

THESE

présentée par

Jean-Eric WEGROWE

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR
DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER
Grenoble**

(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 30 mars 1992)

Spécialité : **Physique**

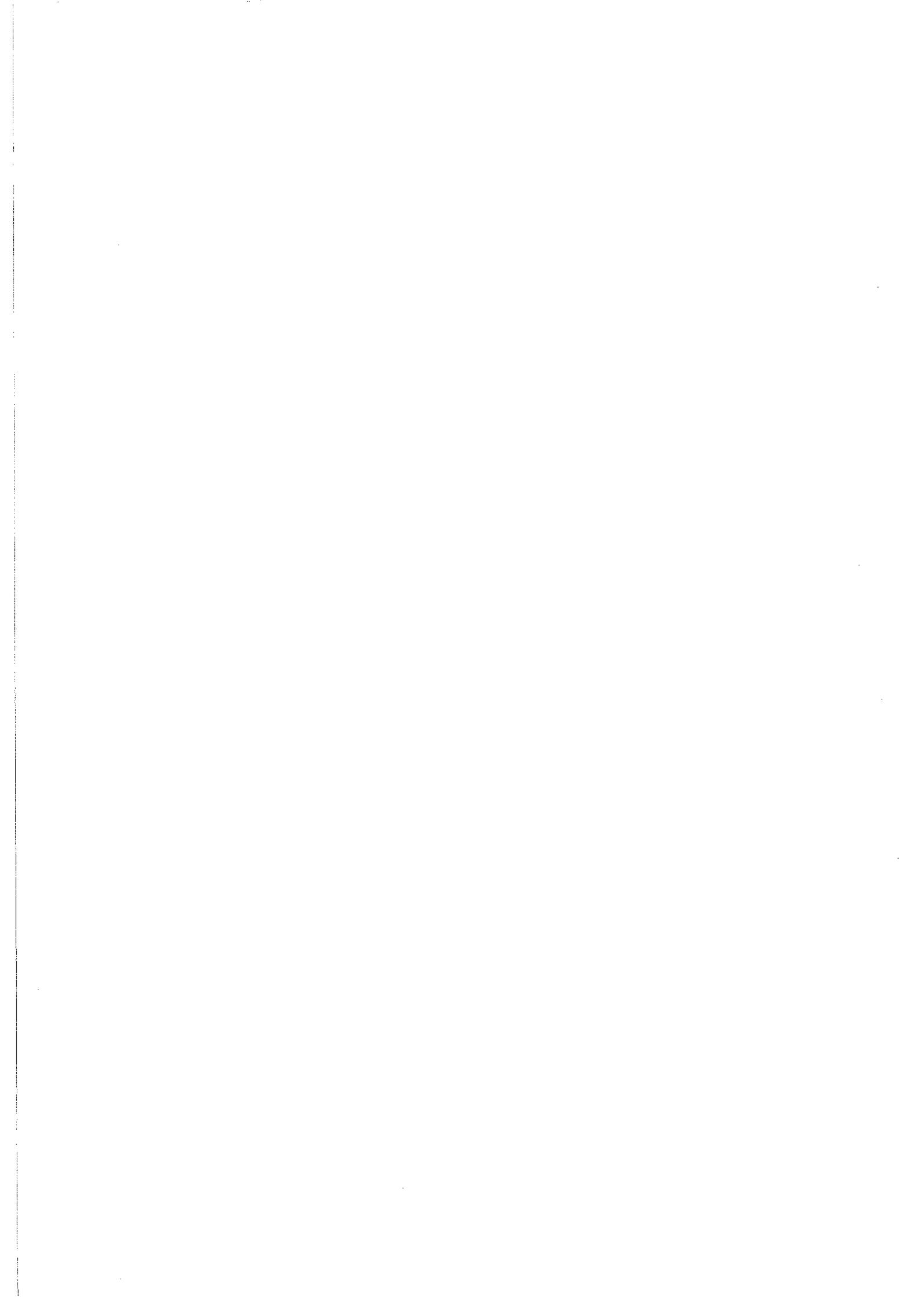
<p>CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA RELAXATION MAGNETIQUE DANS LES NANOSTRUCTURES</p>
--

Date de soutenance
le **07 Juin 1996**

COMPOSITION DU JURY

P. Nozières (président)
H. Bouchiat
M. Rubí
J-Ph. Ansermet
J-L. Porteseil
S. Vitale
B. Barbara

Thèse préparée au Laboratoire de Magnétisme Louis Néel,
CNRS-Grenoble
(Laboratoire associés à l'Université Joseph Fourier-Grenoble)



Remerciements

Je voudrais remercier en tout premier lieu P. Nozières, pour avoir accepté de présider ce jury et pour m'avoir accordé de son temps, afin de tenter de m'inculquer un certain sens de la rigueur dans l'investigation scientifique.

Je remercie A. Sulpice pour avoir réalisé une partie des mesures et pour m'avoir enseigné les subtilités du magnétomètre à SQUID.

Je remercie W. Wernsdorfer, pour avoir réalisé la totalité des mesures sur Micro-SQUID présentée dans ce mémoire et pour avoir eu la patience de collaborer avec moi.

Je remercie D. Mailly pour avoir réalisé les réseaux de particules lithographées et m'avoir fait suffisamment confiance pour bloquer ainsi le masqueur du Laboratoire de Bagneux.

Je remercie chaleureusement J-Ph. Ansermet pour m'avoir accordé sa confiance, qui fut un précieux soutien moral pendant la rédaction de ce mémoire. Je remercie également le reste de l'équipe de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, en particulier B. Doudin et J. Meier pour avoir préparé les échantillons de nanofils de Ni et pour avoir initié cette fructueuse collaboration.

Je remercie H. Bouchiat et M. Rubi pour avoir accepté d'être rapporteurs et m'avoir soutenu dans mon travail.

Je remercie Vitor Amaral pour sa gentillesse et pour m'avoir initié, à Porto, au maniement du magnétomètre à SQUID.

Je remercie M. Marysko pour m'avoir accueilli à Prague afin de réaliser les expériences de susceptibilité alternative.

Je voudrais aussi remercier B. Castaing, G. Sauermann, M. Ichiyangi, W. Coffey et A. O. Caldeira pour leurs éclaircissements et leur intérêt au problème.

Je voudrais aussi souligner l'influence d'un groupe de Lobbying puissant, qui a influencé ce travail, et qui se masque sous les appareils grossiers de l'équipe de foot "Olympique Magnétisme", avec ses ramifications et satellites. Ils se reconnaîtront.

Je remercie enfin B. Barabara mon directeur de thèse et D. Givord, directeur du Laboratoire de m'avoir acueilli, permettant ainsi la réalisation de ce travail.



INTRODUCTION GENERALE

Le travail présenté dans cette thèse s'inscrit dans une étude générale de la dynamique lente des systèmes magnétiques à basse température, poursuivie depuis quelques années en vue principalement de mettre en évidence l'effet tunnel quantique de l'aimantation. La motivation première de ce travail était donc de contribuer à la compréhension et à la mise en évidence expérimentale de cet effet .

L'effet tunnel quantique de l'aimantation peut théoriquement se manifester lorsque la température est trop basse pour fournir l'énergie thermique nécessaire au retournement d'un spin ou d'un groupes de spins au dessus d'une barrière d'anisotropie: du fait des ses fluctuations quantiques, le système peut néanmoins relaxer et franchir la barrière.

Des indices de l'effet tunnel de l'aimantation semblent avoir été observés lors d'expériences de traînage magnétique: il se traduisent par l'apparition d'un palier à basse température, dans le profil thermique de la vitesse de relaxation.

Expérimentalement, le traînage magnétique s'observe dans un échantillon lorsque l'on peut mesurer la variation de l'aimantation au cours du temps, après avoir conduit l'échantillon d'un état magnétique stable à un état instable ou métastable à l'aide d'un champ extérieur. Des vitesses de relaxation peuvent alors être mesurées.

La complexité des échantillons et la difficulté de décrire la dynamique des matériaux magnétiques désordonnés, laissent cependant en suspens un grand nombre d'interrogations relatives à cette interprétation. D'une part, les équations de la dynamique de l'aimantation ne sont pas linéaires. Leur résolution est souvent analytiquement impossible. Les équations stochastiques, construites à partir de ces équations, en tenant compte des fluctuations produites par l'environnement, compliquent encore la tâche. Il est donc difficile de prédire les comportements statistiques de la dynamique. D'autre part, l'aimantation est une variable collective qui englobe une réalité complexe de systèmes à grand nombre d'éléments. A chaque échelle considérée, la structure est différente: c'est la caractéristique des systèmes désordonnés.

Le présent mémoire rend compte d'une étude menée sur la dynamique lente des nanostructures magnétiques. Nous nous sommes focalisés sur la compréhension des mécanismes responsables de la dynamique mesurée par traînage magnétique. Quelles sont les fluctuations à l'échelle nanoscopique? Comment ces fluctuations émergent-elles dans la dynamique à l'échelle macroscopique?

La possibilité de travailler sur des nanostructures donne accès directement aux paramètres mesurés à l'échelle nanoscopique et permet indépendamment la mesure à l'échelle macroscopique. Il est ainsi possible d'étudier les effets propres à l'échelle mesoscopique, ainsi que les distorsions induites par le passage d'une nanoparticule à un ensemble de plusieurs millions de particules.

Un comportement surprenant de la dépendance thermique des fluctuations magnétiques a été mis en évidence. Il a été confirmé sur un certain nombre d'échantillons de formes variées. La conséquence observée sur le profil thermique de la vitesse de relaxation mesurée par traînage magnétique est une décroissance rapide à basse température. Le profil thermique habituellement mesuré est monotone et croissant, y compris lorsqu'un palier est observé à basse température. Une dépendance décroissante ne semble pas avoir été mesurée sur des échantillons usuels auparavant.

La structure de ce mémoire est la suivante:

le chapitre I présente brièvement la théorie des fluctuations thermiques des grains ferromagnétiques, ainsi que le modèle classique du traînage magnétiques. Une partie est aussi consacrée aux mesures de susceptibilité magnétique, qui sont complémentaires des mesures de traînage pour la caractérisation des distributions à l'échelle macroscopique .

Le chapitre II présente une étude expérimentale de traînage magnétique sur des nanostructures lithographées par jet électronique. Des mesures ont été réalisées à l'échelle d'une particule submicronique déposée sur micro-SQUID, ainsi que sur des échantillons macroscopiques composés des mêmes particules. Une étude comparative de la relaxation est présentée.

Le chapitre III présente une étude expérimentale de la dynamique de l'aimantation sur des échantillons non lithographés. Une étude comparative aux échelles nanoscopiques et macroscopiques est réalisée sur un échantillon composé de nanofils de Nickel. Le comportement original de la vitesse de relaxation, ainsi que du sens de relaxation, a aussi été mesuré sur une multicouche mince. Cet échantillon est décrit en deuxième partie du chapitre.

Le chapitre IV présente l'interprétation en termes d'effet tunnel de l'aimantation d'un point de vue bibliographique et propose une interprétation du comportement de la vitesse de relaxation mesuré en termes de réponse du système à la variation de champ

Introduction

initiale. Ce modèle n'étant pas encore établi, le prolongement de l'étude à une relaxation dans le domaine quantique est reporté en annexe.

L'annexe 1 traite de l'application de la théorie de Kubo-Mori de la réponse linéaire au traînage magnétique sur les nanostructures, en supposant que l'état statistique initial est stationnaire. Des exemples de calculs du couplage de spins à un environnement sont donnés.

L'annexe 2 expose la théorie de Kubo-Mori et discute des extensions possibles, d'un point de vue bibliographique, aux systèmes non stationnaires.

PLAN DE LA THESE

Remerciements

Introduction 5

Plan de la thèse 9

Chapitre I: Relaxation des systèmes magnétiques nanostructurés.

Introduction..... 13
 I-1 Echelle mésoscopique: les fluctuations d'un macrospin. 17
 I-2 Echelle macroscopique: sommation et désordre 22
 I-3 désordre macroscopique et susceptibilité alternative 29
 Conclusion 33

Chapitre II: Mesure de relaxation sur des nanostructures magnétiques

lithogravées

Introduction..... 41
 II-1 Elaboration..... 44
 II-2 Etude de la dynamique de particules de CoZr en réseau bi-dimensionnel 51
 II-3 Etude la dynamique de particules de Co mesurées en réseau bi-dimensionnel et mesurées individuellement. 72
 II-3-4 De la particule individuelle au réseau de particules 101
 Conclusion du chapitre II..... 106

Chapitre III: Nanostructures magnétiques non lithogravées

Introduction..... 111
 III-1 nanofils de Ni obtenus par électrodéposition 112
 II-2 multicouche à "jonction de paroi de domaines" 123
 Conclusion 143

Chapitre IV: Discussion des résultats expérimentaux:

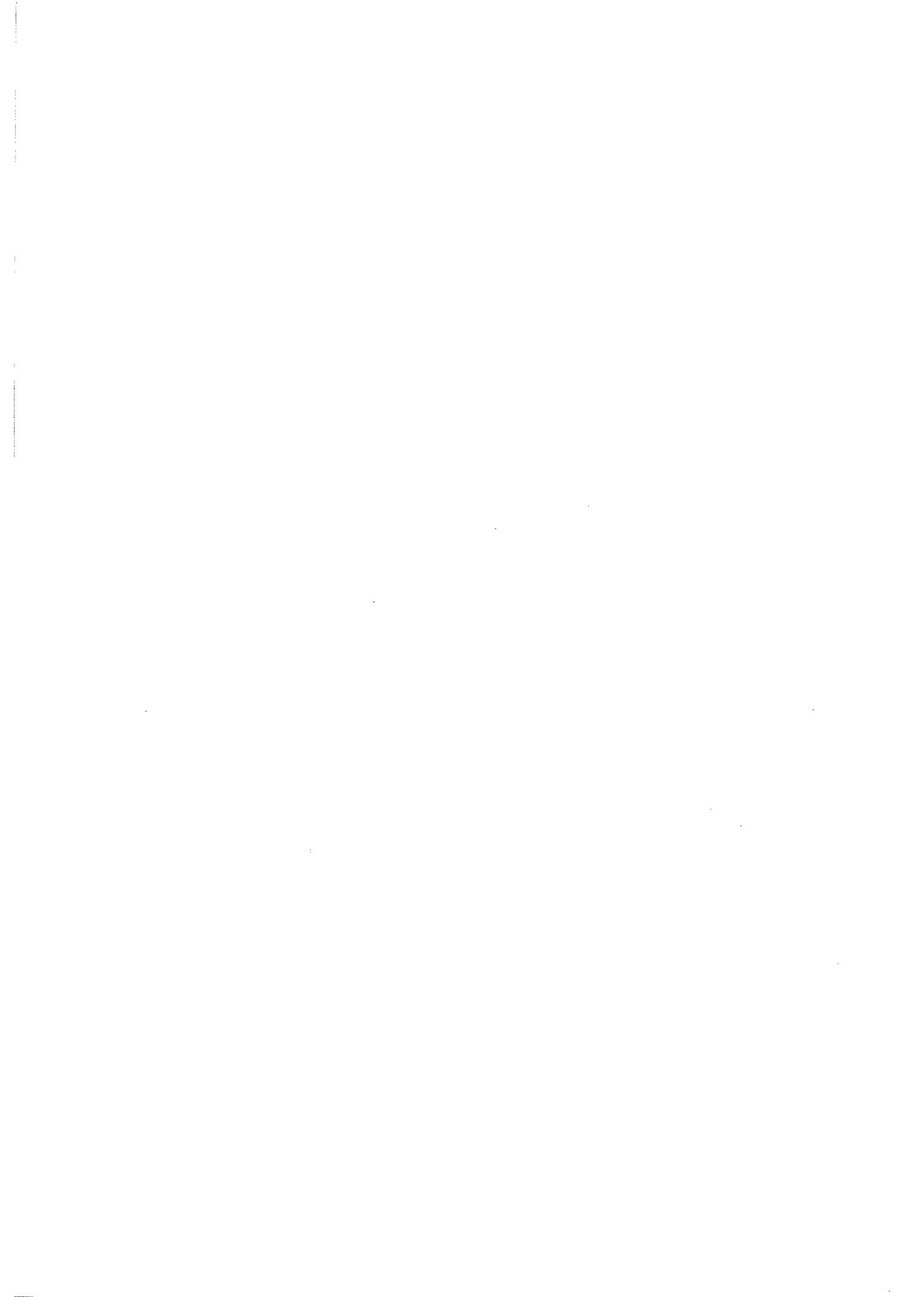
Introduction..... 151
 IV-1 Effets quantiques 153
 IV-2 Diffusion d'un macrospin dans un milieu visqueux. 157
 IV-3 Synthèse: une approche en termes de réponse linéaire 164
 Résumé 169

Conclusion générale 173

Annexe 1: Application de la théorie de la réponse linéaire au traînage magnétique des nanostructures. 181

Annexe 2: La théorie de la réponse linéaire de Kubo-Mori 219

Références..... 249



Chapitre I

Relaxation des systèmes magnétiques nanostructurés.

Introduction.....	13
I-1 Echelle mésoscopique: les fluctuations d'un macrospin.....	16
I-1-1 La loi d'activation de Brown	18
Conclusion	21
I-2 Echelle macroscopique: sommation et désordre	22
I-2-1 Le modèle classique du traînage magnétique	22
I-2-2 Dépendance thermique due à la distribution	23
I-2-2(A) cas des fluctuations négligeables :	24
I-2-2(B) cas des fluctuations grandes :	26
Dans les deux cas:	27
I-2-3 Généralisation à une dépendance thermique quelconque du temps de relaxation.....	27
Conclusion	28
I-3 désordre macroscopique et susceptibilité alternative	29
I-3-1 Distribution de temps de relaxation et bruit en 1/f:	30
I-3-2 Dépendance thermique de la susceptibilité:	31
I-3-2 (A) Dépendance thermique de la fenêtre de mesure:	31
I-3-2 (B) fenêtre de mesure indépendante de la température	33
Discussion	33
Conclusion	34



CHAPITRE I

Relaxation des systèmes magnétiques nanostructurés.

Introduction

Les systèmes magnétiques sont structurés à plusieurs échelles différentes du fait de la compétition entre les divers termes de l'énergie libre. L'énergie Zeeman fournie par le champ extérieur tend à aligner les spins le long de l'axe du champ. L'énergie d'échange E_{ex} tend à aligner tous les spins dans la même direction. L'énergie d'anisotropie E_a tend à aligner chaque spin le long de son axe propre d'anisotropie et l'énergie du champ magnétostatique E_d (ou énergie dipolaire ou énergie de champ démagnétisant) prend en compte l'effet du champ créé par l'ensemble des spins sur la structure macroscopique qu'est l'échantillon. La minimisation de l'énergie résultante détermine les configurations à l'équilibre.

L'effet de l'énergie du champ magnétostatique E_d ou de l'énergie d'anisotropie E_a est de morceler un échantillon ferromagnétique en plusieurs domaines macroscopiques de spins orientés parallèlement. Nous appelons dynamique "quasi-statique" la succession des configurations d'aimantation induite par les variations "lentes" d'un champ magnétique extérieur. Elle concerne principalement des variations de taille des domaines. On peut par exemple traduire ces variations en termes de déplacement de parois entre domaines de direction d'aimantation différente.

Cette dynamique quasi-statique est visualisée par les cycles d'hystérésis à différentes températures. Les configurations magnétiques successives ne sont en effet pas stables, et ne peuvent être considérées comme quasi-statique qu'à une échelle de temps bien déterminée, et dépendante entre autre de la température et de la vitesse de déplacement du champ extérieur.

Lorsque la taille d'une structure magnétique devient inférieure à une taille de l'ordre de la largeur de paroi, typiquement de l'ordre de la dizaine de nanomètres, la

création de plusieurs domaines n'est plus énergétiquement favorable et l'échantillon se comporte comme un monodomaine magnétique. Les différentes configurations magnétiques possibles sont alors limitées aux positions que peut prendre un moment obéissant aux contraintes des corps en rotation.

Dans les structures fortement désordonnées (typiquement les verres de spin ou des jonctions de couches magnétiques ayant diffusé l'une dans l'autre), il est possible de distinguer des petits objets magnétiquement corrélés qui se comportent comme un ensemble de monodomaines en interaction plus ou moins forte [Dormann 1981]. Y compris dans les ferromagnétiques non désordonnés, à basse température, la dynamique non quasi-statique induite par un brusque changement de sens du champ magnétique extérieur peut concerner des domaines "dynamiquement corrélés" de l'ordre de la longueur de corrélation des spins ($l_{ex} = \sqrt{A/M_s^2}$ où A est la constante d'échange et M_s la densité d'aimantation). Ces domaines sont beaucoup plus petits qu'un domaine statique [Chamberlin 1994]. Typiquement, dans le Fer, $l_{ex} \approx 8$ nm.

La modélisation de la dynamique des systèmes magnétiques par la rotation d'un monodomaine est donc une étape préliminaire qui nous semble nécessaire à la compréhension des processus de relaxation dans les systèmes magnétiques.

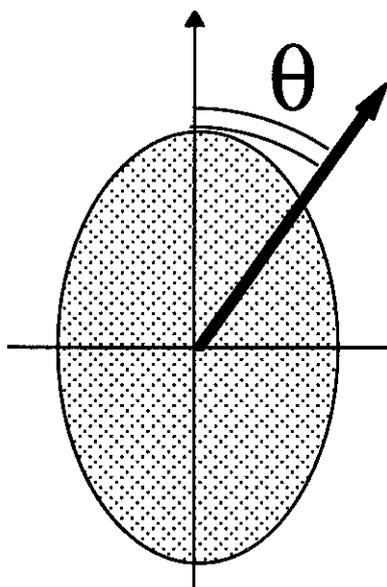
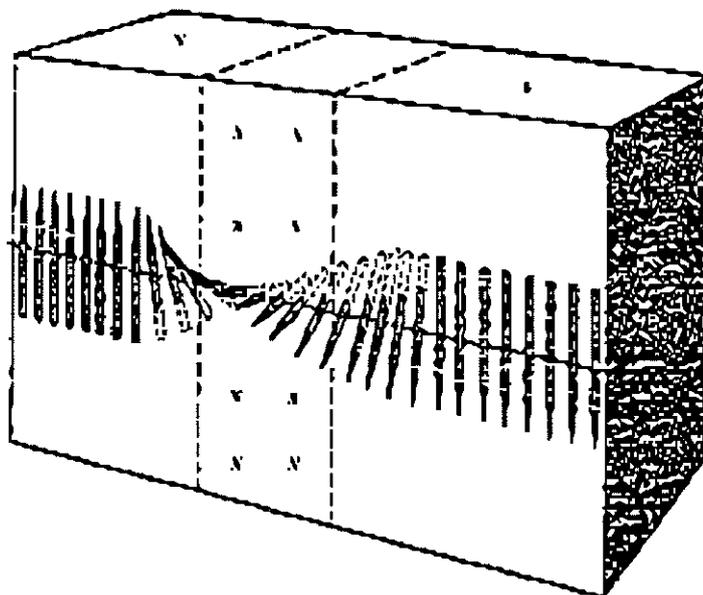


Figure A:
Monodomaine magnétique à anisotropie uniaxiale. L'aimantation est modélisée par un macrospin, repéré dans l'espace par un angle θ entre la direction de l'aimantation et l'axe d'anisotropie.



Figure(B):
paroi de Bloch à 180° , séparant deux domaines magnétiques d'aimantation opposée. Si A est la constante d'échange et K la constante d'anisotropie, la largeur de paroi est $\pi\sqrt{A/K}$. Cette paroi se déplace avec le champ extérieur.

Chapitre I

Du point de vue expérimental, dans les matériaux usuels constitués d'un ensemble de sous-structures hétérogènes de petites tailles, les deux types de dynamiques sont difficiles à distinguer [Schlachetzki 1972]. En revanche, les nanostructures magnétiques, qui sont des ensembles ordonnés de sous-structures de l'ordre de quelques centaines de nanomètres, invitent à une approche en termes de monodomains magnétiques. Le déplacement d'une paroi dans ces structures est en effet limité et facilement reconnaissable. Nous utiliserons donc le langage et les techniques de la dynamique de relaxation de macrospins (monodomaine magnétique) pour décrire la relaxation dans nos échantillons nanostructurés .

D'autre part, nos échantillons sont principalement à anisotropie uniaxiale. Pour l'étude de la dynamique, le champ est appliqué, autant que possible, dans la direction de l'axe d'anisotropie et l'aimantation est mesurée suivant cet axe.

Du fait du caractère hystérétique des systèmes magnétiques, la dynamique est étudiée principalement par le biais des expériences de traînage magnétique. Le traînage magnétique consiste à déplacer le système d'un état magnétique de référence (par exemple un état de saturation de l'aimantation en champ fort) à un état intermédiaire instable (le champ est par exemple inversé et fixé à proximité du champ coercitif); la variation d'aimantation est alors mesurée au cours du temps à différentes températures et différents champs appliqués. La variation d'aimantation provient du retournement de spins ou de groupes de spins par rapport à une structure fixe qui est le corps du matériau : c'est la relaxation de Néel (à distinguer de la relaxation de Debye où le retournement du spin entraîne la matrice comme dans le cas de certains ferrofluides).

L'état de référence peut être un état quelconque, reconnaissable macroscopiquement. Lorsqu'il est facile de désaimanter l'échantillon, en chauffant au dessus de la température de Curie, l'état de référence le plus naturel est l'état d'aimantation rémanente nulle. La variation de champ ΔH entre l'état de référence et le champ de relaxation peut être alors quelconque et n'est plus imposée par l'état de saturation. La réponse du système en fonction de l'intensité de l'excitation ΔH peut alors être étudiée.

Dans le cas d'une petite variation de champ ΔH , le comportement en fonction de la fréquence peut être obtenu par des mesures de susceptibilité alternative. On peut vérifier que le système répond linéairement au champ extérieur sinusoïdal dans des conditions adéquates. Des expériences de traînage magnétique à petit pas de champ ΔH (en forme de marche d'escalier) peuvent aussi induire la réponse linéaire du système à cette excitation [Fannin 1995].

Dans le cas général, la température de Curie est élevée et l'état de référence est un état de saturation. La variation de champ ΔH n'est alors plus la variation effectivement perçue par le système. En effet, lorsque le système est saturé, son état ne dépend plus du champ extérieur. La variation $(\Delta H)_{\text{eff}}$ effectivement perçue est beaucoup plus difficile à déterminer. Les mesures de susceptibilité alternative ne sont pas simplement reliées, à priori, aux mesures de traînage magnétique. Nous avons rencontré cette difficulté au cours de notre travail.

Ce chapitre a pour ambition de poser le problème de la dynamique des nanostructures magnétiques. Pour ce faire, nous nous appuyerons sur des travaux existant de la dynamique des monodomains magnétiques et nous tenterons d'explicitier le passage entre la dynamique à l'échelle des monodomains et celle mesurée à l'échelle des échantillons macroscopiques.

Ce chapitre est structuré en trois parties. La première partie traite des fluctuations responsables du retournement de l'aimantation à l'échelle des monodomains. La deuxième partie présente le modèle classique du traînage magnétique et ébauche la généralisation de ce modèle au cas des systèmes nanostructurés. La troisième partie présente un modèle classique décrivant les expériences de susceptibilité alternative sur le même type de systèmes.

I-1 Echelle mésoscopique: les fluctuations d'un macrospin.

A l'échelle nanoscopique, la dynamique est déterminée par le couplage du système avec son environnement. L'environnement est constitué d'une part du bain thermique qui définit les fluctuations du système à l'équilibre, et d'autre part d'un champ extérieur. Le problème se pose en tant que problème de dynamique statistique : nous voudrions dans un premier temps décrire les fluctuations et les moyennes des degrés de libertés d'un macrospin, c'est-à-dire d'un mouvement Brownien dans un potentiel, dans l'espace des moments. Un tel travail a été mené à bien par différents auteurs dans des contextes très différents de relaxation des systèmes magnétiques.

Une première approche phénoménologique, présentée dans ce chapitre pour introduire nos résultats expérimentaux sur les nanostructures magnétiques, consiste à poser en hypothèse l'effet du bain thermique, par exemple par le biais d'un champ magnétique fluctuant. La résolution de l'équation stochastique obtenue permet de déduire l'action de ce bruit sur l'aimantation d'un monodomaine magnétique défini par

Chapitre I

une énergie ("cinétique") d'échange et une énergie (potentielle) d'anisotropie en forme de barrière: c'est l'approche original de L. Néel [Néel 1949] du traînage magnétique. L'effet direct des fluctuations thermiques sur un monodomaine magnétique, (c'est-à-dire d'un macrospin en termes de mouvement Brownien), a ensuite été étudié sur la base des équations stochastiques de Langevin [Langevin 1908] et Fokker-Planck [Kramers 1940] par Brown¹ [Brown 1963].

Une deuxième approche, moins phénoménologique, consiste à étudier l'émergence du bruit thermique par l'étude de l'interaction des spins avec leur environnement (voir les annexes 1 et 2; les références ci-dessous sont répertoriées dans les références "chapitre IV et annexes"). Notons que ce problème a donné lieu à une grande variété d'études appliquées surtout aux problèmes où les spins sont considérés individuellement (échelle microscopique), tels que dans les phénomènes de résonance haute fréquence [Bloch 1964]. On peut aussi citer les recherches sur les ondes de spins, avec les premières expériences de diffraction de neutrons et de résonance magnétique [Kubo 1954][Van Hove 1954][Dyson 1956][Mori 1958], [De Gennes 1959] [Bloch 1964][Robertson 1967][Deutch 1968]. Ce sont en outre ces problèmes concrets qui ont servis de banc d'essais aux théories stochastiques, en particulier celle de l'école japonaise (voir les revues de Ichiyangi [Ichiyangi 1995 et 1994]). Ces approches stochastiques ont été reprises dans une vaste littérature à propos des puissantes méthodes d'investigations de la matière que constituent les expériences de Résonance Magnétique Nucléaire ou de Résonance Ferromagnétique. Les calculs se focalisent sur l'interaction spin-bain thermique et particulièrement sur les effets quantiques susceptibles de se manifester dans les processus dissipatifs impliquant des spins de grande taille mais restant microscopiques [Shibata. 1978-1993], [Assou 1981] [Cuccoli 1992]. Ces références sont donc un prérequis à une interprétation quantique des singularités observées dans les phénomènes dissipatifs impliquant des systèmes de spins. Dans un travail de synthèse précédant celui-ci, nous avons cherché à appliquer cette approche à la relaxation des macrospins, orientée vers une description quantique des fluctuations. Ce travail est résumé dans les deux annexes de ce présent mémoire.

¹ *W.F. Brown Jr. a développé l'équation de Langevin et de Fokker-Planck en symétrie sphérique et axiale dans le but d'étudier les fluctuations de petites particules ferromagnétiques. Il a par ce fait contribué de façon importante à la théorie du mouvement Brownien. Néanmoins, il faut préciser que le terme de Brownien ne se réfère pas à Brown Jr. bien sûr, mais au botaniste Robert Brown qui observa les premiers phénomènes de marche aléatoire en 1827.*

Nous présentons ici sommairement l'approche classique, en suivant principalement les travaux de Brown, qui utilisent l'équation de Langevin ou de Fokker-Planck gyromagnétique.

Nous supposons un système composé d'un ensemble de macrospins identiques. Le macrospin peut être défini comme étant un ensemble ferromagnétique rigide, de sorte que l'aimantation de l'ensemble constitue un seul degré de liberté (vectoriel) dans l'espace des spins (il peut être défini classiquement par un ou deux angles et leur vitesse dans l'espace des phases). La variable considérée est alors un moment d'amplitude $m(t)$: $\vec{m}(t) = v \cdot \vec{M}(t) = g\mu_B \vec{S}(t)$ de module constant $\|\vec{m}(t)\| = m$. Ici, v est le volume du monodomaine, M la densité d'aimantation, g le facteur gyromagnétique et μ_B le magnéton de Bohr. Le problème se réduit alors à l'étude statistique de ce degré de liberté.

Une équation stochastique très générale pour les moments peut être établie sur la base de principes mécaniques de construction d'équation du mouvement d'un corps "à symétrie de charge rotative" (rotating charged symmetric body) [Ricci 1992] à partir des équations de Lagrange en symétrie sphérique et l'addition d'un terme dissipatif. L'équation obtenue est une équation stochastique non linéaire. Elle peut être approximée par une équation du type Langevin ou Fokker-Planck (non linéaire) en supposant que les temps caractéristiques relatifs aux degrés de libertés de l'environnement sont beaucoup plus petits que les temps caractéristiques de la dynamique des spins.

L'équation obtenue montre que dans l'équation en coordonnées sphérique, le bruit correspondant ne peut pas être un bruit additif si on pose comme hypothèse que le bruit est additif en coordonnées cartésiennes (c'est le cas du bruit blanc posé en hypothèse pour les champs fluctuants de Néel). On peut donc s'attendre à des comportements qualitativement très différents et non intuitifs pour l'action du bruit du bain thermique sur les fluctuations magnétiques.

I-1-1 La loi d'activation de Brown

L'équation de l'aimantation a été établie par Landau-Lifshitz [Landau 1935], puis Gilbert [Gilbert 1955] qui introduit un terme d'amortissement visqueux γ dans les équations du mouvement d'un moment angulaire. Cette équation est reprise dans toute sa dimension stochastique par Brown [1963] avec l'addition d'un bruit blanc gaussien sous forme d'un champ magnétique fluctuant $h(t)$:

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = g_0 \vec{m} \times \left[-\frac{\partial U}{\partial \vec{M}} - \gamma \frac{d\vec{m}}{dt} + \vec{h}(t) \right] \quad (1-1)$$

g_0 est le rapport gyromagnétique, γ est le coefficient d'amortissement et U l'énergie de la particule.

Le bruit est posé comme étant un bruit blanc (δ -corrélé):

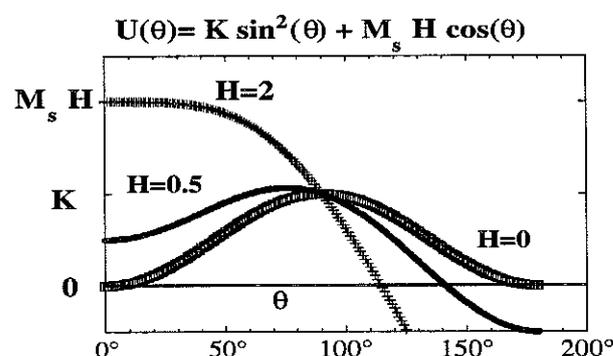
$$\langle h_i(t) \cdot h_j(t + \tau) \rangle = \eta_{ij} \delta(\tau) \quad (1-2)$$

δ est la distribution de Dirac. η_{ij} est le coefficient de friction. L'hypothèse du bruit blanc et donc de l'approximation Markovienne (voir annexes), a été justifiée dans plusieurs travaux. On peut citer en particulier [Néel 1949], [Brown 1965] et [Garanine 1990]. L'énergie U est déduite des considérations micromagnétiques qui supposent le macrospin composé d'un grand nombre de spins microscopiques à l'approximation des milieux continus. Typiquement $U = U_{mc} + U_d + U_b \dots$ où U_{mc} est l'énergie magnétocristalline, U_d est l'énergie magnétostatique de forme (énergie dipolaire)

Dans le cas de la symétrie axiale, le problème se réduit à une seule variable non vectorielle. Le cas examiné par la suite, de symétrie axiale de l'énergie magnétostatique se réfère au cas d'un ellipsoïde de révolution mesuré le long d'un axe de facile aimantation (voir chapitre II pour une ellipse aplatie et chapitre III pour un cylindre très mince). Dans ce cas, les termes U_{mc} ou U_d ont la même action:

$$\begin{aligned} U_{mc} &\approx K_1 \sin^2 \theta \\ U_d &\approx -1/2(N_x - N_z) M_s^2 \sin^2 \theta. \\ U_{mc} + U_d &= K \sin^2 \theta \end{aligned} \quad (1-3)$$

où N_x et N_z sont les facteurs démagnétisants (voir chapitre II).



L'application d'un champ magnétique constant H le long de l'axe d'anisotropie conduit au potentiel illustré Figure(1-1) ci-contre. Il s'écrit :

$$U(\theta) = K \sin^2 \theta - M_s H \cos \theta$$

Figure(1-1): le profil du potentiel d'énergie avec un champ extérieur statique H .

L'équation de Fokker-Planck simplifiée au cas de la symétrie axiale, donne la probabilité $W(\theta, t)$ au temps t de trouver l'orientation du macrospin dans une région de l'espace définie par l'angle θ entre l'axe d'anisotropie et le macrospin. Dans cette approximation, l'équation s'écrit:

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left\{ \sin \theta \left[h' \frac{\partial U}{\partial \theta} W + k' \frac{\partial W}{\partial \theta} \right] \right\} \quad (1-4)$$

avec

$$h' = \frac{\gamma}{\left(\frac{1}{g_0^2} + \gamma^2 M_s^2 \right)} \quad (1-5)$$

$$k' = \frac{\eta}{2} \frac{g_0^2}{\left(1 + g_0^2 \gamma^2 M_s^2 \right)}$$

Brown [Brown 1963] traite l'équation dans le cas de la relaxation longitudinal, en supposant que le mode de relaxation le plus lent, le mode de Néel, décrit seul la dynamique (cette approximation est discutée dans [Coffey 1993 et 1994]). Un calcul de perturbation, équivalent à la méthode que Kramers [Kramers 1940] a développé pour déduire la loi d'Arrhenius, est alors utilisé. Cette méthode limite la validité du calcul aux hautes barrières. Brown montre alors les deux composantes fondamentales de la relaxation longitudinale des monodomains magnétiques à anisotropie uniaxiale:

(i) la relaxation pour une seule particule est approximativement exponentielle

$$\boxed{W(t) = W_0 \cdot e^{-t/\tau}} \quad (1-6)$$

(ii) Le temps de relaxation est décrit par la loi d'activation thermique du type loi d'Arrhenius, valable pour les hautes barrières de potentiel :

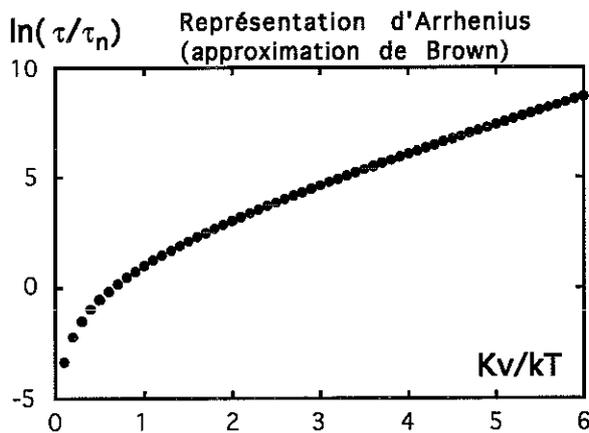
$$\boxed{\begin{aligned} \frac{\tau}{\tau_n} &= \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{K_V}{kT} \right)^{-\frac{3}{2}} \cdot e^{\frac{K_V}{kT}} \\ \frac{K_V}{kT} &\geq 2 \end{aligned}} \quad (1-7)$$

le τ_n est le temps de relaxation de diffusion et est défini comme suit:

[Brown 1963]

$$\tau_n = \frac{v}{2\gamma kT} \left(\frac{1}{g_0^2} + \eta^2 M_s^2 \right) \quad (1-8)$$

La formule (1-7) est tracée Figure(1-2) ci-dessous. La formule n'est valable que pour les valeurs du rapport énergie sur température $Kv/kT \geq 2$.



Figure(1-2): représentation d'Arrhenius ($\ln(\tau)$ vs. $1/T$) du temps de relaxation calculé dans l'approximation de Brown (formule(1-7)). La validité de la formule est limitée aux valeurs du paramètre $Kv/kT \geq 2$. Le profil est alors linéaire et croissant

Conclusion

Le comportement décrit avec la loi d'activation usuelle de Brown (loi d'Arrhenius) est vérifié habituellement lors des expériences de traînage magnétique (τ est de l'ordre de quelques jours à la seconde) sur des matériaux très divers, des ferromagnétiques monocristallins aux verres de spins. Cette loi apparaît aussi à travers les expériences de susceptibilité alternative (de la seconde à 10^{-4} s) en régime linéaire [Paulsen 94],[Novak 1994]. Le système est alors à l'équilibre ou proche de l'équilibre, et les hauteurs de barrières de potentiel sont comparables à l'énergie thermique. Le temps de relaxation est obtenu par ajustement des courbes de résonance ou dans une représentation d'Argand χ' / χ'' (ou Cole-Cole).

Cependant, cette loi trouve ses limites de validité pour les petites barrières d'anisotropie vK/kT et les grandes valeurs du paramètre de champ extérieur HM_s / kT [Coffey 1996][Coffey 1995]. Nous nous posons la question de savoir quel est le comportement de la loi d'activation lorsque les barrières de potentiels sont petites, avec un système restant néanmoins loin de l'équilibre (voir l'exposé de la prolongation de cette étude, chapitre IV).

I-2 Echelle macroscopique: sommation et désordre

Les calculs des fluctuations et de la réponse de l'aimantation d'un monodomaine magnétique présentés ci-dessus concernent un seul macrospin pris sur un ensemble statistique. A l'échelle mésoscopique considérée, l'ensemble statistique est construit d'un ensemble idéal constitué d'un grand nombre de macrospins identiques. On construit de façon équivalente l'ensemble statistique par un grand nombre de mesures réalisées sur le même système au cours du temps (propriété ergodique).

Dans les échantillons macroscopiques, il n'est pas envisageable de réunir un grand nombre d'objets identiques. Un deuxième processus de moyenne a lieu sur une distribution des caractéristiques des macrospins qui composent l'échantillon. Cette distribution rend compte de la structure à l'échelle macroscopique de l'échantillon ou du degré de désordre aux différentes échelles. Le lien entre moyenne d'ensemble et moyenne temporelle en perd toute trivialité (brisure d'ergodicité).

Dans ce paragraphe nous cherchons à décrire l'effet du désordre sur les propriétés dynamiques exposées au paragraphe précédent.

I-2-1 Le modèle classique du traînage magnétique

Lors des expériences de traînage magnétique usuelles, les échantillons étudiés sont macroscopiques et les caractéristiques des macrospins, amplitudes et directions d'anisotropie, sont distribuées. Si l'on suppose que les macrospins (les monodomains ferromagnétiques) sont indépendants, la relaxation sur l'échantillon est donnée par la somme de tous les sous-ensembles de macrospins. Le modèle de Street et Woolley [Street 1949] donne une illustration de ce phénomène.

Dans le modèle de Street et Woolley, la relaxation exponentielle (1-6) et la loi d'activation de Brown (1-7) sont posées en hypothèse.

La relaxation exponentielle est réécrite:

$$m(t) = m_0 e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (2-1)$$

où τ est donné par la loi d'activation de Brown (1-7). L'aimantation m_0 est l'aimantation du macrospin. Ce type d'approche n'explicite pas une éventuelle dépendance thermique de m_0 .

Chapitre I

Le désordre est introduit en termes de barrière d'énergie : la variation de l'aimantation mesurée sur l'ensemble des petites particules découplées est donnée par l'intégration sur une distribution $g(E)$ des barrières d'énergie. Ceci est représentatif du cas où la distribution est due aux variations du volume des monodomains ferromagnétiques; l'énergie d'anisotropie $E_a = Kv$ est en effet proportionnelle au volume. L'aimantation m_0 est habituellement supposée indépendante de la hauteur de barrière E [Street 1949].

En notant $M(t)$ la quantité d'aimantation qui varie au cours du temps, la sommation donne

$$M(t) = m_0 \int g(E) e^{-\frac{t}{\tau_0} \exp(-E/k_B T)} dU \quad (2-2)$$

où nous avons noté τ_0 pour le temps mentionné comme temps "d'attente" ou temps "d'essais" dans la littérature et qui généralise à un système magnétique quelconque le temps de relaxation de diffusion τ_n de la partie I-1. L'équation(2-2) peut s'écrire en sommation sur les fréquences de relaxation:

$$M(t) = -kTm_0 \left[\int g(E(\gamma)) \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \right] \quad (2-3)$$

où $\gamma = 1/\tau_0 \exp[-E/kT]$ est l'inverse du temps de relaxation.

I-2-2 Dépendance thermique due à la distribution

Lorsque le champ de relaxation est fixé, on peut supposer que la distribution est localement uniforme . Dans le cas contraire, l'effet de la forme de la distribution, doit être étudié au cas par cas [Barbara 1993 et 1994] [Sampaio 1994]. Nous nous plaçons ici dans le cas d'une distribution localement uniforme: on note la valeur des distributions locales de la façon suivante

$$g(E) \approx \bar{g}_E$$

L'équation (2-3) se simplifie en

$$M(t) = -kTm_0 \bar{g}_\gamma \cdot \int_{\Delta\gamma} \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \quad (2-4)$$

où $g(E(\gamma)) \approx \bar{g}_\gamma$. La distinction entre l'expression de la distribution uniforme en fonction de E ou de γ doit être rappelée, en raison de la dépendance thermique aux bornes d'intégration. L'intégrale est effectuée sur l'intervalle $\Delta\gamma$ tels que $E_1 = kT \cdot \ln(\gamma_1 t)$ et $E_2 = kT \cdot \ln(\gamma_2 t)$

$$\boxed{M(t) = m_0 \bar{g}_\gamma kT \cdot [Ei(\gamma_2 t) - Ei(\gamma_1 t)]} \quad (2-5)$$

où Ei est la fonction exponentielle intégrale. Les fréquences de coupures γ_1 et γ_2 dépendent à priori de la température.

Deux limites sont envisageables et conduisent à une relaxation logarithmique:

I-2-2(A) cas des fluctuations négligeables :

La limite des fluctuations négligeables est la limite des modèles de traînage magnétique usuels sur échantillons macroscopiques.

La barrière d'énergie maximum E_{\max} qui participe à la variation d'aimantation lors des mesures de traînage magnétique correspond au temps d'observation maximum. Dans cette approximation, nous supposons que ce temps est le temps d'observation ou temps de mesure t . On a alors $\gamma_1 = 1/t$. En d'autres termes, on suppose que les monodomains dont le temps de relaxation τ est supérieur au temps d'observation t ne participent pas à la variation d'aimantation mesurée. Ce raisonnement implique que les fluctuations de part et d'autre de la moyenne τ sont négligées. Cette approximation s'écrit très simplement en utilisant la formule (2-3). On a :

$$e^{-\frac{t}{\tau_0} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)} \approx 1 - \Theta(E - E_c) \quad (2-6)$$

$$\approx \begin{cases} 0 & \text{si } E > E_c \\ 1 & \text{si } E < E_c \end{cases}$$

où l'énergie de coupure E_c correspond au temps moyen de relaxation τ , soit $E_c = kT \ln(\tau/\tau_0)$. Le symbole Θ représente la fonction d'Haeviside ou fonction "créneau" (voir la Figure(2-1)).

Le dernier temps de relaxation possible correspond au temps d'observation $\tau_{\max} = t$ et $\text{Max}[E_c] = kT \ln(t/\tau_0)$. La formule (2-2) s'écrit

$$M(t) \approx m_0 \bar{g}_E \cdot \int_0^{kT \ln(t/\tau_0)} dE \quad (2-7)$$

Soit $M(t) \approx m_0 \cdot \bar{g}_E \cdot kT \ln(t/\tau_0)$ et la vitesse de relaxation logarithmique² est:

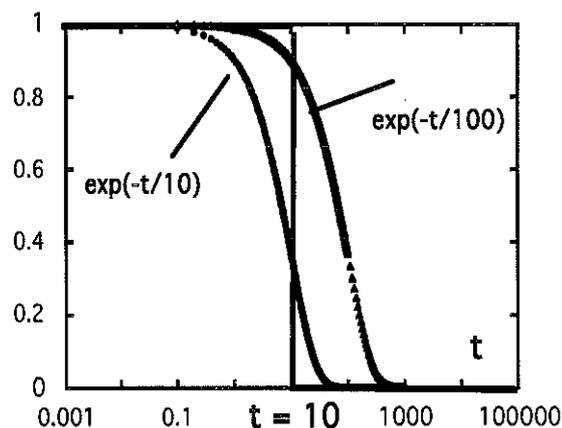
$$\boxed{\frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \approx m_0 \cdot \bar{g}_E \cdot kT} \quad (2-8)$$

Avec une distribution quelconque on a la solution, avec la fonction G telle que $dG(E)/dE = g(E)$:

$$\begin{aligned} M(t) &= m_0 \cdot G(E) \\ &= m_0 \cdot G(kT \ln(t/\tau_0)) \end{aligned} \quad (2-9)$$

Figure(2-1):

Deux lois de relaxation $\exp(-t/\tau)$ sont tracées ci-contre avec des temps de relaxation respectivement de 10 et 100 s. En traits gras, est tracée l'approximation en marche d'escalier (ou en fonction coupure, ou fonction "pas") au temps d'observation $t=10$. Cette approximation consiste à ignorer l'aire entre l'exponentielle définie par $\tau = 10$. et la fonction en marche d'escalier.



²Remarque

La relaxation de l'aimantation $\Delta M(t)$ mesurée sur les matériaux désordonnés en temps long est généralement logarithmique. La vitesse de relaxation définie est alors la vitesse de relaxation logarithmique $S = \Delta M / \Delta \ln(t)$. Cette vitesse de relaxation est traditionnellement appelé "viscosité magnétique". Cependant, en hydrodynamique par exemple, la viscosité η est proportionnel à l'inverse d'une vitesse de relaxation (loi de Poiseuille: la force de frottement visqueux est $F = -\eta \cdot l \cdot v$ où v est la vitesse, l une longueur caractéristique et η est en Poiseuille ou Pa.s). Etant donné que nous allons manipuler dans ce mémoire des coefficients de viscosité, nous avons préféré rompre avec la tradition et ne pas utiliser le terme de "viscosité magnétique" pour la grandeur $\Delta M / \Delta \ln(t)$ mais "vitesse de relaxation logarithmique ou simplement "vitesse de relaxation".

I-2-2(B) cas des fluctuations grandes :

Dans l'étude des matériaux mésoscopiques, la forme exponentielle (ou la somme d'exponentielles lorsque l'on prend en compte les corrections dues aux autres modes de relaxation), ne peut pas être négligée a priori, car elle contient les caractéristiques propres à cette échelle de mesure. Nous proposons donc une autre approximation, prenant en compte ces fluctuations, en supposant qu'elles sont au contraire très grandes. On suppose donc : $\gamma_1 t \ll 1$ et $\gamma_2 t \gg 1$ (c'est le cas lorsque des retournements de monodomains ont lieu loin de la valeur moyenne $\tau = 1/\gamma$). Nous utilisons donc la représentation en fréquence de l'équation (2-4).

Le calcul ci-dessous suppose encore la relaxation exponentielle. Il est néanmoins facile de tenir compte de l'effet possible d'une correction à l'exponentielle provenant de modes multiples de relaxation. Cette correction s'écrit souvent dans la littérature ([Montroll 1884], [Millonas1995] [Chamberlin 1994]) au moyen de la fonction de Watts (ou Kohlrausch-Williams-Watts) suivante $\exp[-(\gamma t)^\beta]$. Le calcul ci-dessous se généralise sans difficulté à cette fonction de relaxation.

L'intégrale à évaluer est l'intégrale à droite de l'égalité (2-4):

$$\int_{\gamma_1 t}^{\gamma_2 t} \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} \cdot d\gamma = \int_{\gamma_1 t}^{\gamma_2 t} \frac{e^{-U}}{U} \cdot dU \quad (2-10)$$

Notons que dans le changement de variables, il est toujours possible d'écrire $U = (\gamma t)^\beta$ pour tenir compte de l'effet des corrections en fonction de Watts. On a alors $1/\beta$ en facteur de l'intégrale et les valeurs $U_1 = (\gamma_1 t)^\beta$ et $U_2 = (\gamma_2 t)^\beta$ aux bornes.

En supposant $\gamma_2 t \gg 1$ la contribution à l'intégrale de la sommation de $\gamma_2 t$ à l'infini est négligeable ($\gamma_2 t < 10$ suffit) :

$$\int_{\gamma_1 t}^{\gamma_2 t} \frac{e^{-U}}{U} \cdot dU \approx \int_{\gamma_1 t}^{+\infty} \frac{e^{-U}}{U} \cdot dU \quad (2-11)$$

cette intégrale peut s'écrire de la façon suivante [Abramovitz 1972, p229]

Chapitre I

$$\int_{U_c}^{+\infty} \frac{e^{-U}}{U} \cdot dU = -Eu - \ln(U_c) - \int_0^{U_c} \frac{1-e^U}{U} dU \quad (2-12)$$

où $U_c = \gamma_1 t$ et Eu est la constante d'Euler.

Lorsque U_c tend vers zéro, le dernier terme est négligeable devant $\ln(U_c)$ (voir l'évaluation numérique sur l'exemple en conclusion du chapitre II),

$$\int_0^{U_c} \frac{1-e^U}{U} dU \xrightarrow{U_c \rightarrow 0} 0 \quad (2-13)$$

et donc

$$\int_{U_c}^{+\infty} \frac{e^{-U}}{U} \cdot dU \approx -Eu - \ln(U_c) \quad (2-14)$$

La dépendance temporelle de l'aimantation suit donc aussi une loi logarithmique.
Ce résultat est valide aussi avec la fonction de relaxation de Watts.

L'équation (2-4) de $M(t)$ donne la vitesse de relaxation logarithmique suivante:

$$\boxed{\frac{\Delta M(t)}{\Delta \ln(t)} \approx kT \cdot m_0 \cdot \bar{g}_\gamma} \quad (2-15)$$

Dans les deux cas:

Dans les deux cas (A) et (B), on déduit la décroissance logarithmique qui est une des composantes caractéristiques habituelles du traînage magnétique.

En revanche, la dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique dépend de la dépendance en température des paramètres m_0 , \bar{g}_E et \bar{g}_γ dans les différentes situations expérimentales.

I-2-3 Généralisation à une dépendance thermique quelconque du temps de relaxation

Nous pouvons généraliser facilement le calcul de Street et Wooley à une expression du temps de relaxation à l'échelle nanoscopique plus générale, différent d'une fonction coupure au temps moyen de relaxation. Cette généralisation s'étend sans problème à un comportement où $\ln(\tau(H,T))$ est une fonction plus complexe de la température et du champ (différente du simple rapport E/kT).

Sans présupposer d'une origine physique³ et en limitant la généralité du problème à une dépendance en hauteur de barrière E et en températures T séparables, nous avons l'expression suivante, :

$$\ln(\langle \tau \rangle) = \ln(\langle \tau_0 \rangle(T)) + F(E)/D(T) \quad (2-16)$$

où F et D sont des fonctions quelconques respectivement de la hauteur de barrière et de la température.

Nous obtenons

$$M(t) = -D(T) \cdot m_0 \cdot \bar{g}_\gamma \left[\int_{\gamma_{\min}}^{\gamma_{\max}} \left(\frac{\partial F}{\partial E}(E_\gamma) \right)^{-1} \cdot \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \right] \quad (2-17)$$

où les dépendances thermiques sont contenues dans la fonction $D(T)$, dans m_0 et g_γ ou dans les fréquences de coupures de γ_{\min} et γ_{\max} aux bornes de l'intégrale.

Conclusion

A la condition (2-16) de séparabilité des variables d'énergie E et de température T , il est possible d'extraire la dépendance thermique du temps nanoscopique de relaxation d'un macrospin de l'expression de la vitesse de relaxation logarithmique mesurée sur un échantillon macroscopique.

Néanmoins, pour ce faire il est nécessaire de déterminer les dépendances thermiques induites par la distribution, ainsi que du terme m_0 en facteur de la réponse de l'aimantation. Deux scénarios très différents ont été envisagés:

³ Ces origines physiques peuvent être par exemple issues des processus suivants: effet tunnel de l'aimantation [Grabert 1985], bruit quantique [Eckern 1990], réponse au champ extérieur et effet du champ statique [Coffey 1995] : voir le chapitre IV.

- dans le cas (A) la distribution g_E est uniforme et la fenêtre de mesure ΔE représenté par les bornes E_{\max} et E_{\min} se déplace sur la distribution en fonction de la température. Cette situation est classique et elle est vérifiée expérimentalement sur la plupart des matériaux usuels.
- dans le cas (B), la distribution est une distribution des fréquences ou temps de relaxation. Dans l'approximation conduisant à la relaxation logarithmique, les bornes de l'intégrale ne jouent pas de rôle dans la dépendance thermique. Cette fenêtre est très large. Dans le cas général, il existe une relation entre la distribution g_γ et la distribution g_E :

$$\bar{g}_E = \Delta E \Rightarrow \bar{g}_\gamma = 1/[D(T) \cdot \ln(\gamma_1/\gamma_2)] \quad (2-18)$$

Les bornes de l'intégrale en fréquences, c'est à dire les fréquences de coupures, dépendent de la température par la relation

$$\ln(\gamma_1/\gamma_2) = \Delta E / D(T) \quad (2-19)$$

Ce problème sera reconsidéré à la lumière des résultats expérimentaux sur les nanostructures.

L'approche en termes de distribution en fréquence ou temps de relaxation est habituelle dans les travaux réalisés à partir des expériences de susceptibilité alternative. Des études ont été menées dans le cadre des ferrofluides et des verres de spins modélisés en assemblées de monodomains. Cette approche fait l'objet du paragraphe suivant.

I-3 désordre macroscopique et susceptibilité alternative

En raison de la proximité de l'équilibre, les mesures de susceptibilité alternative donnent des informations plus facile à interpréter du point de vue statistique concernant l'action du désordre. Nous nous plaçons ici uniquement dans le cas classique où le temps de relaxation vérifie la loi d'activation de Brown.

Les expériences de susceptibilité alternative permettent de vérifier facilement la validité de l'hypothèse de la réponse linéaire aux variations de champ ΔH . Dans ces expériences, le champ extérieur $H(t) = H_{dc} + \Delta H \cdot \sin \omega t$ est appliqué sur une position

stable de l'aimantation. La réponse de l'aimantation $M(\omega) = \chi(\omega) \cdot \Delta H$ est alors enregistrée en phase et en quadrature par rapport au champ appliqué.

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) - i\chi''(\omega) \quad (3-1)$$

Lorsque le système répond linéairement à l'excitation qu'il perçoit, la relation Fluctuation-Dissipation est valide. La relation Fluctuation-dissipation s'écrit de façon générale

$$\chi''(\omega) = \frac{\pi}{kT} \omega \cdot \langle \tilde{m}^2 \rangle(\omega) \quad (3-2)$$

La réponse en fréquence est reliée directement au spectre en fréquence des fluctuations de l'aimantation notées ici $\langle \tilde{m}^2 \rangle(\omega)$

La réponse linéaire de l'aimantation à une excitation sinusoïdale du champ extérieur dont la fonction de relaxation est l'exponentielle $\exp(-t/\tau)$ (voir annexe):

$$\langle m \rangle(\omega) = \Delta H \chi_0 \cdot \frac{1}{1 + i\omega\tau} \quad (3-3)$$

avec la susceptibilité statique χ_0 donnée par (3-2)

$$\chi_0 = \frac{1}{kT} \langle \tilde{m}^2 \rangle(0) \quad (3-4)$$

A l'échelle macroscopique, l'échantillon est défini par une distribution des temps de relaxation $g(\tau)$ [Bouchiat 1988],[Vitale 1994],[Maraner 1996]. On a, comme dans le cas du traînage magnétique, une intégration sur une distribution qui rend compte du désordre dans l'échantillon:

$$M(\omega) = \Delta H \chi_0 \cdot \int_0^{\infty} \frac{g(\tau)}{1 + i\omega\tau} d\tau \quad (3-4)$$

I-3-1 Distribution de temps de relaxation et bruit en 1/f:

Une distribution uniforme en énergie d'activation sur un intervalle fixé est caractéristique des systèmes désordonnés et donne lieu à la relaxation logarithmique $\ln(t)$ dans le cas du traînage magnétique. Ce comportement en fonction du temps est

Chapitre I

l'équivalent du bruit en $1/f$ dans l'espace des fréquences. Ce type de réponse en fréquence est aussi une caractéristique des systèmes désordonnés.

La distribution correspondante en temps de relaxation est la distribution de Frohlich [Frohlich 1958] avec les bornes τ_1 et τ_2

$$g(\tau) = \begin{cases} \frac{1}{\tau \cdot \ln(\tau_1 / \tau_2)} & \tau_1 \leq \tau < \tau_2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3-5)$$

l'intégrale (3-4) s'effectue [Vitale 1994]

$$M(\omega) = \frac{\Delta H \chi_0}{\ln(\frac{\tau_1}{\tau_2})} \cdot \left[\ln\left(\frac{\tau_1}{\tau_2}\right) - \ln\left(\frac{1 + i\omega\tau_1}{1 + i\omega\tau_2}\right) \right] \quad (3-6)$$

et avec l'approximation d'une distribution très large par rapport aux échelles de mesures $1/\tau_2 \ll \omega \ll 1/\tau_1$ on a

$$M(\omega) \approx \frac{\Delta H \chi_0}{\ln(\frac{\tau_2}{\tau_1})} \cdot \left[-\ln(\omega\tau) - i\frac{\pi}{2} \right] \quad (3-7)$$

La partie imaginaire de la susceptibilité est donc indépendante de la fréquence. Le théorème Fluctuation-Dissipation fournit alors des fluctuations $\langle \delta m^2 \rangle(\omega)$ proportionnelles à $1/\omega$, c'est-à-dire un bruit dit en $1/f$.

I-3-2 Dépendance thermique de la susceptibilité:

La dépendance thermique est contenue dans la moyenne $\langle \tilde{m}^2 \rangle(0)$ ainsi que dans la dépendance thermique de la distribution.

Pour déterminer la dépendance thermique induite par la distribution, nous avons le même problème que dans le cas du traînage magnétique. Nous avons donc décomposé de la même façon, le cas défini par une distribution en énergie fixée (cas (A) du chapitre précédent) et le cas d'une distribution en fréquences ne dépendant pas de la température.

I-3-2 (A) Dépendance thermique de la fenêtre de mesure:

Lors des expériences de susceptibilité alternative, la distribution pertinente concerne les temps de relaxation. Une hypothèse est nécessaire pour faire le lien avec les distributions en énergie. Cette hypothèse passe par une loi du type loi d'activation: pour définir une fenêtre ΔE des barrières d'énergies activées pendant le temps d'observation $\Delta \tau$, on peut supposer que le nombre de particules thermiquement activées, lorsque l'on varie τ dans la fenêtre de mesure $\Delta \tau$, est égal au nombre de particules thermiquement activées lorsque l'on varie E dans la fenêtre ΔE , ceci quelle que soit la température et quelle que soit la largeur de la fenêtre. On a alors:

$$\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} g(E) dE = \int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} f(\tau) d\tau \quad (3-8)$$

Ce qui implique:

$$g(\tau)\Delta\tau = f(E)\Delta E$$

Lorsque la relation d'activation thermique est vérifiée, les bornes de l'intégrale s'écrivent:

$$\begin{aligned} \tau_2 &= \tau_0 \exp\left(\frac{E_{\max}}{kT}\right) \\ \tau_1 &= \tau_0 \exp\left(\frac{E_{\min}}{kT}\right) \end{aligned} \quad (3-9)$$

Soit

$$\ln\left(\frac{\tau_{\max}}{\tau_{\min}}\right) = \frac{\Delta E}{kT} \quad (3-10)$$

En insérant les différentes contributions thermiques dans l'équation (3-7), on a:

$$\begin{aligned} \chi_0 &= \frac{1}{kT} \langle \tilde{m}^2 \rangle(0) \\ M(\omega) &\approx \frac{kT}{\Delta E} \Delta H \frac{\langle \tilde{m}^2 \rangle(0)}{kT} \cdot \left[-\ln(\omega\tau) - i\frac{\pi}{2} \right] \end{aligned} \quad (3-11)$$

soit

$$M(\omega) \approx \langle \tilde{m}^2 \rangle(0) \frac{\Delta H}{\Delta E} \left[-\ln(\omega\tau_2) - i\frac{\pi}{2} \right] \quad (3-12)$$

Dans le cas de deux puits de potentiel séparés par une grande barrière, l'approximation à deux niveaux est valide sur toute la distribution et conduit à des fluctuations proportionnelles à kT à l'approximation $E_{\max} \gg kT$ [Vitale 1994]. Ce résultat rend compte du comportement observé habituellement, et s'apparente au cas du traînage magnétique où le facteur multiplicatif provient d'un processus d'activation thermique. Dans la référence [Maraner 1996], la susceptibilité alternative est mesurée, ainsi que les fluctuations $\langle m^2 \rangle(\omega)$ de façon indépendante. L'échantillon est un système de petites particules confinées dans une matrice. La relation Fluctuation-dissipation (3-2) est vérifiée et la dépendance thermique de la susceptibilité proportionnelle à kT est identique à la dépendance thermique de la vitesse de relaxation $\Delta M/\Delta \ln(t)$ mesurée par traînage magnétique.

I-3-2 (B) fenêtre de mesure indépendante de la température

A basses températures, lorsque la température varie dans un intervalle petit devant la fenêtre des énergies d'activation présentes dans le système, on peut parcourir un spectre très grand de temps d'activation τ (grand par rapport à l'inverse du spectre en fréquences accessible). On retrouve alors la limite (B) du paragraphe précédent où les bornes de l'intégrale ne contribuent pas à la dépendance thermique.

Dans le cas où la distribution ne dépend pas de la température, on a un comportement de la susceptibilité du type:

$$M(\omega) \approx N\Delta H. g_{\gamma} \frac{\langle m^2 \rangle(0)}{kT} \left[-\ln(\omega\tau_2) - i\frac{\pi}{2} \right] \quad (3-13)$$

Discussion

Les résultats (3-12) et (3-14) de la susceptibilité peuvent être comparés aux résultats (2-8) et (2-15) du traînage magnétique. Dans le cas de la susceptibilité alternative, lorsque l'application de la théorie de la réponse linéaire à l'équilibre est validée, le préfacteur m_0 est bien défini et est proportionnel à $\langle m^2 \rangle(0)/T$. En revanche, les fluctuations $\langle m^2 \rangle(0)$ sont liées à un mécanisme d'activation (i.e ils ne sont pas nécessairement stationnaires) et la réponse est difficile à modéliser avec un champ extérieur alternatif (c'est le problème de la résonance stochastique [A. R. Bulsara and L. Gammaitoni, Phys. Today March 1996]). Dans le cas du traînage, au contraire, le temps de relaxation est bien défini par le temps de passage sur la barrière de potentiel, lorsque l'effet de la variation initiale du champ magnétique est négligé. En revanche la quantité d'aimantation m_0 et sa dépendance thermique ne

peut pas être défini dans le modèle de Street et Woolley sans considération plus approfondie sur les systèmes étudiés.

Les informations apportées par les deux approches sont donc complémentaires et donnent la possibilité de préciser l'action des distributions sur le comportement thermique.

Conclusion

Au terme de cette courte revue comparative des processus de relaxation classiques aux échelles nanoscopiques et macroscopiques nous pouvons tirer les quelques remarques suivantes:

- la loi d'activation de Brown est valide sur un large domaine correspondant aux hautes barrières d'énergie. Le temps de relaxation correspond à un unique mode de relaxation: le mode le plus lent (le mode de Néel). Cette loi d'activation exprime le retournement de l'aimantation par passage de la barrière d'anisotropie, du fait uniquement des fluctuations induites par le contact avec un bain thermique. Elle est l'équivalente, en symétrie axiale, de la loi d'Arrhenius. L'effet éventuel de réponse à la variation de champ initial est négligé.
- Le passage de la relaxation exponentielle à une relaxation logarithmique, lorsque l'on somme sur une large distribution de temps de relaxation, est établi avec des hypothèses très larges. Il n'est pas nécessaire, en effet, de supposer une fonction coupure pour la loi de relaxation en fonction de la hauteur de barrière. La prise en compte des fluctuations conduit aussi à la relaxation logarithmique aux approximations étudiées. La forme de la relaxation, par exemple en fonction de Watts, peut conduire de même à une relaxation logarithmique. Une telle relaxation, qui peut rendre compte de mécanismes fondamentaux singuliers (par exemple, dans la référence [Montroll 1884], le processus élémentaire n'est plus décrit par une distribution Gaussienne mais par une distribution de Levy), ne sera pas observable par la seule dépendance temporelle de la relaxation à l'échelle macroscopique.
- Deux limites (A) et (B) sont considérées pour l'action d'une distribution des barrières d'énergie variant très lentement (distribution "localement uniforme"):

Chapitre I

(A) les fluctuations sont négligeables et (B) les fluctuations sont très grandes. Pour la la relaxation exponentielle, elles conduisent toutes deux au résultat $\Delta M / \Delta \ln(t) = m_0 g kT$

où g est soit (A) la distribution en énergie soit (B) la distribution en temps de relaxation.

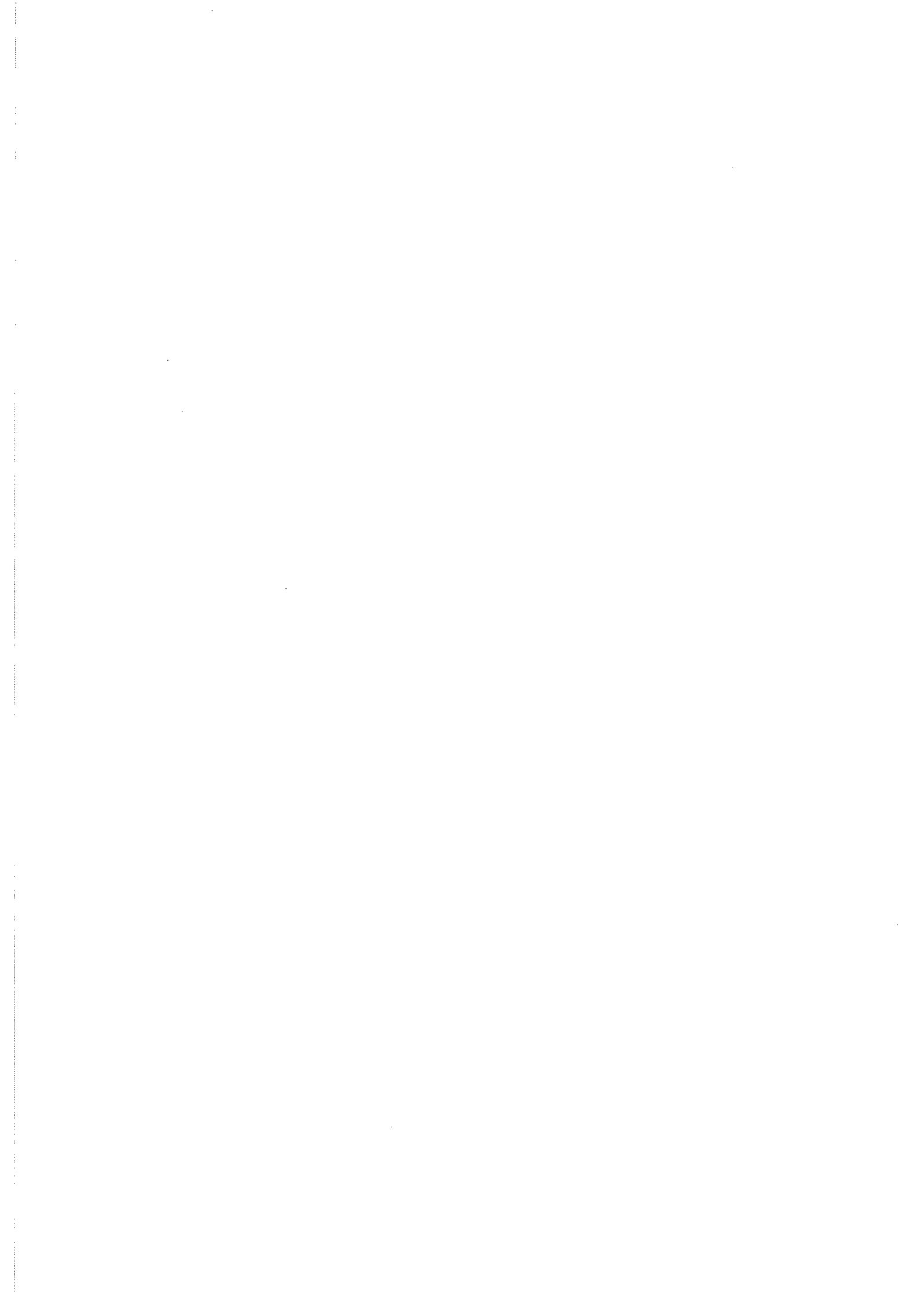
- La forme thermique du temps de relaxation peut être extraite de la vitesse de relaxation mesurée par traînage magnétique, à condition de connaître l'influence de la distribution des temps de relaxation.

- La généralisation à une dépendance thermique du temps de relaxation de la forme $\ln(t(H,T)) = E/D(T)$, où $D(T)$ est un "bruit" ou coefficient de diffusion, et l'énergie $E(H) = cH$ est proportionnelle à H (voir les chapitre II et III) conduit à: $\Delta M / \Delta \ln(t) = m_0 g D(T) / c$

Chapitre II

Mesure de relaxation sur des nanostructures magnétiques lithographées

Introduction	41
II-1 Elaboration	44
II-1-1 Echantillon de Co ₈₁ Zr ₉ Mo ₈ Ni ₂	44
II-1-2 Echantillon de Co	48
II-2 Etude de la dynamique de particules de CoZr en réseau bi-dimensionnel	51
II-2-1 Caractérisation magnétique	51
II-2-2 Protocole de mesures de traînage magnétique	57
II-2-3 Variation de l'aimantation en fonction du temps	59
II-2-4 Variation de la vitesse de relaxation en fonction du champ appliqué	61
II-2-5 Variation de la vitesse de relaxation en fonction de la température	63
II-2-6 Susceptibilité statique et susceptibilité alternative	65
Conclusion	70
II-3 Etude de la dynamique de particules de Co mesurées en réseau bi-dimensionnel et mesurées individuellement	73
II-3-1 Caractérisation magnétique	73
II-3-1 (a) Caractérisation magnétique à l'échelle nanoscopique ..	77
II-3-1 (b) Caractérisation magnétique à l'échelle macroscopique	80
Résumé	82
II-3-2 Protocole de mesure de traînage magnétique	84
II-3-3 Variation de l'aimantation en fonction du temps	84
II-3-3 (a) Loi de relaxation à l'échelle nanoscopique	85
II-3-3 (b) Variation de l'aimantation en fonction du temps à l'échelle macroscopique	87
Résumé	88
II-3-4 Variation de la relaxation en fonction du champ appliqué	89
II-3-4 (a) Temps moyen de retournement en fonction du champ appliqué à l'échelle nanoscopique	90
II-3-4 (b) Variation de la relaxation en fonction du champ appliqué à l'échelle macroscopique	91
Résumé	94
II-3-5 La variation de la relaxation en fonction de la température	95
II-3-5 (a) Temps moyen de retournement en fonction de la température à l'échelle nanoscopique	95
II-3-5 (b) Variation de la relaxation en fonction de la température à l'échelle macroscopique	99
II-4 De la particule individuelle au réseau de particules	101
Discussion	106
Conclusion du chapitre II	106



CHAPITRE DEUX

Mesures de relaxation sur des nanostructures magnétiques lithographées

Introduction

Les échantillons étudiés dans ce chapitre sont des ellipses magnétiques de taille submicronique élaborés à partir des techniques de lithographie électronique. L'accès à ces nanostructures, rendu possible grâce à une collaboration avec le Laboratoire de Microélectronique LMM de Bagnoux, couplé à une collaboration permanente avec le Centre de Recherche sur les Très Basses Températures, a permis une étude statistique expérimentale de la relaxation de ces ellipses individuellement et en réseau.

Le grand axe des ellipses est de l'ordre de 30 à 100 fois la longueur d'échange $l_e = \sqrt{A/M^2}$ qui caractérise la "rigidité microscopique" des spins dans un matériau ferromagnétique de constante d'échange A et de champ dipolaire induit par la densité d'aimantation M (voir pages suivantes). L'épaisseur des ellipses est de quelques longueurs d'échange.

Il est donc possible d'envisager pour ces structures l'existence d'effets mesoscopiques dans la dynamique de l'aimantation, par analogie avec les effets mesurés lors des expériences de transport de charges électriques, lorsque les longueurs de diffusion deviennent du même ordre que la taille des échantillons [Imry 1991], [Mathur 1995].

Une des caractéristiques essentielles des expérimentations à l'échelle mesoscopique est l'aspect nécessairement statistique des mesures. Le système mesoscopique étudié est constitué de plusieurs sous-systèmes, spins ou agrégats de spins, dont le nombre n'est plus nécessairement suffisant pour que la loi des grands nombres soit vérifiée. En d'autres termes, les fluctuations autour des valeurs moyennes ne peuvent plus être négligées. Les grandeurs ne prennent sens que lorsqu'il est possible de définir leur moyenne avec leur écart type.

