

THÈSE

Présentée par

Luiz Carlos Sampaio Lima

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

(arrêtés ministériels de 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

(Spécialité : Physique)

Etude de la relaxation de l'aimantation de petites particules et couches minces à basse température

Soutenue le : 28 octobre 1994

Composition du Jury :

Président :	J. Ferré
Rapporteurs :	E. Vincent O.G. Symko
Examineurs :	R. Morel C. Paulsen J.L. Porteseil B. Barbara

**Thèse préparée au sein du Laboratoire de Magnétisme Louis Néel
C.N.R.S. - Grenoble**

*à ma femme et mes enfants:
Monik, Isabelle et Tainá*

REMERCIEMENTS

Je tiens ici à exprimer mes remerciements à :

- Monsieur Dominique GIVORD, Directeur de recherches au Laboratoire Louis NEEL / CNRS à Grenoble, pour m'avoir accueilli dans le laboratoire.
- Monsieur Jacques FERRE, Directeur de recherches à l'Université Paris-Sud / CNRS, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.
- Monsieur Eric VINCENT, Chercheur au C.E.A. à Saclay, pour l'intérêt qu'il a manifesté pour ce travail et pour avoir accepté d'en être rapporteur.
- Monsieur Orest G. SYMKO, Professeur à l'Université de Utah aux Etats Unis, pour s'être intéressé à mon travail et avoir accepté d'être rapporteur de cette thèse.
- Monsieur Robert MOREL, Chargé de Recherches à l'Université Paris -Sud / CNRS, qui a bien voulu aussi accepter d'être membre du jury.
- Monsieur Carley PAULSEN, Maître de conférence à l'Université Joseph Fourier de Grenoble, pour notre relation qui s'est consolidée au tout au long de la préparation de ce travail par ses encouragements.
- Monsieur Jean Louis PORTESEIL, Professeur à l'Université Joseph Fourier de Grenoble, d'avoir bien voulu accepter d'être membre du jury.
- Monsieur Bernard BARBARA, Directeur de recherches au Laboratoire Louis NEEL / CNRS à Grenoble pour sa générosité, ses précieux encouragements, ses nombreux conseils et l'intérêt qu'il a porté à mes travaux, qu'il trouve ici toute ma profonde reconnaissance.

Je tiens à remercier aussi :

- Jean-Louis THOLENCE, Directeur de recherches au CRTBT / CNRS à Grenoble qui a permis l'utilisation de son matériel pour mes expériences sans lesquelles je n'aurai pas pu obtenir mes résultats. Notre amitié en a bénéficié également ! Qu'il soit assuré de ma sincère reconnaissance.
- Bessa SOUSA, Professeur à l'Université de Porto, au Portugal, qui a eu l'extrême gentillesse de m'accueillir dans son laboratoire où nous avons fait d'importantes expériences. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde gratitude.
- Vitor AMARAL, Professeur à l'Université de Porto, au Portugal, dont j'ai fortement apprécié son enthousiasme et son dynamisme.
- Yvette RANC, pour son extrême gentillesse et son dévouement et à qui nous souhaitons, tous, je pense, une excellente retraite bien méritée.
- Toute "l'équipe" ! André MARCHAND, Pierre PUGNAT, Pascal ROOS, Luc THOMAS, Ricard FERRE, Jean Eric WEGROWE, Fred LIONTI, Wolfgang WERNSDORFER, Massimo GHIDINI, Estanislao TOMEY et Enrick OLIVE, mes copains. En particulier Pascal ROOS et Luc THOMAS qui se sont imposés une lecture soigneuse de mon manuscrit. Wolfgang WERNSDORFER, Ricard FERRE et Jean Eric WEGROWE avec qui nous avons bien souvent mis au point nos connaissances scientifiques et amicales ! Super !

Enfin, je suis très reconnaissant au CNPq pour avoir financé mon séjour à Grenoble.

TABLES DES MATIÈRES

INTRODUCTION	1
--------------------	---

CHAPITRE 1 : Quelques aspects de la relaxation l'aimantation... 7

1.1 • Viscosité magnétique $S(H,T)$	7
1.2 • Influence du champ magnétique sur $S(H,T)$	12
1.3 • Variation de l'aimantation au cours du temps	13
1.4 • Influence de la distribution de barrières d'énergie sur $S(H,T)$ aux basses températures	14
1.4.1 • Divergence de la distribution de barrières d'énergie $f(E)$	14

CHAPITRE 2 : Effet de l'orientation des particules par rapport au champ magnétique appliqué - distribution de champ de retournement $v(H_0)$ 19

2.1 • Influence de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ sur la barrière d'énergie E	19
2.2 • Distribution de champ de retournement $v(H_0)$	20
2.3 • Distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ avec les distributions de volume et champ $\rho(V)$ de retournement $v(H_0)$	21
2.4 • Viscosité magnétique $S(H,T)$ avec les distributions de volume $\rho(V)$ et champ de retournement $v(H_0)$	27
2.5 • Dépendance en température du champ coercitif $H_c(T)$	31

2.6 • Dépendance en température du maximum de la viscosité magnétique $S_{Max}(H,T)$ obtenue à partir des courbes de $S(H,T)$ en fonction du champ magnétique appliqué	32
2.7 • Loi d'échelle de l'aimantation	33
2.8 • Divergence de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ aux basses températures	34

CHAPITRE 3 : Effets tunnel de l'aimantation

3.1 • Effet tunnel en échelle macroscopique	40
3.2 • Effet tunnel de l'aimantation	43
3.2.1 • Résumé de la théorie	43
3.2.2 • Résultats expérimentaux	46

CHAPITRE 4 : Petites particules non orientées de ferrite de Baryum

4.1 • Particules de ferrite de Baryum non orientées	59
4.2 • Mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$	65
4.3 • Dépendance en température du champ coercitif $H_C(T)$	70
4.4 • Dépendance en température du maximum de la viscosité magnétique $S_{Max}(H,T)$ obtenue à partir des courbes de $S(H,T)$	71
4.5 • Dépendance en champ de la température de blocage	73
4.6 • Mesures de $S(H,T)$ en dessous de 1,5 K	75
4.7 • Détermination de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ obtenue par des mesures de $S(H,T)$ à basse température	76
4.8 • Détermination de la distribution de volume $\rho(V)$ obtenue par des mesures de $S(H,T)$ à haute température - Loi d'échelle en température et champ	78
4.9 • Analyse critique au modèle	80

CHAPITRE 5 : Petites particules orientées de ferrite de Baryum et couches minces de TbFe₃ et SmCo₂	85
I - Particules orientées de ferrite de Baryum	85
5.1 • Largeur de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ pour des particules orientées	85
5.2 • Mesures de S(H,T)	87
5.3 • Mesures de S(H,T) aux basses températures	88
II - Couches minces de TbFe₃	92
5.4 • Mesures de S(H,T) sur des couches de TbFe ₃	92
III - Couches minces de SmCo₂	95
5.5 • Mesures de S(H,T) sur des couches de SmCo ₂	95
CONCLUSION	101
ANNEXES	
1 - Obtention de l'expression de la barrière d'énergie en fonction du champ magnétique appliqué pour un système composé de petites particules	105
2 - Loi d'échelle de l'aimantation	107
REFERENCES	109

Introduction

Au cours de ces dernières années, l'étude des propriétés magnétiques de systèmes mésoscopiques (tels que petites particules, couches ultra-minces, systèmes sandwich ...) a pris une grande importance en raison de ses applications technologiques aussi bien réelles que potentielles ainsi que des problèmes de physique fondamentale qu'elle soulève. L'un de ces problèmes et peut-être le plus extraordinaire, est la possibilité pour l'aimantation d'un objet mésoscopique tel qu'une petite particule de passer, à basse température, d'une direction de facile aimantation à la direction opposée par effet tunnel. Ce problème se pose à une échelle intermédiaire entre l'échelle atomique où la mécanique quantique joue un rôle essentiel et l'échelle macroscopique où en général elle ne s'applique pas. Au cours des années 80, A.J. Leggett [Leg,1980] a bien montré que la non applicabilité de la mécanique quantique à l'échelle macroscopique n'est pas inhérente à cette théorie mais résulte seulement du fait qu'à cette échelle les effets de dissipation, extrêmement importants, détruisent tout effet de cohérence quantique. En fait quelques années plus tard, des effets quantiques à échelle macroscopique ont été mis en évidence pour des jonctions Josephsons et des SQUIDs .

