}$ à 300K). De plus, compte-tenu de notre étude antérieure sur les multicouches Fe/Dy, nous avons repris les mêmes interactions d'échange J_{Fe-Dy} et J_{Dy-Dy}. Enfin, nous avons ajusté les différentes interactions d'échange avec l'Y afin de satisfaire l'état fondamental du système. Elles doivent être suffisament importantes pour conserver un ordre ferrimagnétique au sein d'un même plan sous champ. Les différentes interactions d'échange utilisées dans notre modèle sont finalement données dans le tableau 5.1.

J_{ij}	J_{Fe-Fe}	J_{Fe-Dy}	J_{Dy-Dy}	J_{Fe-Y}	J_{Y-Y}	J_{Dy-Y}
(K)	280	-41,75	6,5	-41,75	50	10

TABLEAU 5.2 – Valeurs des interactions d'échange de notre modèle pour les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$.

Comme nous l'avons déjà mentionné, il existe une anisotropie magnétique uniaxiale sur les sites de Dy. La direction d'anisotropie est une direction cristallographique appartenant au plan des couches. Comme nous n'avons pas modélisé la structure cristallographique réelle de ces super-réseaux, nous avons fixé arbitrairement la direction de facile aimantation suivant la direction Ox appartenant au plan des couches. L'ensemble des cycles d'hystérésis effectués par la suite seront réalisés en appliquant le champ suivant cette direction. De plus, nous avons ajusté la valeur du coefficient d'anisotropie magnétique du Dy afin de nous trouver dans la bonne gamme de valeurs du champ de retournement. Nous avons estimé cette valeur à $D_{Dy}/k_B = 2$K. Nous laisserons cette valeur constante durant toute notre étude. La contribution de l'anisotropie magnétique uniaxiale de la couche douce sera négligée puisqu'elle est d'environ deux ordres de grandeur plus faible que celle de la couche dure [Fitzsimmons 2006].

Enfin, nous avons considéré différentes épaisseurs relatives afin de confronter notre modèle aux résultats expérimentaux. Nous avons considéré quatre rapports entre les épaisseurs des couches : $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 2\,;\,1\,;\,0,5$ et $0,25$. Nous avons regroupé dans le tableau 5.3 les concentrations de chaque espèce chimique et la dénomination que nous utiliserons par la suite pour les différents échantillons en lien avec les rapports entre les épaisseurs e_{DyFe_2}/e_{YFe_2}. On notera que pour l'ensemble des systèmes étudiés, la concentration totale d'atomes de Fe dans le système est toujours de $X_{Fe} = 2/3$. Seules les concentrations de Dy et Y varient avec les épaisseurs.

e_{DyFe_2}/e_{YFe_2}	X_{Dy}	X_Y	X_{Fe}	Dénomination
$0,25$	$0,07$	$0,26$	$0,67$	$\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$
$0,50$	$0,11$	$0,22$	$0,67$	$\left[DyFe_2(1)/YFe_2(2)\right]$
$1,00$	$0,165$	$0,165$	$0,67$	$\left[DyFe_2(1)/YFe_2(1)\right]$
$2,00$	$0,22$	$0,11$	$0,67$	$\left[DyFe_2(2)/YFe_2(1)\right]$

TABLEAU 5.3 – Concentration en atomes de Dy, d'Y et de Fe dans la multicouche en fonction du rapport entre les épaisseurs des couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2.

Tous les résultats numériques présentés par la suite sont issus de simulations avec des conditions aux bords périodiques dans le plan des couches et aux bords libres suivant l'épaisseur.

5.2 Résultats expérimentaux

De nombreuses études ont été réalisées sur les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ et mettent en évidence une grande variété d'ordres magnétiques différents. Nous nous intéresserons principalement dans ce travail à l'influence de l'épaisseur relative des couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2 sur le développement et la localisation des parois d'interface. Nous allons présenter dans cette section les résultats les plus importants, que nous utiliserons par la suite comme éléments de comparaison.

• Cas des épaisseurs faibles de YFe_2

Pour les systèmes dont l'épaisseur de la couche douce est faible vis-à-vis de la couche dure, les résultats expérimentaux mettent en évidence un comportement global des moments magnétiques. Par exemple, pour le système [100Å $DyFe_2$/50Å YFe_2], les cycles d'hystérésis pour un champ appliqué suivant la direction de facile aimantation de la couche dure sont représentés sur la figure 5.1. Ils sont "carrés" à toute température et ne mettent pas en évidence l'existence d'une paroi d'interface [Dumesnil 2000].

Le retournement de l'aimantation est contrôlé par l'anisotropie magnétique de la couche dure et la configuration magnétique obtenue satisfait toujours l'ensemble des interactions d'échange. Ce système se comporte comme s'il était constitué d'une seule phase magnétique dure.

Il est important de noter également que de nombreux cycles d'hystérésis expérimentaux révèlent un petit saut d'aimantation en champ nul. Il peut être attribué soit à l'existence de quelques couches non épitaxiées, soit à une faible désorientation de l'échantillon ou bien à une contamination du substrat. C'est pourquoi nous ne le retrouverons pas sur les cycles d'hystérésis obtenus en simulation.

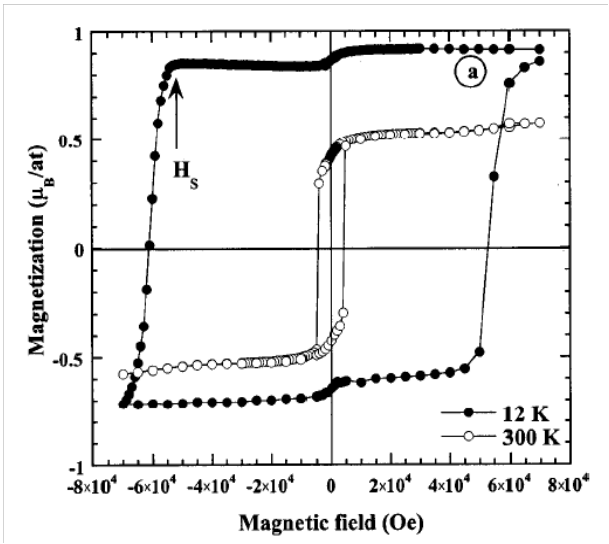

FIGURE 5.1 – Cycles d'hystérésis à $T = 12$K et à $T = 300$K pour un super-réseau [100Å $DyFe_2$/50Å YFe_2]$_{26}$ [Dumesnil 2000].

• Cas intermédiaire

Pour des super-réseaux dont l'épaisseur relative de la couche d'YFe_2 est plus élevée ([100Å $DyFe_2$/130Å YFe_2] et [100Å $DyFe_2$/200Å YFe_2]), les résultats expérimentaux révèlent une évolution du comportement des moments magnétiques en fonction du champ. En effet, les cycles d'hystérésis (figure 5.2(a)) mettent en évidence l'existence d'une paroi d'interface dans la couche douce en champ fort ("exchange spring") [Dumesnil 2002, Sawicki 2000*b*]. Il y a donc deux sauts d'aimantation, le premier en champ fort qui correspond à la disparition de la paroi dans la couche de YFe_2 et résulte de la compétition énergétique entre l'échange et le champ magnétique. Le second correspond au retournement brutal de l'aimantation totale du système et est contrôlé par l'anisotropie magnétique de la couche de $DyFe_2$.

De plus, Sawicki *et al.* montrent également une dépendance du champ nécessaire à la création de cette paroi, B_B ("bending field"), en fonction de l'épaisseur nominale des couches. Ce champ augmente lorsque l'épaisseur diminue selon une loi de puissance. Cette évolution est liée à l'énergie nécessaire au développement d'une paroi qui augmente lorsque le nombre de monocouches d'YFe_2 diminue en raison essentiellement de l'interaction d'échange J_{Fe-Fe} [Sawicki 2000*b*].

• Cas des épaisseurs faibles de $DyFe_2$

Pour les structures dont l'épaisseur de $DyFe_2$ est faible ([50Å $DyFe_2$/200Å YFe_2], [30Å $DyFe_2$/130Å YFe_2]) les processus de retournement sont plus complexes comme l'illustre la figure 5.3.

Les résultats expérimentaux mettent en évidence l'existence d'une coercivité négative à basse température, ainsi que le développement de parois d'interface en champ très faible [Beaujour 2001*b*, Bowden 2003]. De plus les cycles d'hystérésis réalisés à des températures plus importantes (150K à 300K) montrent le déplacement de la paroi d'interface dans la couche magnétique dure de $DyFe_2$ [Dumesnil 2005, Fitzsimmons 2006].

En conclusion, l'ordre magnétique dans les super-réseaux $DyFe_2$/YFe_2 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

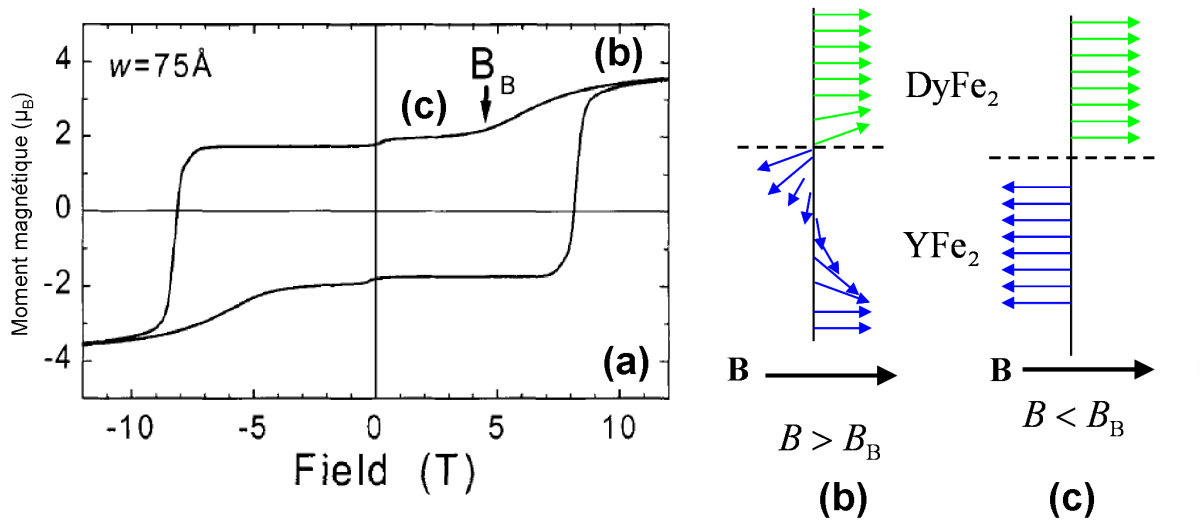

FIGURE 5.2 – (a) Cycle d'hystérésis d'un super-réseau [75Å $DyFe_2$/75Å YFe_2]$_{40}$ à $T = 10K$; (b, c) représentation schématique de l'ordre magnétique du super-réseau pour $B > B_B$ et $B < B_B$ [Beaujour 2001*a*].

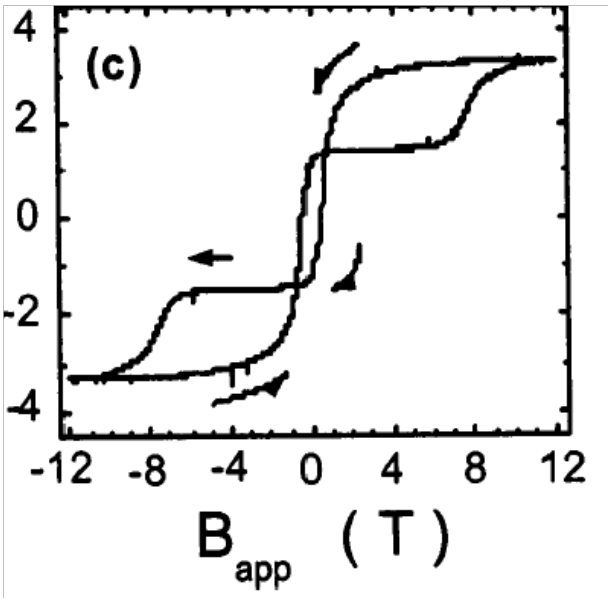

FIGURE 5.3 – Cycles d'hystérésis à $T = 10$K pour un super-réseau [55Å $DyFe_2$/220Å YFe_2]$_{26}$ [Bowden 2003].

totale du système qui est contrôlé par l'anisotropie magnétique uniaxiale du Dy.

Par ailleurs, quelques études en simulation ont été réalisées sur ces super-réseaux. Bowden *et al.* ont utilisé un modèle continu à partir d'une approche en champ moyen afin de déterminer l'ordre magnétique stable en fonction du champ magnétique et des épaisseurs des couches [Bowden 2003]. Leur modèle consiste à minimiser l'énergie totale du système par une méthode itérative [Camley 1988, Camley 1989], sous la forme :

$$E_{\text{tot}} = \sum_{i}^{N} -\frac{1}{2}\mu_i B_{\text{ex}}\Big\{(1-\delta_{i,N})\cos(\theta_{i+1}-\theta_i) + (1-\delta_{i,1})\cos(\theta_i-\theta_{i-1})\Big\} \\ -K_{\text{A}}(i)\cos^2\theta_i - \mu_i B_{\text{app}}\cos(\theta_i-\theta_{\text{H}}), \tag{5.1}$$

où μ_i est le moment magnétique du plan i, B_{ex} est le champ d'échange qui rend compte des interactions d'échange, $K_{\text{A}}(i)$ est la constante d'anisotropie uniaxiale, B_{app} est le champ magnétique appliqué, θ_i est l'angle entre le moment magnétique et la direction de facile aimantation et θ_{H} est l'angle entre le champ appliqué et la direction de facile aimantation. La fonction δ indique que l'échantillon est de dimension finie.

Les paramètres du modèle sont $M_{\text{DyFe}_2} = 2,33\mu_{\text{B}}$/atome, $M_{\text{YFe}_2} = 1\mu_{\text{B}}$/atome, $K_{\text{A}}(\text{DyFe}_2) = 10\text{K}$, $K_{\text{A}}(\text{YFe}_2) = 0\text{K}$ et $B_{\text{ex}} = 600\text{K}$.

Ces simulations permettent d'obtenir un accord semi-quantitatif avec les résultats expérimentaux pour différents rapports d'épaisseur relative des couches magnétiques ($e_{\text{DyFe}_2}/e_{\text{YFe}_2} \leq 1$) comme le montre la figure 5.4.

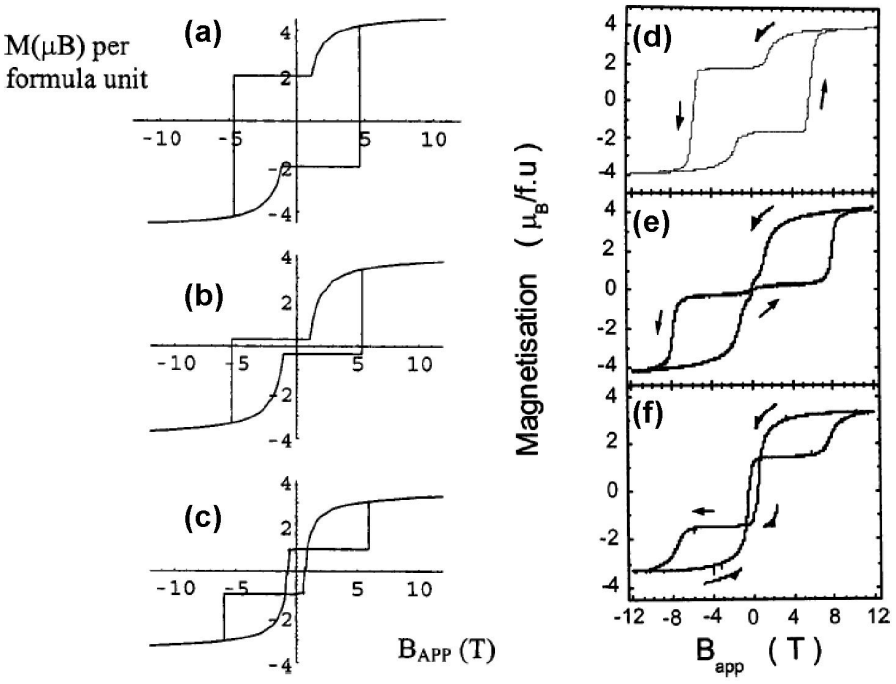

FIGURE 5.4 – Cycles d'hystérésis calculés à $T = 0\text{K}$ pour des super-réseaux $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ ((a) $N_{\text{DyFe}_2} = 60/N_{\text{YFe}_2} = 60$; (b) $N_{\text{DyFe}_2} = 30/N_{\text{YFe}_2} = 60$; (c) $N_{\text{DyFe}_2} = 22/N_{\text{YFe}_2} = 88$). Cycles d'hystérésis expérimentaux à $T = 10\text{K}$ pour des super-réseaux $\text{DyFe}_2/\text{YFe}_2$ ((d) [150Å DyFe_2/150Å YFe_2]$_{10}$; (e) [150Å DyFe_2/75Å YFe_2]$_{18}$; (f) [220Å DyFe_2/55Å YFe_2]$_{15}$) [Bowden 2003].

En effet, ce modèle permet de reproduire l'évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique pour les différentes épaisseurs considérées, et particulièrement l'augmentation du champ de retournement irréversible de l'aimantation (champ nécessaire au retournement de l'aimantation de la couche dure de DyFe_2 (B_{IS})) et l'existence d'une coercivité négative pour $e_{\text{DyFe}_2}/e_{\text{YFe}_2} = 0,25$ (figure 5.4(c) et (f)).

Cependant, ce modèle unidimensionnel d'une chaine de spins n'est valable qu'à $T = 0$K et ne permet pas de rendre compte de l'effet de la température sur les cycles d'hystérésis. De plus, Bowden *et al.* ne considèrent qu'un seul paramètre d'échange (B_{ex}) dans l'ensemble de la multicouche alors qu'il semble naturel de penser que les interactions d'échange dans les couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2 sont différentes et jouent un rôle non négligeable sur le phénomène d'"exchange spring".