Par conséquent, à l'échelle mesoscopique, seules sont utilisables les grandeurs qui survivent aux moyennes sur de vastes distributions de paramètres microscopiques, ou sur un grand nombre de réalisations d'un événement défini microscopiquement. Typiquement, lors des expériences de retournement de l'aimantation, ces réalisations seront définies par les défauts dans le volume ou les différentes configurations des spins de la surface.

Lorsque, en outre, pour des raisons pratiques, les échantillons mesurés sont macroscopiques et constitués d'un grand nombre (10^6 ou 10^7) de systèmes mesoscopiques, un deuxième processus de moyenne intervient sur l'ensemble des sous-ensembles mesoscopiques. L'ensemble des paramètres définis à l'échelle précédente est encore soumis à une deuxième sélection aléatoire, caractérisant la structure de l'échantillon à l'échelle macroscopique. Les fluctuations ne sont alors plus accessibles directement mais se manifestent en particulier dans les propriétés dynamiques. D'autres caractéristiques émergent à l'échelle macroscopique et sont dues uniquement à ce deuxième processus de moyenne statistique, comme typiquement l'existence de relaxation en logarithme du temps.

Cette décomposition à deux étages mesoscopiques et macroscopiques, est habituellement une trop grossière modélisation des systèmes magnétiques amorphes. La réalité des matériaux désordonnés fait que le processus de moyenne statistique doit être considéré continûment à toutes les échelles intermédiaires. Les distributions de paramètres sont imbriquées les unes dans les autres comme par exemple dans le modèle des gouttelettes décrivant les verres de spins [Fisher 1988] ou celui des répliqués. Les comportements mesurés à grande échelle sont alors le fruit des sélections et amplifications statistique successives et il n'existe plus de lien intuitif entre le microscopique et le macroscopique. C'est bien ce qui se passe pour les deux modèles des verres de spins cités ci-dessus (ou pour les théories stochastiques des phénomènes sociaux ou économiques).

A ce titre, les nanostructures magnétiques lithographées présentées dans ce chapitre constituent un système modèle. La possibilité d'effectuer des mesures dynamiques aux deux échelles permet de réaliser effectivement cette séparation idéale entre les effets statistiques mesoscopiques, propres aux nanostructures magnétiques, et les moyennes macroscopique traduisant les effets de structure à grande échelle. C'est principalement cet aspect que nous nous proposons d'illustrer dans ce chapitre.

Par ailleurs, cette étude permet de mettre en évidence le comportement tout à fait singulier de la dépendance thermique de la dynamique, en particulier à basse température. Cette singularité est attestée ici à la fois à l'échelle macroscopique et à l'échelle nanoscopique. Dans le premier cas, les mesures de traînage magnétique conduisent à un profil thermique de la vitesse de relaxation fortement décroissant, sans commune mesure avec les résultats habituels, linéaires et croissants en température (modélisés par Louis Néel et Street et Wooley à la fin des années 40). Dans le second cas, on mesure une dépendance thermique du temps moyen de saut de l'aimantation très éloignée d'un processus d'activation thermique simple.

Dans une première partie (II-1) nous présentons des résultats généraux de mesures de traînage magnétique sur un réseau bi- dimensionnel. Ce réseau est constitué de plots

Chapitre II

magnétiques lithographés de CoZr de forme elliptique d'axes 1000nm, 800nm et 50nm d'épaisseur.

Dans une deuxième partie (II-2), nous présentons une étude comparative entre des mesures de traînage magnétique sur un réseau bi-dimensionnel et des mesures de relaxations sur une particule individuelle. Ces particules ont pour tailles 300 nm, 200 nm et leur épaisseur est de 35 nm. Les mesures à l'échelle macroscopique donnent la variation d'aimantation $M(t)$ dans le temps. Les mesures à l'échelle de la particule individuelle permettent de définir une entité magnétique par une discontinuité de l'aimantation m_0 fixée, qui se retourne "instantanément" à un temps τ . L'étude statistique de la relaxation donne alors la possibilité d'accéder indépendamment au temps de relaxation moyen $\langle\tau\rangle(H,T)$ et de la loi de relaxation $1-P(t)$ qui est la probabilité de retournement mesurée.

Avertissement: Les unités sont exprimées dans le système CGS et non dans le Système International d'unité (MKSA) . Les transformations en SI sont les suivantes:

	CGS	SI
<i>L'aimantation est donnée en emu ou</i>	<i>emu = erg/G</i>	
	<i>1 emu</i>	<i>-> 10^{-3} A.m²</i>
	<i>1 emu</i>	<i>-> 10^3 J/T</i>
	<i>1 emu/cm³</i>	<i>-> 10^3 A/m</i>
<i>Le champ magnétique H est donné en Oersted et peut être pris comme une induction en SI</i>	<i>H=1 Oe</i>	<i>-> $\mu_0 H=10^{-4}$ Tesla</i>
<i>Densité d'énergie (anisotropie K)</i>	<i>erg/cm³</i>	<i>-> 10^{-1} J/m³</i>
<i>Densité d'énergie (échange A)</i>	<i>erg/cm</i>	<i>-> 10^{-5} J/m</i>
<i>Facteur démagnétisant N</i>	<i>N</i>	<i>-> $N/4\pi$</i>
<i>Magnéton de Bohr</i>		<i>$\mu_B = 9,274 \cdot 10^{-24}$ SI.</i>

II-1 Elaboration

Les techniques de lithogravure par jets électroniques ne seront pas présentées ici en détails (voir l'Ecole thématique d'Aussois "nanostructures Magnétiques" 20-25 Mars 1995, cours de D. Mailly), pas plus que les techniques de mesure sur microSQUID lithographé, [exposées en détails dans la thèse de W. Wernsdorfer ["Magnétométrie à micro-SQUID pour l'étude de particules ferromagnétiques isolées aux échelles sub-microniques", thèse de l'Université Joseph Fourier, 19 Mars 1996], et voir aussi l'Ecole thématique d'Aussois "nanostructures Magnétiques" 20-25 Mars 1995, cours de A. Benoit].

La lithogravure permet d'élaborer un masque, défini à quelques dizaines de nanomètres près, sur un support en résine PMMA (PolyMethyl-MetAcrylate) susceptible d'être dissous dans un solvant.

Deux techniques ont été utilisées:

Soit le masque est posé une fois que la couche de matériau a été déposée. La couche est alors insolée avec le masque. Après dépôt d'une couche d'aluminium protectrice, le motif se dessine (en aluminium) par dissolution de la résine dans un solvant. Les parties de la couche magnétique non protégées par l'aluminium sont ensuite éliminées par exposition à un faisceau d'Ar⁺.

Soit le masque, réalisé préalablement, est appliqué sur un support (Si ou AsGa) et on procède alors à la pulvérisation du matériau sur le masque. Le masque est ensuite dissout dans un solvant et laisse apparaître directement le motif.

Ces techniques permettent de réaliser les réseaux de particules ainsi que les microSQUID en niobium avec la particule individuelle déposée sur le microSQUID.

II-1-1 Echantillon de Co₈₁Zr₉Mo₈Ni₂

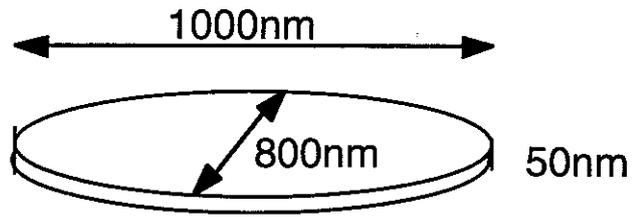
L'échantillon de Co₈₁Zr₉Mo₈Ni₂ dont les résultats sont présentés en (II-2-1) a été réalisé par insolation au Laboratoire de Bagneux, après que le dépôt de la couche de Co₈₁Zr₉Mo₈Ni₂ ait été réalisé au Laboratoire de Meudon par pulvérisation cathodique. Les particules ont une forme elliptique et leur taille est 1000 nm de long, 800nm de large et 50nm d'épaisseur. Le pas du réseau est de 2000 nm.

L'échantillon en réseau bi-dimensionnel a donné lieu à une étude du traînage magnétique, dont les résultats majeurs sont présentés ici. Par contre, pour ce premier échantillon, l'étude comparative avec les particules mesurées individuellement n'a pas eu lieu. Ces particules d'alliage amorphe et de tailles micrométriques ont un comportement complexe à l'échelle d'une particule et se sont révélées peu intéressantes du point de vue de l'étude micromagnétique. Des mesures de cycles d'hystérésis réalisées indépendamment sur des particules identiques en composition et en taille, et similaires en structure, fournissent néanmoins quelques informations (voir Figure (2-2) ci-dessous).

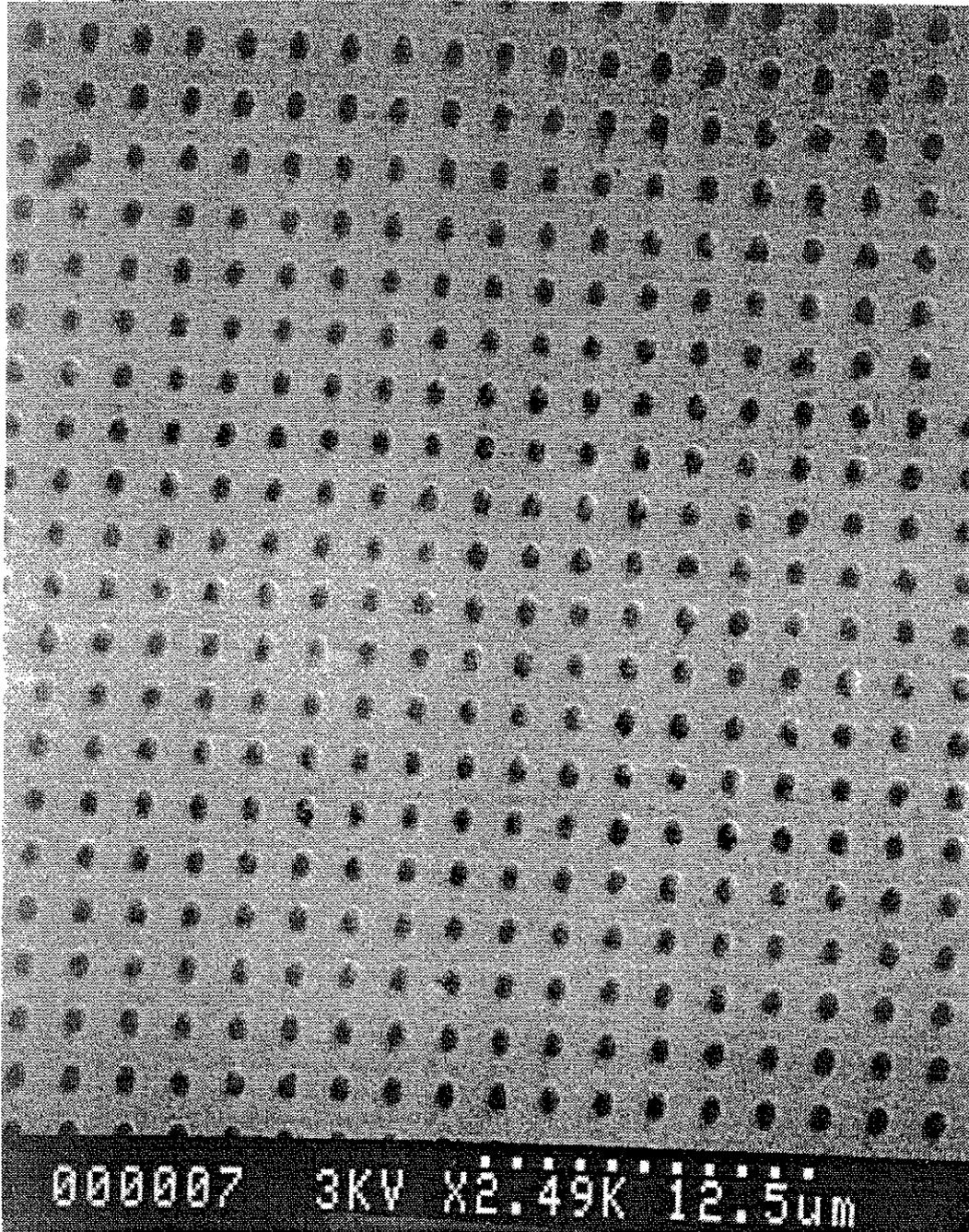
La composition de la couche a été choisie en raison des caractéristiques magnétiques et mécaniques¹ de l'amorphe $\text{Co}_{81}\text{Zr}_9\text{Mo}_8\text{Ni}_2$ en couche mince. Ce matériau amorphe a une anisotropie magnétocristalline nulle¹. La couche a été déposée sous champ, lors de la pulvérisation cathodique, de façon à induire une anisotropie uniaxiale. Cette anisotropie induite correspond à un champ d'anisotropie de l'ordre de l'Oersted, déduit des mesures perpendiculaires et parallèles de la couche, effectuées avant la lithogravure.

L'anisotropie des ellipses magnétiques est essentiellement produite par l'action du champ démagnétisant. Cette énergie détermine à priori la barrière d'énergie d'anisotropie que doit franchir l'aimantation entre un état de saturation le long d'un axe et l'état de saturation inversé (voir par exemple modèle de Stoner-Wohlfart [Stoner 1949] pour le renversement uniforme de l'aimantation). L'énergie d'anisotropie détermine aussi la largeur du cycle d'hystérésis par le champ d'anisotropie. Dans ce cas où l'anisotropie provient uniquement de l'anisotropie de forme, la largeur du cycle est déductible (approximativement) du calcul des coefficients démagnétisants. Nous avons donc initialement choisi la forme des particules par rapport aux contraintes de champ que pouvaient supporter les premiers microSQUID en aluminium montés sur le cryostat au CRTBT.

¹ d'après M Naili, thèse, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI (1990),



Réseau de 10^6 particules de CoZr. MicroPhotographie a balayage, LMM, Bagnoux:



échantillon de $\text{Co}_{81}\text{Zr}_9\text{Mo}_8\text{Ni}_2$ en réseau :

température de Curie de l'alliage
la couche n'est plus amorphe).

$T_c > 700$ K (au delà de 700K,

substrat

AsGa

pas du réseau nm	volume d'une particule (cm^3)	densité d' aimantation (emu/cm^3)	moment du spin de l'alliage ¹ (μ_B)
1 = 2000	$v = \pi \cdot 10^{-14}$	$M = 560$	$1.1\mu_B$

aimantation d'une particule (emu)	nombre de spins par particule	nombre de particules dans le réseau	
$m_s \approx 10^{-11}\text{emu}$	$n \approx 10^9$	$N \approx 10^6$	

Le champ d'interaction dipolaire (a)	Champ d'anisotropie de forme H_a (b)	l'énergie d'anisotropie de forme (c)	constante magnétocristalline (couche nanocristallisée) (d)
$H_{\text{dip}} < 10$ Oe	$4\pi M_s \cdot \delta N \approx 100$ Oe	$E_a \approx 5 \cdot 10^6$ K	$K \approx 1$ Oe

(a) produit par une particule sur sa voisine: $H_{\text{dip}} \approx \frac{\mu_0}{4\pi} \cdot \frac{m_s}{l^3}$

(b) δN est la différence des facteurs démagnétisants entre les deux axes du plan. Le calcul numérique de H_a est donné en fonction de l'ellipticité (calculé ci-dessous)

(c) donnée ici en champ nul. Avec un champ non nul, l'énergie d'anisotropie est (relation empirique) $E = (E_a + E_c)(1 - H/H^0)^\alpha$ où α est un exposant qui dépend du système: 2 pour un système monodomaine idéal et 3/2 pour une paroi de Bloch rigide. Le champ H^0 est le champ de retournement à température nulle. Pour les particules de Co nanolithographées, E_c est négligeable devant E_a [Wernsdorfer 1996thèse].

(d) mesuré sur la couche non lithographée: cette anisotropie est l'anisotropie induite lors de la pulvérisation cathodique sous champ.

Couplage thermique entre les particules:

La caractéristique remarquable de cet échantillon par rapport au échantillon plus usuels sur lesquels le traînage magnétique est étudié, provient de l'aspect bidimensionnel. Toute la surface des particules est en contact avec le thermostat, soit par l'intermédiaire du substrat, soit par la face libre. Les particules du réseau sont donc indépendantes thermiquement. Il est impossible que la chaleur dissipée par le retournement de l'aimantation d'une particule soit vue par sa voisine.

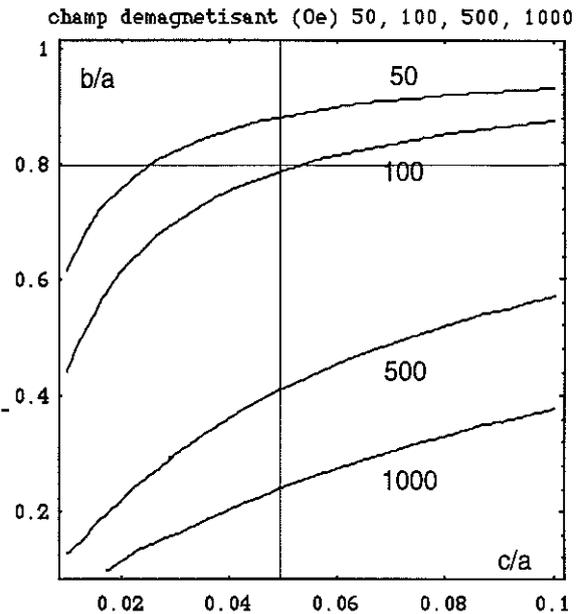
Appendice: Calcul numérique du champ démagnétisant dans le plan (a,b) d'un ellipsoïde de révolution de coté a, b et c en fonction des rapports a/c et b/c

Le schéma ci-dessus est obtenu par le calcul des facteurs démagnétisant (tiré de la référence J. A. Osborn Phys. Rev. 67(1945),351) à l'aide des fonctions elliptiques de premier et second ordre

$$\text{suivantes, } F(q, m) = \int_0^q [1 - m \cdot \sin^2 \lambda]^{-1/2} d\lambda$$

$$\text{et } E(q, m) = \int_0^q [1 - m \cdot \sin^2 \lambda]^{1/2} d\lambda \text{ pre-}$$

programmées sur "Mathematica". On a noté: $\cos(q)=c/a$, $\sin(j)=b/a$ et $m=[\sin(j)/\cos(q)]^2$



L'anisotropie de forme est donc donnée par la différence des coefficients démagnétisants M et L dans le plan de la couche. Le coefficient le long de l'axe perpendiculaire à la couche est noté N_d et est donné par l'égalité (CGS): $4\pi = M+L+N_d$

Le programme se résume au quelques lignes suivantes (pour une réutilisation aisée sur Mathematica):

```
"ms:=560;
q:=ArcCos[x];
j:=ArcCos[y];
k:=Sqrt[((1-(y)^2)/(1-(x)^2));
m:=k^2;
PrefL:=(Cos[j] Cos[q])/((Sin[q]^3) m);
PrefM:=(Cos[j] Cos[q])/((Sin[q]^3) m (1-m));
L:=PrefL*(EllipticF[q, m]-EllipticE[q, m]);
M:=PrefM*(EllipticF[q, m]-(1-m) EllipticF[q, m]-(m Sin[q] Cos[q]/Cos[j]));
Nd:=PrefNd*(Sin[q] Cos[j]/Cos[q]-EllipticE[q, m]);
H:=4 Pi ms (M-L);
ContourPlot[H, {x, 0.01, 0.1}, {y, 0.1, 1},
Contours -> {50, 100, 500, 1000}]"
```

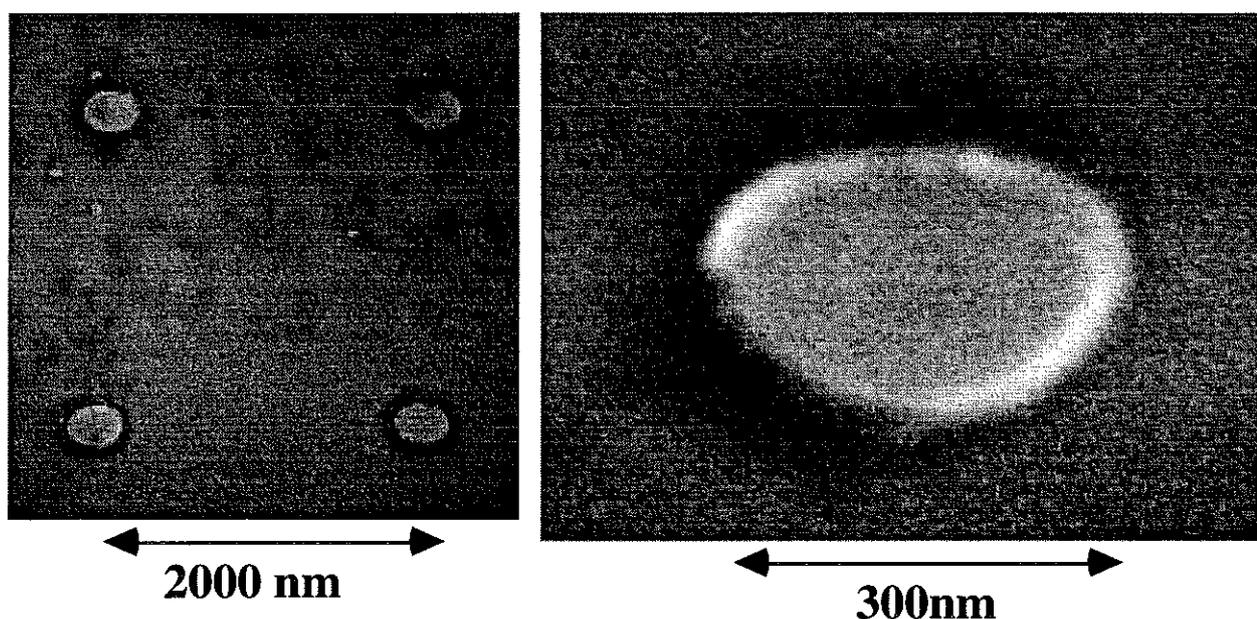
Chapitre II

II-1-2 Echantillon de Co

Grâce à la réalisation préalable des masques, par D. Mailly au Laboratoire LMM, nous avons pu élaborer simultanément au Laboratoire Louis Néel, dans une même opération de pulvérisation cathodique de Co, l'échantillon comportant le micro-SQUID avec le dépôt de la particule individuelle de Co et l'échantillon en réseau d'environ 10^7 particules de Co. Les échantillons sont protégés par 10 nm de Si. Les deux échantillons sont par la suite traités dans un solvant par une technique classique de "lift-off". Nous pouvons donc garantir que du point de vue de la structure cristallographique, de la stoechiométrie et du taux d'impureté, les deux échantillons sont identiques.

La diffraction X met en évidence une structure nanocristalline de grains d'environ 5 à 10 nm. Les mesures magnétiques de la couche (sur vibratomètre) montrent l'existence d'un champ coercitif de 30 Oe à 4K.

Photographie par microscopie électronique à balayage:(LMM Bagnex CNRS)



La température de Curie est
Substrat

$T_c = 1200$ K
Si

pas du réseau nm	volume d'une particule (cm^3)	densité d' aimantation (emu/cm^3)	moment du spin de l'alliage (μ_B)
1 = 2000	$v = 1.6 \cdot 10^{-15}$	$M = 1300$	1.2

l'aimantation d'une particule (emu)	nombre de spin par particules	nombre de particules dans le réseau	
$m_s \approx 2 \cdot 10^{-12}$	$n \approx 2 \cdot 10^8$	$N \approx 10^7$	

Le champ d'interaction dipolaire (a)	Champ d'anisotropie de forme (b) H_a (Oe)	l'énergie d'anisotropie de forme (c)	constante d'anisotropie (d) magnétocristalline
$H_{dip} < 1$ Oe	$4\pi M_s \delta N \approx 800$ Oe	$E_a \approx 8 \cdot 10^5$ K	$K \approx 13000$ (Erg/cm ³)

(a) produit par une particule sur sa voisine est de l'ordre de l'Oersted.

(b) δN est la différence des facteurs démagnétisants entre les deux axes du plan. Le calcul numérique de H_a est donné en fonction de l'ellipticité

(c) donnée ici en champ nul. Avec un champ non nul, l'énergie d'anisotropie est (relation empirique) $E = (E_a + E_c)(1 - H/H^0)^\alpha$ où α est un exposant qui dépend du système: 2 pour un système monodomaine idéal et 3/2 pour une paroi de Bloch rigide. Le champ H^0 est le champ de retournement à température nulle. Pour les particules de Co nanolithographées, E_c est négligeable devant E_a .

(d) mesuré approximativement sur la couche non litographée: cette anisotropie est la résultante de l'anisotropie magnétocristalline des nano-cristaux qui composent la couche.

En outre, la constante d'échange A est connue pour le Co: $A = J \cdot S^2 / a$ où J est la constante d'échange, S la valeur du spin et a la distance interatomique.

$$A \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ erg/cm}$$

la longueur d'échange est $l_e = \sqrt{A/M^2}$

$$l_e \approx 7 \text{ nm}$$

l'épaisseur de paroi est $d = \sqrt{A/K}$

$$d = 30 \text{ nm}$$

Notons que le champ d'interaction dipolaire H_{dip} entre particules est négligeable par rapport au champ d'anisotropie de forme (les deux champs sont calculés à l'emplacement de la particule).

Couplage thermique entre les particules:

De même que pour l'échantillon précédent, la caractéristique remarquable de cet échantillon par rapport aux échantillons plus usuels sur lesquels le traînage magnétique est étudié, provient de l'aspect bidimensionnel. La quasi totalité de la surface de l'échantillon est en contact direct avec le thermostat.

II-2 Etude de la dynamique de particules de CoZr en réseau bi-dimensionnel

La caractérisation de l'échantillon est facilitée par la bonne connaissance de sa structure à l'échelle nanoscopique. Néanmoins, du fait de la complexité et de la coexistence de plusieurs modes possibles de retournement d'une seule particule, les résultats des mesures sur le réseau ne peuvent pas être déduits a priori des hypothèses simples concernant le retournement des particules individuelles et certains résultats sont surprenants. Nous nous posons aussi la question de savoir si le changement d'échelle de une particule à un million est susceptible de produire des variations qualitatives importantes dans les propriétés magnétiques.

II-2-1 Caractérisation magnétique

Le cycle d'hystérésis est présenté Figure (2-1) à 4.2K avec la courbe de première aimantation. Ce cycle a été mesuré au magnétomètre SQUID à extraction. La vitesse moyenne de variation du champ magnétique est environ de 7 Oe par minute. La variation d'aimantation entre les deux états de saturation est étalée sur environ 200 Oe. L'état de saturation n'est atteint qu'au delà de 500 Oe. Le cycle a été mesuré jusqu'à 1kOe. Le diamagnétisme du substrat AsGa et du porte-échantillon (paille en plastique et Teflon autocollant) est visible: il est de l'ordre de $0.5 \cdot 10^{-8}$ emu/Oe (ce qui correspond au diamagnétisme produit par une dizaine de milligrammes de substrat d'AsGa).

La Figure(2-2) permet d'effectuer une comparaison entre le cycle du réseau de particules de la Figure(1) et les cycles d'hystérésis effectués sur deux particules individuelles (à 0.2K). Les deux particules de CoZr, élaborées indépendamment sur microSQUID, sont de compositions identiques et de tailles comparables aux particules du réseau. Les deux particules ont visiblement des caractéristiques relativement éloignées entre elles. Leurs champs coercitifs, ou champs de retournement, sont distants d'une centaine d'Oersted (les fluctuations de champs de retournement, c'est-à-dire la variation à chaque cycle pour la même particule, sont de l'ordre de 5 à 6 Oe [Wernsdorfer 1995a]). Ces différences de champs de retournement semblent bien refléter des variations de forme ou de structure des particules que l'on peut rencontrer dans le réseau. La "courbure" du cycle du réseau par rapport au cycle des particules individuelles initialement droit a donc pour origine ces variations des paramètres des particules. De telles distributions de paramètres nanoscopiques, qui seront définies en II-3, pourront donc être décrites par la dérivée dM/dH qui donne la courbure. Notons qu'à l'échelle d'une particule, la dérivée du saut d'aimantation n'est pas définie. Elle doit être représentée par une distribution, idéalement

du type $\delta(H-H_{sw})$, en pic de Dirac (voir Figure(2-2)). Cependant, l'ensemble des sauts construit une courbe $M(H)$ qui est dérivable partout. La grandeur dM/dH donne donc un moyen de mesurer le désordre qui apparaît lorsque l'on passe des mesures sur une particule aux mesures sur le réseau composé d'un ensemble de particules qui ne sont pas identiques entre elles à l'échelle nanoscopique.

Figure (2-1)

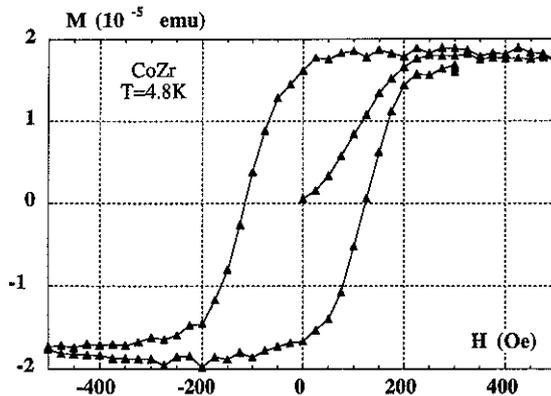


Figure (2-1): Cycle d'hystérésis du réseau de 10^6 particules de CoZr de taille (1000nm, 800nm, 50nm) mesuré à 4.2K. Le cycle est mesuré sur un SQUID à extraction (Quantum design). Le champ est appliqué dans le plan le long de l'axe de facile aimantation.

Figure(2-2)

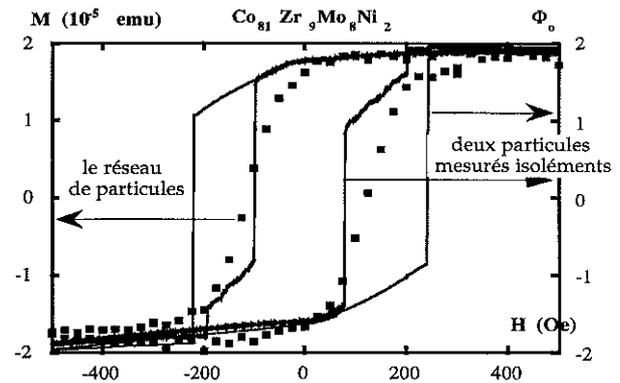


Figure (2-2): Comparaison entre le cycle d'hystérésis du réseau de particules (échelle de gauche) et les cycles d'hystérésis de deux particules individuelles (échelle de droite en unité ϕ_0 de quantum de flux). Les particules individuelles sont mesurées sur Micro-SQUID.

Les deux particules de CoZr mesurées individuellement ont des champs de nucléation très éloignés. On peut observer que, avant et après la nucléation (en amont et en aval du saut d'aimantation par rapport au sens de déplacement du champ), une multitude de micro-sauts ont lieu. Ce phénomène s'apparente à un déplacement de paroi ou de vortex. Le saut représente une discontinuité d'une configuration à une autre, responsable majoritairement de la variation de l'aimantation totale. L'hystérésis mesurée sur le réseau semble simplement être la somme des hysteresis individuelles des particules approximativement indépendantes.

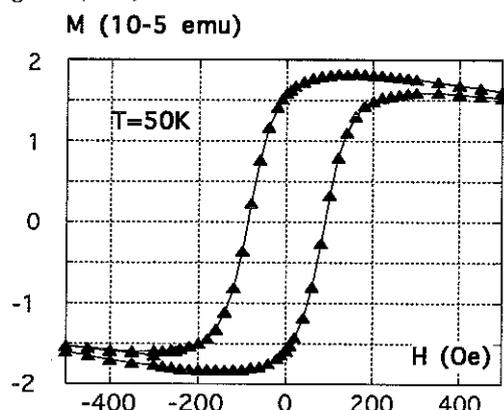
Cette description en termes de distribution d'hystérésis élémentaire correspond au modèle de Preisach ou Néel [Preisach 1935][Néel 1958][Mayergoyz 1992] de l'hystérésis dont le réseau est une réalisation particulièrement simple. Dans le cas du réseau en effet, l'absence d'interaction entre particules (i.e. le champ moyen créé par les autres particules est négligeable) fait que toutes les hystérésis élémentaires sont centrées en zéro.

Néanmoins deux complications par rapport au modèle de Néel ou Preisach s'ajoutent dans le cas de nos échantillons:

- d'une part le fait que les particules ne sont pas monodomaines: la configuration micromagnétique à champ fixe n'est pas la même à différentes températures: ce point est mis en évidence à travers les Figures (2-4) à (2-6).
- D'autre part il nous faut considérer les mécanismes de la relaxation y compris dans les mesures dites "quasi-statiques": Il apparait en effet que les problèmes de relaxation ne sont pas réductibles dans notre cas à un simple phénomène d'activation thermique comme celui utilisé par Néel. Ceci est mis en évidence par la Figure (2-6) et (2-7).

Le cycle d'hystérésis à 50K est présenté Figure (2-3). Les cycles d'hystérésis en fonction de la température restent inchangés de 10K à la température ambiante. En revanche, le cycle subit des modifications pour les températures inférieures à 10K.

Figure (2-3)



Figures (2-3) : Ce cycle d'hystérésis à 50K été réalisé avec un dispositif SQUID à extraction. (Metronic Instrument) Le porte-échantillon est en Plexiglas et Téflon autocollant (diamagnétisme mesuré de $1.2 \cdot 10^{-8}$, du même ordre de grandeur que précédemment). La contribution diamagnétique n'a pas été corrigée ici.

La question se pose de déterminer l'origine de ces variations à basse température. Trahissent-elles l'effet d'une modification de structures des spins à l'intérieur de chaque particule individuelle ou alors est-ce l'effet des interactions entre les particules dans le réseau ?

Ces effets, visibles sur les mesures statiques et quasi-statiques, se répercutent sur les mesures dynamiques. La Figure (2-4) montre les variations du champ H_M . Ce champ est défini comme étant la valeur du champ au maximum des courbes de vitesse de relaxation $[\Delta M / \Delta(\ln(t))]$ en fonction de H (voir Figure (2-10)). Les variations thermiques de H_M sont comparables aux variations thermiques du champ coercitif H_c . Notons que ces variations s'étalent sur une centaine d'Oersted, soit environs 50% de la valeur du champ coercitif.

La comparaison avec les mesures du champ de retournement effectuées sur les particules individuelles (Figure (2-5)), montre que les deux variations sont du même ordre de grandeur. Ceci suggère que ces effets ne proviennent pas du réseau mais rendent compte des changements dans une particule (changement de la structure globale, de la structure de surface ou de l'action des impuretés) en fonction de la température.

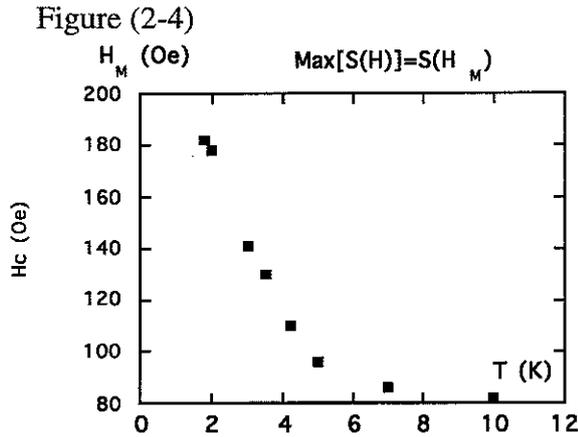


Figure (2-4): variations du champ H_M , équivalent dynamique des variations de champ coercitif H_c , en fonction de la température. Ces variations $H_M(T)$ sont tirées de la Figure (2-10) du paragraphe suivant.

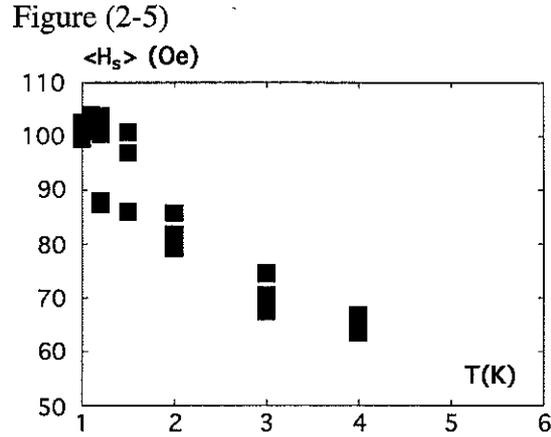


Figure (2-5): variations du champ de retournement mesurées sur les particules individuelles en fonction de la température.

La compréhension de ce problème nécessite une étude des différentes structures micromagnétiques susceptibles de prendre place dans la particule lors du retournement de l'aimantation en fonction du champ appliqué et de la température. A cela s'ajoute la dimension dynamique du problème: l'effet de la vitesse de déplacement du champ, ou encore l'effet du refroidissement sous champ.

L'étude des différentes configurations micromagnétiques, approchées par exemple par simulation numérique [R. Ferré, thèse] [W. Wernsdorfer, thèse], donne une idée de la dynamique quasi-statique et permet une description du cycle d'hystérésis. Les différentes configurations et modes de retournement associés sont assez bien compris, tout au moins en ce qui concerne les modes de retournement uniformes (voir par exemple les travaux de Stoner et Wohlfart [Stoner 1949], de Brown [Brown 1963], Aharoni [Aharoni 1966] et Fredkin [Fredkin 1990]). Les énergies et longueurs caractéristiques de la particule permettent de simuler correctement le cycle d'hystérésis. Néanmoins, les études de la relaxation, par exemple les expériences récentes de Lederman et Shultz [Lederman 1994],

Chapitre II

et les expériences présentées dans les références [Wernsdorfer 1995-1996] et dans le présent mémoire, ont mis à défaut les modélisations simples d'activation thermique au dessus de la barrière de potentiel définie par les calculs micromagnétique.

Il nous semble qu'à l'échelle du réseau, il faille différencier la dynamique du système conduit par un champ (cycle d'hystérésis) de la dynamique du système qui relaxe à un champ fixé (traînage magnétique). Il faut prendre en compte les protocoles respectifs des mesures d'hystérésis par parcours continu du champ et les mesures de relaxation où l'état du système est ré-initialisé à chaque champ. La comparaison est plus facile à propos des mesures sur particules individuelles où chaque cycle représente une réalisation du désordre et apporte des informations sur les centres de nucléation et leur évolution en température. Nous reviendrons sur ce problème dans la partie (II-3) et la conclusion, avec les mesures sur une particule de Co.

Figure (2-6)

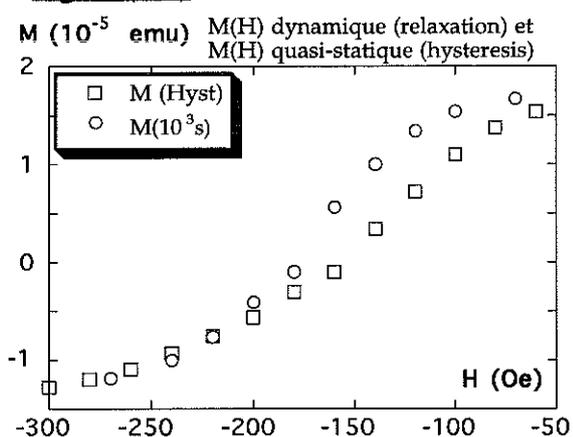


Figure (2-6): mise en évidence de la différence entre la dépendance en champ magnétique appliqué de l'aimantation issue des mesures quasi-statique, prises lors du parcours du cycle d'hystérésis (symboles carrés) et l'aimantation issue des mesures de relaxation 10^4 secondes après le changement de champ prise lors du traînage magnétique (symboles ronds).

Ces différences sont accentuées lorsque l'on compare les dérivés des courbes $M(H)$ où M est prise dans différentes situation.

Les Figures (2-6) et (2-7) illustrent les différences déterminantes dans le choix de nos paramètres d'étude, entre mesure quasi-statique et mesure de relaxation. La Figure (2-6) met en évidence une différence entre les mesures d'aimantation en fonction du champ $M(H)$ lors du parcours du cycle d'hystérésis et les mesures de $M_{t_0}(H)$ pendant la relaxation en un temps $t=t_0$ et sous champ appliqué H . Notons que pendant une décade et demi de temps, l'aimantation varie au plus de l'ordre de 10% (voir paragraphe II-2-3).

Figure (2-7)

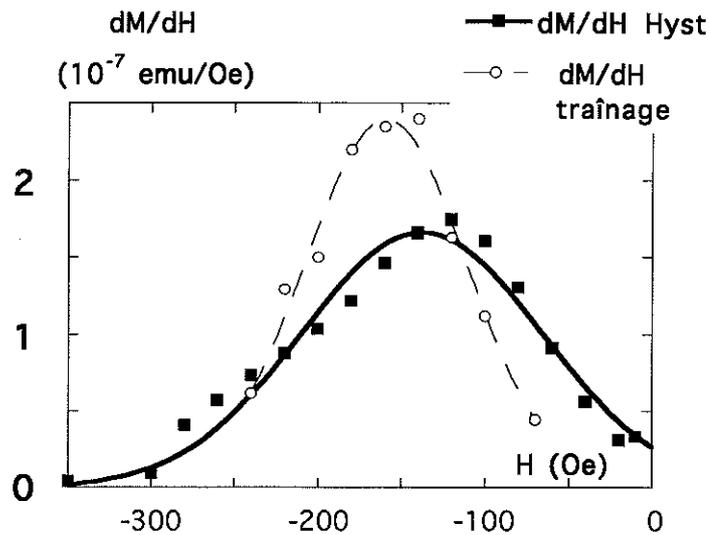


Figure (2-7): comparaison entre le paramètre dM_t/dH des mesures de traînage magnétique et le paramètre dM/dH déduit des mesures quasi statiques du cycle d'hystérésis. L'aimantation M_t est prise durant la relaxation au temps $t=10^4$ s. La dérivée dM_t/dH est ajustée par une fonction Gaussienne étudiée au paragraphe (II-2-5). La courbe dM/dH des points tirés de l'hystérésis est un guide pour les yeux.

Tout se passe comme si le protocole de mesure du traînage magnétique induisait l'équivalent d'un parcours de cycle d'hystérésis beaucoup plus rapide que ceux susceptibles d'être effectués avec les vitesses de balayage de champ utilisées. Il faudrait une aimantation prise en attendant plusieurs centaines d'heures (au moins 2 décades supplémentaires) pour reproduire approximativement le cycle d'hystérésis.

- Les mesures de parcours de cycle et de traînage magnétique ne sont donc pas exactement équivalentes.

II-2-2 Protocole de mesures de traînage magnétique

Notre objectif est de mesurer la dynamique du réseau de microparticules de $\text{Co}_{81}\text{Zr}_9\text{Mo}_8\text{Ni}_2$ (dénommé CoZr par la suite), c'est-à-dire mesurer la variation de l'aimantation $M(t)$ en fonction du temps, et en fonction des paramètres champ magnétique appliqué et température.

Le protocole de mesure de traînage magnétique le plus simple possible est le suivant: à température T fixée, l'échantillon est conduit par une variation ΔH du champ magnétique extérieur à un état instable. L'aimantation est alors mesurée durant quelques heures. Les

Chapitre II

principales contraintes qui limitent le temps de mesure concernent le maintien d'un champ magnétique stable et homogène et d'une température stable tout au long de la relaxation.

Cependant, la nécessité de comparer la relaxation à diverses températures et divers champs impose de définir un protocole expérimental permettant des comparaisons entre les différentes relaxations. Un état initial de référence doit être défini pour le matériau de façon à contrôler l'intensité de l'excitation ΔH . Ce problème est inévitable et d'une importance déterminante dans les mesures d'aimantation des matériaux magnétiques désordonnés: ces matériaux sont hystérétiques et les états dépendent de l'histoire thermique et de l'histoire magnétique qu'ils ont subi. Après chaque expérience de traînage, c'est-à-dire après que le matériau ait relaxé vers un état inconnu à une température et un champ extérieur chaque fois différent, il faut pouvoir retrouver un état de référence.

L'état initial a pour fonction d'effacer les mémoires de l'échantillon. Il faut donc appliquer a priori un champ de référence H_r fort et une température de référence T_r élevée.

Les champs forts sont limités aux dispositifs expérimentaux. Dans les bobines supraconductrices, l'application d'un champ fort engendre des vortex dans la bobine, responsable d'un champ rémanent et d'inhomogénéités de champ. Ces inhomogénéités doivent être absolument évitées pour les mesures à extraction: un champ fort de référence imposerait de réchauffer la bobine avant chaque nouvelle relaxation pour éliminer les vortex et initialiser aussi la bobine.

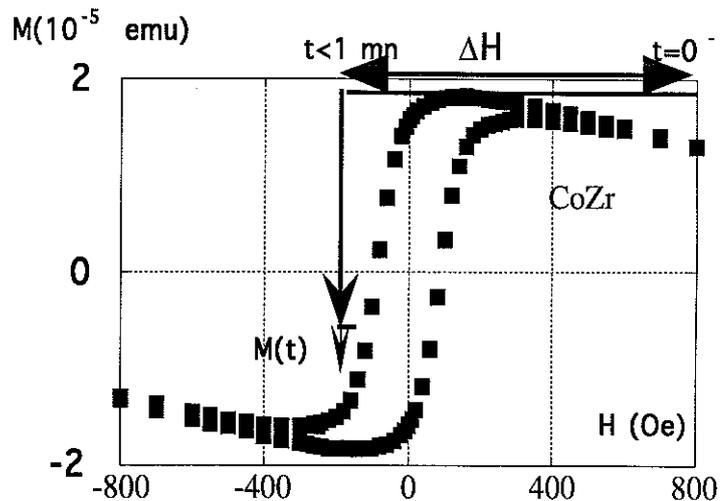
Imposer une température haute à l'état initial est encore plus délicat. L'action du phénomène de trempe sur la relaxation dans les matériaux magnétiques désordonnés est un sujet largement incompris (c'est encore le problème, en pleine expansion, du vieillissement dans les verres de spins). En outre, la trempe consécutive au refroidissement (sous champ H_r) de l'échantillon de T_r à T entraîne elle même une histoire différente à chaque température T .

Il faut donc trouver un compromis, qui dépend du matériau et des dispositifs expérimentaux, entre définir un bon état initial et définir un protocole reproductible précisément. Il s'est avéré que ce compromis n'a pas été trouvé pour les dispositifs à très basses températures tels que les cryostats à dilution: nous n'avons pas de mesure en dessous de 1.7K.

Dans le cas du CoZr, cet état de référence a été déterminé pour un champ de $H_r=600$ Oe et une température de 50K. L'état de référence est maintenu pendant quelques minutes, et l'échantillon est refroidi à la température T sous le champ H_r . Ensuite, le champ H_a est installé (l'opération prend une à deux minutes). Du fait de l'installation du champ, l'état initial $t=0$ n'est connu qu'à une soixantaine de secondes près.

Le choix de H_r positif implique que la relaxation aura lieu sur la partie correspondant à l'état instable du cycle d'hystérésis de champ négatif. La direction de relaxation sera déterminée par l'état de stabilité de la saturation négative et l'aimantation décroîtra au cours du temps (voir les figures ci-contre).

Figure (2-8): le protocole de traînage



La contrainte de trempe est extrêmement handicapante pour la réalisation des expériences à très basse température. Sur les cryostats à dilution, mais aussi sur tous les cryostats où des procédés différents de stabilisation de la température existent suivant la gamme de température. Ainsi il est fréquent que les cryostats fonctionnant avec une circulation libre d'He jusqu'à 4.2K, fonctionnent pour les températures inférieures par pompage sur un réservoir d'He d'une capacité limitée. C'est le cas du magnétomètre à SQUID (voir Figure(2-9)) sur lequel une première étude de l'échantillon de CoZr a été réalisée. Lors de la trempe des hautes températures aux températures inférieures à 4.2K, le remplissage du réservoir à 4.2K fait remonter la température au delà de 10K avant que le pompage ne rétablisse une décroissance monotone jusqu'à stabilisation à la température désirée. En outre la stabilisation ne se maintient que pendant environ une heure, limite de capacité du réservoir.

Nous présentons en Figure (2-9) des vitesses de relaxation déduites des mesures effectuées sur un magnétomètre à SQUID avec remplissage d'un réservoir en dessous de 4.2K. Ces résultats sont à comparer avec l'étude refaite par la suite sur le magnétomètre à SQUID (Figure (2-10)) dont le cryostat permet une régularisation continue du flux d'He de la température ambiante à 1.8K ("Metronic Instruments"). Les mesures avec le premier cryostat montrent une discontinuité des vitesses de relaxation au maximum de la courbe pour toutes les températures inférieures à 4.2K. Cette anomalie est aussi visible sur l'aimantation pris à un temps donné de la relaxation $M(t_0; H)$.

Figure (2-9)

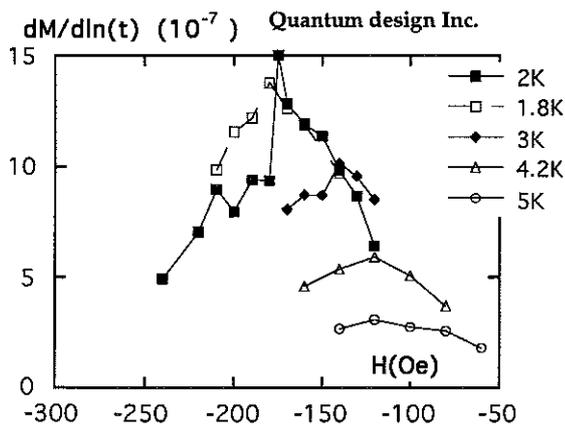


Figure (2-10)

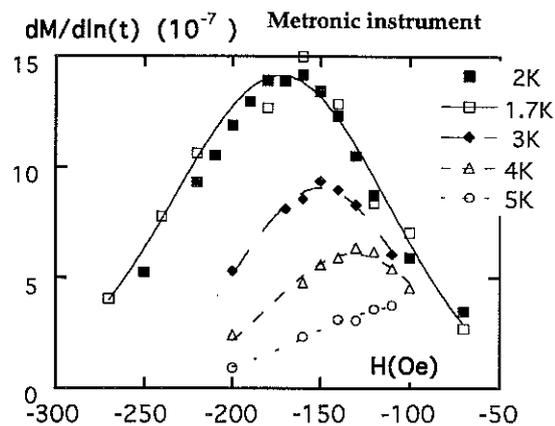


Figure (2-9) et figure (2-10): vitesse de relaxation logarithmique, mesurée sur deux magnétomètres SQUID à extraction, dont les procédés de stabilisation en température diffèrent en dessous de 4.2K. Contrairement au premier dispositif (Figure (2-9)), le magnétomètre utilisé pour l'acquisition des mesures représentées à droite (Figure (2-10)) garde le même système de régulation au dessus et en dessous de la température de He liquide à 4.2K, et évite ainsi de faire subir à l'échantillon une histoire thermique différente

sur la gamme de température utilisée. Les points $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_T (H)$ sont ajustés par des fonctions Gaussiennes multipliées par H , explicitées aux paragraphes (II-2-5).

II-2-3 Variation de l'aimantation en fonction du temps

Le problème de la stabilisation du champ dans les bobines supraconductrices conduit à une incertitude sur le temps initial de la relaxation. L'installation du champ est de l'ordre de une à deux minutes. La méconnaissance d'un temps initial t_0 pose un problème pour une représentation logarithmique de la relaxation. Dans les représentations graphiques suivantes, nous avons choisi de ne pas considérer les premiers points de la mesure, plutôt que de déduire le t_0 par un ajustement numérique à trois paramètres (le temps t_0 , la pente $\Delta M / \Delta \ln(t+t_0)$ et l'ordonnée à l'origine $M(t_0)$).

Figure (2-11)

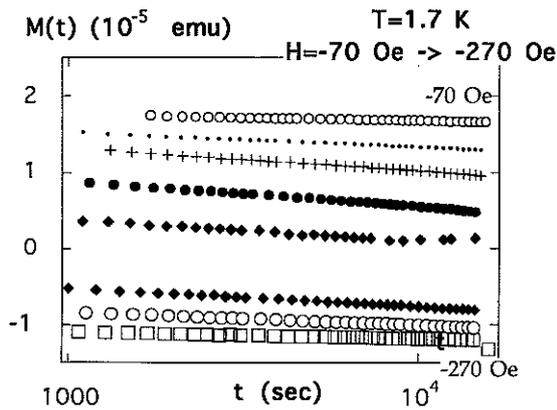


Figure (2-12)

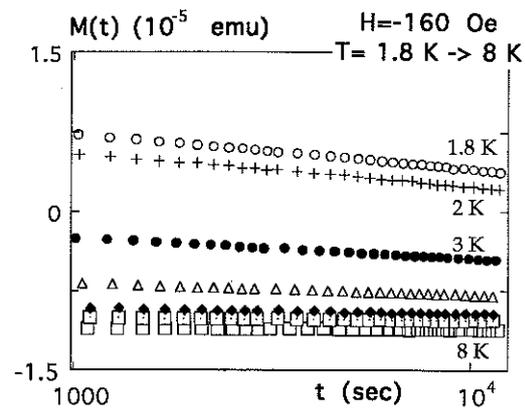


Figure (2-11) Courbes de relaxation de l'aimantation en fonction du logarithme du temps représentées à température fixée et différents champs appliqués. L'aimantation à saturation est $M_s = 2 \cdot 10^5$

Figure (2-12) Courbes de relaxation de l'aimantation en fonction du logarithme du temps représentées à champ appliqué fixé et différentes températures.

Les variations en champ et en température des relaxations présentées sur les Figures (2-11) et (2-12) sont étudiées dans les paragraphes suivants à l'aide des deux paramètres faciles à extraire de ces courbes: l'aimantation $M(t)$ à un temps t_0 donné et la vitesse de relaxation logarithmique, constante sur le temps d'observation, c'est-à-dire la pente des droites des Figures (2-11) et (2-12) prises sur l'intervalle de temps $[10^3, 1.45 \cdot 10^4]$ en seconde. Notons que les variations induites par les différents champs magnétiques appliqués sont presque du même ordre que les variations induites par les différentes températures.

Figure (2-13)

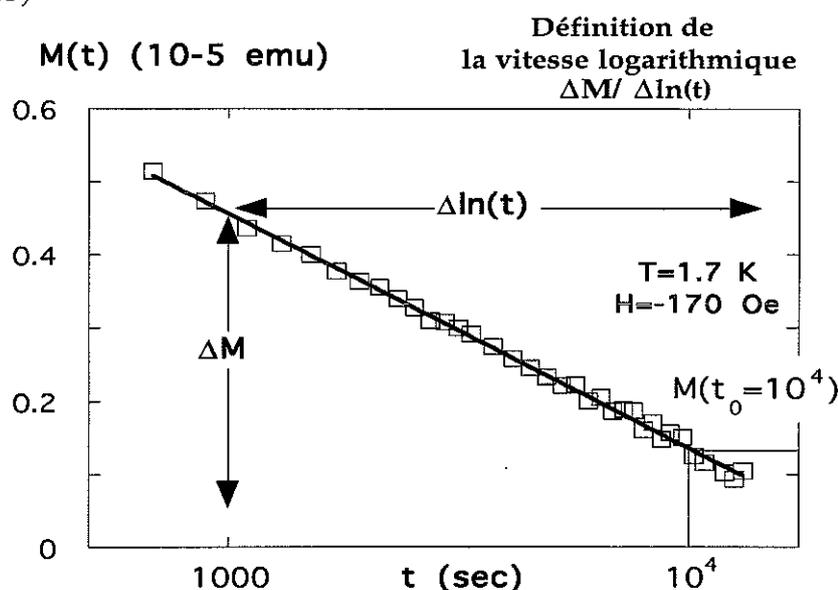


Figure (2-13): pour les valeurs du champ magnétique appliqué correspondant aux états instables et sur la gamme de température de 10K à 1.7K, la relaxation $M(t)$ est mesurée sur environ quatre heures. A chaque relaxation, deux paramètres sont extraits

- (1) la vitesse de relaxation logarithmique $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_{T,H}$ où $\Delta M = |M(14500 \text{ s}) - M(1000 \text{ s})|$,
- (2) l'aimantation $M(t_0)$ à un temps fixé $t_0 = 10^4 \text{ sec}$.

II-2-4 Variation de la vitesse de relaxation en fonction du champ appliqué

Dans la Figure (2-10) montrée au paragraphe (II-2-2), les dépendances en champ des vitesses de relaxation sont présentées pour plusieurs températures. La Figure (2-10) permet aussi de déterminer les champs H_M définis pour caractériser les variations des mesures statiques en fonction de la température. Les variations de la vitesse de relaxation en fonction du champ extérieur sont montrées Figure (2-14) et Figure (2-15) comparativement à la dépendance de la dérivée $dM(t_0)/dH$ pour les températures 1.7K et 2K. Le lien entre $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_T(H)$ et $\left. \frac{dM(t_0)}{dH} \right|_T(H)$ est mis en évidence. Les courbes $\left. \frac{dM(t_0)}{dH} \right|_T(H)$ sont obtenues à partir des mesures $M(t)$ de la relaxation prises à $t_0 = 10^4 \text{ sec}$ pour chaque champ appliqué.

Les courbes équivalentes pour les températures supérieures n'ont pas été tracées car le nombre restreint de points de mesure rend la dérivation peu concluante.

Figure (2-14)

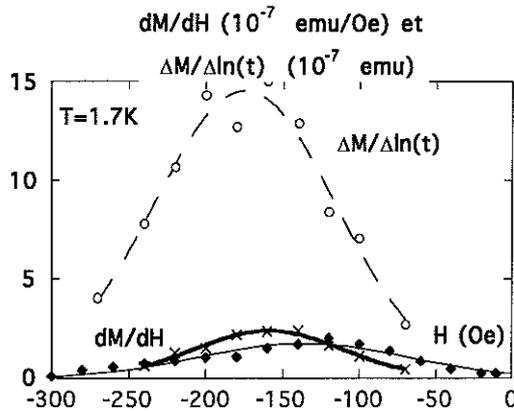


Figure (2-14): comparaison sur la même échelle des points de mesures issus de la dérivée de l'aimantation par rapport au champ appliqué et de la vitesse de relaxation. L'aimantation est prise soit lors du parcours du cycle d'hystérésis (symboles pleins) soit de traînage magnétique à $t=10^3$ secondes (croix). Les ajustements numériques sont des Gaussiennes. D'autres fonctions seraient néanmoins acceptables. .

Figure (2-15)

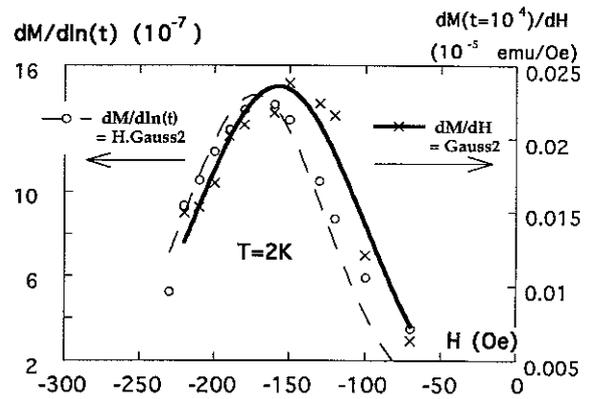


Figure (2-15): Ajustement à un seul paramètre (Tableau2) à 2K, de la courbe des vitesses de relaxation $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_T$ (H) (échelle de gauche), par rapport à la courbe donnant la distribution $\left. \frac{dM(t_0)}{dH} \right|_T$ (H) (échelle de droite). Les deux courbes sont proportionnelles au champ extérieur H (voir le texte).

Notons que l'aire sous la courbe dM/dH représente l'aimantation totale M_T de l'échantillon. L'aimantation sous la courbe $\Delta M/\Delta \ln(t)$ est environ six fois plus grande. Cela signifie que chaque relaxation avec un champ extérieur compris dans l'intervalle $[H_{\text{ext}}, H_{\text{ext}} + dH_{\text{ext}}]$ met à contribution un intervalle six fois plus grand de champs de retournement H_{sw} . Les variations de la courbe $\Delta M/\Delta \ln(t)[H]$ avec la température indiquent donc les variations du nombre de champs de retournement H_{sw} mis à contribution dans la relaxation en fonction de la température. Ces variations peuvent donc être reliées aux variations thermiques des fluctuations. Ce point sera explicité grâce aux données de H_{sw} mesurées sur une particule individuelles, au paragraphe II-3-4 de ce chapitre et au paragraphe III-1-1 du chapitre suivant.

Un ajustement des points expérimentaux permet de définir des fonctions Gaussiennes "Gauss1(H)" et "Gauss2(H)" décrivant la dépendance en champ appliqué de la distribution dM/dH pour les deux températures 1.7K et 2K.

Tableau 2-1

$dM/dH = \text{Gauss1}(H)$	T = 1.7K	$dM/dH = \text{Gauss2}(H)$	T = 2K
$= a_1 \cdot \exp(-(H-H_{1c})^2 / \sigma_1^2)$		$= a_2 \cdot \exp(-(H-H_{2c})^2 / \sigma_2^2)$	

Chapitre II

a_1	$2.4 \cdot 10^{-7}$	a_2	$2.3 \cdot 10^{-7}$
H_{1c}	-159.	H_{2c}	-158
σ_1^2	4700	σ_2^2	6500

Ces paramètres permettent de réaliser l'ajustement de la vitesse $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_T (H) \propto H \cdot \left. \frac{\Delta M(t_0)}{\Delta H} \right|_T (H)$

, avec le paramètre de proportionnalité b tel que:

Tableau 2-2

$T=1.7 \text{ K}: \Delta M/\Delta \ln(t) =$	$T=2 \text{ K}: \Delta M/\Delta \ln(t) =$
$b_1 \cdot H \cdot \exp(-(H+159)^2/4700)$	$b_2 \cdot \exp(-(H+158)^2/6500)$
$b_1 = -4.00 \cdot 10^{-7}$	$b_2 = -3.67 \cdot 10^{-7}$

On vérifie que les ajustements du type $\Delta M/\Delta \ln(t) \propto H^\alpha \cdot \text{Gauss}(H)$ où α prend des valeurs entières et demi-entières différentes de 1 ne conviennent pas.

II-2-5 Variation de la vitesse de relaxation en fonction de la température

Le comportement des vitesses de relaxation est résumé dans la Figure (2-16). Lorsque la vitesse de relaxation est prise au maximum de la courbe, à $dM/d(\ln(t))(H_M)$, on s'affranchit des distorsions provoquées par le décalage en température. Le résultat est exposé Figure (2-17).

Figure (2-16)

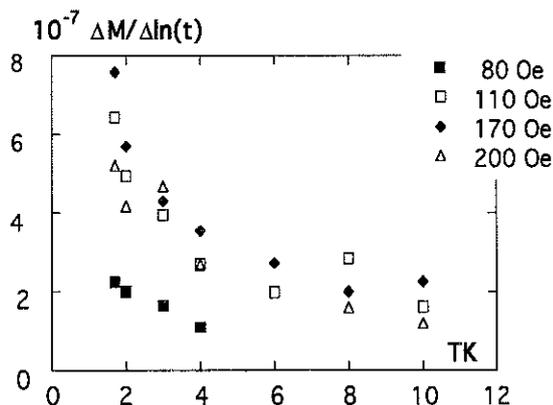


Figure (2-16) : dépendance de la vitesse de relaxation en fonction de la température pour différents champs magnétiques appliqués.

Figure (2-17)

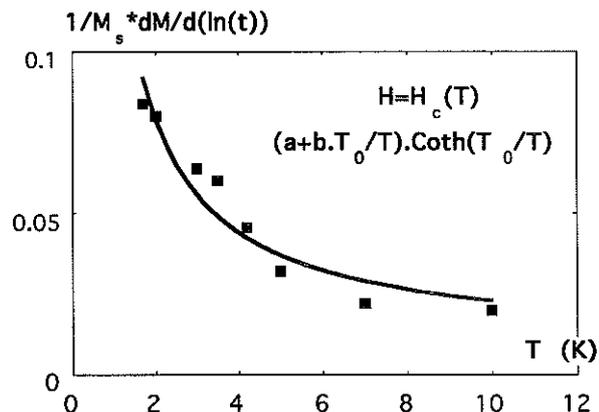
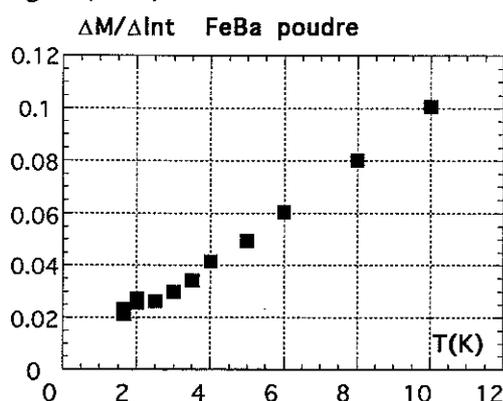


Figure (2-17) : lorsque le champ est pris à la valeur du maximum, pour chaque température de la distribution, on observe que la courbe $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_{H_M} (T)$ est plus régulière.

Un ajustement numérique des points expérimentaux $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_{H_M}(T)$ de la forme

$(a+b(T_0/T)) \cdot \coth(T_0/T)$ est proposé Figure (2-17). Cet ajustement est motivé par la dépendance thermique du bruit quantique. La température T_0 serait la température de transition entre le régime "classique" où le bruit est $D(T)=\eta kT$ et le régime quantique. On a: $a = 0.009$, $b = 0.05$ et $T_0 = 2.5$ K. Sans préjuger d'une interprétation, ces points peuvent toujours être ajustés par la fonction $a/T + b$.

Figure(2-18)

**Figure(2-18):**

à titre de comparaison: points de mesure de la vitesse de relaxation logarithmique de petites particules de FeBa en poudre de diamètre moyen 30nm [Sampaio 1995]. Ce profil thermique est "standard" au sens des processus d'activation thermique. Ce profil est habituellement mesuré sur des couches minces et multicouches ainsi que sur les poudres en "réseau tridimensionnel".

La Figure (2-19) montre la dépendance en température de l'aimantation $M_{t_0}(T)$ à un instant t_0 de la relaxation, comparée à la dépendance thermique de la vitesse logarithmique de relaxation. Les deux courbes sont similaires aux basses températures. Cela signifie que les mécanismes de relaxation aux temps courts (non accessibles à nos mesures) semblent être les mêmes que ceux mesurés dans notre fenêtre d'observation.

Figure (2-19)

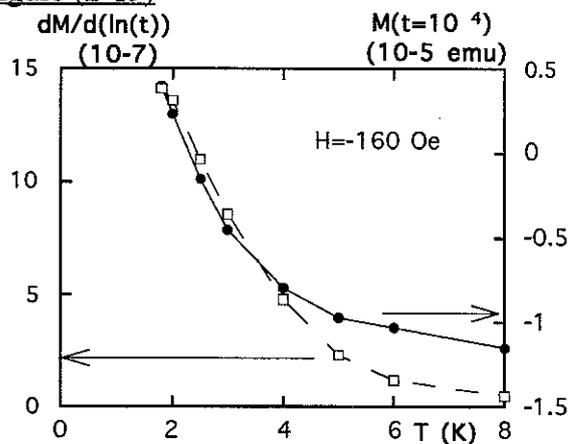


Figure (2--19) : Aimantation $M_{t_0}(T)$ prise en un instant $t_0=10^4$ s de la relaxation, en fonction de la température, au champ appliqué $H=-160$ Oe. Sur l'échelle de gauche, la vitesse de relaxation logarithmique est présentée.

II-2-6 Susceptibilité statique et susceptibilité alternative

Grâce à une collaboration avec Dr M. Marysko de l'Institut de Physique à Prague, nous avons pu réaliser des mesures de susceptibilité alternative à une sensibilité suffisante sur un magnétomètre à SQUID "Quantum design" dans les conditions les plus proches possibles des expériences de traînage magnétique.

La susceptibilité alternative est réalisée par addition d'un champ sinusoïdal sur une position d'équilibre de l'aimantation.

$$H(t) = H_{DC} + \Delta H \cdot \sin(2\pi t/f)$$

Une particule peut être dans un état stable de l'aimantation, dans une configuration micromagnétique quelconque: par exemple avec une paroi de Bloch ou un vortex. Lorsque les configurations magnétiques possèdent deux minima d'énergie, il existe à priori seulement deux types d'états à l'équilibre thermodynamique en champ fixé.

a) Lorsque les deux minima sont approximativement à la même énergie et que le temps caractéristique d'activation thermique est très inférieur au temps de mesure. C'est le cas lors des mesures de susceptibilité sur un matériau superparamagnétique au dessus de la température de blocage (ou température de gel). Ces matériaux ne sont alors pas hystérétiques au temps de mesure considéré.

b) Il existe un état d'équilibre à la limite inverse, lorsque le temps d'activation est très supérieur au temps de mesure: le système est alors figé dans un des minima. C'est le cas dit "quasi-statique" lorsque le cycle d'hystérésis est parcouru avec des effets de relaxation négligeables à l'échelle de la mesure.

Entre ces deux états, c'est à dire à des échelles de temps et température différentes, le système est métastable. Le système est hors équilibre et thermiquement activé.

Comme le montre l'encadré de la Figure (2-20), lorsqu'un cycle mineur est effectué sur le réseau de particules, la partie interne du cycle est réversible. Il semble que les particules déjà nucléées soient dans des configurations du type a), c'est à dire par exemple un monodomaine magnétique qui n'est pas aligné avec le champ extérieur ou une paroi de Bloch qui se déplace sans piégeage (réversiblement) dans la particule. Par ailleurs, les temps de nucléation des particules non encore nucléées sont incomparablement plus grands que les temps d'observations: ces particules sont dans le cas b) et ce sous système est figé. En outre il ne sera pas sensible à des variations de champ d'amplitude inférieure à la largeur du cycle au point de

rebroussement du cycle mineur. L'aimantation de ce sous-système ne participera pas à la susceptibilité.

Les gammes de fréquences accessibles vont de $f=10^{-2}$ Hz à $f=1$ kHz. La sensibilité de la mesure est théoriquement suffisante (de l'ordre de 10^{-11} emu), mais un grand nombre de sources extérieures de bruit rendent ces mesures délicates. Les variations d'aimantation mesurées représentent environ 0.1% du signal total. Le reste du signal, c'est à dire l'ensemble des particules dont l'aimantation est plus ou moins bloquée (piégé ou stabilisé) dans des états variés, contribue sous forme de bruit perturbatif de grande amplitude.

Chaque point de susceptibilité représente la moyenne sur environ 1 heure à 1.5 heure de mesure à fréquence, champ et température fixés. Les mesures à fréquence plus basse ne sont pas suffisamment sensibles. Les mesures en champ nul sont aussi noyées dans le bruit du fait de l'influence prépondérante d'un gradient de champ. La variation de champ appliqué $\Delta H = 3.9$ Oe est la variation maximum compatible avec une réponse linéaire de l'aimantation.

Nous avons étudié la susceptibilité en appliquant dans un premier temps le protocole du traînage magnétique au champ $H = -175$ Oe, champ proche du maximum de relaxation à 2K. Après une dizaine de minutes, le champ est lentement diminué de jusqu'à $H_{DC} = -20$ Oe. La partie de -170 à -20 Oe donne la susceptibilité statique.

Comme le montre la Figure (2-20), la susceptibilité statique est à 10K de

$$\chi_{DC} = 3.3 \cdot 10^{-8} \text{ emu/Oe}$$

La susceptibilité alternative correspondante à $H_{DC} = 20$ Oe et $\Delta H = 3.9$ Oe, pour une fréquence de $f = 1$ kHz est représentée Figure (2-21). Les barres d'erreurs montrent que le phénomène étudié est à la limite de sensibilité de la mesure. La susceptibilité statique en fonction de la température à la position d'équilibre sur le cycle mineur, semble confirmer ce comportement; mais les variations observées sont quasiment à la hauteur des barres d'erreurs.

Figure(2-20)

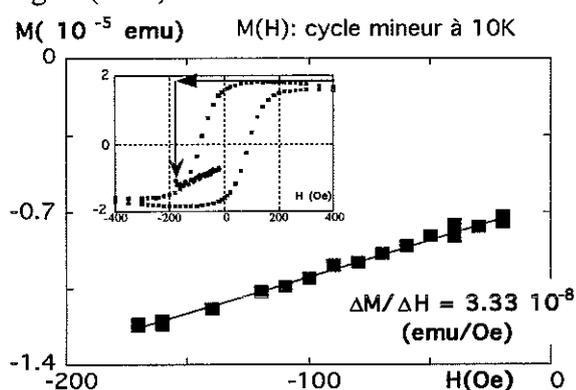
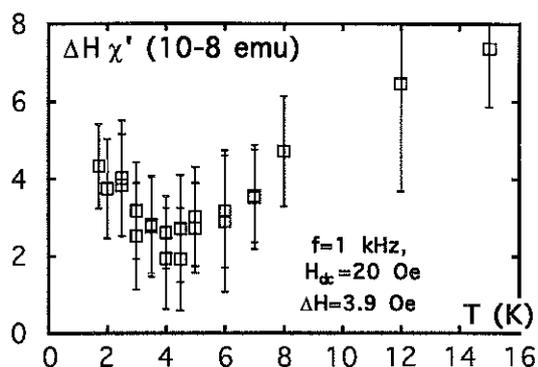


Figure (2-20) : Portion réversible d'un cycle mineur. La pente donne la susceptibilité statique χ_{DC} . En encart, le cycle d'hystérésis avec la portion de cycle mineur à 10K.

Figure(2-21)



Figure(2-21) : variation thermique de l'aimantation en phase avec le champ oscillant, appliqué au voisinage de la position -20 Oe du cycle mineur. La fréquence est de 1kHz et la variation de champ de 3.9 Oe.

De façon à mettre en évidence la singularité à basse température, nous avons soustrait Figure(2-22) la partie linéaire en température et passant par zéro. Cette partie linéaire serait provoquée par un phénomène d'activation qui agit sur l'état de supposé de "quasi-équilibre" que nous avons défini sur le cycle mineur. Dans le cadre de cette hypothèse, la courbe représentée dans cette figure ressemble à une susceptibilité de type loi de Curie, c'est à dire une susceptibilité paramagnétique ou super-paramagnétique.

Il faut cependant noter que rien ne permet de définir dans l'échantillon une aimantation paramagnétique ou superparamagnétique. Le matériau est ferromagnétique à la température de 800K. Il ne peut donc pas y avoir a priori des spins libres de fluctuer indépendamment de leurs voisins à 5K. Quand à l'aimantation des grains ferromagnétiques, positionnée dans un des deux minima du potentiel (aimantation dirigée vers le haut ou vers le bas), elle doit passer par une barrière beaucoup trop haute, a priori, pour supposer que la direction de l'aimantation puisse fluctuer d'un minimum à l'autre du fait de l'agitation thermique. En effet, s'il s'agissait de la barrière d'anisotropie du champ démagnétisant statique, pris à champ nul, on aurait $E_a = 5 \cdot 10^{-17}$ J, soit une température de $5 \cdot 10^6$ K.

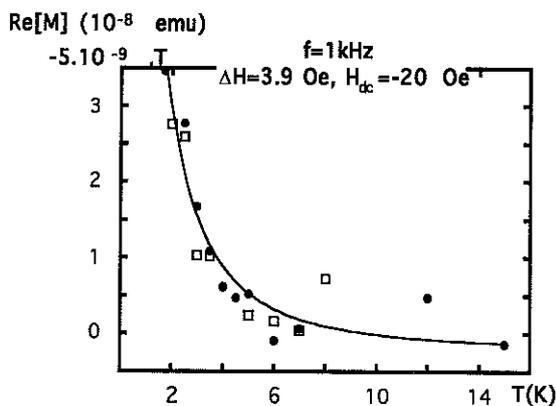
Cependant la barrière en champ non nul est de la forme $E_0(1-H/H_{sw})$ et tend donc vers zéro quand H tend vers H_{sw} . L'étude réalisé à champ fixe ne permet pas de déterminer expérimentalement cette barrière. En outre, elle ne peut pas être évaluée expérimentalement indépendamment d'une hypothèse sur le bruit d'activation.

Des lois d'activation thermique du temps de relaxation sont mesurées sur des matériaux superparamagnétiques en susceptibilité alternative au voisinage de la température de blocage. Par exemple sur des échantillons organiques $Mn_{12}O_{12}$ [Novak 1994], [Paulsen 1994]. Dans ces matériaux, la dynamique de l'aimantation est nécessairement produite par le retournement du macrospin (car il n'y a pas de paroi de domaines). Dans notre cas, et malgré la bonne définition de la structure de l'échantillon, la nature du système dynamique n'est malheureusement pas clairement définie. La dynamique observée pourrait être due aux déplacements de parois ou aux déplacements de structures macromagnétiques (du type "point de Bloch"). Sous réserve de confirmation (une étude en fréquence et en champ extérieur avec une sensibilité supérieure), ces mesures peuvent être interprétées comme la réponse d'un système (vortex ou paroi de domaines) à l'excitation sinusoïdale décrite au chapitre I, paragraphe 3.