La mise en évidence d'un tel effet en magnétisme est en train de s'effectuer maintenant. L'idée d'un effet tunnel de l'aimantation avait été suggérée dès 1959 par C.P. Bean et J. Livingston [Bea,1959] à propos de mesures de L. Weil sur une poudre de Ni [Weil,1954]. Au début des années 70, T. Egami [Ega,1973] a développé une théorie de l'effet tunnel de paroi afin d'interpréter les mesures de relaxation de B. Barbara et al. sur Dy_3Al_2 [Bar,1972]. Plus tard, le premier article expérimental consacré à l'effet tunnel de l'aimantation a été publié à propos de mesures de traînage magnétique sur un monocristal de $Sm(CoCu)_5$ [Ueh,1986]. Par la suite, la théorie s'est rapidement développée (S.L. van Hemmen & A. Suto [Hem,1986], M. Enz & R. Schilling [Enz,1986], E.G. Chudnovsky & L. Gunther [Chu,1988], P.C.E. Stamp [Sta,1992], ...), et, à son tour, a alimenté le côté expérimental. Cette reprise s'est effectuée dans plusieurs directions avec essentiellement, l'étude de systèmes simples à une particule et celle d'assemblées de particules.

Pour notre part, nous avons participé au début de cette phase expérimentale avec l'étude de la dépendance en température de la viscosité (ou traînage) magnétique aux basses températures de plusieurs systèmes. L'intérêt croissant porté à ce sujet s'est reflété

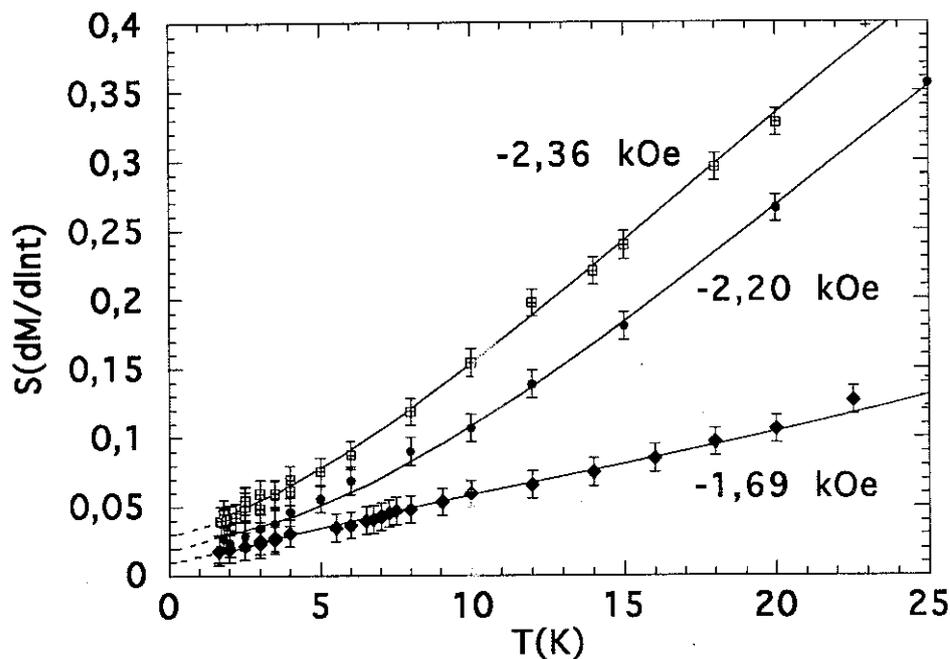
par les nombreux travaux publiés dernièrement, notamment lors de symposiums consacrés à l'effet quantique macroscopique en magnétisme au sein de conférences internationales comme : la "Magnetism and Magnetic Materials Conference" (1992), les réunions des sociétés Américaine et Européenne de physique, la dernière Conférence Internationale de Magnétisme (ICM 1994/Varsovie), et un Workshop/NATO (1994) qui a réuni les plus grands spécialistes de ce nouveau domaine, à Grenoble et Chichillianne.

La mise en évidence indubitable de l'effet tunnel de l'aimantation par des mesures de viscosité magnétique nécessite en premier lieu de bien comprendre les effets de relaxation classique. Il s'agit d'une évidence, mais elle n'a jusqu'à présent pas été vraiment prise en considération. A partir des travaux pionniers de L. Néel [Née,1949] et R.Street & J.C.Wolley [Str,1949], nous savons que pour une relaxation par activation thermique la viscosité magnétique prend la forme suivante $S(H,T) \propto k_B T f(E_C(T),H)$, où $f(E_C(T),H)$ est la valeur de la distribution de barrières d'énergie dans la fenêtre d'observation $E_C(T)$. Cette énergie est obtenue à partir de la loi d'activation thermique et est égale $k_B T \ln(t/\tau_0)$, où t est le temps de mesure et τ_0 est un temps caractéristique du système pouvant aller de 10^{-6} à 10^{-12} s. Cette fenêtre d'observation existe car il existe des temps de relaxation très courts et très longs par rapport à l'échelle de notre système de mesure (magnétomètre à extraction), nous ne mesurons que les temps de relaxation qui sont de l'ordre de 10^{-10} s. En changeant la température, nous déplaçons la fenêtre $E_C(T)$, et comme cela on peut parcourir toute la fonction de distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$. *Remarquons alors, que la forme de $f(E,H)$ détermine la dépendance en température et en champ de la viscosité magnétique $S(H,T)$.* En particulier, le régime d'activation thermique donne, si la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ est large et si la température n'est pas trop élevée, un comportement en $S(H,T)$ proportionnel à la température, et bien sûr, une valeur nulle pour la limite $T \rightarrow 0$.

D'autre part, pour une relaxation de l'aimantation par effet tunnel, on s'attend à trouver une relaxation finie lorsque $T \rightarrow 0$. Cependant, si les effets de dissipation sont importants, cela n'est plus le cas : la relaxation à basse température montre des déviations importantes par rapport à un comportement linéaire, mais finalement s'annule à $T = 0$.

Afin de mieux comprendre les mécanismes de relaxation thermique et éventuellement quantique, nous avons décidé d'étudier un système suffisamment simple et bien caractérisé. Ce système est constitué d'une assemblée de Ferrite de Baryum (- 317 Å de diamètre et 140 Å de largeur moyenne) dont la distribution de taille a été déterminée avec précision par microscopie électronique. Nous présentons sur la figure ci-dessous des

mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour différents champs appliqués. *Notons qu'aux basses températures, la viscosité magnétique $S(H,T)$ semble bien ne pas s'annuler dans la limite $T \rightarrow 0$.* Dans la littérature courante, de comportement semblables sont d'emblée attribués à une relaxation de l'aimantation par effet tunnel! *Expliquer de tels comportements sans faire appel à des effets quantiques constitue l'une des principales motivations de ce travail.*



Viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour $H=-1,69$ kOe, $-2,20$ kOe et $-2,36$ kOe pour des particules non orientées de ferrite de Baryum. Les lignes tracées servent juste pour guider les yeux.

La barrière d'énergie d'une petite particule monodomaine dont l'aimantation se retourne uniformément s'écrit : $E=K_a V(1-H/H_0)^2$, où K_a est la constante d'anisotropie, V est le volume et H_0 est son champ de retournement. Cette expression n'est pas modifiée si l'on considère une assemblée de particules *identiques*, orientées et sans interaction. Imaginons dans ce cas, qu'après l'application d'un champ de saturation, on ramène le champ à zéro et on regarde l'évolution de l'aimantation au cours du temps. Nous devons trouver une décroissance exponentielle : $M(t)/M_s = e^{-t/\tau}$ avec τ donné par la loi d'activation thermique ($\tau=\tau_0 \exp(E/k_B T)$). Dans le cas général, le volume V est distribué selon une loi de distribution ($\rho(V)$), et par conséquent l'énergie est aussi distribuée. Cela conduit à une distribution de temps de relaxation τ , qui est en général très large en raison de la dépendance exponentielle ($\tau=\tau_0 \exp(E/k_B T)$). Dans ce cas, la prise en compte de tous les temps de relaxation conduit à une décroissance de l'aimantation en logarithme du temps : $M(t)/M_s = 1 - k_B T f(E_C) \ln(t/\tau_0)$. Ici, la relaxation peut être caractérisée par $S \equiv dM/dlnt \propto k_B T f(E_C(T), H)$, que l'on appelle la viscosité (ou traînage) magnétique. Dans cette étude,

nous avons considéré aussi l'existence d'une loi de distribution pour le champ de retournement H_0 [Cha,1988 et Bar,1993c]. Cette distribution $v(H_0)$ a pour origine essentiellement l'orientation des particules. Nous pouvons comprendre cela, en prenant le modèle de Stoner-Wohlfarth [Sto,1949] où $H_0(\theta)$ est fonction de l'angle entre le champ appliqué et la direction de facile aimantation. Si les directions de facile aimantation des particules sont parallèles au champ magnétique appliqué, elles ont toutes le même champ de retournement H_0 , et à très basse température, il correspond au champ d'anisotropie H_a . Le cycle d'hystérésis est alors carré. Cependant, si les particules ne sont pas orientées le cycle d'hystérésis est arrondi. La distribution $v(H_0)$ est caractérisée par une valeur moyenne H_{0m} égale à $H_a/2$, correspondant expérimentalement au champ coercitif. La largeur Δ de la distribution $v(H_0)$ est obtenue à partir de la dérivée de $(\partial M/\partial H)$ à basse température.