Par ailleurs, outre le fait que le modèle que nous avons utilisé permet d'introduire des paramètres plus réalistes, il permet également d'accéder à des informations plus fines que le cycle d'hystérésis global des échantillons telles que les profils d'aimantation par exemple.

5.3 Résultats numériques

Nous allons tout d'abord définir les configurations magnétiques limites dans le cas de systèmes ferrimagnétiques sous champ afin de préciser la notion de paroi d'interface. Nous avons représenté schématiquement sur la figure 5.5 l'ordre magnétique des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ en présence d'un champ magnétique appliqué.

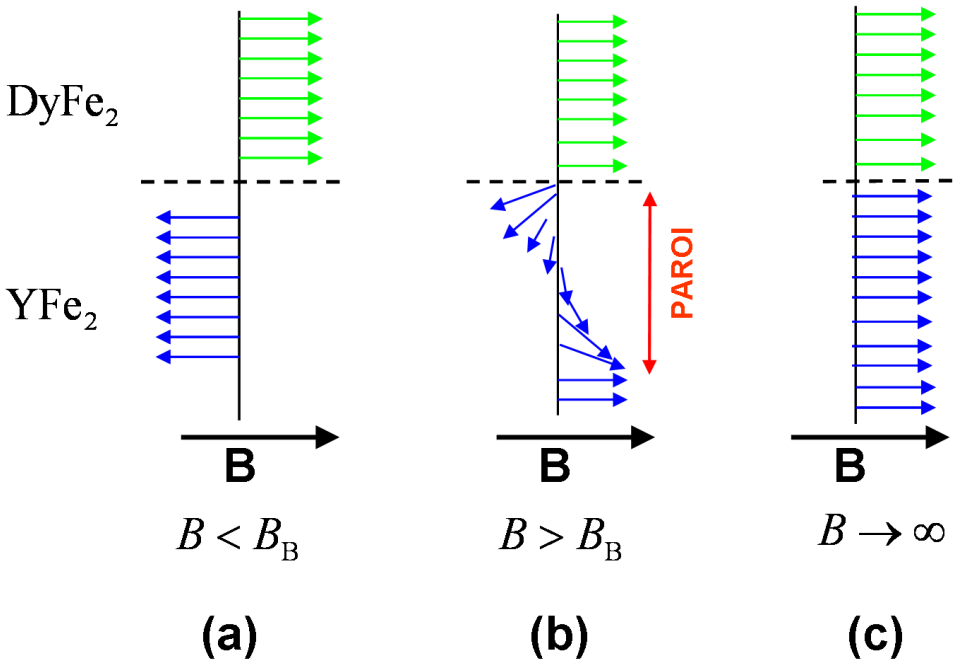

FIGURE 5.5 – Représentation schématique des configurations magnétiques en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué ((a) ordre ferrimagnétique ($B < B_B$) ; (b) paroi d'interface ($B > B_B$) ; (c) aimantation saturée ($B \to \infty$)).

Nous distinguons trois configurations différentes en fonction de l'intensité du champ. Pour un champ magnétique de faible intensité ($B < B_B$, figure 5.5(a)), l'énergie d'échange domine et l'ordre est ferrimagnétique. Pour un champ magnétique plus fort ($B > B_B$, figure 5.5(b)), la compétition entre l'énergie Zeeman et l'énergie d'échange donne lieu à la création d'une paroi à l'interface. Cette paroi se comprime lorsque le champ magnétique augmente jusqu'au cas limite où l'aimantation est saturée dans la direction du champ (figure 5.5(c)).

Notre étude des cycles d'hystérésis des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ se décompose en deux parties. La première partie traite de l'influence du rapport entre les épaisseurs de la couche dure et de la couche douce. La seconde partie concerne l'influence de la température de la mesure du cycle d'hystérésis sur les propriétés magnétiques du système pour lequel $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,25$ qui présente des évolutions atypiques avec la température.

5.3.1 Influence de l'épaisseur

Nous avons représenté sur la figure 5.6 les cycles d'hystérésis des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ à $T = 1K$ pour un champ magnétique appliqué suivant la direction de facile aimantation du Dy pour différentes épaisseurs relatives des couches.

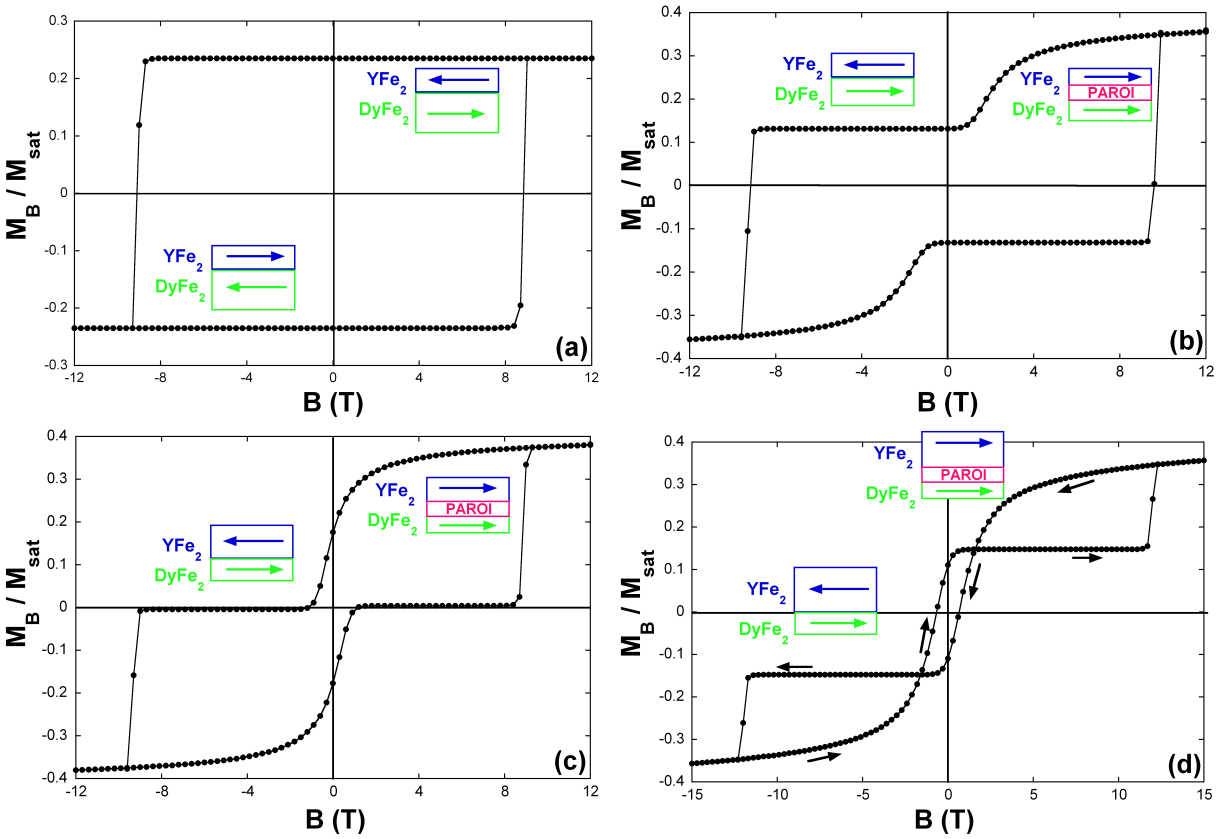

FIGURE 5.6 – Cycles d'hystérésis de super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ à $T = 1K$, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy ((a) $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 2$; (b) $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 1$; (c) $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,5$; (d) $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,25$).

Nous observons une nette évolution des cycles d'hystérésis en fonction du rapport entre les épaisseurs des deux couches. Sur le plan qualitatif, nous constatons un très bon accord avec les cycles expérimentaux (figure 5.4(d, e, f) à comparer avec nos résultats figure 5.6(b, c, d)).

Les quatres cycles de la figure 5.6 présentent une évolution de l'aimantation totale du système en fonction du champ magnétique similaire. 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 (pour le premier échantillon $\left[DyFe_2(2)/YFe_2(1)\right]$, cette zone n'est pas visible sur la courbe car elle se produit en

champ plus élevé). La seconde zone met en évidence un plateau d'aimantation. Enfin, la dernière zone correspond au retournement brutal de l'aimantation du système. Cependant, les valeurs caractéristiques délimitant ces trois zones dépendent fortement des épaisseurs des couches.

Nous relevons deux valeurs caractéristiques de champ magnétique :

- la première est la valeur du champ magnétique nécessaire pour former une paroi à l'interface des deux couches (B_{B}). C'est la valeur de champ qui sépare la première zone du plateau d'aimantation. Cette valeur dépend principalement de la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie Zeeman ;
- la seconde valeur caractéristique correspond à la valeur du champ magnétique qui permet de retourner irréversiblement la couche dure (B_{IS}). Cette valeur est fortement corrélée à l'anisotropie uniaxiale des sites de Dy.

On mesure également l'évolution du champ coercitif (B_{C}) qui correspond toujours au champ magnétique qui donne lieu à une aimantation nulle. Les valeurs de B_{B}, B_{IS} et B_{C} sont regroupées dans le tableau 5.4 pour les différentes épaisseurs considérées. On notera également qu'il n'y a jamais de saturation de l'aimantation dans la direction du champ, c'est-à-dire que l'échange antiferromagnétique entre les différents moments magnétiques n'est jamais cassé complètement.

Enfin, nous avons également relevé dans le tableau 5.4 les valeurs de l'aimantation du plateau ramenées à M_{sat} ; nous constatons qu'elles coïncident précisément avec le rapport $M_{\mathrm{ferri}}/M_{\mathrm{sat}}$ pour les différents échantillons considérés. Par exemple, dans le cas $e_{\mathrm{DyFe_2}}/e_{\mathrm{YFe_2}} = 1$:

$$\frac{M_{\mathrm{ferri}}}{M_{\mathrm{sat}}} = \frac{X_{\mathrm{Y}}M_{\mathrm{Y}} + X_{\mathrm{Dy}}M_{\mathrm{Dy}} - X_{\mathrm{Fe}}M_{\mathrm{Fe}}}{X_{\mathrm{Y}}M_{\mathrm{Y}} + X_{\mathrm{Dy}}M_{\mathrm{Dy}} + X_{\mathrm{Fe}}M_{\mathrm{Fe}}} = 0,13, \tag{5.2}$$

où X_{Dy}, X_{Y} et X_{Fe} sont respectivement les concentrations en Dy, en Y et en Fe et M_{Dy}, M_{Y} et M_{Fe} sont les aimantations des sous-réseaux de Dy, d'Y et de Fe.

$e_{\mathrm{DyFe_2}}/e_{\mathrm{YFe_2}}$	B_{B} (T)	B_{IS} (T)	B_{C} (T)	$M_{\mathrm{Plateau}}/M_{\mathrm{sat}}$
2,00	–	9 ±0,3	9 ±0,3	0,24
1,00	0,3 ±0,3	9,4 ±0,3	9,4 ±0,3	0,13
0,50	-1,5 ±0,3	9,5 ±0,3	1,2 ±0,3	0
0,25	-1,2 ±0,3	12,3 ±0,3	-0,65 ±0,3	-0,15

TABLEAU 5.4 – Valeurs des champs magnétiques caractéristiques (B_{B}, B_{IS} et B_{C}) et valeur de l'aimantation du plateau ramenée à l'aimantation à saturation en fonction du rapport entre les épaisseurs des couches magnétiques dures et douces à $T = 1$K.

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 5.6(a)) pour de faibles épaisseurs d'YFe_2 à des cycles moins habituels pour de faibles épaisseurs de $DyFe_2$ (figure 5.6(d)).

5.3.1.1 Super-réseau [$\mathbf{DyFe_2}(2)/\mathbf{YFe_2}(1)$]

Pour le système $\left[\mathrm{DyFe_2}(2)/\mathrm{YFe_2}(1)\right]$, le cycle d'hystérésis à $T = 1$K (figure 5.6(a)) est "carré". Le comportement magnétique de ce système à basse température est caractéristique

d'un échantillon présentant une forte anisotropie magnétique uniaxiale. Dans le cadre du modèle de Stoner-Wohlfarth, l'expression du champ de retournement est :

$$B_{\mathrm{C}}^{\mathrm{SW}} = \frac{2X_{\mathrm{Dy}}D_{\mathrm{Dy}}S_{\mathrm{Dy}}^2}{X_{\mathrm{Dy}}M_{\mathrm{Dy}} + X_{\mathrm{Y}}M_{\mathrm{Y}} - X_{\mathrm{Fe}}M_{\mathrm{Fe}}}, \tag{5.3}$$

où D_{Dy} est la constante d'anisotropie sur les sites de Dy et S_{Dy} est la valeur du spin de Dy. Ce modèle nous donne un champ de retournement dans le cadre du modèle de Stoner-Wohlfarth de $B_{\mathrm{C}}^{\mathrm{SW}} = 9,1\mathrm{T}$ ($D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ =2K et $X_{\mathrm{Dy}}M_{\mathrm{Dy}} + X_{\mathrm{Y}}M_{\mathrm{Y}} - X_{\mathrm{Fe}}M_{\mathrm{Fe}} = 0,91\mu_{\mathrm{B}}$/atome).

A partir de nos simulations, nous obtenons un champ coercitif $B_{\mathrm{C}} = 9,0 \pm 0,3\mathrm{T}$ en très bon accord avec le modèle de retournement uniforme de l'aimantation ce qui est cohérent avec le comportement de "bloc rigide" de l'échantillon.

Nous avons représenté sur la figure 5.7 les cycles de l'aimantation par sous-réseau. Pour chacune des espèces, les cycles sont carrés. Quel que soit le champ appliqué, les moments magnétiques de Dy sont toujours colinéaires à la direction de facile aimantation. On retrouve la configuration ferrimagnétique en champ faible avec les moments magnétiques de Dy et d'Y parallèles au champ et ceux de Fe antiparallèles au champ magnétique. Le système se comporte alors comme un bloc unique dont les processus de retournement sont gouvernés par le Dy et les interactions d'échange. Ces résultats sont en accord avec les observations expérimentales sur les super-réseaux $\left[\mathrm{DyFe_2(100Å)/YFe_2(50Å)}\right]_{26}$ [Dumesnil 2000].

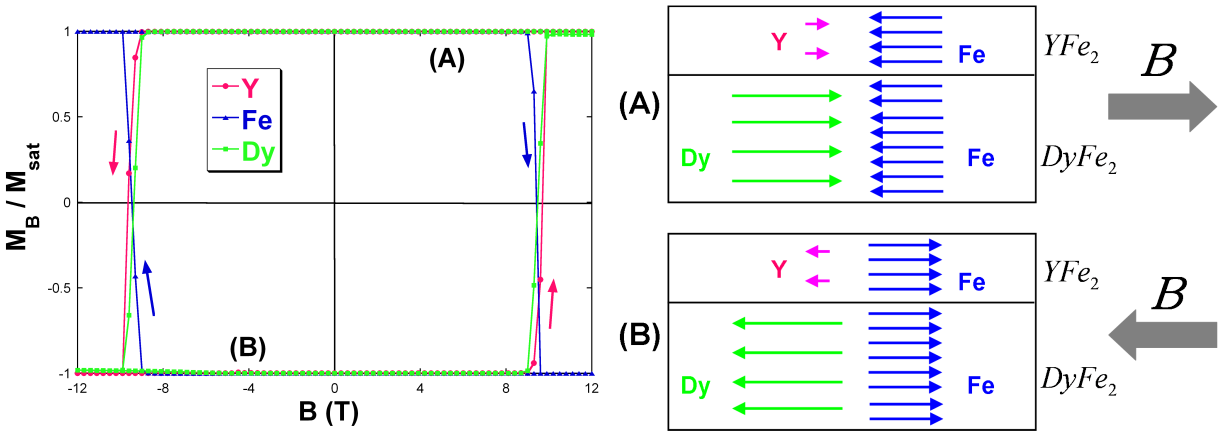

FIGURE 5.7 – Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau $\left[\mathrm{DyFe_2(2)/YFe_2(1)}\right]$ à $T =$ 1K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy.

5.3.1.2 Super-réseau [$\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(1)$]

Pour le super-réseau $\left[\mathrm{DyFe_2(1)/YFe_2(1)}\right]$, le cycle d'hystérésis (figure 5.6(b)) nous permet d'observer une diminution progressive de l'aimantation en champ fort. Cette diminution de l'aimantation est caractéristique de la disparition d'une paroi d'interface, comme nous avons déjà pu l'observer lors de l'étude d'une mulicouche Fe/Dy avec une anisotropie uniaxiale (chapitre 4).

Afin de permettre une description précise de la paroi, nous avons représenté sur la figure 5.8(a) l'évolution de l'angle entre l'aimantation de chaque plan et le champ magnétique (θ_{B}) en fonction de la profondeur pour différentes valeurs du champ magnétique.

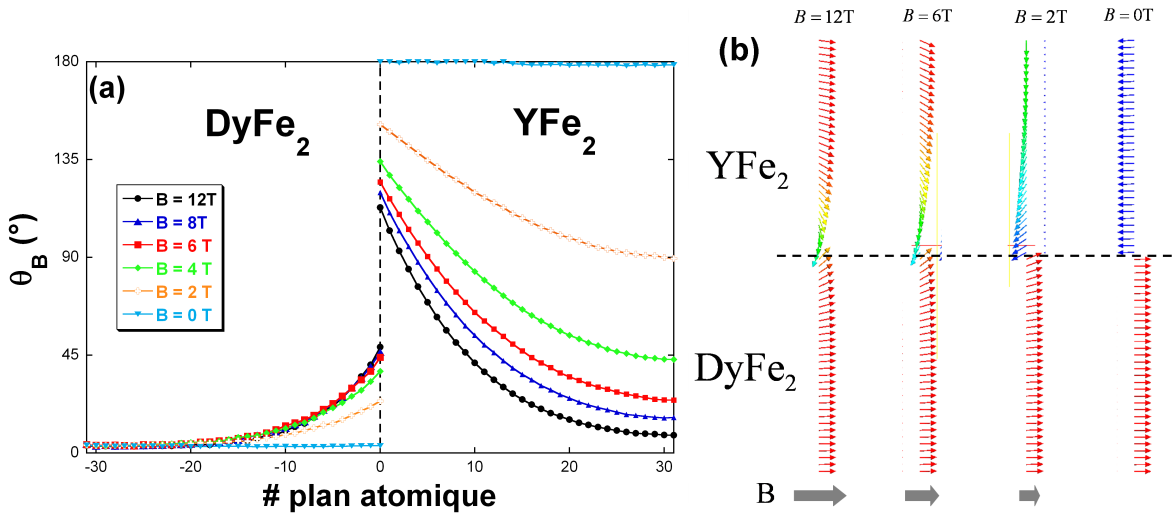

FIGURE 5.8 – (a) Evolution de l'angle entre l'aimantation d'un plan et le champ magnétique en fonction de la profondeur par rapport à l'interface pour différentes valeurs du champ magnétique pour le super-réseau $\left[\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(1)\right]$. (b) Représentation du profil de l'aimantation pour différentes valeurs du champ magnétique décroissant.