Il semble donc qu'une dépendance thermique de la distribution des temps de relaxation ne se manifeste pas dans cet échantillon (chapite I.3, equation (3-12)):

$$\chi'(\omega) \approx -Ng_{\gamma} \frac{\langle m^2 \rangle(0)}{kT} \ln(\omega\tau_2) \approx Ng_{\gamma} \frac{m^2}{kT} \ln(\omega\tau_0)$$

Figure(2-22)



Figure(2-22) dépendance thermique des variations d'aimantation en phase avec le champ oscillant, soustrait de la partie activation thermique linéaire en température. La courbe tracée est une cotangente hyperbolique divisée par T. Deux séries de mesures sont reportées correspondant à des temps de moyennes différent: un point correspond à la moyenne sur 30 minutes (carrés blanc) ou sur 1 heure 10 minutes (carrés noirs).

Figure(2-23)

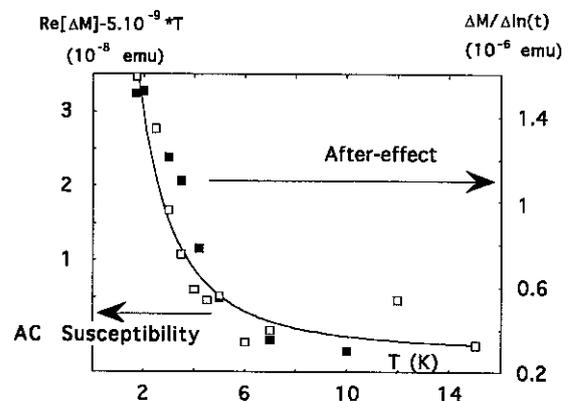


Figure:(2-23) les points de la courbe ci-contre sont comparés, sur deux échelles différentes, aux points de la Figure (2-17) obtenue lors des expériences de traînage magnétique (échelle de droite).

Chapitre II

La comparaison entre la susceptibilité mesurée ici sur une position d'équilibre et les mesures de traînage magnétique est discutée dans le chapitre IV. Si la comparaison a un sens², i.e. s'il est possible de comparer un mécanisme de réponse linéaire à un petit champ d'excitation sinusoïdal, au mécanisme de retournement de l'aimantation lors de la relaxation, alors la Figure(2-23) est remarquable. Elle signifierait que le système étudié lors des expériences de traînage se nuclé en réponse à l'excitation perçue au temps t_0 lors du changement brutal de champ extérieur, de la même façon que l'aimantation suit le champ lors des expériences de susceptibilité alternative.

Dans la référence [Vitale 1996] les comportements en température de la susceptibilité alternative et de la vitesse de relaxation mesurée lors du traînage magnétique, sont eux aussi comparés et montrent une grande similarité. Cependant, ces points mesurés lors des deux types de relaxation suivent un comportement typiquement d'activation, proportionnel à la température. Dans cette étude, la relation fluctuation-dissipation a été vérifiée entre les fluctuations de l'aimantation mesurée à l'équilibre (le bruit thermique $D(T)$) et la susceptibilité $\chi(\omega) \propto \omega D(T)/T$. Cette relation garantit que le système répond à l'excitation de champ extérieur $H(t)$, mesuré par la susceptibilité $\chi(\omega)$, proportionnellement à l'amplitude des fluctuations perçues à l'équilibre.

Une autre interprétation cependant permettrait d'expliquer une augmentation de la réponse d'un système bistable à une excitation sinusoïdale, lorsque l'on diminue le bruit auquel est soumis le système: il s'agit de la résonance stochastique. Cet effet décrit la coopération qui peut exister entre les fluctuations thermiques (caractérisés par le temps d'Arrhenius) et la fréquence du signal extérieur. La quantité étudiée est alors la dépendance du rapport signal sur bruit $R = S / D$ en fonction du bruit D . Lorsque le bruit est proportionnel à kT (avec éventuellement une saturation à basse température), le rapport s'écrit $R = |\chi| / kT$. Si le système est caractérisé par une unique barrière de potentiel de hauteur E , un pic du type "pic de résonance" est prévu lorsque $E = 2kT$: La théorie adiabatique donne: [Gammaitoni 1989]

$$R \propto \left(\frac{\Delta H}{kT} \right)^2 \exp\left(-\frac{E}{kT} \right).$$

L'application au système distribué en barrières d'énergie E demande une simple intégration sur cette distribution. L'intégration donnerait un comportement en $1/T$. La figure (2-24) représente le rapport signal sur bruit R , à condition de supposer que la dépendance thermique de χ'' est identique à celle de χ' . Le comportement thermique de χ' / kT est en $1/T^2$. Il semble donc que l'hypothèse de la résonance stochastique doive être écartée a priori, en attendant une étude plus détaillée.

²Cette comparaison a été réalisée dans la littérature, en particulier par [Schlachetzki 1972], [Vitale 1994] [Maraner 1996][P C Fannin 1995].

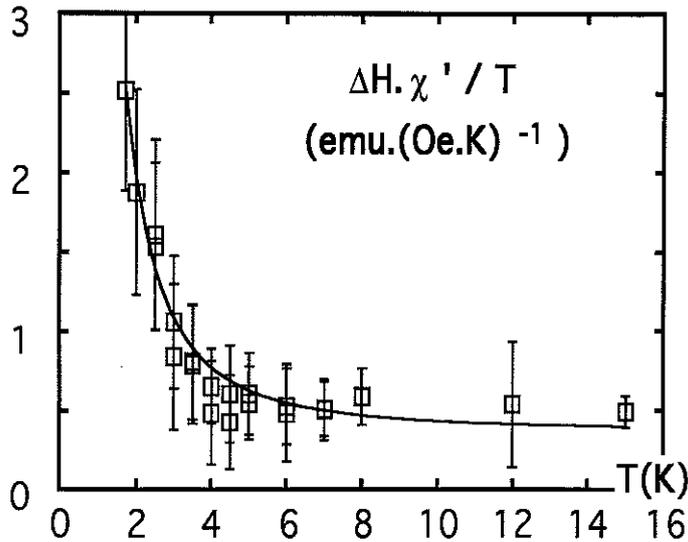


Figure (2-24):

les points expérimentaux de la Figure(2-21) divisé par la température sont tracés en fonction de la température. Cette grandeur représenterait le rapport "signal sur bruit". La courbe est un ajustement proportionnel à $1/T^2$.

Notons que la sensibilité limitée des mesures présentées ici ne permettent pas d'utiliser ces résultats expérimentaux comme argument déterminant, tant qu'une étude détaillée en fréquence n'a pas été menée à bien.

Conclusion

Cette étude a mis en évidence un comportement "anormal" de la dépendance thermique de la vitesse de relaxation et de la susceptibilité. Cette dépendance est qualitativement très différente de ce qui est habituellement mesuré sur des échantillons de structures variées. Nous avons ajusté nos données expérimentales de la vitesse de relaxation logarithmique avec une fonction du type $a+b/T$ (ou encore une fonction $b+a/T \cdot \coth(T_0/T)$). Au stade actuel de notre étude, ces ajustements ont un intérêt purement qualitatifs. Un exemple de dépendance thermique de la vitesse de relaxation normalement produit par un phénomène d'activation thermique (i.e. proportionnel à la température T), est donné Figure (2-18).

En revanche, la variation logarithmique en temps, vérifiée sur 4 heures de mesure, est habituelle. De même, la dépendance en champ extérieur de la vitesse de relaxation et de l'aimantation, ainsi que le cycle d'hystérésis, ne présentent pas d'anomalies.

La vitesse de relaxation logarithmique mesurée sur le réseau est proportionnelle au nombre de particules susceptibles de se retourner au champ de relaxation appliqué. Ce nombre est donné par la dérivée de l'aimantation par rapport au champ. On constate que la vitesse de relaxation logarithmique $\Delta M / \Delta \ln(t)$ est en moyenne 6.5 fois plus importante que la dérivée de

Chapitre II

l'aimantation $dM(t)/dH$. La distribution effective des particules n'est donc pas simplement égale à la dérivée $dM(t)/dH$.

Par ailleurs, la linéarité en champ extérieur de la vitesse de relaxation par rapport à la distribution de champ de retournement, proportionnelle à $dM(t)/dH$, a été mise en évidence.

Les résultats présentés ici ne permettent pas de conclure sur la nature des processus de relaxation. Ils posent néanmoins la question de la validité du mécanisme classique d'activation thermique par dessus la barrière d'énergie d'anisotropie, pour la description de la relaxation de ces microparticules magnétiques.

L'éventualité de l'effet d'une distribution de champs de retournement responsable de la dépendance anormale en température, a été écartée en prenant pour chaque température le champ $H_c(T)$ correspondant au maximum de la distribution (Figure (2-14) et Figure (2-18)). Ce comportement a été testé par des mesures sur deux magnétomètres différents. L'hypothèse de l'action de la distribution des champs de retournement pour expliquer la décroissance de la vitesse de relaxation logarithmique est donc à exclure. Le profil complet de la courbe des vitesses de relaxation en fonction du champ décroît quand la température augmente (Figure (2-10)), ce qui laisse suggérer des variations thermiques des fluctuations.

L'hypothèse d'une relaxation non exponentielle, comme typiquement une exponentielle étirée $\exp(-\gamma t)^\beta$ où le paramètre β dépend de la température, permettrait de rendre compte d'une décroissance de la vitesse de relaxation en fonction de la température. Néanmoins, cette décroissance ne pourrait avoir lieu qu'en queue de relaxation. Les mesures présentées ici concernent toute la relaxation étant donnée que les temps de relaxation dépendent du champ de retournement, et la relaxation de toutes les particules peut être mesurée par simple déplacement du champ extérieur. On mesure autant les débuts que les fins de relaxation. Ce point pourra être mis en lumière au chapitre suivant, où la loi de relaxation est donnée par les mesures à l'échelle d'une particule unique.

En second lieu, lorsque l'on généralise le modèle classique d'activation thermique à un bruit $D(T)$ quelconque, on peut supposer l'existence d'un profil $D(T)$ complexe mais qui doit rejoindre, à la limite des hautes températures, un comportement usuel linéaire en température. Or, nous n'avons pas observé de relaxation lente au delà de 10K et jusqu'à 200K. La relaxation habituelle à haute température n'a pas lieu pour cet échantillon, alors qu'elle est mesurée couramment sur des échantillons macroscopiques de composition similaire (en particulier pour le Co nanocristallin qui sert d'échantillon de contrôle, par exemple dans la référence [Tejada 1994]).

Pour cet échantillon formé de plots magnétiques, toute la surface est directement en contact avec le thermostat. La thermalisation de chaque particule est donc excellente et sans commune mesure avec un échantillon composé d'une assemblée de particules confinées dans le volume d'un réseau tridimensionnel par exemple. Ces résultats suggèrent donc une influence déterminante sur la dynamique des effets de couplages au bain thermique à l'échelle nanoscopique

II-3 Etude de la dynamique de particules de Co mesurées en réseau bi-dimensionnel et mesurées individuellement.

Nous présentons ci-dessous l'étude du réseau bi-dimensionnel de particules de Co décrit en (II-1-2). De même que pour l'échantillon précédent, la structure à l'échelle nanoscopique est connue à quelques nanomètres près. De plus, dans le cas de cet échantillon de Co, un facteur dix a été gagné sur la taille des particules par rapport à l'échantillon précédent. La longueur correspond à environ 30 longueurs de cohérence de spin, la largeur 20 et l'épaisseur 4.

L'étude sur le réseau est en tout point similaire à l'étude précédente. Cependant, un élément déterminant s'ajoute à cette étude. Des mesures parallèles d'une particule individuelle réalisées sur micro-SQUID permettent d'accéder aux caractéristiques de la dynamique à l'échelle nanoscopique. L'effet du changement d'échelle sur les propriétés magnétiques, lorsque l'on passe de la mesure d'une particule à dix millions de particules, peut maintenant être contrôlé précisément. La manifestation de ces effets de changement d'échelle est particulièrement déterminante pour les propriétés dynamiques .

II-3-1 Caractérisation magnétique

Le cycle d'hystérésis du réseau est présenté Figure (3-1), mesuré à 2K et à 250K. Ce cycle a été mesuré au magnétomètre SQUID à extraction. La vitesse moyenne de déplacement du champ magnétique est environ de 7 Oe par minute. Le cycle d'hystérésis d'une particule de Co mesurée individuellement est présenté Figure (3-2) (une analyse plus détaillée du comportement micromagnétique de ces particules de Co se trouve dans [Wernsdorfer 1996thèse]).

La Figure (3-1) montre que la dépendance du cycle en température est très peu marquée de 2K à 200K. L'aimantation à saturation est de $1.7 \cdot 10^{-5}$ emu (soit $1.7 \cdot 10^{-7}$ Am²) et l'aimantation rémanente est nulle.

Ces cycles d'hystérésis sont tout deux caractérisés par des sauts d'aimantation. Ces sauts sont séparés par une zone où l'aimantation suit linéairement le champ appliqué. Cette zone est réversible; elle peut être parcourue indifféremment dans un sens ou l'autre du champ. Partant de l'état de saturation positif, le premier saut correspond à une nucléation, que l'on peut associer à une création de paroi de domaines et le second saut à son annihilation.

La discontinuité dans le cycle d'hystérésis d'une particule individuelle, permet de définir une entité magnétique représentant un volume de spins qui se retourne d'un état "up" à un état "down". La hauteur de ce saut est fixée et ne dépend pas de la température (voir Figure (3-1) et (3-2)). Il définit donc un macrospin. Par la suite, nous nous focaliserons uniquement sur le premier saut d'aimantation en partant de la saturation positive.

Dans le sous-paragraphe (II-3-1 a) ci-dessous, nous chercherons à caractériser ce macrospin à l'échelle mesoscopique. Dans le sous-paragraphe suivant (II-3-1 b), les caractéristiques à l'échelle du réseau de l'ensemble de macrospins seront présentées.

Figure (3-1)

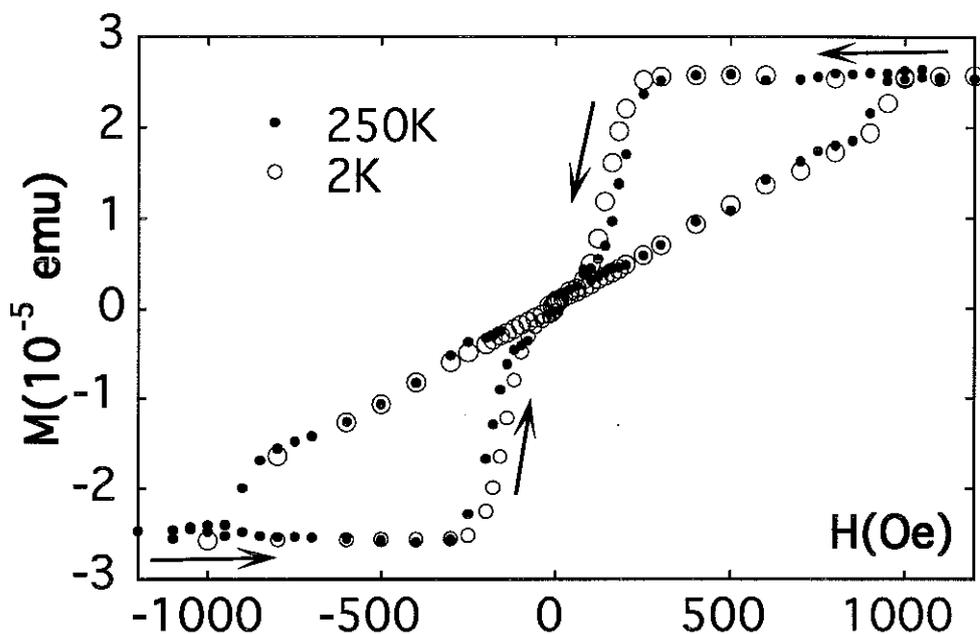
Réseau

Figure. (3-1) : Cycle d'hystérésis du réseau de 10^7 de particules de Co de taille (300nm ,200 nm , 30 nm) mesuré à 2 K (o) et 250 K (•). Le champ est appliqué dans le plan, le long de l'axe de facile aimantation des particules.

Figure (3-2)

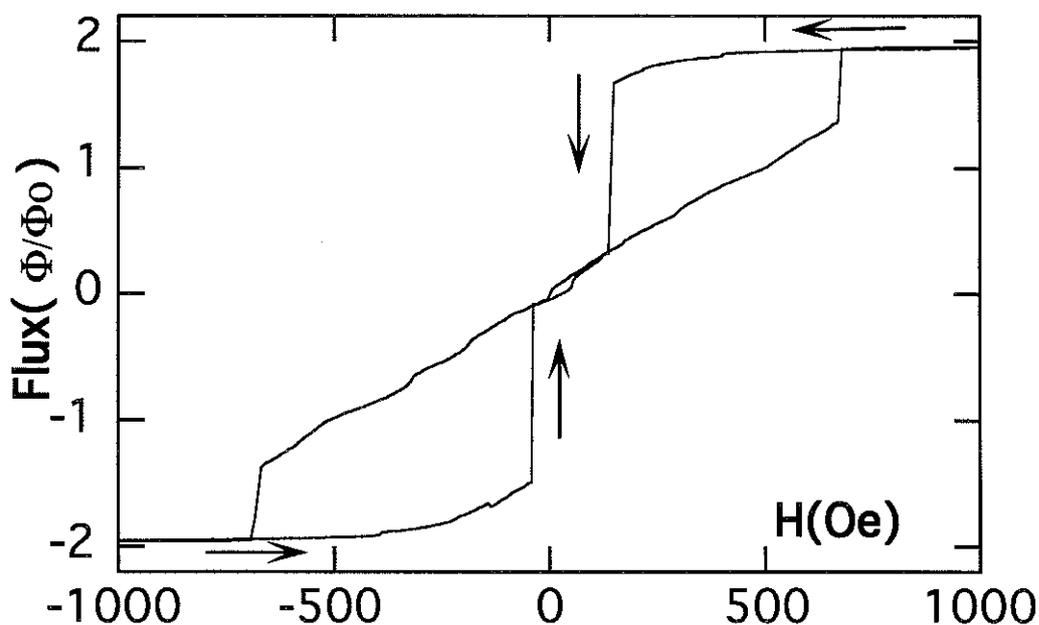
Particule individuelle

Figure. (3-2) : Cycle d'hystérésis d'une particule de Co de taille (300nm x 200 nm x 30 nm) mesuré individuellement sur micro-SQUID à $T=0.2K$. Les discontinuités de l'aimantation ont lieu pendant un intervalle de temps inférieur à 0.01 s. Le champ extérieur est appliqué avec un angle de quelques degrés par rapport à l'axe d'anisotropie.

Figure(3-3)

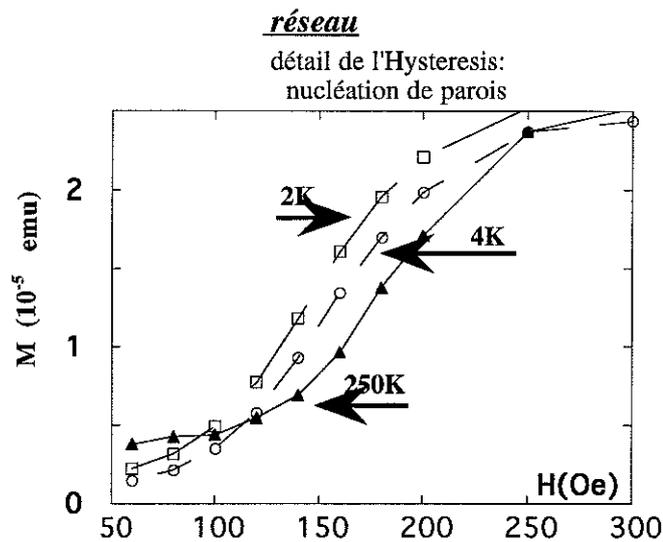
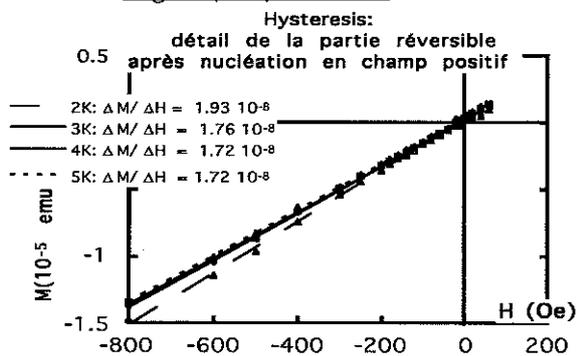
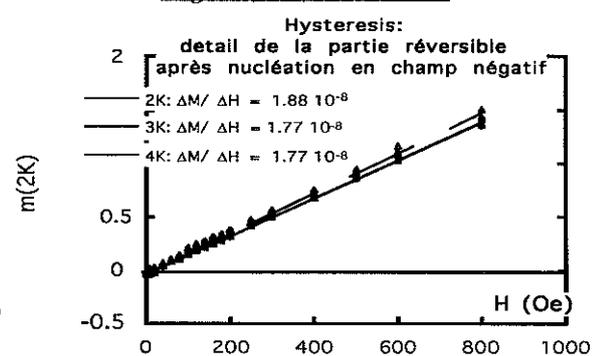


Figure (3-3) : détail du cycle d'hystérésis correspondant à la nucléation de paroi de Néel (ou de Bloch) à diverses températures. Les variations en température sont confinées dans l'intervalle 2K à 8K.

Figure(3-4)a réseauFigure(3-4)b réseau

Figure(3-4) : détail des deux parties réversibles après nucléation pour chaque côté du cycle. La susceptibilité statique est estimée pour quelques températures.

Après nucléation, la particule est dans un état réversible. De même que pour l'échantillon de CoZr, les cycles mineurs sont réversibles entre les deux branches du cycle complet. Malheureusement, ces mesures ont été effectuées après manipulation de l'échantillon pour la photographie électronique et les particules se sont oxydées. Il existe des piègeages et interactions de surface, du fait de l'oxydation: la réversibilité n'est plus vérifiée. Pour cette raison, l'étude en susceptibilité alternative a été un échec. La susceptibilité statique est déductible des Figures(3-4) . Les variations décroissantes en température, semblent être issues d'une susceptibilité paramagnétique, similaire à celle mesurée sur le CoZr amorphe en II-2-6.

II-3-1 (a) Caractérisation magnétique à l'échelle nanoscopique

On peut imaginer la paroi de domaine à l'intérieur de la particule comme un vortex, car la largeur de paroi dans le cobalt est de l'ordre de 100nm. Cela conduit à une aimantation rémanente nulle. Des modèles micromagnétiques appliqués à des matériaux doux et bidimensionnels conduisent à des configurations du type de celles représentées Figure (3-5) [Van den Berg 1989]. La configuration la plus probable en champ nul est représentée en (a). Les spins s'alignent parallèlement à la surface et forment une paroi d'aimantation totale nulle. Lorsque le champ augmente, la paroi (avec un point de Bloch) se déplace réversiblement jusqu'à annihilation. Les configurations (d) et (e) de la Figure (3-5) sont beaucoup moins probables mais ne peuvent pas être exclues.

Figure (3-5)

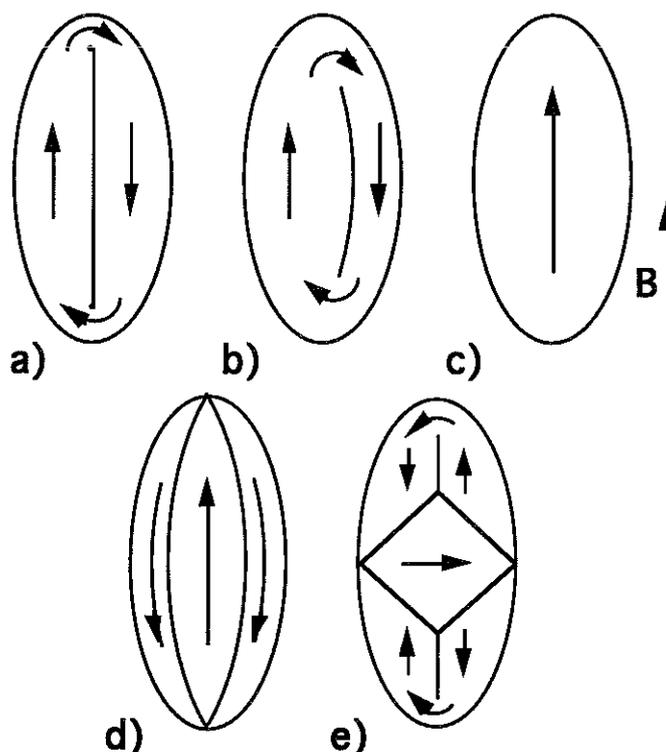


Figure (3-5): Configurations successives à l'échelle nanoscopique (les plus probables) apparaissant dans le cycle d'hystérésis présenté Figure (3-2). La configuration (a) est à champ nul et l'aimantation est nulle. La configuration (b) schématise le déplacement de "paroi de domaine" qui forme la partie centrale réversible du cycle. La configuration (c) est la saturation. Les configurations "exotiques" (d) et (e) sont moins probables mais sont néanmoins susceptibles d'avoir lieu.

La présence de deux discontinuités d'aimantation, situées au même endroit pour toutes les particules du réseau, suggère qu'un centre de nucléation est beaucoup plus efficace que les autres et qu'il est défini à l'échelle "nanoscopique". Ce centre de

nucléation, identique pour toutes les particules du réseau, doit nécessairement être produit lors de l'élaboration et il est lié à la forme des particules (par exemple à la présence de collerettes aux bords). Ces centres de nucléation fixes n'existaient pas pour le premier échantillon. Est-ce dû à la taille des particules ou à la structure du matériau? D'autres études menées en parallèle avec les micro-SQUID sur divers types de matériaux [Wernsdorfer 1996] tendent à montrer que le cycle caractéristique des Figures (3-1) et (3-2) n'est pas lié directement à la taille des particules, ni même précisément à la nature du matériau (Co ou CoZr ou Ni...), mais peut-être au procédé d'élaboration. Il semblerait que le procédé de pulvérisation cathodique sur un masque préalablement gravé favorise les collerettes, c'est-à-dire une singularité de surface éloignant la géométrie de celle d'une ellipse de révolution (peut être aussi est-ce un effet d'un type de pulvérisation cathodique?).

Le cycle d'hystérésis de la Figure (3-2) a été enregistré lorsque le champ magnétique est appliqué le long du grand axe de l'ellipse, avec un petit angle de 10° . Le champ magnétique varie de 1 kOe à -1 kOe. Chaque cycle réalisé dans le temps a grosso-modo le même aspect. Des variations sont néanmoins visibles, typiquement sur la valeur H_s^{hy} du champ de retournement du macrospin (ou champ de création du vortex) mesuré lors du parcours du cycle d'hystérésis. Cette valeur est distribuée autour d'une valeur moyenne $\langle H_s^{hy} \rangle$. Un exemple de cette distribution est présenté en encart de la Figure (3-6); par un histogramme représentant une centaine de cycles d'hystérésis consécutifs pour laquelle les valeurs de H_s^{hy} sont enregistrées. Ces fluctuations rendent compte des différences microscopiques entre les chemins que peut prendre aléatoirement l'aimantation de l'état de saturation à l'état stable de vortex.

Les variations de la moyenne des champs de retournement en fonction de la température sont présentées Figure (3-6). Nous nous intéressons surtout à l'intervalle de température [1.7, 8] en degrés Kelvin, qui permet la comparaison avec les mesures sur le réseau. Ces variations en fonction de la température, de l'ordre de 5 Oersted, sont dix à vingt fois plus faibles³ que dans le cas précédent de la particule de CoZr (voir Figure (2-6)).

³Cet effet n'est pas lié directement à la taille ni au matériau. Des particules de Co plus petites ont exhibé des fluctuations 10 fois plus importantes [Wernsdorfer 1995].

Particule individuelle

Figure (3-6)

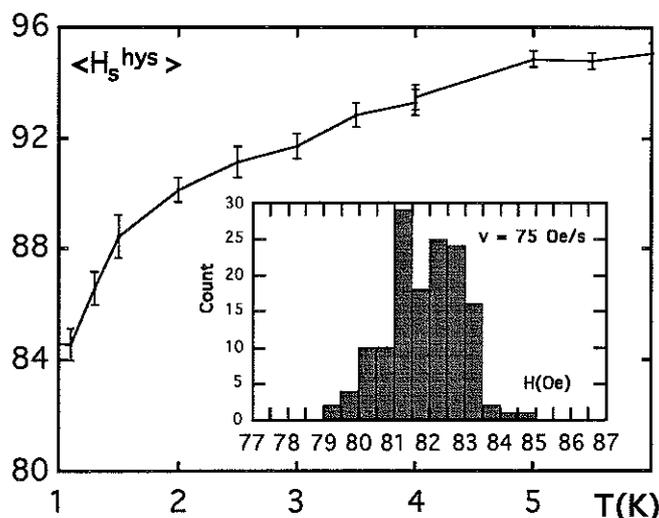


Figure (3-6): dépendance en température de la valeur moyenne des champs de retournement mesurée lors du parcours des cycles d'hystérésis. En encart, l'histogramme des champs de retournement H_s^{hy} .

La largeur à mi-hauteur de la distribution est indiquée par des barres d'erreurs dans la Figure (3-6). Bien que de façon légère, les fluctuations augmentent lorsque la température diminue. Intuitivement, cette caractéristique n'est pas surprenante dans le cadre de l'étude d'un système conduit par un champ extérieur où une bifurcation est à l'origine du saut d'aimantation. Par contre, cette caractéristique est surprenante si l'on considère un système métastable dans un champ statique, où le retournement est produit par le passage d'une haute barrière de potentiel. Les fluctuations responsables du passage de la barrière sont a priori les fluctuations à l'équilibre (typiquement produites par le bruit kT qui entre dans la loi de Boltzmann) qui ont lieu dans le puits de potentiel correspondant à la barrière la plus haute .

La valeur du paramètre H_s^{hy} des mesures quasi-statiques dépend aussi de la vitesse de déplacement du champ extérieur v . On vérifie que cette dépendance est peu importante par rapport aux variations en température.

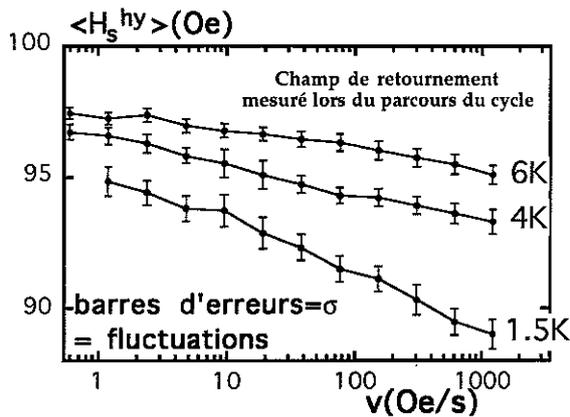
Figure (3-7) *particule individuelle*

Figure (3-7): variations du champ de retournement, mesurées sur le cycle d'hystérésis, en fonction de la vitesse de parcours du cycle mesuré à trois températures. Les barres d'erreur représentent les fluctuations du champ de retournement H_s^{hy} autour de la valeur moyenne (c'est-à-dire l'écart quadratique moyen de la distribution en encart de la Figure (3-4)). On remarque que les fluctuations augmentent quand la température diminue.

II-3-1 (b) Caractérisation magnétique à l'échelle macroscopique

A l'échelle du réseau, les variations des structures micromagnétiques dans les particules en fonction de la température sont moins visibles. La Figure (3-8) montre que la variation du champ H_M définie dans le paragraphe (II-2) précédent (et comparable au champ coercitif) n'est pas significative. Cette caractéristique à déjà été constatée (Figure(3-3)); les variations en température du cycle d'hystérésis sont très peu importantes relativement à la largeur des cycles.

Afin de souligner la spécificité de ces mesures sur plots magnétiques, nous présentons Figure (3-9) le même type de mesures avec le même type de protocole sur des petites particules de Ferrite de Baryum ($BaFe_{12}O_{19}$) de 30nm. L'échantillon se présente sous forme de poudre, compressée pour éviter la rotation des grains. La distribution de taille des particules est connue par des mesures en microscopie électronique à transmission (moyenne de 30nm avec un écart type de 200nm) [Sampaio 1995]. Les ajustements sont réalisés à partir de la distribution en taille additionnée d'une distribution des champs de retournement. La dépendance en champ à été tracée par le biais de la distribution d'énergie d'anisotropie et d'une distribution Lorentzienne des champs de retournement (les traits pleins de la Figure(3-9) ne sont pas des ajustements). Ces données et calculs sont issus de [Sampaio 1995], [Barbara 1994]).

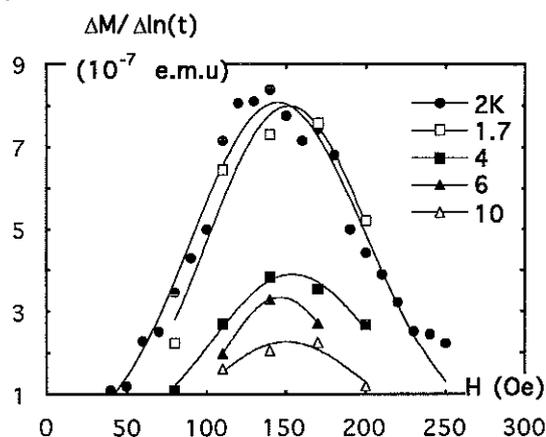
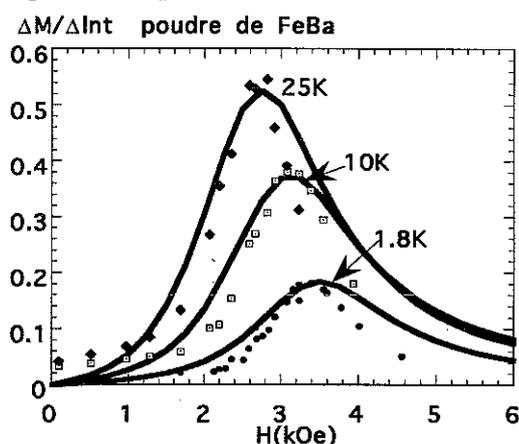
Figure (3-8) *réseau*Figure (3-9) *poudre*

Figure (3-8): variation de la vitesse de relaxation logarithmique en fonction du champ appliqué, à différentes températures. Les courbes sont des ajustements en fonctions Gaussiennes multipliées par le champ appliqué H , explicité paragraphe (II-3-4 (b)). Contrairement au cas représenté Figure (2-

10), les courbes $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_T (H)$ ne sont pas, ou peu, décalées en températures

Figure (3-9): à titre de comparaison, sont représentées les vitesses de relaxation logarithmique de petites particules de FeBa en poudre (réseau tridimensionnel). L'effet de la température est inversé par rapport aux mesures sur réseau bi-dimensionnel. Les points à champ fixe en fonction de la température sont présentés Figure (2-18).

La comparaison entre l'aimantation $M(H)$ de l'hystérésis et l'aimantation $M_{t_0}(H)$ pris pendant la relaxation est présentée Figure (3-10). Les formes des deux courbes sont très semblables. Néanmoins, les points de la relaxation à $t=10^3$ secondes sont placés au dessus du cycle d'hystérésis comme si, toutes choses égales par ailleurs, le cycle était parcouru plus lentement. Ces variations d'une vingtaine d'Oersted représentent en temps environ 40 décades: le rapport entre les champs et les temps de relaxation est donné plus loin Figure (3-18). Il est d'environ deux décades par Oersted. Il est impossible de parcourir raisonnablement 40 Décade en temps : les deux mécanismes de retournement, dans un cas lorsque le système est conduit par le champ extérieur, dans l'autre lorsque le champ est fixé et le système relaxe "librement" ne sont pas identiques, bien que semblables.

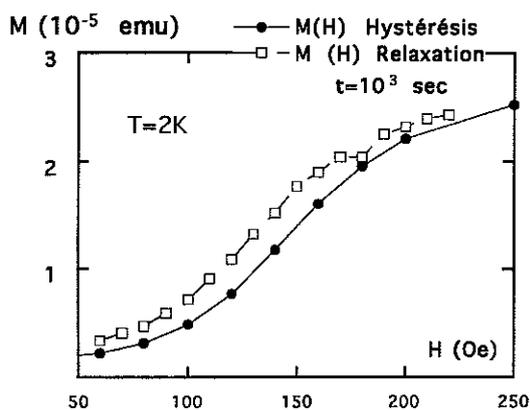
Figure (3-10) réseau

Figure (3-10): Aimantation en fonction du champ appliqué pour le cycle d'hystérésis comparé avec l'aimantation prise pendant la relaxation à $t_0 = 10^3$ secondes. Les deux mesures sont prises à 2K.

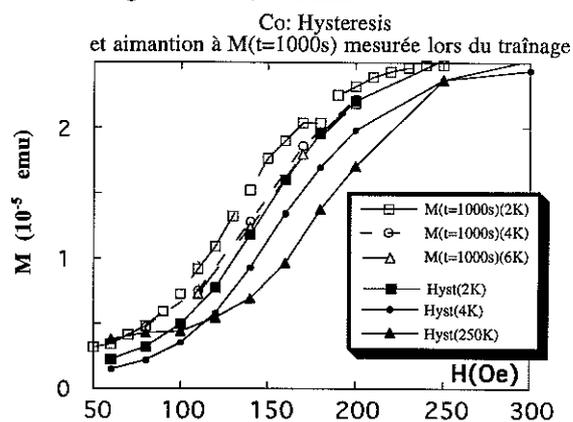
Figure(3-11)réseau

Figure (3-11): Aimantation en fonction du champ appliqué pour le cycle d'hystérésis comparé et aimantation prise pendant la relaxation à $t_0 = 10^3$ secondes pour plusieurs températures

Résumé

Ces résultats permettent de mettre en évidence un certain nombre de points essentiels des expériences quasi-statiques (en cycle d'hystérésis):

Pour les particules mesurées individuellement:

- Un macrospin peut être défini comme la discontinuité de l'aimantation lors de la nucléation d'une paroi ou d'un vortex. La valeur de cette discontinuité semble indépendante de la température.
- La nature des mesures sur le macrospin est stochastique: les mesures n'ont de sens qu'en moyennes statistiques. Les fluctuations sont dues aux caractéristiques microscopiques de l'environnement avec lequel interagit le système de spins étudié.
- Des variations non négligeables de la dépendance en température de la valeur moyenne du champ de retournement $\langle H_s^{hy} \rangle$ sont mesurées. Il en est de même des variations thermiques des fluctuations autour de cette valeur moyenne. Ces variations trahissent un comportement non trivial du couplage du macrospin à l'environnement en fonction de la température.
- Les fluctuations (l'écart type de la distribution statistique) augmentent lorsque la température diminue.

Pour les mesures sur le réseau:

- Le cycle sur le réseau est très semblable au cycle mesuré sur la particule individuelle. Cependant, de même que dans le cas de l'échantillon précédent, le saut abrupt dans le cycle de la particule individuelle est remplacé sur le cycle du réseau par une transition

Chapitre II

lente de l'état saturé à un état réversible. La pente de cette transition donne une distribution des positions moyennes des sauts d'aimantation des particules individuelles.

- Les effets des variations de H_s^{hy} en température du macrospin ne sont pas sensibles à l'échelle du réseau.

De la particule submicronique au réseau macroscopique:

Les distributions statistiques aux échelles nanoscopiques décrivant les couplages du système de spins étudié avec son environnement lors du saut d'aimantation, et la distribution statistique traduisant la structure macroscopique, sont séparables.

Ce point est illustré par les quatre schemas ci-dessous:

Réseau

particule individuelle

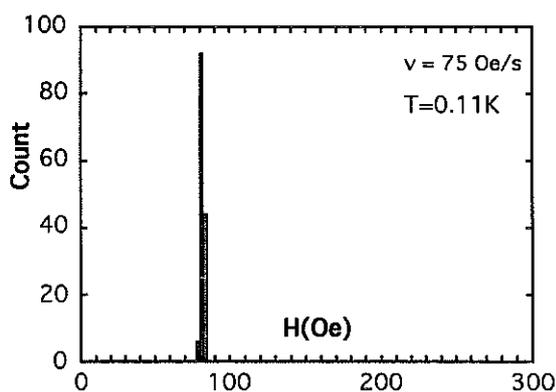
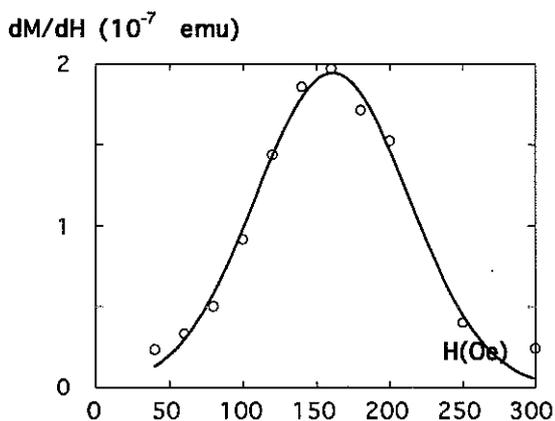
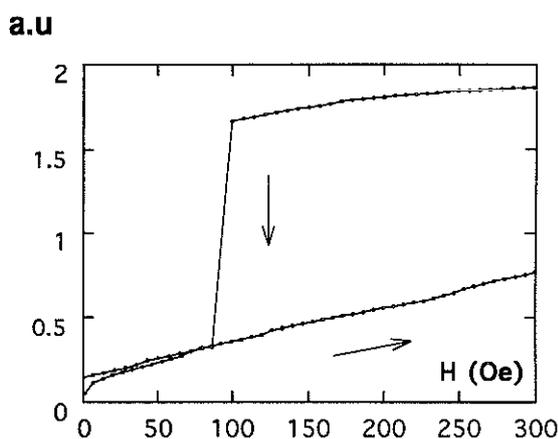
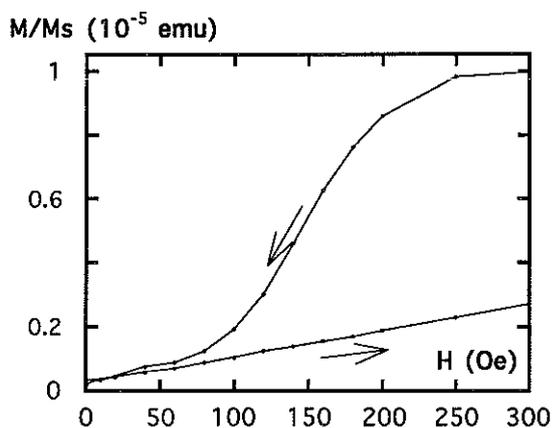


Figure (3-12) à gauche un zoom sur la partie du cycle d'hystérésis du réseau correspondant à la nucléation et la distribution des champs moyens de retournement. A droite, un zoom sur la partie du cycle d'hystérésis d'une particule correspondant à la nucléation avec les fluctuations autour de la valeur moyenne: cette distribution peut être approximée par une distribution de Dirac à l'échelle de la distribution des moyennes, dans le réseau.

II-3-2 Protocole de mesure de traînage magnétique

Du fait de la stabilité des paramètres quasi-statiques mesurés sur le réseau en fonction de la température, le problème du protocole de traînage magnétique ne se pose pas dans les mêmes termes. Le cycle d'hystérésis ne dépend pas de l'histoire thermique de l'échantillon. L'état de saturation, de même que les états correspondant à la zone centrale du cycle d'hystérésis sont des états stables. Il est donc possible d'appliquer un protocole plus simple en amenant le système de l'état de saturation à un état instable avec le champ magnétique extérieur, à température constante. Le protocole expérimental des mesures de traînage magnétique sur le réseau est fixé comme suit:

pendant 15 mn, le champ de saturation est appliqué à 1.5 kOe. Le champ est ensuite fixé à la valeur du champ appliqué de relaxation H_a . Le changement de champ dure de une à deux minutes. L'aimantation $M(t)$ est ensuite mesurée pendant trois heures.

Dans le cas de la particule mesurée individuellement, le champ de saturation n'est pas nécessairement fixé précisément. En effet, les mesures présentées plus loin montrent que les variations du temps de relaxation sont de l'ordre de deux décades par Oersted. Le système ne peut donc pas voir des variations de champ à plus de quelques Oersted. Par exemple, à cinq Oersted du champ de retournement, le système peut être considéré comme stable aux échelles de temps de nos mesures puisqu'il relaxe sur des temps de l'ordre du siècle .

En conséquence, quel que soit le pas de la variation de champ ΔH imposé par le protocole de traînage, la variation effective du champ perçue par une particule $(\Delta H)_{eff}$ ne dépassera pas quelques Oersteds.

Le champ appliqué est installé en moins d'une seconde (du fait de la bobine résistive) et le temps est compté jusqu'à ce que le saut ait lieu.

Lorsque le champ est amené de la valeur de saturation au champ appliqué de relaxation, l'aimantation varie de l'ordre du centième de l'aimantation totale (voir le cycle de la particule figure (3-2)), c'est à dire de façon négligeable. Par la suite, l'aimantation reste à la même valeur jusqu'à ce que le saut ait lieu. Il se trouve ensuite dans l'état stable avec une paroi de domaine. A l'échelle des mesures nanoscopiques, le processus est donc à deux états: à chaque instant, la particule est soit dans un état soit dans l'autre (le macrospin est soit retourné soit non retourné).

II-3-3 Variation de l'aimantation en fonction du temps

L'aimantation est mesurée au cours du temps à partir de l'application du champ magnétique de relaxation. Dans le cas des mesures nanoscopiques, la sensibilité en temps est de l'ordre de 0.02 secondes. Dans le cas des mesures sur le réseau elle est supérieure à 100 secondes.

Nous allons supposer par la suite que les mesures sont invariantes d'échelle dans le temps. Les caractéristiques mesurées dans une fenêtre d'observation de trois décades, de 0.1 à 100 secondes sont supposées comparables aux caractéristiques mesurées sur une autre fenêtre d'observation de trois décades de 10 à 10000 secondes. En d'autres termes, nous supposons qu'une extrapolation des courbes de relaxation est valide sur deux décades. Cela nous permet de comparer les courbes de relaxation obtenues sur les mesures du réseau avec les courbes de relaxation obtenues sur les particules individuelles.

II-3-3 (a) Loi de relaxation à l'échelle nanoscopique

Il existe un champ appliqué, proche du champ de retournement $\langle H_s^{hy} \rangle$ mesuré lors des cycles d'hystérésis, pour lequel la relaxation est "immédiate" (au sens des mesures). Lorsque l'on s'éloigne de cette valeur, la relaxation devient lente et peut se compter en heures ou en jours. Pour des raisons de commodité évidentes, la fenêtre d'observation est fixée de 0.1 seconde à quelques dizaines de minutes, et la valeur des champs appliqués est sélectionnée suivant ce critère. Les champs de relaxation sont donc sélectionnés au cours des expériences sur la particule individuelle, de façon à fixer la fenêtre de mesure pour l'ensemble des températures explorées.

Pour chaque valeur de champ appliqué, à température fixée, une centaine de relaxations sont effectuées. Un histogramme est ainsi réalisé, en comptant le nombre de fois où le temps de saut τ est compris dans une fenêtre de temps donnée. La probabilité de non-retournement est obtenue lorsque cet histogramme est intégré dans le temps et normalisé à sa surface totale. Cette probabilité est présentée Figure (3-13) et (3-14)

Particule individuelle

Figure (3-13)

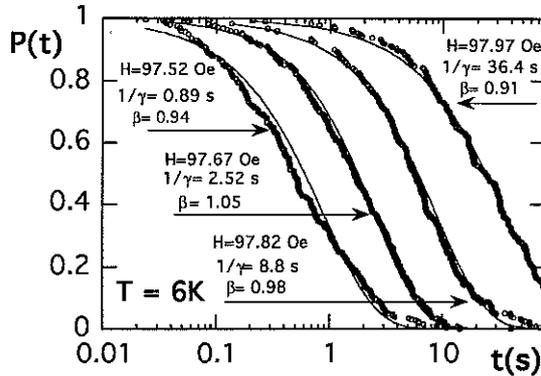
*Particule individuelle*

Figure (3-14)

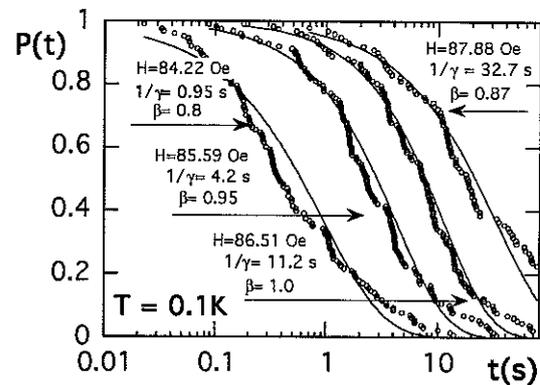


Figure (3-13) Figure (3-14): probabilité de non-retour du macrospin mesuré à 6K et à 0.1K. Ces courbes sont obtenues par intégration de l'histogramme des temps de retour. Les fluctuations du temps de retour s'étalent sur environ trois décades [Wernsdorfer 1996].

Dans le but d'être comparée avec les relaxations sur le réseau, la courbe $P(t)$ est représentée en fonction du logarithme du temps. Notons que les courbes s'étalent sur trois décades.

L'aspect exponentiel des courbes $P(t)$ n'est pas clairement établi, particulièrement à basse température. De façon à estimer l'écart à l'exponentielle, les courbes ont été ajustées numériquement par une fonction de Watts (voir le paragraphe (I-2-3)) de la forme $\exp[(-\gamma t)^\beta]$. L'écart à la loi exponentielle est exprimé par la valeur du paramètre β . Ces mesures permettent de définir "le coefficient de friction" γ qui est relié au temps moyen de retour $\langle \tau \rangle$ par la relation

$$\langle \tau \rangle = 1/\gamma \cdot c(\beta), \text{ avec } c(\beta) = \frac{\Gamma(2/\beta)}{\Gamma(1/\beta)} \quad (1)$$

où $\Gamma(x)$ est la fonction Gamma.

Lorsque la relaxation est exponentielle on a $\langle \tau \rangle = 1/\gamma$.

La dépendance de β en fonction de la température est exposée dans la figure (3-15). Dans l'intervalle de température qui nous intéresse, jusqu'à 1.7K, les variations de β autour de l'unité ne sont pas significatives.

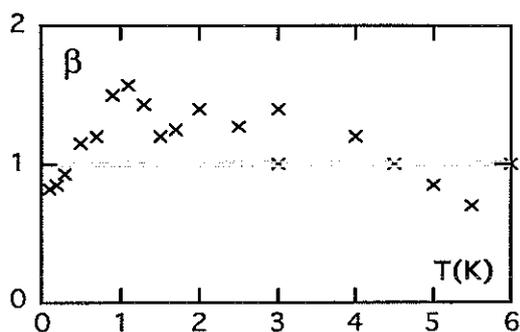
Figure (3-15) particule individuelle

Figure (3-15): dépendance thermique du paramètre β donnant l'écart à la relaxation exponentielle par la fonction de Watts ($\exp[-(\gamma)^\beta]$). L'imprécision de l'ajustement numérique ne permet pas de conclure de façon définitive sur la différence $(1-\beta)$.

Nous considérerons par la suite, sauf spécifications particulières, que la relaxation pour cet échantillon est approximativement exponentielle. Nous supposons donc que la dynamique à l'échelle nanoscopique est caractérisée par un seul temps de relaxation $\langle \tau \rangle$.

$$1-P(t) = \exp(-t/\langle \tau \rangle) \quad (2)$$

II-3-3 (b) Variation de l'aimantation en fonction du temps à l'échelle macroscopique

De même que pour l'échantillon précédent, les courbes de relaxation sur le réseau sont logarithmiques.

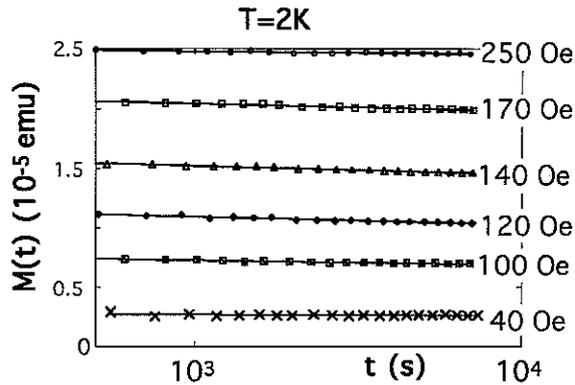
Figure (3-16) réseau

Figure (3-16) Courbes de relaxation de l'aimantation en fonction du logarithme du temps, représentées à différents champs appliqués. La température est de 2K. L'aimantation à saturation est $M_s = 2.7 \cdot 10^{-5}$. Les variations s'étalent sur $2.5 \cdot 10^{-5}$ emu.

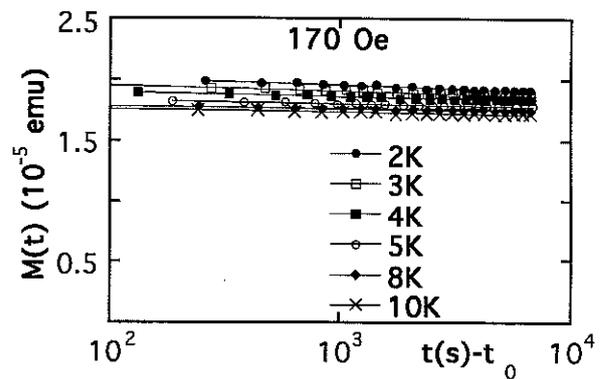
Figure (3-17) réseau

Figure (3-17): Courbes de relaxation de l'aimantation en fonction du logarithme du temps représenté à différentes températures pour le même champ appliqué fixé à 170 Oe. La même échelle que pour la Figure ci-contre est conservée. Les variations s'étalent sur $0.3 \cdot 10^{-5}$ emu. Le temps t_0 est estimé comme le temps nécessaire à l'installation du champ.

Contrairement à l'échantillon précédent, il y a maintenant un ordre de grandeur entre l'action des variations de température et l'action des variations de champ sur l'aimantation à un temps fixé de la relaxation $M(t_0)$ pour les mêmes gammes de température.

Les variations en champ magnétique et en température des relaxations présentées sur les Figures (3-16) et (3-17) sont étudiées dans les paragraphes suivants à l'aide des paramètres $M(t_0)$, $\Delta M/\Delta \ln(t)$ et $dM(t_0)/dH$ définis dans la partie (II-2) précédente. Les variations en champ visualisées sur la figure (3-16) sont présentées paragraphe (II-3-4) et les variations en température visualisées sur la figure (3-17) sont présentées en détails au paragraphe (II-3-5).

Résumé

particule individuelle:

- La mesure statistique des temps de retournement a permis de mettre en évidence une fonction de relaxation, très proche de l'exponentielle. Une variable aléatoire temps de retournement est définie ainsi que sa valeur moyenne $\langle \tau \rangle$ ou un "coefficient d'amortissement" γ .

réseau:

- La relaxation est logarithmique.

Chapitre II

Nous pouvons donc conclure que le profil logarithmique de la relaxation à l'échelle macroscopique provient de la somme des relaxations de type exponentielle.

II-3-4 Variation de la relaxation en fonction du champ appliqué

A une température fixée et à un champ appliqué fixé, le macrospin est défini par un temps moyen de relaxation, qui dépend de la distance entre le champ appliqué et un "champ de retournement" H_{sw} de la relaxation. On définit le champ H_{sw} comme étant le champ pour lequel le temps de relaxation est "instantané". En termes de barrière de potentiel, le champ H_{sw} correspond au cas où la hauteur de barrière s'annule $E(H_{sw})=0$. Cependant, d'après les résultats expérimentaux, il apparaît que la hauteur de barrière quasi-statique ne correspond pas à une hauteur de barrière du processus libre de relaxation (voir la conclusion de la partie (II-3)). Le problème de la définition du champ H_{sw} rejoint le problème du lien entre les mesures de relaxation et les mesures quasi-statiques de l'hystérésis. Lorsqu'une identification est possible (ce qui signifie entre autre que le terme "instantané" a été défini), alors le champ de retournement H_{sw} peut être relié au champ H_s^{hy} des mesures quasi-statiques d'hystérésis dont on connaît le comportement et les variations en fonction de la température (Figure (3-6)).

Pour mesurer la relaxation d'une particule individuelle, il faut fixer le champ appliqué à une valeur telle, que le temps moyen de retournement $\langle \tau \rangle$ tombe dans la fenêtre d'observation. Ceci est une condition nécessaire pour que les retournements effectifs du macrospin (tenant compte des fluctuations) aient lieu dans la fenêtre de trois décades.

Dans les mesures sur le réseau de particules, c'est la fenêtre des temps de mesure qui sélectionne les macrospins dont le champ de retournement correspond effectivement à un retournement. Ceci est valide quel que soit le champ extérieur, tant que la distance entre le champ de retournement H_{sw} et le champ appliqué peut être maintenue.

Le rôle du champ appliqué est donc tout autre, dans l'une et l'autre des expériences. Dans le cas de la particule individuelle, les variations de champ appliqué permettent de faire varier la température tout en restant dans des temps d'attente raisonnables. Dans le cas du réseau, les variations de champ appliqué ont une action visible seulement si le nombre de sous-systèmes définis par le champ H_{sw} dans l'échantillon varie quand H_{sw} varie. C'est la raison pour laquelle le paramètre expérimental $\left. \frac{\Delta M(t_0)}{\Delta H} \right|_T$ (H) donne accès à la distribution des champs de retournement.

II-3-4 (a) Temps moyen de retournement en fonction du champ appliqué à l'échelle nanoscopique

L'étude de la dépendance en temps de l'aimantation des particules individuelles a permis de définir le coefficient $\langle \tau \rangle = 1/\gamma$, par l'intermédiaire des relaxations exponentielles visible sur les figures (3-13) et (3-14). Les résultats statistiques des expériences de relaxation, répétées pour plusieurs champs appliqués et pour plusieurs températures, sont résumés dans la figure (3-18) où l'on a tracé le logarithme du temps moyen de relaxation $\ln(\langle \tau \rangle)$.

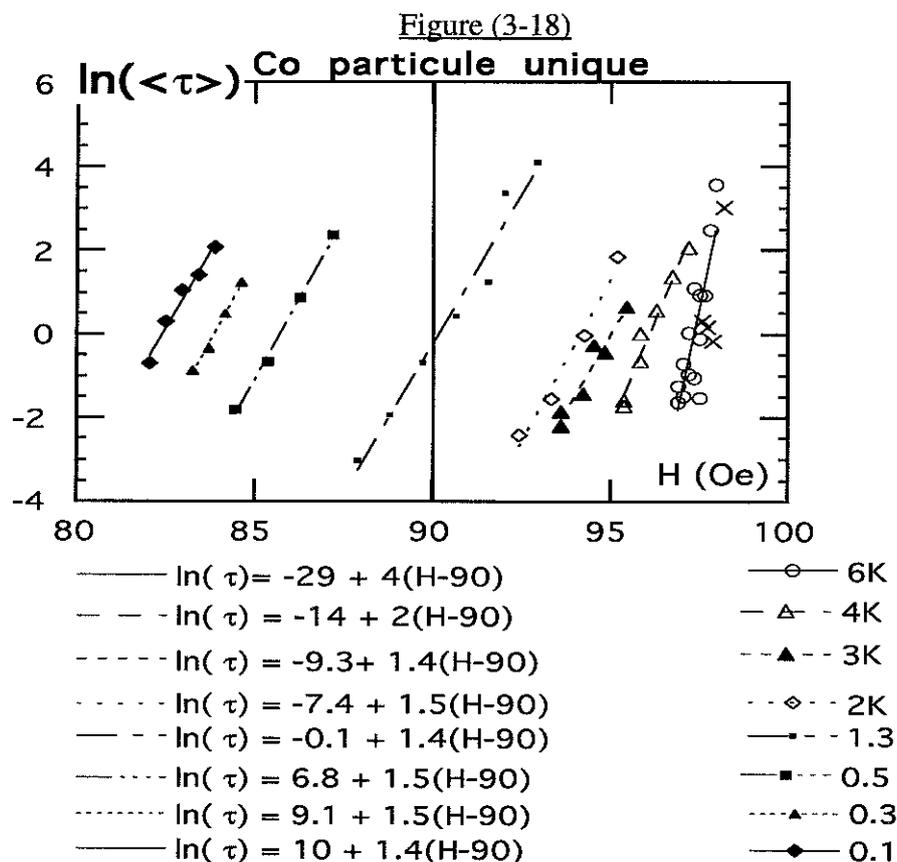


Figure (3-18): valeurs des temps de relaxations moyens en fonction du champ appliqué à plusieurs températures en échelle semi-logarithmique. La dépendance de $\ln(\langle \tau \rangle)$ en champ est linéaire sur les temps explorés. Les ajustements linéaires $\ln(\langle \tau \rangle) = \ln(\langle \tau \rangle(H=90)) + [d\ln(\langle \tau \rangle)/dH] \cdot \Delta H$ pour chaque température, fournissent la dépendance thermique des deux paramètres $\ln(\langle \tau \rangle(H=90))$ et $d\ln(\langle \tau \rangle)/dH$.

La dépendance de $\ln(\langle \tau \rangle)$ en fonction du champ appliqué est linéaire sur les trois décades de temps explorées pour chaque température. La dépendance en température se manifeste ici essentiellement par le terme du temps moyen de relaxation $\langle \tau \rangle$, pris à

champ appliqué fixé. Les temps de relaxation du mécanisme de retournement présenté Figure (3-18) peuvent se réécrire:

$$\ln(\langle\tau\rangle)=\ln(\langle\tau\rangle(H=90)) + [d\ln(\langle\tau\rangle)/dH].\Delta H \quad (3)$$

Les variations de $\ln(\langle\tau\rangle)$ sont de l'ordre de deux décades par Oersted. Sur l'intervalle de température mesuré trois décades de temps correspondent à des variations d'une vingtaine d'Oersted. En d'autres termes, une fenêtre de temps d'observation de trois décades concerne des macrospins dont les temps de retournement moyen $\langle H_{sw} \rangle$ sont compris dans un intervalle de quelques Oersted. Les particules dont les champs de retournement moyens n'appartiennent pas à cet intervalle ne participeront pas à la relaxation dans la fenêtre de mesure.

Notons que d'après la Figure (3-6) des champs de retournement moyens, le champ de retournement $\langle H_{sw}^0 \rangle$ extrapolé à température nulle, correspondant donc à une hauteur de barrière nulle, est égal à 84 Oe. Pour ce champ, la formule (3) se réécrit:

$$\ln(\langle\tau\rangle)=\ln(\langle\tau\rangle^0) + [d\ln(\langle\tau\rangle)/dH].(H - \langle H_{sw}^0 \rangle) \quad (4)$$

$$\langle H_{sw}^0 \rangle = 84 \text{ Oe}$$

où $\langle\tau\rangle^0$ est le temps de diffusion "libre", c'est-à-dire en l'absence de barrière. La dépendance thermique de $\langle\tau\rangle^0$ est très semblable à la dépendance thermique de $\langle\tau\rangle(H=90)$ (voir Figure (3-25) plus bas); cette dépendance est exponentielle. Notons qu'un tel comportement n'est pas habituel pour les temps d'attentes ou temps d'essais, en préfacteurs de la loi d'activation de Brown.

II-3-4 (b) Variation de la relaxation en fonction du champ appliqué à l'échelle macroscopique

Les variations de l'aimantation en fonction du champ appliqué sur le réseau donnent une information sur le nombre de macrospins susceptibles de se retourner pour chaque champ.

Les distributions de champs de retournement (Figure(3-19)) son extraites soit des courbes tirées du cycle d'hysérésis , soit de l'aimantation en un temps donné de la relaxation (les deux courbes $M(H)$ sont comparées figure(3-10)). Ces distributions, représentées Figure(3-20) sont décalées avec la température. Le décalage est de l'ordre de 10 Oe entre 2 et 6 K, conformément à la dépendance observée Figure(3-18) sur un

temps de retournement moyen $\ln(\langle \tau \rangle)$, compte tenu de l'imprécision des ajustements issus de la dérivation des points de la figure(3-10).

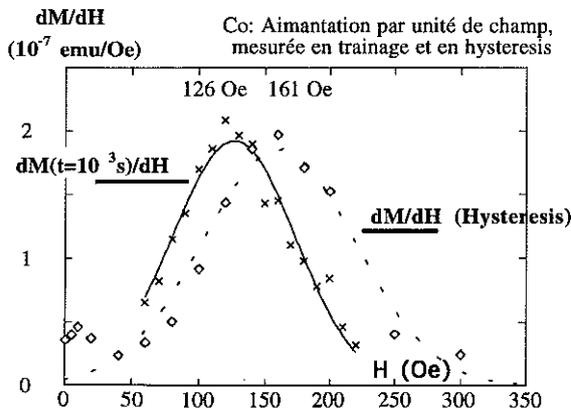
Figure(3-19) réseau

Figure (3-19) : distribution des champs de retournement dans le réseau extraite, à gauche, de la dérivée par rapport au champ de l'aimantation prise à 1000 seconde pendant la relaxation et à droite pris lors du parcours du cycle d'hystérésis.

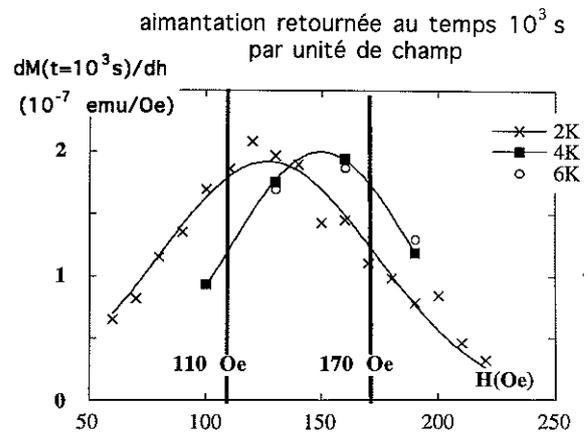
Figure(3-20) réseau

Figure (3-19) : distribution des champs de retournement dans le réseau extraite de la dérivée par rapport au champ de l'aimantation prise à 1000 secondes à 2K , 4 K et 6K. Les traits indiquent des champs, de part et d'autre des maxima pour lesquels l'étude en température a été réalisée.

L'influence de ce décalage en température sur les mesures de relaxation à champ fixé n'apparaît pas dans nos mesures. Dans le paragraphe suivant, la vitesse de relaxation logarithmique est étudiée à 110 Oe et 170 Oe, c'est à dire en des points où l'effet des distributions est opposé.

Chapitre II

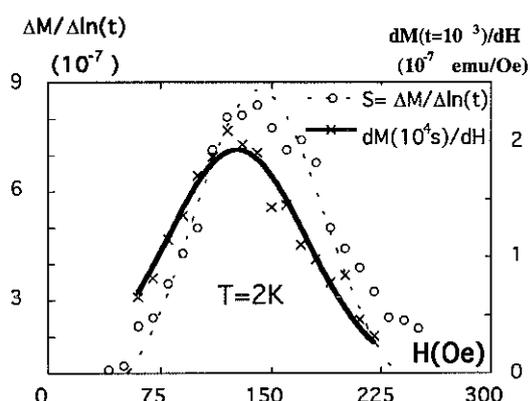
Figure (3-21) *réseau*

Figure (3-21) : comparaison à 2K de la vitesse de relaxation logarithmique (carrés blancs et échelle de gauche) et de la dérivée de l'aimantation en fonction du champ (symboles en croix et échelle de droite). Les ajustements numériques sont décrits dans le texte.

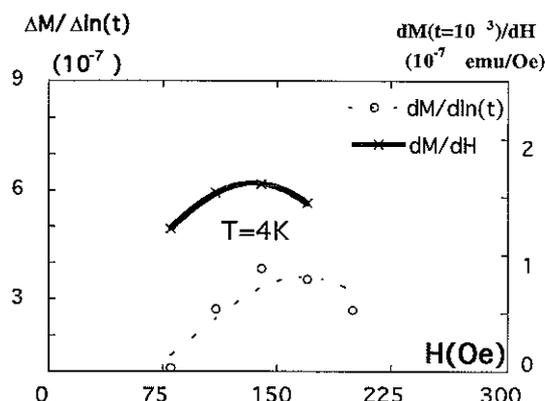
Figure (3-22) *réseau*

Figure (3-22) : même comparaison que la Figure(2-21) pour la température de 4K. La comparaison des deux figures montre que la la distribution dM/dH est peu sensible aux variations thermiques, contrairement à la vitesse de relaxation.

Les deux grandeurs dM/dH et $\Delta M/\Delta \ln(t)$ sont représentées Figure(3-21) sur deux échelles différentes. L'aimantation $\Delta M/\Delta \ln(t)$ est environ quatre fois plus grande pour tout H. Cela signifie que chaque relaxation avec un champ extérieur compris dans l'intervalle $[H_{\text{ext}}, H_{\text{ext}} + dH_{\text{ext}}]$ met nécessairement à contribution un très grand intervalle de champs de retournement $\langle H_{\text{sw}} \rangle$.

L'étude de la partie (II-2) précédente sur l'échantillon CoZr a mis en évidence la relation $\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_T(H) \propto H \cdot \left. \frac{\Delta M(t_0)}{\Delta H} \right|_T(H)$ qui existe entre les variations de la vitesse de relaxation en fonction du champ appliqué et la distribution, $dM(t_0)/dH$, des paramètres propres à chaque particule qui compose le réseau. Cette relation est vérifiée pour le réseau de Co. Les ajustements sont présentés Figure (3-21) et (3-22) pour 2K et 4K.

Tableau 3-1

T=2K : $dM/dH = \text{Gauss1}(H)$ $= a_1 \cdot \exp(-(H-H_{1c})^2 / \sigma_1^2)$	T=4K : $dM/dH = \text{Gauss2}(H)$ $= a_2 \cdot \exp(-(H-H_{2c})^2 / \sigma_2^2)$
$a_1 = 2.10 \cdot 10^{-7}$	$a_2 = 1.62 \cdot 10^{-7}$
$H_c = 126.6$	$H_c = 134.8$
$\sigma_1^2 = 4400$	$\sigma_2^2 = 10800$

Ces paramètres permettent de réaliser l'ajustement de la vitesse $\Delta M/\Delta \ln(t) \propto H \cdot (dM/dH)$, avec le paramètre de proportionnalité b tel que:

Tableau 3-2

$T=2K: \Delta M/\Delta \ln(t) =$ $b_1.H.exp(-(H-126.6)^2/ 4400)$	$T=4K: \Delta M/\Delta \ln(t) =$ $b_2.H.exp(-(H-134.8)^2/ 10800)$
$b_1=6.6 \cdot 10^{-9}$	$b_2=2.3 \cdot 10^{-9}$

Les ajustements numériques à 4K, réalisés sur cinq points, ne sont pas pertinents. Les informations apportées par la procédure ci-dessus ne peuvent être que qualitatives.

La Figure (3-21) met en évidence, par comparaison avec la Figure (3-22), l'invariance (relative) de la distribution par rapport à la température, en revanche, la vitesse de relaxation subit des variations importantes. De même que pour le CoZr, l'aire sous la courbe dM/dH représente l'aimantation totale M_T de l'échantillon. L'aimantation sous la courbe $\Delta M/\Delta \ln(t)$ est environ quatre fois plus grande. Chaque relaxation à champ extérieur fixé met à contribution en moyenne plusieurs champs de retournement H_{sw} . L'aire sous la courbe donne une mesure des fluctuations des champs de retournement H_{sw} ou des temps de retournement $\langle \tau \rangle$.

Résumé

Durant la relaxation, les macrospins qui se retournent ont un champ de retournement moyen compris dans un intervalle d'au plus 10 Oe pour les températures comprises entre 1.5K et 10K. Ces variations sont négligeables par rapport à la largeur des distributions en cause (voir Figure (3-15) et (3-16)) au voisinage du maximum. La distribution des champs de retournement pour les macrospins du réseau qui participent à la relaxation peut être prise comme uniforme: les variations en fonction de la température de $H_{sw}(T)$ ne seront pas apparentes dans le réseau de particules (voir paragraphe (II-2-5 (b)) suivant), pas plus que les modifications de l'aimantation du réseau provoquées, à température fixe, par une variation de cinq Oersteds du champ appliqué.

Le passage du nanoscopique au macroscopique semble se réduire à la connaissance des fluctuations du champ de saut H_{sw} autour de sa valeur moyenne $\langle H_{sw} \rangle$ à l'échelle nanoscopique et à la connaissance de la distribution g des champs de saut moyens $\langle H_{sw} \rangle$ dans le réseau macroscopique. Le rapport entre la courbe des vitesses de relaxation $\Delta M/\Delta \ln(t)$ en fonction du champ de relaxation et la distribution des champs de saut moyen $\langle H_{sw} \rangle$, est approximativement égal à celui mesuré sur les échantillons lithographés de CoZr (rapport d'un facteur 4).

Les différentes valeurs de $\ln\langle\tau\rangle$ ou $\langle H_{sw}\rangle$ distribuées dans le réseau, sont liées aux différents défauts présents dans chaque particule. Il devrait être possible d'estimer les variations du paramètre $\langle\tau\rangle$ susceptibles d'avoir lieu par la connaissance de la nature des défauts. La Figure (3-23) (voir la référence [Wernsdorfer 1995c]), donne une idée de l'effet des défauts dans la dynamique quasi-statique. La Figure représente les variations du champ de retournement H_s^{hy} , en fonction de l'angle du champ par rapport à l'axe de facile aimantation. Le comportement d'une particule sans défaut peut être modélisé par un modèle du type Stoner-Wohlfarth proposé dans la référence (pointillé sur le graphe) [Wernsdorfer 1995c]. L'effet du défaut est représenté par l'écart des points de mesure à la courbe issue du modèle. Cet écart peut être de l'ordre de 40 Oe pour une seule particule. On peut imaginer que l'écart entre particules est multiplié par un facteur 5 et donne lieu à la distribution dans le réseau.

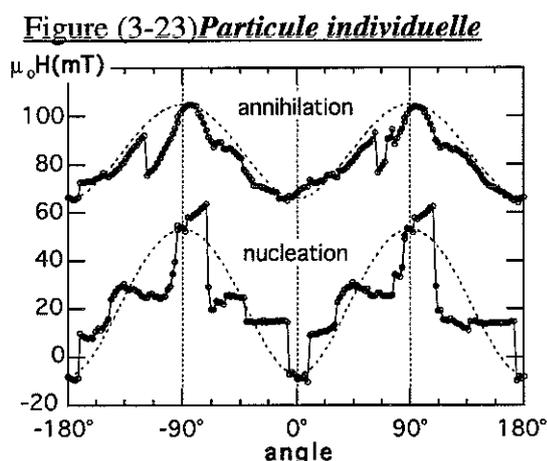


Figure (3-23). Dépendance angulaire du champ de retournement H_s^{hy} mesuré lors du parcours du cycle d'hystérésis de la particule de Co. La courbe du bas correspond au saut de nucléation étudié. Celle de haut correspond au saut d'annihilation. L'ajustement des données est réalisé grâce à un modèle de retournement uniforme de l'aimantation (du type Stoner-Wohlfarth), présenté dans la référence [Wernsdorfer 1995 c].

II-3-5 La variation de la relaxation en fonction de la température

II-3-5 (a) Temps moyen de retournement en fonction de la température à l'échelle nanoscopique

Nous cherchons à connaître la dépendance en température du paramètre $\ln\langle\tau\rangle$ mesuré sur le macrospin. Or, il n'est pas possible en pratique de mesurer à champ appliqué fixé la relaxation d'un macrospin sur une gamme de température de quelques Kelvins: les variations du temps moyen de relaxation sont de plusieurs dizaines de décades. Pour connaître le comportement de $\ln\langle\tau\rangle$ en fonction de la température, il est nécessaire de procéder à des extrapolations du type $\ln\langle\tau\rangle = \ln\langle\tau\rangle(H=90) + [d\ln\langle\tau\rangle/dH] \cdot \Delta H$ visible sur la Figure (3-18).

Le champ $H=90$ Oe est choisi car il est situé au centre de la fenêtre explorée. Ce paramètre à champ fixe n'est accessible que par extrapolation de la loi linéaire sur une dizaine de décades. Ce paramètre doit donc être considéré avec précaution.

Dans le mécanisme d'activation thermique classique, le temps moyen de relaxation doit pouvoir écrire en terme de "loi d'Arrhenius":

$$\ln(\langle\tau\rangle) = E(H)/kT \quad (4)$$

de même on aurait

$$\Delta\ln(\langle\tau\rangle)/\Delta H = 1/kT \{ \Delta E(H)/\Delta H \} \quad (5)$$

où $E(H)$ est la barrière d'énergie et kT le bruit d'activation issu de la distribution de Boltzmann lorsque le système est à l'équilibre. Cette expression justifie les représentations en graphe d'Arrhenius de $\ln(\langle\tau\rangle)$ en fonction de $1/T$.

Nous avons représenté ces graphes d'Arrhenius des deux termes extrait de la figure (3-18) au paragraphe II-3-5 relatif aux comportements thermiques: le comportement du paramètre $\Delta\ln(t)/\Delta H$ (T) est très éloigné d'une loi d'activation habituelle. Le paramètre $\ln(\langle\tau\rangle(H=90))$ suit approximativement une loi d'activation à haute température avec une correction importante aux basses températures.