Afin de mettre en valeur le rôle de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ sur la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$, prenons un ensemble de particules *identiques mais non orientées*, c'est-à-dire avec la distribution $v(H_0)$ seulement. Il est facile de voir l'effet de cette distribution en faisant les remarques suivantes : i) les particules tels que $H_0 < H$ se retournent immédiatement, ii) les particules tels que H_0 est supérieur mais proche de H ont une énergie de barrière E très petite et par conséquent des basses températures seront suffisantes pour faire passer de telles barrières, iii) pour $H_0 > H$ le rapport H/H_0 devient petit et toute petite variation de H_0 ne joue pas trop sur l'énergie de barrière, et dans ce cas le terme $K_a V$ devient prédominant. A partir du deuxième point, *remarquons qu'en distribuant le champ de retournement H_0 , on change en effet la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ en peuplant les faibles énergies. L'effet résultant consiste à augmenter la viscosité magnétique $S(H,T)$ aux basses températures.* Comme nous allons le voir par la suite, $S(H,T)$ prend aux basses températures la forme suivante : $S(H,T) \propto T^{1/\alpha}$ (avec $\alpha > 1$). Cette forme rend compte de la discussion précédente et explique le comportement observé sur la figure ci-dessus. Ainsi, l'extrapolation faite à température nulle n'est plus valable et $S(H,T)$ s'annule en fait pour la limite $T \rightarrow 0$ comme cela est attendu pour une relaxation de l'aimantation par activation thermique. Des mesures complémentaires de $S(H,T)$ effectuées pour ces particules de ferrite de Baryum jusqu'à 100 mK montrent bien la dépendance $T^{1/\alpha}$ avec α égale à $2,0 \pm 0,4$ [Bar,1994 et Sam,1994].

Par ailleurs, la même étude faite sur des particules orientées de ferrite de Baryum ayant un fort degré d'orientation où par conséquent la distribution $v(H_0)$ ne joue aucun rôle, ne montre plus de toute cette variation en $T^{1/\alpha}$, ce qui nous permet d'éliminer le mécanisme quantique au profit de celui thermique activé. Des couches minces de $TbFe_3$ et $SmCo_2$ montrent aussi un comportement assez particulier aux basses températures et qui a

priori ne peut pas être expliqué par l'influence de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$.

Au chapitre 1, nous décrivons les concepts généraux de la relaxation de l'aimantation. Au chapitre 2, nous prenons en compte la distribution de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$ pour le calcul de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$, et avec celle-ci nous abordons notre étude de l'influence de la distribution $v(H_0)$ sur la viscosité magnétique $S(H,T)$ aux basses températures. Le chapitre 3 est consacré à une brève discussion des résultats théoriques et expérimentaux sur l'effet tunnel de l'aimantation trouvés récemment dans la littérature. Dans la deuxième partie, nous présentons (chapitre 4) les résultats expérimentaux sur des petites particules non orientées de Ferrite de Baryum où nous appliquons le modèle développé au chapitre 2. Nous présentons et discutons enfin, les résultats inattendus de mesures de $S(H,T)$ sur des particules de Ferrite de Baryum ayant un fort degré d'orientation, et sur des couches minces de $TbFe_3$ et $SmCo_2$.

Chapitre 1

Quelques aspects de la relaxation de l'aimantation

La relaxation est un phénomène très courant dans la nature. Lorsqu'un système¹ est dans un état d'équilibre métastable, et en contact avec un thermostat, il se trouvera au bout d'un temps fini τ (appelé temps de relaxation) dans son état global d'énergie minimale. Ce temps τ , en général distribué, peut être par rapport à notre échelle habituelle, très long comme pour un verre de spin ou très court comme pour un sel paramagnétique.

Dans ce chapitre nous décrirons quelques généralités sur la dynamique lente de l'aimantation connue en magnétisme sous le nom de viscosité magnétique S ("magnetic after effect"). Nous allons aboutir à des expressions de la relaxation $S(H,T)$ et de la fonction de distribution de barrières d'énergie $f(E)$. On remarque que pour l'expression obtenue de $S(H,T)$, on tient compte de la température T et du champ magnétique appliqué H . Nous commenterons les travaux effectués à ce jour et nous développerons des expressions de $S(H,T)$ pour un ensemble de petites particules sans interaction. A la fin du chapitre 4, nous ferons quelques remarques au sujet de l'influence de l'interaction entre les particules.

1.1 - Viscosité magnétique $S(H,T)$

Par raison de simplicité, nous développerons une description de la relaxation de l'aimantation pour des petites particules sans interaction. Cette approche est aussi valable pour des particules très anisotropes où l'énergie d'anisotropie est beaucoup plus forte que l'énergie d'interaction dipolaire. Cela simplifiera notre raisonnement car l'énergie de barrière en champ nul en fonction du volume prend alors une forme très simple: $E=K_a V$, où K_a est la constante d'anisotropie et V le volume. Le volume peut être déterminé par microscopie électronique et, dans ce cas, il sera toujours possible de connaître avec plus ou moins de précision la distribution des barrières d'énergie $f(E)$. En général, pour un système quelconque où les interactions entre les particules doivent être prises en compte, il n'est pas toujours possible de connaître la forme de $f(E)$.

Le modèle qui suit est basé sur les calculs précurseur de Néel [Nee,1949] et, Street et Wooley [Str,1949]. Considérons une particule ferromagnétique monodomaine à une température inférieure à sa température de blocage de l'aimantation, et soumise tout

¹Le système en question est un ensemble canonique.

d'abord à un champ de l'ordre du champ de saturation H_S , puis à un champ H_1 négatif compris entre zéro et le champ de retournement. Cette procédure met la particule dans un état d'équilibre métastable. Selon le temps d'attente dans cet état, l'aimantation restera ou non parallèle à l'aimantation à saturation. Cette expérience est schématisée figures 1(a) et 1(b).

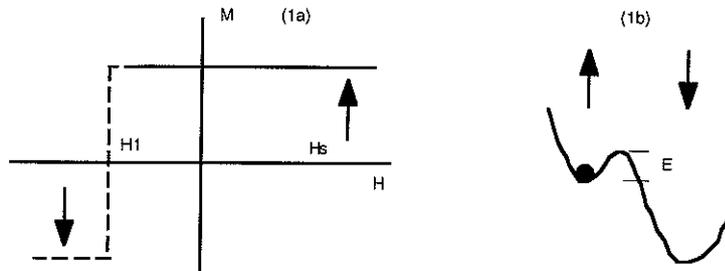


Figure 1. Schéma de l'expérience (1a), configuration métastable avant le retournement de l'aimantation (1b).

Comme le retournement de l'aimantation d'une particule constitue un événement rare et indépendant de celui des autres particules (en absence d'interaction), après un temps t d'application du champ H_1 , l'aimantation de l'ensemble de ces particules doit suivre une décroissance exponentielle². Alors, l'aimantation est donnée par,

$$M(t) = (M_S - M_{eq})e^{-t/\tau(E)} + M_{eq} \quad (1)$$

Le temps de relaxation τ suit en général une loi d'activation thermique - $\tau(E) = \tau_0 \exp(E/k_B T)$ où $10^{-6} > \tau_0(\text{s}) > 10^{-12}$ s. M_S est l'aimantation à saturation et M_{eq} l'aimantation à l'équilibre, en principe obtenue, après un temps qui peut être très long. La constante de temps τ_0 est une fonction faible de la température et du champ [Kli,1990], et cette dépendance est toujours négligée devant la variation exponentielle en E et T .

On remarquera qu'en raison de cette dépendance exponentielle, une petite variation de l'énergie de barrière E produit une variation importante du temps de relaxation. Par exemple, une variation de 10% du diamètre d'une petite particule conduit à un temps de relaxation τ multiplié par un facteur voisin de 10^4 .