Nous constatons que la paroi, caractérisée par un angle différent de 0 ou 180°, est localisée principalement dans la couche d'$\mathrm{YFe_2}$. Cependant, les aimantations des plans de $\mathrm{DyFe_2}$ à l'interface sont également désalignées par rapport à la direction du champ afin de satisfaire les couplages d'échange. Cette zone constitue environ 15 plans en champ fort ($B = 12\mathrm{T}$), et l'angle diminue rapidement avec la profondeur. Concernant la couche douce, en champ fort, la paroi est développée sur près de 120° ce qui est confirmé visuellement sur la représentation du profil de l'aimantation (figure 5.8(b)). L'angle θ_B dans la couche d'$\mathrm{YFe_2}$ augmente progressivement lorsque le champ diminue, pour donner un ordre ferrimagnétique entre les deux couches en-deçà de $B_\mathrm{B} = 0,3 \pm 0,3\mathrm{T}$. Ces résultats sont en très bon accord qualitatitif avec les résultats expérimentaux [Bowden 2003, Sawicki 2000*b*]. Il convient de noter que la valeur de B_B dépend des épaisseurs nominales des couches [Sawicki 2000*b*].

5.3.1.3 Super-réseau [$\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(2)$]

Pour le super-réseau $\left[\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(2)\right]$, qui correspond au rapport entre les épaisseurs donnant lieu à la compensation magnétique en champ nul, on retrouve le même comportement sous champ magnétique que dans le cas précédent (figure 5.6(c)). Cette fois, le plateau d'aimantation se trouve en $M/M_\mathrm{sat} = 0$ mettant en évidence la compensation magnétique parfaite entre les différentes espèces. La valeur du champ de retournement irréversible B_IS reste inchangée, tout comme les caractéristiques de la paroi d'interface.

5.3.1.4 Super-réseau [$\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(4)$]

Pour le système $\left[\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(4)\right]$, c'est-à-dire en deçà de l'épaisseur de compensation, c'est la couche d'$\mathrm{YFe_2}$ qui domine d'un point de vue magnétique. C'est pour ce rapport entre les épaisseurs que l'on trouve le plus grand nombre de résultats expérimentaux du fait de son comportement atypique.

Le cycle d'hystérésis à $T = 1$K (figure 5.6(d)) met en évidence l'existence d'une coercivité négative ($B_C \sim -0,65$T) en accord avec les résultats expérimentaux ($-0,5$T [Beaujour 2001*b*] ou $-0,5/-0,6$T [Bowden 2003]). De plus, le plateau d'aimantation a cette fois une valeur négative ($M/M_{sat} \sim -0,15$), ce qui met clairement en évidence le fait que c'est la couche douce qui domine magnétiquement. Le retournement de l'aimantation est toujours contrôlé par la couche dure et intervient à $B_{IS} \sim -12,5$T. Ce champ est supérieur à ceux obtenus pour les autres épaisseurs de couches étudiées car la minimisation de l'énergie du système favorise d'une part un alignement des moments magnétiques de Fe dans la direction du champ magnétique et d'autre part l'épaisseur de la couche de $DyFe_2$ étant faible, la barrière d'énergie à franchir pour retourner irréversiblement l'aimantation de la multicouche est plus grande que précédemment.

Nous avons représenté sur la figure 5.9 les cycles d'hystérésis par sous-réseau, ainsi que l'évolution de l'angle entre l'aimantation du plan et le champ magnétique (θ_B) en fonction de la profondeur pour différentes valeurs du champ magnétique à $T = 1$K.

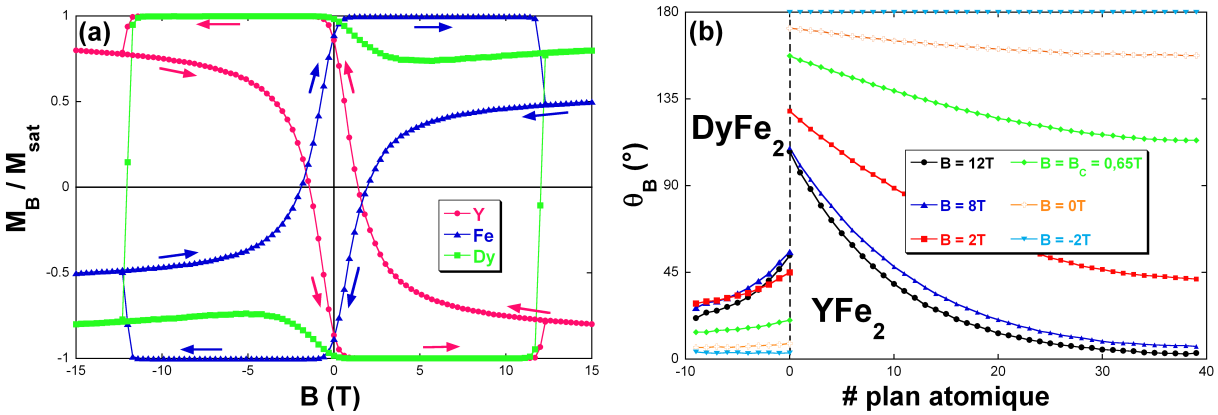

FIGURE 5.9 – (a) Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$ à $T = 1$K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy. (b) Evolution de l'angle entre l'aimantation d'un plan et le champ magnétique en fonction de la profondeur par rapport à l'interface pour différentes valeurs du champ magnétique pour le super-réseau $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$.

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 5.9(a)), 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 $B_B = -1,2$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 4T environ.

Sur la figure 5.9(b), on constate que la paroi est toujours localisée pour une bonne part dans la couche magnétique douce et 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 ce qui se retrouve sur les cycles par sous-réseau où l'aimantation du Dy n'est pas saturée en champ fort. Ce phénomène est lié au couplage d'échange interfacial et à la faible épaisseur de la couche dure. Comme nous l'avons mis en évidence précédemment, le désalignement des moments magnétiques de $DyFe_2$ existe sur une épaisseur d'environ 15 plans or l'épaisseur est ici inférieure à 15 plans pour le $DyFe_2$.

Pour ce rapport entre les épaisseurs des couches ($e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,25$), nous avons vu que

la coercivité est négative ($B_C = -0,65 \pm 0,3$T). Ce phénomène résulte de deux contributions :

- en-deçà de $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,5$, c'est la couche magnétique douce d'YFe_2 qui domine d'un point de vue magnétique ;
- la paroi, localisée dans la couche douce, se décompresse très progressivement avec le champ magnétique.

Chaque moment magnétique de la couche d'YFe_2 relaxe progressivement dans la direction opposée au champ magnétique afin de satisfaire l'énergie d'échange. L'épaisseur de la couche de $DyFe_2$ étant faible, l'aimantation totale du système peut être négative (c'est-à-dire dominée par les moments magnétiques de Fe) sans que la paroi ait totalement disparu.

5.3.1.5 Processus de retournement

Compte-tenu de ces différents résultats sur l'influence de l'épaisseur relative entre les deux couches, il est possible de résumer les processus de retournement de l'aimantation à basse température.

En champ fort, l'aimantation de la couche de $DyFe_2$ est saturée dans la direction du champ magnétique, la couche de YFe_2 est majoritairement ordonnée dans la direction du champ. Cependant, il existe une paroi d'interface dans la couche douce afin d'accomoder l'énergie d'échange interfaciale (figure 5.10(a)) si le rapport entre les épaisseurs est tel que $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} \leq 1$.

En diminuant l'intensité du champ magnétique, l'aimantation totale du système décroit. La paroi dans la couche douce s'élargit de façon progressive avec la diminution du champ magnétique (figure 5.10(b)).

Après la disparition de la paroi, l'ordre est alors ferrimagnétique. En champ faiblement négatif, ce sont les moments magnétiques de Fe qui sont suivant la direction du champ magnétique (figure 5.10(c)). Les termes d'échange sont tous satisfaits.

Enfin, pour un champ négatif intense, on retourne brutalement la couche dure de $DyFe_2$ avec la création instantanée de la paroi d'interface dans la couche d'YFe_2 pour satisfaire la compétition entre l'énergie Zeeman et l'énergie d'échange (figure 5.10(d)).

Quelles que soient les épaisseurs relatives des couches, les processus de retournement de l'aimantation se déroulent donc en deux étapes :

- un retournement progressif de la couche magnétique douce par création-annihilation de paroi d'interface ("exchange-spring") ;
- un retournement brutal de la couche magnétique dure avec création d'une paroi entre les deux couches magnétiques.

Le rapport entre les épaisseurs des couches dures et douces modifie quant à lui les valeurs des champs magnétiques caractéristiques à basse température (B_C, B_B et B_{IS}).

5.3.2 Influence de la température

Dans cette dernière partie, nous nous sommes intéressé à l'influence de la température sur les processus de retournement et sur la localisation de la paroi d'interface. En effet, des résultats expérimentaux récents ont mis en évidence un déplacement de la paroi dans la couche magnétique lorsque l'on augmente la température des super-réseaux caractérisés par $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,25$.

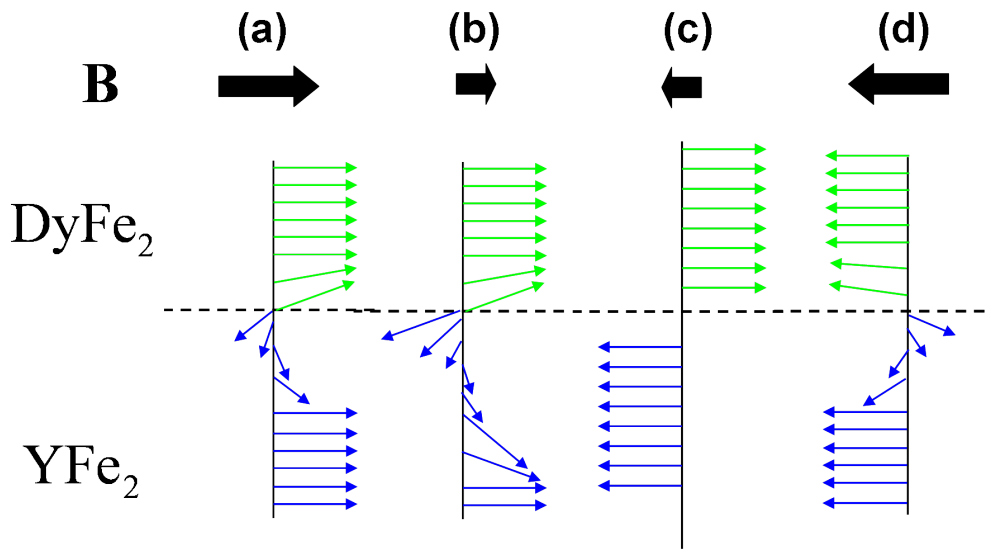

FIGURE 5.10 – Représentation schématique de l'ordre magnétique en fonction du champ magnétique appliqué

Nous avons représenté sur la figure 5.11 les cycles d'hystérésis pour un rapport entre les épaisseurs $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 0,25$ à $T = 1$K et $T = 200$K. Contrairement au cas des basses températures où nous avons mis en évidence un unique retournement des moments magnétiques de Dy, lorsque la température augmente, le cycle d'hystérésis met en évidence une modification des processus de retournement. En effet, sur les cycles (simulés et expérimentaux) de l'aimantation totale (figure 5.11(a) et (c)) à $T = 200$K, on note l'apparition de trois boucles d'hystérésis. Avec la température, la coercivité change de signe ($B_C \sim 3,2$T à 200K) et augmente. Enfin la valeur du plateau d'aimantation est également supérieure au cas précédent traduisant ainsi une modification de l'ordre magnétique avec la température. Nous rappelons que pour ce super-réseau, c'est la couche d'YFe_2 qui domine magnétiquement.

L'étude des sous-réseaux (figure 5.11(b)) va nous permettre de déterminer l'évolution de l'ordre magnétique avec la température. Tout d'abord, en champ fort, on note que les aimantations des sous-réseaux de Dy et d'Y ne sont pas saturées en raison de l'agitation thermique, et qu'elles sont antiparallèles. Les moments magnétiques de Dy subissent une réorientation dans la direction antiparallèle pour un champ autour de 5-6 T. Les aimantations des sous-réseaux d'Y et de Dy sont alors parallèles. Enfin, on retourne l'aimantation de ces deux sous-réseaux pour des champs négatifs. Cependant, les deux retournements n'interviennent pas pour les mêmes valeurs de champ.

Ces résultats sont en assez bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux [Dumesnil 2005] représentés sur la figure 5.11(c) et (d). Ces cycles sont obtenus par dichroïsme circulaire magnétique de rayons X (XMCD) et sont sélectifs en espèce chimique. Plus précisement, les mesures d'absorption sont effectuées au seuil L_3 du Dy (respectivement de l'Y) et donnent une mesure de la polarisation de la bande *5d* du Dy (respectivement *3d* du Fe) reliée à l'aimantation de la couche de $DyFe_2$ (respectivement de la couche d'YFe_2). On rappelle que dans la couche de $DyFe_2$, le signal magnétique est dominé par le Dy tandis que dans la couche d'YFe_2, il est dominé par le Fe. La courbe sur la figure 5.11(d) montrant le signal XMCD au seuil de l'Y est donc opposée à l'aimantation du sous-réseau d'Y représentée en simulation sur la figure 5.11(b).

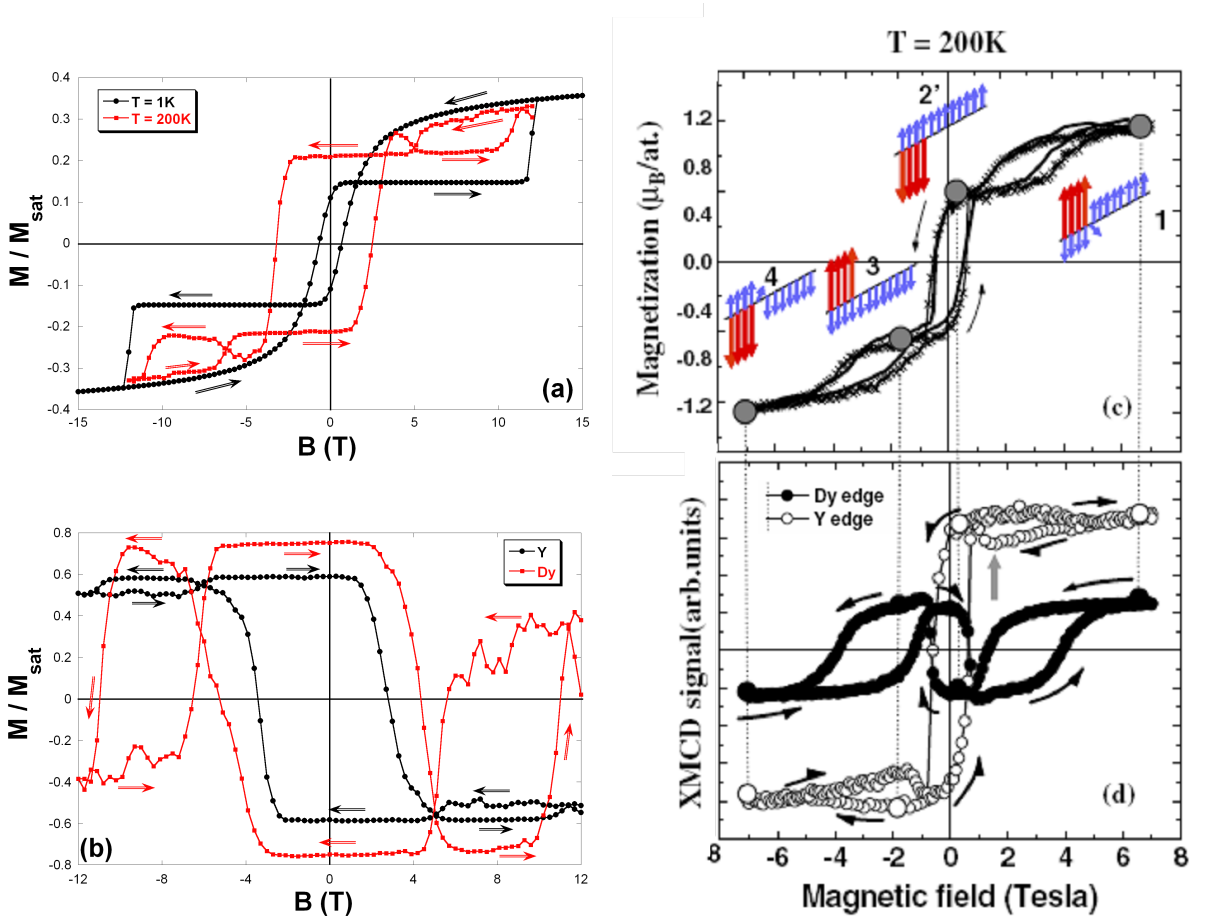

FIGURE 5.11 – Cycles d'hystérésis de super-réseaux $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$ simulés (a,b) et expérimentaux (c,d) [Dumesnil 2005] ((a,c) aimantation totale à $T = 1$K et $T = 200$K ; (b) aimantation des sous-réseaux d'Y et de Dy à $T = 200K$) ; (d) signal XMCD au seuil L_3 de l'Y et du Dy à $T = 200$K.