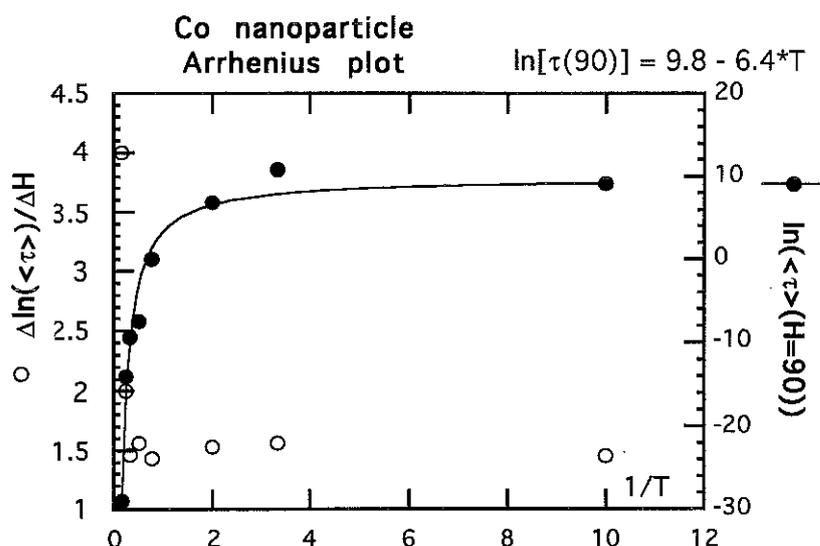
Figure(3-24) *Particule individuelle*

Figure (3-24) : graphe d'Arrhenius des deux paramètres extraits de la Figure(3-18) représentés sur deux échelles différentes. La loi d'activation thermique ([Kramers 1940],[Brown 1962]) serait représentée par une droite passant par l'origine. Le comportement à haute température du temps moyen de retournement à champ fixé (ronds noirs) semble thermiquement activé. En revanche, le même terme à basse température et le paramètre en champ variable (cercles blancs) sont extrêmement éloignés du comportement en loi d'activation thermique à toutes températures. La courbe d'ajustement des points à champ fixé est explicitée dans le texte.

Dans une représentation d'Arrhenius, on identifie la dépendance thermique du temps de relaxation au bruit effectif agissant sur l'objet thermiquement activé. En généralisant la loi d'activation à une dépendance quelconque de la température, on a:

$$\ln(\langle \tau \rangle) = E(H)/D'(T) \equiv 1/D(T) \quad (6)$$

on aurait donc aussi:

$$\Delta \ln(t)/\Delta H = 1/f(T) \{dE(H)/dH\} \equiv 1/f(T) \quad (7)$$

La dernière égalité définit les grandeurs empiriques $D(T)$ et $f(T)$ respectivement sans dimension et en Oe^{-1} . De façon à vérifier la cohérence des extrapolations linéaires effectuées pour accéder à la dépendance thermique de $\ln(\langle \tau \rangle(H=90))$, nous avons extrapolé les droites $\ln(\langle \tau \rangle)$ pour plusieurs champs. Les courbes sont présentées Figure(3-25). Elles peuvent être ajustées avec des fonctions du type $a+bT_0 \cdot \tanh(T_0/T)$. Une fonction plus naturelle convenant aussi bien est la fonction $a/T+b$. Néanmoins, la fonction $f(T)$ en

forme de cotangente hyperbolique pourrait exprimer une correction basse température à la loi d'Arrhenius issue de la correction quantique du bruit blanc (voir par exemple [Callen 1951] et la référence [Eckern 1990] pour l'émergence de ce bruit quantique dans la loi d'activation). Dans l'ajustement numérique de la Figure (3-25), les paramètres d'ajustement a , b , T_0 varient avec le champ de façon non homogène. L'aspect qualitatif de ce traitement ne permet pas de conclure. T_0 varie avec le champ de 0.4 à 2.

Figure (3-25) *Particule individuelle*

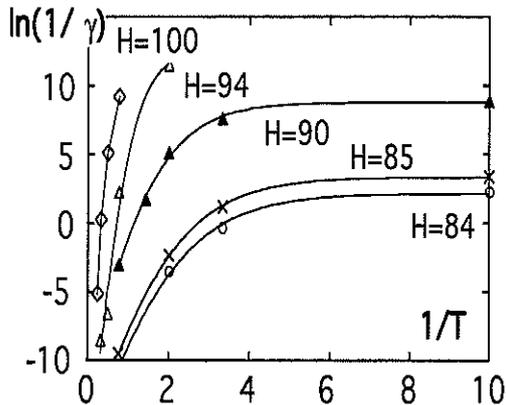


Figure (3-25): Dépendance thermique du paramètre $\ln(\langle \tau \rangle)$ à plusieurs champs fixés, en représentation d'Arrhenius. Les points de ce graphe sont pour la plupart des extrapolations linéaires sur une dizaine de décades sur les données de la Figure (3-18). Il s'agit d'une représentation de nature purement qualitative. Les courbes ajustées sont explicitées dans le texte

La fonction $f(T)$ définie dans l'équation (7) page précédente, est représentée sur la Figure(3-26). Notons que dans la représentation choisie de $f(T)$ en fonction de la température, un bruit d'activation classique aurait un comportement linéaire croissant et s'annulant en zéro.

Figure(3-26) *Particule individuelle*

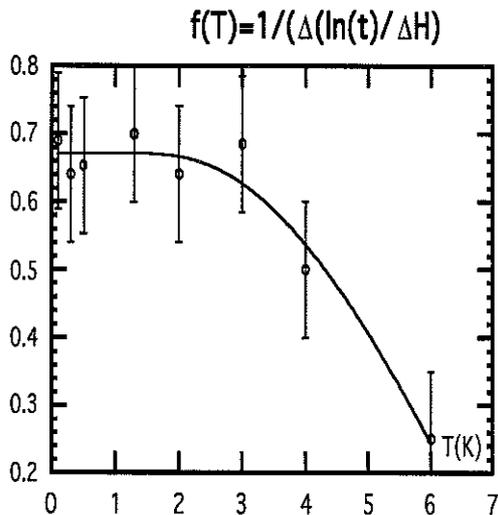


Figure (3-26): Dépendance thermique du paramètre $\Delta \ln(\langle \tau \rangle)/\Delta H$ en représentation d'Arrhenius. Les données sont tirées des ajustements linéaires de la Figure(3-18). Dans le cas de l'activation classique, la dérivée de $\ln(\langle \tau \rangle)$ par rapport au champ est proportionnelle à l'inverse du bruit thermique kT . L'inverse de la pente $f(T)$ devrait donc donner la dépendance thermique de l'équivalent du bruit d'activation.

Chapitre II

On reconnaît dans la représentation de $f(T)$ la saturation à basse température, également présente dans le bruit $D(T)$ représenté Figure (3-24). La décroissance de 6K à 3K de $f(T)$ serait donc à l'origine de la décroissance de la vitesse de relaxation logarithmique mesurée sur les réseau (voir paragraphe suivant).

Ce profil thermique est confirmé par des mesures de champ de retournement H_{sw} en champ extérieur variable. Les données sont alors analysées dans le cadre du modèle de Kurkijärvi, explicité dans la thèse de [Wernsdorfer] (chapitre IV, IV.2.5 p 129). Les mesures ont été réalisées sur micro-SQUID avec d'autres particules dont les cycles d'hystérésis sont centrés en zero (avec une seule discontinuité). Les auteurs ont utilisé un modèle avec une énergie $E(H) = E_0(1-H/H_0)^\alpha$ aboutissant à une loi d'échelle. La fonction $f(T)$ définie ici est proportionnel au paramètre $kT/E_0(T)$, tracé pour quatre échantillons différents au paragraphe IV.2.6 de cette thèse. Dans le cadre de ce modèle, E_0 est la hauteur de barrière en champ nul. La dépendance thermique du potentiel E_0 souligne les limites de la description en termes d'activation thermique au dessus d'une barrière définie par un gradient de force. Cette barrière serait elle aussi soumise aux fluctuations qui sont étudiées dans notre mémoire par l'intermédiaire des paramètres $D(T)$ et $f(T)$. Notons que l'échantillon de Co présenté dans ce chapitre n'a pas pu être étudié dans le cadre du modèle de Kurkijärvi, car la nucléation de vortex ne permet pas de définir facilement "l'énergie en champ nul" E_0 . Le "scaling" nécessaire à cette approche n'a pas pu être réalisé.

Les données de la Figure(3-24) sont reprises ci dessous en représentation $\ln(t)$ en fonction de T . Cette représentation met en évidence le comportement non-standard (du point de vue des processus thermiquement activés) des deux paramètres, y compris pour le terme à champ fixe, à haute température. Les considérations ci-dessus en termes de "correction" à basse température à la loi d'activation sont donc aussi à prendre avec prudence. Il n'est pas impossible que l'ensemble du processus ne soit pas réductible à une description en termes d'activation thermique. La loi d'activation classique $\ln(\tau(H=90)) = a+b/T$ est ajustée aux points extrapolés des données expérimentales: elle est représentée en pointillé Figure(3-27). Elle a très peu d'affinité avec les points.

Figure (3-27): Particule individuelle

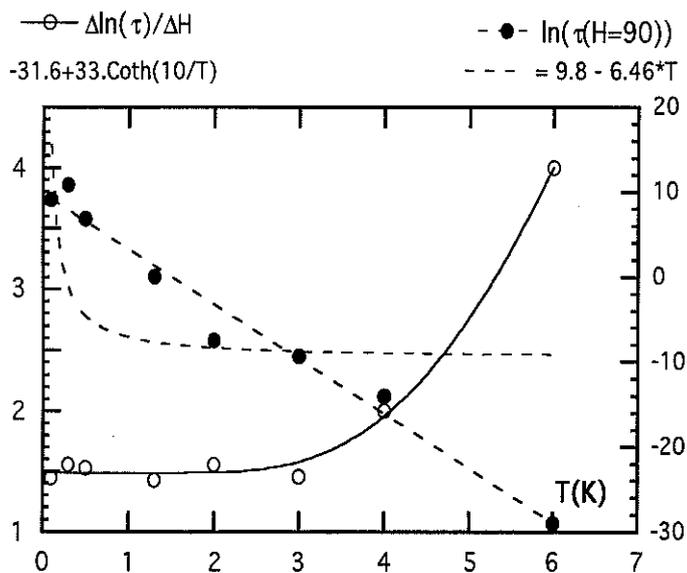


Figure (3-27): Les données de la Figure(3-24) sont tracées en représentation directe du logarithme du temps de relaxation $\ln(\tau)$ en fonction de la température T . La loi d'activation classique serait ici une courbe du type $a+b/T$. Cette fonction a été ajustée aux points $\ln(\tau(H=90))$ (points pleins et courbe en pointillé). L'ajustement sur les points est la droite pointillée (équation est en haut à droite). Le paramètre $\Delta\ln(\langle\tau\rangle)/\Delta H$ est ajusté par l'équation en haut à gauche. Les deux processus ne sont pas réductibles à une description en termes d'activation thermique classique.

II-3-5 (b) Variation de la relaxation en fonction de la température à l'échelle macroscopique

La singularité des courbes de vitesse de relaxation en température, mesurées sur l'échantillon de CoZr amorphe précédent, se retrouve dans le cas du réseau de Co présenté Figure (3-27)

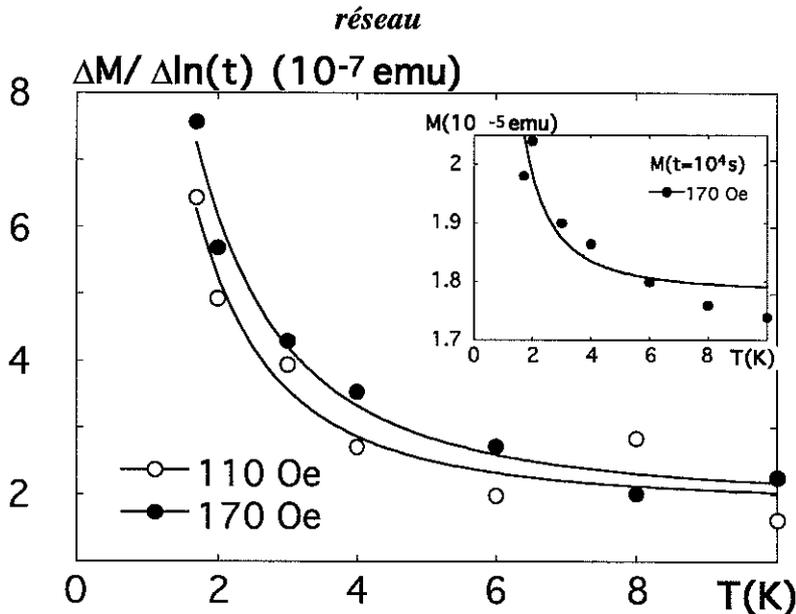


Figure (3-27): vitesse de relaxation logarithmique pour deux champs magnétiques appliqués différents. Les deux courbes sont ajustées avec des fonctions de la forme $T_0/T \cdot \coth(T_0/T)$. Les températures de transition T_0 sont 4.2K et 6K. En encart, l'aimantation $M(t_0)$ pour $t_0 = 10^3$ est présentée avec le même ajustement. Le gros du comportement

thermique de l'aimantation à basse température semble provenir du même phénomène que celui qui est à l'origine du profil des vitesses de relaxation.

Les vitesses de relaxation logarithmique sont présentées pour deux champs appliqués à 110 Oe et 170 Oe de part et d'autre du maximum de la distribution (le champ coercitif est situé entre 120 Oe et 160 Oe d'après les courbes présentées Figure(3-20). L'hypothèse supposant que la forme de la distribution pourrait expliquer l'observation des effets singuliers de décroissance sur la vitesse de relaxation, impliquerait un effet inverse de part et d'autre du maximum de la distribution. Ce qui n'est pas le cas.

La valeur de l'aimantation $M(t_0)$ à un temps donné, est un indicateur de ce qui se passe aux temps très courts où la relaxation n'est pas mesurée: la majeure partie des variations a en effet lieu avant les premiers points de mesures (voir Figure les (3-16) et (3-17)). La similitude entre les courbes des vitesses de relaxation et la valeur de l'aimantation en fonction de la température indique donc que les phénomènes responsables de la relaxation aux temps longs sont aussi présents aux temps courts.

II-4 De la particule individuelle au réseau de particules

Les résultats empiriques exposés dans ce chapitre devraient permettre de reconstituer avec le moins d'hypothèses supplémentaires possibles, la vitesse de relaxation logarithmique mesuré sur le réseau à partir des relaxations mesurées sur une seule particule. Avec les notations définies dans les paragraphes précédents, nous avons les trois informations suivantes:

- la dépendance temporelle de la relaxation est donnée par l'équation (1)

$$P(t) = 1 - e^{-\gamma t} \quad (8)$$

- la dépendance de $1/\langle\tau\rangle = \gamma$ en champ appliqué et en température (equation (3))

$$\gamma = \frac{1}{\langle\tau_0\rangle(T)} \cdot e^{\frac{(\langle H_{sw} \rangle - H)}{f(T)}} \quad (9)$$

- La distribution des moyennes des champs de retournement mesurée (tableau (3-1))

$$g(\langle H_{sw} \rangle) \approx a \cdot \exp\left(-\frac{(\langle H_{sw} \rangle - \bar{H}_c)^2}{\sigma^2}\right) \quad (10)$$

Si nous faisons l'hypothèse que dans l'expression de γ , seul le champ de retournement H_{sw} varie d'une particule à l'autre, alors la variation d'aimantation du réseau des particules indépendantes à partir d'un instant initial est donnée par la sommation sur la distribution:

$$\begin{aligned} \delta M(t) &= \int_{\text{Min}[\langle H_{sw} \rangle]}^{\text{Max}[\langle H_{sw} \rangle]} g(\langle H_{sw}^o \rangle) \cdot \left\{ 1 - \exp[-\gamma(\langle H_{sw} \rangle, T)t] \right\} d\langle H_{sw}^c \rangle \\ &= \int_{\text{Min}[\langle H_{sw}^o \rangle]}^{\text{Max}[\langle H_{sw}^o \rangle]} g(\langle H_{sw}^o \rangle) \cdot \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{t}{\langle \tau_0 \rangle(T)} \exp\left(\frac{(H - \langle H_{sw}^o \rangle)}{f(T)}\right)\right] \right\} d\langle H_{sw}^c \rangle \end{aligned} \quad (11)$$

La sommation ci-dessus est effectuée numériquement au paragraphe suivant avec les points expérimentaux mesurés sur la particule individuelle. Une formule simple peut être obtenue avec quelques hypothèses supplémentaires dont la validité a pu être vérifiée dans les paragraphes qui précèdent:

Avec une variance de l'ordre de $\sigma \approx 100$ Oe, la distribution peut être considérée comme uniforme sur les intervalles de champ parcourus lors du traînage magnétique. En posant ΔM comme la variation totale soustraite de la variation observée au cours du temps:

$$\Delta M(t) = \bar{g}_H \cdot f(T) \cdot \int_{U_{\min}}^{U_{\max}} \frac{\exp[-U]}{U} dU \quad (12)$$

où $U = \gamma t$

en prenant en compte les fluctuations, de l'ordre de 1 décade de part et d'autre de la valeur moyenne: $t\gamma_{\max} \approx 10$ et $t\gamma_{\min} = 0.1$

La contribution de l'intégrale de la fonction $\exp(-U)/U$ de 10 à l'infini est négligeable (elle est inférieure à $4.2 \cdot 10^{-6}$).

En utilisant le développement en logarithme de la borne inférieure de l'intégrale [Abramowitz 1972]

$$\int_{U_{\min}}^{U_{\max}} \frac{\exp[-U]}{U} dU \approx \ln(\gamma_{\min} t) + \text{cst} \quad (13)$$

L'approximation effectuée peut être évaluée précisément avec $U_{\min} < 10^{-1}$: la forme exacte et la forme approchée sont tracées ci-dessous.

$$\boxed{\frac{\Delta M(t)}{\Delta \ln(t)} \approx \bar{g}_H \cdot f(T)} \quad (14)$$

Notons que la dépendance en champ appliqué $H.g(H)$ observée sur le réseau au paragraphe (II-2-4) et (II-3-4) n'est pas correctement reproduite par ce modèle qui prédit une dépendance en $g(H)$. Nous avons supposé que les différences entre les particules dans le réseau ne s'expriment que par l'intermédiaire du champ de retournement moyen $\langle H_{sw} \rangle$. Il est tout à fait envisageable de considérer une autre distribution qui jouerait sur un paramètre ne dépendant pas de $\langle H_{sw} \rangle$, mais dépendant par exemple linéairement de H . Ceci conduirait donc (de façon ad-hoc) à la dépendance en champ magnétique observée.

On vérifie que l'émergence de la dépendance logarithmique provient bien de la sommation sur les relaxations exponentielles, à condition que le temps caractéristique dépende lui-même exponentiellement de l'argument. Cette sommation conduit, à la limite continue, à la fonction exponentielle intégrale, qui est très voisine de la fonction logarithmique.

Figure (4-1)

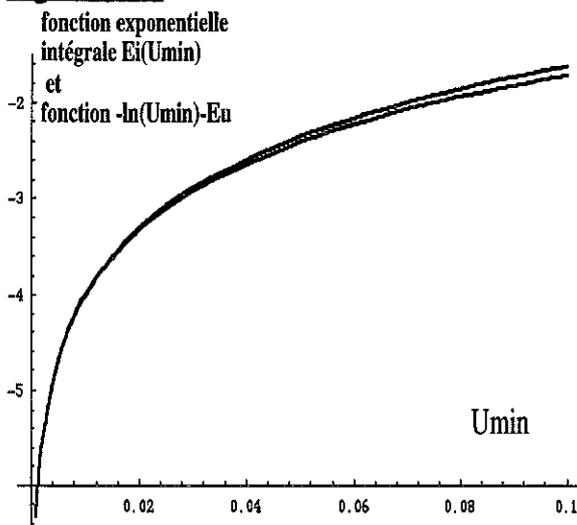


Figure (4-1): Représentation graphique de la fonction exponentielle intégrale Ei de la borne inférieure U_{min}

$$Ei[U_{min}] = \int_{U_{min}}^{\infty} \frac{e^{-U}}{U} dU \quad (\text{au dessus})$$

comparée avec la fonction logarithme $-\ln(U_{min}) - Eu$ où Eu est la constante d'Euler (Eu est prise à 0.577). Pour les valeurs de $\gamma_{max} t < 0.1$, l'approximation qui consiste à confondre l'exponentielle intégrale avec le logarithme est justifiée.

L'intégration sur une distribution uniforme, en tenant compte des fluctuations, rend donc bien compte de l'émergence de la relaxation logarithmique à l'échelle macroscopique à partir de la relaxation exponentielle. Il est facile de vérifier que l'existence d'un paramètre β en exposant dans l'exponentielle (fonction de Watts $\exp\{(\gamma t)^\beta\}$), donne le même résultat.

Vérification numérique:

De façon à vérifier la validité des approximations faites, nous utilisons les données obtenues figure(3-18) et les valeurs de la distribution ajustée figure(3-20) pour effectuer numériquement l'intégrale (11).

Figure(4-2)

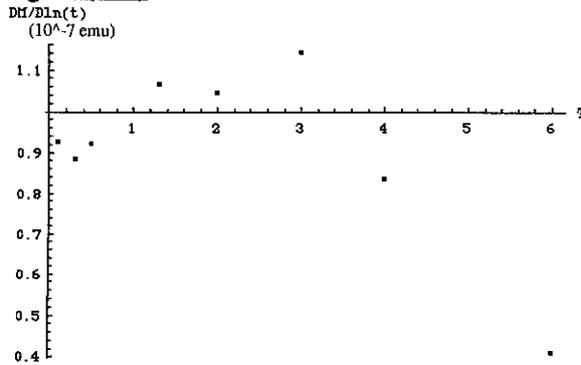


Figure (4-2): intégration numérique des points expérimentaux représentés Figure(3-18). L'intégration est effectuée sur la distribution mesurée paragraphe (II-3-4) pour 2K. A droite la distribution est supposée plate de $H=10$ Oe à $H=200$ OE.

Figure(4-3)

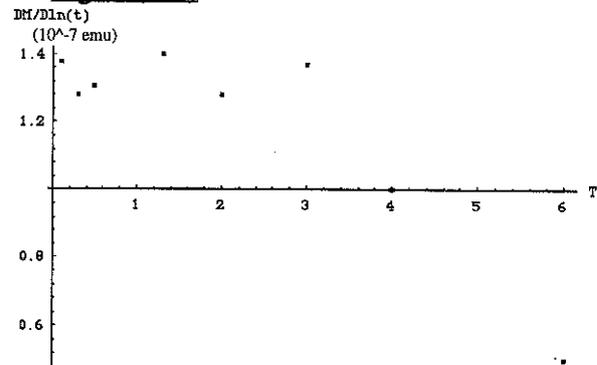
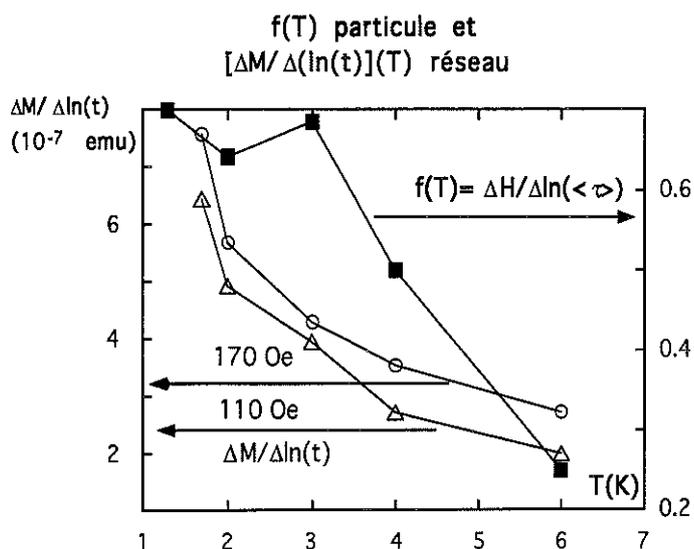


Figure (4-3) intégration numérique des points expérimentaux représentés Figure(3-18). L'intégration est effectuée sur la distribution supposée plate de $H=10$ Oe à $H=200$ Oe à la valeur du maximum de la distribution utilisée ci-contre.

Ces calculs numériques mettent en évidence les points suivants:

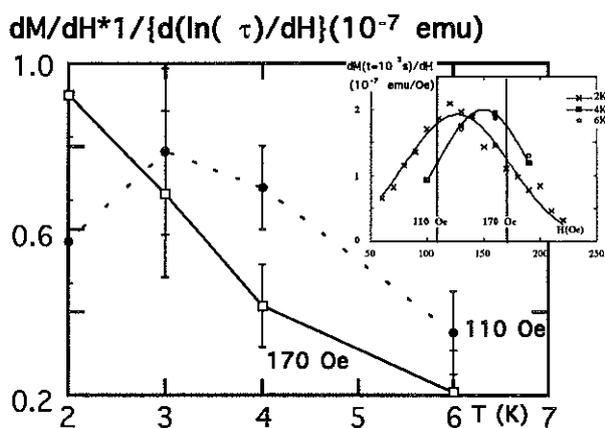
- Il manque un ordre de grandeur dans les résultats des variations de l'aimantation obtenus ci-dessus et ceux mesurés sur le réseau.
- la distribution des champs de retournement ne change pas l'aspect général du profil en température du phénomène étudié.
- le comportement singulier de la vitesse de relaxation mesurée lors du traînage magnétique semble avoir principalement pour origine le comportement thermique du paramètre $f(T) = 1/(\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H)$ à l'échelle d'une particule. La dépendance thermique en $f(T)$ reproduit qualitativement le profil observé sur les résultats du traînage sur le réseau uniquement sur les trois points de mesure de 6K à 3K. Le comportement observé sur le réseau semble se prolonger hors de cette étroite fenêtre de température, en particulier jusque' à 1.7K à basse température, ce qui ne contredit que le point à 2K (le suivant étant à 1.5K) et surtout à toute les températures supérieures à 6K.

La figure (4-4) montre l'adéquation, très relative, entre $f(T)$ et $\Delta M / \Delta \ln(t)$

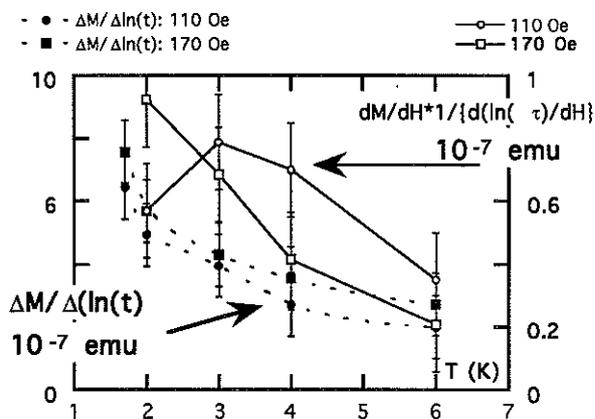


Figure(4-5): la sommation des relaxations de l'ensemble des particules individuelles prédit une vitesse de relaxation de l'aimantation du réseau proportionnelle au paramètre $f(T)$, extrait des mesures de la figure(3-18). $f(T)$ est tracé en carrés pleins sur l'échelle de droite. Sur l'échelle de gauche, tracée en symboles creux, la vitesse de relaxation logarithmique mesurée sur le réseau. L'effet d'une dépendance thermique de la distribution n'est pas pris en compte.

Conformément au calcul exposé ci-dessus, la dépendance thermique du terme $\ln(\langle\tau(H_0)\rangle)$ en champ fixe ne semble pas avoir un rôle direct dans le traînage magnétique du réseau. L'effet de la dépendance thermique de la distribution est encore évalué sur la Figure(4-6) suivante. Le produit $dM/dH \cdot dH/d\ln(\tau)$, issue de l'équation (14), est tracé en fonction de la température pour deux champs de relaxation appliqués. Ces courbes sont comparées à la vitesse de relaxation mesurée sur le réseau.



Figure(4-6): le produit $dM/dH \cdot dH/d\ln(\tau)$, issu de l'équation (14), est tracé en fonction de la température pour deux champs de relaxation appliqués. Le premier facteur dM/dH est la distribution des champs de retournement mesurée sur le réseau. Ces distributions sont données en encart pour les température 2K, 4K et 6K avec la position des champs de relaxation. Le deuxième facteur est l'inverse des pentes de la Figure(3-18). C'est la fonction, $f(T)$ définie en II-3-5 (a).



Figure(4-7): Les courbes $dM/dH \cdot dH/d\ln(\tau)$ de la figure ci-contre, sont comparées à la vitesse de relaxation mesurée sur le réseau. L'échelle de gauche, relative à la vitesse de relaxation mesurée sur le réseau, est dilatée par dix par rapport à l'échelle de droite. La comparaison est limitée aux température entre 6K et 1.8K pour lesquelles les deux types de mesures sont disponibles.

Discussion

Les modèles ci-dessus montrent qu'un écart numérique persiste entre les mesures aux échelles nanoscopiques et celles aux échelles macroscopiques lorsqu'une simple sommation est réalisée. Les vitesses de relaxation mesurée sur le réseau ont des valeurs en moyenne dix fois plus élevées que les valeurs données par la distribution des champs de retournement dM/dH . Ces Figures montrent que le résultat présenté par l'équation (1-14) ne décrit le passage de l'échelle nanoscopique à l'échelle macroscopique que très qualitativement, à une constante multiplicative près. Le terme $\Delta \ln(\tau)/\Delta H$ ne compense pas l'écart constaté Figure (3-21) entre l'aire sous la courbe dM/dH et les points de la courbe $dM/d \ln(t)$.

Sur la Figure(3-12), on peut remarquer que les distributions de champ de retournement H_{sw} des nanoparticules dans le réseau "se chevauchent" du fait de la largeur de la distribution des champs H_{sw} . Ceci suggère que les fluctuations nanoscopiques au voisinage de la valeur moyenne $\langle H_{sw} \rangle$, qui n'ont pas été prises en compte dans le modèle, ne sont pas négligeables. En effet, en termes de distribution, on a nécessairement:

$$\int g(H_{sw}) \cdot dH_{sw} \geq \int g(\langle H_{sw} \rangle) \cdot d \langle H_{sw} \rangle$$

où $\langle H_{sw} \rangle$ est la moyenne de H_{sw} sur la distribution illustrée en encart de la Figure(3-6). L'égalité n'a lieu que pour des fluctuations du champ de retournement négligeables. La distribution en encart de la Figure(3-6) serait alors un pic de Dirac.

Néanmoins, la distribution des champs de retournement H_{sw} sur le réseau (non moyennée sur une particule) a une variance qui est la somme de la variance de la distribution $g(\langle H_{sw} \rangle)$ et de la variance $\langle H_{sw}^2 \rangle - \langle H_{sw} \rangle^2$. Ce phénomène ne peut donc pas être responsables de l'écart constaté.

Conclusion du chapitre II

La sommation sur les relaxations à l'échelle nanoscopique donne qualitativement les caractéristiques constatées lors des mesures sur les réseaux du point de vu du comportement thermique. Le passage du mesoscopique au macroscopique se décrit, dans ses grands traits, par la donnée de la distribution des moyennes des champs de retournement $\langle H_{sw} \rangle$. Cependant, un facteur 10 intervient entre le résultat obtenu par simple sommation sur la distribution des champs de retournement donnée par dM/dH et les mesures sur le réseau. Ce facteur ne semble pas pouvoir être interprété à l'aide des seules données expérimentales.

Chapitre II

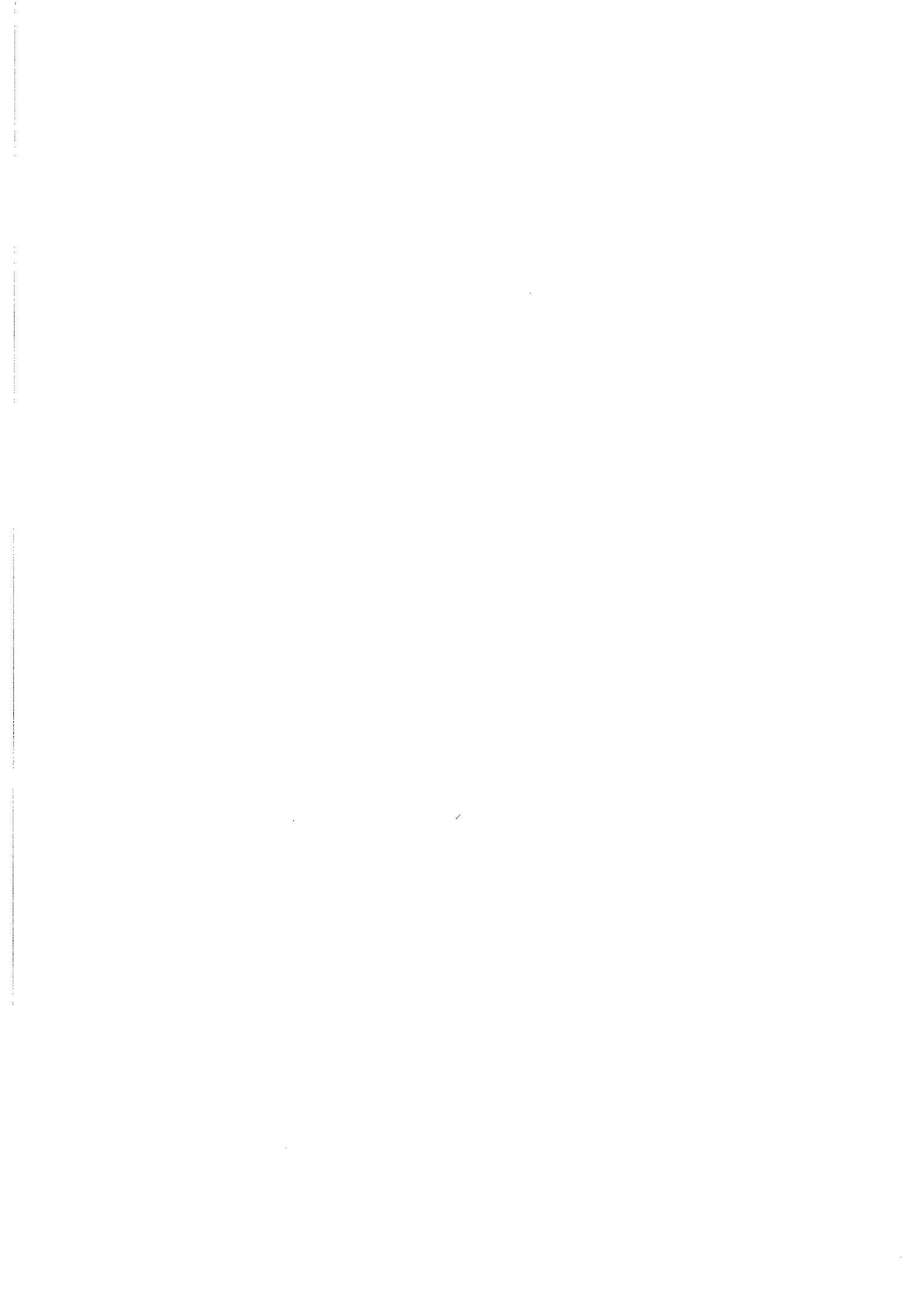
L'existence de distributions du temps de relaxation à champ fixe est vraisemblable. L'interprétation physique de ce paramètre est donné par le $\langle \tau^0 \rangle$ défini à la fin du paragraphe II-3-4 (a). Il s'agit du temps de diffusion en l'absence de barrière. La dépendance thermique de ce paramètre, exponentielle, et l'échelle de temps caractéristique (0.01s à 0.1K) indique qu'il ne s'agit pas du préfacteur habituel de la loi d'Arrhenius, qui traduit l'effet de la précession des spins dans le puits de potentiel.

Cependant, ce point important concernant le lien entre les fluctuations du champ de retournement $\langle H_{sw}^2 \rangle - \langle H_{sw} \rangle^2$ (intervenant dans la mesure dM/dH) et les fluctuations du temps de retournement $\langle \tau^2 \rangle - \langle \tau \rangle^2$ (intervenant dans la mesure de $dM/d \ln(t)$) n'a pas été explicité du point de vue expérimental et reste incompris. Ce point de compréhension laisse obscur un détail fondamental du mécanisme de passage des mesures aux échelles nanoscopiques aux échelles macroscopiques, y compris dans ce cas de figure simplifié où il n'existe pas d'interaction entre les particules du réseau.

En outre, un autre problème que pose ces mesures provient de la dépendance thermique du processus responsable de la dynamique. La singularité du processus émerge de façon spectaculaire à l'échelle macroscopique par un comportement jusqu'à là non mesuré à basse température de la vitesse de relaxation logarithmique. Plus que pour les mesures à l'échelle nanoscopiques, rendues possible seulement tout récemment grâce à la techniques des micro-SQUID et pour laquelle peu de résultats sont encore disponibles, la technique du traînage magnétique a fournie une littérature abondante ne faisant pas état, a notre connaissance, d'un tel comportement.

Le comportement observé ne rentre pas dans le cadre d'un modèles simple de retournement de l'aimantation d'un monodomaine ferromagnétique par activation thermique au dessus de la barrière d'anisotropie. D'une part, le profil thermique est inversé par rapport au profil attendu, d'autre part le "préfacteur" $\langle \tau^0 \rangle$ contient une dépendance thermique exponentielle avec un exposant $D(T)$ proche de kT et saturant à basse température.

Plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour justifier l'existence d'un mécanisme ne conduisant pas à une activation thermique. Il est important de noter que habituellement, c'est-à-dire dans des matériaux non sub-micronique, ce mécanisme n'a apparemment pas lieu. Ce comportement semble propre à l'échelle de mesure considérées dans ce travail. Il nous semble que ce comportement est lié à l'existence de barrière "petites" (proximité du champ de retournement à hauteur de barrière nulle) associée à la dynamique lente, typique des systèmes désordonnés. Quelques hypothèses sont proposées et discutées au chapitre IV et dans l'annexe.



CHAPITRE III

Nanostructures magnétiques non lithographées

Introduction.....	111
III-1 nanofils de Ni obtenus par électrodéposition	112
III-1-1 l'échantillon	112
III-1-2 étude comparative de la dynamique à l'échelle macroscopique et nanoscopique.....	118
III-1-2a Le protocole de traînage magnétique	118
III-1-2b Dynamique des fils individuels	119
III-1-2c Vitesse de relaxation des fils dans la membrane:	122
Conclusion	123
III-2 multicouche à "jonction de paroi de domaines"	125
Introduction	125
III-2 -1 L'échantillon	126
III-2-1 Equilibres de la paroi entre deux domaines magnétique	129
III-2-1b Caractérisation magnétique	131
III-2-2 Mesure de traînage magnétique.....	134
III-2-2a Dépendance en champ magnétique de la vitesse de relaxation	137
III-2-2a Dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique.....	138
III-2-2c résumé	141
III-2-3 Complément d'étude	142
III-2-3a Complément d'étude sur le cycle symétrique.....	142
III-2-3b Complément d'étude à très basse température	143
Autre multicouche: SmCo ₂ /Mo	145
Conclusion	145

CHAPITRE TROIS

Nanostructures magnétiques non lithographées

Introduction

La singularité des comportements thermiques de la dynamique des nanostructures magnétiques étudiées dans le chapitre précédent pourrait être liée à des caractéristiques propres à ces systèmes lithographés. En premier lieu, il est possible que la géométrie des particules induise, à l'échelle nanoscopique, des modes de retournement de l'aimantation imprévus ou inhabituels. Par exemple la présence de collerettes pourrait être systématique avec le procédé de pulvérisation sur un cache que l'on dissout par la suite. En second lieu, un comportement dynamique du champ dipolaire lors du retournement de l'aimantation rendrait inadéquate la description en termes de barrière de potentiel d'anisotropie. La prise en compte des effets dynamiques de l'anisotropie dipolaire induirait éventuellement des comportements très éloignés de l'activation habituelle. Il est en effet possible d'imaginer que le champ démagnétisant créé par la particule varie lors du retournement de l'aimantation. Le système ne peut plus être décrit par un objet bien défini, l'aimantation, qui diffuse dans un gradient de force représenté par la barrière de potentiel d'anisotropie.

Les mesures présentées dans ce chapitre font état du même phénomène, c'est-à-dire d'un comportement contraire aux processus d'activation thermique usuels, sur d'autres types de systèmes. Les échantillons étudiés sont très différents, entre eux et par rapport aux échantillons précédents, par leur forme et leur structure nanoscopique et micromagnétique. Nous présentons ici principalement deux échantillons:

- Un ensemble de fils de l'ordre de 40 nm de diamètre et de l'ordre de 6 microns de longueur, obtenus par électrodéposition dans une matrice poreuse.

- Une multicouche élaborée par pulvérisation cathodique et recuit sous champ. Pour cet échantillon, le champ démagnétisant ne joue pas de rôle dans le terme d'anisotropie .

Les résultats obtenus sur ces échantillons indiquent que des considérations relatives, d'une part d'effets de collerette ou autres structures pathologiques de surface, d'autre part d'une action spectaculaire de l'anisotropie de champ démagnétisant lors du retournement, en perdent leur pertinence.

III-1 nanofils de Ni obtenus par électrodéposition

Dans ce paragraphe, nous présentons des mesures de dynamique de l'aimantation de fils de Ni (forme cylindrique), effectuées aux échelles macroscopique et nanométrique. Les diamètres des fils sont de l'ordre de 35 nm. Ces fils magnétiques ont une anisotropie de forme longitudinale maximale. Cette étude a eu lieu grâce à une collaboration étroite entre l'EPFL à Lausanne, le CRTBT et le Laboratoire Louis Néel à Grenoble.

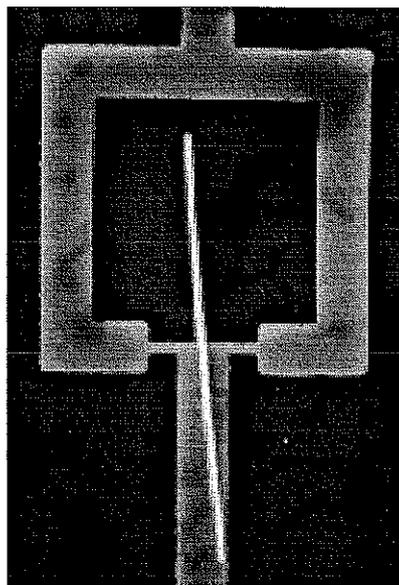
Remarque préliminaire: nous avons exprimé les grandeurs mesurées en unité CGS, par habitude et pour avoir la possibilité de comparer facilement nos résultats avec d'autres résultats. Néanmoins, certaines figures montrent des grandeurs non magnétiques, qui ne sont pas habituellement exprimé en CGS, tel le quantum de flux. Pour conserver la cohérence de l'exposé, nous avons choisi ici d'exprimer le champ H en mT (10^{-3} Tesla = 10 Oe) unité CGS, et le comparer dans certains graphiques à l'induction $\mu_0 H$ unité SI, aussi en mT.

III-1-1 l'échantillon

Les fils ont été élaborés par l'équipe de J. Ph. Ansermet au IPE-EPFL à Lausanne. Des membranes commerciales de polycarbonate, poreuses à l'échelle du nanomètre, d'épaisseurs comprises entre 6 et 10 μm [Poretics] sont utilisées. Ces membranes sont élaborées par irradiation de feuilles de polycarbonate par des ions lourds [Fleisher 1975]. La technique de l'électrodéposition sur ces membranes nanoporeuses permet d'obtenir les fils de métaux magnétiques polycristallins possédant des diamètres de 30 nm à 200 nm et des longueurs pouvant aller jusqu'à 6 μm [Meier 1994].

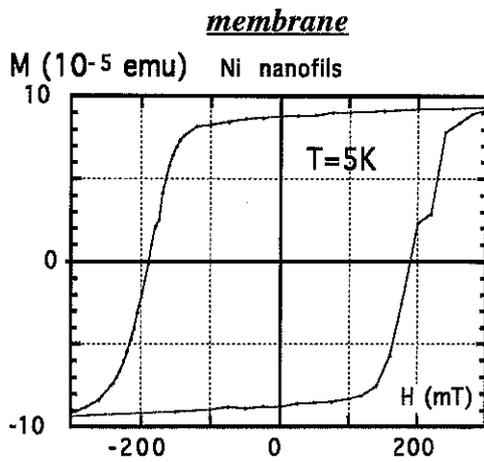
Chapitre III

Cette technique permet aussi un certain contrôle de la porosité et donc de la densité des fils. Les échantillons sont identifiables à des réseaux irréguliers, avec une interaction entre fils faible mais non négligeable [Meier 1996]. La densité est de l'ordre de 10^8 pores/cm². Les mesures macroscopiques sont réalisées sur un disque de 3mm de diamètre de membrane contenant environ 1µg de Ni. Pour les mesures nanoscopiques, la membrane est dissoute dans du chloroforme et une goutte de ce liquide est placée sur une plaquette comportant quelques centaines de Micro-SQUID [Wernsdorfer 1996]. La position exacte sur un Micro-SQUID et la forme des fils sont finalement déterminées par microscopie électronique.

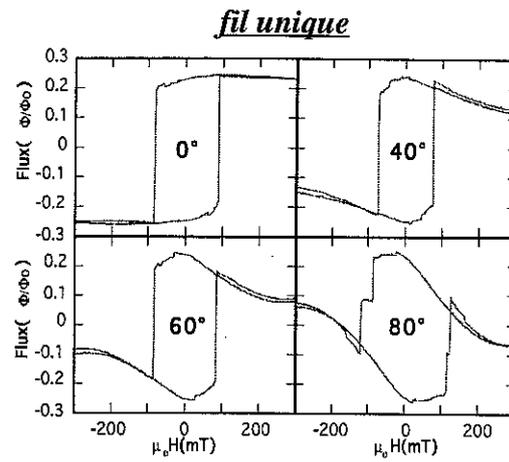


Figure(1-1): Photo réalisée par microscopie électronique (CIME à Lausanne) montrant des SQUID sur lesquels un fil de Ni de diamètre de 65 ± 4 nm et longueur de $3.5 \mu\text{m}$ est déposé..

La caractérisation magnétique des fils a été réalisée comparativement sur la membrane et sur un fil unique. Les mesures sur la membrane sont réalisées à l'aide d'un magnétomètre à SQUID à extraction (quantum design). Les cycles d'hysteresis sont présentés Figure(1-2) pour la membrane et Figure(1-3) pour le fil unique.

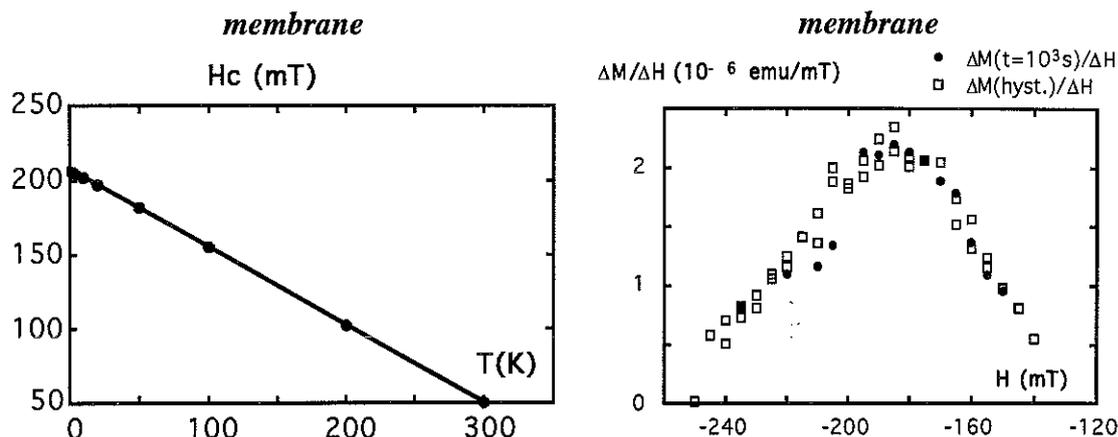


Figure(1-2): cycle d'hystérésis du réseau de fils dans la membrane (en unité CGS). Le champ est appliqué perpendiculairement à la membrane. Les fils sont orientés au voisinage de cet axe avec une distribution d'angle maximum de 35° . Le champ coercitif est au voisinage de $H = 200$ mT.



Figure(1-3): cycle d'hystérésis d'un fil unique en unité de quantum de flux ϕ_0 . (unité SI) Le cycle est tracé avec un champ extérieur appliqué suivant plusieurs angles par rapport à l'axe du fil. Le retournement de l'aimantation est caractérisé par un saut principal de l'aimantation au voisinage d'un champ de $\mu_0 H = 100$ mT.

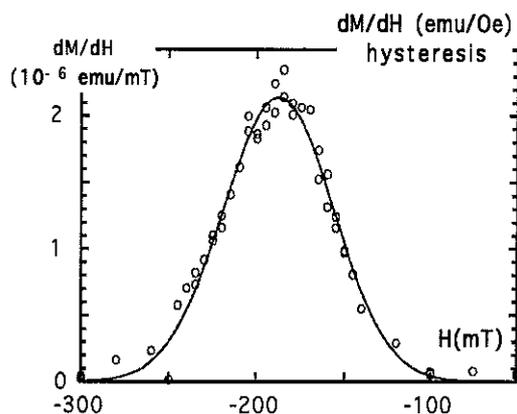
Les cycles sont symétriques par rapport à l'origine. La dépendance par rapport à l'angle du champ et l'effet de la distribution angulaire des fils dans la membrane a été étudiée préalablement, ainsi que le mode de retournement d'un fil unique [Meier 1996][Wernsdorfer 1996b]. La modélisation du retournement de l'aimantation lors du parcours du cycle d'hysteresis avec un modèle type "Curling" [Aharoni 1959] reproduit assez bien les mesures. Néanmoins, un certain nombre de problèmes reste non résolu. Entre autres, les mécanismes (probablement magnétostrictifs) responsables de la dépendance thermique du champ coercitif de la membrane, reproduite Figure(1-4), ne sont pas encore bien compris.



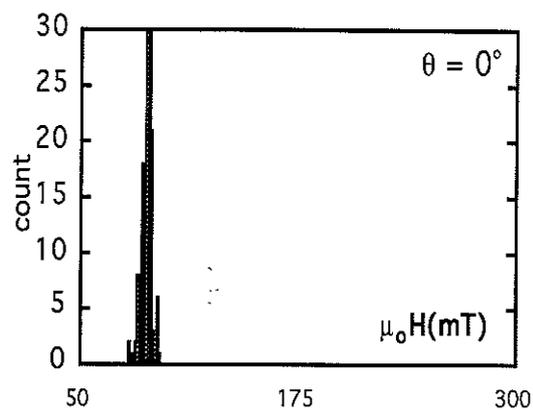
Figure(1-4): dépendance thermique du champ coercitif. La grande sensibilité du champ coercitif aux variations thermiques n'est pas bien comprise.

Figure(1-5): la dérivée de l'aimantation par rapport au champ magnétique, donne la distribution des champs de retournements. En symboles noirs, l'aimantation est prise au cours du traînage magnétique à 2K. En symboles blancs, l'aimantation est prise au cours du cycle d'hystérésis à 5K.

La dérivée de l'aimantation en fonction du champ est tracée Figure(1-5) pour l'aimantation prise durant le traînage à $t=1000s$ à 2K et durant le parcours du cycle d'hystérésis à 5K. Les deux courbes se superposent. Ces deux courbes rendent compte de la distribution des champs de retournement moyen de chaque fil $\langle H_{sw} \rangle$ dans l'ensemble de la membrane. A température égale, un décalage serait donc constaté entre les deux distributions, qui provient des différents protocoles de mesures de l'aimantation utilisés. Le mécanisme responsable de ce décalage est donc propre à la dynamique de retournement de l'aimantation, répondant à la variation de champ extérieur. Ce problème est discuté au paragraphe suivant.

membrane**Figure(1-6)**

la distribution des champs de retournement H_{sw} des fils dans la membrane est représentée par la dérivée de l'aimantation prise sur le cycle d'hystérésis à 5K. L'ajustement des points expérimentaux est une Gaussienne, centrée à 187 mT et de largeur à mi-hauteur d'environ 50 mT.

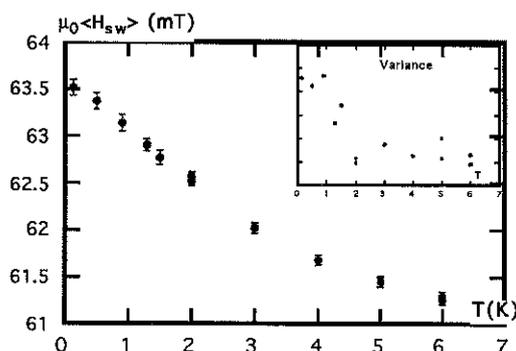
fil unique**Figure(1-7):**

distribution des champs de retournement sur un nanofil à 5K [Wernsdorfer thèse]. Lorsque les distributions d'un nanofil sont sommées, sur tout les fils du réseau, elles vont se chevaucher. Ce champ de retournement est mesuré pour un sens croissant du champ, de l'autre côté du cycle d'hystérésis par rapport à la figure(1-6)

La Figure(1-6) donne l'ensemble des moyennes $\langle H_{sw} \rangle$ de champs de retournement distribués dans la membrane. L'ajustement en fonction Gaussienne des données de la Figure(1-6), tirées de l'hysteresis, donne:

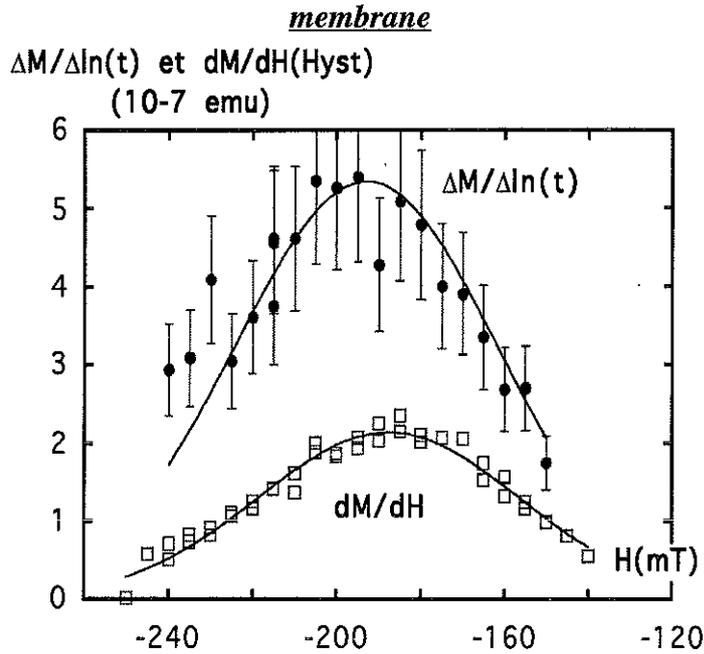
$$dM/dH = g(H) = 2.1 \cdot 10^{-7} \exp\{-(H+187.8)^2 / 2 \cdot 10^{-5}\}$$

La Figure(1-7) donne les fluctuations des champs de retournement autour de la valeur moyenne $\langle H_{sw} \rangle$. La largeur de la distribution statistique du champ de retournement H_{sw} pour un fil unique est de l'ordre de 10 mT. C'est une des plus larges mesurées sur ce type d'échantillon. Il est probable que l'origine de l'étalement soit une oxydation de la surface. Cette distribution nanoscopique peut néanmoins être représentée par une distribution étroite à l'échelle de la distribution des moyennes.

**Figure(1-7bis)**

dépendance thermique du champ de retournement moyen. En encart, la dépendance thermique de la variance. Ce graph permet d'extrapoler le champ de retournement moyen $\langle H_{sw}^0 \rangle$ à température nulle de l'ordre de 63.5 mT.

Les variations thermiques du champ de retournement sont données Fig(1-7 bis). C graphe permet d'extrapoler le champ de retournement à température nulle $\langle H_{sw}^0 \rangle$ (c'est-à-dire à hauteur de barrière nulle), $\langle H_{sw}^0 \rangle = 63.5$ mT.



Figure(1-8):

Dépendance en champ magnétique de la vitesse de relaxation $\Delta M/\Delta \ln(t)$ (en haut symboles pleins). La distribution des champs de retournement H_{sw} des fils dans la membrane, mesuré à 2K pour l'aimantation à $t=1000s$ lors du traînage magnétique, est représentée sur la même échelle (en bas symboles creux). L'ajustement des points expérimentaux de la vitesse de relaxation provient de la Gaussienne obtenue sur la Figure(1-6), multipliée par un terme proportionnel au champ extérieur H .

La vitesse de relaxation logarithmique mesurée à 2K en fonction du champ de relaxation est tracée Figure(1-8). Sur la même figure est tracée la distribution des champs de retournement mesurée à $t=1000s$ et à la température de 2K pendant la relaxation. La dispersion des points de vitesse de relaxation est ici maximum car ces mesures en fonction du champ ont été limitées à 1 heure de traînage. Les incertitudes sont estimées à 20% à partir de la courbe de relaxation de la Figure(1-9) de la page suivante.

Le rapport entre la Gaussienne de la distribution des $\langle H_{sw} \rangle$, où l'aimantation est prise pendant le traînage magnétique, et la vitesse de relaxation en fonction du champ est encore, de même que pour les particules lithographées, proportionnel au champ extérieur H . En notant $g(H)$ la distribution ajustée sur la courbe de la Figure(1-7) ou Figure(1-6), on a

$$\Delta M/\Delta \ln(t) \approx 1 \cdot 10^{-3} H g(H)$$

Notons que l'aire sous la courbe dM/dH représente l'aimantation totale M_T de l'échantillon. L'aimantation sous la courbe $\Delta M/\Delta \ln(t)$ est environ trois fois plus

grande. Cela signifie que une heure de relaxation avec un champ extérieur compris dans l'intervalle $[H_{\text{ext}}, H_{\text{ext}} + dH_{\text{ext}}]$ met à contribution un intervalle trois fois plus grand de champs de retournement $\langle H_{\text{sw}} \rangle$.

Les variations de la courbe $\Delta M / \Delta \ln(t)[H]$ avec la température indiquent donc les variations du nombre de champs de retournement $\langle H_{\text{sw}} \rangle$ mis à contribution dans la relaxation en fonction de la température.

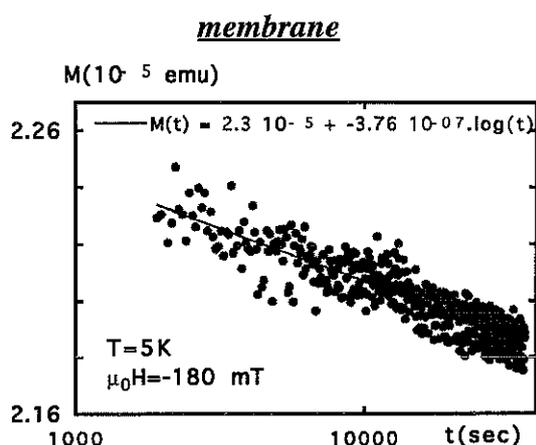
III-1-2 étude comparative de la dynamique à l'échelle macroscopique et nanoscopique

L'étude comparative des dynamiques aux échelles nanoscopiques et macroscopiques, en tout point similaire à celle présentée chapitre II, à pu être réalisée sur les fils de Ni. Les résultats obtenus sont présentés ci-dessous dans le même esprit et avec les mêmes paramètres que ceux définis dans le chapitre II.

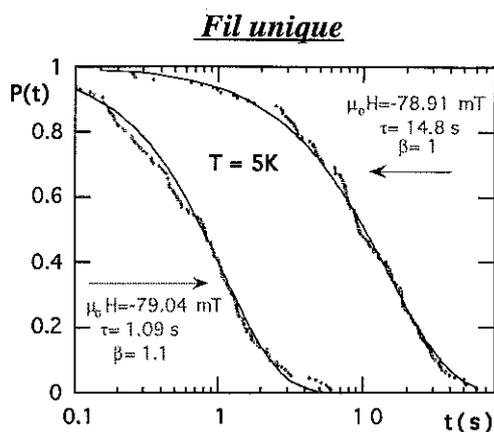
III-1-2a Le protocole de traînage magnétique

Le traînage magnétique sur la membrane est réalisé sur un magnétomètre à SQUID industriel (Quantum design). Le protocole de traînage magnétique choisi est l'un des plus contraignant. Les échantillons s'oxydent en fait assez facilement. En conséquence, il est difficile d'obtenir un même état initial en raison des différentes configurations que peuvent prendre les spins de surface du fait de l'interaction avec l'oxyde, et ceci en fonction de l'histoire thermique et magnétique subie par l'échantillon.

Le cycle complet est réalisé de 5000 Oe à -5000 Oe, à 300K. La température est alors abaissée sous 5000 Oe jusqu'à la température de relaxation. Le champ est modifié pour atteindre le champ de relaxation, proche du maximum de la distribution présentée Figure(1-6). Cette opération est renouvelée pour chaque traînage.



Figure(1-9): courbe de relaxation de l'aimantation de la membrane lors des mesures de traînage magnétique. Le temps t_0 initial d'installation du champ n'est pas connu à la minute près: de ce fait les premiers points ne sont pas pris en compte dans la mesure de la vitesse de relaxation. La pente de la droite donne la vitesse de relaxation en logarithme decimal.



Figure(1-10) courbe de relaxation d'un fil mesuré individuellement. Cette courbe est obtenue en intégrant sur l'histogramme des temps de retournement mesuré sur une même particule. Les champs de relaxation sont choisis de façon à avoir un temps moyen de relaxation de l'ordre de 1 à 100 secondes.

Les courbes de relaxation mesurées sur la membrane sont logarithmiques. Un exemple est tracé Figure(1-9). La variation d'aimantation sur deux décades représente environ 1% de l'aimantation à saturation.

On constate une forte dispersion des points de mesure. Cette dispersion, plus importante que sur les réseaux lithographés, provient probablement de l'oxydation ainsi que des interactions entre fils. Il est possible que des effets d'avalanche aient lieu entre quelques fils fortement corrélés. Les points de température supérieure et égale à 4.2K sont mesurés sur 12 heures. La dispersion des points sur la Figure(1-9) donne l'incertitude sur la mesure : de l'ordre de $2 \cdot 10^{-7}$ emu. Cette incertitude est de beaucoup supérieure à la sensibilité du magnétomètre, de l'ordre de $2 \cdot 10^{-8}$ emu. Cette dispersion est probablement due aux défauts et à l'oxydation des nanofils, de même que dans le cas de la Figure(1-7).

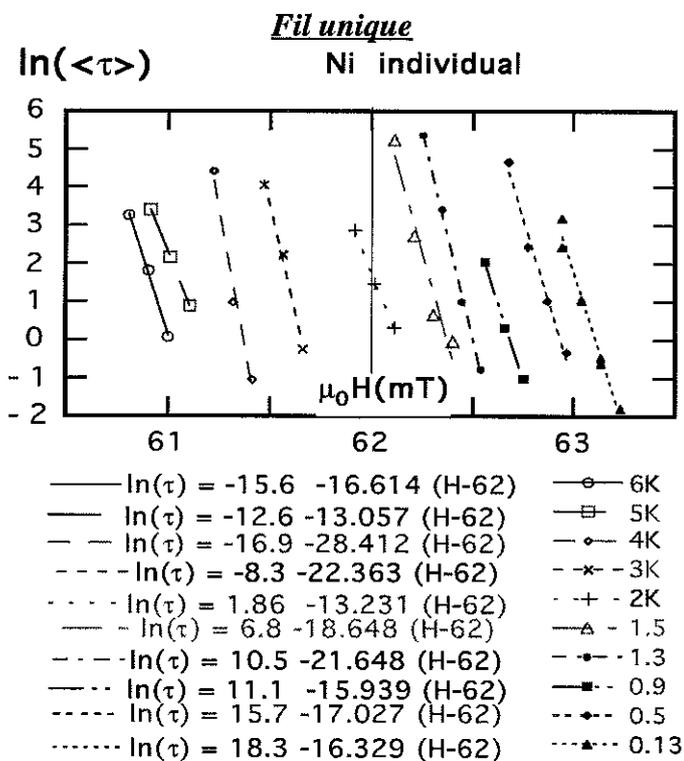
La relaxation sur un fil individuel est illustrée Figure(1-10). Le profil de relaxation est exponentiel. Cette courbe est obtenue par l'intégration de l'histogramme des temps de retournement. La moyenne et les écarts types en fonction de la température et du champ sont alors déduits.

III-1-2b Dynamique des fils individuels

Le protocole de traînage sur un fil individuel mesuré sur micro-SQUID consiste à amener rapidement le champ appliqué au champ de relaxation à la température de la relaxation. Le champ de relaxation est choisi de façon à avoir des temps moyens de relaxation de l'ordre de la seconde (plutôt que de l'heure) pour pouvoir réaliser une statistique assez rapidement. Le temps de retournement de l'aimantation (voir la Figure(1-3)), compté à partir de l'installation du champ de relaxation, est enregistré. L'opération est renouvelée de vingt à cinquante fois pour réaliser un histogramme. L'intégration de l'histogramme dans le temps donne la probabilité de non-saut de l'aimantation, illustrée Figure(1-10) pour 5K [Wernsdorfer 1996thèse]. Pour les échantillons non-oxydés la relaxation d'un fil unique est approximativement exponentielle.

Cette relaxation exponentielle permet de définir un temps de relaxation moyen unique $\langle \tau \rangle$, et sa dépendance en champ et en température. Le résultat de cette étude est résumé Figure(1-11). Ce profil est similaire à celui obtenu sur les particules lithographées. Le phénomène se décrit par les deux paramètres suivants: l'ordonnée à l'origine et le coefficient directeur de la droite:

$$\ln(\langle \tau \rangle) = \ln(\langle \tau \rangle(H_0)) + (\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H) \cdot (H - H_0)$$



Figure(1-11) mesure du logarithme du temps moyen de relaxation en fonction du champ magnétique appliqué à différentes températures. Cette figure est similaire à la Figure(3-18) du chapitre précédent. La dépendance en champ magnétique est linéaire dans la gamme de temps étudiée. La pente des droites $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$ est mesurée à plusieurs températures, ainsi que l'intersection des droites avec la valeur du champ magnétique $H=62$ mT déduite par extrapolation. Ces paramètres sont représentés à la Figure suivante.

Chapitre III

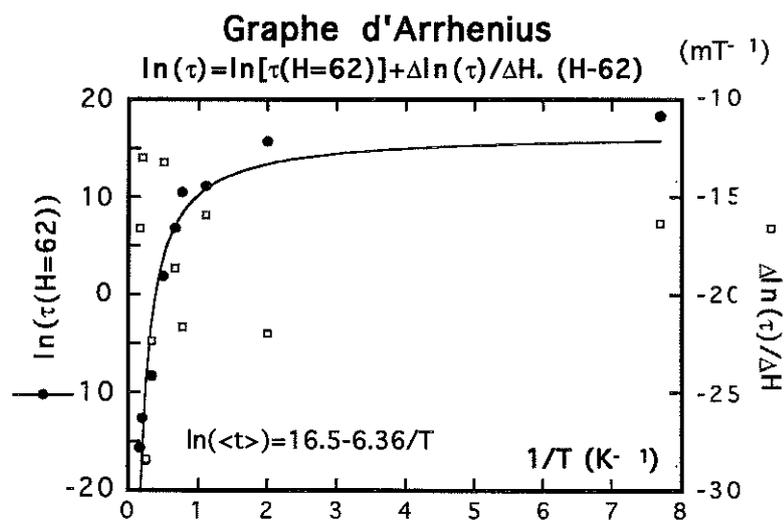
avec le champ $\langle H_{sw}^0 \rangle = 63.5$ mT, défini précédemment, Figure (3-7 bis):

$$\ln(\langle \tau \rangle) = \ln(\langle \tau \rangle^0) + (\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H) \cdot (H - \langle H_{sw}^0 \rangle)$$

où $\langle \tau \rangle^0$ est le temps de diffusion à hauteur de barrière nulle.

Notons que les champs de retournement sont ici de l'ordre de 60 mT alors qu'ils sont distribués entre 300 mT et 100 mT dans la membrane. Ceci laisse à penser que les interactions entre fils ne sont pas négligeable, ainsi probablement que l'effet de la membrane sur les propriétés magnétiques (effets magnétostrictifs). La comparaison entre les échelles nanoscopiques et macroscopiques sera donc moins facile à réaliser pour ces nanofils.

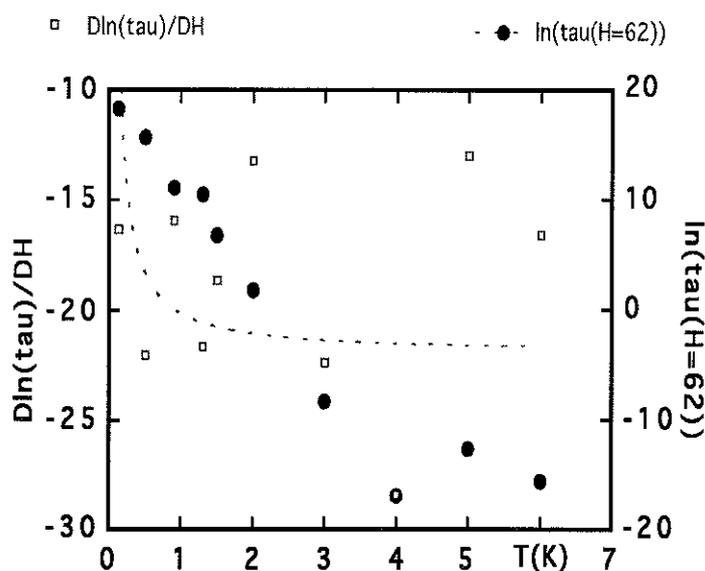
La représentation d'Arrhenius donne les deux dépendances thermiques tracées Figure(1-12). Le paramètre $\ln(\langle \tau \rangle(H_0))$ a le même comportement que pour les nanoparticules lithographées (Figure(3-19) du chapitre précédent). Néanmoins, la dépendance thermique du paramètre $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$ ne semble pas accessible à la sensibilité de la mesure (nuage de carrés blancs de la Figure(1-12)).

Fil unique

Figure(1-12): dépendance thermique des paramètres $\ln(\langle \tau \rangle(H_0))$ et $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$ en représentation d'Arrhenius. Les variations thermiques du paramètre $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$, représentées par les symboles carrés creux, ne semblent pas accessibles à la sensibilité de la mesure. Le paramètre $\ln(\langle \tau \rangle(H_0))$ présente une correction à la loi d'activation classique à basse température.

Les données de la Figure(1-12) sont retracées en représentant les deux paramètres $\ln(\langle \tau \rangle(H_0))$ et $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$ en fonction de la température. Ce graphique met en évidence un processus qui s'écarte du processus d'activation thermique pour le paramètre pris à champ fixe. La dépendance thermique du paramètre $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$ n'est malheureusement pas accessible à la sensibilité de la mesure. Ce paramètre est de

l'ordre de 20 mT/decade soit de l'ordre de 200 Oe/decade. Les Figures (1-12 et (1-13) sont à comparer aux Figures (3-24) et (3-27) du chapitre II.



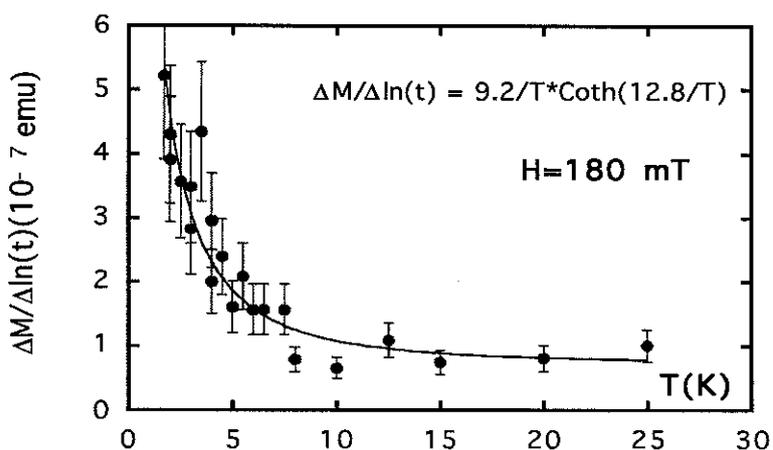
Figure(1-13):

les données de la Figure(1-11) sont représentées en fonction de la température. Le paramètre à champ fixe $\ln(\langle \tau \rangle (H_0))$ est tracé sur l'échelle de droite (ronds pleins). Le trait pointillé est un ajustement des données $\ln(\langle \tau \rangle (H_0))$ avec la forme classique de loi d'activation $\ln(\tau) = a + b/T$. Le paramètre $\Delta \ln(\langle \tau \rangle) / \Delta H$ est tracé sur l'échelle de gauche (carrés blancs). La dépendance thermique de ce dernier paramètre n'est pas accessible à la sensibilité de la mesure.

III-1-2c Vitesse de relaxation des fils dans la membrane:

La vitesse de relaxation logarithmique mesurée sur la membrane, est représentée en fonction de la température Figure(1-14) pour le champ de relaxation $H = 180$ mT. Le comportement est conforme à ce que nous avons mesuré sur les nanoparticules lithographées. Ce comportement décroissant, quasiment divergent à basse température, est très éloigné des modèles usuels d'activation thermique.

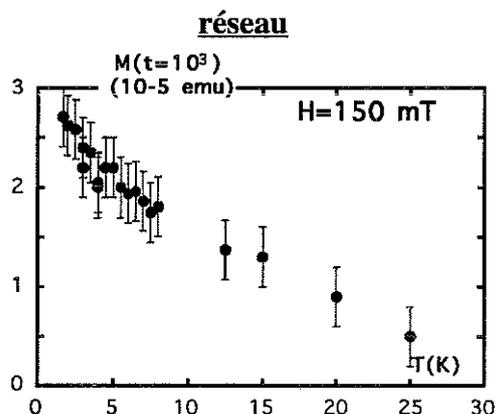
membrane de nanofils



Figure(1-14): dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique de la membrane composée de fils magnétiques au champ de relaxation $H=180$ mT. Ce comportement est similaire à celui des nanoparticules lithographées. Les points expérimentaux sont ajustés par la fonction notée en haut à droite. On notera la température de transition, donnée par le paramètre dans la cotangente hyperbolique: $T_0=12.8$ K.

Le traînage long sur 12 heures pour les températures supérieures à 4.2K permet de réduire les incertitudes, et ainsi de vérifier que la vitesse de relaxation devient constante et différente de zéro à haute température (mesurée jusqu'à 50K).

La valeur de l'aimantation prise en un point de la relaxation lors du traînage magnétique est représentée Figure(1-15). Cette grandeur donne une indication de la relaxation aux temps courts, non accessibles aux mesures directes de la vitesse de relaxation. Ce comportement ressemble à celui du champ coercitif. Une transition dans le comportement dynamique ne semble pas visible sur ces mesures. Il est possible que la dynamique au temps courts, qui détermine le comportement de ce paramètre, soit dominée par des effets d'avalanche et d'activation thermique comparables à ceux qui sont mesurés sur des échantillons non-nanostructurés.



Figure(1-15):

variation thermique de l'aimantation prise au cours de la relaxation 1000 secondes après le renversement du champ extérieur. Cette variation semble suivre la variation du champ coercitif de la Figure(1-4). Une transition dans le comportement thermique au voisinage de 10K n'est pas clairement perceptible.

Conclusion

Les caractéristiques essentielles mesurées sur les échantillons lithographés du chapitre précédent sont attestées sur cet autre type d'échantillons nanostructurés.

- Le passage du nanoscopique au macroscopique se réduit à la connaissance des fluctuations du champ de saut H_{sw} autour de sa valeur moyenne $\langle H_{sw} \rangle$ à l'échelle nanoscopique et à la connaissance de la distribution g des champs de saut moyen $\langle H_{sw} \rangle$ dans le réseau macroscopique.
- Un comportement du même type que pour les nanostructures lithographées se manifeste pour le temps de retournement de l'aimantation à l'échelle d'un nanofil. Le logarithme du temps de retournement se

décompose pour chaque température en une partie linéaire en champ magnétique et une partie ne dépendant pas du champ magnétique. Un écart à la loi d'activation thermique à basse température est mesuré pour le paramètre à champ fixé. Un profil thermique de l'autre paramètre, linéaire au champ magnétique extérieur, n'a pas pu être mis en évidence pour les mesures sur un fil individuel de Ni. La cohérence des mesures aux deux échelles, nanoscopique et macroscopique, qui nécessite de connaître la dépendance thermique du temps de retournement, n'a donc pas pu être vérifiée.

- En revanche, le comportement de la vitesse de relaxation logarithmique mesuré sur l'assemblée de fils contenus dans la membrane, opposé à celui qu'induirait un simple processus d'activation thermique, est attesté. Ce comportement, illustré sur la Figure(1-14) de ce chapitre et sur les Figures(2-17) et (3-18) du chapitre précédent, non observé à notre connaissance dans la littérature, semble propre à ce type de systèmes magnétiques nanostructurés.