Maintenant, si on considère une distribution de l'énergie de barrière $f(E)$, l'aimantation prend la forme suivante :

²Cette dépendance exponentielle a été récemment mesurée pour des matériaux organiques composés d'agrégats de Mn. Chaque agrégat est formé de 12 atomes de Mn. Les agrégats ne sont pas en interaction et leurs moments magnétiques sont parallèles [Can,1993].

$$M(t) = \int_0^{\infty} ((M_S - M_{eq})e^{-t/\tau(E)} + M_{eq})f(E)dE . \quad (2)$$

Comme la viscosité magnétique S est définie par $S=dM/d\ln t=tdM/dt$, l'expression (2) s'écrit

$$S(T) = -(M_S - M_{eq}) \int_0^{\infty} \Gamma(E)f(E)dE \quad (3)$$

où $\Gamma(E) = (t/\tau(E))e^{-t/\tau(E)}$ est une fonction assez pointue et semblable à la fonction delta de Dirac. Elle est centrée sur $E_c(t,T)=k_B T \ln(t/\tau_0)$ et $\Gamma(E_c)$ correspond au maximum de $\Gamma(E)$, avec $\Gamma(E_c)=1/e$. Les fonctions $\Gamma(E)$ et $f(E)$ sont représentées sur la figure 2. Nous pouvons considérer que la fonction $f(E)$ ne varie pas beaucoup autour de sa valeur à E_c , et par conséquent on peut la considérer comme étant constante et égal à $f(E_c)$. Nous allons évaluer cette approximation par la suite. L'intégration de $\Gamma(E)$ par rapport à l'énergie donne $-k_B T$ ($\int_0^{\infty} x e^{-x} dx = 1$ avec $x=t/\tau$) et la relaxation prend la forme suivante,

$$S(T) = (M_S - M_{eq})k_B T f(E_c) . \quad (4)$$

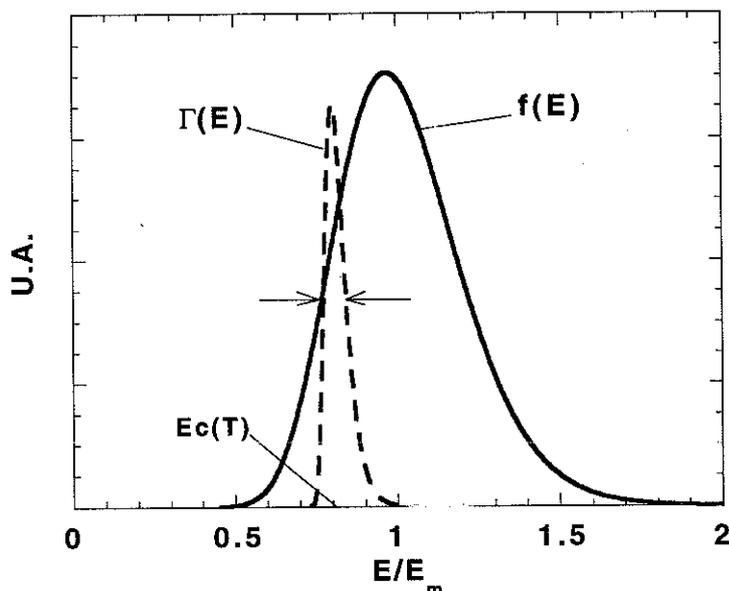


Figure 2. Exemples de fonctions $\Gamma(E)$ et $f(E)$. On a utilisé pour $f(E)$ une fonction log-normale avec $E_m=3 \cdot 10^{-13}$ erg et $\sigma=0,2$ où E_m est l'énergie moyenne et σ l'écart-type (ceux paramètres correspondent à des valeurs réelles). $\Gamma(E)$ a été calculée pour $T=65K$. La "fenêtre d'énergie" $2,45 k_B T$ correspond, par exemple, à une différence de diamètre de 10\AA . Les fonctions $\Gamma(E)$ et $f(E)$ ne sont pas dans la même échelle.

On peut remarquer que $S(T)$ varie avec la température comme $T \cdot f\{E_c = k_B T \ln(t_{\text{obs}}/\tau_0)\}$, où t_{obs} est le temps d'observation du système expérimental qui correspond en général à 10^{-10} s. Etant donné qu'il existe une loi de distribution de l'énergie E et du fait de la loi d'activation thermique, la loi de distribution du temps τ sera encore beaucoup plus large. En conséquence l'énergie E_c constitue une "fenêtre d'observation" sur la fonction de distribution $f(E)$. Cette "fenêtre" ne permet de "voir" qu'une fraction de l'ensemble des particules qui relaxent. Lorsqu'on mesure $S(T)$ en diminuant la température, la "fenêtre" se déplace vers les faibles énergies. Plus les mesures sont faites aux basses températures plus on "observe" les plus petites particules. Cette propriété nous permet, comme on le verra plus loin, d'obtenir $f(E)$ d'après les mesures de relaxation seulement.

L'expression (4) peut être retrouvée d'une façon plus précise en développant $f(E)$ en série de Taylor autour de E_c [Ber,1992],

$$f(E) = f(E_c) + \sum_{k=1}^{\infty} (E - E_c)^k \frac{f^{(k)}(E_c)}{k!}. \quad (5)$$

En revenant à (3), la relaxation est obtenue comme,

$$S(T) = -(M_s - M_{\text{eq}}) k_B T f(E_c) \left\{ 1 + \frac{1}{f(E_c)} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{f^{(k)}(E_c)}{k!} (-1)^{k+1} (k_B T)^k I_k \right\} \quad (6)$$

avec $I_k = \int_0^{\infty} (\ln x)^k e^{-x} dx$ (en utilisant le changement de variable : $u = \exp((E_c - E)/k_B T)$). Les expressions (4) et (6) sont légèrement différentes, correspondant à une correction d'ordre $k - O(k) \cong (k_B T / \sigma \cdot E_m)^k$. On observe que cette correction devient plus importante pour des particules plus petites, pour des distributions plus étroites ou pour des températures élevées. Les fonctions $S(T)$ obtenues à partir des expressions (3) ou (4) sont reportées sur la figure 3. On constate que même pour des valeurs de σ aussi petites que 0,2, ce qui en pratique est considéré comme caractérisant une distribution assez étroite, les courbes sont presque identiques. On peut donc conclure que l'expression (3) est pratiquement toujours valable.

Il est intéressant de rappeler que ce résultat est assez général et qu'il ne se limite pas seulement aux distributions plates ($f(E)$ constante entre E_{min} et E_{max}) comme cela est souvent présenté dans la littérature, par exemple voir R.Street et J.C.Woolley [Str,1949].

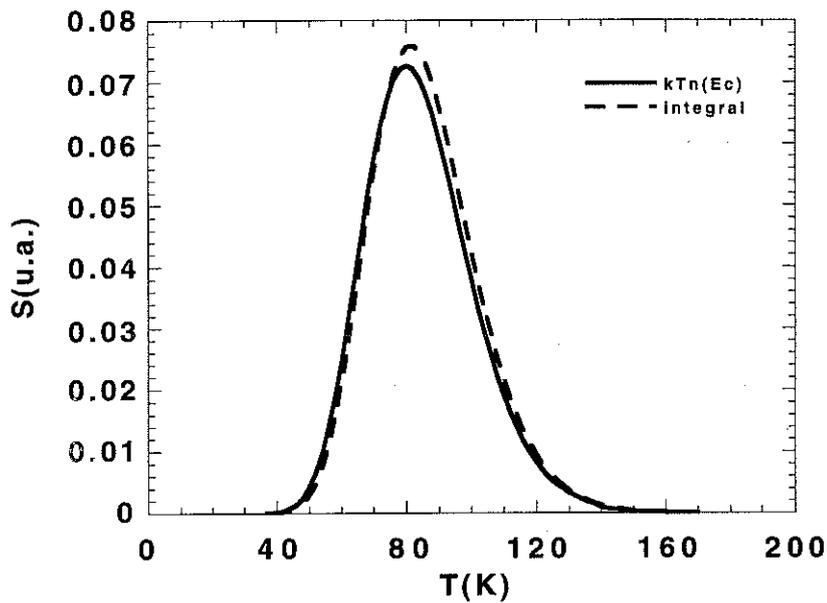


Figure 3. $S(T)$ pour une distribution des barrières d'énergie $f(E)$ log-normale avec $E_m=3 \cdot 10^{-13}$ erg et $\sigma=0,2$. La courbe en trait pleine correspond au résultat exact (éc. 3) et celle en pointillés correspond à l'approximation donnée par l'équation 4.