Notre modèle est en accord sur le changement de signe de la coercivité et les trois boucles d'hystérésis sur l'aimantation du sous-réseau de Dy. Cependant, nous constatons une surestimation importante des valeurs des champs de retournement.

L'ordre magnétique est donc fortement influencé par la température. En champ fort, les moments magnétiques de Fe de la couche douce sont parallèles au champ magnétique, tout comme ceux de Dy. Il existe alors une paroi d'interface afin d'accomoder les interactions d'échange J_{Fe-Fe} puisque les moments magnétiques de Fe des deux couches sont antiparallèles. Cette paroi est localisée dans la couche de $DyFe_2$ contrairement au cas des basses températures. Ce phénomène est lié à la faible valeur de la température de Curie du Dy, et donc au fait que ce sous-réseau n'est que partiellement aimanté à cette température. A $T = 200$K, il faut fournir moins d'énergie pour retourner l'aimantation de la couche de $DyFe_2$, qui se retourne même pour un champ inférieur à celle d(YFe_2. En champ faible, on retrouve un ordre ferrimagnétique dominé par les moments magnétiques de Fe. Il y a donc un déplacement de la paroi d'interface de la couche douce à basse température vers la couche dure à haute température en accord avec les observations expérimentales [Dumesnil 2005]. L'agitation thermique modifie radicalement les processus de retournement de l'aimantation en raison de la décroissance de l'aimantation de la couche de $DyFe_2$ avec le température.

Pour des épaisseurs relatives plus importantes de la couche dure, nous n'observons pas ce phénomène de déplacement de la paroi dans la couche dure à haute température. Nous avons représenté sur la figure 5.12 les cycles d'hystérésis à $T = 1$K et $T = 200$K pour les systèmes $\left[DyFe_2(2)/YFe_2(1)\right]$ et $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(1)\right]$.

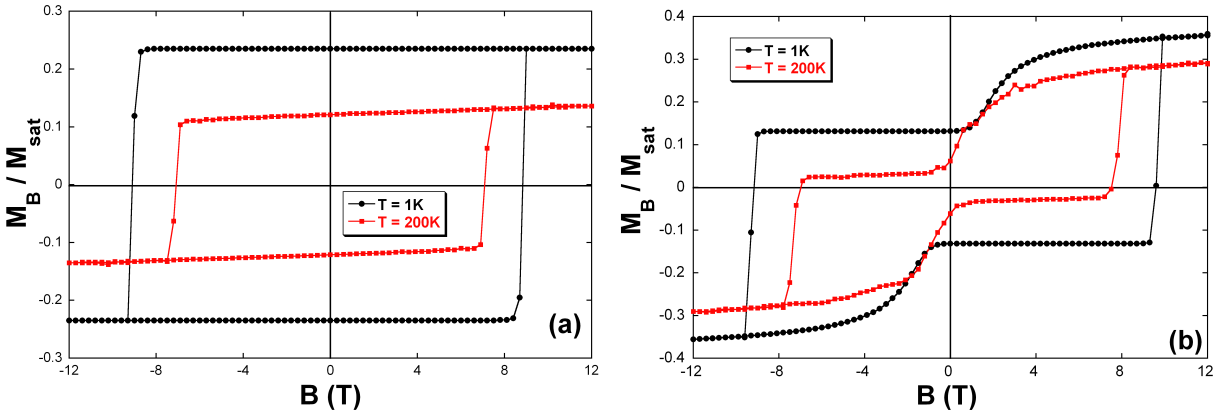

FIGURE 5.12 – Cycles d'hystérésis à $T = 1$K et $T = 200$K ((a) super-réseau $\left[DyFe_2(2)/YFe_2(1)\right]$; (b) super-réseau $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(1)\right]$).

Nos résultats pour ces deux systèmes sont en parfait accord qualitatif avec les résultats expérimentaux lorsque la température augmente. On observe une décroissance de la coercivité ainsi qu'une diminution de l'aimantation nettement plus marquée dans le cas expérimental que sur les cycles simulés (figure 5.1 à $T = 300$K pour $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} = 2$ et figure 5.13 pour $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} \approx 1$). La paroi demeure dans la couche douce puisque le rapport entre les épaisseurs du système fait que c'est ici la couche de $DyFe_2$ qui domine magnétiquement.

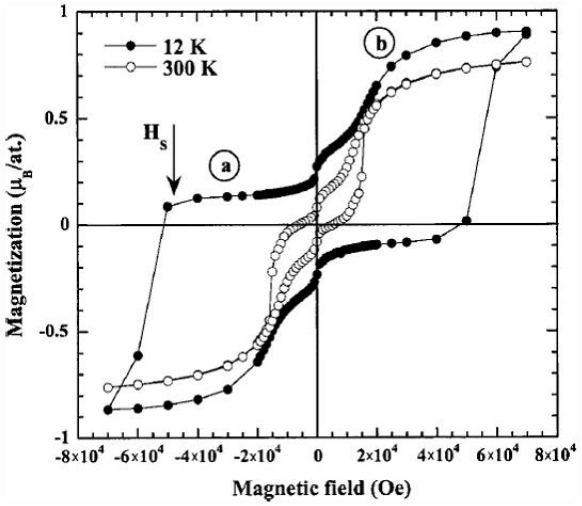

FIGURE 5.13 – Cycles d'hystérésis à $T = 12$K et $T = 300$K d'un super-réseau [100Å $DyFe_2$/130Å YFe_2] [Dumesnil 2000].

5.4 Conclusion

Nous avons élaboré un modèle afin d'étudier les processus de retournement de l'aimantation dans les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ par simulation Monte Carlo. Nous avons limité cette étude à l'influence des épaisseurs relatives des deux couches magnétiques. Nos résultats de simulations ont montré un très bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux. Nous avons mis en évidence que le rapport entre les épaisseurs des couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2 est un paramètre majeur sur les processus de retournement de l'aimantation et les profils d'aimantation obtenus. En-deçà du rapport $e_{DyFe_2}/e_{YFe_2} \leq 1$, il existe une paroi d'interface localisée dans la couche d'YFe_2 à basse température. Cette paroi se déplace dans la couche dure avec la température pour les super-réseaux dont l'épaisseur de la couche de $DyFe_2$ est la plus faible.

En perspective à cette étude, il serait intéressant d'étudier également l'influence de l'épaisseur nominale de chaque couche puisqu'il est démontré expérimentalement que ce paramètre joue un rôle important sur la valeur du champ B_B en particulier. Par ailleurs, le modèle pourrait être amélioré en tenant compte des termes d'anisotropie uniaxiale d'ordre plus élevé.

Conclusion

Dans le cadre de cette thèse, nous avons élaboré un modèle réaliste de multicouches amorphes Fe/Dy permettant de simuler les propriétés magnétiques à l'équilibre et les propriétés sous champ magnétique pour différents profils de concentration dans le cadre du modèle de Mergel. La technique d'investigation utilisée repose sur la méthode de simulation numérique Monte Carlo. Le modèle retenu, qui est fondé sur des résultats expérimentaux, permet de tenir compte de différents profils de concentration suivant l'épaisseur de la multicouche. Ces profils de concentration sont reliés à la température d'élaboration des échantillons. Nous pouvons ainsi modéliser aussi bien des multicouches parfaites avec des interfaces abruptes que des échantillons avec des interfaces diffuses dont les profils de concentration sont directement issus de résultats expérimentaux.

Dans un premier temps, nous avons étudié l'influence du profil de concentration suivant l'épaisseur de la multicouche. La conclusion qui en ressort concerne l'influence de la diffusion atomique sur la mise en ordre magnétique. Un profil de concentration avec des interfaces abruptes donne lieu à une mise en ordre indépendante des couches de Fe et de Dy qui commence à $T = 280$K, et présente une compensation magnétique vers 170K. Dans le cas des profils de concentration plus diffus, la mise en ordre qui commence à $T \approx 330$K est globale et l'aimantation est dominée par le sous-réseau de Dy à toute température. Nous avons ensuite mis en oeuvre notre modèle de simulation afin de confirmer les ajustements de spectres de réflectrométrie de neutrons polarisés. Nous avons mis en évidence le fait qu'une couche de Dy amorphe pouvait être partiellement aimantée à température ambiante par effet de polarisation des couches de Fe voisines. A basse température, les effets de compétition entre les différents termes énergétiques peuvent donner lieu à un ordre ferrimagnétique non colinéaire au champ magnétique appliqué. Ces résultats confirment les hypothèses réalisées pour l'ajustement des spectres de neutrons.

Nous avons ensuite étudié l'influence de l'anisotropie magnétique sur l'ordre magnétique à basse température et sous champ magnétique. Nos résultats mettent en évidence l'existence d'un profil d'aimantation inhomogène en épaisseur, qui dépend fortement du profil de concentration. L'existence d'une anisotropie magnétique de direction aléatoire sur la majorité des sites de Dy en lien avec la nature amorphe des échantillons étudiés donne lieu à l'existence de structures spérimagnétiques. La dispersion des moments magnétiques, toujours plus importante sur le sous-réseau de Dy que sur celui de Fe, est fortement corrélée à la concentration locale. La diffusion atomique à l'interface favorise un profil d'aimantation plus homogène mais avec une dispersion également des moments magnétiques de Fe, ce que nous n'observons pas dans le cas d'un profil abrupt.

La modélisation des échantillons repose finalement sur un modèle d'anisotropie lié à l'existence d'amas ordonnés de très petite dimension. L'introduction de ces amas dans les multicouches donne lieu à l'apparition d'une aimantation perpendiculaire au plan des couches.

Le seconde partie de cette thèse est dédiée à l'étude des cycles d'hystérésis de ces multicouches pour différents modèles d'anisotropie magnétique. Dans le cas d'une anisotropie uniaxiale sur les sites de Dy, nous mettons en évidence l'influence du profil de concentration sur les modes de retournement de l'aimantation. Un profil constitué d'interfaces abruptes donne lieu à l'apparition de parois dans la couche de Fe, induisant une rotation non uniforme de l'aimantation. Dans le cas d'un profil diffus, le retournement de l'aimantation est cohérent avec le modèle de Stoner-Wohlfarth, avec un champ coercitif supérieur au cas précédent, en accord avec les résultats expérimentaux. Dans le cadre du modèle avec anisotropie aléatoire et présence d'amas localement ordonnés présentant en moyenne une direction privilégiée de l'aimantation, nos simulations ont permis de mettre en évidence des modifications dans les processus de retournement et dans l'ordre magnétique sous champ par rapport au cas simple de l'anisotropie uniaxiale. En particulier, l'anisotropie magnétique aléatoire est à l'origine de la forte augmentation des champs coercitifs dans les différentes directions d'application du champ magnétique.

Par ailleurs, en accord avec les résultats expérimentaux, l'évolution en fonction de la température des cycles d'hystérésis montre une fermeture rapide de ces derniers pour un champ appliqué dans le plan des couches en raison de la diminution de l'effet de l'anisotropie aléatoire avec la température.

Enfin, nous avons également étudié les processus de retournement de l'aimantation dans les échantillons de type "spring-magnets" pour différents ratios des épaisseurs entre la couche magnétique dur et la couche douce. Nos simulations qui sont globalement en bon accord avec les cycles d'hystérésis expérimentaux permettent d'expliquer l'existence d'une coercivité négative lorsque l'épaisseur de la couche douce est quatre fois plus grande que celle de la couche dure.

En perspective à ce travail, il serait intéressant d'appliquer ce modèle à d'autres types de multicouches (par exemple aux multicouches magnétostrictives TbFeCo/FeCo) et de proposer des interprétations de cycles d'hystérésis.

Annexe A

Calcul analytique des champs de retournement de l'aimantation

Nous présentons dans cette annexe le détail du calcul du champ de retournement d'un système Fe/Dy pour différents modèles d'anisotropie magnétique sur les sites de Dy.

Les hypothèses du modèle sont les suivantes :
- la température est nulle ($T = 0\mathrm{K}$) ;
- la rotation de l'aimantation est uniforme ;
- les interactions d'échange sont satisfaites, et l'ordre demeure ferrimagnétique durant le retournement ;
- l'anisotropie magnétique est uniquement sur les sites de Dy ;
- l'anisotropie de forme est négligée.

En raison des hypothèses considérées, l'énergie du système au cours du retournement est indépendante de l'énergie d'échange. Elle ne dépend que de l'énergie Zeeman et de l'énergie d'anisotropie magnétique. Lorsque l'on ne conserve que ces deux contributions, l'énergie du système soumis à un champ magnétique s'écrit alors :

$$E = -\sum_i \mathbf{m}_i.\mathbf{B} - \sum_i D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{e}_i)^2, \tag{A.1}$$

où $\mathbf{m}_i$ est le moment magnétique de l'atome i, $\mathbf{B}$ est le champ magnétique, D_i est le coefficient d'anisotropie magnétique de l'atome i, $\mathbf{S}_i$ est le spin de l'atome i et $\mathbf{e}_i$ est la direction d'anisotropie magnétique de l'atome i.

Nous détaillons le calcul du champ de retournement de l'aimantation dans le cas de trois modèles d'anisotropie magnétique.

A.1 Anisotropie magnétique uniaxiale

Dans le cas d'une anisotropie uniaxiale (arbitrairement choisie suivant la direction Oz) sur les sites de Dy, cette énergie peut alors s'écrire :

$$E = -N_{\mathrm{Dy}}\mathbf{m}_{\mathrm{Dy}}.\mathbf{B} - N_{\mathrm{Fe}}\mathbf{m}_{\mathrm{Fe}}.\mathbf{B} - N_{\mathrm{Dy}}D_{\mathrm{Dy}}(S^z_{\mathrm{Dy}})^2, \tag{A.2}$$

où N_{Dy} et N_{Fe} sont respectivement les nombres d'atomes de Dy et de Fe dans la structure.

On définit l'angle θ entre le moment magnétique de Dy et la direction de facile aimantation (figure A.1).

Pour un champ magnétique appliqué suivant $-Oz$, les moments magnétiques de Dy et de Fe font respectivement un angle $\pi - \theta$ et θ avec le champ.

On a donc pour l'énergie du système :

$$E(\theta) = -N_{\mathrm{Dy}}m_{\mathrm{Dy}}B\cos(\pi - \theta) - N_{\mathrm{Fe}}m_{\mathrm{Fe}}B\cos\theta - N_{\mathrm{Dy}}D_{\mathrm{Dy}}S^2_{\mathrm{Dy}}\cos^2\theta, \tag{A.3}$$

soit encore :

$$E(\theta) = [N_{\mathrm{Dy}}m_{\mathrm{Dy}} - N_{\mathrm{Fe}}m_{\mathrm{Fe}}]B\cos\theta - N_{\mathrm{Dy}}D_{\mathrm{Dy}}S^2_{\mathrm{Dy}}\cos^2\theta. \tag{A.4}$$

La dérivée de l'énergie par rapport à θ s'écrit :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = -\sin\theta[(N_{\mathrm{Dy}}m_{\mathrm{Dy}} - N_{\mathrm{Fe}}m_{\mathrm{Fe}})B - 2N_{\mathrm{Dy}}D_{\mathrm{Dy}}S^2_{\mathrm{Dy}}\cos\theta], \tag{A.5}$$

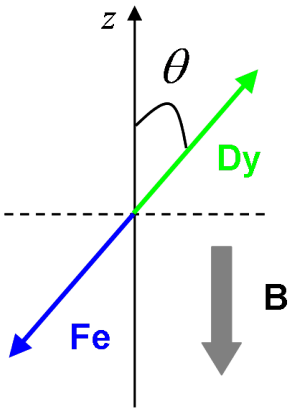

FIGURE A.1 – Définition de l'angle θ entre le moment magnétique de Dy et la direction de facile aimantation (z).

et la dérivée seconde de l'énergie par rapport à θ s'écrit :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} = -\cos\theta(N_{\mathrm{Dy}} m_{\mathrm{Dy}} - N_{\mathrm{Fe}} m_{\mathrm{Fe}})B + 2N_{\mathrm{Dy}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2 \cos 2\theta. \tag{A.6}$$

Les conditions d'équilibre stable sont obtenues en minimisant l'énergie du système. Elles sont déterminées en satisfaisant aux conditions suivantes :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = 0 \quad , \quad \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} > 0. \tag{A.7}$$

La dérivée s'annule pour trois valeurs de l'angle θ :

$$\theta = 0, \pi,$$
$$\theta = \arccos\left(\frac{(N_{\mathrm{Dy}} m_{\mathrm{Dy}} - N_{\mathrm{Fe}} m_{\mathrm{Fe}})B}{2N_{\mathrm{Dy}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2}\right).$$

La configuration magnétique est stable ($\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} > 0$) dans la direction antiparallèle au champ ($\theta = 0$) si $B < \frac{2N_{\mathrm{Dy}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2}{(N_{\mathrm{Dy}} m_{\mathrm{Dy}} - N_{\mathrm{Fe}} m_{\mathrm{Fe}})}$. Au-delà de cette valeur de champ, la configuration antiparallèle ne correspond plus au minimum de l'énergie et l'aimantation peut basculer dans une direction parallèle au champ magnétique.

Le champ de retournement vaut alors :

$$B_{\mathrm{C}} = \frac{2N_{\mathrm{Dy}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2}{N_{\mathrm{Dy}} m_{\mathrm{Dy}} - N_{\mathrm{Fe}} m_{\mathrm{Fe}}}, \tag{A.8}$$

qui peut encore s'exprimer en fonction de l'aimantation ferrimagnétique et de la concentration de Dy par :

$$B_{\mathrm{C}} = \frac{2X_{\mathrm{Dy}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2}{M_{\mathrm{ferrimagnetique}}}. \tag{A.9}$$

A.2 Cas de l'anisotropie magnétique aléatoire

On se place ici dans le cas où chaque site de Dy présente une direction d'anisotropie magnétique aléatoire. L'énergie du système peut alors s'écrire :

$$E = -N_{\mathrm{Dy}}.\mathbf{m}_{\mathrm{Dy}}.\mathbf{B} - N_{\mathrm{Fe}}.\mathbf{m}_{\mathrm{Fe}}.\mathbf{B} - \sum_i D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{n}_i)^2, \tag{A.10}$$

ou $\mathbf{n}_i$ est une direction aléatoire sur le site i.