- Le raisonnement de la dernière partie du chapitre II conduit à l'expression de la vitesse de relaxation:
$$\frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \approx \frac{dM}{dH} \cdot \left[\frac{dH}{d \ln \langle \tau \rangle} \right]$$

En ordre de grandeur, le décalage entre la vitesse de relaxation et la distribution dM/dH était d'un facteur 3 (Figure(1-8)). En supposant que les pente $d \ln \langle \tau \rangle / dH$ ne dépendent que de la température, plutôt que de le corriger, ce terme aggrave l'écart d'un facteur de l'ordre de 10.

Ce facteur ne semble pas pouvoir être interprété à l'aide des seules données expérimentales.

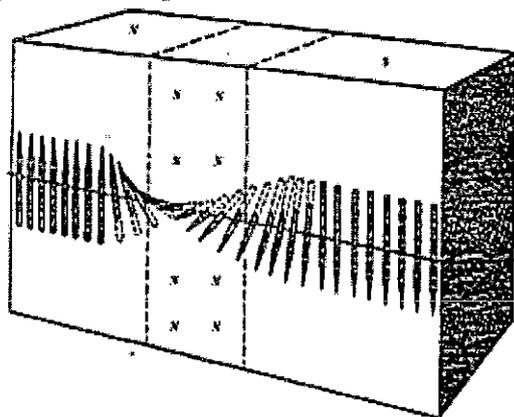
De même que pour les échantillons lithographées, l'existence de distributions du temps de diffusion en l'absence de barrière $\langle \tau^0 \rangle$ est vraisemblable. La dépendance thermique de ce paramètre est aussi exponentielle, et l'échelle de temps caractéristique (0.001s à 0.1K) indique qu'il ne s'agit pas du préfacteur habituel de la loi d'Arrhenius, qui traduit l'effet de la précession des spins dans le puit de potentiel. Il s'agirait plutôt d'une diffusion dans un environnement "très visqueux".

Ces mesures attestent d'un mécanisme de relaxation différent d'un simple processus d'activation thermique au dessus de la barrière de potentiel d'anisotropie. Ce mécanisme semble propre aux nanostructures magnétiques.

III-2 multicouche à "jonction de paroi de domaines"

Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les résultats d'une étude de traînage magnétique à basse température sur un échantillon complexe en multicouche. L'étude est effectuée dans le plan de la couche, le long d'un axe de facile aimantation produit par l'anisotropie.



Le retournement de l'aimantation le long de cet axe d'anisotropie est associé ici à un déplacement de paroi entre un domaine magnétique orienté parallèlement au champ extérieur et un domaine magnétique orienté antiparallèlement. Le front de la paroi, orienté suivant l'axe d'anisotropie, a une dimension macroscopique (voir le schéma ci-contre issu de la Figure(1-1) du chapitre I)

Du point de vue de la dynamique, l'échantillon est une "jonction de paroi de domaine" [Gunther1994] dont le principe repose sur l'analogie avec les jonctions Josephson. Une couche magnétique est séparée par une jonction étroite, réalisée dans un matériau différent. Il s'agit de créer une barrière de potentiel entre deux positions d'une paroi de domaine évoluant de part et d'autre de la jonction. Lorsque le matériau de la jonction est plus dur que celui des domaines, un puits de potentiel est créé au niveau de la jonction, qui piège la paroi. La relaxation mesurée provient alors, par exemple, du dépiégeage de la paroi sous l'effet du champ magnétique extérieur et des fluctuations thermiques (Figure (2-1)).

L'élaboration d'une Jonction de Paroi de Domaines est relativement simple avec un dispositif de pulvérisation cathodique. La succession de couches de matériaux magnétiques dur et doux permet de créer des défauts à l'échelle nanométrique pour une paroi de domaines. Les expériences de dynamique de l'aimantation, en particulier de traînage magnétique imposent en outre quelques contraintes, exposées en partie au chapitre précédent. En particulier, deux états d'équilibre de la paroi, accessibles à un même champ de part et d'autre du défaut, doivent pouvoir être repérés sans ambiguïté. Ces états doivent correspondre à un champ extérieur relativement faible.

Nous avons étudié un échantillon composé de multicouches d'alliage de terres-rares et métaux de transition dont le comportement de chaque couche individuelle est assez bien connu, mais pour lequel la complexité des couplages intercouches donne lieu à une grande variété de propriétés magnétiques non connues, et encore en cours d'investigation.

Les problèmes concernant la description de l'ensemble des propriétés magnétiques et des configurations possibles de ce type d'échantillon dépassent l'ambition de ce travail ([Ndjaka 1990thèse], [Wüchner 1995thèse], [Mangin 1996thèse]). Il est cependant illusoire d'étudier les propriétés dynamiques d'un système sans une bonne connaissance de ses propriétés statiques. Nous allons brièvement présenter un certain nombre de résultats relatifs à la caractérisation magnétique de cet échantillon, et nous focaliser sur les propriétés qui participent directement à la compréhension des phénomènes de relaxation proprement dits.

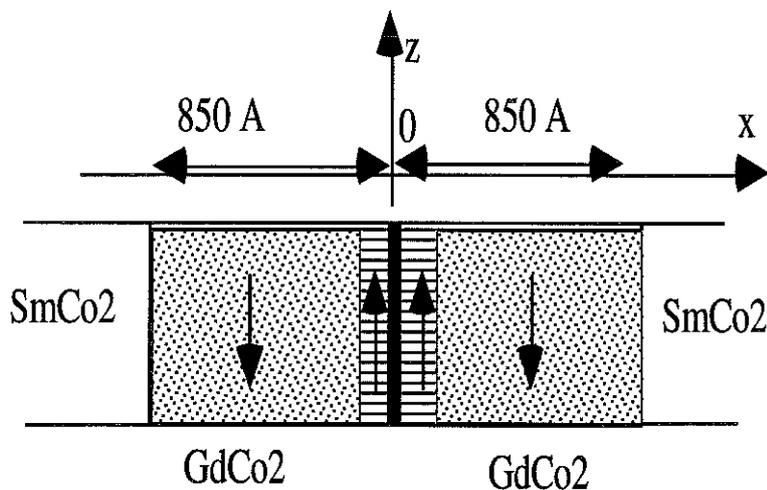
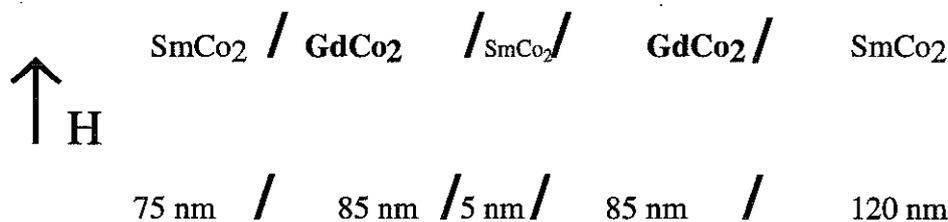
Dans une première partie (III-2-1), l'échantillon est présenté et certaines propriétés quasi-statiques sont mises en évidence. Dans une seconde partie (III-2-2), nous présentons une étude dynamique restreinte aux températures supérieures à 4.2K. Nous comparons les propriétés de la relaxation issues d'un processus d'annihilation de paroi de domaines à 360° , et les propriétés de la relaxation issues d'un processus de piégeage d'une paroi de domaines 180° . Des caractéristiques très particulières du comportement dynamique sont mises en évidence. Dans une troisième partie (III-2-3), l'étude est étendue aux températures plus basses et à des configurations intermédiaires.

III-2 -1 L'échantillon

L'échantillon que nous avons étudié est un système multicouche fait d'un film amorphe composé de trois couches d'alliage de Terre-rare et Métaux de transition $\text{SmCo}_2/\text{GdCo}_2/\text{SmCo}_2$ où la couche centrale de GdCo_2 (de 170 nm d'épaisseur) est séparée en deux parties égales par un film ultramine de SmCo_2 (5 nm d'épaisseur) (voir la Figure(2-1) ci-dessous). L'échantillon a été préparé par pulvérisation cathodique sur un substrat de verre et protégé par une couche de 1200Å d'Argent.

Une anisotropie uniaxiale a été induite dans les couches de matériau dur SmCo_2 par recuit sous un champ maintenu pendant 2h à 5 Tesla et à 300°C dans le plan de la couche. L'étude se fait en fonction du champ magnétique extérieur fixé dans le plan de la couche le long de l'axe d'anisotropie induit (axe Oy). Le déplacement des parois entre domaines a lieu le long de la direction Ox , perpendiculaire à la couche (voir Figure(2-1)).

Du fait de l'anisotropie induite, les deux couches externes de matériau dur SmCo_2 (de 75 nm et 120 nm) ont acquis une anisotropie de l'ordre du Tesla et ne se retournent pas durant les expériences de traînage à bas champ. Le comportement de la couche ultrafine centrale n'est pas déterminé a priori (il est probable que la couche centrale ait diffusé et doit être considérée comme un défaut). La présence des deux couches de SmCo_2 externes permet de fixer les conditions aux limites: la paroi de domaines est confinée dans les couches de GdCo_2 , et la dynamique est réduite au déplacement de ces parois de part et d'autre du défaut. Le système étudié est donc le déplacement de paroi à travers la structure plane suivante:

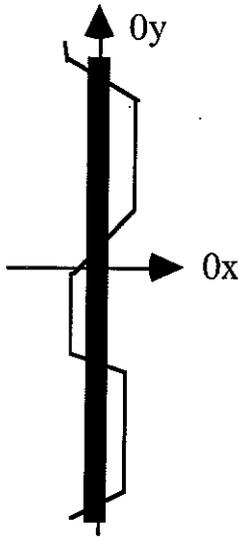


Figure(2-1): modélisation d'une paroi de domaines magnétique de 360° dans le GdCo_2 . L'axe Ox est perpendiculaire à la couche. Cette paroi de domaines est en fait constituée de deux parois à 180° représentées ici par deux traits infiniment minces. Entre les domaines hachurés horizontalement et les domaines pointillés, il faut imaginer une rotation des spins d'un site à l'autre le long de l'axe Ox . La rotation s'opère dans le plan de la couche le long de l'axe Oy (c'est-à-dire perpendiculairement à la feuille).

La propagation s'effectue sur l'axe perpendiculaire à la multicouche par renversement du couple de spin Gd et Co sous l'effet de l'énergie Zeeman, $E_Z = -M_s H \sin\theta$ (qui tend à aligner les spins le long du champ) et l'énergie d'anisotropie E_a (qui tend à maintenir les spins sur leur axe propre). M_s est la densité d'aimantation par unité de volume pour une couche et K_z et K_x sont les constantes d'anisotropie magnétocristalline, avec une correction d'anisotropie induite par le recuit sous champ. A

priori, on a $K_x \ll K_z$. Un modèle descriptif des configurations magnétiques des couches est esquissé au paragraphe suivant.

Les deux directions dans le plan de la couche sont macroscopiques. Dans la Figure(2-21) ci-dessus, une paroi de 360° a été modélisée, séparant deux domaines magnétiques du $GdCo_2$. Dans le cas envisagé sur le schéma, cette paroi est comprimé sur le défaut de $SmCo_2$. En effet, l'anisotropie du $SmCo_2$ du défaut induit une barrière de potentiel que doit franchir la paroi pour s'annihiler (il faut apporter l'énergie nécessaire pour retourner les spins de $SmCo_2$ bloqués sur leur axe d'anisotropie). Ce surplus d'énergie doit être fourni par le champ extérieur, sans mouvement de paroi.



Il est important de noter que la paroi est un défaut topologique macroscopique à deux dimensions le long de Oy et Oz . Seul le déplacement de la paroi, dans le sens Ox perpendiculaire à la couche est de dimension mésoscopique. Par ce fait la paroi doit être considérée comme une assemblée macroscopique de sous systèmes schématisé ci-contre (ces objets sont modélisés en termes de solitons ou couple "kink-antikink"). Les interactions entre chacun des sous-systèmes sont difficile à estimer et dépend des inhomogénéités locales de l'amorphe. Aux interfaces entre couches, et particulièrement au niveau du défaut central, les inhomogénéités à toute échelles coexistent, et permettent probablement de définir des ensemble de tels domaines magnétiquement corrélés.

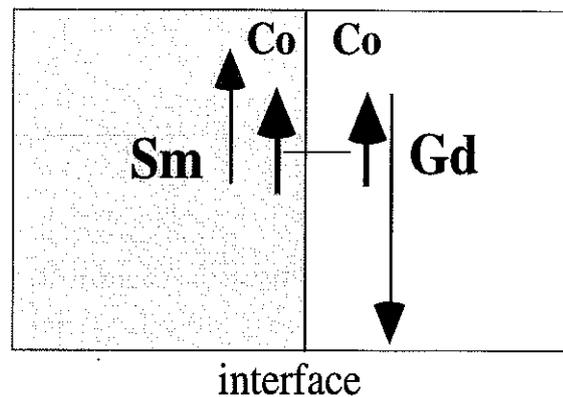
Les configurations induites aux interfaces entre les couches de $GdCo_2$ et les couches extérieures de $SmCo_2$ sont très singulières et propres à ce type de multicouches.

Dans les composés $Sm-Co$, les moments des deux éléments sont couplés ferromagnétiquement. En revanche, dans le composé $Gd-Co$, la structure de bande induit un couplage antiferromagnétique entre les deux éléments. Ce couplage est rigide et ne se rompt pas aux champs permanents accessibles. En outre, le moment de l'atome de Gd (de l'ordre de $7 \mu_B$) est plus grand que le moment de l'atome de Co (de l'ordre de $1.2 \mu_B$) et le moment du Gd domine largement sous l'action d'un champ magnétique extérieur (moment de environ $1.4 \mu_B$ pour l'alliage). Par conséquent, en champ nul, le couplage entre les deux couches des deux alliages va être globalement ferrimagnétique: l'énergie d'échange, dominante entre les moments de Co (l'énergie d'échange entre les métaux de transition est beaucoup plus important que l'énergie d'échange entre terre

Chapitre III

rare), poussera les moments de SmCo et de GdCo à s'aligner tête bêche, antiferromagnétiquement.

Figure(2-2): la configuration de l'interface $\text{SmCo}_2/\text{GdCo}_2$ est représentée à l'équilibre en champ magnétique extérieur nul. Entre les moments dominants, cette configuration induit l'équivalent macroscopique d'un ordre antiferromagnétique à l'interface.



Lorsqu'un champ est appliqué, les spins de Gd auront tendance à se mettre dans la direction du champ: les spins SmCo et Gd seront alignés, mais il existera une paroi de domaines entre les Co. On arrive alors à cette situation inhabituelle où la paroi de domaine est maintenue à champ fort. Les conséquences sur le profil du cycle d'hystérésis sont bien visibles Figure(2-3).

III-2-1 Equilibres de la paroi entre deux domaines magnétique

Un modèle analytique peut être proposé pour décrire la position de la paroi de domaines piégée sur une interface entre deux matériaux différents [Dieny 1991], [Ndjaka 1990thèse].

Pour une couche unique, et en supposant un retournement uniforme ($\|\vec{M}_s\| = \text{cst}$), la densité d'énergie E du système comprend le terme d'échange, les deux termes d'anisotropies dans le plan de la couche (suivant l'axe facile Oz et suivant l'axe difficile Oy) ainsi que le terme d'énergie Zeeman produit par le champ extérieur H_{ext} :

$$E = A \left[\frac{\partial \theta}{\partial X} \right]^2 - K_z M_s^2 \sin^2 \theta + K_y M_s^2 \cos^2 \theta \cos^2 \Phi + M_s H_{\text{ext}} \cos \theta \quad (1)$$

Les angles θ et Φ repèrent l'angle que fait la direction de l'aimantation avec l'axe du champ magnétique extérieur, respectivement dans le plan $\{Ox, Oz\}$ et dans le plan $\{Ox, Oy\}$.

L'équation d'Euler-Lagrange (issue du principe variationnel où le Lagrangien est minimisé par rapport à l'angle θ) fournit la configuration magnétique dans l'espace à l'équilibre.

$$\frac{d}{dX} \frac{\partial E}{\partial \left(\frac{d\theta}{dX} \right)} - \frac{\partial E}{\partial \theta} = 0 \quad (2)$$

Avec les approximations $K_y \ll K_z$ le terme central à droite de l'égalité (1) est négligeable.

Le terme cinétique est défini par la constante d'échange A du Co , $A = 2 \cdot 10^{-7}$ Erg/cm. Les positions à l'équilibre des parois sont données par l'équation différentielle de second ordre suivante:

$$2A \frac{d^2\theta}{dX^2} = -K_z(X) \cos\theta \sin\theta + M_s(X) H_{\text{ext}} \sin\theta \quad (3)$$

Cette équation ne peut être résolue que lorsque sont connues les conditions aux limites sur la valeur de l'angle et de la variation spatiale de l'angle. Cette équation ne permet donc pas à elle seule de définir les configurations magnétiques dans les différentes couches. Pour schématiser l'effet du champ magnétique sur une position d'équilibre de la paroi, nous pouvons modéliser une seule interface d'épaisseur nulle entre deux monocouches d'aimantation M_1 et M_2 et d'anisotropie négligeable devant le terme Zeeman, en supposant que les couches sont orientées antiparallèlement comme pour le cas des interfaces SmCo_2 et GdCo_2 . On obtient les deux équations suivantes:

$$2A \frac{d^2\theta}{dX^2} = M_1 H_{\text{ext}} \sin\theta \quad (4)$$

$$2A \frac{d^2\theta}{dX^2} = -M_2 H_{\text{ext}} \sin\theta$$

L'hypothèse des couches orientées antiparallèlement à leur extrémités (au point le plus éloigné de l'interface) donne

$$\theta(X \rightarrow -\infty) = 0 \quad \text{et} \quad \theta(X \rightarrow +\infty) = -\pi \quad (5)$$

et avec les conditions de continuité:

$$\theta_1(0) = \theta_2(0) = \theta_0$$

$$\left. \frac{d\theta_1}{dX} \right|_{X=0} = \left. \frac{d\theta_2}{dX} \right|_{X=0} \quad (6)$$

on obtient pour la couche 1:

$$\text{tg} \left(\frac{\theta_1(x)}{4} \right) = \left[\sqrt{\frac{M_1}{M_2}} \mp \sqrt{1 + \left(\frac{M_1}{M_2} \right)} \right] \exp \left[\sqrt{\frac{M_1 H}{2A}} x \right] \quad (7)$$

La paroi est alors centré sur l'interface et l'épaisseur de la paroi est

$$\delta = \frac{\pi}{\left. \frac{d\theta}{dX} \right|_{X=0}} = \pi \sqrt{\frac{(M_1 + M_2)A}{2M_1 M_2}} \cdot \frac{1}{\sqrt{H}} \quad (8)$$

L'énergie de la paroi est:

$$\gamma = 4\sqrt{2HA} \cdot (\sqrt{M_1} + \sqrt{M_2} - \sqrt{M_1 + M_2}) \quad (9)$$

On a donc $\delta \propto \sqrt{\frac{A}{H}}$ et $\gamma \propto \sqrt{H \cdot A}$ qui rappellent les expressions de l'énergie

$\gamma \propto \sqrt{K \cdot A}$ et de largeur de paroi $\delta \propto \sqrt{\frac{A}{K}}$ dans un milieu homogène d'anisotropie

K

Dans ce modèle, la paroi est compressée sur l'interface à champ fort et se délocalise jusqu'à disparaître à champ faible. Cette caractéristique est une conséquence de l'hypothèse d'absence d'anisotropie. Avec les termes d'anisotropie, la paroi se déplacerait dans les couches.

Ce modèle donne une description des caractéristiques statiques de l'objet magnétique constitué d'une paroi de domaine piégée sur une interface entre deux couches magnétiques. Quelques paramètres sont définis à partir des constantes A, K et Ms, qui sont utilisées aussi dans la description des monodomains magnétiques. La dynamique étudiée expérimentalement est une dynamique dont les états d'équilibres sont donnés par des états du même type que celui décrit ci-dessus.

III-2-1b Caractérisation magnétique

Pour la couche de GdCo₂, on a
approximativement

Gd_{0.32} Co_{0.68}

M_s = 1.4 μ_B = 7.92 · 10⁻³ emu/cm³ (= 86.8 emu/g)

et très approximativement K_Z=5000

Pour la couche de SmCo₂, on a

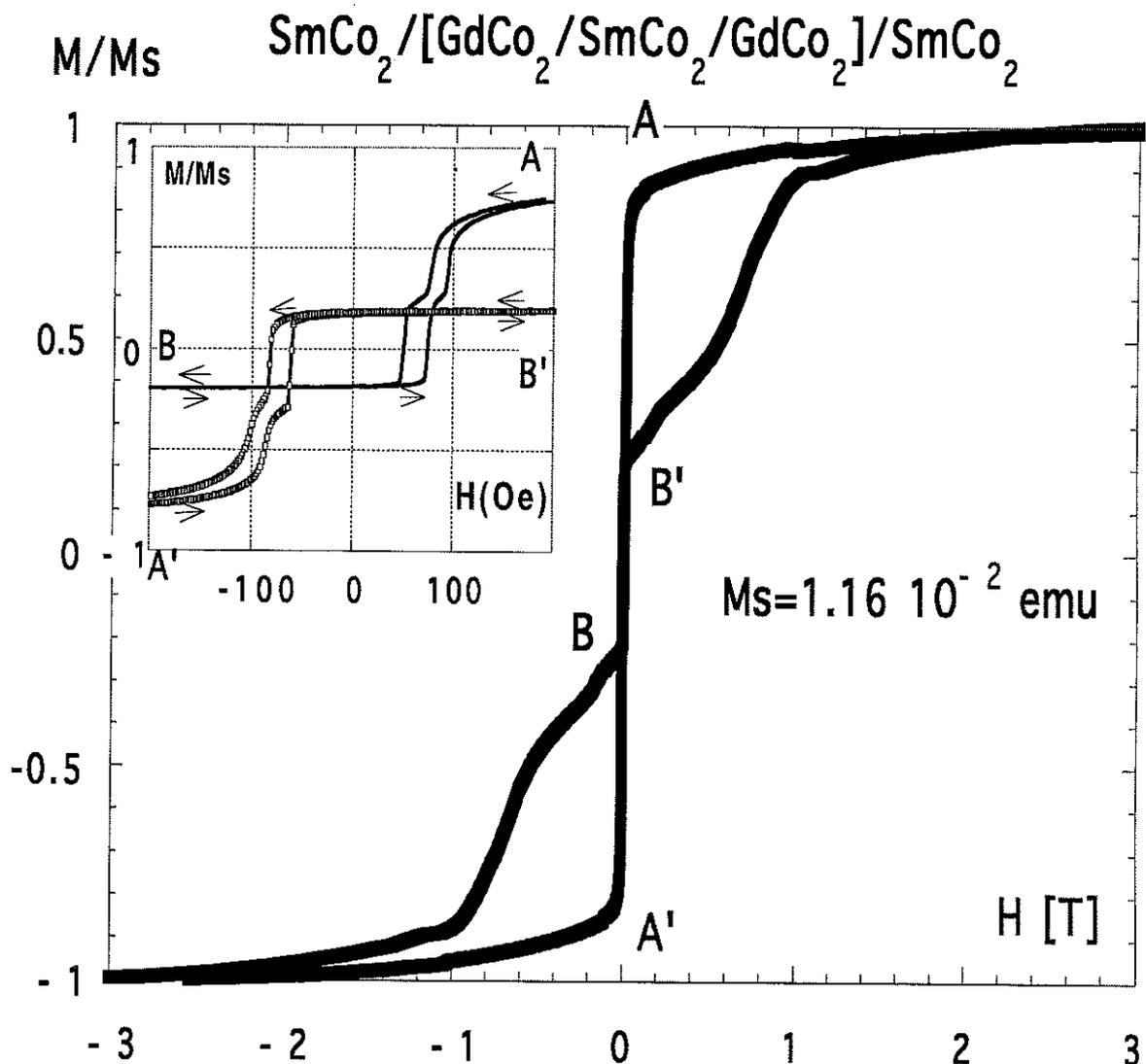
M_s = 0.945 μ_B

et très approximativement K_Z=50000

Le cycle d'hysteresis, mesuré avec un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM Oxford Instrument) est montré Figure(2-3). L'aimantation est normalisée à l'aimantation Ms totale de l'échantillon à saturation: Ms = 1.16 · 10⁻² emu. La vitesse de parcours du cycle est de 1T/min de 1 Tesla à 7 Tesla et de 0.2 Tesla par minute de 0.1 à 1 Tesla. A l'échelle de la Figure(2-3) la structure du DWJ de GdCo₂ n'apparaît pas. Il suffit de rejoindre le point A ou point B et le point A' ou point B'

pour obtenir, aux approximations permises par l'échelle de l'ordre du Tesla, le cycle d'une couche de SmCo_2 seule.

L'encart de la Figure(2-3) montre la partie centrale du cycle, grossie plus de 100 fois. Cette partie centrale met en évidence la structure propre aux échantillons du type "Jonction de paroi de Domaines" (DWJ). Le défaut central est à l'origine du palier d'aimantation visible avant l'annihilation des parois (en amont par rapport au sens de variation du champ). En d'autre termes, la double paroi est piégée sur le défaut central.



Figure(2-3): Cycle d'hystérésis complet de la multicouche $\text{SmCo}_2/\text{GdCo}_2/\text{SmCo}_2/\text{GdCo}_2/\text{SmCo}_2$. L'aimantation est normalisée à la saturation $M_s = 1.16 \cdot 10^{-2} \text{ emu}$. La structure visible à l'échelle du Tesla provient du retournement des couches extrêmes de SmCo_2 dont l'anisotropie a été accentuée par recuit sous champ. L'encart montre la partie centrale du cycle grossie plus de 100 fois. Cette partie centrale met en évidence la structure propre aux échantillons

du type "Jonction de paroi de Domaines" (DWJ). Le défaut central est à l'origine du palier d'aimantation visible avant l'annihilation des parois .

Les deux cycles sont translatés de la quantité d'aimantation des couches de SmCo₂. Pour le cycle de droite, les deux couches extrêmes de SmCo₂ sont saturées dans la direction des champs positifs. Pour boucler le cycle, le champ extérieur maximum appliqué en direction négative, est -0.02 Tesla (point (a)), pour ne pas renverser les moments de SmCo. Il en est de même pour le cycle de gauche, équivalent au cycle de droite avec les couches de SmCo₂ saturées dans la direction négative du champ extérieur. Le champ extérieur maximum, appliqué en direction positive est 0.02 Tesla (point (c))

La Figure(2-4) explicite les configurations successives du cycle de droite. Un champ négatif de -7 Tesla est appliqué, avant de parcourir le cycle de la position -0.02 Tesla (point (a)) à la position 0.02 Tesla (point (c)) et retour.

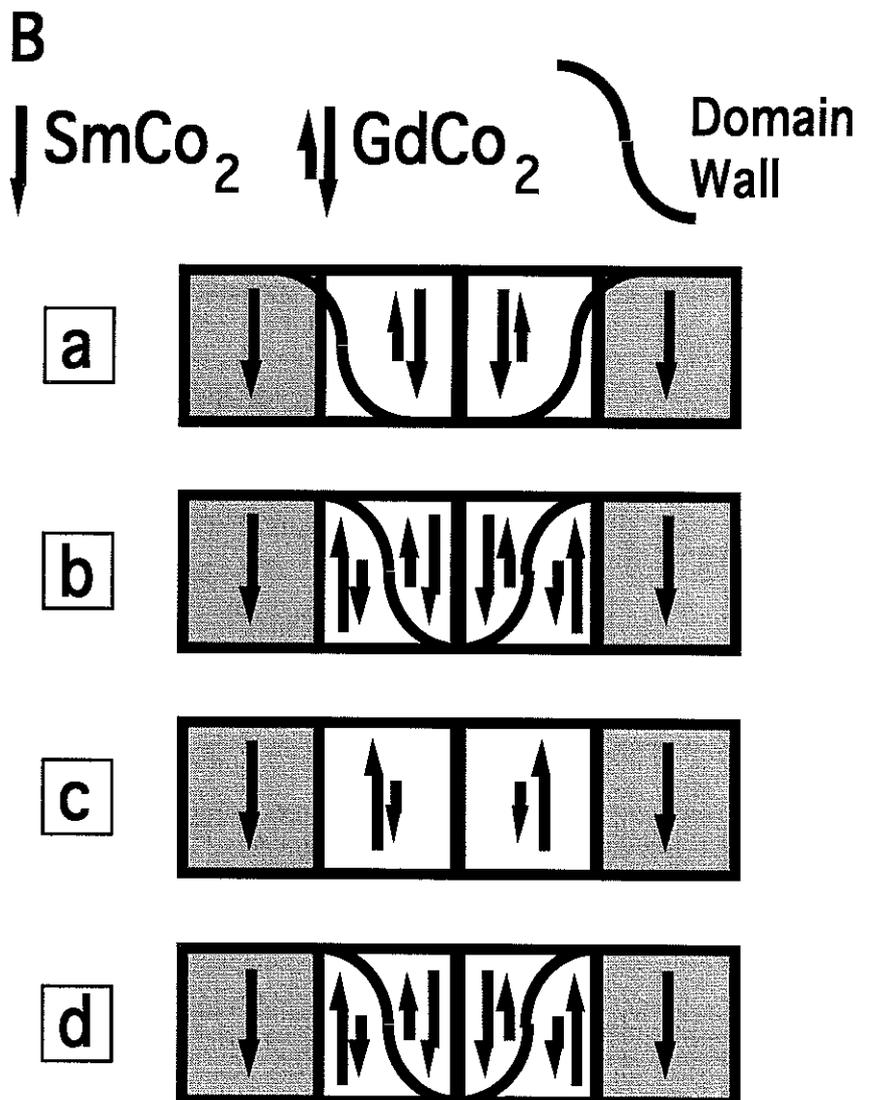
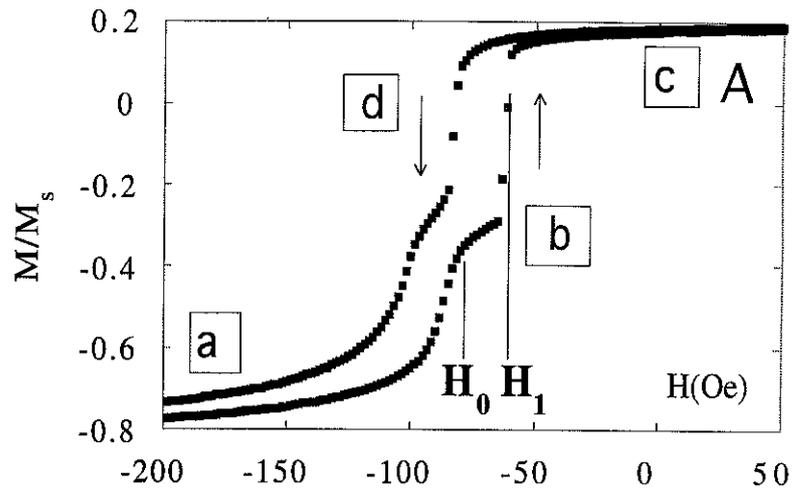
En champ magnétique fort (-7 Tesla), les moments de Co de toutes les couches sont orientés dans la direction négative du champ extérieur. Cela implique l'existence de deux parois de domaines à 180° entre les moments de Co aux interfaces (point (a)).

L'énergie Zeeman, qui maintient les moments de la couche de GdCo₂ le long du champ appliqué, décroît proportionnellement à ce champ. En champ nul, il n'y a plus de paroi de domaines pour les moments de Co. Lorsque le champ tend vers zéro, les deux parois bougent à travers les couches de GdCo jusqu' à se chevaucher sur le défaut central, où elles forment une paroi à 360° à champ suffisamment faible (point (b)). Finalement l'énergie Zeeman n'est plus suffisante pour maintenir la paroi, et celle-ci s'annihile pour donner une configuration où tout les moments de Co sont parallèles entres eux (point (c)). Cette configuration est stable car les interactions d'échange Co-Co sont satisfaites. A champ beaucoup plus fort (voir Figure(2-1)), la couche de SmCo₂ aux extrémités se renverse lentement, probablement par nucléation de domaine Co-Co aux interfaces.

Dans la gamme de température étudiée, le cycle d'hystérésis ne change pas de façon significative avec la température.

Figure (2-4) A et B:

Lors du parcours du cycle d'hystérésis, les différentes configurations magnétiques représentées ci-contre se succèdent dans les couches. En champ fort, il existe une paroi de domaines Co-Co aux interfaces SmCo₂/GdCo₂ (configuration (a)) Lorsque le champ décroît, en valeur absolue, les deux parois se déplacent vers le défaut central jusqu'à se chevaucher (configuration (b)). A champ plus faible, cette paroi s'annihile pour arriver à la configuration stable (c), où tout les moments de Co sont alignés. En champ beaucoup plus fort, la couche de SmCo₂ se retourne lentement. Lorsque le champ est inversé avant le retournement des couches SmCo₂, les parois se nucléées (d) avant de se déplacer vers les interfaces extérieures.



III-2-2 Mesure de traînage magnétique

Chapitre III

Lors des mesures de relaxation, nous n'avons pas pu préalablement saturer l'échantillon à -7 Tesla de façon à aligner tout les moments de SmCo le long de leur axe d'anisotropie. En outre, pour des raisons techniques, le champ est confiné dans la fenêtre [-2kOe, 2kOe] sans qu'il soit possible de saturer l'échantillon. La configuration des couches de SmCo₂ est légèrement modifiée et n'a pas sa valeur à saturation. La position du cycle d'hystérésis par rapport aux axes de référence (le zéro d'aimantation total) va dépendre de la configuration des couche SmCo₂ à 2kOe et -2kOe..

L'obtention d'un état initial de référence parfaitement reproductible pour les mesures de traînage est ici difficile. Le protocole d'initialisation le plus efficace pour cet échantillon, compte tenu des limitations expérimentales, consiste à parcourir une fois le cycle de -2kOe à +2kOe, avant de fixer rapidement le champ, à la valeur désirée pour la relaxation.

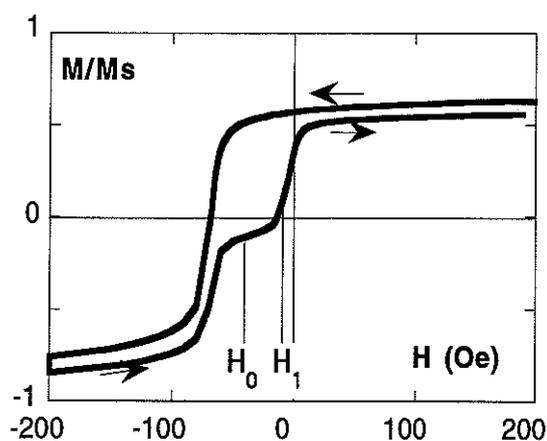
Cela signifie que le point (a) de la Figure(2-4) est maintenant fixé à -2 kOe (plutôt que -70 kOe) et le point (c) de la Figure(2-4) est repoussé de 0.2 à 2 kOe. Par conséquent, les configurations de l'ensemble des couches risquent d'être différentes du cas idéal des Figures(2-3) et (2-4). Le cycle d'hystérésis correspondant est montré Figure(2-5). Il est effectivement translaté par rapport à celui de la Figure (2-4). La couche de SmCo₂ n'est plus parfaitement alignée le long de l'axe. La structure DWJ n'est pas bien apparente dans la demi-boucle correspondant au champ appliqué décroissant en raison des moments de SmCo₂ retournés dans la direction du champ, qui ont nucléés une deuxième paroi de domaines. Le système considéré lors des expériences dynamiques est maintenant celui décrit par le cycle d'hystérésis de la Figure(2-5). Néanmoins, l'autre demi boucle préserve la succession des configurations décrites dans le paragraphe précédent.

Le cycle de la Figure(2-5) a été mesuré avec un magnétomètre à SQUID (Quantum Design Inc.), de même que l'ensemble des mesures de traînage présenté dans cette partie. La sensibilité de la mesure est meilleure que $5 \cdot 10^{-8}$ emu (écart maximal du nuage de points produit par le porte échantillon après une heure de traînage). Néanmoins, la reproductibilité des traînages ne permet pas d'espérer une précision meilleur que $2 \cdot 10^{-7}$ emu par décade pour la vitesse de relaxation (pour des vitesses de relaxation de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-6} emu par décade). Le problème de reproductibilité provient du fait que les relaxations mesurées ne concernent que environ 1‰ du signal total. L'aimantation $M(t_0)$ prise en un point donné de la relaxation (voir Figure(2-14)) rend compte de l'état de l'ensemble de l'échantillon, et n'est donc pas représentatif du système étudié. La reproductibilité sur le paramètre $M(t_0)$ est de quelques % (soit de l'ordre de 10^{-4} emu). Ces variations sur l'état du système peuvent donc affecter la

mesure de la relaxation de façon très importante. La cohérence des résultats est donc garantie pour les mesures qui suivent, essentiellement par l'étude comparative avec un état "connu" dont le comportement reste classique.

Pour le cycle d'hystérésis de la Figure(2-5), le temps de déplacement du champ est environ de 2 Oe/min, alors que dans le cas de la relaxation, il est d'environ 1kOe par minute à partir du champ de saturation $H_s = -2$ kOe jusqu'au champ de relaxation H_0 ou H_1 . Sur la figure(2-5), deux positions correspondants aux champs magnétiques $H_1 = -10$ Oe et $H_0 = -42$ Oe sont indiquées. Ces champs correspondent à des configurations particulières sur lesquels la relaxation a été étudiée en détail.

Figure(2-5)

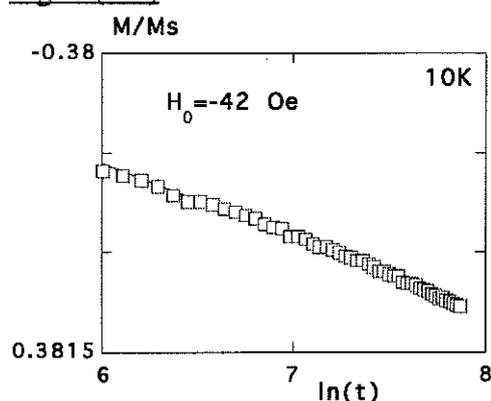


Figure(2-5) :

Le cycle d'hystérésis est mesuré de 2kOe à -2kOe et retour sur un magnétomètre à SQUID industriel (Quantum design). Ce cycle est décalé par rapport à celui mesuré Figure(2-4) car il correspond à un cycle mineur pour le sous-système composé des couches de $SmCo_2$. Néanmoins le demi-cycle à champ croissant conserve la structure DWJ. Les configurations magnétiques des couches de $GdCo$ sont celles décrites Figure(2-4). Le cycle mesuré lorsque l'échantillon est retourné (tête bêche) est approximativement symétrique par rapport à l'origine à celui-ci.

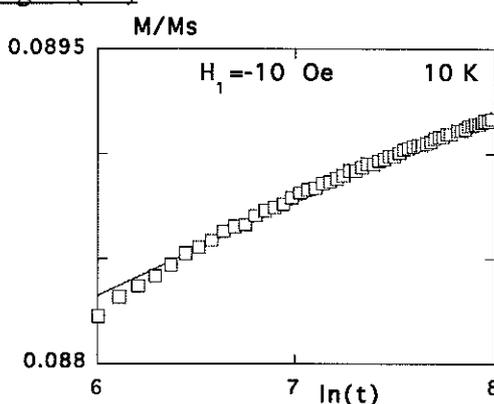
Les Figures (2-6) et (2-7) montrent deux courbes de relaxation aux deux champs appliqués H_0 and H_1 correspondant à des configurations différentes. Ces courbes de relaxation sont effectuées avec le même protocole de traînage magnétique; même champ de départ à 2kOe et même température. La vitesse de relaxation logarithmique a été normalisée à l'aimantation du film magnétique à environ $M_s = 1.16 \cdot 10^{-2}$ emu. La dynamique étudiée ici concerne donc environ 1 millième de l'ensemble de l'aimantation de la multicouche.

Figure(2-6)



Figure(2-6): relaxation de l'aimantation au champ appliqué $H_0 = -42$ Oe. L'unité de temps est en minutes. La température est 10K et le champ initial de référence est 2kOe.

Figure(2-7)



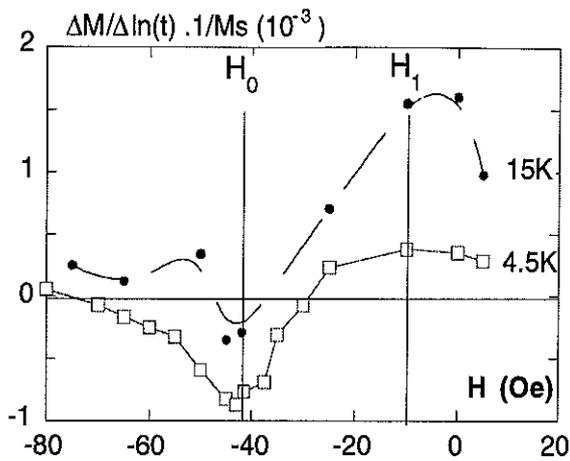
Figure(2-7): relaxation de l'aimantation au champ appliqué $H_1 = -10$ Oe. La température est 8K. De même que pour le traînage ci-contre, le champ initial de référence est 2kOe.

La relaxation n'est pas exactement logarithmique sur l'ensemble des temps accessibles à la mesure, comme le montrent les Figures (2-8) et (2-9). Néanmoins, il apparaîtra par la suite que la pente $\Delta M/\Delta \ln(t)$, prise par exemple sur la dernière décade est un paramètre pertinent pour comparer les vitesses de relaxation à plusieurs champs et températures.

L'aspect le plus étonnant des relaxations montrées dans les Figure(2-6) et (2-7) réside dans le fait que les états d'équilibre vers lesquels tend chacun des systèmes sont inversés l'un par rapport à l'autre, pour un même sens de déplacement du champ avant la relaxation.

III-2-2a Dépendance en champ magnétique de la vitesse de relaxation

LA Figure(2-10) montre les variations de la vitesse de relaxation avec le champ extérieur à température fixée. Deux extrema sont visibles. Ils permettent de différencier deux types de dynamique. L'une rend compte majoritairement de la relaxation d'une configuration magnétique d'une paroi de domaine à 360° comprimée sur un défaut ($H = -42$ Oe, vitesse de relaxation négative). L'autre rend compte majoritairement d'un processus d'annihilation de cette paroi ($H = -10$ Oe, vitesse de relaxation positive). La nature essentiellement différente de ces deux dynamiques est mis en évidence par le changement de sens de la relaxation (c'est-à-dire de l'état d'équilibre par rapport à l'état initial).



Figure(2-10):
vitesse de relaxation logarithmique en fonction du champ de relaxation appliqué. Nous avons adopté la convention de signe (+) pour le sens normal (relativement à la courbe anhystérétique) et (-) pour le sens anormal. Deux maxima peuvent être définis, dont les positions (H_0 et H_1) sur l'axe des champs ne dépendent apparemment pas de la température. Ces maxima définissent chacun une configuration dynamique majoritaire dans l'échantillon macroscopique (voir texte)

Notons que les deux configurations coexistent dans l'échantillon, quelque soit le champ, en raison de la dimension macroscopique le long de l'axe Oy . Cette difficulté peut être évacuée en supposant que chaque extremum de la Figure(2-10) caractérise, en moyenne, une configuration. Ceci est possible étant donné que la position de ces extrema sur l'axe des champs appliqués ne dépend pas de la température. Les champs H_0 et H_1 définissent suffisamment bien les configurations associées pour l'étude comparative de la dépendance thermique de la relaxation. Le maximum à $H_0 = -42$ Oe caractérise la relaxation de la configuration (b) de la figure (2-4), lorsque la paroi est comprimée sur le défaut central, alors que le champ $H_1 = -10$ Oe caractérise la configuration (c) de la Figure(2-4), durant l'annihilation de la paroi de 360° des spins de Co.

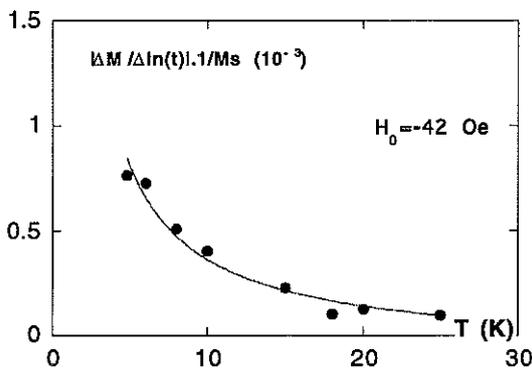
III-2-2a Dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique

La caractéristique la moins usuelle de ces mesures, réside dans le fait que la relaxation pour le champ appliqué H_0 est inversée par rapport à celle attendue pour la relaxation hors d'un état métastable. On observe ici une variation de l'aimantation, opposée à celle qui convergerait vers la courbe anhystérétique, comme observée habituellement dans les processus activés thermiquement.

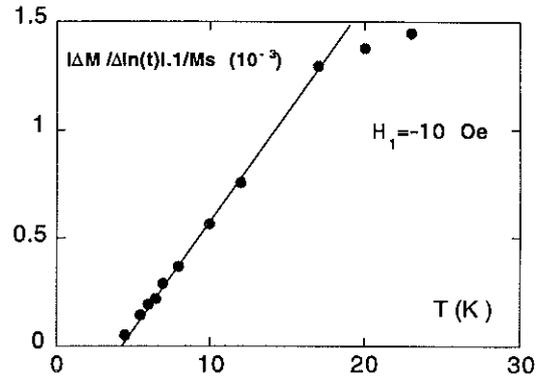
Cette relaxation anormale (champ appliqué H_0) coïncide, comme le montre la Figure(2-11), avec une dépendance thermique inusuelle, au sens des mesures présentées dans les paragraphes précédent. La variation thermique de la vitesse de relaxation de l'aimantation est une fonction décroissante de la température, c'est-à-dire aussi en contradiction avec les modèles d'activation thermique. Cette dépendance est tout à fait

Chapitre III

similaire à celle mesurées sur les échantillons nanolithographés présentés au chapitre précédent.

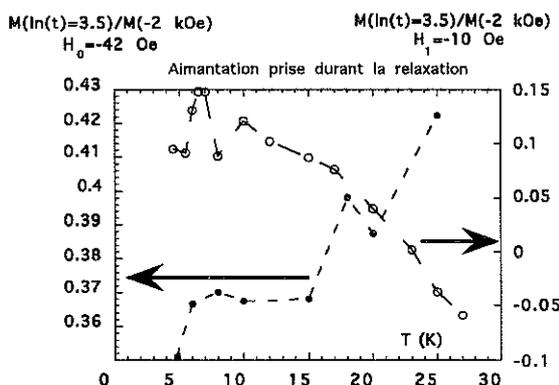


Figure(2-11): Valeur absolue de la vitesse de relaxation logarithmique au champ appliqué $H_0 = -42$ Oe. La courbe est une fonction du type $a + bT_0/T \cdot \text{Coth}(T_0/T)$, de même que dans le chapitre II.



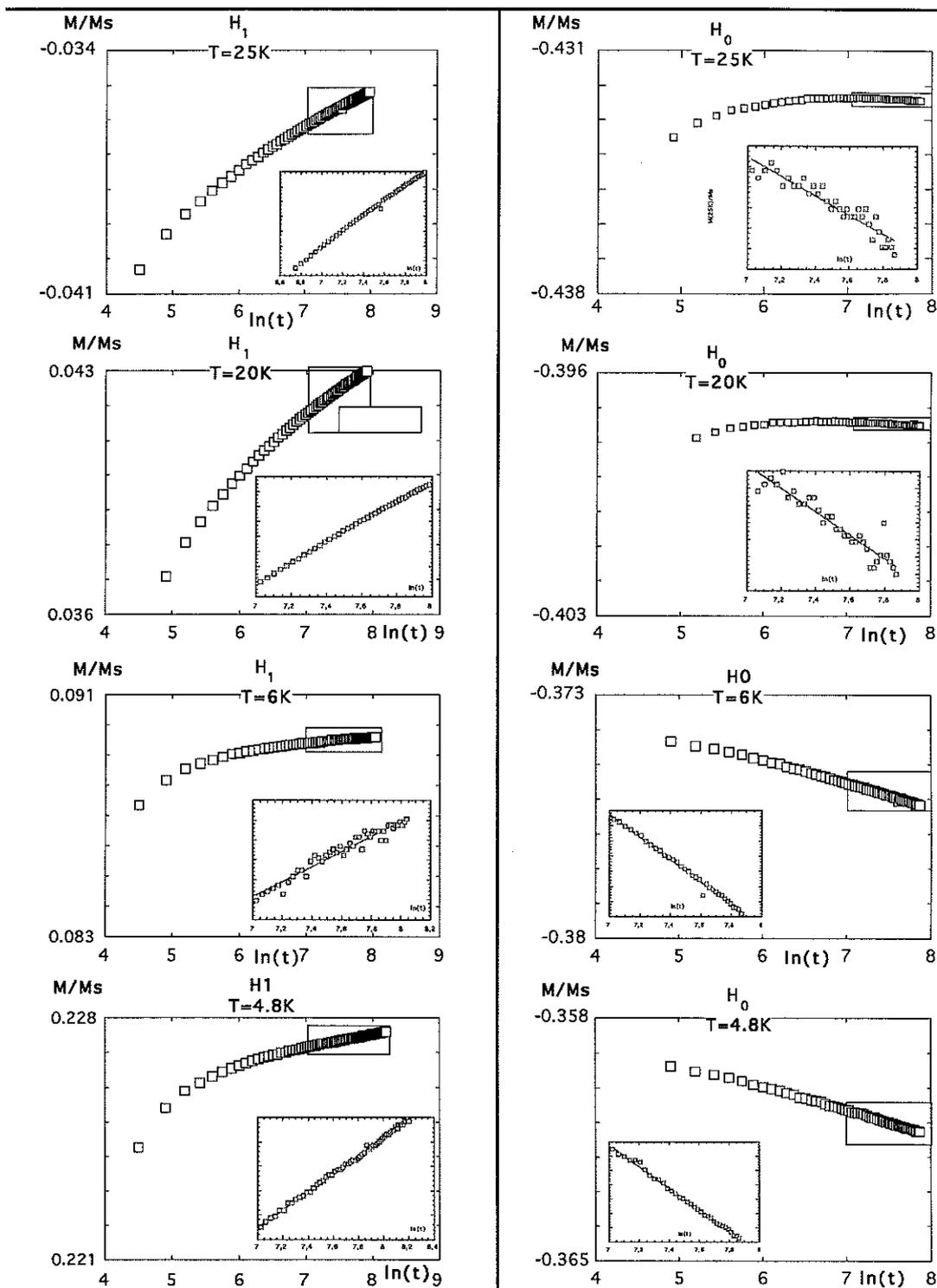
Figure(2-12): Valeur absolue de la vitesse de relaxation logarithmique au champ appliqué $H_0 = -10$ Oe. Les points s'alignent sur une droite à partir de 18 K.

En revanche, la relaxation pour le champ appliqué $H_1 = -10$ Oe est tout à fait conforme à une description en termes d'activation thermique. Le système relaxe vers sa position anhystérétique et la vitesse de relaxation est proportionnelle à la température [Street 1942]. Au delà de 18K, l'effet d'une distribution d'énergie (ou temps de relaxation) semble être visible. Les effets de l'action anormale de la température sur la dynamique sont confirmés Figure(2-14), sur la position de l'aimantation à un temps donné de la relaxation. Notons que ce dernier paramètre englobe tous les effets thermiques susceptibles d'avoir lieu dans l'ensemble de la couche dont l'aimantation est de l'ordre de 1000 fois l'aimantation mesurée dynamiquement. Il est donc peu fiable et ne donne, encore une fois, qu'une information comparative entre les deux champ H_0 et H_1 .



Figure(2-14): Variation de l'aimantation en fonction de la température prise durant la relaxation (environ une heure après avoir installé le champ) pour les deux champs de relaxation H_0 (échelle de gauche) et H_1 (échelle de droite). Ces variations concernent l'aimantation de toute la multicouche et sont donc le résultat de l'addition de plusieurs effets. Il apparaît néanmoins que la température a une action contraire pour chacun des champ H_1 et H_0 .

La Figure(2-13) compare l'effet de la température sur la relaxation au cours du temps, aux deux champs appliqués H_0 et H_1 . Le temps initial $\ln(t) = 0$ ne correspond que très approximativement au temps physique de l'installation du champ H_0 ou H_1 .



Figure(2-13): la relaxation est composée de deux mécanismes aux effets opposés. En temps long, pour chacun des champs H_0 , à droite, et H_1 à gauche, un des effets prédomine et permet de définir une vitesse de relaxation logarithmique, comme la pente sur la dernière décade mesurée. Nous supposons donc que pour ces temps

Chapitre III

longs, les effets sont bien découplés. Notons que le temps $\ln(t) = 0$, est le temps pris comme référence, et ne correspond que très approximativement au temps physique du renversement du champ extérieur de $-2kOe$ à H_0 ou H_1 .

III-2-2c résumé

Les processus de relaxation à $H=H_0$ et $H=H_1$ correspondent à deux mécanismes différents.

Dans le premier cas, une paroi de domaine à 360° , comprimée sur le défaut central par la décroissance du champ extérieur, cherche à regagner un état d'équilibre décomprimé lorsque le champ devient constant. Ce processus de relaxation n'est pas dirigé par un mécanisme d'activation simple au dessus d'une barrière d'anisotropie. Le sens de relaxation est en effet contraire à celui imposé habituellement par le sens de parcours du cycle d'hystérésis avant de fixer le champ de relaxation. En outre, la dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique exhibe une décroissante du type de celle observée sur les nanostructures magnétiques étudiées précédemment.

Le second processus de relaxation (à $H=H_1$) est plus usuel. Il correspond simplement à l'annihilation de portions de paroi de domaines à 360° . Il semble s'agir d'un processus d'activation thermique au dessus de la barrière d'énergie d'annihilation: le sens de relaxation et la dépendance thermique de la vitesse de relaxation, linéaire en température, sont en effet conforme aux prédictions des modèles classiques de traînage magnétique.

Un problème subsiste relatif au choix comme paramètre de la vitesse de relaxation logarithmique. Les profils de traînage ne sont pas exactement logarithmiques et les mesures sont limitées à une fenêtre de deux décades maximum. L'éventualité d'un artefact produit par la méconnaissance des profils réels des courbes de relaxation est toujours possible. Néanmoins, le deuxième processus de relaxation, réalisé sur le même échantillon, sur le même dispositif expérimental, dans une même série de mesures et avec le même protocole de traînage magnétique joue en quelque sorte un rôle de témoin.

Ces mesures posent deux questions qui n'ont pas été abordées dans le paragraphe. Que signifie une distribution, dans le cas du mouvement d'une paroi de domaines. Est ce une distribution d'énergie (modèle du type Street et Woolley) ou est ce une distribution de temps de relaxation? D'autre part, comment les deux mécanismes mis en évidence ci-dessus coexistent dans la relaxation de l'aimantation lorsque la dimension macroscopique $0y$ (Figure(2-1)) est prise en compte? Comment décrire l'action de l'élasticité de la paroi de domaines? Contrairement aux cas des monodomains ferromagnétique, il existe peu de modèle de la dynamique de relaxation des paroi de domaines. Les mesures présentées dans ce paragraphe suggèrent la

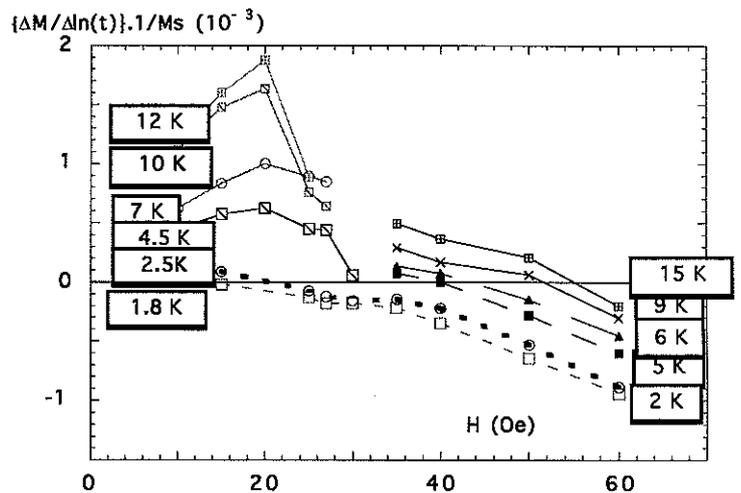
possibilité d'élaborer un modèle commun à la description des parois de domaines et des nanostructures ellipsoïdales ou cylindriques.

III-2-3 Complément d'étude

III-2-3a Complément d'étude sur le cycle symétrique

La même étude a été menée sur le cycle symétrique, c'est à dire lorsque l'état initial est imposé à +2kOe. Cette étude est prolongée aux températures inférieures à 4.2K. Le comportement en champ extérieur est donné Figure(2-14), et le comportement en température est donné Figure(2-15). Les structures précédemment étudiées sont confirmées. Nous avons conservé la même convention de signe de la vitesse de relaxation: positif lorsque le système relaxe vers la courbe anhystérétique, négatif dans l'autre cas.

Figure (2-14): dépendance en champ magnétique appliqué, de la vitesse de relaxation logarithmique. Une approximation de la distribution des énergies d'annihilation de la paroi 180°, peut être extraite au voisinage de 20 Oe. La partie correspondante au champ supérieur à 35 Oe est dominée par une relaxation non activée thermiquement. Le maximum dans cette configuration n'a pas été mesuré.

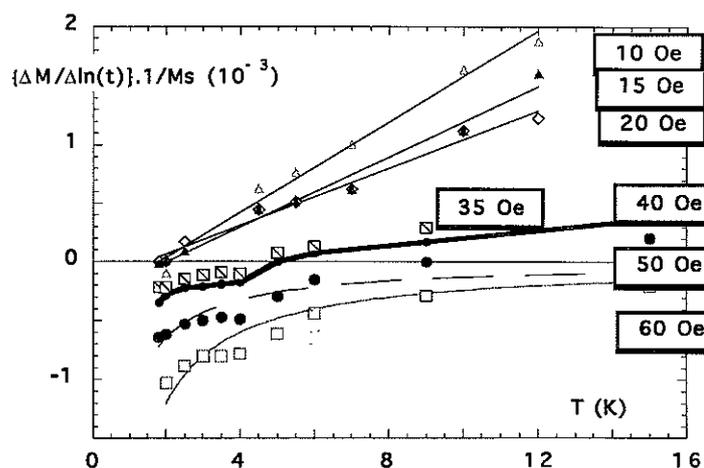


Les mesures présentées sont à prendre avec prudence. Le problème soulevé au chapitre précédent, et visualisé dans la comparaison des Figure(2-9) et (2-10) du chapitre II, se manifeste ici. L'histoire thermique imposée par le cryostat entre 4.2K et les températures inférieures, induit une erreur systématique sensible dans les courbes.

Il semble au vu de la Figure(1-14) que les deux processus induisant des effets contraires se superposent dans la relaxation. Prendre le paramètre défini par la pente de la relaxation logarithmique sur une décade, ne permet pas de différencier l'action de chacun des mécanismes. Cette démarche n'a de sens que lorsqu'un extremum en champ appliqué peut être défini. Ce maximum n'a pas été mesuré dans le cas de la relaxation en sens opposé à celui imposé par la courbe anhystérétique (vitesse de relaxation négative).

Chapitre III

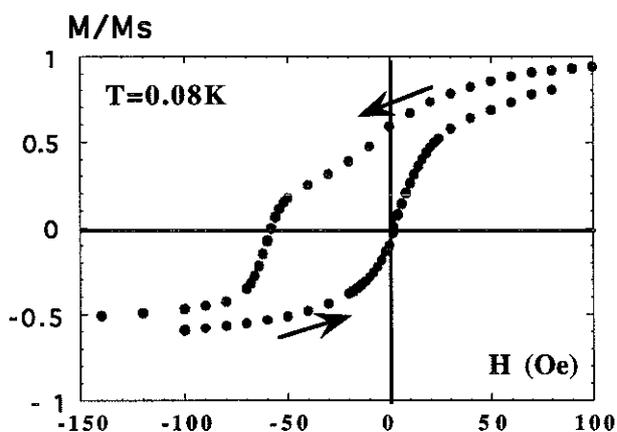
Figure(2-15): dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique. Ces données donnent une information qualitative sur la relaxation pour les différentes configurations existantes dans l'échantillon. Une erreur systématique a lieu au voisinage de la température de l'Helium liquide (voir le texte), qui déforme les courbes de façon sensible.



La Figure(2-15) montre que le profil de la dépendance thermique de la vitesse de relaxation dans le sens normal (relativement au sens de parcours du cycle d'hysteresis) est bien linéaire en température et les corrections sont assez faibles, y compris dans les zone où l'influence du second processus est déterminant (à basse température).

III-2-3b Complément d'étude à très basse température

Le même échantillon (i.e. produit lors de la même élaboration) a été mesuré initialement avec une bobine résistive dans un cryostat à dilution jusqu'à 70mK. Le cycle d'hysteresis correspondant aux mesures de relaxation, où le champ est confiné dans la fenêtre 2kOe à -2kOe est tracé Figure(2-16). Ces mesures ont été réalisées pour une configuration du système où l'échantillon est retourné par rapport au cas du cycle précédent tracé Figure(2-5). L'aimantation des couches SmCo₂ est orientée dans le sens opposé et les valeurs du champ ne permettent pas de saturer ces couches.

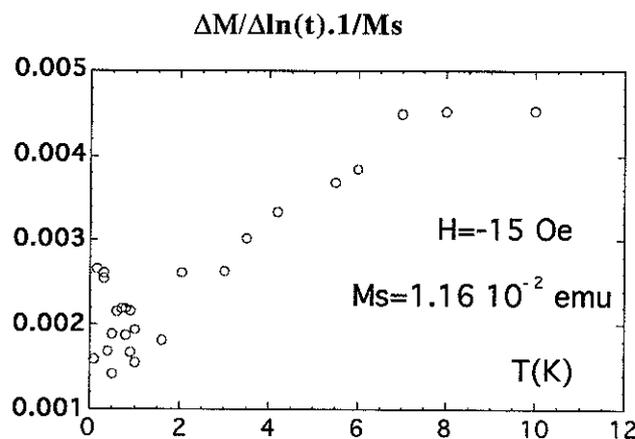


Figure(2-16)

Cycle d'hystérésis mesuré à 80mK avec une bobine résistive et un cryostat à dilution. Ce cycle est mesuré dans les mêmes conditions que l'hystérésis de la Figure(2-5), de 2kOe à -2kOe. Cependant, l'échantillon a été mesuré avec les couches de SmCo₂ orientées vers le bas, c'est-à-dire dans le sens contraire du champ extérieur positif.

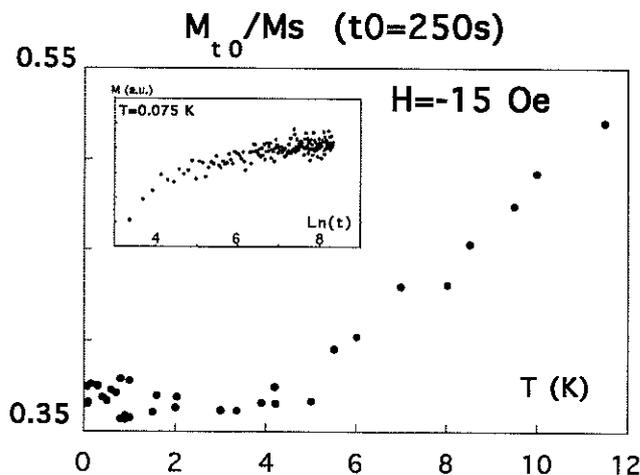
Chapitre III

La relaxation inversée par rapport au sens habituellement imposé par la courbe anhystérétique a été mesurée (et interprétée à l'époque comme un artefact de mesure). Ce qui confirme (rétroactivement) les mesures effectuées sur le magnétomètre à SQUID. Malheureusement la sensibilité de la bobine n'était pas suffisante pour détecter de façon sûre les variations thermiques de la vitesse de relaxation à basse température exposées au paragraphe précédent. Ces mesures de vitesse de relaxation logarithmique sont tracées Figure(2-17) pour le champ de relaxation $H=-15$ kOe. Il semble que le comportement linéaire à haute température soit confirmé, mais cette dépendance n'est pas observée à basse température. Les variations thermiques de l'aimantation, où l'aimantation est prise durant la relaxation lors des expériences de traînage magnétique suggèrent aussi un changement de comportement au voisinage de 5K. Ces résultats sont exposés Figure(2-18), pour un champ de relaxation de $H=-15$ Oe qui semble correspondre à un champ H_1 d'annihilation de paroi. En encart, les points mesurés lors de la relaxation sont présentés. Les effets cumulés de la dispersion des points et de la courbure de la pente n'autorisent pas une mesure suffisamment précise de la vitesse de relaxation logarithmique.



Figure(2-17):

Mesures de la vitesse logarithmique de relaxation en fonction de la température. Les points à basse température sont en dessous de la sensibilité de la mesure. Il semble en outre, que les états à basse température soient particulièrement instables et peu reproductibles. L'incertitude sur ces points est de l'ordre de $1 \cdot 10^{-3}$.

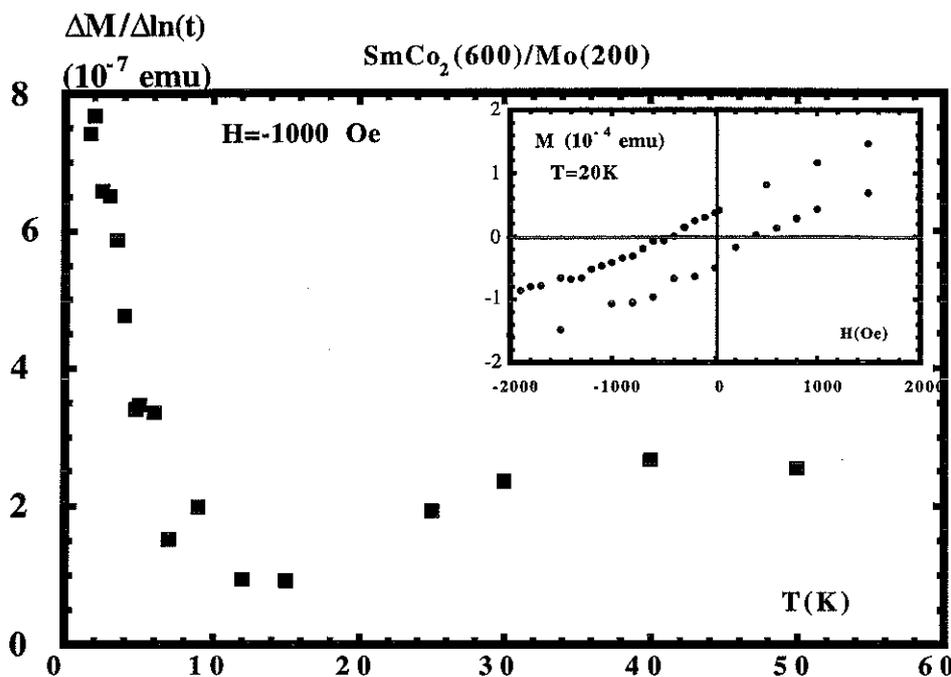


Figure(2-18)

La figure(b) montre les variations thermiques de l'aimantation prises au cours de la relaxation. Elle met en évidence une transition dans le comportement dynamique au voisinage de 5K. En encart, les points mesurés lors de relaxations. La dispersion ne permet pas une mesure suffisamment précise, de la vitesse de relaxation logarithmique avec le dispositif utilisé.

Autre multicouche: SmCo₂/Mo

Nous avons commencé une étude similaire sur une multicouche de SmCo₂ de 60 nm séparé par du Molybdène (Mo). l'interface SmCo₂/Mo est répétée 5 fois. La vitesse de relaxation logarithmique a été mesurée. Le sens de relaxation est conforme au sens de parcour du cycle d'hysteresis. La dépendance thermique est montrée Figure(2-19).



Figure(2-19): Etude similaire que l'étude précédente sur une multicouche mince SmCo₂/Mo. Le cycle d'hystérésis est donné en encart: la couche SmCo₂ n'a pas été saturé. Un comportement décroissant de la vitesse de relaxation est observé.

La structure de l'échantillon est complexe et mal connue. Il semble que le Molybdène ait diffusé dans les couches de SmCo₂, créant des défauts à géométrie complexe. Les mesures ont été répétées sur un échantillon multicouche de SmCo₂/Ag de la même facture mais où l'Argent n'a pas diffusé. Ce dernier échantillon fait état d'une dépendance thermique classique, c'est-à-dire proportionnelle à la température.

Cette étude, bien que non complète, semble mettre en évidence la relation étroite qu'il existe entre le comportement thermique décroissant de la Figure(2-18) et la nature désordonnée des échantillons.

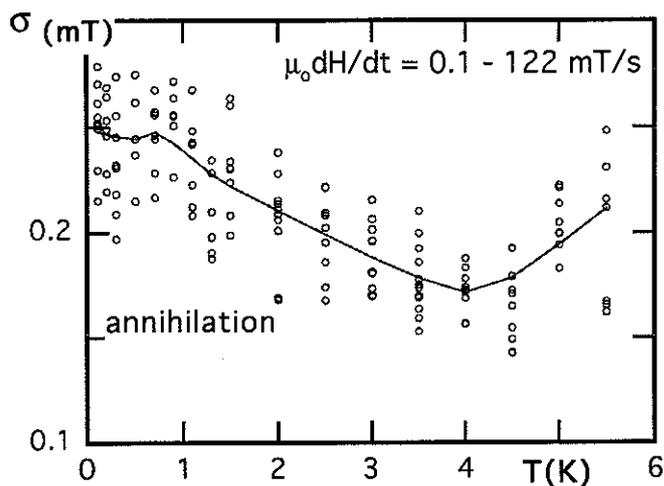
Conclusion

L'émergence du même comportement thermique, dans un second type de matériau nanostructuré (les nanofils de Ni), permet de s'assurer que le phénomène

observé sur les nanostructures lithographées a un statut relativement universel. C'est-à-dire qu'il n'est pas produit par quelques structures pathologiques des échantillons lithographés. Ce phénomène dynamique semble plutôt être une conséquence d'une manifestation particulière des fluctuations de l'aimantation aux échelles de mesures nanoscopiques. Les caractéristiques relatives à l'aspect stochastique du phénomène sont reproduites dans le cas du Ni en nanofils. On peut rappeler: (1) fluctuations des champs de retournement et distribution des moyennes de ces champs à l'échelle macroscopique. (2) Fluctuation du temps de relaxation et dépendance caractéristique en fonction du champ magnétique appliqué et de la température de la moyenne du temps de relaxation . (3) Dépendance de la vitesse de relaxation en fonction du champ magnétique appliqué.

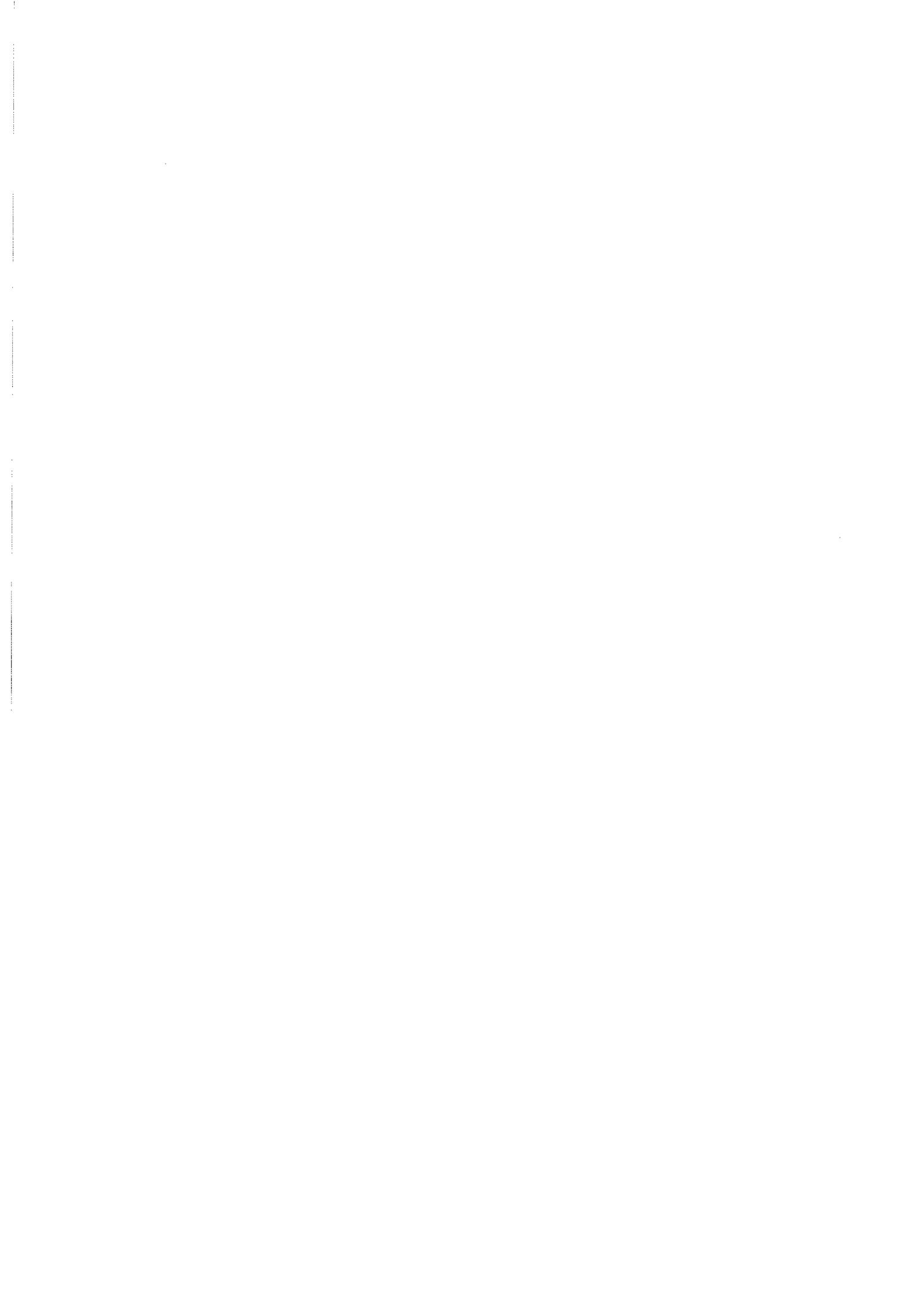
Plus étonnant en revanche est l'observation du même phénomène sur une structure multicouche complexe tel que la double interface du GdCo_2 avec un piège central de SmCo_2 . En quoi cet échantillon est-il similaire aux nanostructures observées précédemment? Les densités d'aimantation en jeu sont les mêmes: il s'agit du retournement d'environ 10^{17} spin en une heure. D'autre part, le caractère "anormal" de cette relaxation (c'est-à-dire non conforme aux mesures de traînage magnétique reportée dans la littérature à ce jour) est attesté par le changement de sens de la relaxation. Ce changement de sens met en évidence le rôle prépondérant d'un champ moyen local (de type "antiferromagnétique") dont l'action est contraire aux mécanismes coercitifs responsable de l'hysteresis à l'échelle de l'échantillon complet. Cet indice confirme la distance qui existe dans les processus mesurés, entre les mesures dynamiques de traînage magnétique et les mesures "quasi-statiques" de l'hysteresis sur l'échantillon macroscopique.

Les fluctuations du champ de retournement ont été mesurées à l'échelle nanoscopique sur une couche déposée sur micro-SQUID [Wernsdorfer 1996thèse], pour un multicouche en "jonction de paroi de domaines" $\text{GdCo}_2/\text{Fe}/\text{GdCo}_2$. Le saut d'aimantation concerne un mécanisme très similaire à celui étudié précédemment, d'anihilation de la paroi piégée sur un défaut central [Mangin 1996thèse]: une décroissance des fluctuations d'un facteur 2 entre 1K et 4K est bien visible. Une telle décroissance n'est pas visible pour la création de la paroi.

**Figure(2-20):**

la distribution des champs de d'annihilation de paroi a été mesurée sur micro-SQUID sur une "jonction de paroi de domaines" GdCo₂/Fe/GdCo₂. La largeur à mi hauteur, i.e. les fluctuations, sont représentées en fonction de la température. Les différents points à même température correspondent à différentes vitesses de balayage du champ pour le parcours de l'hysteresis.

Il semble, au terme de ce troisième chapitre et à la suite de la thèse [Wernsdorfer 1996], que l'on puisse avancer l'idée que l'augmentation des fluctuations à basse température soit une caractéristique assez générale propre aux systèmes nanoscopiques suffisamment désordonnés. D'autres processus dissipatifs, intervenant par la suite dans les mécanismes coercitifs aux différentes échelles macroscopiques, masquent habituellement ces fluctuations lors des mesures dynamiques sur les échantillons macroscopiques usuels.