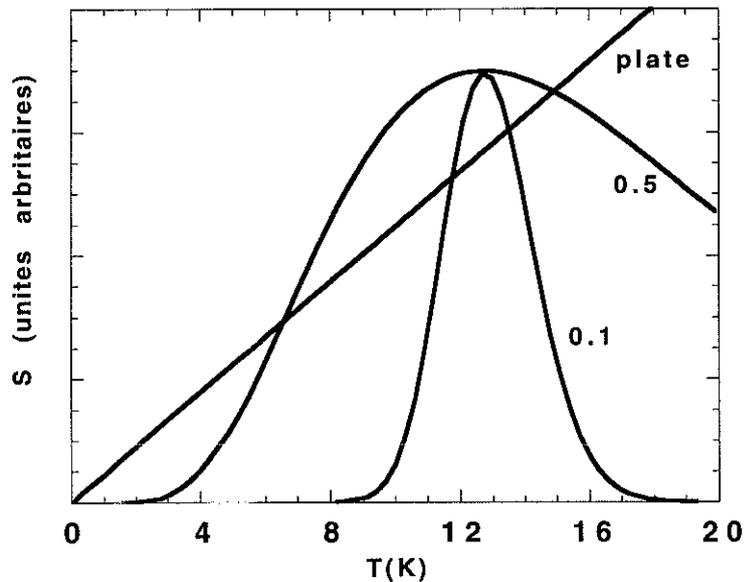


Figure 4. $S(T)$ calculée à partir de l'expression (3) pour une distribution des barrières d'énergie $f(E)$ log-normale ($\sigma=0,1$ et $0,5$) et pour une distribution plate. Les distributions ne sont pas normalisées.

Nous reportons, figure 4, quelques courbes de viscosité magnétique calculées d'après l'expression (3) en fonction de la température. En particulier, nous avons

choisi différentes largeurs pour la distribution log-normale et aussi une distribution plate. Nous observons que pour des distributions très larges la relaxation tend vers un comportement linéaire passant par zéro. Nous pouvons aussi remarquer que plus $f(E)$ est étroite, plus la relaxation tend vers zéro à températures plus élevées.

1.2 - Influence du champ magnétique sur la relaxation $S(H,T)$

L'application d'un champ magnétique diminue l'énergie de barrière à cause du couplage Zeeman. Pour un système de petites particules d'axes de facile aimantation parallèles au champ appliqué, l'énergie résultante est donnée par $E=K_a V(1-H/H_0)^2$ où H_0 est le champ de retournement d'une particule (voir annexe 1). Comme $f(E)dE=\rho(V)dV$, on obtient,

$$f(E) = \frac{\rho(V)}{(\partial E / \partial V)} = \frac{\rho(V)}{K_a (1 - H / H_0)^2} \quad (7)$$

Pour retrouver $S(H,T)$, nous appliquons la relation (7) à l'expression (4) et finalement [Bar,1994],

$$S(H,T) = (M_S - M_{eq})k_B T \frac{\rho(V_c)}{K_a (1 - H / H_0)^2} \quad (8)$$

avec $V_c = k_B T \ln(t/\tau_0) / K_a (1 - H/H_0)^2$.

L'expression ci-dessus montre que la distribution de volume $\rho(V)$ peut être calculée en utilisant seulement les mesures de $S(H,T)$. Cette expérience faite pour l'un des nos échantillons a redonné la même distribution que celle mesurée par microscopie électronique. Ce résultat sera présenté plus tard au moment de la discussion des résultats expérimentaux (chapitre 4).

1.3 - Variation de l'aimantation au cours du temps

La façon par laquelle l'aimantation relaxe dépend essentiellement de la largeur de la fonction de distribution de barrières d'énergie $f(E)$. Si les énergies de barrière sont identiques, l'aimantation relaxe exponentiellement comme: $M(t)/M_S = 2e^{-t/\tau} - 1$, où le temps de relaxation τ est donné par la loi d'Arrhenius $\tau = \tau_0 \exp(E/k_B T)$. Comme nous montrons dans l'annexe 2, pour le cas où l'énergie de barrières E (ou le temps de relaxation τ) suit une loi de distribution $f(E)$, l'expression générale pour la relaxation de l'aimantation est donnée par ,

$$M(t, T) / M_s = 1 - 2 \int_0^{E_c(t, T)} f(E) dE. \quad (8)$$

Pour simplifier la discussion, nous avons pris $M_{eq} = -M_s$. L'énergie $E_c(t, T)$ est égale à $k_B T \ln(t/\tau_0)$. En pratique, $E_c(t, T)$ est donnée par la loi d'Arrhenius en égalisant le temps de relaxation τ d'une particule et le temps de mesure t . Cela veut dire qu'à l'instant de mesure t , la décroissance de l'aimantation est due aux particules qui ont leur temps de relaxation égal au temps de mesure.

A titre d'exemple, nous présentons sur la figure 5, deux fonctions de distribution $f(E)$ différentes et l'évolution respective de leur aimantation au cours du temps. Nous traçons l'aimantation en fonction de E_c , c'est-à-dire, en fonction de $T \ln(t/\tau_0)$. Pour une température fixe et, si on pouvait mesurer des temps très court jusqu'au temps très long, on aurait des courbes comme celles qui sont montrées sur la figure 5.

D'un point de vue pratique, pour aboutir à la courbe maîtresse ($M(t, T)$ en fonction de $T \ln(t/\tau_0)$) on mesure la relaxation seulement entre 10 et 3600 secondes pour plusieurs températures différentes. Récemment, l'étude de la relaxation de l'aimantation en fonction de $E_c(t, T)$ ($= T \ln(t/\tau_0)$) a été très utilisée [Sou, 1984, Lab, 1993 et Vin, 1994]. En fait, puisque la mesure de l'aimantation est faite au cours d'environ une heure, l'aimantation se relaxe en logarithme du temps. En réalité, pour de temps très court jusqu'au temps très long, la véritable forme de la relaxation de l'aimantation est déterminée par $f(E)$.

L'expression 9 nous permet aussi de trouver la forme habituelle de la relaxation de l'aimantation, mesurée dans la pratique pendant environ une heure et à une température fixe. Cela correspond à la relaxation vue par notre fenêtre d'observation.

Comme la fenêtre d'observation est étroite et la distribution $f(E)$ varie très peu dans cet intervalle, on peut prendre une valeur moyenne pour la distribution $f(E)$ dans un intervalle $dE = k_B T \cdot d(\ln(t/\tau_0))$, à savoir $f(k_B T \cdot \ln(t_m/\tau_0))$, où t_m est un temps moyen entre 1 et 3600 s. En faisant cela, $f(E_c)$ sort de l'intégration, et en intégrant $\{dE_c = k_B T \cdot d(\ln(t/\tau_0))\}$ entre un temps minimum, disons une seconde, jusqu'à un temps t , nous trouvons,

$$M(t, T) / M_s = 1 - 2k_B T \cdot f(k_B T \ln(\frac{t}{\tau_0})) \cdot \ln(t). \quad (10)$$

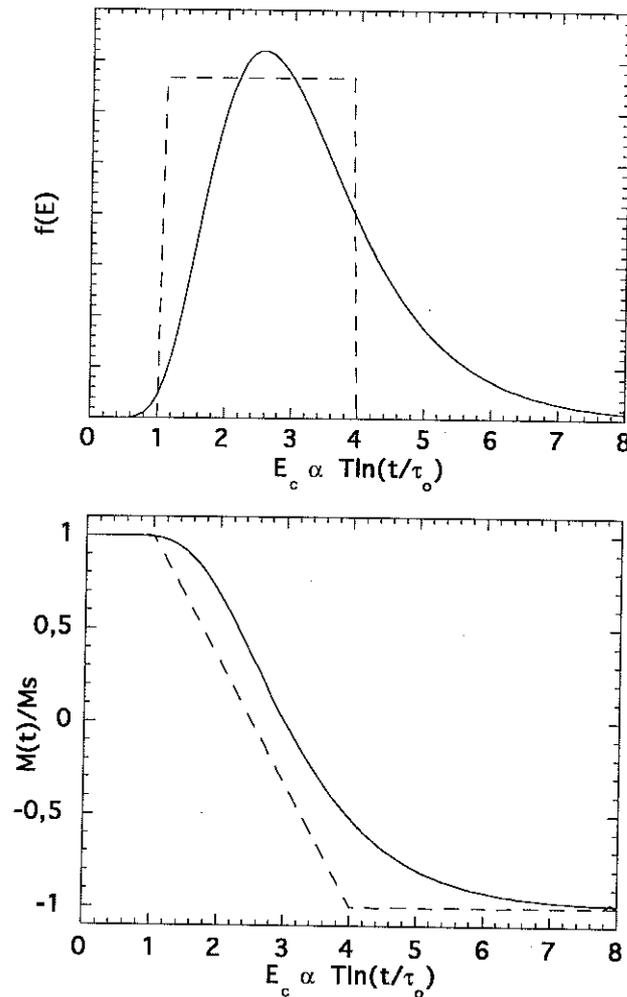


Figure 5 - Distribution de barrières d'énergie (en haut) et leur l'aimantation correspondante (en bas) en fonction de $T \ln(t/\tau_0)$.

Remarquons qu'à partir de l'expression ci-dessus, on trouve bien sûr la même expression de la viscosité magnétique $S(T) = dM/d \ln t = 2M_s k_B T f(E_c)$ trouvée antérieurement (voir équation 4).