Déterminons l'expression de la contribution énergetique de l'anisotropie aléatoire (E_{RMA}). Le spin de Dy du site i fait un angle $\pi - \theta$ avec le champ (figure A.2).

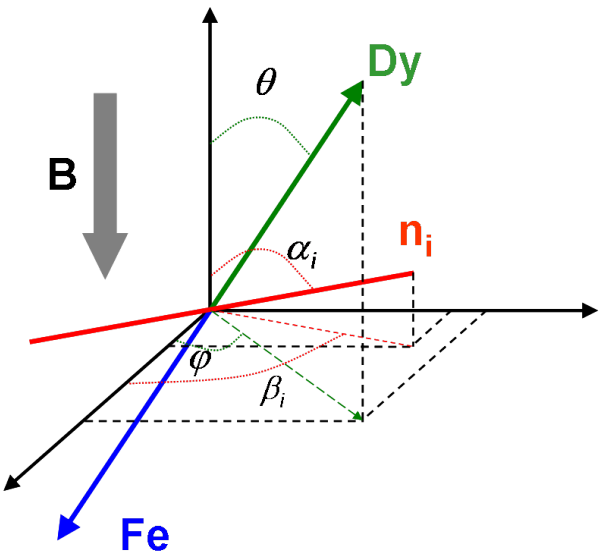

FIGURE A.2 – Définition des angles $\pi - \theta$ entre le moment magnétique de Dy et le champ magnétique aimantation et des angles α_i et β_i de la direction aléatoire de facile aimantation ($\mathbf{n}_i$).

L'énergie d'anisotropie s'écrit alors :

$$E_{\mathrm{RMA}} = -D_{\mathrm{Dy}} \sum_i (S_i^x n_i^x + S_i^y n_i^y + S_i^z n_i^z)^2. \tag{A.11}$$

En supposant le système infini, la somme discrète devient une intégrale (dont les bornes sont 0 et π) qui vaut $N_{\mathrm{Dy}}.\frac{4\pi}{3}$. L'énergie d'anisotropie magnétique aléatoire est donc :

$$E_{\mathrm{RMA}} = -N_{\mathrm{Dy}} D_{\mathrm{Dy}} S_{\mathrm{Dy}}^2 \frac{4\pi}{3}. \tag{A.12}$$

Elle est indépendante de l'angle entre l'aimantation et le champ magnétique. La minimisation de l'énergie du système conduit donc à un retournement en champ nul $B_{\mathrm{C}} = 0$.

A.3 Cas de l'anisotropie magnétique dans les amas ordonnés

Considérons finalement le cas où notre système Fe/Dy contient des amas ordonnés, c'est-à-dire avec une fraction des sites de Dy qui ont une direction d'anisotropie magnétique définit par le vecteur $\mathbf{e}_i$ et l'autre partie des sites de Dy avec une direction d'anisotropie aléatoire. L'énergie du système s'écrit alors :

$$E = -\sum_i \mathbf{m}_i.\mathbf{B} - \sum_{amas} D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{e}_i)^2 - \sum_{matrice} D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{n}_i)^2. \tag{A.13}$$

Les directions d'anisotropie dans les amas sont distribuées de façon équiprobable selon les 4 vecteurs suivants :

$$\mathbf{e}_i = \begin{pmatrix} 0 \\ \sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \end{pmatrix} \quad , \quad \begin{pmatrix} 0 \\ -\sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \end{pmatrix} \quad , \quad \begin{pmatrix} \sqrt{2}/2 \\ 0 \\ \sqrt{2}/2 \end{pmatrix} \quad , \quad \begin{pmatrix} -\sqrt{2}/2 \\ 0 \\ \sqrt{2}/2 \end{pmatrix}$$

La contribution énergétique des amas est définie par :

$$E_{\text{amas}} = \sum_{\text{amas}} D_i(\mathbf{S}_i.\mathbf{e}_i)^2 = D_{\text{Dy}} N_{\text{Dy}}^{\text{amas}} \Big[\frac{(\mathbf{S}.\mathbf{e}_1)^2}{4} + \frac{(\mathbf{S}.\mathbf{e}_2)^2}{4} + \frac{(\mathbf{S}.\mathbf{e}_3)^2}{4} + \frac{(\mathbf{S}.\mathbf{e}_4)^2}{4} \Big], \tag{A.14}$$

soit :

$$E_{\text{amas}} = \frac{D_{\text{Dy}}.N_{\text{Dy}}^{\text{amas}}.S_{\text{Dy}}^2}{4}(1 + \cos^2\theta) \tag{A.15}$$

Par ailleurs, comme nous l'avons vu précédemment, l'énergie d'anisotropie magnétique aléatoire apporte une contribution constante et indépendante de l'angle formé avec le champ. L'énergie totale du système est donc :

$$E = [N_{\text{Dy}} m_{\text{Dy}} - N_{\text{Fe}} m_{\text{Fe}}].B.\cos\theta - \frac{D_{\text{Dy}}.N_{\text{Dy}}^{\text{amas}}.S_{\text{Dy}}^2}{4}(1 + \cos^2\theta), \tag{A.16}$$

et sa dérivée :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = [-B(N_{\text{Dy}} m_{\text{Dy}} - N_{\text{Fe}} m_{\text{Fe}}) + \frac{D_{\text{Dy}}.N_{\text{Dy}}^{\text{amas}}.S_{\text{Dy}}^2}{2}.\cos\theta]\sin\theta \tag{A.17}$$

La détermination du minimum de cette fonction conduit à un champ de retournement :

$$B_{\text{C}} = \frac{D_{\text{Dy}}.N_{\text{Dy}}^{\text{amas}}.S_{\text{Dy}}^2}{2(N_{\text{Dy}} m_{\text{Dy}} - N_{\text{Fe}} m_{\text{Fe}})}, \tag{A.18}$$

soit :

$$B_{\text{C}} = \frac{X_{\text{Dy}}^{\text{amas}}.D_{\text{Dy}}.S_{\text{Dy}}^2}{2.M_{\text{ferrimagnetique}}}. \tag{A.19}$$

Liste des tableaux

1.1 Propriétés de l'ion trivalent Dy^{3+} dans l'état fondamental. 15
1.2 Valeurs mesurées expérimentalement du coefficient d'anisotropie magnétique ion-simple pour le Dy. 27
1.3 Température de Curie du fer amorphe dans différents composés. 33

3.1 Aimantation à saturation et aimantation ferrimagnétique des multicouches pour les différents profils de concentration (en μ_B par atome). 71
3.2 Températures des maxima des pics de susceptibilité magnétique par sous-réseau pour les 4 profils de concentration. 74

4.1 Concentration d'atomes de Dy appartenant aux amas ($C^{\text{total}}_{\text{Dy amas}}$) et concentration d'atomes de Dy appartenant aux amas par rapport au nombre total d'atomes de Dy ($C^{\text{Dy}}_{\text{Dy amas}}$) pour différentes concentrations d'amas. 93
4.2 Valeur de l'aimantation réduite globale et par sous-réseau à $T = 1$K en fonction de $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}}$. 94
4.3 Demi-angle de cône de dispersion des moments magnétiques de Fe et de Dy en fonction de $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}}$. 97
4.4 Energie d'anisotropie magnétique aléatoire et énergies des interactions d'échange pour 4 plans typiques dans le cas du profil de sonde pour $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}} = 20$K. 109
4.5 Résumé sur la nature de l'ordre magnétique par sous-réseau à $T = 1$K en fonction du profil de concentration et de la valeur de $D_{\text{Dy}}/k_{\text{B}}$ (F=ferromagnétique ($M/M_{sat} > 0,98$) ; S=aspéromagnétique ($M/M_{sat} \leq 0,98$)). 113

5.1 Paramètres magnétiques du modèle pour chaque espèce chimique. 149
5.2 Valeurs des interactions d'échange de notre modèle pour les super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$. 149
5.3 Concentration en atomes de Dy, d'Y et de Fe dans la multicouche en fonction du rapport entre les épaisseurs des couches de $DyFe_2$ et d'YFe_2. 150
5.4 Valeurs des champs magnétiques caractéristiques (B_{B}, B_{IS} et B_{C}) et valeur de l'aimantation du plateau ramenée à l'aimantation à saturation en fonction du rapport entre les épaisseurs des couches magnétiques dures et douces à $T = 1$K. 156

Table des figures

1.1 Densité d'états en fonction de l'énergie pour les spins *3d* "up" (↑) et "down" (↓) dans le cas du fer cubique centré. 13
1.2 Représentation schématique de la densité de charge des orbitales pour un atome de Gd [Freeman 1962]. 14
1.3 Ordre magnétique dans le dysprosium ; à gauche, $T < T_C$: ordre ferromagnétique ; à droite, $T_C < T < T_N$: ordre hélimagnétique. 16
1.4 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}) [Trémolet de Lacheisserie 2000*a*]. 18
1.5 Température de Curie et température de compensation d'un alliage Fe-Gd cristallin et amorphe [Heiman 1976*b*]. 18
1.6 Représentation schématique de l'oscillation de l'interaction d'échange de type RKKY entre deux moments magnétiques distants de r. 19
1.7 Représentation schématique des interactions entre les moments magnétiques MT-TR lourde. S.O. représente le couplage spin-orbite, F et AF représentent respectivement des interactions ferromagnétiques et antiferromagnétiques. 20
1.8 Représentation des orbitales *4f*. 22
1.9 Définition des angles θ et ϕ en symétrie hexagonale. θ correspond à l'angle entre l'aimantation et l'axe [001] de la structure hexagonale. L'angle ϕ est l'angle entre la projection de l'aimantation dans le plan perpendiculaire à l'axe [001] et l'axe [100] du réseau. 22
1.10 Représentation schématique de l'aimantation réduite en fonction de la température réduite dans le cas de composés cristallisé et amorphe [Tsuei 1976]. 24
1.11 Influence de l'amplitude des fluctuations des interactions d'échange (δ) dans des films minces amorphes GdAu sur l'aimantation réduite en fonction de la température réduite [O'Handley 1987]. 24
1.12 Représentation schématique des différentes structures magnétiques observées dans les alliages amorphes MT-TR ((a) ordre ferromagnétique, (b) ordre ferrimagnétique, (c) ordre spéromagnétique, (d) ordre spérimagnétique). 25
1.13 Diagramme de phase en fonction des paramètres $t = \frac{k_B T}{J_{ij}}$, $d = \frac{D}{J_{ij}}$, $\delta = \frac{\Delta J_{ij}}{J_{ij}}$ illustrant les différentes structures magnétiques. SM représente une structure spéromagnétique ou spérimagnétique, CSM représente un état spéromagnétique corrélé, F représente une structure ferromagnétique, SG représente une structure verre de spin c'est-à-dire avec une frustration magnétique importante et M représente une phase mixte F et SG [Sellmyer 1985]. 26
1.14 Evolution du demi-angle de cône de dispersion des moments magnétiques de terrerare en fonction de l'aimantation du sous-réseau de TR. 27

1.15 Structure de films minces Fe-TR en fonction des épaisseurs des couches de fer et de terre rare. Les symboles renvoient à : ∘ structure en couches, × structure sous forme d'alliage, • constituant de la phase cristalline. La partie hachurée indique la zone de composition de formation des amorphes [Sato 1987]. 29
1.16 Reconstruction tridimensionnelle de multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm) après analyse en sonde atomique et profil de concentration le long de la multicouche pour différentes températures de substrat ((a) T_S = 320K ; (b) T_S = 570K ; (c) T_S = 870K) [Tamion 2005]. 30
1.17 Clichés de microscopie électronique en transmission d'une multicouche (Fe 3nm/Dy 2nm) pour différentes températures de substrat ((a) T_S = 320K ; (b) T_S = 570K ; (c) T_S = 870K) [Tamion 2005]. Dans le cas de l'échantillon élaboré à 570K, les cristallites de Fe α à proximité du substrat sont entourés en rouge. 31
1.18 Structure schématique de l'ordre spérimagnétique dans les multicouches Fe/Dy. . 32
1.19 Variation de la température de Curie pour des alliages amorphes en couches minces $Fe_{X_{Fe}}TR_{1-X_{Fe}}$ avec TR=Gd,Tb,Dy,Ho [Hansen 1991]. 34
1.20 Constante d'anisotropie magnétique mesurée multipliée par l'épaisseur de la bicouche en fonction de l'épaisseur de la couche de fer sur des multicouches Fe/Dy pour différentes épaisseurs de la couche de Dy à 300K [Shan 1990*a*]. 34
1.21 Représentation schématique du sous-réseau dominant du point de vue magnétique en fonction du rapport des épaisseurs de fer et de dysprosium de la multicouche à T = 0K. 35
1.22 Variation de la constante d'anisotropie uniaxiale K_u en fonction de la température d'élaboration T_S pour différentes températures de mesure. T_{CR} correspond à la température de cristallisation estimée des multicouches. 36
1.23 Représentation schématique de l'évolution de la direction de l'aimantation et de la structure des échantillons en fonction de la température de substrat ((a) T_S = 320K ; (b) T_S = 570K ; (c) T_S = 870K). 37
1.24 Maille élémentaire cubique des structures de phases de Laves $MgCu_2$. Les atomes de TR occupent les sites de Mg (en gris) et les atomes de Fe ceux de Cu (en bleu). 38
1.25 Représentation schématique de l'ordre magnétique des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ ((état fondamental ; (b) état stable en présence d'un champ magnétique extérieur). 40

2.1 Représentation schématique d'une multicouche A_mB_n avec une interface diffuse. 45
2.2 Illustration des conditions aux limites de l'échantillon : conditions de bords périodiques (CBP) dans le plan (Oxy) et conditions de bords libres dans la direction de croissance des échantillons (Oz). 46
2.3 Représentation schématique de la distribution gaussienne des interactions d'échange autour de leur valeur moyenne. 47
2.4 Représentation schématique de la variation d'énergie au cours du processus de recuit simulé. ito correspond au nombre d'itérations consacrées à la thermalisation, itm est le nombre total d'itérations, la température décroît de ΔT. 51
2.5 Représentation schématique du tirage aléatoire de la nouvelle orientation $\mathbf{S}_i'$ du spin $\mathbf{S}_i$ à l'intérieur d'un cône. 54
2.6 Cycles d'hystérésis simulés avec l'algorithme de Metropolis standard et la méthode quantifiée en temps pour une assemblée de spins sans interaction à $T = 10^{-3}$K avec une anisotropie magnétique uniaxiale (nombre de pas MC = 2000+2000). 55

2.7 Cycles d'hystérésis simulés avec l'algorithme de Metropolis standard et la méthode quantifiée en temps pour un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ avec une anisotropie magnétique uniaxiale sur les sites de Dy à $T = 1$K (nombre de pas MC = 2000+10000). 56

3.1 Distributions des interactions d'échange ((a) J_{Fe-Fe} ; (b) J_{Dy-Dy}). 62
3.2 Variation thermique de la susceptibilité magnétique obtenue en simulation MC pour les composés purs avec 14400 atomes ((a) Fe pur "amorphe", (b) Dy pur "amorphe"). 62
3.3 Variation thermique de l'énergie interne magnétique obtenue en simulation MC pour les composés purs avec 14400 atomes. 63
3.4 Variation thermique de l'aimantation pour les composés purs obtenue en simulation avec 14400 atomes. (▲ pour le Dy pur "amorphe" et • pour le Fe pur "amorphe"). 64
3.5 Variation des interactions d'échange moyennes J_{Fe-Fe}, J_{Fe-Dy} et J_{Dy-Dy} en fonction de la concentration en Fe. 64
3.6 Variation thermique de l'aimantation pour des alliages amorphes $Fe_{X_{Fe}}Dy_{1-X_{Fe}}$ ((a) simulation numérique (14400 atomes ; 5000+10000 pas MC), (b) résultats expérimentaux [Hansen 1991]). 65
3.7 Variation thermique de l'aimantation globale et par sous-réseaux (en μ_B/atome) obtenues en simulation MC pour différentes concentrations en fer dans l'alliage (− : aimantation globale ; • : sous-réseau de Fe ; × : sous-réseau de Dy). 66
3.8 Variation des températures de Curie (a) et de compensation (b) en fonction de la concentration en fer dans les alliages amorphes $Fe_{X_{Fe}}Dy_{1-X_{Fe}}$. 67
3.9 Profils de concentration pour les différents modèles de multicouches considérés dans cette étude ((a) profil abrupt, (b) profil linéaire, (c) profil de sonde, (d) alliage $Fe_{67}Dy_{33}$). La bicouche sur laquelle les grandeurs physiques ont été mesurées correspond à la zone grisée. 70
3.10 Représentation des multicouches pour les différents profils de concentration utilisés - en bleu, les atomes de Fe ; en vert, les atomes de Dy - ((a) abrupt ; (b) linéaire ; (c) sonde ; (d) alliage). Pour chaque profil de concentration, la flèche indique la bicouche sur laquelle les grandeurs physiques ont été mesurées. 71
3.11 Variation de la susceptibilité magnétique d'une bicouche Fe-Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration ((a) abrupt et linéaire ; (b) sonde et alliage). 72
3.12 Variation thermique de la susceptibilité magnétique par sous-réseau dans une bicouche Fe-Dy pour les 4 profils de concentration ((a) sous-réseau de Fe ; (b) sous-réseau de Dy). 73
3.13 Variation de l'aimantation d'une bicouche Fe-Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration. L'aimantation est rapportée à l'aimantation ferrimagnétique du système. 74
3.14 Variation de l'aimantation par sous-réseau d'une bicouche Fe-Dy en fonction de la température pour les 4 profils de concentration. L'aimantation est rapportée à l'aimantation à saturation du sous-réseau ((a) sous-réseau de Fe, (b) sous-réseau de Dy). 75
3.15 Variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt. 76
3.16 Variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration linéaire. 77