CHAPITRE IV**Discussion des résultats expérimentaux:**

Introduction.....	151
IV-1 Effets quantiques.....	153
IV-1-1 Effet tunnel dissipatif	153
IV-1-2 Mouvement Brownien quantique	155
Discussion	156
IV-2 Diffusion d'un macrospin dans un milieu visqueux.....	157
IV-2-1 Réponse à un pas de champ en champ statique nul	158
IV-2-2 Réponse à un pas de champ en champ statique non nul	161
Résumé	163
IV-3 Synthèse: une approche en termes de réponse linéaire	164
(1) les lois empiriques	165
(2) Susceptibilité alternative.....	165
(3) formule de Kubo-Mori.....	166
Résumé.....	169

CHAPITRE QUATRE

Discussion des résultats expérimentaux:

Introduction

Les mesures de vitesse de relaxation logarithmique antérieures à l'étude présentée dans ce mémoire, ont montré un écart à la loi linéaire en température du type du plateau observé à basse température, visible par exemple sur la Figure (1b) ci-dessous. Cet écart a été interprété fréquemment dans le cadre de l'hypothèse de l'effet tunnel quantique de l'aimantation. Ce problème est à l'origine du présent travail sur la relaxation des nanostructures.

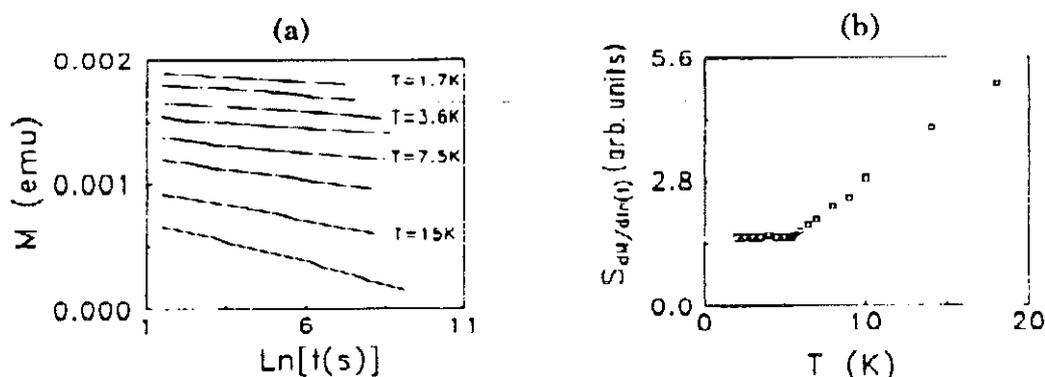


Figure (1) la courbe de droite représente un profil typique de singularités mesurées à basse température de la vitesse de relaxation logarithmique lors d'expériences de traînage magnétique. La vitesse de relaxation logarithmique $S = dM/d\ln(t)$ est définie par la pente des courbes de relaxation en fonction du logarithme du temps représenté sur le graphique de gauche. Ces graphiques sont tirés de la référence [Tejada 1993].

Des comportements tels que ceux mesurés Figure (1) ont été observés à plusieurs reprises, par exemple dans des multicouches minces amorphes ou fortement désordonnées [Barbara 1993], [Tejada 1993], [Arnaud 1993], [Sancho 1993].

Dans le cas des nanostructures présentées dans ce mémoire, l'écart au modèle de Street et Woolley est encore plus prononcé (voir les Figures (2-17) et (3-27) du chapitre II et (1-14) et (2-11) du chapitre III). L'étude réalisée sur les systèmes à l'échelle nanoscopique [Wernsdorfer 1996] suggère un mécanisme propre à la dynamique statistique à basse température et à petite échelle. Ces résultats orientent l'investigation vers l'exploration d'hypothèses stochastiques sur les systèmes magnétiques à petite échelle, et ne peuvent pas a priori, se réduire uniquement à l'hypothèse de l'effet tunnel quantique de l'aimantation.

- Un première idée était d'étudier la validité de l'hypothèse suivante: le processus responsable du profil thermique inusuel (figure(1) ci-dessus et résultats présentés dans ce mémoire), serait dû non pas aux fluctuations quantiques de l'objet lui même (l'aimantation en tant qu'observable quantique), mais de la nature quantique à basse température des fluctuations de l'environnement (c'est-à-dire les fluctuations dites "du point zéro", du champ électromagnétique par exemple [Gardiner 1991]). Ce problème est discuté du point de vue bibliographique dans la partie (IV-1) de ce chapitre. Cette idée est reprise dans la partie (IV-3) .

- Nous avons voulu développer une deuxième hypothèse pour rendre compte des résultats expérimentaux. Le processus de saut de barrière, à l'origine de la dynamique, est supposé jouer un rôle moins important que le processus de diffusion simple. En d'autre terme, nous supposons que dans les régimes concernés par nos mesures, le macrospin relaxe dans un environnement visqueux. Le retard de la relaxation par rapport au créneau de champ initial est alors dû uniquement au coefficient de friction très élevé (dépendant du champ de relaxation).

Dans cette approche, le coefficient de friction englobe la complexité des mécanisme d'interaction du macrospin avec son environnement (et particulièrement la surface des nanoparticules) lorsque ces mécanismes ne peuvent pas être réduits à un simple phénomène d'activation thermique. Il s'agit donc d'une approche de type hydrodynamique, permettant par exemple de prendre en compte grossièrement des mécanismes d'auto-organisations ou d'avalanches.

La linéarité des équations permet alors d'utiliser la théorie de Mori des opérateurs de projection et de modéliser le couplage du système avec son environnement. L'étude du bruit quantique, sur la base des travaux réalisés sur des systèmes magnétiques est poursuivie en annexe. Cette étude permet de faire le lien avec les processus dissipatifs qui ont lieu dans les expériences de relaxation rapide des systèmes de spins, par exemple en résonance ferromagnétique ou nucléaire.

La signification de l'hypothèse de la réponse linéaire pour la relaxation des monodomains ferromagnétiques est discutée sur la base des travaux de Coffey et al. (**partie IV-2** de ce chapitre). Ces travaux sont une continuation de l'étude de Brown sur l'équation stochastique d'un macrospin, dans le cas où la barrière de potentiel est petite. Ces résultats sont récents et concernent un problème complexe.

Un modèle simple et formel du traînage magnétique décrit à partir de l'hypothèse de la réponse linéaire est exposé en dernière partie de ce chapitre (**IV-3**). Il ne concerne que la réponse de l'aimantation (et non pas les temps de relaxation ou les fluctuations hors équilibre). Ce modèle permet de faire un lien entre les mesures de susceptibilité alternative et les mesures de traînage magnétique.

IV-1 Effets quantiques

Lorsque la température devient suffisamment basse, c'est-à-dire lorsque kT devient de l'ordre de la différence d'énergie entre deux états quantiques du système, le taux de passage de la barrière est affecté par l'effet additionnel des transitions provoquées par les fluctuations d'origines quantiques, illustré typiquement par l'effet tunnel du système "sous" la barrière. Ce problème appliqué au cas des systèmes magnétiques a donné lieu à une abondante littérature sous l'appellation "d'effet tunnel quantique de l'aimantation" [Nato 1994],[Stamp 1992]. Il peut être abordé de deux façons différentes qui trahissent deux visions antagonistes dans la façon d'aborder le problème.

IV-1-1 Effet tunnel dissipatif

Lorsque la nature quantique du système est posée en hypothèse de départ, le problème consiste à étudier l'effet de la dissipation sur la dynamique de l'objet qui transite de part et d'autre de la barrière de potentiel. L'objet est alors couplé à un bain thermique et ce couplage modifie les fonctions d'ondes qui décrivent le système à température nulle. Le formalisme propre à l'étude de ce problème est le formalisme des intégrales de chemins [Feynmann 1962],[Langer 1967]. La technique des intégrales de chemins appliquée à l'effet tunnel dissipatif, initiée par Caldeira et Leggett [Caldeira1987], permet de traiter séparément les effets strictement relatifs à la dynamique quantique (les degrés de liberté qui tunnèlent) des effets relatifs aux fluctuations thermiques de l'environnement. La dynamique du système et de l'environnement est prise en compte par un terme provenant de

l'exponentielle de l'action Éuclidienne $S^E[q, x_n]$ (où q est une coordonnée du système et x_n les coordonnées de l'environnement) [Hibbs 1965], qui correspond à l'intégration du Lagrangien sur le temps imaginaire $t = \frac{i}{kT} \hbar$, c'est-à-dire sur les différentes réalisations possibles des chemins produits par les fluctuations thermiques autour du chemin déterministe. Par ailleurs les fluctuations d'origine quantiques sont exprimées par l'opérateur d'évolution (le propagateur), qui s'écrit de la même façon dans le formalisme des intégrales de chemins que les fluctuations thermiques, à ceci près que l'action est une action usuelle qui est l'intégration du Lagrangien sur le temps réel, c'est-à-dire sur les différentes réalisations possibles des chemins quantiques (produites par les fluctuations autour du chemin classique du fait de l'indéterminisme quantique). Ces derniers types de fluctuations sont susceptibles de définir des trajectoires sous une barrière de potentiel (le temps est alors de nouveau imaginaire). La théorie montre que l'on peut mettre en évidence une température de transition au dessous de laquelle les chemins les plus probables sont les chemins "sous" la barrière et au dessus de laquelle les chemins les plus probables sont "au dessus" de la barrière. Les corrections quantiques au temps de premier passage conduisent à un écart caractéristique à la loi classique d'Arrhenius. Cet écart est montré dans le graphe d'Arrhenius de la Figure (2), tiré de la référence [Grabert 1985].

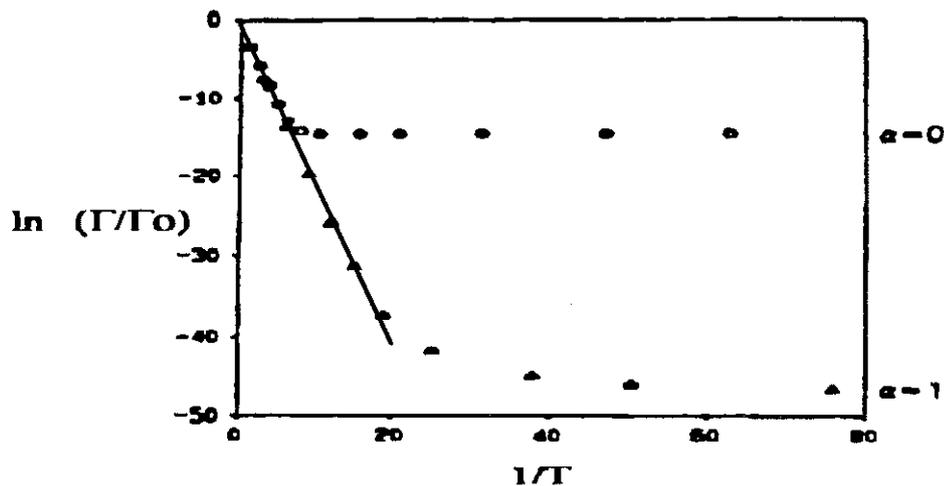


Figure (2): forme caractéristique, dans la représentation en graphe d'Arrhenius, du logarithme du taux de décroissance (où du temps de relaxation au signe près) en fonction de l'inverse de la température, avec la corrections quantiques de l'effet tunnel. Le trait indique la zone de validité du régime classique. La correction quantique pour $\alpha=0$ correspond à une dissipation nulle et la deuxième correction quantique correspond à une dissipation $\alpha=1$ non nulle.

Le problème de la dissipation dans les théories de tunnel quantique est encore ouvert. Une difficulté non résolue concerne le problème des conditions initiales, qui est un problème étroitement relié aux conditions expérimentales. Les résultats peuvent être contradictoires suivant le choix des hypothèses sur les conditions initiales. Lorsque celles-ci sont stationnaires, la théorie prédit que l'effet de la dissipation détruit la transition par effet tunnel [A. Schmid, 1986], [Caldeira 1983]. Dans le cas contraire et suivant l'Hamiltonien choisi, la dissipation peut au contraire accroître la probabilité tunnel (voir la synthèse et les références dans [Harris 1993]). Dans le cas de l'effet tunnel thermiquement activé, un grand nombre de comportements thermiques du taux de transition Γ peut être attendu [Grabert 1985c] [Golding 1992].

Il nous semble cependant que l'hypothèse de l'effet tunnel quantique n'est que peut compatible avec le caractère désordonné du phénomène étudié.

IV-1-2 Mouvement Brownien quantique

D'un autre côté, le problème peut être abordé en tant que mouvement Brownien quantique dans un gradient de force (non linéaire dans le cas des barrières de potentiels) et consiste alors à résoudre l'équation stochastique quantique du système [Gardiner 1991]. Le taux de décroissance par effet tunnel peut aussi être déduit dans certains cas simples [Harris 1993],[Parkins 1991],[Ford 1988].

Cette méthode consiste à résoudre le problème d'effet tunnel en tant que cas particulier de résolution de "l'équation de Langevin généralisée" [Ford 1991][Ford 1988]. Dans cette vision des choses, la dynamique est produite par les fluctuations, indépendamment de leur origine. Ces fluctuations peuvent être dues à l'étalement de la fonction d'onde de l'objet mesuré, aussi bien qu'à l'action de chacun des degrés de liberté du bain thermique, y compris les fluctuations du vide. L'existence d'une relaxation à température nulle, lorsque le système déterministe (non fluctuant) est statique, témoigne alors avant tout de l'existence d'un bruit non nul en $T=0$ (c'est-à-dire d'une diffusion à $T=0$). Un tel bruit peut par exemple s'exprimer par une correction quantique du théorème d'équipartition (bruit Nyquist ou bruit bleu) $D(T) \propto \coth(T_0/T)$. (voir l'annexe) qui traduit les effets de fluctuations quantiques de l'environnement sans pour autant manifester un effet tunnel des degrés de liberté du système mesuré. Ce type de bruit et sa compatibilité avec la loi d'Arrhenius est étudié par exemple dans [Eckern 1990]. Un calcul détaillé du coefficient γ , de décroissance par passage de la barrière sans effet tunnel mais avec le bruit $D(T)$ du

théorème d'équipartition quantique, a été effectué numériquement dans cette référence (le résultat est montré Figure(3) suivante).

Le graphe d'Arrhenius ($\ln(\gamma)$ vs. $1/T$) calculé sans effet tunnel avec correction quantique du bruit, présenté Figure(3) tiré de la référence [Eckern 1990], est semblable au graphe d'Arrhenius de décroissance par effet tunnel présenté Figure(2) et tiré de la référence [Grabert 1985(a)].

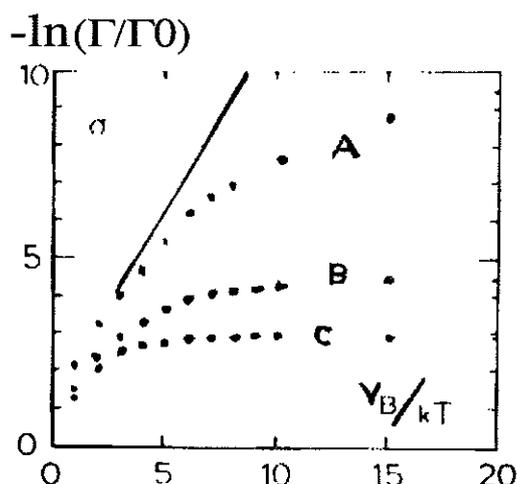


Figure (3): dépendance en température du logarithme du taux de décroissance déduit de l'équation de Langevin quantique de la référence [Eckern 1990] (sans effet tunnel). Le bruit utilisé est le bruit quantique du type bruit Nyquist. Le trait indique le résultat avec un bruit blanc classique (loi d'activation de Kramers). Les points A, B, C représentent des points de dissipation décroissante. On note que ces résultats sont similaires à ceux de la Figure (2).

Ce résultat nous paraît très important dans l'étude de la mise en évidence de l'effet tunnel quantique de l'aimantation par mesure de traînage magnétique. L'écart à la loi d'Arrhenius constaté expérimentalement peut être interprété comme une correction quantique du bruit agissant sur le système et non nécessairement comme un indice de l'effet tunnel.

Discussion

Les deux approches (1) et (2) devraient être équivalentes. Ce problème est à l'origine de nombreux développements relatifs au statut de la dissipation en mécanique quantique ([Zurek 1991], [Zurek 1995] et références citées), et aux équivalences entre la description en intégrales de chemin et la description en équations stochastiques (par exemple [Jaekel 1989], 537, [Tanimura1989] et [Eckern 1990]. D'un point de vue pratique, on trouvera par exemple les redémonstrations par Grabert et al.[Grabert 1985] par la technique des intégrales de chemins, des résultats connus de la résolution des équations de Langevin quantiques linéaires [Dekker 1981][Grabert 1984][Harris 1990]. Le problème du passage de barrières (c'est-à-dire la résolution du problème dans le cas d'un potentiel non

Chapitre IV

harmonique) ne fait pas partie des modèles solubles exactement et aucune généralité ne peut être déduite.

Notons que les graphiques reproduits Figure(2) et Figure(3), concernent une particule de masse bien définie et dont la quantité de mouvement p et la position q sont reliées par une relation canonique. Ces simplifications ne sont pas vérifiées en général dans le cas des systèmes magnétiques. Ce problème est discuté en annexe, partie 2.

La Figure (2) et la Figure (3) sont à comparer aux représentations d'Arrhenius des résultats expérimentaux exposés Figure(3-24) du chapitre II et Figure(1-12) du chapitre III du paramètre à "champ fixe" $\ln[\tau(H_0)]$.

En conclusion, quelle que soit l'interprétation (a) ou (b) adoptée, la généralisation des problèmes d'activation au domaine quantique semble conduire à une saturation à basse température du temps de relaxation. Ces travaux invitent donc à une interprétation des mesures exhibant une saturation à basse température en termes de corrections quantiques (pour le paramètre à champ statique).

IV-2 Diffusion d'un macrospin dans un milieu visqueux.

Les mesures du logarithme du temps de retournement pour le Co (Chapitre II-3) et pour le Ni (chapitre III-1) conduisent à la relation empirique:

$$\ln(\tau(H, T)) = \ln[\tau(H_0)] + \frac{\Delta \ln(\tau)}{\Delta H} \cdot (H - H_0)$$

Où H_0 est un champ de référence qui caractérise l'ordre de grandeur du temps de mesure. Ce champ peut être pris égale aux champ de retournement $\langle H_{sw}^0 \rangle$ à température nulle. Ce champ est extrapolé par ailleurs. Le temps τ_0 est alors le temps de diffusion sans barrière de potentiel.

Dans les modèles d'activation des grains ferromagnétiques, la barrière de potentiel est donnée par le terme d'anisotropie et par le terme de champ extérieur: $E(H)$ est donné par exemple Figure(4) du chapitre I, on devrait avoir:

$$\ln(\tau(H, T)) = \ln[\tau_0] + \frac{E(H)}{kT}$$

le terme τ_0 correspond habituellement au temps d'attente de précession de spin (de l'ordre de 10^{-9} s).

La hauteur de barrière $E(H)/kT$ dépend donc du champ extérieur et correspondrait au deuxième terme $\Delta \ln(\tau)/\Delta H$. ($H-H_0$). La pente $\Delta \ln(\tau)/\Delta H$ diminue à basse température et sature au voisinage de 1 Oe^{-1} pour le Co et au voisinage de 10 Oe^{-1} pour le Ni. Si on veut définir une température effective à partir de ces grandeurs, et que l'on suppose que le moment impliqué dans le retournement est de l'ordre de l'aimantation m d'une particule, on a $\Delta \ln(\tau)/\Delta H \equiv m / kT_{\text{eff}}$ et $T_{\text{eff}} \approx 10^{18} \text{ K}$ pour les particules de Co. Une telle température interdit toute dynamique au voisinage du Kelvin. Lorsque H tend vers $\langle H_{\text{sw}}^0 \rangle$, la barrière de potentiel tend vers zéro et le retournement de l'aimantation redevient possible à la température du bain thermique.

Le temps de diffusion τ^0 est a priori quelconque. Ce temps n'est pas dépendant d'une barrière de potentiel mesurée et il n'apparaissant pas dans la vitesse de relaxation. On a:

$$\tau^0 = 1 / \gamma_0$$

où γ est un coefficient de frottement visqueux.

On se place alors dans une situation où la barrière de potentiel dépendante du champ est petite mais où les temps de relaxation restent très longs.

Le macrospin et son environnement peuvent être modélisés par une sphère en rotation dans un fluide visqueux. Ce modèle a été appliqué au cas des diélectriques (modèle de Debye). C'est une version d'un tel modèle qui est présenté au paragraphe suivant.

IV-2-1 Réponse à un pas de champ en champ statique nul

Reprenant les travaux de Brown à partir de l'équation de Fokker-Planck d'un monodomaine ferromagnétique (partie 1 du chapitre I) W. T. Coffey et al. sont arrivés à une formule exacte en utilisant la définition de la théorie de la réponse linéaire pour le temps de relaxation. Dans ce contexte, le temps de relaxation est défini comme l'aire sous la courbe de la fonction d'autocorrelation de l'aimantation [Coffey 1993], [San Miguel 1987].

Chapitre IV

La méthode de Coffey et al. présentée dans ce paragraphe a été utilisée par Garanin et al. [Garanin 1990] pour le même problème, mais étudiée dans le cadre de la résonance ferromagnétique. Elle a été utilisée de même dans les domaines de la relaxation des diélectriques et des cristaux liquides [Moro 1985]. Elle consiste à développer $W(\theta, t)$ en séries de polynômes de Legendre $P_l(\cos(\theta))$ de degrés l . On définit alors les fonctions f_l par les moyennes statistiques $\langle \rangle$,

$$f_l = \langle P_l(\cos(\theta)) \rangle - \langle P_l(\cos(\theta)) \rangle_0 \quad (2-1)$$

où l'indice $\langle \rangle_0$ indique la moyenne sur l'ensemble statistique à l'équilibre. En supposant qu'une petite variation de champ ΔH (tel que $m\Delta H/kT \ll 1$), appliqué le long de l'axe Oz depuis un temps suffisamment long, a lieu à l'instant $t=0$, l'aimantation de l'ensemble des macrospins identiques s'écrit :

$$M_z(t) = mN \langle \cos \theta(t) \rangle = mN f_1(t) \quad (2-2)$$

où N est le nombre des macrospins par unité de volume et $Nm = vMs$.

La relaxation de l'aimantation longitudinale se décompose en différent modes de relaxation λ_k [Coffey 1994]

$$\boxed{M_z(t) = mN f_1(t) = m^2 N \frac{\Delta H}{kT} \sum_k A_k e^{-\lambda_{k+1} t / \tau_n}} \quad (2-3)$$

La fonction de corrélation normalisée est

$$\boxed{C_1(t) = \frac{f_1(t)}{f_1(0)} = \frac{\langle \cos \theta(0) \cdot \cos(\theta(t)) \rangle_0}{\langle \cos^2 \theta(0) \rangle_0}} \quad (2-4)$$

où $f_1(0)$ s'exprime en fonction de Kummer $M(a, b, Z)$ (fonction hypergéométrique de confluence):

$$f_1(0) = \frac{\Delta H}{3kT} \frac{M(3/2, 5/2, vK/kT)}{M(1/2, 3/2, vK/kT)} \quad (2-5)$$

Le profil thermique de $f_1(0)$ est tracé Figure(2-8) en conclusion de la partie II-2.

Avec les notations introduites, l'équation de la réponse linéaire s'écrit

$$m_z(t) = mN f_1(0) \cdot C_1(t) \quad (2-6)$$

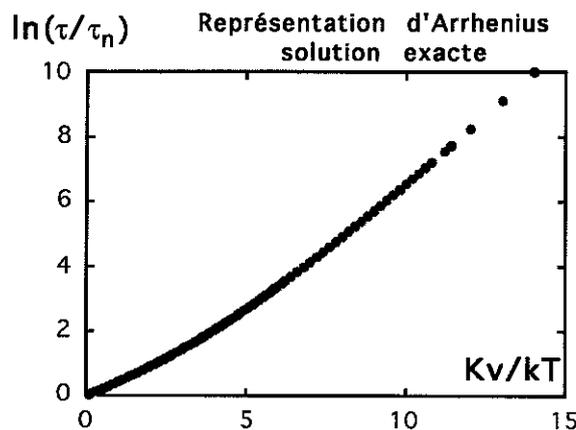
Le temps de relaxation est défini par

$$\tau = \int_0^{\infty} \frac{\langle \cos \theta(0) \cdot \cos(\theta(t)) \rangle_0}{\langle \cos^2 \theta(0) \rangle} dt \quad (2-7)$$

L'équation (1-17) se développe aussi en modes de relaxation:

$$\tau = \frac{\sum_k A_{2k+1} \lambda_{2k+1}^{-1}}{\sum_k A_{2k+1}} \quad (2-8)$$

Ce temps de relaxation ainsi que la susceptibilité alternative sont données analytiquement et tabulés dans la référence [Coffey 1994] pour le potentiel d'anisotropie $K \sin^2 \theta$. Les valeurs numériques en fonction du rapport Kv/kT sont reconstruites en représentation d'Arrhenius Figure(2-4) ci-dessous.



Figure(2-4): représentation d'Arrhenius du temps de relaxation longitudinal d'une assemblée de monodomains ferromagnétiques identiques, de volume v , à anisotropie uniaxiale $K \sin^2 \theta$. Ce graphe est construit à partir de l'équation n°(40) et tableau III de la référence [Coffey 1994a]). Ce graphe complète la Figure(1-2) du chapitre I pour les petites valeurs de la barrière de potentiel.

Le comportement pour les hautes barrières de potentiel et/ou basse température, calculé par Brown est reproduit. Les singularités constatées pour les basses barrières de potentiel et/ou hautes températures sont corrigées.

Cette méthode utilise la théorie de la réponse linéaire et impose donc des variations de champ initial suffisamment petites. Néanmoins, ce traitement semble recouvrir la résolution adoptée par Brown (et Aharoni [Aharoni 1964]) qui n'utilise pas cette hypothèse. Le préfacteur $\frac{Nm^2}{kT} \Delta H = \frac{Nv^2 M_s^2}{kT} \Delta H$ n'apparaît donc pas dans les travaux de Brown. Le développement au 1^{er} ordre en la variable $m \cdot \Delta H/kT$ dans les expressions des moyennes statistiques et fluctuations, et conduisant à l'adoption de l'hypothèse de la réponse linéaire, est étudié dans Coffey [Coffey 1993] (section IV p324).

Chapitre IV

La susceptibilité alternative $\chi(\omega) = \chi'(\omega) - i\chi''(\omega)$ se déduit directement par l'application de la théorie de la réponse linéaire:

$$\frac{\chi''(\omega)}{\chi'(0)} = 1 - i\omega \int_0^{\infty} e^{-i\omega t} C_1(t) dt \quad (2-9)$$

avec

$$\chi'(0)\Delta H = mNf_1(0) \quad (2-10)$$

Le temps de relaxation est directement relié à la fonction d'autocorrélation et à la susceptibilité alternative dans l'approximation de la réponse linéaire.

IV-2-2 Réponse à un pas de champ en champ statique non nul

La présence d'un champ extérieur statique modifie le profil du potentiel (ce sont les potentiels illustrés Figure(1-3) du chapitre I). La dynamique du système s'éloigne du problème de la dynamique d'un système à deux niveaux définis par les deux minima de potentiel. La probabilité de trouver le macrospin entre les deux minima de potentiel augmente et ne peut plus être négligée.

Nous nous plaçons dans les mêmes conditions que précédemment avec, en outre, l'application d'un champ magnétique constant H le long de l'axe d'anisotropie. Le potentiel utilisé s'écrit :

$$\frac{vU(\theta)}{kT} = \sigma \sin^2 \theta - \xi \cos \theta = \sigma (\sin^2 \theta - 2h \cos \theta) \quad (2-11)$$

où les paramètres sont maintenant:

•la hauteur de barrière

$$\sigma = \frac{Kv}{kT} \quad (2-12)$$

•le paramètre de champ extérieur:

$$h = \frac{vHM_s}{kT} \quad (2-13)$$

•et le rapport du champ extérieur sur l'anisotropie

$$\xi = \frac{HM_s}{2K} \quad (2-14)$$

La relaxation longitudinale de l'aimantation est dans ce cas

$$\begin{aligned}
 M_z(t) &= mN \{ \langle \cos \theta \rangle - \langle \cos \theta \rangle_0 \} \\
 &= mN \int_0^\pi \{ \cos \theta - \langle \cos \theta \rangle_0 \} W(\theta, t) \sin \theta d\theta
 \end{aligned}
 \tag{2-15}$$

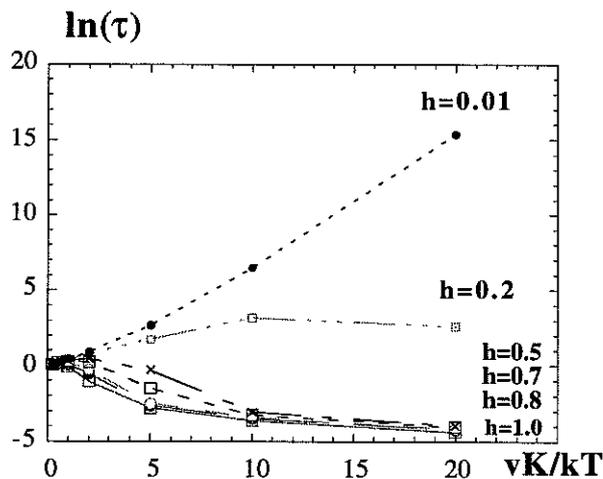
où l'indice $\langle \rangle_0$ indique la moyenne sur l'ensemble statistique à l'équilibre.
De même que précédemment:

$$M_z(t) = m^2 N \frac{\Delta H}{kT} \cdot \sum_k A_k e^{-\lambda_{k+1} t / \tau_n}
 \tag{2-16}$$

le temps de relaxation est :

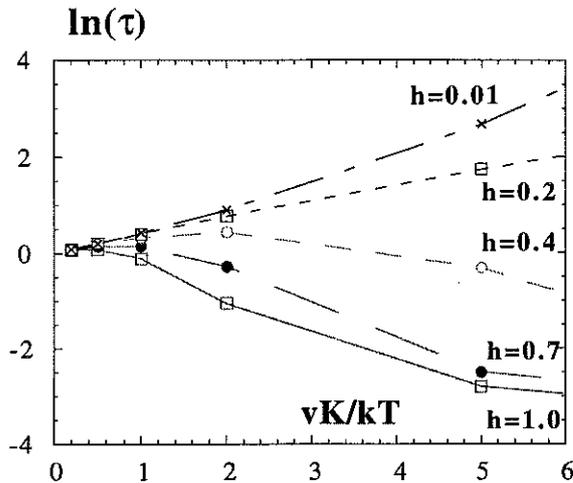
$$\tau = \int_0^\infty \frac{\langle \cos \theta(0) \cdot \cos(\theta(t)) \rangle_0 - \langle \cos \theta(0) \rangle^2}{\langle \cos^2 \theta(0) \rangle - \langle \cos \theta(0) \rangle^2} dt
 \tag{2-17}$$

Des formules analytiques sont données pour le temps de relaxation et la susceptibilité alternative dans la référence [Coffey 1995]. Les valeurs numériques en fonction du rapport Kv/kT sont reconstruites en représentation d'Arrhenius Figure(2-5) ci-dessous pour quelques valeurs du paramètre h . Contrairement au cas de la Figure(2-4), le temps de relaxation n'est pas normalisé au temps de relaxation de diffusion.



Figure(2-5):

représentation d'Arrhenius du temps de relaxation de la barrière de potentiel avec un champ magnétique statique h . Le temps de relaxation n'est pas normalisé ici au temps de relaxation de diffusion τ_n

**Figure(2-6):**

détail de la Figure précédente. La présence du champ induit un changement qualitatif radical dans les variations en fonction du paramètre $\nu K/kT$. Ce changement concerne les temps courts: l'effet du champ statique est de diminuer la hauteur de barrière.

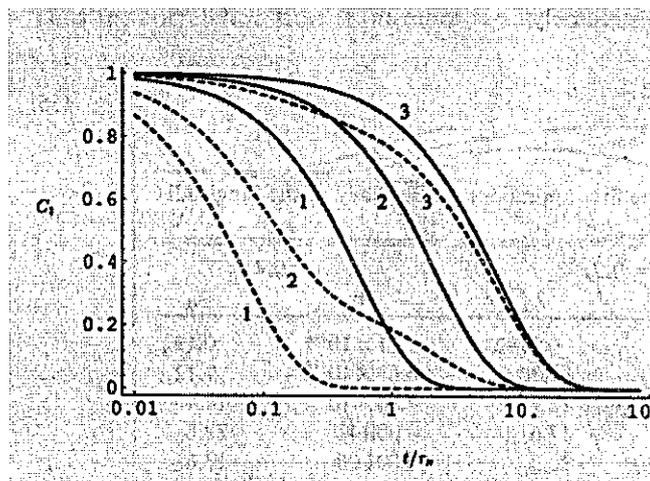
Un changement radical de comportement a lieu lorsque le champ statique extérieur est important. Pour la relaxation habituelle de Brown, à $\xi = 0$, seule la valeur propre λ_1 de la sommation (1-21) détermine le temps de relaxation. Dans le cas où le champ h est important, les modes de hautes fréquences contribuent de façon déterminante. Ceci se traduit aussi par un pic haute fréquence qui s'additionne au pic basse fréquence habituel dans la susceptibilité alternative.

La loi de relaxation n'est plus alors exactement une exponentielle. Néanmoins, comme le montre la Figure(2-7), la distinction n'est pas très évidente et une approximation des courbes avec un ajustement numérique en exponentiel est souvent possible, avec un temps de relaxation équivalent τ_{eff} .

Figure (2-7):

Figure tirée de la référence [Coffey 1995]. La fonction d'autocorrelation

$C(t) = \langle m(0)m(t) \rangle / \langle m^2 \rangle$ est représentée en fonction du temps normalisé au temps de diffusion τ_n (en échelle logarithmique). En trait plein, la fonction d'autocorrelation dans l'approximation de Brown, avec le mode de Néel $C(t) = \exp(-\lambda_1 t)$. En traits pointillés, la fonction d'autocorrelation est tracée en tenant compte de tous les modes. Les numéros 1, 2, 3 correspondent respectivement aux valeurs du paramètre h : 0.4, 0.2, 0.01.



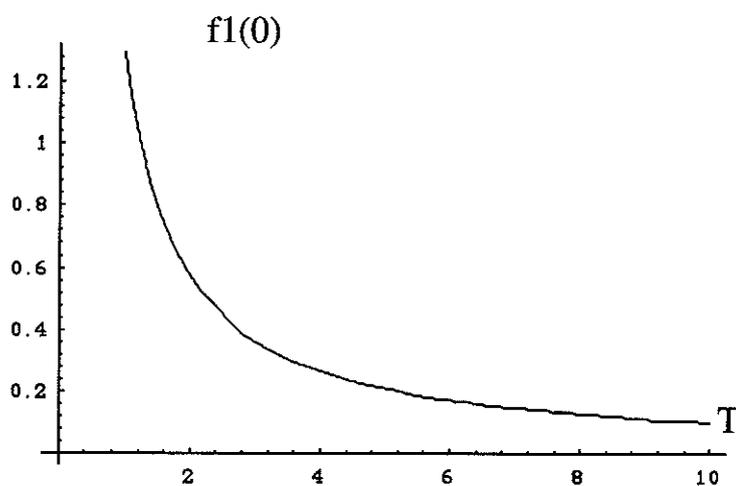
Résumé

- Lorsque la barrière d'énergie est petite ou lorsque le rapport champ appliqué sur température est important, les modes de relaxation haute fréquence deviennent déterminants dans la dynamique.
- Pour calculer le temps de relaxation, celui-ci est défini par l'aire sous la courbe de la fonction d'autocorrélation $C(t) = \langle m(0).m(t) \rangle / \langle m^2 \rangle$ (c'est-à-dire des fluctuations au cours du temps). Cette condition suppose valide l'application de la théorie de la réponse linéaire. Le comportement thermique calculé est alors très différent de celui issu du calcul de Brown. Ce comportement est illustré Figure(2-6). L'application de la théorie de la réponse linéaire implique aussi l'existence d'un facteur $f_1(0)$ dépendant de la température dans la relaxation de l'aimantation (équation (2-7)) et (2-6)): on a

$$m_z(t) = mNf_1(0).C(t)$$

$$f_1(0) = \frac{\Delta H M(3/2, 5/2, vK/kT)}{3kT M(1/2, 3/2, vK/kT)}$$

Le profil thermique de la fonction $f_1(0)$ est tracé figure(2-8) ci-dessous:



Figure(2-8):
dépendance thermique de la fonction $f_1(0)$. On a posé $vK/k=1$. Cette fonction est proportionnelle à la susceptibilité à la dépendance thermique de la réponse $m(t)$.

La description de la relaxation sur la base de la théorie de la réponse linéaire invite donc aussi à une interprétation des données expérimentales en termes de réponse au créneau de champ initiale. Cette idée est discutée dans un cadre plus général dans la partie 1 de l'annexe.

IV-3 Synthèse: une approche en termes de réponse linéaire

Chapitre IV

Pour les raisons évoquées au début de la partie précédente, on suppose que les barrières de potentiels sont petites. En outre, les mesures à l'échelle des particules individuelles montrent que le pas de champ ΔH_{eff} effectivement perçu par la particule n'est pas le pas de champ ΔH appliqué lors des expériences de traînage. La particule ne peut voir qu'une variation de champ ΔH_{eff} de quelques Oersted au maximum, à l'échelle des temps de la mesure (voir chapitre II). Dans le cas contraire, elle peut être considérée à l'équilibre, et ne participe pas à la relaxation. On supposera dans ce qui suit que le système répond linéairement au créneau de champ ΔH_{eff} . D'autre part on a vérifié expérimentalement que la relaxation est approximativement exponentielle.

Nous avons réunis ci-dessous les résultats empiriques de l'étude expérimental et l'hypothèse de la réponse linéaire. On a les résultats suivants:

(1) les lois empiriques

A la conclusion du chapitre II, nous sommes arrivés à la formule empirique suivante:

$$M(t) = \left[\frac{dH}{d \ln(\tau)} \right] \bar{g}_H \int \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma$$

$$\approx f(T) \bar{g}_H (\ln(t) + \text{cst})$$

(3-1)

Où $f(T)$ a été défini par $f(T) = \Delta H / \Delta \ln(\tau)$ [T] et g_H est la distribution des champs de retournement. Cette formule rend qualitativement compte du profil en température. Lorsque g_H est déduit de la dérivé de l'aimantation prise soit sur le cycle d'hysteresis soit en un temps fixé lors du traînage magnétique, un écart d'un facteur de l'ordre de 10 est constaté. Cet écart provient probablement de l'existence des fluctuations à l'échelle nanoscopique. Ces fluctuations n'ont pas été prises en compte dans le modèle décrivant le passage du nanoscopique au macroscopique, conduisant à la relation (3-1) ci-dessus: la valeur moyenne de l'aimantation n'est pas décrite par ce modèle simple.

De plus, un profil expérimental de $f(T)$ est tracé Figure(3-27) du chapitre II et n'est pas compatible avec un simple phénomène d'activation.

(2) Susceptibilité alternative

Chapitre IV

Lorsque l'on intègre la réponse, en tenant compte de la relation fluctuation-dissipation sur la distribution en fréquence, la susceptibilité alternative est donnée par l'équation suivante (calculée au chapitre I-3) :

$$\chi(\omega) = \chi_0 \int_0^{\infty} \frac{g(\tau)}{1 + i\omega\tau} d\tau \quad (3-2)$$

avec

$$\chi_0 = \frac{1}{kT} \langle \tilde{m}^2 \rangle(0) \quad (3-3)$$

où $\langle \tilde{m}^2 \rangle(0)$ est la transformée de Fourier des fluctuations $\langle m^2 \rangle(t)$ pour t tendant vers l'infini.

Avec la distribution de Fröhlich : $g_\gamma = 1/\{\gamma \cdot \ln(\gamma_1/\gamma_2)\}$ si $\gamma_2 > \gamma > \gamma_1$, cette équation est équivalente à la représentation en fonction du temps suivante [Fannin 1994]

$$M(t) = \Delta H \chi_0 \frac{1}{\ln(\gamma_1/\gamma_2)} \int_{\gamma_1}^{\gamma_2} \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \quad (3-4)$$

Si on suppose valide la méthode de Coffey et al. présentée dans la partie IV-2 ci-dessus, la formule peut s'écrire plus précisément dans le cas des monodomains ferromagnétiques classiques :

$$M(t) = m \cdot f_1(0) g_\gamma \int \frac{d\gamma}{\gamma(t)} \quad (3-5)$$

où la fonction $f_1(0)$ est définie dans la partie IV-2 et est tracée Figure(2-8) en fonction de la température. Elle contient le terme de champ ΔH .

(3) formule de Kubo-Mori.

L'intérêt d'une approche par une équation de Langevin établie sur des techniques d'études des phénomènes dissipatifs à l'échelle microscopique, (revues en particulier dans [Forster 1975], [Balian 1986], [Fick 1990], [Ichiyanagi 1995]) réside dans la possibilité de calculer le bruit $D(T)$ à partir d'un modèle de bain thermique. Cette approche est utilisée dans le cadre des expériences de résonance (ferromagnétique et nucléaire), et permet théoriquement une description détaillée des phénomènes dissipatifs à l'échelle microscopique. Une technique de ce type est exposée en annexe [Wegrowe 1995- 1996].

Chapitre IV

On établit une théorie de la réponse linéaire par le développement habituel de l'opérateur statistique (densité de probabilité ou densité d'états):

$$\rho(t) = \rho(t_0) + \rho_1(t) + \dots$$

où $\rho_1(t)$ est linéaire par rapport au champ extérieur h .

Deux difficultés émergent alors de cette approche:

- (i) Suivant la situation expérimentale on doit choisir un $\rho(t_0)$ approprié.
- (ii) En général, $\rho(t_0)$ n'est pas stationnaire, de sorte que la dépendance temporelle de la réponse ne dépend pas que de $t-t_0$, et ne peut pas être obtenue directement par la dérivée par rapport au temps de la fonction de relaxation (i.e. la fonction de corrélation: voir annexe 2).

Le problème de l'application de la théorie de la réponse linéaire aux expériences de traînage magnétique tient donc essentiellement dans le fait que l'état statistique initial $\rho(t_0)$ n'est pas nécessairement stationnaire.

Dans le cas des expériences présentées dans les chapitres précédents, on peut s'attendre à ce qu'une description de $\rho(t_0)$ par un opérateur statistique généralisé

$$\rho(\lambda) = Z^{-1} e^{-\beta H(h) - \lambda m}$$

soit suffisante pour décrire l'état initial. l'aimantation longitudinale m et le multiplicateur de Lagrange λ sont introduits de façon à reproduire la valeur moyenne observée $\langle m \rangle(t_0)$ de l'état de référence (l'état "stable" initial).

Pour les expériences avec le champ magnétique extérieur $h(t)$, et pour les temps impliqués, il semble que l'on puisse traiter $\rho(\lambda)$ comme étant stationnaire [Sauer mann, communication privée], c'est à dire:

$$\exp[-iL(t-t_0)]\rho(\lambda) = \rho(\lambda) + \dots$$

où L est l'opérateur de Liouville (défini soit avec un commutateur lorsque les observables sont décrites par des opérateurs de l'espace de Hilbert, soit par un crochet de Poisson lorsque les observables sont classiques

$$iL \equiv \frac{i}{\hbar} [H, \cdot] \equiv \sum_j \left[\frac{\partial H}{\partial p_j} \cdot \frac{\partial \cdot}{\partial r_j} - \frac{\partial H}{\partial r_j} \cdot \frac{\partial \cdot}{\partial p_j} \right] \quad H \text{ est l'Hamiltonien du système et } p_j \text{ et } r_j$$

sont les coordonnées de l'espace des phases, voir annexe 2).

Dans ce cas, on retrouve la relation usuelle de la théorie de la réponse linéaire, où la distribution de Boltzmann $Z^{-1} e^{-\beta H}$ doit être remplacée par $\rho(\lambda)$. L'application de la théorie de Mori peut alors être alors justifiée (le produit de Mori doit néanmoins être redéfini relativement à $\rho(\lambda)$).

Il faut néanmoins être prudent quand à la réelle signification de $\rho(t_0)$. Il est possible que cet état ne soit pas stationnaire. Dans ce cas il n'est plus possible de relier de façon générale la réponse du système aux fluctuations (l'équation (3-8) ci-dessous doit être revue). Ce problème est discuté en annexe 2.

Nous exposons brièvement ci-dessous la théorie de Mori dans le cas classique avec un multiplicateur de Lagrange λ négligeable par souci de simplification (le cas général et en régime quantique est donnée en annexe 1).

L'équation de Langevin s'écrit avec les deux coefficients phénoménologiques suivants: le coefficient de friction γ et la force stochastique $f(t)$. Cette équation suppose la validité de l'approximation Markovienne (l'hypothèse du bruit blanc entre dans cette approximation: voir l'annexe)

$$\boxed{dm / dt = -\gamma m + f(t)}$$

(3-6)

Dans la théorie de Mori, le coefficient d'amortissement γ et la force stochastique $f(t)$ sont déduits des opérations de projection sur l'espace des degrés de liberté de l'environnement. La force $f(t)$ est produite par l'action des degrés de libertés de l'environnement, contenus dans un espace orthogonal (au sens du produit scalaire défini par les fluctuations thermiques $\langle AB \rangle_{eq}$ à l'équilibre) à l'espace des degrés de liberté de l'aimantation $m(t)$. Les deux coefficients sont reliés par la relation (voir annexe 2):

$$\gamma = \frac{1}{\langle m^2 \rangle_{eq}} \int_0^{\infty} \langle f \cdot f(t) \rangle_{eq} = \frac{\eta}{\langle m^2 \rangle_{eq}} D(T)$$

(3-7)

où $D(T)$ est le bruit du bain thermique en tant que fluctuation des forces stochastiques intégrées sur le temps. Le coefficient de friction η a été introduit de façon à avoir un bruit $D(T)$ en unité d'énergie.

Par ailleurs, la formule de Kubo exprime le fait que le système relaxe proportionnellement à ses fluctuations à l'équilibre, lorsqu'il est soumis à une petite

Chapitre IV

perturbation. La réponse linéaire à une excitation en créneau de champ ΔH_{eff} au temps $t=0$ s'écrit,

$$\langle m \rangle(t) = \Delta H_{\text{eff}} \frac{\langle m^2 \rangle_{\text{eq}}}{kT} (1 - \exp[-\gamma t]) \quad (3-8)$$

De même, la réponse linéaire à une excitation sinusoïdale s'écrit

$$\langle m \rangle(\omega) \approx \Delta H_{\text{eff}} \frac{\langle m^2 \rangle_{\text{eq}}}{kT} \frac{\gamma}{\gamma - i\omega} \quad (3-9)$$

En insérant (3-7) et en posant $\langle \delta m \rangle(t) = \langle m_{\infty} \rangle - \langle m \rangle(t)$ l'équation (3-8) devient:

$$\langle \delta m \rangle(t) = \frac{\Delta H_{\text{eff}}}{kT} \frac{\eta D(T)}{\gamma} (\exp[-\gamma t]) \quad (3-10)$$

et en intégrant sur une distribution \bar{g}_{γ} (voir le chapitre I partie 2), on a:

$$\Delta M(t) = \Delta H_{\text{eff}} \frac{\eta D(T)}{kT} \cdot \bar{g}_{\gamma} \int_{\gamma_{\text{min}}}^{\gamma_{\text{max}}} \frac{\exp[-\gamma t]}{\gamma} d\gamma \quad (3-11)$$

La dépendance thermique est contenue dans le coefficient $D(T)$. Elle peut être calculée à partir d'un modèle de bain thermique ou en explicitant la nature des excitations perçues par le système (interaction spin-phonon, spin-photon, magnons...).

Lorsque \bar{g}_{γ} ne dépend pas de la température, un bruit proportionnel à la température $D(T)=kT$, donne une vitesse de relaxation constante. Lorsque le bruit sature à basse température, un profil du type de celui observé aux chapitres précédents apparaît.

Lorsque la dépendance thermique de la distribution est proportionnelle à kT (équation (3-10) du chapitre I), et que le bruit est aussi $D(T) = kT$, la relaxation est proportionnel à kT .

Résumé

Lorsque l'hypothèse de l'effet tunnel quantique de l'aimantation est posée, les résultats du modèle s'appliquent bien aux mesures correspondant à un des paramètres de temps de relaxation $\ln(\tau(H_0))$. Ce paramètre correspondrait aux termes ne dépendant pas d'une barrière de potentiel produit par l'anisotropie, puisque celle-ci produirait obligatoirement une dépendance en champ. Il s'agirait donc d'un autre processus d'amortissement non explicité. Lorsque l'hypothèse d'un bruit quantique est posée, il semble que les résultats expérimentaux s'appliquent aussi à cette interprétation. Dans ce

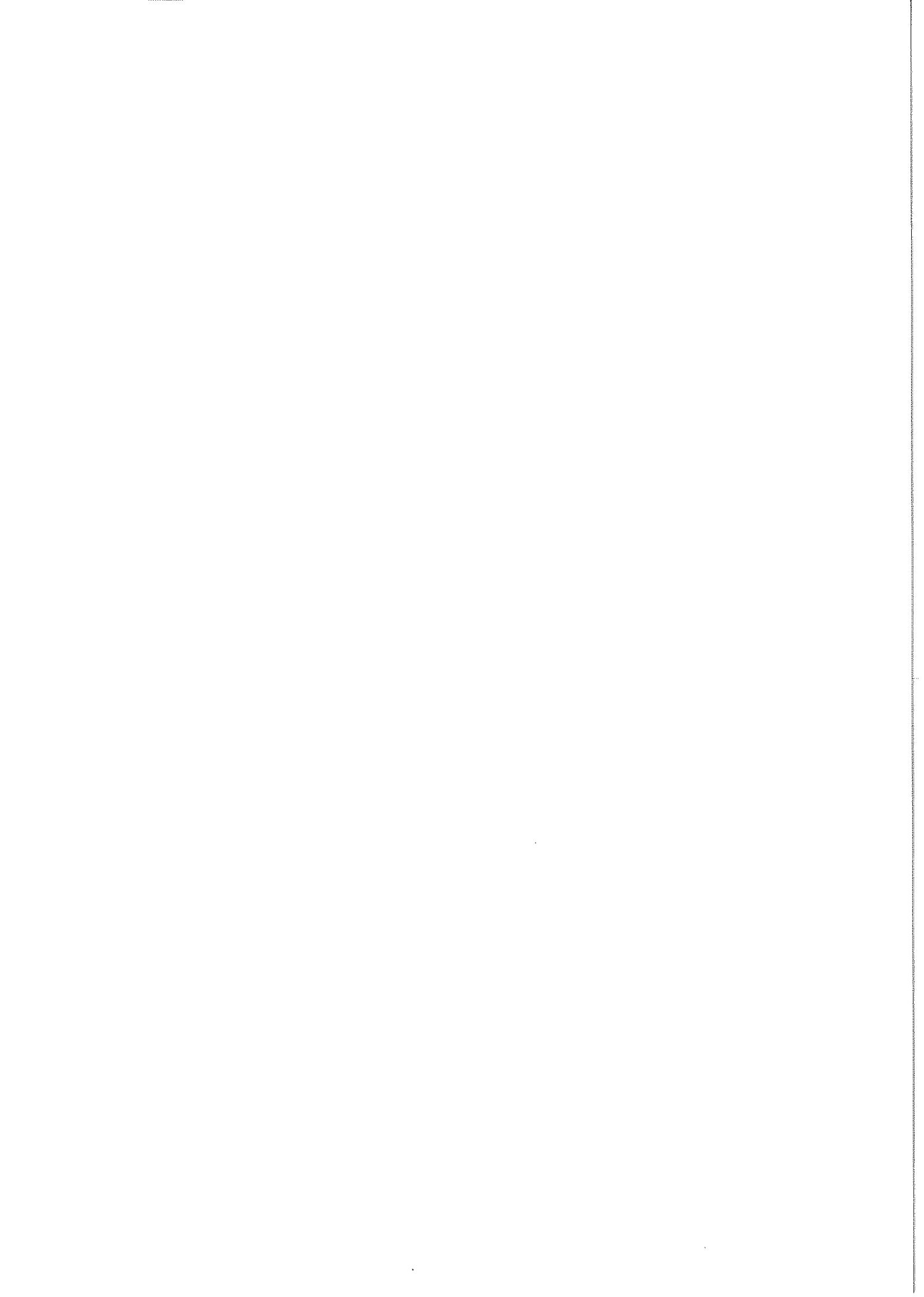
cas, la barrière de potentiel ne joue pas un rôle déterminant. Néanmoins, dans tout les cas, le comportement thermique de $\ln(\tau(H_0))$ n'intervenant pas dans le traînage magnétique, ces interprétations ne peuvent pas rendre compte directement de l'ensemble des résultats observés sur les réseaux de particules et les multicouches.

Lorsque l'hypothèse de la réponse linéaire est posée, avec un retournement uniforme de l'aimantation de Brown, le comportement du temps de retournement est bien reproduit. Le paramètre $\frac{\Delta \ln(\tau)}{\Delta H}(T)$, et donc la vitesse de relaxation en fonction de la température, sont en adéquation avec les prédictions du modèle.

Dans le cadre de cette interprétation, le paramètre $\ln(\tau(H_0))$ n'est pas explicité. Celui-ci impose pourtant l'échelle de temps de la relaxation mesurée. Ce paramètre apparaît dans le modèle de Coffey et al. comme un temps de diffusion au voisinage de l'équilibre. Etant donné les échelle de temps de nos mesures, cette diffusion ne peut pas correspondre à la précession des spins microscopiques, accessible par résonance magnétique à des fréquences de l'ordre du GHz. Il est néanmoins possible d'imaginer qu'il s'agit du temps de diffusion du macrospin dans un milieu très visqueux. La viscosité (au sens hydrodynamique) proviendrait alors des défauts des nanostructures et particulièrement des défauts de surface, très importants dans les petites particules et les jonctions de parois de domaines du chapitre III-2. Les paramètres phénoménologiques d'amortissement γ et η de l'équation (1-8) (i.e. de l'équation de Gilbert, de Landau-Lifshitz ou de Brown) du chapitre I doivent être reconsidérés en conséquence.

La dépendance thermique des coefficients d'amortissement, et plus généralement de la réponse de l'aimantation, peut être étudiée par l'application de la théorie de Kubo-Mori. Cette approche permet d'étudier les dépendances thermiques par le bruit $D(T)$, qui peut être modélisé à partir d'hypothèses sur la structure du bain thermique et le couplage du système à cet environnement. Si cette approche était validée, elle permettrait de relier le problème de la dynamique des nanostructures magnétiques à la relaxation, mieux connue, des ondes de spins ou des spins nucléaires.

Néanmoins cette approche exige que l'état statistique initial du système soit stationnaire, ce qui n'est pas évident dans le cas du protocole du traînage magnétique. La difficulté d'élargir la discussion au cas des systèmes non stationnaires laisse une zone d'ombre sur la validité du modèle proposé. Nous nous y sommes néanmoins essayé dans l'annexe 2, partie 2.





Conclusion générale

Au cours de cette étude sur la dynamique des nanostructures magnétiques, nous avons mis en évidence l'importance statistique des fluctuations sur le comportement dynamique à basse température. Les temps de relaxation, ainsi que les champs de retournement, fluctuent de façon importante. Le comportement thermique des fluctuations n'est pas simplement proportionnel à la température.

En outre, les moyennes elles mêmes sont distribuées dans les échantillons macroscopiques. Il faut donc considérer un deuxième niveau statistique. La distribution des moyennes des champs de retournement a été mesurée par deux méthodes différentes dans le réseau de particules. La connaissance des distributions des moyennes permet de différencier l'action de ces distributions de l'action des fluctuations à l'échelle de la particule.

Un comportement anormal de la dépendance thermique de la vitesse de relaxation logarithmique a été mis en évidence sur les échantillon macroscopiques. Cette dépendance décroissante ne semble pas avoir été mesurée sur des échantillons usuels auparavant (voir peut être [Tejada 1994]?). Elle a été mesurée sur un réseau de particules de CoZr amorphe, sur un réseau de particules de Co nanocristallin, sur un réseau de nanofils de Ni nanocristallin et sur deux multicouches minces à forte anisotropie magnétocristalline.

A l'échelle nanoscopique, la dynamique est déterminée par deux paramètres décrivant la dépendance thermique du temps de relaxation moyen à l'échelle d'une nanoparticule (Figure(3-18) du chapitre II et Figure(1-11) du chapitre III). Ce sont les deux termes $\ln(\tau(H_0))$ et $\frac{\Delta \ln(\tau)}{\Delta H}(T)$ définissant le faisceau de droites du temps de relaxation en fonction du champ appliqué:

$$\ln(\tau(H, T)) = \ln[\tau(H_0, T)] + \left(\frac{\Delta \ln(\tau)}{\Delta H} \right) (T) \times (H - H_0)$$

Ce comportement semble propre aux systèmes nanoscopique désordonnés.

L'un des paramètres, $\ln(\tau(H_0))$, ne semble jouer aucun rôle dans la dépendance thermique de la vitesse de relaxation mesurée sur les échantillons macroscopiques (équation (11) et (12) du paragraphe II-3-4)), mais il détermine l'échelle de temps du

Conclusion générale

processus de relaxation pour une particule lorsque le champ appliqué est H_0 . Le champ de retournement moyen extrapolé à température nulle est accessible expérimentalement par ailleurs et permet de d'estimer la dépendance thermique du temps de relaxation τ^0 à hauteur de barrière nulle. Le paramètre $1/\ln(\tau^0)$ montre un profil thermique saturant à basse température et apparemment conforme, à haute température, à une loi d'activation classique (Figures (3-24), (3-25) du chapitre II et Figure(1-12) et (1-13) du chapitre III).

Ce profil est caractéristique des corrections quantiques à basse température (Figure(2) et (3) du chapitre IV). Ces corrections pourraient être interprétées en termes d'effet tunnel quantique de l'aimantation, mais plus logiquement en termes de bruit quantique, puisqu'il s'agit du paramètre correspondant à une barrière de potentiel nulle. Une correction classique est bien sûr parfaitement envisageable et est discutée au chapitre IV et dans les annexes (voir plus loin).

Deux remarques doivent être formulées concernant une interprétation en termes de correction quantique du paramètre $\ln(\tau^0)$. D'une part, l'adéquation avec la loi d'activation thermique à haute température n'est pas évidente pour les mesures sur le Co (voir Figure(3-27) chapitre II). La saturation à basse température n'est donc pas forcément une "correction" à une loi classique. Il peut s'agir d'un processus qui n'est pas réductible au processus d'activation thermique classique (de Brown) pour toute la gamme de température étudiée. D'autre part, cette correction ne rend pas compte du comportement thermique apparaissant dans le deuxième paramètre du temps de relaxation $\frac{\Delta \ln(\tau)}{\Delta H}(T)$.

Ce deuxième paramètre, extrait du temps moyen de relaxation, est défini par la pente de la droite $\ln(\tau(H))$ en fonction du champ appliqué. Ce paramètre est principalement responsable de la dépendance thermique de la vitesse de relaxation mesurée sur les réseaux. En effet, après sommation sur l'ensemble de particule composant le réseau, nous sommes arrivés à la loi empirique suivante, qui rend compte qualitativement de la décroissance de la vitesse de relaxation en fonction de la température:

$$\Delta M(t) \approx \bar{g}_H \cdot \left[\frac{dH}{d \ln(\tau)} \right] \ln(t)$$

Le facteur \bar{g}_H est la distribution des champs de retournement moyens mesurés sur le cycle d'hysteresis ou sur l'aimantation en un temps donné de la relaxation, et

Conclusion générale

$dH/d\ln(\tau)$ est déduit des points expérimentaux des moyennes des temps de relaxation $\tau(H,T)$.

Nous avons remarqué que la valeur obtenue par la formule ci-dessus ne coïncide pas avec les mesures de traînage magnétique. Un facteur multiplicatif de l'ordre de 10 la sépare de la valeur attendue à partir du cycle d'hysteresis ou de l'aimantation prise en un temps donné du traînage magnétique. Un phénomène important intervenant dans la sommation du nanoscopique au macroscopique est passé inaperçu. Il peut être dû à une distribution des temps de retournement à hauteur de barrière nulle ou encore à un effet des interactions dipolaires entre particules dans la dynamique.

Par ailleurs, le comportement thermique mesuré de $\frac{\Delta \ln(\tau)}{\Delta H}(T)$ est très éloigné des descriptions possibles d'activation, même si l'on tient compte de corrections quantiques. Le comportement observé est en fait opposé au comportement attendu dans le cadre d'un modèle d'activation (Figures (2-17), (3-26) et (3-27) du chapitre II ainsi que la Figure(1-14) chapitre III). A très basse température (1K à 100mK), une saturation est aussi observée.

Ce type de comportement inusuel se manifeste aussi dans certains échantillons multicouches (chapitre III-2). Il semble qu'il ne soit observable que lorsque les mécanismes coercitifs ne jouent pas un rôle déterminant dans la relaxation (dans le cas de la multicouche $\text{SmCo}_2/\text{GdCo}_2$ ces mécanismes sont produits par l'annihilation de la paroi de domaines).

Nous avons cherché au cours de ce travail à comprendre le passage du nanoscopique au macroscopique. Comment passer de la description d'un phénomène de saut d'aimantation de la particule (en fonction du champ appliqué ou en fonction du temps), qui est un phénomène discret et non reproductible à un phénomène continu et reproductible?

Le traitement de tels processus passe par l'étude des équations stochastiques correspondant au système de spins. Deux approches sont possibles. Soit par les équations du type Fokker-Planck décrivant les probabilités, soit par les équations du type Langevin décrivant les fluctuations et les moyennes. Le traitement initié par L. Néel et Brown Jr, aboutissant au temps de relaxation du type loi d'activation d'Arrhenius, ne rend pas compte des résultats expérimentaux obtenus sur les nanostructures présentés dans ce mémoire.

Conclusion générale

Un développement des équations stochastiques correspondant à des hauteurs de barrières petites ou négligeables est proposé. Nous supposons que dans les régimes concernés par nos mesures, le macrospin relaxe dans un environnement visqueux en réponse à la variation de champ initial. Le retard de la relaxation par rapport au créneau de champ dans les expériences de traînage magnétique est alors dû uniquement à la valeur élevée des coefficients de friction pour certains champs magnétiques.

La dépendance thermique des coefficients d'amortissements et plus généralement de la réponse de l'aimantation, peut alors être étudiée, dans une première approximation, par l'application de la théorie de Kubo-Mori. Cette approche permet d'étudier les dépendances thermiques des moyenne et des fluctuations par l'intermédiaire du bruit $D(T)$, qui peut être modélisé à partir d'hypothèse sur la structure de l'environnement et du couplage du système à cet environnement.

Les mécanismes microscopiques de "friction" n'ont cependant pas été étudiés. Les mesures en cours semblent indiquer que ces mécanismes se réduisent à l'action des défauts de surface.

Néanmoins, la validité de l'hypothèse de départ, c'est-à-dire l'existence d'un état statistique initial quasi-stationnaire, ou encore l'absence d'un mécanisme d'activation n'a pas été mis en évidence de façon définitive.

Ces systèmes bistables à l'échelle nanoscopique ont en effet une dynamique apparemment très éloignée de l'équilibre. Quelques indices témoignent, à notre avis, de la validité de l'hypothèse d'un processus de réponse à la variation de champ extérieur. Nous rappelons les quelques points suivants:

- Une dépendance linéaire en champ magnétique extérieur de la vitesse de relaxation a été mise en évidence sur les réseaux de particules.
- Les mesures de susceptibilité alternative, effectuées sur une position stable du système, font état d'un même profil thermique que celui des vitesses de relaxation mesurées en traînage magnétique (voir Figure(2-23) chapitre II).
- Dans l'échantillon multicouche, l'effet étudié ne se manifeste que simultanément à une inversion du sens de la relaxation, contrairement au cas du comportement usuel. Cette inversion trahit l'influence déterminante d'un champ local dont les effets sont opposés à ceux des mécanismes coercitifs (III-2).

Conclusion générale

•Enfin, les fluctuations observées, décroissantes avec la température, ne sont pas a priori compatible avec un simple processus d'activation. En revanche, un système thermiquement activé mais soumis à une excitation extérieure, peut exhiber une réponse à cette excitation dont l'intensité croît dans une certaine plage de température, lorsque le bruit diminue. C'est typiquement le cas des expériences de "Résonance Stochastique".

Annexe 1

Application de la théorie de la réponse linéaire au traînage magnétique des nanostructures.

Introduction.....	183
A-1 Le modèle de la réponse linéaire	184
A-1-1 Réponse linéaire à une perturbation thermique	185
A-1-3 La réponse linéaire au champ extérieur.	188
A-1-4 Dépendance en champ magnétique appliqué	191
A-1-5 Introduction du désordre dans le modèle de la réponse linéaire	192
A-2 Le bruit magnétique $D(T)$: quelques aspects microscopiques.....	197
A-2-1 La dynamique des spins dans l'espace de phase	198
A-2-2 Modèle élémentaire de bruit quantique et théorème d'équipartition.	200
A-2-3 Couplage spin-bain thermique	206
A-3 Exemples de calculs de bruit dans les systèmes magnétiques.....	209
A-3-1 Modèles dans l'espace de phase généralisé, exemple du modèle de F. Shibata et N. Hashitsume.....	209
A-3-2 Un exemple classique de modélisation du bain magnétique	212
Conclusion	215



Annexe 1

Application de la théorie de la réponse linéaire au traînage magnétique des nanostructures.

Introduction

Notre objectif est de chercher à décrire les divers comportements observés lors de mesures de traînage magnétique à l'aide de la théorie de la réponse linéaire de Kubo-Mori. Nous discutons en second lieu l'éventualité d'une manifestation d'un bruit quantique dans le traînage magnétique. Un modèle construit sur la théorie de la réponse linéaire, simple et formel, est présenté en première partie. Il est basé sur l'hypothèse préalable que les systèmes étudiés répondent effectivement linéairement au créneau de champ appliqué initialement.

Dès sa fondation, la théorie de la réponse linéaire de Kubo a été critiquée, en particulier par Van Kempen [Van Kempen 1971], en raison d'une incohérence logique. La linéarisation opérée par Kubo à l'échelle microscopique, pour arriver la formule de la réponse linéaire des variables macroscopiques, n'est apparemment pas compatible avec l'irréversibilité apparaissant du fait des trajectoires chaotiques des objets microscopiques. Or, l'hypothèse des trajectoires chaotiques est une nécessité à tout traitement statistique des processus irréversibles (propriété de mélange) [Beck 1994-95]. Une linéarisation des équations du mouvement ne pourrait donc avoir lieu qu'à des échelles de temps microscopiques, de plusieurs ordres de grandeurs inférieurs aux échelles de temps de la dynamique macroscopique. Il ne serait donc pas possible de déduire la linéarité des lois phénoménologiques par la résolution au premier ordre en la perturbation des équations microscopiques.

Néanmoins, d'un point de vue formel tout au moins, cette théorie a été largement confirmée (par exemple [Van Velsen 1977] [Ichianagy 1994]), entre autre par le développement des techniques des opérateurs de projection. Il semble cependant que la validité de ce type de développement soit établie rigoureusement seulement pour le cas des mouvements Brownien stationnaires ([Ichianagy] et [Sauermann]: communications privées). Le problème reste ouvert lorsque la réponse a lieu pour des

états statistiques initiaux loin de l'équilibre [Heiner 1996], [Hänggi 1981]. Or, le traînage magnétique étudié expérimentalement dans les chapitres précédents, semble être un processus d'activation hors équilibre. Il nous faudrait donc préalablement étudier le problème de l'applicabilité de la réponse linéaire dans nos cas particuliers

Ce problème justifie la présence de la deuxième annexe (Annexe 2). La théorie de Kubo-Mori y est exposée, ainsi que les possibilités d'extension aux cas des systèmes métastables. Nous nous sommes contentés de survoler le problème d'un point de vue bibliographique...

La présente annexe est structurée de la façon suivante:

L'application de la théorie de Kubo-Mori aux systèmes magnétiques est présentée en première partie **A-1**. Ce développement est basé sur l'équation de Langevin-Mori, obtenu par l'application du formalisme des opérateurs de projections à des observables de l'espace de Hilbert.

Le formalisme des Opérateurs de Projections de Mori donne la possibilité de fournir des prédictions sur les profils en température du bruit $D(T)$ pour des variables collectives caractérisées microscopiquement avec leur environnement. Ce formalisme autorise la généralisation à un bruit quantique. Les problèmes relatifs à la définition d'un bruit quantique sont discutés dans la partie **A-2** sur une base bibliographique. L'étude de la partie (A-2) permet de déduire des résultats qualitativement importants sur la dissipation pour un modèle simple. Il précise les conditions d'un bruit en kT (théorème d'équipartition), les conditions conduisant aux corrections quantiques (théorème d'Ehrenfest et second théorème fluctuation-dissipation) et le lien entre l'approximation Markovienne, le bruit blanc et la relaxation exponentielle.

En **A-3**, l'effet du couplage avec l'environnement est étudié sur quelques exemples appliqués directement aux systèmes magnétiques. Ces exemples montrent qu'un palier à basse température dans le bruit $D(T)$ peut être attendu du fait des corrections quantiques mais aussi d'un modèle simple de bain thermique de spins. Le paragraphe (A-3-1) présente le modèle de Shibata-Hashitsume décrivant le couplage d'un macrospin avec son environnement en se focalisant sur les solutions de l'équation stochastique quantique pour les équations non linéaires. En (A-3-2) nous présentons l'équivalent du modèle simple exposé en (A-2-2) de couplage linéaire au bain thermique avec des variables de spins classiques, aboutissant aussi à l'équation non-linéaire.

A-1 Le modèle de la réponse linéaire

A-1-1 Réponse linéaire à une perturbation thermique

Dans un premier temps, l'échantillon est vu comme ayant au moins une dimension macroscopique, de sorte que seule une petite proportion de l'aimantation relaxe dans la fenêtre de mesure. L'ensemble des macrospins est couplé au reste de l'échantillon dont une grande partie de l'aimantation s'est retournée "spontanément" sous l'action d'un changement du champ extérieur au temps $t=0$. L'échantillon se retrouve dans une nouvelle configuration micromagnétique qui devrait correspondre à l'équilibre imposé par la valeur du champ magnétique extérieur. Un certain nombre de macrospins ne se sont pas retournés avec le champ et se trouvent dans une situation hors équilibre. Ces macrospins vont relaxer vers leur état d'équilibre. En d'autres termes le système se trouve dans un état instable par le fait de son état statistique et non par le fait d'une perturbation mécanique. C'est dans ce sens que la relaxation est qualifiée de réponse à une perturbation thermique.

Figure (A-1):

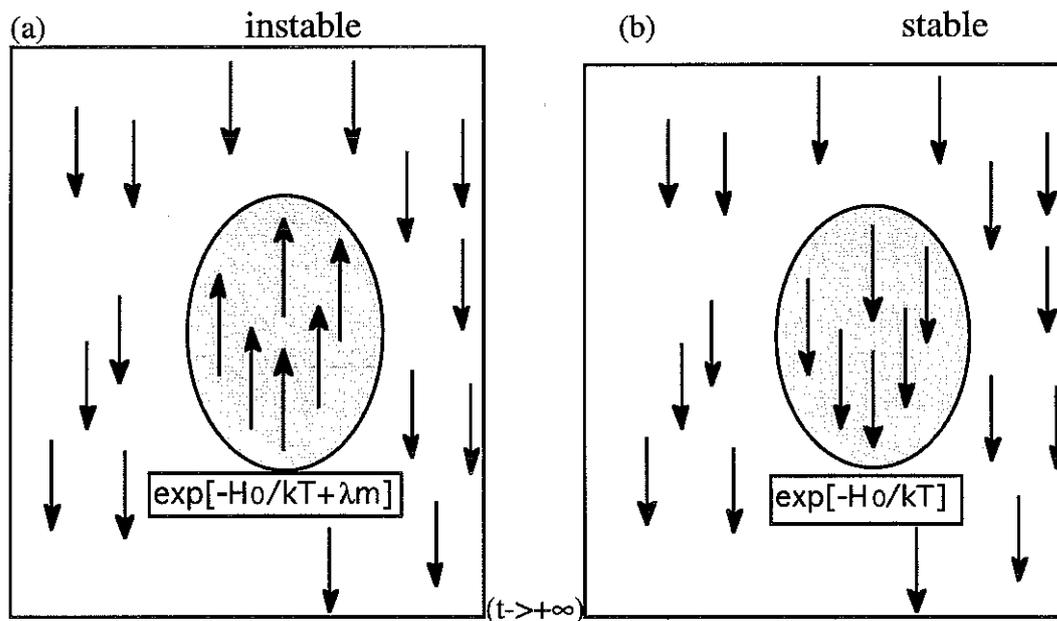


Figure A-1 schématisation d'un sous ensemble défini par γ (partie hachurée), au temps $t=0$ (en (a)) hors équilibre, et au temps $t \rightarrow \infty$ (en (b)) à l'équilibre. La forme des distributions de probabilités est donnée en encadré.

Ce sont ces composants qui sont modélisés dans un premier temps par l'ensemble de macrospins. Au temps $t=0^-$, l'état initial de l'ensemble est hors équilibre et il va relaxer vers un état d'équilibre décrit par un Hamiltonien stationnaire H_0 et la température du bain thermique $kT = 1/\beta$.

En termes d'opérateurs statistiques généralisés ρ et en supposant que la variable m est "suffisante" pour décrire la dynamique du système, la condition de minimum

d'entropie conduit à écrire l'état statistique initial par [Fick 1990, chap I][Balian 1986] :

$$\rho(\beta, \lambda) = \frac{e^{-\beta H - \lambda \cdot m}}{Z(\beta, \lambda)} \quad (1-1)$$

λ est un multiplicateur de Lagrange qui est défini par la condition :

$$\langle m \rangle(0) = \text{Tr}(\rho(\beta, \lambda) \cdot m) \quad (1-2)$$

et

$$Z(\beta, \lambda) = \text{Tr}(e^{-\beta H - \lambda \cdot m}) \quad (1-3)$$

Si le système est suffisamment proche de l'équilibre, la linéarisation (paragraphe (1-3-2)) donne :

$$\rho(\beta, \lambda) \approx \frac{e^{-\beta H}}{Z_\beta} \left(1 + \left[\frac{\partial \rho}{\partial \lambda} \right]_{\lambda=0} \cdot \lambda \right) \quad (1-4)$$

Le calcul de la fonction d'autocorrelation de m , c'est-à-dire des fluctuations produites par l'environnement sur le macrospin peut être explicité à partir de l'Hamiltonien dans le formalisme de Mori :

On définit l'opérateur de projection $\tilde{P} = \frac{|m\rangle\langle m|}{(m|m)}$ dans l'espace de Liouville.

avec le produit scalaire de Kubo-Mori défini dans l'annexe 2, qui redonne la fonction de corrélation $\langle m \cdot m(t) \rangle$ dans le cas classique :

$$(m|m(t)) = \frac{1}{\beta} \cdot \int_0^\beta \text{Tr} \left(\frac{e^{-\beta H}}{Z} m^\dagger e^{-\alpha H} m(t) e^{-\alpha H} \right) d\alpha \quad (1-5)$$

En tenant compte du fait que l'on ne mesure que des variations on pose $\langle m \rangle_{\text{eq}} = 0$, la réponse s'écrit alors (du fait des propriétés de la dérivation des opérateurs: voir le développement dans l'annexe 2):

$$\langle m \rangle(t) = -\lambda(m|m(t)) \quad (1-6)$$

A l'aide du produit scalaire défini équation (1-5), l'équation de Mori s'écrit :

Annexe1

$$m(t) = - \int_0^{\infty} \frac{(f|f(t'))}{(m|m)} m(t-t') dt' + f(t) \quad (1-7)$$

où $f(t)$ est défini par les opérateurs de projection $f(t) = e^{iQLt} \tilde{Q} \tilde{L} p$ où $\tilde{Q} = 1 - \tilde{P}$ et \tilde{L} est l'opérateur de Liouville (si m est non explicitement dépendant du temps $i\tilde{L}m = \dot{m}$). L'identité $\langle f(t) \rangle = 0$ qui définit la force stochastique de Langevin conduit à la définition du produit de Mori (1-5).

En appliquant l'approximation Markovienne, exprimée dans le modèle précédent par l'hypothèse du bruit blanc :

$$\frac{dm(t)}{dt} = -\gamma \cdot m(t) + f(t) \quad (1-8)$$

avec

$$\gamma = \frac{1}{(m|m)} \cdot \int_0^{\infty} (f|f(t)) dt = \frac{\eta D(T)}{(m|m)} \quad (1-9)$$

L'équation ci-dessus définit un bruit $\eta D(T)$. Le coefficient de friction η a été introduit de façon exprimer le bruit $D(T)$ en unité d'énergie¹.