Etant donné que le rapport entre la distribution de barrières d'énergie $f(E)$ et la distribution de volume de particules est égal à $f(E_c) = \rho(V_c) / K_a (1-H/H_0)^2$ (voir l'expression 7, V_c est le volume des particules qui relaxent et qui sont vues par la fenêtre d'observation), si l'on trace $(S/T) \cdot K_a (1-H/H_0)^2$ (qui est égal à $\rho(V)$) en fonction de $k_B T \cdot \ln(t/\tau_0) / K_a (1-H/H_0)^2$ (qui est égal à V), on obtient une loi d'échelle où toutes les mesures se trouvent sur une même courbe indépendamment de t , T et H . Cette loi d'échelle s'identifie à la distribution de volume d'une assemblée de particules sans interaction, où plus généralement du volume d'aimantation qui se retourne (une couche, un matériau massif) indépendamment des autres. Cette loi d'échelle est un résultat remarquable et doit être toujours pris en

compte lors d'une étude de la relaxation magnétique. Comme on le verra par la suite, lors de la discussion des résultats, la distribution de taille de particules trouvées par cette procédure reproduit bien les mesures expérimentales obtenues par microscopie électronique pour les particules de ferrite de Baryum.

1.4 - Influence de la forme de $f(E)$ sur celle de $S(H,T)$ aux basses températures

Lors de la discussion sur les effets quantiques, on doit d'abord se demander si les valeurs non nulles de $S(H,T)$ atteintes aux basses températures sont dûes à une dynamique particulière telle que l'effet quantique ou bien tout simplement à la forme de $f(E)$ [Bar,1992]. Dans ce but, nous allons étudier dans cette section le rôle de la forme de la distribution de barrières d'énergie $f(E)$ sur la relaxation.

1.4.1 - Divergence de $f(E)$

A partir de l'expression (4), on voit que la fonction $f(E)$ influence d'une manière importante la forme de $S(H,T)$. Si l'on attribue à $f(E)$ une distribution *effective* de barrières d'énergie, *par exemple* en $1/E$, qui diverge aux faibles énergies, la relaxation sera donné par :

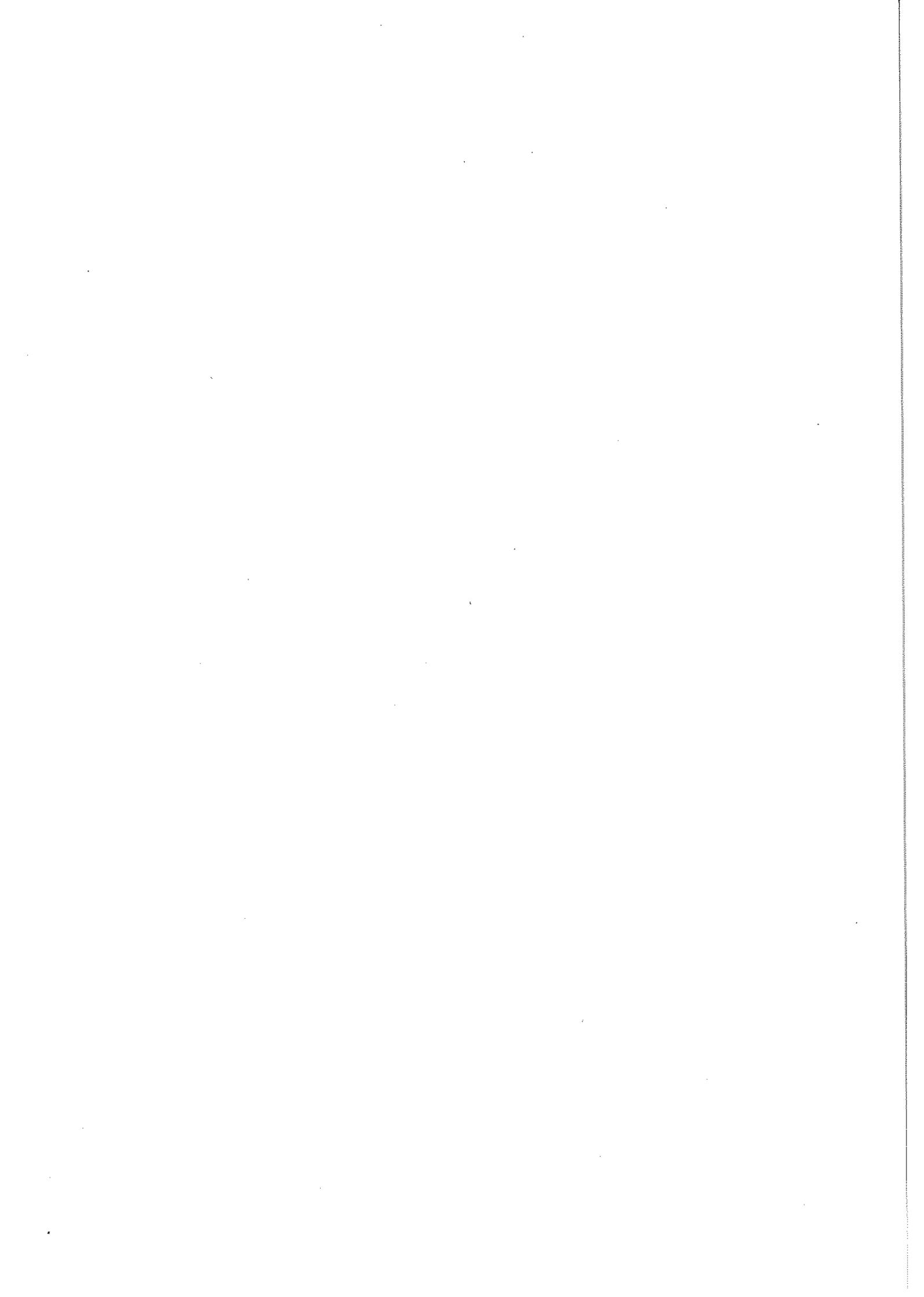
$$S \propto k_B T f(E_c = k_B T \ln(t/\tau_0)) = k_B T / E_c = \text{cste} \quad (11)$$

Ainsi, on constate que la limite $T \rightarrow 0$ donne pour $S(H,T)$ une valeur constante différente de zéro. Il est intéressant de signaler que ce comportement peut avoir été à plusieurs reprise confondu dans la littérature spécialisée avec la manifestation d'effets quantiques.

Nous pouvons penser qu'une distribution comme celle-ci n'a pas de sens physique. En réalité, il est possible de trouver des distributions "divergentes", comme par exemple, pour un système de petites particules où il existe des impuretés magnétiques. Dans ce cas, les impuretés peuvent avoir des températures de blocage très basses et finalement $f(E)$ prend une "forme divergente" avec une valeur de coupure minimum ou une fonction bimodale. La procédure expérimentale qui nous permettra de vérifier si la divergence sur $f(E)$ existe vraiment ou non, est la mesure de la susceptibilité alternative χ_{AC} aux basses températures. Si la divergence correspond à l'existence de petites particules, ces dernières doivent être superparamagnétiques et on doit observer la loi de Curie pour la partie réelle de la susceptibilité et une valeur nulle pour la partie imaginaire.

Il est rapporté dans la littérature un exemple intéressant d'une fonction $f(E)$ "divergente" ou bimodal. L.Weil [Wei,1954] a déterminé par granulométrie une "divergence" de la fonction de distribution de volume $\rho(V)$ pour des petites particules de Nickel, à partir des mesures de l'aimantation rémanente. Dans ce cas, on peut bien avoir une dynamique qui n'est pas dominée par l'activation thermique mais aussi une fraction de particules superparamagnétique ou encore comme nous discuterons au chapitre suivant, une distribution de champ de retournement qui s'ajoute à celle de la taille de particules.

La distribution de barrières d'énergie effective $f(E)$ peut aussi être modifiée par l'influence des interactions (dipolaire, échange ...) entre des particules ou entités dont l'aimantation se retourne. Un auto-échauffement de l'échantillon pendant la relaxation; peut aussi provoquer des avalanches dans le retournement de l'aimantation [Fer,1994]. Ces effets sont étudiés au sein de notre équipe et ceci en relation avec la réelle possibilité d'une auto-organisation des systèmes magnétiques ("self organized criticality"). Dans ce cas, $f(E)$ prend la forme suivante : $f(E) \propto (1/E)^a$, avec a proche de 1 [Bak,1990, Fer,1994b et Geo,1991].