3.17 Variation thermique de l'aimantation par plan d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde. 78
3.18 Représentation du profil d'aimantation suivant l'épaisseur à basse température ((a) profil de concentration abrupt ; (b) profil de concentration linéaire ; (c) profil de sonde ; (d) Alliage homogène). 79
3.19 Profils d'aimantation dans des multicouches (Fe 3nm/Dy 2nm)$_{10}$ obtenues par ajustement des analyses de RNP ((a) $T_S = 320K$ et $T = 300K$; (b) $T_S = 320K$ et $T = 100K$; (c) $T_S = 570K$ et $T = 300K$; (d) $T_S = 570K$ et $T = 100K$) [Tamion 2005]. Le substrat sur lequel les échantillons sont déposés est en blanc. La couche rose correspond à une couche protectrice de Cr. 80
3.20 Structure de la tricouche Fe/Dy/Fe utilisée dans le modèle de simulation ((a) modèle associé à une multicouche élaborée à $T_S = 320K$; (b) modèle associé à une multicouche élaborée à $T_S = 570K$). 82
3.21 Variation de l'aimantation totale et par sous-réseau, ainsi que la projection suivant la direction du champ magnétique appliqué (x) pour une tricouche correspondant à une température d'élaboration de 320K ((a) la tricouche est composée d'une couche de Fe α et d'une couche de Fe α - Fe amorphe ; (b) les deux couches de Fe sont amorphes). 83
3.22 Représentation schématique du profil d'aimantation en fonction de la température pour un profil associé à une multicouche élaborée à 320K. 84
3.23 Variation de l'aimantation totale et par sous-réseau, ainsi que la projection suivant la direction du champ magnétique appliqué (x) pour une tricouche élaborée à 570K ; (a,b,c) représentation schématique du profil d'aimantation en épaisseur en fonction de la température. 85

4.1 Représentation schématique de l'arrangement des atomes dans les amas cristallisés dans le cadre du modèle de Mergel [Mergel 1993]. 91
4.2 Représentation schématique des amas introduits dans notre modèle avec en bleu les atomes de Fe, en vert les atomes de Dy, les flèches rouges représentent les directions d'anisotropie magnétique locale. 92
4.3 Variation thermique de l'aimantation globale et par sous-réseau d'un alliage amorphe $Fe_{67}Dy_{33}$ en fonction de D_{Dy} ((a) aimantation totale ; (b) aimantation par sous-réseau). 94
4.4 Représentation schématique de l'influence de chaque interaction sur la structure spérimagnétique. 95
4.5 Distribution des moments magnétiques (pour une configuration initiale) de Dy selon les trois composantes x, y et z en fonction de D_{Dy}/k_B dans le cas d'un alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ ((a) $D_{Dy}/k_B = 1K$; (b) $D_{Dy}/k_B = 5K$; (c) $D_{Dy}/k_B = 10K$; (d) $D_{Dy}/k_B = 20K$; (e) $D_{Dy}/k_B = 50K$; (f) $D_{Dy}/k_B = 100K$). 96
4.6 Variation thermique de l'aimantation des atomes de Fe et de Dy constituant les amas dans le cas d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas et $D_{Dy}/k_B = 10K$ (moyenne sur 100 configurations initiales différentes). 98
4.7 Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation réduite à $T = 1K$ d'une multicouche avec un profil de concentration ((a) abrupt contenant 5% d'amas, (b) linéaire avec 10% d'amas, (c) sonde avec 10% d'amas (d) alliage homogène $Fe_{67}Dy_{33}$ avec 10% d'amas (moyenne sur 100 configurations)). 99

4.8 Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation du sous-réseau de Dy d'une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas en fonction de la température ($T = 1, 50, 100, 150, 200, 250$K) pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10, 20, 50$K (moyenne sur 100 configurations). 100
4.9 Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation du sous-réseau de Dy à $T = 250$K et pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K en fonction du profil de concentration ((a) abrupt 5% ; (b) linéaire 10% ; (c) sonde 10 % ; (d) alliage 10 % (moyenne sur 100 configurations)). 101
4.10 Variation thermique de l'aimantation totale (a) et par sous-réseau (b) d'une multicouche avec un profil abrupt contenant 5% d'amas pour différentes valeurs du coefficient d'anisotropie magnétique. 103
4.11 Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1, 20, 50$K d'une multicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas (moyenne sur 20 configurations). 103
4.12 Distribution de la composante perpendiculaire de l'aimantation réduite pour une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K ((a) plan 15 - Dy (coeur) ; (b) plan 18 - Dy (interface) ; (c) plan 19 - Fe (interface) ; (d) plan 25 - Fe (coeur)). 105
4.13 Représentation schématique du profil magnétique à basse température d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas en fonction du coefficient d'anisotropie magnétique. 106
4.14 Variation thermique de l'aimantation totale (a) et par sous-réseau (b) d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de concentration linéaire contenant 5% d'amas en fonction du coefficient d'anisotropie magnétique sur les sites de Dy. 106
4.15 Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1, 20, 50$K d'une bicouche avec un profil de concentration linéaire contenant 5% d'amas (moyenne sur 20 configurations) ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe). 107
4.16 Variation thermique de l'aimantation totale (a) et par sous-réseau (b) d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas pour différentes valeurs du coefficient d'anisotropie. 108
4.17 Aimantation par plan à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1, 20, 50$K d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas (moyenne sur 20 configurations) ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe). 108
4.18 Energie par atome d'une bicouche en fonction du plan atomique avec un profil de sonde. $E_{\text{éch.}}^{\mathrm{Fe-Fe}}$: énergie d'échange des paires Fe-Fe ; $E_{\text{éch.}}^{\mathrm{Fe-Dy}}$: énergie d'échange des paires Fe-Dy ; $E_{\text{éch.}}^{\mathrm{Dy-Dy}}$: énergie d'échange des paires Dy-Dy ; $E_{\text{Anis. aléat.}}^{\mathrm{Dy}}$: énergie d'anisotropie aléatoire pour $D_{\mathrm{Dy}/k_{\mathrm{B}}} = 1$, 20 et 50K. 109
4.19 Distribution des moments magnétiques de Dy selon les trois composantes m_x, m_y et m_z pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 50$K dans le cas d'un alliage homogène avec 20% d'amas à $T = 1$K. 110
4.20 Variation thermique de l'aimantation d'un alliage $\mathrm{Fe}_{0,67}\mathrm{Dy}_{0,33}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} =$ 50K en fonction de la concentration d'amas dans la structure. 111
4.21 Distribution moyennée sur 20 configurations de la composante perpendiculaire de l'aimantation des atomes de Dy à $T = 1$K pour une bicouche avec un profil de sonde avec $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$K en fonction de la concentration d'amas ((a) 5% d'amas ; (b) 10% d'amas ; (c) 20% d'amas). 112
4.22 Définition des angles θ et φ pour un monocristal ferromagnétique de forme ellipsoïdale. 114

4.23 Energie totale du système en fonction de l'angle θ et du champ réduit h ((a) $\varphi = \pi$; (b) $\varphi = 5\pi/6$). Le minimum local est indiqué par le point orange. 115
4.24 Représentation schématique des modes de retournement non uniforme de l'aimantation ((a) flambage ("buckling") ; (b) enroulement ("curling")). 116
4.25 Cycles d'hystérésis d'une multicouche Fe/Dy à anisotropie uniaxiale avec un profil de concentration abrupt à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K en fonction du nombre de bicouches ((a) champ appliqué perpendiculairement au plan des couches ; (b) champ appliqué dans le plan des couches). 118
4.26 Cycles d'hystérésis par plan d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt à $T = 1$K pour une période de répétition de la bicouche de 2 ((a) plans appartenant à la première bicouche ; (b) plans appartenant à la seconde bicouche). 119
4.27 Représentation de l'ordre magnétique en fonction du champ magnétique durant le retournement dans le cas d'une multicouche avec un profil abrupt à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K ((a) $B > B_{\mathrm{C}}$; (b) $B \sim B_{\mathrm{C}}$; (c) $B_{\mathrm{C}} > B > -B_{\mathrm{C}}$; (d) $B \sim -B_{\mathrm{C}}$; (e) $B < -B_{\mathrm{C}}$). 120
4.28 Evolution de l'aimantation totale et par sous-réseau en fonction du nombre de pas Monte Carlo durant le retournement de l'aimantation d'une bicouche avec un profil abrupt pour un champ appliqué suivant la direction de facile aimantation, $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K à $T = 1$K ((a) norme de l'aimantation ; (b) composante perpendiculaire au plan des couches de l'aimantation). 121
4.29 (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation totale d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt à $T = 1$K pour différentes valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$. (b) Evolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique. 121
4.30 (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation d'une bicouche avec un profil abrupt pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K à différentes températures. (b) Variation de l'aimantation et évolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la température (l'ajustement en pointillés est un guide visuel). (c) Variation du champ coercitif en fonction de l'aimantation réduite au carré. 123
4.31 (a) Cycles d'hystérésis (total et par sous-réseau) d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de concentration abrupt à $T = 1$K pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K pour un champ maximum appliqué de 30T. (b) Evolution de $m_{\mathrm{sat}} - m(B)$ obtenue en simulation comparée à la loi analytique 4.18. 124
4.32 Cycles d'hystérésis (total et par sous-réseau) d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de sonde pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K à $T = 1$K ((a) aimantation totale pour un champ appliqué parallèlement et perpendiculairement à la direction facile ; (b) cycles par sous-réseau dans le cas où le champ magnétique est appliqué dans la direction facile). 125
4.33 Evolution de l'aimantation totale et par sous-réseau en fonction du nombre de pas Monte Carlo durant le retournement de l'aimantation d'une bicouche avec un profil de sonde, $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1$K à $T = 1$K ((a) norme de l'aimantation ; (b) composante perpendiculaire de l'aimantation). 125
4.34 (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation totale d'une bicouche avec un profil de sonde à $T = 1$K pour différentes valeurs de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$. (b) Evolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique. 126

4.35 (a) Cycles d'hystérésis de l'aimantation d'une bicouche avec un profil de sonde pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ et différentes températures de mesures. (b) Variation de l'aimantation et évolution de la valeur du champ coercitif en fonction de la température (l'ajustement en pointillés est un guide visuel). (c) Variation du champ coercitif en fonction de l'aimantation réduite. 127
4.36 Cycles d'hystérésis de l'aimantation totale et par sous-réseau d'une bicouche Fe/Dy avec un profil alliage $Fe_{67}Dy_{33}$ à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 1\mathrm{K}$ ((a) aimantation totale pour un champ appliqué parallèlement et perpendiculairement à la direction facile ; (b) cycles par sous-réseau pour un champ colinéaire à la direction facile). 128
4.37 (a) Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 1\mathrm{K}$ contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10, 20, 30$ et 50K. (b) Evolution du champ coercitif en fonction de la constante d'anisotropie magnétique. 129
4.38 (a) Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10\mathrm{K}$ pour différentes valeurs de la concentration d'amas. (b) Evolution du champ coercitif en fonction de la concentration d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$ et 50K. 130
4.39 Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 1\mathrm{K}$ contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 10$,20, 30 et 40K ((a) cycles en direction perpendiculaire ; (b) cycles en direction parallèle). 131
4.40 Représentation de l'ordre magnétique par plan en fonction du champ magnétique durant le retournement dans le cas d'une multicouche avec un profil abrupt contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ ((a) $B \approx +15\mathrm{T}$; (b) $B \approx +5\mathrm{T}$; (c)$B = 0\mathrm{T}$; (d)$B \approx -5\mathrm{T}$). 132
4.41 (a) Aimantation par plan à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ d'une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas pour différentes valeurs de champ magnétique. (b) Représentation schématique correspondante de l'évolution de l'ordre spérimagnétique pour différentes valeurs de champ magnétique. 133
4.42 Norme de l'aimantation par plan en fonction de l'intensité du champ appliqué dans la direction perpendiculaire d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 1\mathrm{K}$ contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ ((a) plans de Dy ; (b) plans de Fe). 134
4.43 Représentation de l'ordre magnétique par plan en fonction du champ magnétique durant le retournement dans le cas d'une multicouche avec un profil abrupt contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ ((a) $B \approx +15\mathrm{T}$; (b) $B \approx +5\mathrm{T}$; (c)$B = 0\mathrm{T}$; (d)$B \approx -5\mathrm{T}$). 134
4.44 Evolution du champ coercitif dans les deux directions à $T = 1\mathrm{K}$ en fonction de $D_{\mathrm{Dy}/k_{\mathrm{B}}}$ pour une bicouche avec un profil de concentration abrupt contenant 5% d'amas. 135
4.45 Cycles d'hystérésis dans les directions parallèle et perpendiculaire au plan des couches d'une bicouche Fe/Dy avec un profil abrupt à $T = 100\mathrm{K}$ contenant 5% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40\mathrm{K}$ 136
4.46 Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ pour différentes concentrations d'amas ((a) cycles en direction perpendiculaire ; (b) cycles en direction parallèle). 137
4.47 Aimantation par plan à $T = 1\mathrm{K}$ pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 30\mathrm{K}$ d'une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% d'amas pour différentes valeurs de champ magnétique ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe). 137

4.48 Norme de l'aimantation par plan d'une multicouche Fe/Dy avec un profil de sonde contenant 10% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}/k_{\mathrm{B}}} = 30\mathrm{K}$ à $T = 1\mathrm{K}$ ((a) sous-réseau de Dy ; (b) sous-réseau de Fe). 138
4.49 Evolution du champ magnétique coercitif en fonction de la constante d'anisotropie à $T = 1\mathrm{K}$ pour une multicouche avec un profil de sonde en fonction de $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}}$ pour différentes concentrations d'amas. 139
4.50 (a) Cycles d'hystérésis dans les directions perpendiculaire et parallèle à $T = 1\mathrm{K}$ d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde contenant 10% d'amas et pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40\mathrm{K}$. (b) Cycles d'hystérésis expérimentaux dans les mêmes directions à $T = 5\mathrm{K}$ d'une multicouche Fe/Dy élaborée à $T_{\mathrm{S}} = 570K$. 139
4.51 (a, c, e) Cycles d'hystérésis d'une bicouche Fe/Dy avec un profil de sonde à $T = 50$, 100 et 300K contenant 10% d'amas pour $D_{\mathrm{Dy}}/k_{\mathrm{B}} = 40\mathrm{K}$. (b, d ,f) Cycles d'hystérésis expérimentaux à $T = 50$, 100 et 300K pour une multicouche élaborée à $T_{\mathrm{S}} = 570\mathrm{K}$. 141
4.52 Evolution du champ coercitif en direction perpendiculaire en fonction de la température pour une bicouche avec un profil de sonde contenant 5% et 10% d'amas. 142
4.53 Evolution du champ coercitif en fonction de l'énergie d'anisotropie magnétique "uniaxiale" par atome de Dy pour les différents modèles d'anisotropie magnétique ((a) profil abrupt avec 5% d'amas ; (b) profil de sonde avec 5% d'amas ; (c) profil de sonde avec 20% d'amas). 143

5.1 Cycles d'hystérésis à $T = 12\mathrm{K}$ et à $T = 300\mathrm{K}$ pour un super-réseau [100Å $DyFe_2$/50Å YFe_2]$_{26}$ [Dumesnil 2000]. 151
5.2 (a) Cycle d'hystérésis d'un super-réseau [75Å $DyFe_2$/75Å YFe_2]$_{40}$ à $T = 10K$; (b, c) représentation schématique de l'ordre magnétique du super-réseau pour $B > B_{\mathrm{B}}$ et $B < B_{\mathrm{B}}$ [Beaujour 2001*a*]. 152
5.3 Cycles d'hystérésis à $T = 10\mathrm{K}$ pour un super-réseau [55Å $DyFe_2$/220Å YFe_2]$_{26}$ [Bowden 2003]. 152
5.4 Cycles d'hystérésis calculés à $T = 0\mathrm{K}$ pour des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ ((a) $N_{\mathrm{DyFe_2}} = 60/N_{\mathrm{YFe_2}} = 60$; (b) $N_{\mathrm{DyFe_2}} = 30/N_{\mathrm{YFe_2}} = 60$; (c) $N_{\mathrm{DyFe_2}} = 22/N_{\mathrm{YFe_2}} = 88$). Cycles d'hystérésis expérimentaux à $T = 10\mathrm{K}$ pour des super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ ((d) [150Å $DyFe_2$/150Å YFe_2]$_{10}$; (e) [150Å $DyFe_2$/75Å YFe_2]$_{18}$; (f) [220Å $DyFe_2$/55Å YFe_2]$_{15}$) [Bowden 2003]. 153
5.5 Représentation schématique des configurations magnétiques en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué ((a) ordre ferrimagnétique ($B < B_{\mathrm{B}}$) ; (b) paroi d'interface ($B > B_{\mathrm{B}}$) ; (c) aimantation saturée ($B \to \infty$)). 154
5.6 Cycles d'hystérésis de super-réseaux $DyFe_2/YFe_2$ à $T = 1\mathrm{K}$, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy ((a) $e_{\mathrm{DyFe_2}}/e_{\mathrm{YFe_2}} = 2$; (b) $e_{\mathrm{DyFe_2}}/e_{\mathrm{YFe_2}} = 1$; (c) $e_{\mathrm{DyFe_2}}/e_{\mathrm{YFe_2}} = 0,5$; (d) $e_{\mathrm{DyFe_2}}/e_{\mathrm{YFe_2}} = 0,25$). 155
5.7 Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau $\left[\mathrm{DyFe_2}(2)/\mathrm{YFe_2}(1)\right]$ à $T = 1\mathrm{K}$, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy. 157
5.8 (a) Evolution de l'angle entre l'aimantation d'un plan et le champ magnétique en fonction de la profondeur par rapport à l'interface pour différentes valeurs du champ magnétique pour le super-réseau $\left[\mathrm{DyFe_2}(1)/\mathrm{YFe_2}(1)\right]$. (b) Représentation du profil de l'aimantation pour différentes valeurs du champ magnétique décroissant. 158

5.9 (a) Cycles d'hystérésis des sous-réseaux du super-réseau $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$ à $T = 1$K, avec un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation du Dy. (b) Evolution de l'angle entre l'aimantation d'un plan et le champ magnétique en fonction de la profondeur par rapport à l'interface pour différentes valeurs du champ magnétique pour le super-réseau $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$. 159
5.10 Représentation schématique de l'ordre magnétique en fonction du champ magnétique appliqué 161
5.11 Cycles d'hystérésis de super-réseaux $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(4)\right]$ simulés (a,b) et expérimentaux (c,d) [Dumesnil 2005] ((a,c) aimantation totale à $T = 1$K et $T = 200$K ; (b) aimantation des sous-réseaux d'Y et de Dy à $T = 200K$) ; (d) signal XMCD au seuil L_3 de l'Y et du Dy à $T = 200$K. 162
5.12 Cycles d'hystérésis à $T = 1$K et $T = 200$K ((a) super-réseau $\left[DyFe_2(2)/YFe_2(1)\right]$; (b) super-réseau $\left[DyFe_2(1)/YFe_2(1)\right]$). 163
5.13 Cycles d'hystérésis à $T = 12$K et $T = 300$K d'un super-réseau [100Å $DyFe_2$/130Å YFe_2] [Dumesnil 2000]. 163

A.1 Définition de l'angle θ entre le moment magnétique de Dy et la direction de facile aimantation (z). 170
A.2 Définition des angles $\pi - \theta$ entre le moment magnétique de Dy et le champ magnétique aimantation et des angles α_i et β_i de la direction aléatoire de facile aimantation ($\mathbf{n}_i$). 171

Bibliographie

[Aharoni 1968] A. Aharoni, 'Remarks on the application of micromagnetics to a boundless plate.', *IEEE Trans. Magnetics.*, **4**, (1968), 720.