L'équation (1-8) conduit à une relaxation exponentielle:

$$(m|m(t)) = (m|m) \cdot e^{-\gamma t} \quad (1-10)$$

soit, avec (1-9),

$$(m|m(t)) = \frac{\eta D(T)}{\gamma} \cdot e^{-\gamma t} \quad (1-11)$$

On introduit le désordre par une distribution sur les coefficients d'amortissement. Dans un matériau macroscopique désordonné, il faut définir un grand nombre de sous ensembles percevant chacun l'effet d'un environnement différent. Les coefficients d'amortissement qui définissent chacun des sous-ensembles sont étalés sur une distribution² $f(\gamma)$ qui dépend de la structure de l'échantillon (défini par les

¹Dans le cas d'une particule Brownienne classique, l'équipartition de l'énergie donne $\langle p^2 \rangle = MkT$ et le bruit est $D(T) = kT$. Avec la relation qui relie la masse au coefficient de friction et au coefficient d'amortissement $M = \eta/\gamma$ on a bien $\langle p^2 \rangle = \eta D(T)/\gamma$ (voir (II-3-2))

² Avertissement: la distribution $f(\gamma)$ est à différencier de la force stochastique notée aussi f , en italique.

défauts de surface, les pièges dans le volume dû aux impuretés, une orientation du macrospin au temps $t=0$ par rapport à un axe d'anisotropie, etc...).

L'intégration sur l'ensemble des macrospins revient à intégrer sur la distribution des coefficients d'amortissements. En utilisant l'égalité précédente de la réponse linéaire à une perturbation thermique on a :

$$M(t) = - \int \lambda(m|m(t)) \cdot f(\gamma) d\gamma \quad (1-12)$$

En insérant (2-23) dans l'égalité ci-dessus on obtient :

$$M(t) = - \left[\int \lambda \eta D(T) \cdot f(\gamma) \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \right]$$

(1-13)

Cette équation ressemble à l'équation du modèle classique de traînage magnétique obtenue au chapitre I, à condition d'opérer l'identification des quantités $\lambda \cdot f(\gamma) \eta = m_0 \cdot g(E(\gamma))$.

A condition de connaître la distribution $f(\gamma)$, les mesures de traînage magnétique donnent accès directement au bruit $D(T)$, via la fonction d'autocorrelation, quelque soit la forme thermique de celui-ci.

A-1-3 La réponse linéaire au champ extérieur.

L'hypothèse de départ concernant le cas des nanostructures du types de celles étudiées dans ce mémoire est la suivante: lorsque l'échantillon est en contact nanoscopique avec le bain thermique, l'état initial à $t=0^-$ peut être décrit par l'opérateur statistique de Boltzmann à l'équilibre thermodynamique, d'énergie H_0 , contrairement au cas précédent. En d'autres termes le système est toujours thermalisé. L'action mécanique de la variation du champ magnétique $h(t)$ à $t=0$ peut être responsable de la dynamique de l'aimantation. Lorsque l'effet de l'état de non équilibre initial est négligé, l'aimantation va relaxer vers un nouvel état d'équilibre défini par l'Hamiltonien

$$H(t) = H_0 + h(t) m. \quad (1-14)$$

Annexe 1

Lorsque $h(t)$ est une petite perturbation, la relation qui relie l'aimantation hors équilibre et la fonction de corrélation à l'équilibre est donnée par l'égalité de Kubo (voir l'annexe 2):

$$\langle \delta m \rangle(t) = -\frac{1}{kT} \int_0^t h(t') \langle \dot{m} | m(t-t') \rangle dt' \quad (1-15)$$

En supposant que le changement du champ est assez brutal et est stabilisé à une valeur constante, c'est-à-dire si

$$\begin{cases} h(t) = 0 & \text{si } t < 0 \\ h(t) = h & \text{si } t \geq 0 \end{cases} \quad (1-16)$$

après intégration, on a

$$\langle \delta m \rangle(t) = -\frac{h}{kT} \cdot \{ \langle m | m(t) \rangle - \langle m | m \rangle \} \quad (1-17)$$

avec la relaxation exponentielle, on a

$$\langle \delta m \rangle(t) = -\frac{h}{kT} \cdot \frac{\eta D(T)}{\gamma} \{ e^{-\gamma t} - 1 \} \quad (1-18)$$

L'intégration précédente sur les coefficients d'amortissements conduit dans ce cas à la relation :

$$\Delta M(t) = -\frac{h}{kT} \left[\int \eta D(T) \cdot f(\gamma) \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \right] \quad (1-19)$$

où $\Delta M(t)$ est défini relativement à sa valeur finale, de façon à conserver uniquement la dépendance temporelle :

$$\Delta M(t) = M(t) - M(t \rightarrow \infty) \quad (1-20)$$

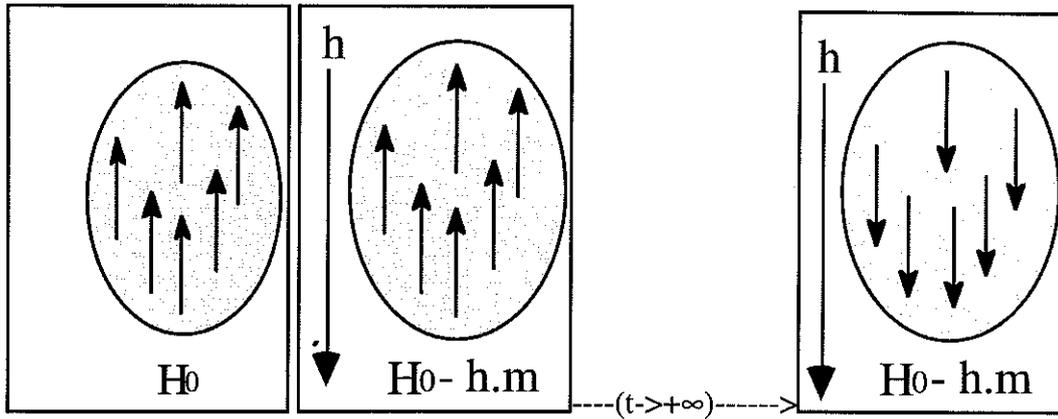


Figure A-2: schématisation d'un sous ensemble défini par γ (partie hachurée), au temps $t < 0$ (a) à l'équilibre, au temps $t = 0$ (b) hors équilibre après application du champ et au temps $t \rightarrow +\infty$ (c) de nouveau à l'équilibre.

Si l'on suppose que h et λ sont indépendants de γ et T , alors la dépendance thermique de la relaxation dans le cas de la réponse à un champ extérieur est simplement reliée par un facteur multiplicatif $1/T$ à la dépendance thermique de la relaxation due à l'activation thermique.

Il existe donc deux mécanismes de relaxation possibles, différenciables par la dépendance thermique de leur relaxation.

Par la suite on notera M_h pour la réponse à un champ extérieur et M_λ pour la réponse à une perturbation thermique.

On suppose dans le dernier terme de l'égalité que le champ extérieur h et le multiplicateur de Lagrange λ ne dépendent pas de γ .

$$\begin{cases} M_h(t) \approx -\frac{h}{kT} \int \eta D(T) \cdot f(\gamma) \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \\ M_\lambda(t) \approx -\lambda \int \eta D(T) \cdot f(\gamma) \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma \end{cases} \quad (1-21)$$

Lorsque la distribution est uniforme $f(\gamma) = \bar{f}_\gamma$ sur une large bande de fréquence, et en introduisant une fréquence de coupure γ_c , alors l'équation ci dessus se simplifie approximativement en

$$\begin{cases} M_h(t) \approx -\frac{h}{kT} \eta D(T) \bar{f}_\gamma \cdot \ln(t\gamma_c) \\ M_\lambda(t) \approx -\lambda \eta D(T) \bar{f}_\gamma \cdot \ln(t\gamma_c) \end{cases} \quad (1-22)$$

On a supposé de plus que le bruit $D(T)$ ne dépend pas de façon déterminante de γ .

A-1-4 Dépendance en champ magnétique appliqué

La première exigence lorsque l'on applique la réponse linéaire à un champ extérieur sur un système donné est de vérifier a posteriori la validité de cette hypothèse. Elle devrait en effet se manifester très simplement, puisque qu'elle implique un simple rapport de proportionnalité entre le champ extérieur et la variable mesurée.

La présence d'une distribution dans le modèle de traînage magnétique complique le problème. Cette distribution a une dépendance en champ magnétique appliqué qui est non triviale et rend compte du désordre à l'échelle macroscopique.

Néanmoins, une caractéristique assez générale est constaté expérimentalement [Sampaio 1994]: la distribution est localement uniforme. Pour un champ magnétique appliqué H_a fixé, le nombre de γ accessibles pendant le temps de la mesure de quelques décades est uniforme pour les valeur de H prise au voisinage immédiat de H_a (voir les mesures, en terme de champ de retournement au chapitre II et III). Par contre ce nombre (la valeur de la distribution "localement uniforme") prend des valeurs différentes pour les variations de champ H_a significatives.

Lorsque l'hypothèse de la réponse linéaire est adoptée avec la distribution localement uniforme, on a le résultat

$$M(t) \approx \frac{h}{kT} \bar{f}_\gamma \eta D(T) \cdot \ln(t \cdot \gamma_c) \quad (1-23)$$

et

$$h \propto H_a$$

Au voisinage de H_a , la distribution est constante, la dérivation (à T fixée) donne:

$$\left. \frac{dM(t_0)}{dH} \right|_{H=H_a} \propto \left[\frac{\eta D(T)}{kT} \ln(t_0 \gamma_c) \right] \cdot \bar{f}_\gamma(H_a) \quad (1-24)$$

Il est donc possible dans certains cas d'accéder expérimentalement à cette fonction $\bar{f}_\gamma(H_a)$ décrivant la valeur de la distribution des γ pour chaque valeur du champ appliqué H_a (la difficulté reste de s'assurer que la distribution a bien le sens qu'on lui a donné aux paragraphes précédents).

D'autre part, le modèle conduit à la relation suivante entre la vitesse de relaxation mesurée au champ H_a , $\left. \frac{dM}{d \ln(t)} \right|_{H_a}$, et la distribution $\bar{f}_\gamma(H_a)$:

$$\left. \frac{dM}{d \ln(t)} \right|_{H=H_a} \propto H_a \cdot \bar{f}_\gamma(H_a) \quad (1-25)$$

et on a donc à vérifier:

$$\left. \frac{\Delta M}{\Delta \ln(t)} \right|_{H=H_a} \propto H_a \cdot \left. \frac{\Delta \langle M \rangle(t)}{\Delta H} \right|_{H=H_a} \quad (1-26)$$

Lorsque la largeur de la distribution $\bar{f}_\gamma(H_a)$ est du même ordre de grandeur que les variations correspondantes (en fréquence $\Delta\gamma$) ayant lieu pendant le temps de la mesure, on ne peut rien conclure sans information supplémentaire précise sur la distribution.

A-1-5 Introduction du désordre dans le modèle de la réponse linéaire

Les descriptions du traînage magnétique mettent en évidence la nécessité d'une distribution des temps de relaxation pour l'émergence d'une relaxation logarithmique. Si la relaxation ne concernait que quelques temps de relaxation, il faudrait que ceux-ci coïncident avec les temps de mesure accessibles dans la fenêtre d'observation. Cela signifie qu'ils soient extrêmement lents pour les échelles concernées.

Ces conditions ne sont réalisables en pratique que dans des cas très particuliers comme par exemple dans le cas du magnétisme moléculaire. Dans les cas habituels, y compris dans le cas des échantillons macroscopiques nanostructurés par lithogravure, les distributions existent. Le traînage magnétique est mesuré généralement sur des matériaux amorphes ou microcristallisés et donc désordonnés. Le désordre à l'échelle microscopique garantit en effet une grande homogénéité. D'autre part les matériaux amorphes sont moins soumis à des excitations collectives qui sont sources de dissipations à l'échelle macroscopique.

Bray et Moore [Bray 1982] ont développé un moyen de définir une variable collective dans le cas des verres de spins à partir d'une équation de Langevin linéarisée.

Ce type d'approche a été utilisé par exemple dans la référence [Sancho 1993]. Nous voudrions présenter ici l'application de la réponse linéaire à la variable définie par cette méthode, qui permet de définir formellement un coefficient d'amortissement Γ pour les matériaux désordonnés [Wegrowe 1995a].

On part d'un Hamiltonien du type Edward-Anderson [Edward 1975]

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \bar{S}_i \bar{S}_j \quad (1-27)$$

où la distribution des constantes d'échanges J_{ij} en fonction des sites (i,j) n'est pas spécifiée pour l'instant.

Dans le but de décrire un système proche de l'équilibre, chaque spin est décomposé en deux parties $S_i = S_i^0 + \delta S_i$ où S_i^0 est la valeur à l'équilibre et δS_i la déviation autour de cette valeur. La forme suivante de l'Hamiltonien est obtenue (α, β sont les indices de coordonnées et i, j représentent les différents sites)

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} S_i^0 S_j^0 + \frac{1}{2} \sum_{ij\alpha\beta} A_{ij}^{\alpha\beta} \delta S_i^\alpha \delta S_j^\beta \quad (1-28)$$

où $A_{ij}^{\alpha\beta} = \frac{\partial^2 H}{\partial \delta S_i^\alpha \cdot \partial \delta S_j^\beta}$ sont les éléments de la matrice Hessienne.

L'équation de Langevin suivante est alors obtenue :

$$\frac{d\delta S_i^\alpha}{dt} = -\sum_{j,\beta} A_{ij}^{\alpha\beta} \cdot \delta S_j^\beta + f_i^\alpha \quad (1-29)$$

la force stochastique $f(t)$ rend compte du couplage du système décrit par l'Hamiltonien ci-dessus avec un bain thermique. Le bruit blanc est posé en hypothèse, avec une intensité $D(T)$:

$$\langle f_i^\alpha(t) f_j^\beta(t') \rangle = 2D(T)\eta \delta(t-t') \delta_{ij} \delta^{\alpha\beta} \quad (1-30)$$

Si Γ désigne les valeurs propres de A, l'équation de Langevin peut être réécrite comme un ensemble d'équations découplées:

$$\frac{d\delta S_{\Gamma}}{dt} = -\Gamma\delta S_{\Gamma} + f_{\Gamma} \quad (1-31)$$

Le désordre de l'échantillon est entièrement contenu dans le spectre $g(\Gamma)$ des valeurs propres de la matrice A . Celui-ci peut être calculé dans le cadre du modèle de Sherrington-Kirkpatrick (J_{ij} est une variable aléatoire Gaussienne centrée) [Sherrington 1975], la distribution est alors large.

On a toujours

$$\langle f_{\Gamma} \rangle = 0 \quad \langle f_{\Gamma}(t + \tau), f_{\Gamma}(t) \rangle = 2\eta D(T)\delta_{\Gamma\Gamma}\delta(\tau) \quad (1-32)$$

Cette équation décrit la dynamique d'un mode normal. Ce résultat peut aussi être interprété en définissant le coefficient Γ comme étant le coefficient d'amortissement d'une particule effectuant un mouvement Brownien dans l'espace des spins.

Nous supposons que l'observable δS_{Γ} est décrit en régime quantique par un opérateur équivalent, obéissant de même à l'équation de Langevin. La fonction d'autocorrélation s'écrit alors avec le produit de Kubo-Mori:

$$\langle \delta S_{\Gamma} | \delta S_{\Gamma}(t) \rangle = \frac{\eta D(T)}{\Gamma} \cdot e^{-\Gamma t} \quad (1-33)$$

La moyenne de la fonction d'autocorrélation des spins est définie par le spectre des valeurs propres γ . Nous écrivons³ alors la fonction d'autocorrélation de l'aimantation ($M|M(t)$) mesurée à l'échelle "macroscopique" comme la moyenne de la fonction d'autocorrélation des spins.

$$\langle M|M(t) \rangle = \int_0^{\infty} \langle \delta S_{\Gamma} | \delta S_{\Gamma}(t) \rangle \cdot g(\Gamma) d\Gamma \quad (1-34)$$

où $g(\Gamma)$ est le spectre des valeurs propres de la matrice Hessienne A .

Les corrélations s'écrivent

$$\langle M|M(t) \rangle = \int_0^{\infty} \eta D(T) \cdot g(\Gamma) \frac{e^{-\Gamma t}}{\Gamma} d\Gamma \quad (1-35)$$

³ Sous réserve d'une justification rigoureuse ou ...d'une infirmation. Dans le cas à une dimension, intégrer sur les fluctuations revient à intégrer sur la moyenne et le problème ne se pose pas. Ici, en raison de l'aspect vectoriel du problème nous n'avons pas été capable de justifier ce point.

Annexe 1

La formule de Kubo de la réponse linéaire au champ magnétique extérieur $h(t)$ s'applique alors à la variable M , avec un terme de non équilibre initial décrit par un multiplicateur de Lagrange λ :

$$\langle M \rangle(t) = -\lambda \langle M | M(t) \rangle + \frac{1}{kT} \int_{t_0}^t h(t') \langle M | \dot{M}(t-t') \rangle dt' \quad (1-36)$$

L'application du champ en marche d'escalier conduit à la relation déjà obtenue en (1-22):

$$\delta M(t) \approx -\left(\frac{\hbar}{kT} + \lambda\right) \int \eta D(T) \cdot g(\gamma) \frac{e^{-\gamma t}}{\gamma} d\gamma + \frac{\hbar}{kT} \int \eta D(T) \cdot g(\gamma) \frac{d\gamma}{\gamma} \quad (1-37)$$

Le calcul du spectre de la matrice Hessienne donne la distribution $g(\gamma)$ à partir de l'Hamiltonien et permet donc une approche du désordre dans le cadre du modèle.

Notons que la relaxation logarithmique a été obtenue par Bray and Moore pour la "moyenne de la fonction de corrélation" sans l'invocation de barrière d'énergie.

Dans ce modèle, le coefficient d'amortissement est issu des valeurs propres de la matrice Hessienne.

Première approche du bruit $D(T)$ dans le cas d'un système Heisenberg: inégalité de Dyson

Dans le contexte différent de certains systèmes Heisenberg sur réseau (antiferromagnétisme et généralisable au ferromagnétisme), F. Dyson et al. [Dyson 1978] ont montré un résultat important pour notre propos sur le produit de Kubo-Mori qui permet de se faire une idée sur les corrections quantiques du bruit $D(T)$ déduites de la matrice Hessienne. Notons qu'un système sur réseau n'est pas désordonné de sorte que l'analogie se limite à la description avant la prise en compte du désordre.

Le système est isotrope sur réseau de pas i

$$\bar{S}_\alpha \cdot \bar{S}_\alpha = 1 \quad (1-38)$$

et l'Hamiltonien de Heisenberg s'écrit

$$H = \sum_{\alpha, i} \bar{S}_{\alpha} \cdot \bar{S}_{\alpha+i} \quad (1-39)$$

en termes de coefficients de Fourier sur le réseau on a:

$$H = \text{cst} + \sum_{\alpha, i} E_{\bar{p}} \cdot \bar{S}_{\bar{p}} \cdot \bar{S}_{-\bar{p}} \quad (1-40)$$

avec

$$E_{\bar{p}} = \frac{1}{2} \sum_{|j|=1} [1 - \exp(j \bar{p} \cdot \bar{i})] \quad (1-41)$$

Dans le cas classique, l'inégalité suivante a été démontrée

$$\langle S_p, S_p \rangle \leq \frac{3}{2} \cdot \frac{kT}{E_p} \quad (1-42)$$

l'interprétation physique étant que la quantité $E_p \langle S_p, S_p \rangle$ est dominée par la valeur d'équipartition $3/2 kT$.

Les auteurs montrent que la correction quantique s'écrit

$$\langle S_p | S_p \rangle \leq \sqrt{\frac{2}{3}} S \cdot \coth \left(\sqrt{\frac{2}{3}} \frac{SE_p}{k_B T} \right) \quad (1-43)$$

l'Hamiltonien permet d'écrire que les E_p sont des termes de la matrice Hessienne:

$$E_p = \frac{\partial^2 H_p}{\partial \bar{S}_p \cdot \partial \bar{S}_{-p}} \quad (1-44)$$

Ces résultats tendent à identifier, dans une certaine mesure, E_p aux coefficients d'amortissement de modes normaux définis ci-dessus

$$E_p \equiv \Gamma \quad (1-45)$$

où l'échantillon est défini par la distribution des modes p (donnée par la relation de dispersion).

Cette identification permet alors de réécrire la correction quantique de "l'inégalité d'équipartition".

$$D_p(T) \leq C_p \cdot \coth\left(\frac{C_p}{k_B T}\right) \quad (1-46)$$

où $C_p = \sqrt{3/2} S.E_p$

Cette description va bien dans le sens d'une réinterprétation des mesures de traînage magnétique à basse température comme correction quantique du bruit.

Lorsque l'inégalité ci-dessus est prise comme une égalité, c'est à dire en adoptant la forme thermique du bruit, $D_p(T) = \eta k / T_p \cdot \coth(T_p/T)$, la formule (2-34) de la vitesse de relaxation logarithmique, présenté dans la Figure (5) de la conclusion, pour les deux limites $\hbar=0$ et $\lambda=0$, coïncide avec les formes thermiques mesurées et présentées par exemple Figure (1) de ce chapitre et Figure (3-17) et (3-20) du chapitre III.

A-2 Le bruit magnétique D(T) : quelques aspects microscopiques

La raison principale que nous avons évoquée pour justifier l'emploi du formalisme assez lourd des opérateurs de Projection pour la description de la relaxation lente est que cette théorie permet une description statistique des fluctuations thermiques et du bruit. L'idée initiale était de se contenter d'appliquer la réponse linéaire et d'exhiber les résultats précédents pour la viscosité magnétique, avec le bruit kT issu du théorème d'équipartition classique, généralisable en $1/T_0 \cdot \coth(T_0/T)$ dans la formulation quantique (tel qu'introduit par Nyquist dans la description du transport électronique [Gardiner 1991]).

Cette stratégie n'est pas applicable pour deux raisons, détaillées dans ce chapitre. La première est liée aux équations stochastiques quantiques qui imposent des conditions non triviales sur le bruit [Cortés 1985][Gardiner 1991]. Dans notre cadre expérimental, il est indispensable de bien différencier la mesure du spectre en fréquence du bruit $\tilde{D}(\omega)$ de la mesure de bruit intervenant dans la relaxation par l'intermédiaire du coefficient d'amortissement $\gamma = D(T) / \langle X^2 \rangle$ (voir A-2-2: "second théorème fluctuation-dissipation") La deuxième complication est due au fait que les systèmes que nous étudions sont des systèmes de spins pour lesquels définir une quantité de mouvement et une masse n'est pas chose aisée. Cette dernière remarque est à l'origine d'un grand nombre de travaux, de motivations très variées, sur le problème du traitement de la dynamique de spin quantique, que ce soit dans le cadre des théories de l'effet tunnel de

spins [Van Hemmen 1886][Cadeira 1988] ou des effets dissipatifs sur la dynamique des spins.

Les représentations dans l'espace des phases sont nécessaires à la résolution des équations d'opérateurs. A fortiori pour les systèmes magnétiques quantiques, la définition de variables de spin canoniques, ou la construction d'états cohérents et de définition d'Hamiltonien et de potentiel effectifs, doit être abordée pour permettre un traitement efficace des systèmes dynamiques de spins. Néanmoins, ce problème ne sera mentionné que brièvement au paragraphe A-2-1

Les bruits sont calculés à l'équilibre, hors du protocole du traînage magnétique. Dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire le bruit intervenant est bien le bruit à l'équilibre.

A-2-1 La dynamique des spins dans l'espace de phase

Le premier obstacle à l'application des résultats généraux obtenus dans le cadre de la modélisation des systèmes dissipatifs au magnétisme (de même que pour les résultats sur l'effet tunnel) provient des difficultés inhérentes à la manipulation de grandeurs dans l'espace des spins. La mécanique décrit généralement la dynamique des systèmes à partir de variables canoniquement conjuguées de façon par exemple à développer un formalisme Lagrangien ou Hamiltonien. Du fait des relations de commutations dans l'espace des spins:

$$[\hat{S}_x, \hat{S}_y] = i\hbar \hat{S}_z \text{ et permutations cycliques,} \quad (2-1)$$

il est nécessaire pour permettre une comparaison avec l'équivalent classique ou d'autres systèmes plus "usuels" (par exemple pour comparer une dynamique d'activation de spin avec la loi d'Arrhenius) de développer des transformations supplémentaires de façon à définir des variables p et q canoniquement conjuguées.

$$[\hat{p}, \hat{q}] = -i\hbar \quad (2-2)$$

ou, dans le cas classique, par définition des crochets de Poisson:

$$\{p, q\} = 1 \quad (2-3)$$

on peut alors écrire pour les spin semi-classique

$$\{S_X, S_Y\} = S_Z \quad \text{où} \quad \{S_X, S_Y\} = \frac{\partial S_X}{\partial q} \frac{\partial S_Y}{\partial p} - \frac{\partial S_X}{\partial p} \frac{\partial S_Y}{\partial q} \quad (2-4)$$

et trouver ainsi p et q en fonction de S_x, S_y, S_z

Plusieurs techniques ont été développées pour mener à bien cette opération. En particulier, la technique des potentiels effectifs et celle des représentations en états cohérents de spins (voir références citées plus loin).

A titre d'illustration, le système du type grain superparamagnétique peut être modélisé par un macrospin S ($S \gg 1$) avec un axe d'anisotropie Oz et un champ transverse responsable de la dynamique:

$$H = -\alpha S_X - K S_Z^2 \quad (2-5)$$

où α est le champ magnétique transverse et K la constante d'anisotropie dans une géométrie sphérique ($S^2 = \text{cst}$) où Φ est l'angle azimutal on a

$$\begin{cases} S_x = S \sin \theta \cos \Phi \\ S_y = S \cos \theta \cos \Phi \\ S_z = S \cos \theta \end{cases} \quad (2-6)$$

Si on prend pour la "position" q , l'intensité de la projection de \vec{S} sur l'axe Ox (l'aimantation longitudinale) alors l'équation en crochets de Poisson (2-4) conduit à définir pour quantité de mouvement l'angle azimutal au signe près:

$$\begin{cases} q = S_x \\ p = -\Phi \end{cases} \quad (2-7)$$

et l'Hamiltonien (2-5) se réécrit

$$H = \alpha (\hat{S}^2 - S_z^2)^{1/2} \cos \Phi + K S_z^2 = \frac{1}{M(\hat{q})} \cos \hat{p} + K q^2 \quad (2-8)$$

Si le spin bouge dans un plan proche du plan perpendiculaire à S_z : $\Phi \rightarrow 0$

$$H \approx \frac{1}{2M(q)} p^2 + K q^2 \quad (2-9)$$

où $M(q)$ est l'équivalent de la masse du macrospin et dépend à priori de la position q (l'approximation de la masse constante est aussi utilisée dans [Cadeira 1988] pour l'effet tunnel quantique du macrospin).

La référence [Ulyanov 1992] donne pour l'Hamiltonien (2-5), après un traitement en états cohérents de spins, l'Hamiltonien effectif approximé :

$$H_{\text{eff}} \approx -\alpha \left(S + \frac{1}{2} \right) + \left(S + \frac{1}{2} \right)^{2/3} \left[p^2 + \frac{1}{4} q^4 + Kq^2 + O(S^{-2/3}) \right] \quad (2-10)$$

dans lequel la dépendance aux variables initiales de spins de p et q n'est pas la même que ci-dessus. Notons que H_{eff} est quadratique en p . Insistons aussi sur la nécessité de l'hypothèse préalable de limite quasi classique et de macrospin.

Il semble [Ulyanov 1992] que tout une classe de variables canoniques puissent être définies pour un même Hamiltonien. Dans le travail précurseur de [Villain 1974] sur la définition de variables de spins canoniquement conjuguées, repris par exemple dans la ref. [Cucoli 94] à propos des chaînes de spins, les significations en termes de phase et d'intensité de l'équation (2-7) pour la quantité de mouvement et pour la position sont inversées.

Une approche Hamiltonienne en termes de macrospins semble donc assez peu convaincante à priori.

A-2-2 Modèle élémentaire de bruit quantique et théorème d'équipartition.

Le modèle le plus simple et soluble exactement de couplage d'un système avec un bain thermique, est le modèle de "Rubin", qui décrit une masse M couplée linéairement à un environnement composé d'un ensemble infini d'oscillateurs harmoniques. Ce modèle a été traité en détails dans le formalisme de Mori par Nakazawa [Nakazawa 1966] ainsi que [Forster 1975]. Une solution exacte peut être calculée lorsque l'environnement est modélisé par un ensemble d'oscillateurs harmoniques (quantiques ou pas). Les célèbres travaux de Mazur et al. [Mazur 1964] [Ford 1965] ont abouti à une expression du bruit en fonction des paramètres microscopiques. Ces travaux ont été aussi à l'origine d'une approche en termes d'équations stochastiques quantiques [Van Kampen 1987], [Ford 1988, 1991]. Cet Hamiltonien de couplage à l'environnement composé d'un ensemble infini d'oscillateurs harmoniques sera appelé Hamiltonien de Caldeira-Leggett à la suite des travaux de ces derniers dans le domaine de l'effet tunnel quantique macroscopique [Caldeira 1983].

Annexe 1

Nous proposons dans ce paragraphe une synthèse des résultats déductibles de ce modèle simple. Cette synthèse permet de faire une mise au point sur un problème de symétrie propre au bruit quantique, dont les répercussions sur l'analyse des résultats expérimentaux ne peuvent pas être ignorées.

La possibilité d'une généralisation du modèle au cas des systèmes non harmonique (que l'on retrouve sous l'appellation de "oscillateur de Duffin" par exemple) est discuté en fin de partie et dans l'annexe 2.

Si nous supposons que, sous certaines approximations (voir ci-dessus (A-2-1)), l'Hamiltonien de spins peut être réduit à une forme quadratique, alors cet Hamiltonien s'écrit avec les opérateurs canoniques p_0 et q_0 du système mesuré et l'Hamiltonien H_{sB} de couplage avec l'environnement :

$$H \approx \frac{p_0^2}{2M} + H_{sB} \quad (2-11)$$

Par commodité le terme de potentiel en q_0 est compris dans l'Hamiltonien de couplage H_{sB} avec les opérateurs canoniques de l'environnement. :

$$H_{sB} = \sum_{j=1}^N \left(\frac{p_j^2}{2m_j} \right) + \sum_{j=0}^N \frac{1}{2} m_j \omega_j^2 (q_j - q_\Gamma)^2 \quad (2-12)$$

Les conditions aux limites périodiques s'écrivent $q_{N+1} = q_0$

Les masses des petits oscillateurs de l'environnement sont telles que $m_j \ll M$.

Nous étudions la relaxation décrite par la fonction Φ

$$\Phi(t) = (p_0 | p_0(t)) \quad (2-13)$$

définie à l'aide de l'opérateur de projection de l'espace de Liouville

$$\tilde{P} = \frac{|p_0\rangle\langle p_0(t)|}{(p_0 | p_0)} \quad (2-14)$$

La fonction stochastique s'écrit avec les opérateurs de projections \tilde{P} et $\tilde{Q} = 1 - \tilde{P}$ de l'espace de Liouville:

$$f(t) = e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t}\tilde{Q}\tilde{L}p_0 \quad (2-15)$$

l'Hamiltonien (2-11) est quadratique en l'opérateur p_0 canonique, par conséquent l'équation du mouvement pour p_0 s'écrit:

$$\dot{q}_0 = \frac{i}{\hbar}[H, q_0] \Rightarrow p_0 = M\dot{q}_0 \quad (2-16)$$

en utilisant l'égalité de Kubo (annexe 2):

$$\langle p_0 | p_0 \rangle = M \frac{i}{\hbar kT} \langle [p_0, q_0] \rangle = MkT \quad (2-17)$$

Ce résultat n'est autre que le **théorème d'équipartition** qui s'écrit classiquement

$$\langle p_0^2 \rangle = MkT \quad (2-18)$$

nous retrouvons le résultat classique conformément au **théorème d'Ehrenfest** sur la mesure d'un observable: les écarts quadratiques classique et quantiques coïncident. La fonction d'autocorrelation sous forme du produit de Mori est en effet égale à la susceptibilité statique. Notons qu'une autre mesure pour la moyenne, en particulier le produit symétrisé $\langle ff(t) \rangle$ ne correspond plus forcément à une observable (voir plus loin).

Nous cherchons à expliciter la fonction stochastique

$$f(t) = e^{i\tilde{L}t}\tilde{L}p_0 \quad (2-19)$$

où on a écrit $\tilde{Q}\tilde{L} \equiv L^\perp$

On montre [Fick 1990 p257] que l'opérateur L^\perp décrit la dynamique "induite" par les degrés de liberté orthogonaux (au sens de P) aux degrés de liberté du système mesuré (la masse M):

$$L^\perp p_0 = \frac{1}{\hbar} [H_{sB}, p_0] \quad (2-20)$$

ce qui donne:

$$f(t) = e^{iL^\perp t} \left\{ \sum_j m_j \omega_j^2 (q_j - q_\Gamma) \right\} \quad (2-21)$$

Annexe1

si on définit $q_j^\perp(t)$ tel que $q_j^\perp(t) \equiv e^{iL^\perp t} q_j$ alors les équations du mouvement suivantes et la relation entre variables canoniques (2-16) donnent la dépendance temporelle

$$\begin{cases} \dot{q}_j^\perp = [H_{sB}, q_j^\perp] = \frac{p_j^\perp}{m_j} \\ \dot{p}_j^\perp = [H_{sB}, p_j^\perp] = -m_j \omega_j^2 q_j^\perp \end{cases} \Leftrightarrow \ddot{q}_j^\perp + \omega_j^2 q_j^\perp = 0 \quad (2-22)$$

on a:

$$f(t) = \sum_j m_j \omega_j^2 q_j^\perp(t) = \sum_j m_j \omega_j^2 \left\{ q_j \cos(\omega_j t) + \frac{p_j}{m_j \omega_j} \sin(\omega_j t) \right\} \quad (2-23)$$

le produit de Kubo de la fonction stochastique s'écrit alors:

$$(f(t)/f(t')) = \lim_{N \rightarrow \infty} \sum_{ij}^N \left\{ \begin{array}{l} m_j m_i \omega_j^2 \omega_i^2 (q_j / q_i) \cos(\omega_j t) \cos(\omega_i t') \\ + \omega_j \omega_i (p_j / p_i) \sin(\omega_j t) \sin(\omega_i t') \end{array} \right\} \quad (2-24)$$

dans le cas où toutes les masses m et fréquence ω_0 des oscillateurs de l'environnement sont identiques la fonction mémoire s'obtient, en utilisant l'identité de Kubo,

$$\lim_{N \rightarrow \infty} (f(0)/f(t)) = m 4 \omega_0^2 \frac{J_1(2\omega_0 t)}{2\omega_0 t} \cdot kT \quad (2-25)$$

où J_1 est la fonction de Bessel.

Sachant que

$$\int_0^\infty \frac{J_1(x)}{x} dx = 1 \quad (2-26)$$

l'approximation Markovienne du chapitre I (I-3-3) donne le coefficient d'amortissement

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{1}{(p_0|p_0)} \int_0^\infty (f|f(t)) dt \equiv \frac{D(T)}{(p_0|p_0)} : \\ \gamma &= 2\omega_0 \frac{m}{M} \end{aligned} \quad (2-27)$$

et

$$D(T) = 2\omega_0 m \cdot kT \quad (2-28)$$

La validité de l'approximation Markovienne, et par conséquent la validité de la relaxation exponentielle peuvent être testées rigoureusement par le calcul de la fonction de relaxation.

$$\frac{\langle p_0 | p_0(t) \rangle}{\langle p_0 | p_0 \rangle} = \exp[-\gamma t] + r(t) \quad (2-29)$$

où $r(t)$ est majoré par

$$r(t) < 2 * 1.8 \frac{m}{M} \quad (2-30)$$

pour un rapport de masse inférieur à 10^{-2} , la différence avec une exponentielle ne peut guère être distinguée expérimentalement.

Grâce à ce modèle, basé sur la validité d'un développement en variables canoniques, nous avons accès à des résultats très généraux concernant la "modélisation stochastique":

- **le théorème d'équipartition**
- **la relation fluctuation-dissipation intégrée (2-20)**
- **les critères de validité pour l'approximation Markovienne et la relaxation exponentielle (ou pour le processus stationnaire Gaussien).**

D'autres importantes spécificités concernant le caractère antisymétrique du bruit défini par l'intermédiaire des équations de Langevin quantique sont à opposer au caractère symétrique du bruit mesuré par exemple en fréquence. En effet si la mesure définissant la corrélation de la force stochastique pour le bruit n'était pas le produit de Mori (2-16) mais simplement la trace $\text{Tr}(f(0)f(t))$ alors l'équation (2-24) doit être remplacée par:

$$\langle f(t), f(t') \rangle = \lim_{N \rightarrow \infty} \sum_{ij} \left\{ \begin{array}{l} m_j m_i \omega_j^2 \omega_i^2 \langle q_j, q_i \rangle \cos(\omega_j t) \cos(\omega_i t') \\ + \omega_j \omega_i \langle p_j / p_i \rangle \sin(\omega_j t) \sin(\omega_i t') \end{array} \right\} \quad (2-31)$$

avec

$$\langle q_i, q_j \rangle = \frac{\text{Tr} \{ q_i, q_j e^{-\beta \hat{H}_{sB}} \}}{\text{Tr} \{ e^{-\beta \hat{H}_{sB}} \}} = \frac{\hbar}{2m_j \omega_j} \coth \left(\frac{\hbar \omega_j \beta}{2} \right) \delta_{ij} \quad (2-32)$$

Annexe 1

$$\langle p_i, p_j \rangle = \frac{\hbar m_j \omega_j}{2} \coth\left(\frac{\hbar \omega_j \beta}{2}\right) \delta_{ij} \quad (2-33)$$

en supposant un bruit stationnaire

$$\langle f(t) / f(t + \tau) \rangle = \langle f(0), f(\tau) \rangle \quad (2-34)$$

on a

$$\langle f(0) / f(\tau) \rangle = \sum_i^N m_i \omega_i^3 \hbar \coth\left(\frac{\hbar \omega_i}{2k_B T}\right) \cos(\omega_i \tau) \quad (2-35)$$

Lorsque la limite continue $N \rightarrow \infty$ est effectuée [H. Nakazawa, J. Stat. Phys., 45(1986), 1049] en tenant compte de la limite classique, $\lim_{T \rightarrow \infty} \langle f / f(\tau) \rangle = \eta \cdot kT \delta(\tau)$ où η est le coefficient de friction, on a

$$\langle f / f(\tau) \rangle = \langle [f, f(\tau)]_+ \rangle = \eta \cdot \int_{\Sigma} \hbar \omega \cdot \coth\left(\frac{\hbar \omega}{kT}\right) \cdot \cos(\omega \tau) d\omega \quad (2-36)$$

où $[f, f(t)]_+$ désigne l'anticommutateur $1/2(ff(t)+f(t)f)$ et Σ est un ensemble défini par la procédure de limite continue mais tend, au risque de catastrophe ultraviolette (la divergence à l'infini), à couvrir tout le spectre.

Cette égalité fournit le spectre en fréquence

$$S(\omega) = \eta \cdot \hbar \omega \cdot \coth\left(\frac{\hbar \omega}{kT}\right) \quad (2-37)$$

établi par [Nyquist 1928] pour la résistance électrique, confirmé par Callen et Welton [Callen 1951]. Ce spectre a été observé sur des Jonctions Josephson [Koch 1982,1981] dont les dimensions sont très comparables à la taille des systèmes étudiés dans les chapitres suivants.

Il semblerait donc que le bruit entrant dans la définition du coefficient d'amortissement et le bruit mesuré directement par des méthodes spectroscopiques (ou via le théorème fluctuation dissipation en fréquence) soient de nature différente dans le régime quantique. Cette constatation n'est pas inutile après avoir appliqué trop rapidement Gardiner [Gardiner 1991] au traînage magnétique: "Pragmatically, the results of this experiment show that there is considerable validity in a treatment based on a classical noise theory with a modified "quantum" spectrum".

La relation mathématique entre les deux "définitions" du bruit, avec le produit de Mori (2-16) et avec l'anticommutateur (2-36) est résumée dans le théorème dit "**second théorème de fluctuation-dissipation**"

$$\left\langle \left[f(\omega)^+, f(\omega) \right]_+ \right\rangle = \frac{\hbar\omega}{2\pi kT} \cdot \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2kT}\right) \cdot (f(\omega)|f(\omega)) \quad (2-38)$$

A titre de comparaison, le "premier" théorème fluctuation-dissipation s'écrit

$$\left\langle \left[\delta X(\omega)^+, \delta Y(\omega) \right]_+ \right\rangle = \frac{\hbar\omega^2}{\pi} \cdot \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2kT}\right) \cdot \chi''_{xy}(\omega) \quad (2-39)$$

où X et Y sont les variables pertinentes (voir annexe 2), $\chi(\omega)$ est la susceptibilité alternative et $\chi''(\omega)$ sa partie imaginaire.

A titre de conclusion, nous dirons que la spécificité propre aux mesures de systèmes à relaxation lente fait que la grandeur pertinente est le bruit apparaissant dans le coefficient d'amortissement (ou le temps de relaxation). Ce bruit, contrairement au bruit habituellement mesuré en fréquence, n'est pas symétrisé mais antisymétrisé. La comparaison des deux types d'expériences doit donc être menée avec précautions⁴

A-2-3 Couplage spin-bain thermique

On considère le modèle de spin décrit par un Hamiltonien en trois parties

$$H = H_S + H_{SB} + H_B \quad (2-40)$$

Le premier terme représente le système de spins mesuré, le deuxième le couplage avec l'environnement (le Bain) et le troisième est l'environnement.

$$H_S = -\omega_0 \sum_j s_j^z$$

$$\omega_0 = gh - \frac{1}{N} \sum_j \langle B_j^z \rangle_B \quad (2-41)$$

g est le rapport gyromagnétique et h le champ appliqué.

Le deuxième terme représente l'Hamiltonien de couplage des spins avec le bain thermique suivant :

⁴ Les expérimentations comparatives sont maintenant possibles grâce aux travaux de Vitale et al. [S. Vitale, B. Barbara, A. Cavalleri, M. Cerdonio, A. Ratnam, Physica B, 194(1994), 259]

Annexe 1

$$H_{SB} = \sum_j \left(B_j^+ s_j^- + B_j^- s_j^+ + \left(B_j^z - \langle B_j^z \rangle \right) s_j^z \right) \quad (2-42)$$

Il peut s'agir pour B d'opérateur de phonons ou de magnons (voir l'annexe A II-3-6) dans le cas d'un couplage avec le réseau ou encore d'un opérateur de densité de spin dans le cas d'échange avec les électrons de conduction. La structure exacte du bain ne devrait pas jouer un rôle essentiel d'après les résultats expérimentaux.

On suppose que $\langle B_j^\pm \rangle_B = 0$ et $\langle B_j^z \rangle_B = \langle B_k^z \rangle_B$ où la moyenne est prise sur le bain thermique de densité $1/Z_B \exp(-H^B/kT)$.

L'observable est l'aimantation longitudinale

$$S^z = \sum_{j=1}^N s_j^z \quad (2-43)$$

la fonction de relaxation est

$$\phi(t) = \frac{1}{k_B T} \left(\delta S^z | \delta S^z(t) \right) \quad (2-44)$$

cette fonction détermine le comportement de la moyenne $\langle \delta S^z \rangle(t)$ après avoir coupé le champ magnétique. On a pris :

$$\delta S^z = \sum_j \left(s_j^z - \langle s_j^z \rangle \right) \quad (2-45)$$

dans la théorie de Mori, le projecteur s'écrit :

$$P = \frac{|\delta S^z \rangle \langle \delta S^z|}{\langle \delta S^z | \delta S^z \rangle} \quad (2-46)$$

Comme il n'y a qu'un seul observable Hermitien, l'équation de Mori s'écrit simplement

$$\frac{d\phi(t)}{dt} = - \int_0^t g(t') \phi(t-t') dt' \quad (2-47)$$

où la fonction mémoire $g(t)$ est donné par l'équation (1-14) de l'annexe 2.

Si le couplage est suffisamment faible, on peut appliquer l'approximation Markovienne:

$$\boxed{\frac{d\phi(t)}{dt} = -\Gamma\phi(t)}$$

(2-48)

Cela implique une relaxation exponentielle. Le coefficient d'amortissement s'écrit, d'après l'équation (1-21) de l'annexe 2.

$$\Gamma = \frac{1}{(\delta S^Z | \delta S^Z)} \int_0^\infty \left(\dot{S}^Z \left| e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t'} \tilde{Q} \dot{S}^Z \right. \right) dt' = \frac{D(T)}{(\delta S^Z | \delta S^Z)} \quad (2-49)$$

Dans la théorie des perturbations, le premier terme $1/(\delta S^Z | \delta S^Z)$ (l'inverse de la susceptibilité isotherme de l'aimantation longitudinale χ_{zz} au facteur $k_B T$ près) est pris à l'ordre zéro, c'est-à-dire indépendamment de la contribution du bain. En revanche, le deuxième terme, le bruit $D(T)$, doit être calculé à l'ordre deux (voir [Fick 1990], chapitre 12).

En notant que dans la formule du coefficient d'amortissement, l'opérateur Q n'agit pas sur S^Z au premier ordre, car S^Z commute avec H_0 . Avec l'équation du mouvement

$$\dot{S}^Z = \frac{i}{\hbar} [H_1, S^Z] = i \sum_j (B_j^+ s_j^- - B_j^- s_j^+) \quad (2-50)$$

De plus on a

$$e^{iL t} B_j^\pm s_j^\mp = \left(e^{iL_B t} B_j^\pm \right) e^{\pm i\omega_0 t} s_j^\mp \quad (2-51)$$

ce qui permet de factoriser les valeurs moyennes sur les distributions $\exp(-H_B/kT)$ et $\exp(-\omega_0 S^Z/kT)$ respectivement:

Si on définit $\chi''_B(\omega_0)$ comme étant la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi_B(\omega_0)$ du bain:

$$\chi''_{B_j}(\omega_0) = \int_0^\infty \frac{i}{\hbar} \left\langle [B_j^-, B_j^+] \right\rangle_B e^{i\omega t} dt \quad (2-52)$$

alors le bruit peut s'écrire

$$D(T) = \frac{\hbar}{\pi \cdot \sinh\left(\frac{\hbar\omega_0}{2k_B T}\right)} \left[e^{\frac{\hbar\omega_0}{kT}} \langle s_j^+ s_j^- \rangle - e^{-\frac{\hbar\omega_0}{kT}} \langle s_j^- s_j^+ \rangle \right] \sum_j \chi''_{B_j}(\omega_0) \quad (2-53)$$

Dans le cas d'un spin 1/2, les moyennes et corrélations sur les spins peuvent être calculées et

$$D(T) = \frac{\hbar^3}{2} \cdot \frac{1}{\cosh\left(\frac{\hbar\omega_0}{2k_B T}\right) \sinh\left(\frac{\hbar\omega_0}{2k_B T}\right)} \sum_j \chi''_{B_j}(\omega_0) \quad (2-54)$$

Ce modèle donne donc une idée des possibilités qu'offre la théorie de Mori pour comprendre la dynamique de l'aimantation lors des expériences de traînage magnétiques.

A-3 Exemples de calculs de bruit dans les systèmes magnétiques

A-3-1 Modèles dans l'espace de phase généralisé, exemple du modèle de F. Shibata et N. Hashitsume

Dans le cadre des systèmes dissipatifs, l'élaboration d'une équation de Langevin quantique rigoureuse des systèmes magnétiques passe par des développements en états cohérents [Gardiner 1991, chapitre 4].

Il n'est guère concevable de traiter la relaxation de spins en régime quantique sans mentionner l'oeuvre de F. Shibata, N. Hashitsume et M. Asou. Ces auteurs ont élaboré une méthode basée sur les Opérateurs de Projection dans la lignée des travaux de Mori, c'est-à-dire aboutissant à une équation du type équation (2-17) du paragraphe A-1-1 mais définis à partir de représentations en états cohérents [Shibata 1978a][Shibata 1978b][Shibata 1980a][Shibata 1980b][Asou 1981][Asou 1981b][Shibata 1993]. Cette représentation permet d'exprimer les opérateurs de projection (et les moyennes) en termes d'opérateurs de multiplication, de division et de dérivation par rapport aux paramètres des états cohérents. La méthode a permis aux auteurs de décrire en détail et rigoureusement la relaxation d'un spin quantique en contact avec un réservoir. Nous ne décrivons pas cette méthode ici, mais nous exposons les principaux résultats dans leurs forme non développée. Les auteurs ont

obtenu une équation du type équation de Bloch non linéaire et l'ont résolue pour certaines valeurs du spin.

Comme précédemment, l'Hamiltonien est décomposé en trois parties

$$H = H_S + H_{SB} + H_B$$

$$H_S = \omega_0 S_Z$$

$$\omega_0 = gh$$

et

$$H_{SB} = \alpha \vec{S} \cdot \vec{B}$$

L'équation obtenue est la suivante:

$$\frac{d\langle S_Z \rangle}{dt} = -\gamma \langle S_Z \rangle(t) + D(T) \cdot [J(J+1) - \langle S_Z^2 \rangle]$$

avec la relation fluctuation dissipation:

$$D(T) = -\tanh\left(\frac{\omega_0}{2kT}\right) \cdot \gamma$$

Les égalités suivantes ont été obtenues pour des conditions initiales arbitraires:
pour $S=1/2$

$$\langle \delta S_Z \rangle(t) = \langle \delta S_Z \rangle e^{-\gamma t} + \langle \delta S_Z \rangle_{eq} (1 - e^{-\gamma t})$$

pour $S=1$

$$\langle \delta S_Z \rangle(t) = \langle \delta S_Z \rangle_{eq} + c_1 e^{-\gamma_1 t} + c_2 e^{-\gamma_2 t}$$

où c_1 et c_2 sont des fonctions hyperboliques de $\frac{\omega_0}{2kT}$ et $\gamma_{1,2} = \gamma \left(2 \pm \frac{1}{\cosh\left(\frac{\omega_0}{2kT}\right)} \right)$

le deuxième moment $\langle \delta S^2 \rangle(t)$ suit la même loi temporelle que $\langle \delta S \rangle(t)$.

pour $S=3/2$

$$\langle \delta S_Z \rangle(t) = c_0 + c_1 e^{-\gamma_1 t} + c_2 e^{-\gamma_2 t} + c_3 e^{-\gamma_3 t}$$

les c_1, c_2, c_3 sont aussi des fonctions de $\tanh\left(\frac{\omega_0}{2kT}\right)$.

Le cas plus général s'écrit

$$\langle \delta S_z^1 \rangle(t) = c_{0,1} + \sum_{n=1}^{2s} c_{n,1} e^{-\gamma_n t}$$

Les auteurs montrent en outre que lorsque le rapport $\frac{\omega_0}{2kT}$ est petit, la relaxation de $\langle \delta S_z \rangle(t)$ est décrite par une seule exponentielle (correspondant au plus grand temps de relaxation $1/\gamma$). La somme sur les différentes exponentielles (et la nature non linéaire de la relaxation) provient donc uniquement du caractère quantique du phénomène.

Les dépendances thermiques données dans ces références sont trop complexes pour être exploitables expérimentalement (par ajustement des données expérimentales). Néanmoins, elles ne sont en rien contradictoires avec l'expérience (voir chapitres suivants). Elle témoignent du fait qu'une très riche variété de comportements en fonction de la température doit être attendue indépendamment de toute barrière de potentiel.

Les résultats du modèle de Cuccoli et al.

Indépendamment (semble-t-il) du travail ci-dessus et dans le cadre spécifique des chaînes de spins quantiques, [Cuccoli 1992] ont élaborés un calcul de relaxation dont un résultat est exposé ici en raison de l'intérêt qu'il contient relativement au problème des corrections quantiques du bruit classique en kT . Ce résultat s'appuie sur une méthode de potentiel effectif mise au point par R. Giachetti et V. Tognetti [Giachetti 1985] (Pure Quantum Self Consistent Harmonic Approximation) pour obtenir un potentiel harmonique effectif. L'Hamiltonien modélise une chaîne ferromagnétique avec un plan de facile aimantation (terme d'anisotropie) et un champ magnétique transverse. Les moyennes et fonctions de corrélations sont obtenues avec des termes correctifs quantiques.

Figure (A-3)

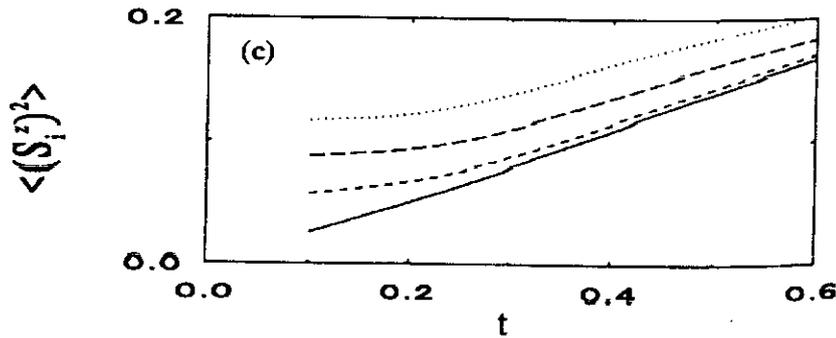


Figure (A-3): courbes tirées de la référence Cuccoli et al. de calcul de la dynamique de chaînes de spins traitée sur la base des équations stochastiques en états cohérents. Les fluctuations longitudinales $\langle (S_z)^2 \rangle$ sont représentées en fonction de la température. La ligne continue est le résultat du calcul classique et les courbes au dessus de bas en haut sont calculées avec une constante de couplage quantique croissante. On note l'apparition d'un plateau à basse température d'origine quantique. Ces courbes sont à comparer à la Figure (1) de l'introduction.

La Figure(A-3) tirée de la référence montre les fluctuations de la composante longitudinale $\langle S_z^2 \rangle$ en fonction de la température et suivant la valeur d'un paramètre g décrivant l'intensité du couplage quantique. Lorsque g est nul, $\langle S_z^2 \rangle$ est proportionnel à kT . Lorsque le couplage augmente, il se dessine un plateau à basse température, caractéristique de l'écart à la loi d'Arrhenius, indépendant d'un effet tunnel, mentionné au chapitre IV (IV-1).

A-3-2 Un exemple classique de modélisation du bain magnétique

Le formalisme des équations de Langevin non linéaires décrivant un système qui relaxe vers la distribution canonique et présenté paragraphe I-2-2 a été appliqué au système de spins [Seshadri 1982] Il conduit à des descriptions de $D(T)$ et γ explicité en fonction de la température par le calcul des équations de la dynamique des degrés de liberté du système et du bain.

Nous présentons ce modèle ici car il est l'analogue, pour les systèmes magnétiques, du calcul de modélisation du bain du type [Ford 1965], et exposé dans le formalisme quantique de Mori au paragraphe II-2-2. Ce modèle montre les limites de validité de la description des systèmes de spins à l'aide d'un Hamiltonien quadratique en fonction des variables canoniques.

L'Hamiltonien de départ décrit un macrospin \vec{M} qui interagit avec le champ extérieur h_0 et avec un "bain de microspins" \vec{m}^V . \vec{m}^V représente un degré de liberté

Annexe1

(vectoriel) de l'environnement dans l'espace des spins. L'indice v représente la position de ce moment dissipatif dans l'espace (modèle du type chaîne de Rubin, cf. ci-dessus). L'interaction du macrospin avec les microspins est du type Heisenberg (i.e. Ruderman-Kittel) et se décrit par une constante de couplage G_v , différente entre chaque cite v .

Le découpage de l'Hamiltonien s'écrit

$$H = H_S + H_{SB} + H_B$$

en respectant l'ordre des termes:

$$H = -\bar{h}_0 \cdot \bar{M} + \sum_v G_v \bar{M} \cdot \bar{m}^v - \sum_v (\bar{h}_0 - \bar{h}_v) \cdot \bar{m}^v$$

h_v est la contribution locale au champ magnétique, distribuée de façon aléatoire $\sum h_v = 0$. Le calcul des équations du mouvement pour tous les degrés de liberté se déduit du formalisme Hamiltonien avec les relations suivantes en termes de crochets de Poisson :

$$\begin{aligned} \{M_x, M_y\} &= g_0 M_z \\ \{m_x^v, m_y^v\} &= g_0 m_z^v \end{aligned} \quad \text{et permutations circulaires.}$$

g_0 est le produit du rapport gyromagnétique et du magnéton de Bohr du spin m .

La résolution des équations du mouvement des degrés de libertés de l'environnement au premier ordre en la constante de couplage G , insérée dans les équations de M_z conduit à une équation différentielle du type équation de Langevin non linéaire avec, dans les notations du chapitre I: $f(t)$ est la force stochastique et $g(t)$ est la fonction mémoire,

$$\begin{aligned} f(t) &= \sum_v g_v G_v m_+^v(0) e^{i\omega_v t} \\ g(t) &= \sum_v g_v^2 G_v^2 \langle m_+^v \rangle(0) e^{i\omega_v t} \end{aligned}$$

la moyenne est prise à l'équilibre avec la distribution canonique

$$W_0(\{m_+^v, m_-^v, m_z^v\}) = \frac{1}{4\pi} \prod_v \frac{(a_v H_0 / kT)}{\sinh(a_v H_0 / kT)} \exp\left[\frac{a_v H_0}{kT} \cos\theta_v\right]$$

où a est l'amplitude constante des spins du bain thermique;

$$m_{\pm}^v = a_v \sin \theta_v e^{\pm i \phi_v}, m_z^v = a_v \cos \theta_v.$$

A est l'amplitude constante du macrospin

$$M_{\pm} = A \sin \theta. e^{\pm i \phi}, M_z = A \cos \theta.$$

La relation entre $f(t)$ et $g(t)$ conduit, avec l'approximation Markovienne

$$g(t) = 2\gamma \delta(t)$$

à la relation fluctuation-dissipation classique suivante :

$$D(T) = \frac{4kT}{H_0} \gamma$$

A l'approximation à l'ordre 2 en m^v , et à la limite continue, en introduisant une densité d'états on obtient :

$$\gamma = \left[a \cdot \coth\left(\frac{aH_0}{kT}\right) - \frac{kT}{H_0} \right] Q(\omega_c)$$

où $Q(\omega_c)$ est une fonction de la fréquence de coupure haute ω_c et de la densité d'état. Ce calcul ne prend pas en compte les caractéristiques proprement quantiques de l'aimantation.

L'équation stochastique de l'aimantation longitudinale s'écrit alors

$$\frac{d\langle M_z \rangle}{dt} = -\frac{2kTD}{H_0} \langle M_z \rangle(t) + D \cdot [A^2 - \langle M_z^2 \rangle]$$

Cette équation ((3.4) de la référence [Seshadri 1982] est semblable en tout point à l'équation écrite au paragraphe (A-3-1) ci-dessus de la références [Shibata 1980a]), exceptés les valeurs et les dépendances thermiques des coefficients. Il est amusant de noter que ce travail a été développé indépendamment bien qu'il fut soumis dix mois après la publication du travail nippon, "The most important of these is the occurrence of the nonlinear dissipative terms. With the exception of one phenomenological analysis in the Langevin limit [Kawabata 1972], these terms have been absent in previous equations of motion used for spin problem". Cela paraît rassurant quand à la validité de l'équation proposée.

En linéarisant avec

$$\langle M^2 \rangle \approx \langle M \rangle \langle M(\infty) \rangle + \left[\langle M^2(\infty) \rangle - \langle M(\infty) \rangle^2 \right]$$

On en déduit un coefficient de friction effectif pour l'équation linéarisée (l'équation de Bloch) :

$$\frac{d\langle M \rangle(t)}{dt} = -\gamma_{\text{eff}} [\langle M \rangle(t) - \langle M \rangle(\infty)]$$

Soit :

$$\gamma_{\text{eff}} = \gamma \left[\frac{kT}{H_0} + A \coth \left(\frac{AH_0}{kT} \right) \right]$$

Où A est l'amplitude du moment magnétique : $M_z = A \cos \theta$.

A haute température ($kT \gg aH_0$ et $kT \gg AH_0$), un développement au second ordre de la cotangente hyperbolique montre que le taux de relaxation ne dépend pas de la température, de même qu'à basse température ($kT \ll aH_0$ et $kT \ll AH_0$).

avec $D_{\text{eff}}(T) = \frac{4kT}{H_0} \gamma_{\text{eff}}$, à limite haute température de $D(T)$ est proportionnelle à

T ainsi que la limite basse température.

Les considérations sur la dépendance thermique du bruit ci-dessus n'ont de sens qu'à condition d'ignorer la dépendance thermique de la fonction de la fréquence de coupure $Q(\omega_c)$. La validité de la pertinence d'une description des équations du mouvement d'un même macrospin à haute et basse température peut être mise en doute ainsi que la pertinence du régime classique à basse température. Ces deux points sont les points faibles du modèle présenté ci-dessus. Néanmoins il est remarquable qu'une description aussi simple dans ces principes puisse rivaliser dans l'établissement de l'équation de Langevin, avec la description compliquée issue des techniques des opérateurs de projections couplée avec les développements en états cohérents exposés au paragraphe précédent.

Il est donc assez réaliste de considérer des corrections aux dépendances thermiques du bruit habituelles, sans évoquer un processus quantique.

Conclusion

Nous avons exposé dans cette annexe des résultats obtenus par l'utilisation des techniques des opérateurs de projection, permettant de découpler la dynamique d'un système étudié de la dynamique de son environnement.

Une application a été proposée portant sur les mesures de traînage magnétique dans des systèmes de spins étudiés au chapitre II et III.

L'application de la théorie de la réponse linéaire sur un ensemble statistique de macrospins, qui définit l'aimantation, aboutit à deux formes de réponses possibles: la réponse à une perturbation d'origine thermique et la réponse à une perturbation de champ extérieur.

Lorsque les réponses sont moyennées sur un grand ensemble de sous-systèmes de coefficients de friction uniformément distribués, il semble possible de retrouver les résultats du modèle usuel en termes de processus d'activation thermique.

Le modèle en réponse linéaire aboutit à une formule (équation (1-22) décrivant la dépendance thermique de la relaxation de l'aimantation. Cette dépendance est donnée par la forme thermique du bruit $D(T)$ agissant sur le macrospin.

La formule (1-22) de la vitesse de relaxation logarithmique est représentée Figure (A-4), avec une forme thermique du bruit $D_p(T) = \eta k T_p \cdot \text{Coth}(T_p/T)$ et pour les deux limites $h=0$ et $\lambda=0$. Ces courbes coïncident avec les formes thermiques mesurées dans les chapitres expérimentaux.

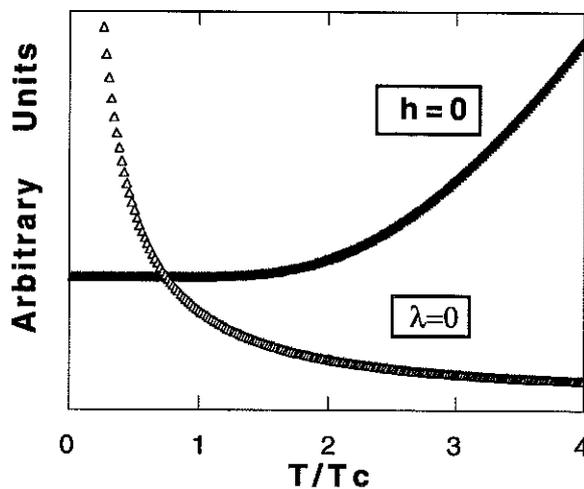


Figure (A-4):

profil en température de la vitesse de relaxation logarithmique de l'équation (1-22) avec un bruit en cotangente hyperbolique de $1/T$. Les deux cas de réponse sont présentés: cas de la réponse à un champ extérieur $\lambda=0$ et cas de la réponse à une perturbation thermique $h=0$. Ces courbes sont à comparer avec la Figure(1) du chapitre IV, et les figures représentant la vitesse de relaxation exposées dans les chapitres expérimentaux II et III.

Annexe 1

La question a été posée de savoir si l'écart aux prédictions du modèle classique, observé à basse température dans les expériences de traînage magnétique, peut être dû à une correction quantique du bruit $D(T)$ (en particulier du bruit quantique $D(T) \propto \coth(T_0/T)$).

A la suite de cette étude bibliographique, un certain nombre de points ont été dégagés:

- Il apparaît qu'une correction quantique du bruit dans la théorie de Mori est incompatible avec la relaxation d'une particule Brownienne "canonique" dans un potentiel harmonique et linéairement couplée au bain. Ces corrections ne peuvent provenir que de spécificités des systèmes de spins et de leur couplage avec un environnement magnétique, soit des potentiels non harmoniques dans lesquels le système se trouve [Eckerne 1990].

- Le modèle général d'interaction spin-bain thermique présenté montre que lorsque l'on considère les singularités propres aux systèmes de spins, des corrections telles que celles mentionnées ci-dessus pour $D(T)$ sont envisageables. Les corrections quantiques mènent, dans le cas de la Figure (A-3), aux mêmes écarts à la loi classique que les écarts constatés expérimentalement pour la fonction d'autocorrélation. L'exemple suivant (A 3-2) montre cependant que ces écarts peuvent aussi être dus à des profils classiques du bruit dans les systèmes de spins.

- L'éventualité d'un profil thermique du bruit $D(T)$ autre que proportionnel à la température à basse température reste vraisemblable sans évoquer un mécanisme explicitement quantique.

Annexe 2

La théorie de la réponse linéaire de Kubo-Mori

Introduction.....	221
A2-1 Le formalisme des opérateurs de projection et l'équation de Mori	222
A2-3-1 les opérateurs de projections	224
A2-3-2 L'équation de Mori	226
A2-3-3 Variables lentes et approximation Markovienne	229
A2-3-4 Réponse linéaire à un état de non-equilibre initial et produit scalaire de l'espace de Liouville.....	230
A2-3-5 L'égalité de Kubo	233
A2-3-6 La réponse linéaire à un champ extérieur	234
A-2 Compatibilité entre deux approches, état métastable et réponse linéaire	240
A-2-1 Le modèle de Weidlich et Grabert	241
A-2-2 Liens avec le formalisme de Mori	246
A-2-3 Quelques exemples d'applications simultanées des deux méthodes.....	247

Annexe 2

Processus stochastiques: la théorie de la réponse linéaire

Introduction

La première conséquence de la diminution des tailles des objets est de rendre leurs propriétés dynamiques particulièrement sensibles aux effets de leurs configurations microscopiques individuelles ou des états microscopiques de leur environnement. En d'autres termes chaque mesure accède à une réalisation particulière du système (un chemin donné), c'est-à-dire encore à une réalisation d'une variable aléatoire. En conséquence, plus le système est petit, plus les moyennes statistiques vont être sensibles à l'action des grandeurs aléatoires intervenant dans la dynamique et ainsi, plus le caractère probabiliste de la description s'affirme. L'idée de décrire la sensibilité de la réponse d'un système aux perturbations aléatoires en fonction de sa taille a été exploitée de façon systématique ([Van Kampen 1961]) et a donné lieu à une description des phénomènes irréversibles qui sont fondamentalement discontinus à l'échelle microscopique en termes d'équations continues avec des termes stochastiques. Ce sont les équations de Fokker-Planck ou les équations du type Langevin avec des généralisations à coefficients dépendant du temps. L'équation quantique de Mori présentée ici est une équation stochastique construite sur la base des équations microscopiques du système et de son environnement.

Cette annexe met particulièrement l'accent sur les approximations linéaires qui sont utilisées dans les théories utilisant les techniques des opérateurs de projection. En premier lieu il faut clarifier la double utilisation du terme linéaire dans notre seul contexte.

- Il existe d'une part la linéarité des équations de la dynamique par rapport aux variables considérées, qui ne concerne qu'une petite famille de systèmes, ou plus généralement par rapport aux moyennes des variables considérées (il s'agit des "dissipations ohmiques" ou "approximations de Langevin" etc...) qui semblent

concerner la grande classe de systèmes. Le passage d'une équation stochastique non linéaire à une équation linéaire par rapport aux moyennes constitue la procédure de linéarisation stochastique (ou de procédure de "renormalisation" des équations de transport). Cette propriété de linéarité semble émerger sous des conditions peu restrictives (voir partie A-2).

• On utilisera d'autre part le terme de linéarité pour parler des développements perturbatifs au premier ordre dans **la théorie de la réponse linéaire de Kubo** [Kubo 1957]. Il s'agit maintenant de linéarité de la réponse par rapport à la perturbation dépendante du temps. Cette approximation permet de relier simplement les propriétés du système à l'équilibre thermodynamique à la relaxation.

Par exemple, dans le formalisme des opérateurs de Liouville, les deux approximations sont basées sur un développement au premier ordre d'une fonction de l'opérateur de Liouville \tilde{L} (ou encore de façon équivalente, des opérateurs de Fokker Planck $\tilde{\ell}$). On a les deux situations :

(a) \tilde{L} ne dépend pas explicitement du temps et se décompose en un terme correspondant au système mesuré et un terme de couplage avec l'environnement. L'approximation au premier ordre conduit à une équation du type Langevin-Mori (paragraphe A-1-2).

(b) $\tilde{L}(t)$ se décompose en un terme stationnaire et un terme perturbatif dépendant du temps. Un calcul de perturbation au premier ordre conduit à la formule de la réponse linéaire de Kubo (paragraphe A-1-5).

En outre, une approximation fondamentale est l'**approximation Markovienne**. Elle consiste à supposer que l'action des grandeurs dissipatives sur le système considéré n'a pas de mémoire. Autrement dit, les forces stochastiques ne sont pas corrélées au delà d'un temps infinitésimal par rapport à la dynamique du système étudié. Cette approximation peut être contrôlée à partir de considérations microscopiques par l'intermédiaire de la théorie de Mori-Zwanzig (paragraphe (A-1-4)).

A2-1 Le formalisme des opérateurs de projection et l'équation de Mori

Avertissement: dans la description des grandeurs physiques, les opérateurs de l'espace de Hilbert sont notés de la même façon que les éléments de l'espace réel ou

Annexe 2

complexe. En revanche, les opérateurs de l'espace de Liouville, agissant eux même sur des opérateurs (de l'espace de Hilbert ou de l'espace L^2 des fonctions de carrés sommables, par exemple) sont différenciés par un tilde. Par exemple le projecteur \tilde{P} ou l'opérateur de Liouville \tilde{L} .

Dans un premier temps on prendra un système fermé, sans perturbation extérieure, et donc décrit par son Hamiltonien H indépendant du temps. Par exemple il suffit de prendre le sous-système S qui est l'objet d'étude, couplé avec un environnement de telle sorte que des échanges d'énergie sont possibles entre le sous-système et l'environnement, simulant ainsi la dissipation. Le problème est ensuite de dissocier, dans la dynamique du sous-système S , l'action des degrés de liberté de l'environnement.

Dans le formalisme de Mori-Zwanzig [Zwanzig 1961], [Mori 1965], [Forster 1975], [Fick 1990], l'action des fluctuations des forces stochastiques peut a priori être calculée à partir de l'Hamiltonien comprenant les degrés de liberté de l'environnement, y compris leur dépendance thermique. Les équations du mouvement comprenant toutes les variables sont réduites à la dynamique de quelques variables pertinentes¹ [Balian 1986] Ces dernières sont choisies en fonction des grandeurs accessibles à la mesure et sont donc étroitement liées à une procédure expérimentale². Il peut s'agir par exemple de constantes du mouvement, de modes hydrodynamiques, de paramètres d'ordres, de variables collectives etc.... La méthode des projecteurs permet de réaliser pas à pas et de façon contrôlée l'élimination des autres degrés de libertés non pertinents en prenant en compte leurs effets sur la dynamique des variables pertinentes. C'est l'opération de "coupure" ou granulation entre le microscopique et le macroscopique qui permet d'accéder au niveau mésoscopique de description défini par Van Kampen.

Dans la théorie de Mori présentée ci-dessous, les opérateurs de projections sont définis de façon à linéariser ("renormaliser") l'équation de Langevin par rapport à la variable "collective" X . Cette procédure donne un coefficient linéaire $A(X,t)$ et toutes les composantes non linéaires issues des interactions avec les variables non pertinentes ou avec les autres variables pertinentes seront contenues dans les termes "stochastiques" (bruit et coefficients cinétiques), c'est-à-dire seront traitées comme étant des termes dissipatifs (la procédure de projection est en effet à l'origine de la

¹"relevant variables" en anglais, C. Itzikson parlait de "variables essentielles".

²Ce type de description est justifié sur la base des théories de l'information et est étroitement lié au problème de la mesure en physique et particulièrement en mécanique quantique [Balian 1986]. Ces théories permettent de définir la forme de l'opérateur statistique généralisé $\rho(t,\lambda)$ (utilisé plus bas équation (3-23)) en fonction du choix de l'ensemble des variables pertinentes.

brisure de symétrie temporelle).

Dans le formalisme de Liouville la dérivée d'une fonction f par rapport au temps s'écrit

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + [H, f] \quad (1-1)$$

H est l'Hamiltonien du système. Le symbole $[.,.]$ représente les crochets de Poisson dans le cas où f est une fonction réelle des variables de l'espace de phase. Le symbole $[.,.]$ représente le commutateur à $i\hbar$ près dans le cas où f est une fonction d'opérateurs de l'espace de Hilbert à valeur dans l'espace de Hilbert. On utilise dans les deux cas le terme générique d'observable X pour les variables pertinentes au sens défini ci-dessus.

L'opérateur linéaire \tilde{L} de Liouville est défini par $i\tilde{L} \equiv \frac{i}{\hbar}[H, \cdot] \equiv \sum \left[\frac{\partial H}{\partial p_j} \cdot \frac{\partial \cdot}{\partial r_j} - \frac{\partial H}{\partial r_j} \cdot \frac{\partial \cdot}{\partial p_j} \right]$ dans l'espace vectoriel de Liouville \mathfrak{S} dont

les éléments sont les opérateurs de l'espace dans lequel est défini l'observable X (\tilde{L} est un "superopérateur")³.

Pour toute observable X explicitement indépendante du temps (ou pour un opérateur de Liouville indépendant du temps dans la formulation de Heisenberg), on a en appliquant (1-1):

$i\tilde{L}X = \frac{i}{\hbar}[H, X] = \dot{X}$ qui s'intègre formellement en $X(t) = e^{i\tilde{L}t} X$. On notera toujours par la suite X pour $X(t=0)$.

Les équations de Hamilton (ou de Heisenberg) du mouvement s'écrivent donc

$$\dot{X}(t) = e^{i\tilde{L}t} \dot{X} = e^{i\tilde{L}t} i\tilde{L}X. \quad (1-2)$$

A2-3-1 les opérateurs de projections

Pour simplifier nous allons supposer qu'une seule variable pertinente $X(t)$ décrit le système.

On définit alors l'opérateur de projection $\tilde{P} \in \mathfrak{S}$ sur l'axe X défini par l'observable au temps initial de la façon suivante :

³Une transformation par un opérateur linéaire dans l'espace de Hilbert $F \rightarrow AFA^{-1}$ est représentée par un opérateur $\tilde{A} \in \mathfrak{S}$ de l'espace de Liouville $\tilde{A}F = AFA^{-1}$.

Annexe 2

$$\tilde{P} = \frac{|X\rangle\langle X|}{\langle X|X\rangle} \quad (1-3)$$

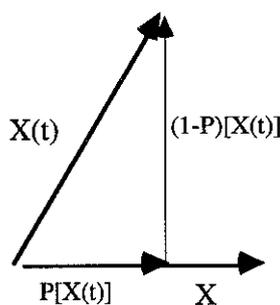
où l'observable X au temps initial est un vecteur de l'espace de Hilbert, noté vectoriellement ci-dessus à l'aide d'un "bra" ($|X\rangle \equiv X$).

Appliqué à une observable quelconque G ,

$$\tilde{P}G = \frac{\langle G|X\rangle}{\langle X|X\rangle} \cdot X$$

Le produit scalaire ($G|X$) dans l'espace de Liouville sera défini au paragraphe (A2-3-4) comme étant produit scalaire⁴ de Kubo-Mori. Ce produit scalaire est défini comme une fonction de corrélation stationnaire prise sur la distribution canonique à l'équilibre:

$$\rho_0 = \frac{\exp[-\beta H]}{\text{Tr}(\exp[-\beta H])}. \quad (1-4)$$



Typiquement, on prendra $G=X(t)$. (Fig. 2) :

Le problème se généralise facilement au cas où on a un ensemble d'observables pertinent $\{X_i\}$. Dans ce cas $X_i(t)$ pour i fixé n'est pas une combinaison linéaire des $\{X_i\}$ du fait de l'action sur la dynamique des autres degrés de liberté dissipatifs.

Indépendamment de la définition de \tilde{P} , on peut toujours définir \tilde{Q} tel que $\tilde{Q} = 1 - \tilde{P}$ projette sur l'axe perpendiculaire, c'est-à-dire le sous espace qui est construit par les degrés de liberté responsables de la dissipation.