Chapitre 2

Effet de l'orientation des particules par rapport au champ magnétique appliqué - Distribution de champ de retournement $v(H_0)$

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que la fonction de distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ joue un rôle très important sur la forme de la viscosité (ou traînage) magnétique $S(H,T)$. Ainsi, nous avons signalé que pour un système composé de petites particules, la fonction $f(E,H)$ peut être facilement obtenue à partir des expressions de la fonction de distribution de volume $\rho(V)$ et de la barrière d'énergie $E = K_a V(1 - H/H_0)^\alpha$, où α est proche à 2 (voir l'annexe 1). Nous allons démontrer que des propriétés très intéressantes surgiront avec la prise en compte de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$.

Dans ce chapitre nous modéliserons l'effet de l'orientation des particules en ajoutant à la fonction de distribution de volume $\rho(V)$ une distribution de champ de retournement $v(H_0)$. Nous constaterons que l'effet de cette considération sera de modifier fortement le comportement de $S(H,T)$ aux basses températures. Cette modification pourra être *représentée* simplement par l'existence d'une distribution effective de barrières d'énergie, ayant la forme d'une fonction puissance de type $f(E) \propto E^{-a}$, avec $a > 0$. Compte tenu de ce qui a été dit au chapitre précédent sur des distributions en fonction puissances, ce résultat se révélera d'une grande importance lors de la mise en évidence d'une dynamique dominée par des effets quantiques. Le modèle précédant qui néglige la distribution $v(H_0)$ (chapitre 1) restera, en première approximation, valable seulement à haute température. En fait, la mise en évidence de l'effet de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ sur la relaxation $S(H,T)$ aux basses températures prendra une grande importance lors de l'étude d'une possible relaxation dominée par l'effet tunnel quantique.

2.1 - Influence de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ sur la barrière d'énergie E

Afin de *modéliser* la prise en compte des distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$ sur la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$, et par conséquent sur la viscosité magnétique $S(H,T)$, nous ferons les considérations suivantes : i) les particules n'interagissent pas, ii) le champ de

retournement H_0 et le volume V sont des variables indépendantes. Le champ de retournement H_0 n'est autre que de l'angle entre le champ appliqué et la direction de facile aimantation, $H_0 = H_0(\theta)$. Lors de la discussion des résultats expérimentaux pour le cas de petites particules de ferrite de Baryum, nous reviendrons sur l'applicabilité de ces deux considérations.

Pour avoir une idée préliminaire de l'influence de la distribution $v(H_0)$ sur $f(E, H)$ et $S(H, T)$, regardons tout d'abord les cas les plus simples :

- i) les particules ont le même diamètre et sont orientées avec leur direction de facile aimantation parallèle au champ magnétique appliqué. Dans ce cas, la barrière d'énergie a une seule valeur et est donnée par l'expression suivante : $E = K_a V (1 - H/H_0)^2$. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 1, l'aimantation d'un tel système idéal relaxera comme $M(t)/M_S = 2e^{-t/\tau} - 1$, où τ est donné par la loi d'Arrhenius.
- ii) maintenant, imaginons que ces particules (identiques) sont orientées au hasard. La barrière d'énergie sera distribuée à cause de H_0 et non pas de V , et la forme de la relaxation de l'aimantation ne peut plus être exponentielle.
- iii) le cas plus courant correspond à celui où il existe les deux distributions : de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$. Pour le cas des particules orientées, la distribution $v(H_0)$ est étroite alors que pour des particules non orientées, $v(H_0)$ sera large.

Il est très intéressant de remarquer que pour une assemblée de particules orientées au hasard, avec une distribution de taille $\rho(V)$, comme les variables V et H_0 sont indépendantes, pour un volume V donné il existe la même distribution $v(H_0)$.

2.2 - Distribution de champ de retournement $v(H_0)$

Comme dans les références [Cha,1988 et Bar,1993c], nous avons également choisi pour la distribution $v(H_0)$ une distribution Lorentzienne. En effet, comme nous le verrons par la suite, c'est plutôt l'existence d'une distribution sur H_0 et non sa forme qui a le plus d'importance sur le comportement général de la viscosité magnétique $S(H, T)$.

Pour bien comprendre l'origine de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$, commençons par imaginer un cycle d'hystérésis mesuré à basse température sur une *seule* particule. Ce cycle résultant est bien semblable à celui montré sur la figure 1 (la mesure d'aimantation a été faite sur une seule particule à très basse température (200mK) par W. Wernsdorfer au CRTBT [Wer,1994]). Ajoutons à cette

particule une deuxième avec un champ de retournement H_0 différent du premier. Le cycle d'hystérésis correspondant est alors constitué de deux cycles superposés. En augmentant le nombre de particules, et en négligeant leurs interactions dipolaire, le cycle final sera la superposition des cycles pour des particules individuelles. On peut alors, définir le champ de retournement moyen comme la moyenne des H_0 pondérée par la proportion de particules qui ont une valeur de H_0 , c'est-à-dire, $H_{0m} = (\sum H_0 v(H_0)) / N$, où N est le nombre de particules. En fait, ce champ de retournement moyen est le champ coercitif pour la limite des basses températures.

La fonction de distribution de champ de retournement $v(H_0)$ a pour origine l'orientation des particules par rapport au champ magnétique appliqué. D'après la dérivée $(\partial M / \partial H)_{T \rightarrow 0}$, nous pouvons obtenir une valeur proche à la largeur Δ de la distribution $v(H_0)$. Comme nous le verrons plus tard, pour des particules non orientées de ferrite de Baryum nous trouvons Δ beaucoup plus grand que celui obtenu pour ces mêmes particules orientées. Ainsi, nous pouvons conclure que la distribution du coefficient de champ de désaimantation N dûe à une possible distribution du rapport diamètre-épaisseur, donne pour des particules orientées une contribution négligeable au champ de retournement ($H_0 = 2K_a / M_S - NM_S$). Cette hypothèse est encore renforcée par le fait que le terme magnétocristallin ($2K_a / M_S$) est beaucoup plus grand que le terme démagnétisant (NM_S).

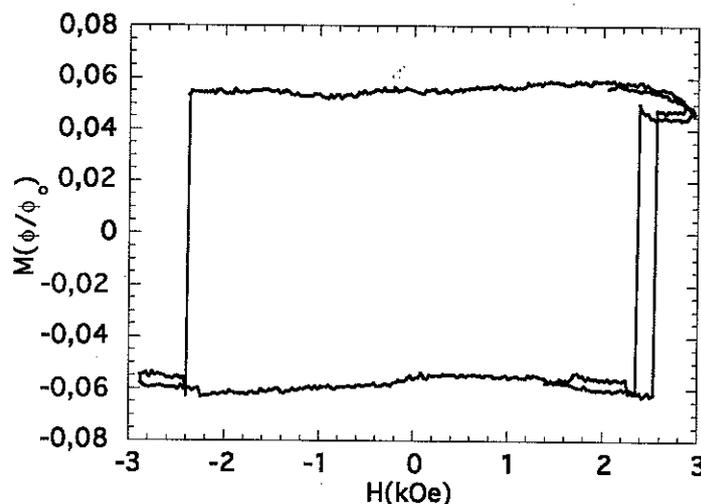


Figure 1 - Cycle d'hystérésis mesuré à 200 mK sur une seule particule de ferrite de Baryum pour un diamètre compris entre 140 et 600 Å [Wer, 1994]. ϕ est le flux mesuré et ϕ_0 un quantum de flux.

2.3 - Distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ avec $\rho(V)$ et $v(H_0)$

Comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent, la connaissance de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$, nous permet aisément de calculer la viscosité magnétique $S(H,T)$ par l'expression suivante : $S(H,T) = k_B T f(E_C)$, où $f(E_C)$ correspond à la valeur de $f(E,H)$ pour la fenêtre d'observation $E_C(t,T)$ ($=k_B T \ln(t/\tau_0)$).