[Aharoni 2000] A. Aharoni, *Introduction of the theory of ferromagnetism*, Oxford University Press, 2000.

[Beaujour 2001*a*] 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, 'Effect of exchange springs on the coercivity of $DyFe_2$-YFe_2 superlattices.' *J. Magn. Magn. Mater.*, **226**, (2001), 1714.

[Beaujour 2001*b*] 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, 'Negative coercivity in epitaxially grown (110) $DyFe_2/YFe_2$ superlattices.' *Appl. Phys. Lett.*, **78**, (2001), 964.

[Binder 1978] K. Binder and D. W. Heermann, *Monte Carlo simulation in statistical physics*, Springer, Berlin, 1978.

[Bordel 1997] C. Bordel, 'Etude de la modification par nitruration des propriétés magnétiques des alliages amorphes TbFe et TbFeCo.' Thèse de doctorat, Université de Grenoble I (1997).

[Bowden 2003] 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, 'Modeling the magnetic properties of $DyFe_2/YFe_2$ superlattices.', *J. Appl. Phys.*, **93**, (2003), 6480.

[Bowden 1968] G. J. Bowden, D. S. P. Bunbury, A. P. Guimarães and R. E. Snyder, 'Mössbauer studies of the cubic Laves iron-rare-earth intermetallic compounds.', *J. Phys. C : Solid State Phys.*, **1**, (1968), 1376.

[Briss 1966] R. Briss, *Symmetry and Magnetism*, Elsevier, Amsterdam, 1966.

[Brooks 1993] M. S. S. Brooks and B. Johansson, *Magnetic Materials*, Elsevier Science, North Holland, Amsterdam, 1993.

[Brooks 1991*a*] M. S. S. Brooks, L. Nordström and B. Johansson, 'Magnetism of RFe_2 compounds.', *J. Appl. Phys.*, **69**, (1991), 5683.

[Brooks 1991*b*] M. S. S. Brooks, L. Nordström and B. Johansson, 'Rare-earth transition-metal intermetallics.', *Physica B*, **172**, (1991), 95.

[Brown 1957] W. Brown, 'Criterion for uniform micromagnetization.', *Phys. Rev.*, **105**, (1957), 1479.

[Brown 1963] W. F. Brown, 'Thermal Fluctuations of a Single-Domain Particle.', *Phys. Rev.*, **130**, (1963), 1677.

[Camley 1989] R. Camley, 'Properties of magnetic superlattices with antiferromagnetic interfacial coupling : Magnetization, susceptibility, and compensation points.', *Phys. Rev. B*, **39**, (1989), 12316.

[Camley 1988] R. Camley and D. Tilley, 'Phase transitions in magnetic superlattices.', *Phys. Rev. B*, **37**, (1988), 3413.

[Campbell 1972] I. A. Campbell, 'Indirect exchange for rare earths in metals.', *J. Phys. F : Met. Phys.*, **2**, (1972), L47.

[Chaudhari 1973] P. Chaudhari, J. J. Cuomo and R. J. Gambino, 'Amorphous Metallic Films for Bubble Domain Applications.', *IBM J. Res. Develop.*, **11**, (1973), 66.

[Chen 1986] C. W. Chen, *Magnetism and metallurgy of soft magnetic materials*, Dover publication, New York, 1986.

[Cherifi 1990] K. Cherifi, P. Donovan, C. Dufour, P. Mangin and G. Marchal, 'Microstructural observations of rare-earth/iron multilayers.' *Phys. Stat. Sol. A*, **122**, (1990), 311.

[Chi 1977] M. Chi and R. Alben, 'Hysteresis curves and magnetization processes in a model for an amorphous magnet with random uniaxial anisotropy.', *J. Appl. Phys.*, **48**, (1977), 2987.

[Chubykalo 2003] O. Chubykalo, U. Nowak, R. Smirnov-Rueda, M. A. Wongsam, R. W. Chantrell and J. M. Gonzalez, 'Monte Carlo technique with a quantified time step : Application to the motion of magnetic moments.', *Phys. Rev. B*, **67**, (2003), 064422.

[Coey 1978] J. M. D. Coey, 'Amorphous Magnetic Order.', *J. Appl. Phys.*, **49(3)**, (1978), 1646.

[Coey 1976] J. M. D. Coey, J. Chappert, J. P. Rebouillat and T. S. Wang, 'Magnetic Structure of an Amorphous Rare-Earth Transition-Metal Alloy.' *Phys. Rev. Lett*, **36**, (1976), 1061.

[Dantas 2004] A. L. Dantas, S. R. Vieira and A. S. Carriço, 'Stability of ferrimagnetic multilayers.', *Sol. State Comm.*, **132**, (2004), 383.

[Dieny 1991] B. Dieny, D. Givord and J. M. B. Ndjaka, 'Original magnetization processes in the artificial ferrimagnet Y-Co/Gd-Co/Y-Co.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **93**, (1991), 503.

[van Dover 1985] R. B. van Dover, M. Hong, E. M. Gyorgy, J. F. Dillon and S. D. Albiston, 'Intrinsic anisotropy of Tb-Fe films prepared by magnetron Co sputtering.', *J. Appl. Phys.*, **57**, (1985), 3897.

[Driouch 1995] L. Driouch, 'Etude de l'anisotropie aléatoire et de la brisure du couplage antiferromagnétique dans les alliages amorphes ($MT_{80-}R_xB_{20}$ où MT=Fe,Co et R=Ho,Dy) élaborés par hypertrempe.' Thèse de doctorat, Université de Rouen (1995).

[Duc 1997] N. H. Duc, *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, Elsevier Science, Amsterdam, 1997.

[Dumesnil 1995] K. Dumesnil, 'Couplage magnétique et effets magnetostrictifs dans des films epitaxies et superreseaux à base de terres rares.' Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine (1995).

[Dumesnil 2002] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin and A. Rogalev, 'Magnetic springs in exchange-coupled $DyFe_2/YFe_2$ superlattices : An element-selective x-ray magnetic circular dichroïsm study.', *Phys. Rev. B*, **65**, (2002), 094401.

[Dumesnil 2005] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, A. Rogalev and F. Wilhelm, 'Temperature dependence in the magnetization reversal process of $DyFe_2/YFe_2$ exchange-coupled superlattices.', *J. Phys. : Condens. Matter*, **17**, (2005), L215.

[Dumesnil 2000] K. Dumesnil, M. Dutheil, C. Dufour and P. Mangin, 'Spring magnet behavior in $DyFe_2/YFe_2$ Laves phases superlattices.', *Phys. Rev. B*, **62**, (2000), 1136.

[Egami 1984] T. Egami, 'Magnetic amorphous alloys : physics and technological applications.' *Rep. Prog. Phys.*, **47**, (1984), 1601.

[Ferer 1986] M. Ferer and A. Hamid-Aidinejad, 'Three-dimensional Heisenberg ferromagnet : A series investigation.', *Phys. Rev. B*, **34**, (1986), 6481.

[Ferrer 1978] R. Ferrer, R. Harris, D. Zobin and M. Zukermann, 'High Field magnetization and magneto-resistance of amorphous alloys containing rare earth atoms.', *Sol. State Comm.*, **16**, (1978), 451.

[Fitzsimmons 2006] M. R. Fitzsimmons, S. Park, K. Dumesnil, C. Dufour, R. Pynn, J. A. Borchers, J. J. Rhyne and P. Mangin, 'Vector magnetization depth profile of a Laves-phase exchange-coupled superlattice obtained using a combined approach of micromagnetic simulation and neutron reflectometry.', *Phys. Rev. B*, **73**, (2006), 134413.

[Fleury-Frenette 2000] K. Fleury-Frenette, S. S. Dhesi, G. van der Laan, D. Strivay, G. Weber and J. Delwiche, 'Characteristics of the iron moment in Dy-Fe and Dy-FeCo amorphous alloys studied by X-ray magnetic circular dichroism.' *J. Magn. Magn. Mater.*, **220**, (2000), 45.

[Franse 1993] J. J. M. Franse and R. J. Radwanski, *Handbook of Magnetic Materials*, Elsevier Science, Amsterdam, 1993.

[Freeman 1987] A. J. Freeman and C. L. Fu, 'Strongly enhanced 2D magnetism at surfaces and interfaces.' *J. Appl. Phys.*, **61**, (1987), 3356.

[Freeman 1962] A. J. Freeman and R. E. Watson, 'Theoretical investigation of some magnetic and spectroscopic properties of rare-earth ions.' *Phys. Rev.*, **127**, (1962), 2058.

[Frei 1957] E. Frei, S. Shtrikman and D. Treves, 'Critical size and nucleation field of ideal ferromagnetic particles.', *Phys. Rev.*, **106**, (1957), 446.

[Fu 1991] H. Fu, M. Mansuripur and P. Meystre, 'Generic source of perpendicular anisotropy in amorphous rare-earth-transition-metal films.', *Phys. Rev. Lett.*, **66**, (1991), 1086.

[Gambino 1978] R. J. Gambino and J. J. Cuomo, 'Selective Resputtering-Induced Anisotropy in Amorphous Films.', *J. Vac. Sci. Technol.*, **15**, (1978), 296.

[Gangulee 1978] A. Gangulee and R. J. Kobliska, 'Mean field analysis of the magnetic properties of amorphous transition-metal - rare-earth alloys.' *J. Appl. Phys.*, **49**, (1978), 4896.

[de Gennes 1959] P. G. de Gennes, 'Sur le magnétisme des terres rares.', *C. R. Acad. Sci.*, **247**, (1959), 1836.

[Grinstaff 1993] M. W. Grinstaff, M. B. Salamon and K. S. Suslick, 'Magnetic properties of amorphous iron.', *Phys. Rev. B.*, **48**, (1993), 269.

[Gu 1990] B. Gu, H. Zhai and B. Shen, 'Influence of a small addition of Nd on the magnetic properties of amorphous Fe-B alloys.', *Phys. Rev. B*, **42**, (1990), 10648.

[Handrich 1969] K. Handrich, 'A simple model for amorphous and liquid ferromagnets.' *Phys. Stat. Sol. B*, **32**, (1969), K55.

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

[Hansen 1991] P. Hansen, S. Klahn, C. Clausen, G. Much and K. Witter, 'Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Dy, Ho, Fe, Co.', *J. Appl. Phys.*, **69**, (1991), 3194.

[Harris 1973] R. Harris, M. Plischke and M. Zuckermann, 'New model for amorphous magnetism.', *Phys. Rev. Lett.*, **31**, (1973), 160.

[Harris 1992] V. G. Harris, K. D. Aylesworth, B. N. Das, W. T. Elam and N. C. Koon, 'Structural Origins of Magnetic Anisotropy in Sputtered Amorphous Tb-Fe films.', *Phys. Rev. Lett.*, **69**, (1992), 1939.

[Hasegawa 1974] R. Hasegawa, B. Argyle and L. Tao, 'Temperature dependence of magnetization in amorphous Gd-Co-Mo films.' *AIP Conf. Proc.*, **24**, (1974), 110.

[Hatta 1985] S. Hatta, T. Mizoguchi and N. Watanabe, 'Structure and local anisotropy of amorphous Tb-Fe alloys.', *Proceedings of the Fourth International Conference on Rapidly Quenched Metals*, **7**, (1985), 1613.

[Heermann 1990] D. Heermann, *Computer Simulation Methods*, Springer-Verlag, Berlin, 1990.

[Heiman 1976*a*] N. Heiman, K. Lee and R. I. Potter, 'Exchange coupling in amorphous rare earth-iron alloys.' *AIP Conf. Proc.*, **29**, (1976), 130.

[Heiman 1976*b*] N. Heiman, K. Lee, R. I. Potter and S. Kirkpatrick, 'Modified mean-field model for rare-earth-iron amorphous alloys.', *J. Appl. Phys.*, **47**, (1976), 2634.

[Heisenberg 1928] W. Heisenberg, 'Zur Theorie des Ferromagnetismus.', *Z. Physik*, **49**, (1928), 619.

[Hellman 1999] F. Hellman, A. Shapiro, E. Abarra, R. Robinson, R. Hjelm, P. Seeger, J. Rhyne and J. Suzuki, 'Long ferromagnetic correlation length in amorphous $TbFe_2$.', *Phys. Rev. B*, **59**, (1999), 11408.

[Herpin 1968] A. Herpin, *Théorie du magnétisme*, Presses Universitaire de France, 1968.

[Hinzke 2000*a*] D. Hinzke and U. Nowak, 'Magnetic relaxation in a classical spin chain as model for nanowires.', *Phys. Rev. B*, **61**, (2000), 6734.

[Hinzke 2000*b*] D. Hinzke and U. Nowak, 'Magnetisation switching in nanowires : Monte Carlo study with fast Fourier transformation for dipolar fields.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **221**, (2000), 365.

[Hirscher 1990] M. Hirscher, T. Egami and E. E. Marinero, 'Atomistic study of magneto-optical amorphous thin films using synchrotron radiation.', *J. Appl. Phys.*, **67**, (1990), 4932.

[Hoare 1979] M. Hoare, 'Structure and dynamics of simple microclusters.' *Adv. Chem. Phys.*, **40**, (1979), 49.

[Honda 1991] S. Honda, T. Kimura, M. Nawate and T. Kusuda, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **15**, (1991), 61.

[Honda 1994] S. Honda and M. Nawate, 'Magnetization characteristics and Curie temperature of Y/Fe and Tb/Fe multilayers.' *J. Magn. Magn. Mater.*, **136**, (1994), 163.

[Hwang 1997] W. Hwang and H. Shieh, 'Magnetic exchange coupling in (Dy,Tb)FeCo magneto-optical recording films.', *J. Appl. Phys.*, **81**, (1997), 2745.

[Ishio 1993] S. Ishio, N. Obara, S. Negami, T. Miyazaki, T. Kamimori, H. Tange and M. Goto, 'Magnetic properties and exchange interactions in $(Gd_xFe_{1-x})_{80}Si_{12}B_8$ amorphous alloys.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **119**, (1993), 271.

[Jaswal 1992] S. S. Jaswal, 'Comment on "Generic Source of Perpendicular Anisotropy in Amorphous Rare-Earth-Transition-Metal Films".', *Phys. Rev. Lett.*, **68**, (1992), 1440.

[Kasuya 1956] T. Kasuya, 'A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener's Model.', *Prog. Theor. Phys.*, **16**, (1956), 45, (Kyoto).

[Katayama 1977] T. Katayama, M.Hirano, Y. Koizumi, K. Kawanishi and T. Tsushima, 'Different origin of the perpendicular anisotropy in amorphous Gd-Fe from Gd-Co films.' *IEEE Trans. Magn.*, **13**, (1977), 1603.

[Kübler 1981] J. Kübler, 'Magnetic moments of ferromagnetic and antiferromagnetic bcc and fcc iron.' *Phys. Lett.*, **81**, (1981), 81.

[Kirby 1991] R. D. Kirby, J. X. Shen, Z. S. Shan and D. J. Sellmyer, 'Studies of domain dynamics in amorphous Dy/Fe multilayers.', *J. Appl. Phys.*, **70**, (1991), 6200.

[Kirkpatrick 1983] S. Kirkpatrick, C. Gelatt and M. Vecchi, 'Simulated annealing.', *Science*, **220**, (1983), 671.

[Kittel 1972] C. Kittel, *Physique de l'état solide.*, Dunod, 1972.

[Koehler 1972] W. Koehler, *Magnetic structures of rare earth metals and alloys*, vol. 81-128, Plenum Press, London and New York, 1972.

[Trémolet de Lacheisserie 2000*a*] E. d. Trémolet de Lacheisserie, *Magnétisme. I Fondements*, EDP Sciences, 2000*a*.

[Trémolet de Lacheisserie 2000*b*] E. d. Trémolet de Lacheisserie, *Magnétisme. II Matériaux et applications*, EDP Sciences, 2000*b*.

[Landau 2000] D. Landau and K. Binder, *A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics*, Cambridge University Press, 2000.

[Lassri 1990] H. Lassri, 'Elaboration et études des propriétés magnétiques des rubans amorphes métaux de transitions - terres rares - métalloides.', Thèse de doctorat, Université de Rouen (1990).