⁴ Le produit scalaire appelé ici "produit de Kubo-Mori" (d'après les références [Fick 1990] et [Nakazawa 1989]) prend des appellations diverses suivant les contextes utilisés. On le trouve par exemple sous l'appellation de "Duhamel two-point function" dans la référence [Dyson 1978] et les références qui y sont citées.

On a les propriétés suivantes :

$$\tilde{P}X=X \quad (1-5a)$$

$$\tilde{Q}X=0 \quad (1-5b)$$

et $\tilde{P}\tilde{Q}=\tilde{Q}\tilde{P}=0$ (orthogonalité) , $\tilde{P}^2=P$, $\tilde{Q}^2=Q$ (idempotence)

A2-3-2 L'équation de Mori

L'action de l'opérateur $1=\tilde{P}+\tilde{Q}$ inséré dans l'équation du mouvement $\dot{X}(t) = e^{i\tilde{L}t}\dot{X}$ permet de décomposer la dynamique sur les deux axes.

$$\dot{X}(t) = e^{i\tilde{L}t}P\dot{X} + e^{i\tilde{L}t}Q\dot{X} \quad (1-6)$$

De même en décomposant $\tilde{L} = \tilde{P}\tilde{L}+\tilde{Q}\tilde{L}$ dans l'exponentielle $e^{i\tilde{L}t}$ pour le deuxième terme à droite de l'égalité. Dans le cas classique comme dans le cas quantique, \tilde{L} est un opérateur, de sorte qu'il est nécessaire d'utiliser une propriété peu usuelle de l'exponentielle d'une somme d'opérateurs (cette égalité est reprise dans le cadre de la différentielle d'une exponentielle d'opérateurs et généralisée dans le cadre des opérateurs d'évolutions ⁵) :

$$e^{i\tilde{L}t} = i \int_0^t e^{i\tilde{L}(t-t')}\tilde{P}\tilde{L}e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t'} dt' + e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t} \quad (1-7)$$

[Fick 1990, p175] l'égalité (1-6) s'écrit :

$$\dot{X}(t) = e^{i\tilde{L}t}\tilde{P}\dot{X} + i \int_0^t e^{i\tilde{L}(t-t')}\tilde{P}\tilde{L}e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t'}\tilde{Q}\dot{X} dt' + e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t}\tilde{Q}\dot{X} \quad (1-8)$$

⁵ Il est possible de généraliser la propriété des opérateurs exponentiels donnée en (3-7) aux opérateurs d'évolutions \tilde{U} . On peut en effet se convaincre que quelle que soit la décomposition de l'opérateur de Liouville

$$\tilde{L}(t)=\tilde{L}_0+\tilde{L}_1(t) \text{ tel que } \frac{d}{dt}\tilde{U}(t,t_0)=-i(\tilde{L}_0+\tilde{L}_1(t))\tilde{U}(t,t_0) ,$$

et en définissant un opérateur d'évolution $\tilde{U}_1(t,t_0)$ de \mathfrak{S} par

$$\frac{d}{dt}\tilde{U}_1(t,t_0)=-i\tilde{L}_1(t)\tilde{U}_1(t,t_0)$$

alors les deux équations des opérateurs d'évolution et la décomposition $\tilde{L}(t)=\tilde{L}_0+\tilde{L}_1(t)$ conduisent à l'égalité :

$$\tilde{U}(t,t_0)=\tilde{U}_0(t,t_0)-i \int_0^t \tilde{U}(t,t')\tilde{L}_1(t')\tilde{U}_0(t',t_0) dt'$$

qui donne l'équation (3-7) avec $U(t,0) = e^{i\tilde{L}t}$.

Cette relation peut être aussi regardée comme une sorte d'intégration par parties.

Annexe 2

Soit encore avec $X(t) = e^{i\tilde{L}t}X$

$$\dot{X}(t) = i\Omega X(t) - \int_0^t g(t')X(t-t') dt' + f(t)$$

(1-9)

qui est une équation linéaire du type Langevin avec un terme de mémoire $g(t)$. Lorsque la dynamique est décrite par un ensemble d'observables on a un ensemble d'équations couplées : Ω et f sont alors des vecteurs et g une matrice.

On a posé:

(1) premier terme à droite de l'égalité (1-9) est :

$$i\Omega = \frac{(X|\dot{X})}{(X|X)}$$

(1-10)

c'est la fréquence de résonance. On montre (il suffit d'appliquer la formule de Kubo (1-43) démontrée plus loin) que dans le cas où X est Hermitien et non vectoriel, c'est-à-dire si le processus peut être décrit par une seule variable pertinente, on a $\Omega=0$.

(2) dernier terme à droite de l'égalité est :

$$f(t) = e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t}\tilde{Q}\dot{X} = e^{i(\tilde{Q}\tilde{L})t}(\tilde{Q}\tilde{L})X$$

(1-11)

Tout se passe comme si la dynamique de $f(t) = e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t}f(0)$ était dictée par un opérateur de Liouville $\tilde{L}_{\text{diss}} = \tilde{Q}\tilde{L}$ correspondant à la partie dissipative de l'Hamiltonien $i\tilde{L}_{\text{diss}}X = \frac{i}{\hbar}[H_{\text{diss}}, X]$: cette dynamique étant radicalement différente de la première (orthogonale, dans tous les sens du terme), elle peut concerner des échelles de temps très différentes.

En outre cette procédure permet de construire à partir du choix de la variable collective pertinente par rapport à la mesure, une décomposition de l'Hamiltonien en un Hamiltonien du système mesuré et un Hamiltonien de couplage à l'environnement et des termes de l'environnement seuls.

Les propriétés des opérateurs de projections impliquent

$$\tilde{Q}f(t) = f(t) \quad (1-12a)$$

$$\tilde{P}f(t) = 0 \quad (1-12b)$$

et $(X|f(t)) = 0$

(3) terme central de l'égalité (1-9) est

$$g(t) = \tilde{P}\tilde{L}e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t}\tilde{Q} = \frac{(X|\tilde{L}e^{i\tilde{Q}\tilde{L}t}\tilde{Q}\tilde{L}X)}{(X|X)} \quad (1-13)$$

\tilde{L} et \tilde{Q} étant hermitiques pour le produit scalaire et compte tenu des propriétés de l'opérateur \tilde{Q} dans l'exponentielle (\tilde{Q} peut être ajouté devant l'exponentielle [Fick 1990 p177]),

$$\boxed{g(t) = \frac{(f|f(t))}{(X|X)}} \quad (1-14)$$

Cette relation est une forme "instantanée" du théorème fluctuation dissipation (2-5) et sa validité repose uniquement sur la pertinence de la définition des projecteurs.

l'équation pour la fonction de corrélation normalisée $C(t) = \frac{(X|X(t))}{(X|X)}$ s'obtient à partir de l'équation (1-9), sachant que la force stochastique est toujours perpendiculaire à X, on obtient :

$$\dot{C}(t) = i\Omega C(t) - \int_0^t g(t')C(t-t') dt' \quad (1-15)$$

La relaxation de la moyenne de la variable X est décrite par l'équation

$$\langle \dot{X} \rangle(t) = i\Omega \cdot \langle X \rangle(t) - \int_0^t g(t') \cdot \langle X \rangle(t-t') dt' + \langle f(t) \rangle \quad (1-16)$$

Les termes non-linéaires en X dans cette équation sont entièrement contenus dans le terme de force stochastique $\langle f(t) \rangle$.

Si X est un opérateur scalaire Hermitien, l'équation de Mori (1-9) se réécrit

$$\dot{X}(t) = -\int_0^t g(t') \cdot X(t-t') dt' + f(t) \quad (1-17)$$

Notre objectif est de comparer l'équation ci-dessus avec l'équation de Langevin (1.2) du paragraphe (A2-1-1) et d'identifier les différents paramètres avec les paramètres phénoménologiques $A(X)$ et $D(X)$. Pour cela, nous allons dans un premier temps procéder à l'approximation Markovienne qui permet de définir le coefficient d'amortissement (paragraphe suivant (A2-3-3)). Dans un second temps (paragraphe (A2-3-4)), nous allons étudier la nature de la force $f(t)$, sa corrélation $\langle f | f(t) \rangle$ et sa moyenne $\langle f \rangle(t)$, dans le cadre de l'approximation linéaire.

A2-3-3 Variables lentes et approximation Markovienne

L'intérêt du développement de Mori réside principalement dans la possibilité d'explicitier l'approximation Markovienne à partir de l'équation cinétique construite ci-dessus. Lorsque la variable pertinente X est une variable lente, c'est-à-dire lorsque que la dynamique des degrés de liberté (définie par $\hat{Q}\hat{L}$) est très différente de la dynamique de X (défini par \tilde{L}) alors il est possible de définir un temps caractéristique τ_{diss} pour la fonction de corrélation des forces stochastiques, tel que la variable essentielle ne varie pas notablement sur cette période de temps τ_{diss} .

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle f | f(t) \rangle \neq 0 \Leftrightarrow t \in [0, \tau_{\text{diss}}] \\ X(t) \approx \text{cst} \Leftrightarrow t \in [t, t + \tau_{\text{diss}}] \end{array} \right\} \quad (1-18)$$

L'équation de Mori

$$\dot{X}(t) = i\Omega X(t) - \int_0^t g(t') X(t-t') dt' + f(t) \quad (1-19)$$

s'écrit alors

$$\boxed{\dot{X}(t) = i\Omega X(t) - \gamma X(t) + f(t)} \quad (1-20)$$

qui est bien l'équation de Langevin, à l'approximation Markovienne, définie au paragraphe A2-1-1.

Le coefficient d'amortissement γ est donc relié au bruit par la relation

$$\boxed{\gamma = \int_0^{\infty} g(t) dt = \frac{1}{\langle X|X \rangle} \cdot \int_0^{\infty} \langle f | f(t) \rangle dt = \frac{D(T)}{\langle X|X \rangle}} \quad (1-21)$$

A2-3-4 Réponse linéaire à un état de non-équilibre initial et produit scalaire de l'espace de Liouville

On a défini la grandeur suivante⁶ :

$$\langle f \rangle(t) = \langle e^{i(\tilde{Q}\tilde{L})t} (\tilde{Q}\tilde{L}) X \rangle = \text{Tr} \left\{ e^{i(\tilde{Q}\tilde{L})t} (\tilde{Q}\tilde{L}) X \rho(t=0) \right\} \quad (1-22)$$

Elle dépend de l'état initial du système et ne peut pas être calculée dans un cas général.

L'état initial du système est décrit par **un opérateur statistique généralisé** $\rho(t=0, \lambda)$ obtenu par maximisation de l'incertitude de mesure connaissant la valeur des moyennes des variables pertinentes [Balian 1986] (description en termes "d'équilibre local"); on montre alors que cet opérateur s'écrit:

$$\rho(t=0, \lambda) = \frac{\exp[-\beta H - \lambda M]}{Z(\lambda)} \quad (1-23)$$

$Z(\lambda)$ est la fonction de partition et $\beta=1/kT$. L'opérateur statistique $\rho(t=0, \lambda)$ donne la forme de la distribution correspondant à un état hors équilibre sous l'effet du potentiel thermodynamique λ . L'opérateur M appartient à l'ensemble des variables pertinentes nécessaire à la description du système. λ est un multiplicateur de Lagrange défini par la contrainte $\langle X \rangle = \text{Tr}(\rho(0, \lambda) X)$.

Lorsque l'état initial est suffisamment proche de l'état d'équilibre décrit par la distribution canonique ρ_0 (Wst dans le cas classique), le développement au premier ordre de l'opérateur statistique généralisé est

$$\rho(t=0, \lambda) = \frac{\exp[-\beta H - \lambda M]}{Z(\lambda)} \approx \rho_0 + \lambda \left. \frac{\partial \rho}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0} \quad (1-24)$$

Ce développement permet de relier les propriétés hors équilibre aux propriétés à l'équilibre (au temps $t=0$). Cela permet surtout de définir le produit de **Kubo-Mori** à partir de la distribution à l'équilibre, et donc de conserver un espoir que ce dernier puisse être calculable. Notons qu'une généralisation de la théorie de Mori où cette hypothèse n'est pas faite c'est-à-dire pour des systèmes arbitrairement éloignés de l'équilibre, a été développée par Robertson [Robertson 1966] et reprise par Weidlich

⁶Où la représentation de Heisenberg est utilisée, c'est-à-dire $f(t) = \tilde{U}^{-1}(t, t_0) f(t_0)$ et $\langle f \rangle(t) = \text{Tr} \left\{ \rho(t_0) \tilde{U}^{-1}(t, t_0) f(t_0) \right\}$

et Grabert dans leur modèle présenté au paragraphe A2-4.

Imposer la condition $\langle f \rangle(t) = 0$ à l'approximation linéaire (1-24) près, permet d'identifier la force stochastique $f(t)$ avec la force stochastique postulée par Langevin en 1907 [Fick 1990 p 191], [Mori 1965]. On peut alors identifier terme à terme les coefficients de l'équation de Mori avec les coefficients de l'équation de Langevin et par ricochet aux coefficients de l'équation de Fokker-Planck.

Cette condition définit le produit scalaire de l'espace de Liouville .

(a) Dans le cas classique le produit scalaire est simplement la fonction de corrélation stationnaire :

Si $\rho(t=0, \lambda) = W(t=0, \lambda)$ est une fonction réelle ou complexe (cas classique uniquement), la dérivation dans l'équation (1-24) ne pose aucun problème et on a :

$$W(t = 0, \lambda) = (1 - \lambda M) \cdot W_{st} \quad (1-25)$$

En définissant la **réponse** du système par la différence entre la valeur de la moyenne au temps t et la valeur à l'équilibre:

$$\delta X(t) = X(t) - \langle X \rangle$$

avec la moyenne :

$$\langle \delta X \rangle(t) = \text{Tr}(W(t = 0, \lambda) \delta X(t)) \quad (1-26)$$

où Tr signifie ici l'intégration sur les paramètres de l'espace des phases,

la linéarisation de $W(t=0, \lambda)$ décrite ci-dessus conduit à $\langle \delta X \rangle(t) = \text{Tr}(W_{st} \delta X(t) - \lambda \langle \delta X(t), M \rangle)$, soit, par construction de δX ,

$$\boxed{\langle \delta X \rangle(t) = \lambda \langle \delta X(t), M \rangle} \quad (1-27)$$

où les fonctions de corrélation sont prises à l'équilibre.

Le calcul appliqué à la fonction $f(t)$ en tenant compte de l'orthogonalité de $f(t)$ et M , contenue dans la définition des projecteurs, on a bien :

$$\boxed{\langle f \rangle(t) = \lambda \langle f(t), M \rangle = 0} \quad (1-28)$$

Dans le cas classique on a donc:

$$(\delta X|M(t)) = \text{Tr}(\delta X \cdot W(t=0, \lambda) \cdot M(t)) \xrightarrow{\hbar \rightarrow 0} \langle \delta X, M(t) \rangle \quad (1-29)$$

(b) Dans le cas quantique le produit scalaire est le produit de Kubo-Mori

De même que pour l'exponentielle d'une somme, l'opération de dérivation dans un espace d'opérateur conduit à des règles de calculs inhabituelles. C'est la raison pour laquelle le produit scalaire de l'espace de Liouville de la théorie de la réponse linéaire, déduit de l'équation (1-24), n'est pas la fonction de corrélation stationnaire dans le cas quantique.

Les opérateurs statistiques généralisés étant générés par la méthode du maximum d'entropie, les fonctions à dériver sont des fonctions exponentielles .

Reprenons la formule (1-7) et la note en bas de page, des propriétés générales de l'exponentielle d'une somme d'opérateurs. $\tilde{L} = \tilde{L}_0 + \tilde{L}_1$

En faisant une substitution formelle en introduisant un paramètre λ

$$\begin{cases} i\tilde{L}t \leftarrow \beta \left[H(\lambda) + \frac{\partial H}{\partial \lambda} \Delta \lambda \right] \\ \tilde{L}_1 \leftarrow \beta H(\lambda) \\ \tilde{L}_0 \leftarrow \beta \frac{\partial H}{\partial \lambda} \Delta \lambda \end{cases} \quad (1-30)$$

ainsi que $t' \leftarrow \alpha/\beta t$ on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial \lambda} e^{-\beta H(\lambda)} = e^{-\beta H(\lambda)} \int_0^\beta e^{\alpha H(\lambda)} \frac{\partial H}{\partial \lambda} e^{-\alpha H(\lambda)} d\alpha \quad (1-31)$$

L'approximation linéaire d'un opérateur statistique généralisé s'écrit, à température constante en posant $H(\lambda) = H_0 + \lambda M$ avec $M = \left. \frac{\partial H}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0}$:

$$\begin{aligned} \rho(t=0, \lambda) &= \frac{\exp[-\beta H_0 - \lambda M]}{Z(\lambda)} \\ \rho(t=0, \lambda) &\approx \rho_0 + \left. \frac{\partial \rho}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0} \lambda \end{aligned} \quad (1-32)$$

Le raisonnement développé précédemment se réécrit identiquement avec à la place de (1-25) l'expression:

$$\rho(t=0, \beta, \lambda) = \rho_0 \left(1 - \lambda \cdot \frac{1}{\beta_0} \int e^{-\alpha H} \delta M^+ e^{\alpha H} d\alpha \right) \quad (1-33)$$

où M^+ est l'adjoint de M par rapport au produit scalaire et

$$\delta M = M - \langle M \rangle$$

On déduit la moyenne avec un produit scalaire tel que :

$$\langle \delta X \rangle(t) = -\lambda \langle \delta X(t) | \delta M \rangle \quad (1-34)$$

ou encore

$$\langle f \rangle(t) = -\lambda \langle f(t) | \delta X \rangle = 0 \quad (1-35)$$

Le produit scalaire est donc défini par

$$\langle M | X \rangle = \frac{1}{\beta_0} \int \text{Tr} \{ \rho_0 \delta M^+ e^{-\alpha H} X e^{\alpha H} \} d\alpha \quad (1-36)$$

il possède bien les propriétés requises d'un produit scalaire de l'espace de Liouville. C'est le produit scalaire de Kubo-Mori.

La relation

$$\langle \delta X \rangle(t) = -\lambda \langle \delta X(t) | \delta X \rangle \quad (1-37)$$

relie les propriétés dynamiques hors équilibre aux fluctuations à l'équilibre et conserve sa forme en régime quantique et classique. Elle est à la base du modèle de la réponse linéaire appliquée aux traînage magnétique développé au chapitre II.

A2-3-5 L'égalité de Kubo

L'opérateur généralisé (1-23)

$$\rho(\lambda) = \frac{\exp[-\beta H_0 - \lambda M]}{Z(\lambda)} \quad (1-38)$$

conduit à écrire le produit de Mori sous la forme

$$(\delta X|M) = -\text{Tr} \left\{ \left. \frac{\partial \rho(\lambda)}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0} \delta M^+ \right\} \quad (1-39)$$

en particulier, en utilisant une propriété de l'opérateur de Liouville,

$$\begin{aligned} (\delta M|\tilde{L}X) &= (M|\tilde{L}X) \\ (M|\tilde{L}X) &= -\text{Tr} \left\{ \left. \frac{\partial \rho(\lambda)}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0} \tilde{L}X \right\} = -\text{Tr} \left\{ \tilde{L} \left. \frac{\partial \rho(\lambda)}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0} X \right\} \end{aligned} \quad (1-40)$$

D'autre part en différentiant le commutateur suivant, on a

$$\begin{aligned} \left[H_0 - \frac{\lambda}{\beta} M, \rho(\lambda) \right] &= 0 \\ \Leftrightarrow \tilde{L} \left. \frac{\partial \rho(\lambda)}{\partial \lambda} \right|_{\lambda=0} + \frac{1}{\beta \hbar} [M^+, \rho_0] &= 0 \end{aligned} \quad (1-41)$$

Soit

$$(M|\tilde{L}X) = \frac{1}{\beta \hbar} \text{Tr} \{ [\rho_0, M^+] X \} \quad (1-42)$$

On obtient l'égalité de Kubo :

$$\boxed{(M|\tilde{L}X) = \frac{1}{\beta \hbar} \langle [M^+, X] \rangle} \quad (1-43)$$

1-3-6 La réponse linéaire à un champ extérieur

Dans le paragraphe ci-dessus nous avons abouti à une équation du type réponse linéaire, dans le sens où le système décrit par $X(t)$ répond à l'excitation de la force M , conjuguée de $-\lambda/\beta$ et intervenant en tant que perturbation stationnaire dans l'opérateur statistique généralisé (1-23) décrivant l'état initial.

Que se passe-t-il lorsque l'Hamiltonien décrivant le système n'est plus stationnaire? C'est le cas lorsqu'une force extérieure dépendante du temps est appliquée au système initialement à l'équilibre à un temps t_0 donné, le sortant de l'état d'équilibre.

L'objectif est alors de calculer la moyenne

$$\begin{aligned} \langle X(t) \rangle &= \langle \rho(t) X(t) \rangle \text{ qui se simplifie lorsque } X \text{ ne dépend pas explicitement du} \\ \text{temps en} \\ \langle X(t) \rangle &= \langle \rho(t) X \rangle \end{aligned} \quad (1-44)$$

La densité d'état $\rho(t)$ (ou la densité de probabilité $W(t)$ en mécanique statistique

Annexe 2

classique) obéit à l'équation de Liouville qui s'écrit dans la représentation de Schrödinger:

$$\frac{d\rho}{dt} = -i\tilde{L}(t)\rho(t) \quad (1-45)$$

La dépendance temporelle de l'opérateur densité d'état est donnée par l'action de l'**opérateur d'évolution** \tilde{U} , défini par:

$$\rho(t) = \tilde{U}(t, t_0) \cdot \rho(t_0) \quad (1-46)$$

et $\tilde{U}(t, t')$ est un opérateur de l'espace de Liouville \mathfrak{S} . Il vérifie aussi l'équation

$$\frac{d}{dt} \tilde{U}(t, t_0) = -iL(t)\tilde{U}(t, t_0) \quad (1-47)$$

avec $\tilde{U}(t_0, t_0) = 1$.

Si \tilde{L} est indépendant du temps :

$$\tilde{U}(t, t_0) = e^{-i\tilde{L}(t-t_0)} \quad (1-48)$$

L'équation (1-44) s'écrit :

$$\langle X(t) \rangle = \langle \tilde{U}(t, t_0) \rho(t_0) X \rangle \quad (1-49)$$

Calcul de perturbation

Le développement de Taylor de l'Hamiltonien par rapport au champ de perturbation $h(t)$ conduit à décomposer l'opérateur de Liouville en une partie stationnaire et une partie perturbative dépendant du temps :

$$\tilde{L}(t) = \tilde{L}_0 + \tilde{L}_1(t) \quad (1-50)$$

En effet, au premier ordre

$$H(t) = H_0 + \left. \frac{\partial H(t)}{\partial h(t)} \right]_{h(t)=0} h(t) + \dots \quad (1-51)$$

permet de définir l'opérateur M^+ indépendant du temps

$$M^+ = \left. \frac{\partial H(t)}{\partial h(t)} \right]_{h(t)=0} \quad \text{au premier ordre en } h(t) \text{ on a}$$

$$H(t) = H_0 + h(t) M^+ \quad (1-52)$$

soit :

$$\tilde{L}_1(t) = h(t) \tilde{M}^+ = h(t) \frac{i}{\hbar} [M^+, \quad] \quad (1-53)$$

Comment décomposer $\tilde{U}(t, t_0)$ de façon à pouvoir utiliser un calcul de perturbation?

On a toujours

$$\frac{d}{dt} \tilde{U}(t, t_0) = -i(\tilde{L}_0 + \tilde{L}_1(t)) \tilde{U}(t, t_0) \quad (1-54)$$

On définit $\tilde{U}_1(t, t_0)$ tel que

$$\frac{d}{dt} \tilde{U}_1(t, t_0) = -i\tilde{L}_1(t) \tilde{U}(t, t_0) \quad (1-55)$$

et $\tilde{U}_0(t, t_0)$ tel que

$$\frac{d}{dt} \tilde{U}_0(t, t_0) = -i\tilde{L}_0 \tilde{U}_0(t, t_0) \quad (1-56)$$

soit

$$\tilde{U}_0(t, t_0) = e^{-i\tilde{L}_0(t-t_0)} \quad (1-57)$$

On a la relation (note en bas de page 18)

$$\tilde{U}(t, t_0) = \tilde{U}_0(t, t_0) - i \int_0^t \tilde{U}(t, t') \tilde{L}_1(t') \tilde{U}_0(t', t_0) dt' \quad (1-58)$$

Le calcul perturbatif est alors trivial, l'opérateur se décompose pour les petites amplitudes du champ perturbatif en

$$\tilde{U}(t, t_0) = e^{-i\tilde{L}_0(t-t_0)} + \tilde{U}_1(t, t_0) + \dots \quad (1-59)$$

Insérée de part et d'autre de l'égalité (1-58) et ne conservant que les termes du premier ordre on a :

$$\tilde{U}_1(t, t_0) = -i \int_0^t e^{-i\tilde{L}_0(t-t')} \tilde{L}_1(t') e^{-i\tilde{L}_0(t'-t_0)} dt' \quad (1-60)$$

Annexe 2

Si au temps initial la distribution est stationnaire (distribution canonique de Boltzmann) :

$$\rho_0 = \frac{\exp[-\beta H]}{\text{Tr}(\exp[-\beta H])} \quad (1-61)$$

on a

$$e^{-i\tilde{L}t}\rho_0 = \rho_0 \quad (iL\rho_0 = 0). \quad (1-62)$$

L'équation de la moyenne (1-49) s'écrit :

$$\langle X \rangle(t) = \text{Tr}\{X\rho_0\} + \text{Tr}\left\{-i \int_0^t e^{-i\tilde{L}(t-t')} L_1(t') \rho_0 X dt'\right\} \quad (1-63)$$

Soit:

$$\langle \delta X \rangle(t) = -i \int_0^t h(t') \langle [M^+, X(t-t')] \rangle_0 dt' \equiv \int_0^t h(t') \varphi(t-t') dt' \quad (1-64)$$

C'est l'équation de Kubo où $\varphi(t) = -i \langle [M^+, X(t)] \rangle$ définit la fonction réponse.

L'égalité de Kubo (1-43) donne :

$$\varphi(t) = -\beta \langle M | iLX(t) \rangle = -\frac{1}{kT} \langle M | \dot{X}(t) \rangle \quad (1-65)$$

la formule de Kubo prend la forme

$$\langle X \rangle(t) = -\frac{1}{kT} \int_0^t h(t') \langle M | \dot{X}(t-t') \rangle dt' \quad (1-66)$$

ou,

$$\langle X \rangle(t) = -\frac{1}{kT} \int_0^t h(t-t') \langle M | \dot{X}(t') \rangle dt' \quad (1-67)$$

Application de la réponse linéaire à un changement brusque du champ

Lorsqu'un champ en marche d'escalier est appliqué au système à l'équilibre:

$$h(t) = \begin{cases} 0 & \text{pour } t < 0 \\ -h & \text{pour } t > 0 \end{cases} \quad (1-68)$$

Alors, après intégration de la formule de Kubo (1-67), on a la relaxation du système

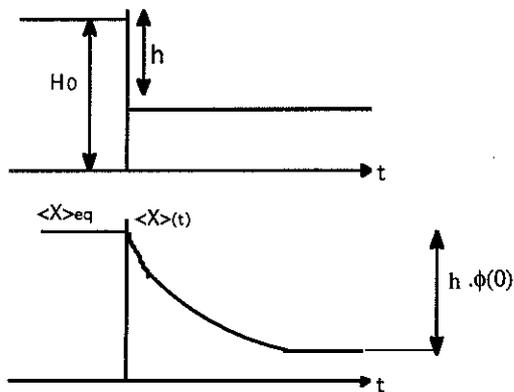
$$\langle \delta X \rangle(t) = \frac{1}{k_B T} h [(M|X(t)) - (M|X)] \quad (1-69)$$

On définit alors la fonction de relaxation $\Phi(t)$:

$$\Phi(t) = \frac{1}{k_B T} (M|X(t)) \quad (1-70)$$

$$\langle \delta X \rangle(t) = h [\Phi(t) - \Phi(0)] \quad (1-71)$$

Figure 1: interprétation de la fonction de relaxation $\phi(t)$



Application de la réponse linéaire à un champ sinusoïdal

Lorsqu'un champ sinusoïdal est appliqué au système à l'équilibre:

$$h(t) = h \cdot e^{-i\omega t} \quad (1-72)$$

La formule de Kubo (1-67) s'écrit

$$\langle \delta X \rangle(t) = -\frac{h}{k_B T} \int_0^t (M|\dot{X}(t')) \sin(\omega(t-t')) dt' \quad (1-73)$$

c'est-à-dire, en termes de fonction de corrélation $\dot{\Phi}(t) = -\frac{(M|\dot{X}(t'))}{k_B T}$,

$$\langle \delta X \rangle(t) = h \int_0^t \dot{\Phi}(t') \sin(\omega(t-t')) dt' \quad (1-74)$$

Cette équation permet de définir la partie réelle $\chi'(\omega)$ et la partie imaginaire $\chi''(\omega)$ de la susceptibilité dynamique pour les régime stationnaire où t peut être remplacé par l'infini à la borne supérieure de l'intégrale (c'est à dire en négligeant le régime transitoire).

$$\langle \delta X \rangle(t) = h[\chi'(\omega)\sin(\omega t) - \chi''(\omega)\cos(\omega t)] \quad (1-75)$$

avec

$$\chi'(\omega) = - \int_0^{\infty} \dot{\Phi}(t)\cos(\omega t)dt \quad (1-76)$$

et

$$\chi''(\omega) = - \int_0^{\infty} \dot{\Phi}(t)\sin(\omega t)dt \quad (1-77)$$

Conclusion

La formule de Kubo donne donc la possibilité de réunir sous un même formalisme toutes les relaxations possibles. C'est à dire qu'il est a priori possible de comparer par exemple, les résultats d'une expérience de relaxation lente de traînage magnétique avec une expérience de susceptibilité alternative à n'importe quelle fréquence, via la fonction $\Phi(0)$ et le coefficient d'amortissement γ .

Cas d'une relaxation exponentielle: ce modèle a été introduit par Debye en 1912 [Debye 1912] pour décrire la réponse dynamique d'un dipôle électrique chargé. La fonction de relaxation exponentielle est introduite:

$$\Phi(t) = \Phi(0) \cdot \exp(-\gamma t) \quad (1-78)$$

la dérivée donne

$$\frac{d\Phi}{dt} = -\gamma \cdot \Phi(0) \cdot \exp(-\gamma t) \quad (1-79)$$

les formules (1-75) et (1-76) ci-dessus donnent

$$\chi'(\omega) = \Phi(0) \cdot \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \omega^2} \quad (1-80)$$

$$\chi''(\omega) = \Phi(0) \cdot \frac{\gamma\omega}{\gamma^2 + \omega^2} \quad (1-81)$$

$$\text{et } \chi(\omega) = \Phi(0)/(\gamma - i\omega) \quad (1-82)$$

La partie dissipative $\chi''(\omega)$ de la susceptibilité dynamique donne expérimentalement la position de la résonance, pour la fréquence égale au coefficient d'amortissement (ou l'inverse de temps de relaxation). Le rapport $\chi''(\omega)/(\omega\chi'(\omega))$ donne le coefficient d'amortissement expérimentalement, c'est le diagramme d'Argand.

Le préfacteur $\Phi(0) = \frac{1}{kT}(M|X)$ est identique dans les deux situations expérimentales (à condition que les variables impliquées dans la dynamique soient bien les mêmes). C'est la susceptibilité statique isotherme. D'après la relation (1-21), si $X=M$, la fonction $\Phi(0)$ est une fonction d'autocorrelation et est proportionnelle au bruit divisé par la température:

$$\boxed{\Phi(0) = \frac{1}{kT}(M|M) = \frac{1}{\gamma} \cdot \frac{D(T)}{kT}} \quad (1-83)$$

Cette propriété sera utilisée dans le modèle de traînage magnétique au chapitre II.

Le condition $X=M$ est nécessaire dans la mesure où nous travaillons avec une seule variable pertinente. Dans le cas de plusieurs variables, la relation ci-dessus reste valide sous forme tensorielle.

A-2 Compatibilité entre deux approches, état métastable et réponse linéaire

Nous nous posons la question de savoir dans quelle mesure la description en termes d'activation thermique est compatible avec les descriptions stochastiques du type calcul de fonction de corrélation et réponse linéaire.

La méthode des projecteurs du type Nakajima-Zwanzig permet de déduire une équation différentielle stochastique de façon équivalente à la théorie de Mori [Fick, chap 17 et 18], et permettant en outre de prolonger la méthode aux cas des équations stochastiques non linéaires par les équations de Robinson [Robertson 1966]. Il est alors possible de généraliser les méthodes décrites dans la partie A2-3, et les utiliser par exemple dans le cadre du problème avec un potentiel bistable.

A-2-1 Le modèle de Weidlich et Grabert

Le problème relatif à un potentiel bistable a été traité par Weidlich et Grabert en 1980 [Weidlich 1980] par la méthode des projecteurs. Cette méthode, permet de déduire les deux résultats suivant simultanément : (1) la forme de la relaxation, c'est-à-dire la solution dépendante du temps de l'équation intégro-différentielle obtenue à partir des projecteurs et (2) la dépendance du coefficient cinétique d'amortissement γ (inverse du temps de premier passage) par rapport au coefficient moteur $A(X)$ et au bruit $D(T)$. Ces résultats sont en outre généralisables dans le régime quantique. Nous résumons ici le principe de la méthode et présentons les résultats. Notre souci principal est d'explicitier les approximations effectuées afin de comparer par la suite la validité de ces résultats avec ceux obtenus par la théorie de Mori exposée précédemment et particulièrement la relation fluctuation-dissipation.

Le modèle se restreint au cas d'un système de Fokker-Planck avec un coefficient moteur non linéaire et décrit par une unique variable X .

Le produit scalaire est défini par

$$(\rho|X) = \text{Tr}\{\rho^+X\}; \quad \rho = \rho^+ \quad (2-1)$$

L'équation de Liouville de la fonction de distribution classique ou de la densité d'états quantique s'écrit

$$\frac{d\rho}{dt} = -i\tilde{L}(t)\rho(t) \quad (2-2)$$

où \tilde{L} est l'opérateur de Liouville ou l'opérateur de Fokker-Planck. Comme précédemment, l'hermiticité de \tilde{L} est utilisé et on prend indifféremment la représentation de Schrödinger ou de Heisenberg pour la moyenne.

$$\begin{aligned} \langle X \rangle(t) &= (\rho(t)|X) = (e^{iL_t}\rho(0)|X) \\ &= (\rho|e^{iL^+t}X) \equiv (\rho|X(t)) \end{aligned} \quad (2-3)$$

et

$$(\rho(t)|1) = 1 \quad (2-4)$$

Le produit scalaire est défini ici comme étant simplement la trace ou encore

Annexe 2

l'intégration sur les états du système. A la différence du paragraphe (A2-3-1), plutôt que de définir des "variables pertinentes", un projecteur est défini par l'intermédiaire d'une "distribution pertinente" $\bar{\rho}(\lambda(t))$ qui dépend d'un paramètre $\lambda(t)$ et de la moyenne correspondante notée $\langle \bar{X} \rangle(t)$:

$$\langle \bar{X} \rangle(t) = \langle \bar{\rho}(t) | X \rangle \quad (2-5)$$

avec

$$\langle \bar{\rho}(t) | 1 \rangle = 1 \quad (2-6)$$

La distribution pertinente $\bar{\rho}(t)$ doit être "**macroéquivalente**" à la distribution exacte $\rho(t)$.

$$\langle \bar{X} \rangle(t) \equiv \langle X \rangle(t) \quad (2-7)$$

La condition initiale étant

$$\rho(0) = \bar{\rho}(\lambda(0)) \quad (2-8)$$

Le projecteur est alors défini par

$$\begin{aligned} P(t) &= |\bar{\rho}(t)\rangle\langle 1| \\ Q(t) &= 1 - P(t) \end{aligned} \quad (2-9)$$

qui satisfait évidemment à

$$P(t)\rho(t) = \bar{\rho}(t) \quad (2-10)$$

Une opération similaire à celle décrite dans le paragraphe (A2-3-1) de décomposition entre les deux espaces définis par la projection, conduit à une relation entre la densité exacte et la densité pertinente :

$$\rho(t) = \bar{\rho}(t) + \int_0^t e^{iL t'} \left[iL \bar{\rho}(t-t') - \dot{\bar{\rho}}(t-t') \right] dt' \quad (2-11)$$

la moyenne s'écrivant

Annexe 2

$$\frac{d}{dt}\langle X \rangle(t) = \left(\rho(t) \middle| iL^+ X \right) \quad (2-12)$$

on a:

$$\frac{d}{dt}\langle X \rangle(t) = \left(\bar{\rho}(t) \middle| iL^+ X \right) + \int_0^t \left(\left[iL \bar{\rho}(t-t') - \dot{\bar{\rho}}(t-t') \right] \middle| e^{iL^+ t'} iL^+ X \right) dt' \quad (2-13)$$

Dans le but de faire le lien avec les équations de Fokker-Planck, et d'unifier les descriptions à l'aide des paramètres cinétiques $A(X)$ et $D(T)$, le produit scalaire est défini par une intégrale sur un paramètre x décrivant les états du système.

L'équation (2-2) de Liouville \tilde{L} peut s'écrire avec l'opérateur identifié à l'opérateur de Fokker-Planck $\tilde{\ell}$:

$$i\tilde{\ell} = -\frac{\partial}{\partial x} A(x) + \frac{\partial^2}{\partial x^2} D(T) \quad (2-14)$$

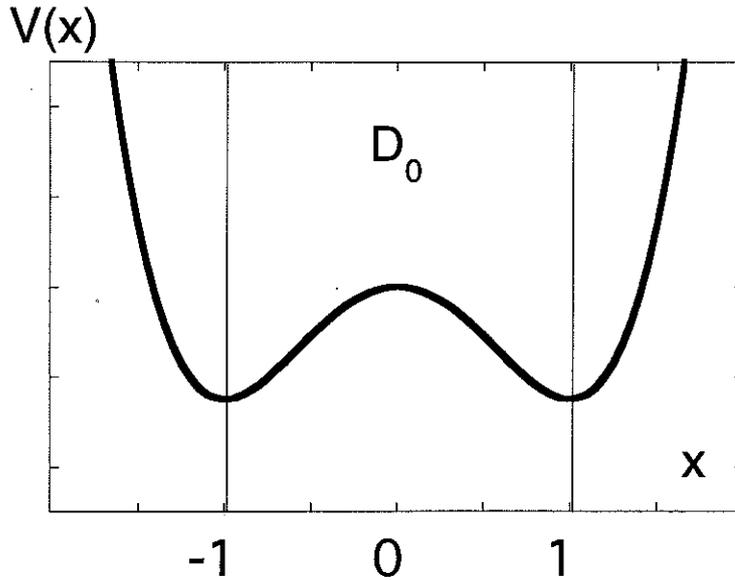
Le coefficient de diffusion $\hat{D}(t)$ n'est pas explicité dans cette description tant qu'une modélisation de l'environnement n'a pas aussi été réalisée.

Avec les coefficients choisis en conséquence, les grandeurs $A(x)$ et $V(x)$ sont prises sans dimension. Notre problème revient à poser un coefficient moteur du type:

$$A(x) = x - x^3 \quad (5-15)$$

où la variable x est choisie de façon à avoir ses deux états d'équilibre en 1 et -1. Le potentiel décrit alors une barrière

$$V(x) = -\int_0^x A(x') dx' = -\frac{x^2}{2} + \frac{x^4}{4} \quad (2-16)$$



L'opérateur statistique généralisé (2-5) s'écrit, conformément à la méthode de maximisation de la fonctionnelle d'entropie :

$$\bar{\rho}(x; D(T), \lambda) = \frac{\exp\left[-\frac{V(x)}{D(T)} - \lambda x\right]}{Z(D(T), \lambda)} \quad (2-17)$$

où $\lambda(t)$ est un multiplicateur de Lagrange défini par la contrainte (2-7).

L'équation (2-13) exprimée en fonction des paramètres cinétiques devient

$$\frac{d\langle x \rangle(t)}{dt} = \langle A(x) \rangle(t) + \int_0^t dt' \text{Tr} \left\{ \left[iL \bar{\rho}(x; D(T), \lambda(t-t')) - \dot{\bar{\rho}}(x; D(T), \lambda(t-t')) \right] e^{iL^+ t'} A(x) \right\} \quad (2-18)$$

lorsque la variable x est une variable lente, et ceci implique que $\langle x \rangle$ soit dans la zone D_0 contenue entre les deux minima de potentiels, l'équation peut se récrire dans l'approximation Markovienne (définie au paragraphe (A2-3-4))

$$\frac{d\langle x \rangle(t)}{dt} = \langle A(x) \rangle(t) + \text{Tr} \left\{ \left[iL \bar{\rho}(x; D(T), \lambda(t)) - \dot{\bar{\rho}}(x; D(T), \lambda(t)) \right] \int_0^t dt' e^{iL^+ t'} A(x) \right\} \quad (2-19)$$

Grâce aux propriétés de la densité de probabilité $\rho(x; D(T), \lambda(t))$, les auteurs ont obtenu l'équation équivalente (non linéaire):

Annexe 2

$$\frac{d\langle x \rangle(t)}{dt} = \langle \bar{A}(x) \rangle(t) \frac{\langle (\delta \bar{x})^2 \rangle(t) \cdot \langle \bar{F}'(x) \rangle(t)}{\langle \delta \bar{x} \cdot \bar{F}(x) \rangle(t)} \quad (2-20)$$

avec

$$F(x) = \int_0^x e^{\frac{V(x')}{D(T)}} dx' \quad (2-21)$$

et $\delta x = x - \langle x \rangle(t)$

De façon similaire aux approximations effectuées pour la loi d'Arrhenius, la densité de probabilité est développée au voisinage des minima.

Pour $\langle x \rangle$ dans la zone D_0 entre les minima, on pose

$$y_{\pm} \cdot \sqrt{D(T)} = x \pm 1 \quad (2-22)$$

alors

$$\frac{V(x)}{D(T)} = \frac{1}{D(T)} - y_{\pm}^2 \mp \sqrt{D(T)} y_{\pm}^3 - D(T) \frac{y_{\pm}^4}{4} \quad (2-23)$$

Le développement au plus bas ordre en $D(T)$ conduit à l'approximation suivante de la fonction de partition $Z(D(T), \lambda)$

$$Z(D(T), \lambda(t)) = \sqrt{\pi D(t)} \cdot \exp\left[-\frac{1}{4D(T)}\right] \cdot \cosh(\lambda) \quad (2-24)$$

avec l'égalité

$$\langle \bar{x} \rangle = \partial_{\lambda} \ln Z \approx \text{th}(\lambda) \quad (2-25)$$

:

et les quantités de l'équation (2-20) peuvent être approximées

$$\langle \bar{F}'(x) \rangle = \frac{2}{\sqrt{\pi D(t)}} \cdot \exp\left[-\frac{1}{4D(T)}\right] \cdot \frac{\tanh(\lambda)}{\lambda} \quad (2-26)$$

$$\langle \delta \bar{x}^2 \rangle \approx \cosh^{-2}(\lambda) \quad (2-27)$$

$$\langle \delta x \cdot F(x) \rangle \approx \sqrt{\frac{\pi D(T)}{2}} \cosh^{-2}(\lambda) \quad (2-30)$$

L'approximation vaut pour $x \gg \sqrt{D(t)}$

Annexe 2

La résolution de l'équation (2-20) conduit donc à:

$$\langle \dot{x} \rangle(t) = -\frac{2^{3/2}}{\pi} \exp\left(-\frac{1}{4D(T)}\right) \cdot \langle x \rangle(t) \quad (2-31)$$

Un coefficient d'amortissement effectif γ_{eff} de dépiégeage a donc été défini

$$\gamma_{\text{eff}} = \frac{2^{3/2}}{\pi} \exp\left(-\frac{1}{4D(T)}\right) \quad (2-32)$$

A-2-2 Liens avec le formalisme de Mori

L'équation (2-31) est linéaire par rapport à la moyenne. La procédure utilisée dans [Weidlich 1980] et présentée ici est donc une linéarisation stochastique (voir la définition du terme dans "Studies in Nonlinear Stochastic Processes. IV. A Comparison of Statistical Linearization, Diagrammatic Expansion, and Projection Operator Methods" in [West 1978]).

La question est maintenant de savoir si cette linéarisation stochastique est équivalente à celle développée dans la partie (A2-3-2) en termes d'équation de Mori.

Si l'approximation au plus bas ordre en $D(T)$, après développement par rapport au terme $\sqrt{D(t)} \cdot y$, implique la validité d'un développement au premier ordre en $\lambda D(T)$ au voisinage des deux positions d'équilibre, on aurait :

$$\bar{\rho}(x; D(T), \lambda) \approx \frac{\exp\left[-\frac{V(x)}{D(T)}\right]}{Z(D(T), \lambda)} (1 + \lambda x) \approx \bar{\rho}_0 \cdot (1 + \lambda x) \quad (2-33)$$

où ρ_0 est la distribution à l'équilibre.

On peut montrer (voir [Fick, Sauermann p381]) que, l'équation de la moyenne (2-31) présenté ci-dessus peut être identifiée à l'équation de Mori (1-16). Par conséquent, étant donné que l'approximation Markovienne a été utilisée, on a aussi (paragraphe (A2-3-4))

$$\gamma_{\text{eff}} = \frac{D(T)}{\langle x|x \rangle_0} \quad (2-34)$$

et

$$\langle \delta X \rangle(t) = -\frac{D(T)}{\gamma_{\text{eff}}} \cdot e^{-\gamma_{\text{eff}} t} \quad (2-35)$$

Il est difficile de juger de la validité de ce développement. Le problème général de la validité de la linéarisation stochastique est discuté (indépendamment de la loi d'Arrhenius) dans les références [Bixon 1971], [Matsuo 1978] et [Zwanzig 1972] [Grabert 1980] et [Fronzoni 1986] .

A-2-3 Quelques exemples d'applications simultanées des deux méthodes

Récemment, le problème de la résonance stochastique a fait l'objet d'un regain d'intérêt [A. Bulsara L Gammaitoni Physics Today, March 1996]. L'effet principal de la Résonance Stochastique est une augmentation de la réponse d'un système bistable soumis à une faible excitation périodique, par l'injection d'un bruit aléatoire. Cette situation correspond bien aux expériences de susceptibilité alternative présentée au chapitre II (II-2-6). La théorie de la réponse linéaire a été utilisée pour décrire les traits généraux de la dépendance de la réponse (ou du rapport signal sur bruit) à l'intensité du bruit D [Jung 1991] [Dykman 1992]. Le profil de la réponse (classique) en fonction de D , est aussi fortement décroissant sur une large plage, et présente ensuite un maximum justifiant le terme de résonance.

La diode tunnel a de même été un objet sur lequel différentes techniques de résolutions d'un problème stochastique ont été appliquées, partant de la même équation maîtresse approximée en équation de Fokker-Planck [Landauer 1962]. D'une part en terme d'activation thermique et saut de barrière (revue dans [Haken 1975]) et d'autre part en termes de fonction de corrélation (revue dans [Hänggi 1982], p296). La relation (1-83) entre la fonction d'autocorrelation le bruit et le coefficient d'amortissement $\langle n(t), n \rangle = \frac{D}{\gamma} \exp(-\gamma|t|)$ est démontrée dans les zones paramétrées par le courant, où la loi d'activation a aussi été démontrée. On a ici $n=N/\Omega$ où Ω est la taille du système et D est le bruit, relié aux probabilités quantiques de transition tunnel des électrons.

Par ailleurs, l'application conjointe à des problèmes divers de la réponse linéaire sous une forme ou une autre (équation de Kubo ou théorème fluctuation-dissipation) et de la loi d'Arrhenius (ou loi d'activation de Kramers) a été réalisée ces dernières années dans des domaines variés de physique de la matière condensée. Quelques exemple sont passés en revue ci-dessous. On peut citer la relaxation des verres [Brey 1991], la conductance de plots quantiques [Beenakker 1991], la diffusion d'impuretés interstitielles [Kogutyuk 1989], et la susceptibilité alternative dans les céramiques Supraconductrices à hautes températures critiques [Zang 1994]. Néanmoins, aucun travail justificatif d'ordre général n'est citée en référence.

Annexe 2

Dans le cadre de la chimie, cette double approche, beaucoup plus utilisée, a été démontrée pour plusieurs systèmes [Northrup 1980] [Grote 1980] et [Pagonabarraga]. Notons surtout, sans sortir du cadre de la théorie de Mori avec un potentiel ax^2+bx^4 le travail de [Perico 1993].

Références chapitres I, II et III

[Abramovicz 1972]: M. Abramovitch, I. A. Stegun, Handbook of mathematical functions, Dover (1972) p 229.

[Aharoni 1966] A. Aharoni, Phys. Status Solidi 16(1966), 3

[Aharoni 1958] A. Aharoni, Shtrikman, Phys. Rev. 109(1958), 1522

[Aharoni 1959] A. Aharoni J. Appl. Phys. 30,70S(1959)

[Arnaudas 1993] J.I.Arnaudas, A. del Moral, C. de la Fuente, P.A.J. de Groot, Phys. Rev. B 47(1993) 11924

[Barbara 1993a]: B. Barbara, L.C. Sampaio, J. E. Wegrowe, B. A. Ratnam, A. Marchand, C. Paulsen, M. A. Novak, J.L. Tholence, M. Uehara, D. Fruchart, J. Appl. Phys. 73(1993), 6703

[Barbara 1993b]: B. Barbara, J. E. Wegrowe, L.C. Sampaio, J. P. Nozières, M. A. Novak, C. Paulsen, J.L. Tholence, M. Uehara Physica Scripta T49(1993), 268

[Barbara 1994]: B. Barbara, L.C. Sampaio, A. MArchand, O. Kubo, H. Takeuchi 136(1994), 183

[Bouchiat 1988]: H. Bouchiat, M. Ocio, Comments Cond. Mat. Phys. 14(1988) 163

[Brown 1963]: W. F. Brown Jr, Phys. Rev. 130(1963), 1677

[Brown 1959]: W. F. Brown Jr, Suppl. J. Appl. Phys. 30(1959), 130S

[Brown 1959b]: W. F. Brown Jr, "fluctuation phenomena in solids" p44 academic press (london) 1965, Ed R.E. Burgess

[Callen 1951]: H. B. Callen et T. A. Welton, Phys. Rev. 83(1951), 34

[Chamberlin 1994]: R.V. Chamberlin J. Appl. Phys. 76(1994), 64

[Coffey 1993]: W. T. Coffey, P. J. Gregg "On the Theory of Debye and Néel Relaxation of Single Domain Ferromagnetic Particles" Adv. Chem. Phys. Vol. LXXXIII(1993), 263

[Coffey 1994]: W. T. Coffey, D.S.F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, E.S. Massawe, J.T. Waldron, Phys. Rev. E 49(1994), 1869

[Diény 1991]: B. Diény, D. Givord, J-M. Ndjaka, J. Magn. Magn. Mat. 93(1991), 503

[Eckern 1990]: U. Eckern, W. Lehr, A. Menzel-Dorwarth, F. Pelzer and A. Shmid J. Stat. Phys. 59(1990), 885

[Fannin 1995] P. C. Fannin, S. W. Charles, J. Phys. D: Appl. Phys. 28(1995), 239

[Fisher 1988(a)]: D. F. Fisher, D. A. Huse, Phys. Rev. B, 38 (1988), 386

[Fisher 1988(b)] D. F. Fisher, D. A. Huse, Phys. Rev. B, 35 (1987), 6841

Références bibliographiques des chapitres expérimentaux

- [Fleisher 1975]: R.L. Fleisher 1975 P.B. Price, R.M. Walker, Nuclear tracks in solids (University of California Press, Berkeley, 1975)
- [Fredkin 1990] D.R. Fredkin, T.R. Koehler, J. Appl. Phys. 67(1990), 5544
- [Gammaitoni 1989]: L. Gammaitoni et al. Phys. Rev. Lett. 62(1989), 349
- [Garanin 1990]: D. A. Garanin, V. V. Ischchenko, L. V. Panina, Theor. Math. Phys. 82(1990), 169
- [Gunther 1994]: L. Gunther, B. Barbara Phys. Rev. B 49(1994), 3926
- [Imry 1991]: Y. Imry, coherent effects in Condensed Matter Systems, edited by B. Kramer, NATO Advanced Study Institute (Plenum, New York 1991)
- [Kramers 1940]: H. A. Kramers, Physica 7(1940), 284
- [Lederman 1994] M. Lederman, S. Shultz and M. Ozaki, Phys. Rev. Lett. 73(1994), 1986
- [Mangin thèse]: thèse en cours, UJF, Grenoble 1
- [Maraner] A. Maraner, X. Zhang, A. Cavalleri, J. Tejada and S. Vitale, preprint (J. Appl. Phys. as a proceeding of the MMM conference in Philadelphia).
- [Mathur 1995]: H. Mathur, M. Gökçedag, A. Douglas Stone, Phys. Rev. Lett. 74(1995), 1855
- [Mayergoyz 1992] I. D. Mayergoyz, "Mathematical Models of Hysteresis", Springer 1990
- [Meier 1994]: J. Meier, B. Blondel, B. Doudin, J-Ph Ansermet, Helv. Phys. Acta 67(1994), 761
- [Meier 1996]: J. Meier, B. Blondel, J-Ph Ansermet, à paraître in J. Appl. Phys. Proceeding J.M.M.M. Conf. 1995.
- [Millonas 1995]: M. Millonas et C. Ray, Phys. Rev. Lett. 75(1995), 1110
- [Monroll 1884]: E.W. Monroll, J. Bendler, J. Stat. Phys. 34(1984), 129
- [Naili 1990]: M. Naili, "Elaboration et étude des propriétés magnétiques et structurales des couches minces amorphes du type $\text{Co}_{1-x-y}\text{Zr}_x\text{M}_y$ avec $\text{M}=\text{Zr}, \text{Nb}, \text{Ti}, \text{Pt}$ ", thèse Université Pierre et Marie Curie Paris IV, 1990
- [NATO]: Workshop, "Quantum tunneling of the magnetization-QTM'94, NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.
- [Ndjaka 1990 thèse]: J-M. Ndjaka "propriétés magnétiques et magnéto-optiques des alliages amorphes terre rare-cobalt", thèse UJF Grenoble 1, Mars 1990,
- [Néel 1949] Ann. Geophys., 5(1949), 99
- [Néel 1958]: Compt. Rend. Acad. Sci. Paris 246(1958), 2313
- [Novak 1994]: M.A. Novak, R. Sessoli in "Quantum tunneling of the magnetization-QTM'94, NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.
- [Preisach 1935]: F. Preisach Z. Phys. 94(1935), 277

Références bibliographiques des chapitres expérimentaux

[Paulsen 1994]: C. Paulsen, J-G; Park, in "Quantum tunneling of the magnetization-QTM'94, NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.

[Ricci 1992]: T. F. Ricci et C. Scherer, *J. Stat. Phys.* 67(1992), 1201

[Sampaio 1994]: L. C. Sampaio thèse "Etude de la relaxation de l'aimantation de petites particules et couches minces à basse température" Université Joseph Fourier, Grenoble 1 Octobre 1994

[Schlachetzki 1972]: A. Schlachetzki, J. Eckert, *Phys. Stat. Sol.* 11(1972),611

[Smyth 1991]: J.F. Smyth, S. Shultz, D.R. Fredkin, D.P. Kern, S.A. Rishton, H. Shmid, M.Cali, T.R. Koehler, *J. Appl. Phys.* 69(1991), 5262

[Sancho 1993]: J.M. Sancho, A.M. Lacasta, M.C.Torrent, J.Garcia-Ojalvo, J.Tejada, *Phys. Lett. A* 181(1993), 335

[Stoner 1948] E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth, *Philos. Trans. R. Soc. London* A240(1948) 599

[Street (1949)]: R. Street and J. C. Woolley, *Proc. Phys. Soc. A* 62 (1949), 562

[Tejada 1994] J. Tejada , X.X. Zhang, C. Ferrater, *Z. Phys B*94(1994), 245

[Tejada 1993] J. Tejada, X.X. Zhang, E.M. Chudnovsky, *Phys. Rev. B* 47(1993), 14977

[Van den Berg 1989]: H. A. M. Van den Berg, *J. Appl. Phys.* 61(1989), 78

[Vitale 1994]: S. Vitale, M. Cerdonio, G.A. Prodi, A. Cavalleri, P. Falferi, A. Maraner, in "Quantum tunneling of the magnetization-QTM'94, NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.

[Vitale 1994b]:S. Vitale, A. Cavalleri, M. Cerdonio, A. Ratnam, *Physica B*194-196(1994), 259

[Wegrowe 1995] J-E Wegrowe, R. Ballou, B. Barbara, V. Amaral, A. Sulpice, D. Maily, *Phys. Rev. B*, 52 (1995), 3466.

[Wegrowe1996 a]: J-E Wegrowe, W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, L. Thomas, B. Barbara, D. Maily, *Phys Rev. B* 53(1996), 6536

[Wegrowe 1996b]: J-E Wegrowe, V.S. Amaral, J.B. Sousa, B. Barbara, J. Magn.Magn.Mat 161, (sous presse).

[Wernsdorfer 1995 a]: W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas, S. Suran, *J. Magn. Magn. Mat.* 145 (1995) 33

[Wernsdorfer 1995 b]: W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, G. Cernicchiaro, D. Maily, B. Barbara, L. Thomas, *J. Magn. Magn. Mat.* 38(1995), 151

[Wernsdorfer 1996a]: W. Wernsdorfer, J-E Wegrowe, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, L. Thomas, B. Barbara, D. Maily, *Phys Rev. B* 53(1996), 3341

[Wernsdorfer 1996b]: W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Doudin, J.Meier, J-Ph Ansermet, D. Maily, B.Barbara, soumis

Références bibliographiques des chapitres expérimentaux

[Wernsdorfer 1996thèse]: "Magnétométrie à micro-SQUID pour l'étude de particules ferromagnétiques isolées aux échelles sub-microniques", UJF Grenoble 1, Mars 1996

[Wüchner 1994]: S.Wüchner, J. Voiron, D.Givord, D.Boursier, J.J Préjean, J. Appl. Phys 75(1994),6682

[Wüchner 1995thèse]:S.Wüchner,"Etude des processus d'aimantation de tri-couches magnétiques à base d'alliage amorphes de terre rares et de cobalt", thèse UJF, Juin 1995

Référence du chapitre IV et des annexes

* [Abramovitz 1972]: M. Abramovicz, I. A. Stegun, Handbook of mathematical functions, Dover (1972) p 229.

[Aharoni 1964]: A. Aharoni, Phys. Rev. 135A(1964), 447

[Asou 1981a]: M. Asou and F. Shibata, J. Phys. Soc. Jpn. 50(1981), 1846

[Asou 1981b]: M. Asou and F. Shibata, J. Phys. Soc. Jpn. 50(1981), 2481

[Balian 1986] R. Balian, Y Alhassid, H. Reinhardt, "Dissipation in many-body systems: a geometric approach based on information theory", Phys. Rep. 131(1986), 1

*[Barbara 1993a]: B. Barbara, L.C. Sampaio, J. E. Wegrowe, B. A. Ratnam, A. Marchand, C. Paulsen, M. A. Novak, J.L. Tholence, M. Uehara, D. Fruchart, J. Appl. Phys. 73(1993), 6703

*[Barbara 1993b]: B. Barbara, J. E. Wegrowe, L.C. Sampaio, J. P. Nozières, M. A. Novak, C. Paulsen, J.L. Tholence, M. Uehara Physica Scripta T49(1993), 268

*[Barbara 1994]: B. Barbara, L. C. Sampaio, A. MArchand, O. Kubo, H. Takeuchi, J. Magn. Magn. Mat. 136(1994), 183

[Bean 1959]: C. P. Bean, J. D. Livingston, Suppl. J. Appl. Phys. 30(1959), 120S

[Beck 1994]: C. Beck, G. Roepstorff, C. Schroer, Physica D 72(1994), 211

[Beck 1994]: C. Beck, J. Stat. Phys. 79(1995), 875

[Bixon 1971]: M. Bixon, R. Zwanzig, J. Stat. Phys. 3:245 (1971)]

[Bloch 1964]: F. Bloch : Phys. Rev. 70 (1946) 460

[Bray 1982]: A. J. Bray and M. A. Moore J. Phys. C 15(1982), 2417

[Bugdor 1976]: A. B. Bugdor J. Stat. Phys. 15(1976), 355

[Cadeira 1988]: A.O Cadeira, K.Furuya J. Phys. C 21(1988), 227

[Caldeira1983]: A. O. Caldeira and A.J. Leggett. Ann. Phys. 149(1983), 374

[Callen 1951]: H. B. Callen et T. A. Welton, Phys. Rev. 83(1951), 34

[Caroli 1979]: B. Caroli, C. Caroli, and B. Roulet, J. Stat. Phys. 21(1979), 415

*[Coffey 1993]: W. T. Coffey, P. J. Gregg "On the Theory of Debye and Néel Relaxation of Single Domain Ferromagnetic Particles" Adv. Chem. Phys. Vol. LXXXIII(1993), 263

* Les références avec un astérisque ont été relevées dans la première série "références des chapitres expérimentaux".

Références bibliographiques générales

- *[Coffey 1994]: W. T. Coffey, D.S.F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, E.S. Massawe, J.T. Waldron, *Phys. Rev. E* 49(1994), 1869
- [Coffey 1995]: W. T. Coffey, D.S.F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, J.T. Waldron, *Phys. Rev. B* 51(1995), 15941
- [Cortés 1985]: E. Cortés, J. West, K. Lindenberg, *J. Chem. Phys.* 82(1985), 2708
- [Cuccoli 1994]: A. Cuccoli, S. W. Lovesey and V. Tognetti, *J. Phys.* 6 (1994), 7553
- [Cuccoli 1992]: A. Cuccoli, V. Tognetti, P. Verrucchi, *Phys. Rev.* B46(1992), 11601
- [Cugliandolo 1994]: L. F. Cugliandolo, J. Kurchan, G. Parisi, *J. Phys. I France* 4(1994), 1641
- [Debye 1912]: P. Debye, *Physik Z.* 13(1912), 97
- [De Gennes 1959]: P. G. De Gennes, rapport du C.E.A de Saclay n° 929 (1959)
- [Dekker 1981]: H. Dekker "Classical and Quantum Mechanics of the Damped Harmonic Oscillator" *Phys. Rep.* 80(1981), 1
- [Dormann 1981]: J.L. Dormann, *Revue Phys. Appl.* 16(1981), 275
- [Dykman 1992]: M.I. Dykman *Phys. Rev. Lett.* 68(1992), 2985
- [Dyson 1956]: F. Dyson, *Phys. Rev.* 102 (1956), 1217)
- [Dyson 1978]: F. Dyson, E. M. Lieb, B. Simon *J. Stat. Phys.* 18(1978), 335
- [Eckern 1990]: U. Eckern, W. Lehr, A. Menzel-Dorwarth, F. Pelzer and A. Schmid *J. Stat. Phys.* 59(1990), 885
- [Edward 1975]: S. F. Edward and P. W. Anderson, *J. Phys.F* 5(1975), 965
- [Feynman 1962]: R. P Feynman and F.L. Vernon, *Ann. Phys.* 24(1962) 118,
- [Fick 1990]: E. Fick and G. Saurmann, "The Quantum Statistics of Dynamic Processes", *Springer Series in Solid-State Sciences* 86, 1990
- [Ford 1965]: G. W. Ford, M. Kac and P. Mazur, *J. Math. Phys.* 6 (1965), 504
- [Ford 1988]: G. W. Ford, J. T. Lewis, R. F. O'Connell, *Phys. Rev. A*, 37(1988), 4419
- [Ford 1991]: G. W. Ford, J. T. Lewis, R. F. O'Connell *Phys. Rev. A*, 138(1991), 367
- [Forster 1975]: D. Forster "Hydrodynamic Fluctuations, Broken Symmetry, and Correlation Functions", *Frontiers in Physics*, 47 (1975).
- [Frohlich 1958]: H. Frohlich, *Theory of dielectrics 2nd* (Oxford: Clarendon), 1958
- [Fronzoni 1986]: L. Fronzoni, P. Grigolini, R. Mannella, B. Zambon, *Phys. Rev. A* 34(1986), 3293
- [Gardiner 1985] C. W. Gardiner, "Handbook of Stochastic Methods" *Springer Series in Synergetics*, 1990

Références bibliographiques générales

- [Gardiner 1991]: C. W. Gardiner, "Quantum Noise" Springer Series in Synergetics, 1991
- [Giachetti 1985]: R. Giachetti et V. Tognetti Phys Rev. Lett. 55(1985), 912
- [Gilbert 1955]: T. L. Gilbert Phys. Rev. 100 (1955), 1243 (Abstract)
- [Grabert 1980]: W. H Grabert and Weidlich Phys. Rev. A, 21 (1980), 2147
- [Grabert 1985]: H. Grabert, P. Olshowski, U. Weiss, Phys. Rev. B.(1985), 3348
- [Grabert 1985(b)]: H. Grabert , P. Shramm and G-L. Ingold, "Quantum Brownian motion: the functional integral approach", Phys. Rep.168(1988), 115-207
- [Grabert 1984]: Grabert, U. Weiss, P. Talkner, Z. Phys. 55(1984), 87
- [Grote 1980]: R. F. Grote and J.T. Hynes, J. Chem. Phys. 73(1980), 2715
- [Hibbs 1965]: A. R.. Hibbs, "Quantum Mechanics and Path Integrals", McGraw Hill, New-York 1965
- [Harris 1990]: E. G. Harris Phys; Rev. A, 42(1990), 3685
- [Harris 1993]: E. G. Harris, Phys. Rev. A, 48(1993), 995
- [Harris 1994]: E. G. Harris: Phys. Rev. B 49(1994), 629
- [Haken 1975]: H. Haken " Cooperative phenomena in systems far from equilibrium and in non physical systems" Rev. of Mod. Phys. 47(1975), 68
- [Hänggi 1981]: P. Hänggi, H. Thomas, "Time -Evolution, Symetries and Response Theory of Stochastic Processes", Physic Reports, 88 (1982), 207-319
- [Hänggi 1990]: P. Hänggi, P. Talkner, M. Borkovec, Rev. Mod. Phys. (1990), 251
- [Heiner 1996]: E. Heiner Physica A 223(1996), 391
- [Huse 1987]: D. A. Huse, D. F. Fisher, Phys. Rev. B, 38 (1988), 373
- [Ichiyanagi 1995]: M. Ichiyanagi, Phys. Rep. 262(1995), 227
- [Ichiyanagi 1994]: M. Ichiyanagi, Phys. Rep. 243(1994), 125
- [Itzikson 1989]: C. Itzikson, J-M. Drouffe, "theorie statistique des champs 1", Ed CNRS 1989
- [Jeakel 1989]: M. T. Jaekel J. Phys. A, 22(1989), 537
- [Jung 1991]: P. Jung, P. Hänggi, Pys. Rev. A44(1991), 8032
- [Kawabata 1972]: A. Kawabata, Prog. Theor. Phys. 48(1972), 2237
- [Kawasaki 1992]: K. Kawasaki, T. Kawakatatsu, J. Stat. Phys.,67(1992), 795 .
- [Kogutyuk 1989]: L.P. Kogutyuk, P. N. Keivan, I. M. Rarenko, Phys. Stat. Sol. (b) 154, 513 (1989)
- [Koch 1982]: R. H. Koch, D. van Harlingen, J. Clarke, Phys. Rev. B 26(1982), 74

- [Koch 1981]: R. H. Koch, D. van Harlingen, J. Clarke, Phys. Rev. Lett. 47(1981), 1216
- [Kramers 1940]: H. A. Kramers, Physica 7(1940), 284
- [Kubo 1954]: R. Kubo, K. Tomita J. Phys. Soc. Jpn, 9(1954), 888
- [Kubo 1957]: J. Phys. Stat. Soc. Jpn. 12(1957), 570
- [Kubo 1971]: Lecture Notes in Phys. 31(1974), 74
- [Landau 1935] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, reprinted in Collected Works of Landau, Pergamonn Press, London, 1965, n°18.
- [Landauer 1989]: in "Noise in non linear dynamical systems", vol. I, Moss, P.V.E. McClintock, Cambridge University Press 1989
- [Landauer 1962]: Landauer, J. Appl. Phys. 33 (1962), 2209
- [Langer 1967]: Langer, Ann Phys. 41,(1967), 108
- [Langevin 1908]: P. Langevin, comptes rendus 146(1908), 530
- [Leggett 1980]: J. A. Leggett , Prog.Theor. Phys. 1980 Supl. p80
- [Lundgren 1981]: L. Lundgren, P. Svedlindh, O. Beckman, J. Mag. Mat. 25(1981), 33
- [Matsuo 1978]: K. Matsuo J. Stat. Phys. 18(1978), 535
- [Mazur 1964]: P. Mazur and E. Braun, Physica 30 (1964), 1973
- [Mori 1958]: H. Mori, Phys. Rev. 112 (1958), 1829
- [Mori 1962]: H. Mori K. Kawasaki Prog. Theor. Phys. 27 n°3 1962
- [Mori 1965]: H. Mori Prog. Theor. Phys, 423 ,1965, 423
- [Moss 1989]: F. Moss, P.V.E. McClintock, "Noise in non linear dynamical systems", Cambridge University Press 1989
- [Moro 1985]: G. Moro, P.L. Nordio, Mol. Phys. 56(1985), 255
- [Nakazawa 1966]: Suppl. Prog. Theor. Phys. 36(1966), 172
- [Northrup 1980]: S. Northrup, J.T. Hynes, J. Chem. Phys. 73(1980), 2700
- [Nyquist 1928]: H. Nyquist Phys. Rev. 32, 110
- [Néel 1949]: L.Néel C.R. Acad Sciences, Paris 228(1949), 664
- [Omari 1984]: R. Omari J.J. Préjean and J. Souletie, J. Phys. 45(1984), 1809
- [Ramshaw 1985]: D. Ramshaw J. Stat. Phys. 38(1985), 669
- [Ramshaw.1984]: J. D. Ramshaw. 1984, J. Stat. Phys. 38,n°3/4 (1985), 669

Références bibliographiques générales

- [Ramshaw.1986]: J. D. Ramshaw and K. Lindenberg 1986, J. Stat. Phys. 45,n°1/2 (1986), 295
- [Riskin 1984]: H. Riskin, "The Fokker Planck equation" Springer Series in Synergetics 1984.
- [Robertson 1966]: B. Robertson Phys. Rev. 144 (1966), 151
- [Robertson 1967]: B. Robertson Phys. Rev. 152(1967), 391
- [Paulsen 1995]: C. Paulsen, J.-G Park, NATO Workshop "Quantum tunneling of the magnetization", NATO ASI, Editor L. Gunther, B.Barbara .
- [Perez-Madrid 1995]: A. Pérez-Madrid et J. M. Rubí Phys. Rev. E, 51(1995), 4159
- [Sampaio 1994]: L. C. Sampaio thèse "Etude de la relaxation de l'aimantation de petites particules et couches minces à basse température" Université Joseph Fourier, Grenoble Oct. 1994
- [San Miguel 1987]: M San Miguel, L. Pesquera, M. A. Rodrigues, A. Hernandez-Manchado, Phys. Rev. A35(1987), 508
- [Schmid 1986]: A. Schmid, Ann. Phys. 170(1986), 333
- [Seshadri 1982]: V. Seshadri, K. Lindenberg, "dissipative contributions of internal multiplicative noise. II. Spin systems" V. , Physica 115A (1982) 501
- [Sherrington 1975]: D. Sherrington and S. Kirkpatrick, Phys. Rev. Lett.32(1975), 1792
- [Shibata 1978a]: F. Shibata, N Hashitsume, J. Phys. Soc. Jpn. 44(1978),1435
- [Shibata 1978b]: F. Shibata, N Hashitsume, Suppl. Prog. Theor. Phys. 64 (1978),83
- [Shibata 1980a]: F. Shibata,J. Phys. Soc. Jpn. 49(1980),15
- [Shibata 1980b]: F. Shibata and M. Asou,J. Phys. Soc. Jpn. 49(1980),1234
- [Shibata 1993]: F. Shibata and C. Uchiyama,J. Phys. Soc. Jpn. 62(1993),381
- [Stern 1990]: A. Stern, Y. Aharonov, Y. Imry, Phys. Rev. A 41(1990), 3436
- *[Stoner 1948]: E. C. Stoner, E. P. Wohlfarth Phil. Trans. Roy. Soc. A240(1948), 599
- *[Street (1949)]: R. Street and J. C. Woolley, Proc. Phys. Soc. A 62 (1949), 562
- [Tanimura 1989]: Y. Tanimura, R. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn., 58(1989), 101
- [Tomita 1976]: H. Tomita, A. Ito H. Kidachi, Prog. Theor. Phys., 56 n°3 (1976), 786
- [Ulyanov 1992]: V. V. Ulyanov and O. B. Zalavskii, "New Methods in the Theory of Quantum Spin Systems", Phys. Rep. 216(1992), 180
- [Van Hemmen 1886]: J. L. van Hemmen, A. Sütö Physica 141 B(1986), 37
- [Van Hove 1954]: L. Van Hove, Phys. Rev. 95 (1954)

Références bibliographiques générales

- [Van Kampen 1961]: N.G. Van Kampen Can J. Phys. 39(1961), 551
- [Van Kampen 1976]: N.G. Van Kampen, Adv. Chem. Phys. 34,(1976), 245
- [Van Kampen 1971]: N.G. Van Kampen, Phys. Norvegia 5(1971), 279
- [Van Velsen 1978]: Van Velsen Phys. Rep. 41, "On linear Response Theory and Area Preserving Mapping" n°2,(1978) 135
- [Villain 1974]: J. Villain J. De Phys. 35(1974), 27
- [Vitali 1989]: D. Vitali , P. Grigolini, Phys. Rev. A, 39, n°5, (1989), 1486
- [Weidlich 1980]: W. Weidlich and H. Grabert Z. Phys. B 36(1980), 283
- [West 1978]: B. J. West, K. Lindenberg, K. Shuler, J. Stat. Phys. 18(1978), 217
- [Zang 1994]: Z. D. Zang and P. C. W. Fung Phys. Stat. Sol. (b) 184, K15 (1994)
- [Zurek 1995]: W. H. Zurek, J. P. Paz, Physica D 83(1995), 300
- [Zurek 1991]: W. H. Zurek :Phys. Today October p36
- [Zwanzig 1972]: R. Zwanzig, K. S. J. Northolm and W. C. Mitchell, Phys. Rev. A 5(1972), 2680
- [Zwanzig 1961]: Phys. Rev. 124(1961), 983

Résumé

Une étude expérimentale de la dynamique de l'aimantation a été réalisée sur un ensemble d'échantillons magnétiques nanostructurés à basse température. Cette étude met en évidence un comportement thermique de la relaxation magnétique lente, non mesuré jusqu'à présent, et contraire aux prédictions des modèles classiques usuels d'activation thermique.

Une comparaison entre les mesures effectuées à l'échelle d'une nanoparticule et sur un grand ensemble de nanoparticules permet d'étudier l'effet du désordre, en particulier le passage entre une relaxation approximativement exponentielle à une relaxation logarithmique. Elle permet de même d'étudier le comportement thermique anormal à partir des fluctuations à l'échelle nanoscopique.

Quelques interprétations sont passées en revue concernant la nature possible des fluctuations anormales observées. L'effet tunnel quantique de l'aimantation est mentionné, ainsi que la possibilité de l'émergence d'un bruit quantique. Par ailleurs, une interprétation en terme de réponse du système à la variation initiale de champ magnétique est proposée. Cette approche permet de focaliser l'étude des fluctuations sur d'éventuels effets inhabituels dus à l'interaction du système magnétique avec son environnement.

Abstract

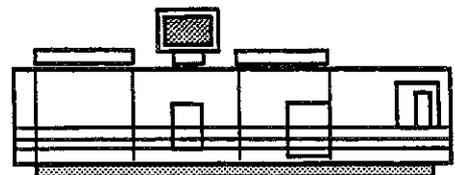
An experimental study of the dynamics of magnetization has been performed on various magnetic nanostructures at low temperature. This study shows a thermal behaviour of the slow magnetic relaxation not previously measured. This behaviour is opposed to that of usual activated processes.

A comparison between the measures performed on one nanoparticle and on a large ensemble of nanoparticles, allows the effect of disorder, e.g. the transition between the exponential relaxation to a logarithmic relaxation, to be analysed. Furthermore, the anomalous thermal behaviour in the fluctuations can be studied at nanoscopic scales.

Some possible interpretations are reviewed concerning this unusual fluctuation behaviour. The quantum tunnelling effect of the magnetization is mentioned, but also a possibility of the emergence of a quantum noise. An interpretation in terms of the response of the system to the initial field variation is also proposed. This last approach focuses the study to non usual effects due to the interaction between the system and its environment.



Grenoble, juin 1996



Imprimé sur "Xerox 5090",
au Service Reprographie du CNRS de Grenoble.