[Lassri 1996] H. Lassri, R. Krishnan and M. Baran, 'Magnetisation studies in Tb–Fe/Pt single and multilayers.' *J. Magn. Magn. Mater.*, **153**, (1996), 5.

[Ledue 2004] D. Ledue, P. E. Berche and R. Patte, 'Magnetisation switching in a ferromagnetic Heisenberg nanoparticle with unixaxial anisotropy : a Monte Carlo investigation.', *Physica B*, **348**, (2004), 410.

[Lee 1975] K. Lee and N. Heiman, 'Magnetism in rare earth-transition metal amorphous alloy films.', *AIP Conf. Proc.*, **24**, (1975), 108.

[Long 1998] G. L. Long, D. Hautot, Q. A. Pankhurst, D. Vandormael, F. Grandjean, J. P. Gaspard, V. Briois, T. Hyeon and K. S. Suslick, 'Mössbauer-effect and x-ray-absorption spectral study of sonochemically prepared amorphous iron.', *Phys. Rev. B*, **57**, (1998), 10716.

[Lyberatos 1996] A. Lyberatos, J. Earl and R. W. Chantrell, 'Model of thermally activated magnetization reversal in thin films of amorphous rare-earth-transition-metal alloys.', *Phys. Rev. B*, **53**, (1996), 5493.

[Mansuripur 1986] M. Mansuripur and M. F. Ruane, 'Mean-field analysis of amorphous rare earth-transition metal alloys for thermomagnetic recording.', *IEEE Trans. Magn.*, **22**, (1986), 33.

[Mergel 1993] D. Mergel, H. Heitmann and P. Hansen, 'Pseudocrystalline model of the magnetic anisotropy in amorphous rare-earth-transition-metal thin films.', *Phys. Rev. B*, **47**, (1993), 882.

[Metropolis 1953] N. Metropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller and E. Teller, 'Equations of state calculations by fast computing machines.', *J. Chem. Phys.*, **21**, (1953), 1087.

[Mimura 1976] Y. Mimura and N. Imamura, 'Magnetic properties of amorphous Tb-Fe thin films prepared by rf sputtering.', *Appl. Phys. Lett.*, **28**, (1976), 746.

[Mimura 1978] Y. Mimura, N. Imamura, T. Kobayashi, A. Okada and Y. Kushiro, 'Magnetic properties of amorphous alloy films of Fe with Gd, Tb, Dy, Ho, or Er.', *J. Appl. Phys.*, **49**, (1978), 1208.

[Mizoguchi 1979] T. Mizoguchi and G. S. Cargill, 'Magnetic anisotropy from dipolar interactions in amorphous ferrimagnetic alloys.', *J. Appl. Phys.*, **50**, (1979), 3570.

[Moorjani 1984] K. Moorjani and J. M. D. Coey, *Magnetic glasses*, Elsevier, Amsterdam, 1984.

[Néel 1936] L. Néel, *Ann. Phys. (Paris)*, **5**, (1936), 232.

[Nightingale 1988] M. P. Nightingale and H. W. J. Blöte, 'Monte Carlo calculation of free energy, critical point, and surface critical behavior of three-dimensional Heisenberg ferromagnets.', *Phys. Rev. Lett.*, **60**, (1988), 1562.

[Nowak 2000] U. Nowak, R. W. Chantrell and E. C. Kennedy, 'Monte Carlo simulation with time step quantification in terms of langevin dynamics.', *Phys. Rev. Lett*, **84**, (2000), 163.

[Nowak 1999] U. Nowak and D. Hinzke, 'Magnetization switching in small ferromagnetic particles : Nucleation and coherent rotation.', *J. Appl. Phys.*, **85**, (1999), 4337.

[Oderno 1996] V. Oderno, C. Dufour, K. Dumesnil, P. Bauer, P. Mangin and G. Marchal, 'Magnetic anisotropy in (110) epitaxial $DyFe_2$ Laves phase.', *Phys. Rev. B*, **54**, (1996), R17375.

[O'Handley 1987] R. C. O'Handley, 'Physics of ferromagnetic amorphous alloys.', *J. Appl. Phys.*, **62**, (1987), R15.

[Ohnishi 1985] S. Ohnishi, C. L. Fu and A. J. Freeman, 'Local spin density total energy study of surface magnetism : V (100).' *J. Magn. Magn. Mater.*, **50**, (1985), 161.

[Rhyne 1974] J. J. Rhyne, J. H. Schelleng and N. C. Koon, 'Anomalous magnetization of amorphous $TbFe_2$, $GdFe_2$, and YFe_2.', *Phys. Rev. B*, **10**, (1974), 4672.

[Richomme 1996] F. Richomme, B. Scholz, R. A. Brand, W. Keune and J. Teillet, 'Modulated structure and magnetic properties of UHV deposited Fe/Tb multilayers.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **156**, (1996), 195.

[Ritter 1989] C. Ritter, 'Polarised neutron study of the magnetic ordering in the simple alloy YFe_2.' *J. Phys. : Condens. Matter*, **1**, (1989), 2765.

[Robinson 1989] C. J. Robinson, M. G. Samant and E. E. Marinero, 'EXAFS study of the atomic structure of amorphous $Tb_{20}Fe_{80}$.', *Appl. Phys. A*, **49**, (1989), 619.

[Ruderman 1954] M. A. Ruderman and C. Kittel, 'Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons.', *Phys. Rev.*, **96**, (1954), 99.

[Sakurai 1994] Y. Sakurai, H. Kitatani, T. Ishiguro and Y. Ichinose, 'An investigation of exchange-coupled films by 0-K Monte Carlo simulation using the classical Heisenberg model.' *IEEE Trans. Jour. Magn. Jpn.*, **9**, (1994), 247.

[Sato 1986] N. Sato, 'Magnetic properties of amorphous Tb-Fe thin films with an artificially layered structure.', *J. Appl. Phys.*, **59**, (1986), 2514.

[Sato 1987] N. Sato and K. Habu, 'Amorphous rare-earth-transition-metal thin films with an artificially layered structure.', *J. Appl. Phys.*, **61**, (1987), 4287.

[Sawicki 2000*a*] M. Sawicki, G. J. Bowden, P. A. J. de Groot, , B. D. Rainford, R. C. C. Ward and M. R. Wells, 'Magnetic properties of epitaxial (110) multilayer films of $DyFe_2$ and YFe_2.', *J. Appl. Phys.*, **87**, (2000), 6839.

[Sawicki 2000*b*] 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, 'Exchange springs in antiferromagnetically coupled $DyFe_2$-YFe_2 superlattices.', *Phys. Rev. B*, **62**, (2000), 5817.

[Sellmyer 1985] D. J. Sellmyer and S. Nafis, 'Random magnetism in amorphous rare-earth alloys.' *J. Appl. Phys.*, **57**, (1985), 3584.

[Shan 1988] Z. S. Shan, S. Nafis, K. D. Aylesworth and D. J. Sellmyer, 'Magnetic properties, anisotropy, and microstructure of sputtered rare-earth iron multilayers.', *J. Appl. Phys.*, **63**, (1988), 3218.

[Shan 1990*a*] Z. S. Shan and D. J. Sellmyer, 'Magnetism of rare-earth - transition-metal nanoscale multilayers. I. Experiments on Dy/Co, Dy/Fe, and Tb/Fe.', *Phys. Rev. B.*, **42**, (1990), 10433.

[Shan 1990*b*] Z. S. Shan, D. J. Sellmyer, S. S. Jaswal, Y. J. Wang and J. X. Shen, 'Magnetism of rare-earth - metal nanoscale multilayers. II. Theorical analysis of magnetization and perpendicular magnetic anisotropy.' *Phys. Rev. B.*, **42**, (1990), 10446.

[Shinjo 1989] T. Shinjo, K. Yoden, N. Hosoito, J. Sanchez and J. Friedt, 'Magnetism of Fe/Dy multilayers studied from Mössbauer spectroscopy.', *J. Phys. Soc. Jpn.*, **58**, (1989), 4255.

[Smirnov-Rueda 2000] R. Smirnov-Rueda, O. Chubykalo, U. Nowak, R. W. Chantrell and J. M. Gonzalez, 'Real time quantification of Monte Carlo steps for different time scales.', *J. Appl. Phys.*, **87**, (2000), 4798.

[Stevens 1952] K. H. W. Stevens, 'Matrix Elements and Operator Equivalents Connected with the Magnetic Properties of Rare Earth Ions.', *Proc. Phys. Soc.*, **A65**, (1952), 209.

[Stoner 1948] E. Stoner and E. Wohlfarth, 'A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys.', *Philos. Trans. Roy. Soc. London A*, **240**, (1948), 599.

[Suzuki 1987] Y. Suzuki, J. Haimovich and T. Egami, 'Bond-orientational anisotropy in metallic glasses observed by X-ray diffraction.', *Phys. Rev. B*, **35**, (1987), 2162.

[Takagi 1979] H. Takagi, S. Tsunashima, S. Uchiyama and T. Fujii, 'Stress induced anisotropy in amorphous Gd-Fe and Tb-Fe sputtered films.', *J. Appl. Phys.*, **50**, (1979), 1642.

[Talbot 2008] E. Talbot, P. E. Berche and D. Ledue, 'Monte Carlo investigation of the magnetic anisotropy in Fe/Dy multilayers.', *soumis à J. Magn. Magn. Mater.*

[Talbot 2007] E. Talbot, P. E. Berche, D. Ledue and R. Patte, 'Magnetic properties of Fe/Dy multilayers : A Monte Carlo investigation.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **316**, (2007), 281.

[Tamion 2005] A. Tamion, 'L'anisotropie magnétique dans les multicouches Fe/Dy.', Thèse de doctorat, Université de Rouen (2005).

[Tamion 2007] A. Tamion, F. Ott, P. E. Berche, E. Talbot, C. Bordel and D. Blavette, 'Magnetization depth profile of (Fe/Dy) multilayers.', *soumis à J. Magn. Magn. Mater.*

[Tappert 1996] J. Tappert, W. Keune, R. A. Brand, P. Vulliet, J.-P. Sanchez and T. Shinjo, 'Magnetism and structure of Dy/Fe multilayers studied by ^{57}Fe and ^{161}Dy Mössbauer spectroscopy.', *J. Appl. Phys.*, **80**, (1996), 4503.

[Taylor 1977] R. C. Taylor and A. Gangulee, 'Magnetic anisotropy in evaporated amorphous films of the ternary system $Gd_x(Fe_{1-y}Co_y)_{1-x}$.', *J. Appl. Phys.*, **48**, (1977), 358.

[Trhlik 1996] M. Trhlik, K. Mibu, P. D. Moor, P. Pari, M. Rotter, N. Severijns, T. Shinjo, A. van Geert and L. Vanneste, 'Evidence for perpendicular magnetic anisotropy of Tb in Tb/Fe multilayers.', *J. Phys. : Condens. Matter.*, **8**, (1996), 8907.

[Trhlik 1997] M. Trhlik, P. D. Moor, K. Mibu, N. Severijns, T. Shinjo, A. V. Geert and L. Vanneste, 'Perpendicular magnetic anisotropy of Tb magnetic moments in Tb/Fe multilayers.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **165**, (1997), 408.

[Tsuei 1976] C. C. Tsuei and H. Lilienthal, 'Magnetization distribution in an amorphous ferromagnet.', *Phys. Rev. B*, **13**, (1976), 4899.

[Tsunashima 1978] S. Tsunashima, H. Takagi, K. Kamegaki, T. Fujii and S. Uchiyama, 'Magnetoelastic contribution to perpendicular anisotropy in amorphous Gd-Co and Gd-Fe films.' *IEEE Trans. Magn.*, **14**, (1978), 844.

[Veiller 1998] L. Veiller, 'Etude de multicouches Fer/Terbium : simulation numérique Monte Carlo de propriétés magnétiques et analyse structurale par sonde atomique.' Thèse de doctorat, Université de Rouen (1998).

[Veiller 2000] L. Veiller, D. Ledue and J. Teillet, 'Monte Carlo investigation of transition and compensation temperatures of Fe/Tb multilayers.', *J. Appl. Phys.*, **87**, (2000), 432.

[van Vleck 1937] J. H. van Vleck, 'On the Anisotropy of Cubic Ferromagnetic Crystals.', *Phys. Rev.*, **52**, (1937), 1178.

[Vogel 1995] J. Vogel, M. Sacchi, R. J. H. Kappert, J. C. Fuggle, J. B. Goedkoop, N. B. Brookes, G. van der Laan and E. E. Marinero, 'Magnetic properties of Fe and Tb in Tb_xFe_{1-x} amorphous films studied with soft X-ray circular and linear dichroism.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **150**, (1995), 293.

[Wang 2001] L. Wang, J. Ding, H. Kong, Y. Li and Y. Feng, 'Monte Carlo simulation of a cluster system with strong interaction and random anisotropy.', *Phys. Rev. B*, **64**, (2001), 214410.

[Wang 1993] Y. Wang, C. Luo, W. Kleemann, B. Scholz, R. Brand and W. Keune, 'The variation of anisotropy and magnetization orientation with temperature in Tb/Fe multilayers.', *J. Appl. Phys.*, **73**, (1993), 6907.

[Wille 1985] L. Wille and J. Vennick, 'Electrostatic energy minimisation by simulated annealing.' *J. Phys. A : Math. Gen.*, **18**, (1985), L1113.

[Wohlfarth 1980] E. Wohlfarth, *Ferromagnetic Materials : A handbook on the properties of magnetically ordered substances.*, Elsevier, Amsterdam, 1980.

[Worledge 2004] D. C. Worledge, 'Spin flop switching for magnetic random access memory.', *Appl. Phys. Lett.*, **84**, (2004), 4559.

[Yamada 2002] K. Yamada, A. Fujita, M. Ohta and K. Fukamichi, 'Disappearance of perpendicular magnetic anisotropy in amorphous Tb-Fe alloys.', *J. Magn. Magn. Mater.*, **239**, (2002), 412.

[Yamauchi 1988] K. Yamauchi, K. Habu and N. Sato, 'Magnetic structure of Tb-Fe films with an artificially layered structure.', *J. Appl. Phys.*, **64**, (1988), 5748.

[Yan 1991] X. Yan, M. Hirscher, T. Egami and E. E. Marinero, 'Direct observation of anelastic bond-orientational anisotropy in amorphous $Tb_{26}Fe_{62}Co_{12}$ thin films by X-ray diffraction.', *Phys. Rev. B*, **43**, (1991), 9300.

[Yoden 1988] K. Yoden, N. Hosoito, K. Kawaguchi, K. Mibu and T. Shinjo, 'Magnetic Properties of Fe/Dy artificial superstructured films.', *Jap. J. Appl. Phys.*, **27**, (1988), 1680.

[Yosida 1957] K. Yosida, 'Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys.', *Phys. Rev.*, **106**, (1957), 893.

[Zwingman 1976] R. Zwingman, W. L. Wilson and H. C. Bourne, 'Magnetic properties of bias-sputtered $Gd_{1-x}Fe_x$ amorphous films.' *AIP Conf. Proc.*, **34**, (1976), 334.

Résumé

Les multicouches Fe/Dy présentent des propriétés magnétiques particulières en fonction de la nature des interfaces (rugosité et interdiffusion aux interfaces). Ainsi, l'apparition d'une anisotropie magnétique perpendiculaire au plan des couches apparaît fortement corrélée à la formation d'un alliage amorphe Fe-Dy à l'interface. L'objectif de ce travail est d'étudier les propriétés magnétiques de multicouches amorphes Fe/Dy par simulations Monte Carlo pour différents types d'interfaces. Nous avons considéré un modèle d'anisotropie magnétique basé sur des résultats expérimentaux qui comprend une faible proportion de sites caractérisés par une direction d'anisotropie magnétique en moyenne uniaxiale, les autres sites ayant une direction d'anisotropie aléatoire. Nous avons mis en évidence l'existence d'un profil d'aimantation inhomogène suivant l'épaisseur de la multicouche fortement dépendant du profil de concentration. La dispersion des moments magnétiques de Dy est plus faible dans le cas d'un profil diffus, contrairement à celle des moments magnétiques de Fe. La simulation de cycles d'hystérésis nous a permis d'obtenir un bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux. En particulier, notre modèle d'anisotropie permet de mettre en évidence l'ouverture des cycles pour un champ appliqué dans le plan des couches en raison de l'influence de l'anisotropie aléatoire. Lorsque le champ appliqué est perpendiculaire au plan des couches, les cycles d'hystérésis obtenus dans le cas du profil diffus sont caractéristiques d'une anisotropie perpendiculaire.

Mots Clés : multicouches fer/dysprosium, ferrimagnétisme, amorphe, anisotropie magnétique perpendiculaire, paroi de domaines magnétiques d'interface, simulation Monte Carlo, cycle d'hystérésis, spins de Heisenberg.

Abstract

Fe/Dy multilayers exhibit interesting magnetic properties depending on the interface nature (roughness and interface diffusion). In particular, they may exhibit a perpendicular magnetic anisotropy which is correlated to the existence of an Fe-Dy alloy at the interface. The aim of this work is to investigate the magnetic properties of amorphous Fe/Dy multilayers by Monte Carlo simulations for different concentration profiles. Our model is based on a face centered cubic lattice where each node is a classical Heisenberg spin. We have considered an anisotropy model based on a small concentration of uniaxial easy axis (in average), the other have a random easy axis. We evidence an inhomogeneous magnetisation profile related to the concentration profile. The Dy magnetic moment dispersion is lower in the case of diffuse concentration profile, contrary to Fe magnetic moment dispersion. Hysteresis loops simulation give a good agreement with experimental results. In particular, our anisotropy model allow an explanation of the hard direction hysteresis loop opening. When the field is applied perpendicular to the layer, the hysteresis loops of the diffuse profile are characteristic of a perpendicular anisotropy.

Keywords : iron/dysprosium multilayers, ferrimagnetism, amorphous, perpendicular magnetic anisotropy, interfacial magnetic domain wall, Monte Carlo simulation, hysteresis loop, Heisenberg spin.