Dans le but de trouver la fonction de distribution effective des barrières d'énergie $f(E,H)$, considérons tout d'abord, la fonction $f(E,H)$ déjà obtenue avec seulement la distribution de volume $\rho(V)$, à savoir : $f(E,H) = \rho(V)/K_a(1-H/H_0)^\alpha$ (voir équation (8) du chapitre 1). En supposant que le champ de retournement H_0 peut aussi suivre une loi de distribution, on pondère simplement cette dernière expression de $f(E,H)$ par la distribution de champ de retournement $v(H_0)$. Etant donné que l'aimantation des particules qui ont un champ de retournement H_0 inférieur au champ magnétique appliqué H , se retournera immédiatement (voir la figure ci-dessous), on ne doit prendre en compte, dans l'intégration, que les particules dont H_0 est supérieur au champ appliqué H . Finalement, on trouve pour $f(E,H)$ la forme suivante :

$$f(E,H) = \int_H^\infty \frac{\rho(V)v(H_0)}{K_a(1-H/H_0)^\alpha} dH_0 \quad (1)$$

Pour des champs H_0 au-dessus de H , les particules ont des temps de relaxation τ croissants qui varient entre des temps très court (de l'ordre de τ_0) jusqu'à des temps très long par rapport à la durée de la mesure. Nous mesurons alors la relaxation de celles qui ont un H_0 dans la fenêtre d'observation, schématisée sur la figure par la ligne épaisse, et sa position est donnée par $H_{0,obs} = H / \left[1 - (E_C(t,T)/K_a V)^{1/\alpha} \right] = H / \left[1 - (k_B T \ln(t/\tau_0)/K_a V)^{1/\alpha} \right]$

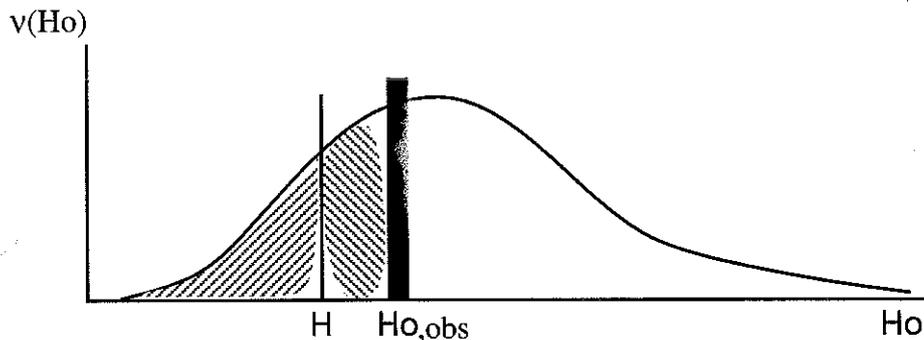


Figure 2 - Schéma de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$.

On obtient finalement $f(E,H)$ après le changement de variable $H_0 \rightarrow H_0(E,V)$, c'est-à-dire $H_0 = H / \left(1 - (E/K_a V)^{1/\alpha}\right)$ et l'expression (1) devient égale à,

$$f(E,H) = H(E)^{1/\alpha-1} \int_{V_a}^{\infty} \frac{\rho(V)v(H,E/V)}{\alpha(K_a V)^{1/\alpha} \left(1 - (E/K_a V)^{1/\alpha}\right)^2} dV \quad (2)$$

et V_a est donné par $V_a = k_B T \ln(t/\tau_0) / K_a$. Pour $E \rightarrow K_a V$, l'intégrand ne diverge pas car $H_0 \rightarrow \infty$ et la fonction $v(H_0) \rightarrow 0$. En posant $x = (K_a V)^{1/\alpha}$ (avec bien sûr $x_c = (k_B T \ln(t/\tau_0))^{1/\alpha}$), on trouve pour $f(E,H)$ l'expression équivalente,

$$f(E,H) \propto H(E)^{1/\alpha-1} \int_{x_c}^{\infty} \frac{\rho(V(x))v(H_0(x))x^{1/\alpha}}{(x - \sqrt{E})^2} dx \quad (3)$$

Nous montrons le profil de la fonction $f(E,H)$ donnée par l'expression (2) sur les trois figures 3a, b, c, d et e qui suivent. On signalera les points suivants :

- i) Sur la figure 3a, on constate que plus fort est le champ, plus le maximum de $f(E,H)$ se déplace vers les basses énergies (températures). On pouvait s'attendre à ce résultat car l'énergie Zeeman ajoutée diminue l'énergie de barrière E et, par conséquent, déplace $f(E,H)$. La viscosité magnétique $S(H,T)$ doit suivre le même comportement puisque $S(H,T) \propto k_B T f(E_c, H)$.
- ii) Sur la figure 3b, on présente un détail de la figure précédente pour des valeurs faibles d'énergie et de champ appliqué. On voit nettement l'effet de la distribution $v(H_0)$. La remontée aux faibles énergies est aussi observée sur la figure 3c où $f(E,H)$ est tracée pour un champ fixe. On retrouve l'allure de la fonction $\rho(V)$ (fonction log-normale) aux grandes énergies (températures élevées) et la divergence aux faibles énergies (basses températures) qui est due à l'existence de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$.

Pour comprendre le comportement de la distribution effective $f(E,H)$ aux faibles énergies (basses températures), nous nous servons du fait que l'expression de la distribution $f(E,H)$ a déjà un comportement semblable, avant d'être pondérée par $v(H_0)$. Nous rappelons que si H_0 a une seule valeur, $f(E,H)$ est donnée par $f(E,H) = \rho(V) / K_a (1 - H/H_0)^\alpha$. La fenêtre d'observation $H_{0,obs}$ sur $v(H_0)$, montrée par la ligne épaisse sur la figure 2, va vers le champ appliqué H . Cela veut dire qu'à très basse température, pour retourner l'aimantation d'une particule, il faut appliquer un champ H

égal à son champ de retournement H_0 , car dans ce cas il n'y pas d'activation thermique. Autrement dit, en faisant $H \rightarrow H_0$, $f(E,H)$ diverge.

Pour le régime haute température, la fenêtre d'observation $H_{0,obs}$ est au dessus du champ appliqué H (ou sa position est plus éloigné de H , voir figure 2). Pour retourner l'aimantation d'une particule on place $H_{0,obs}$ sur son champ de retournement H_0 . En raison de l'activation thermique cela est réalisé en appliquant un champ H plus petit que le champ de retournement H_0 de la particule. Dans ce cas le rapport H/H_0 a une valeur petite, et une variation sur H_0 n'a pas un rôle très important sur ce H/H_0 . Cela est également valable pour $f(E,H)$. Alors, nous concluons que l'influence de la distribution $v(H_0)$ sur $f(E,H)$, à haute température, devient négligeable.

Sur la figure 3c, nous avons utilisé une fonction log-normale pour la distribution $\rho(V)$. Nous signalons que quelque soit la forme de la distribution de volume $\rho(V)$, nous la retrouvons sur $f(E,H)$ pour les hautes énergies, avec une divergence pour les faibles énergies, détaillée sur la figure 3d. L'origine de la divergence sera discutée plus en détail par la suite dans la section 2.6.

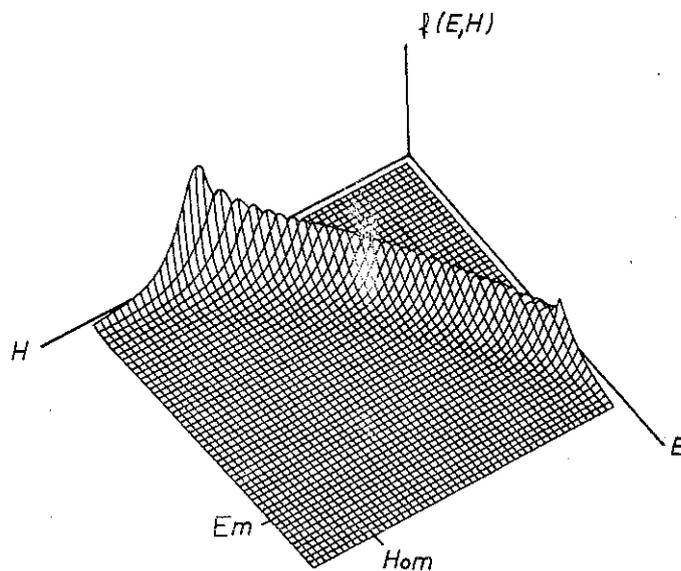


Figure 3a - $f(E,H)$ pour $\rho(V)$ log-normal avec un écart type $\sigma=0,1$; $v(H_0)$ avec une largeur $\Delta=0,1 H_{0m}$ et $\alpha=2$.

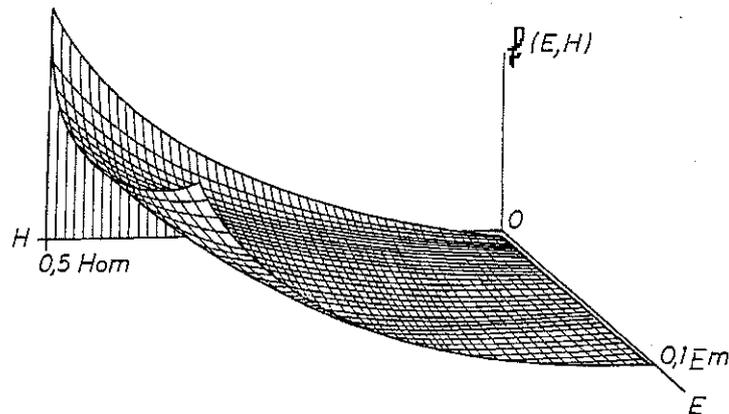


Figure 3b - Détail de la figure 3a pour E et H faibles.

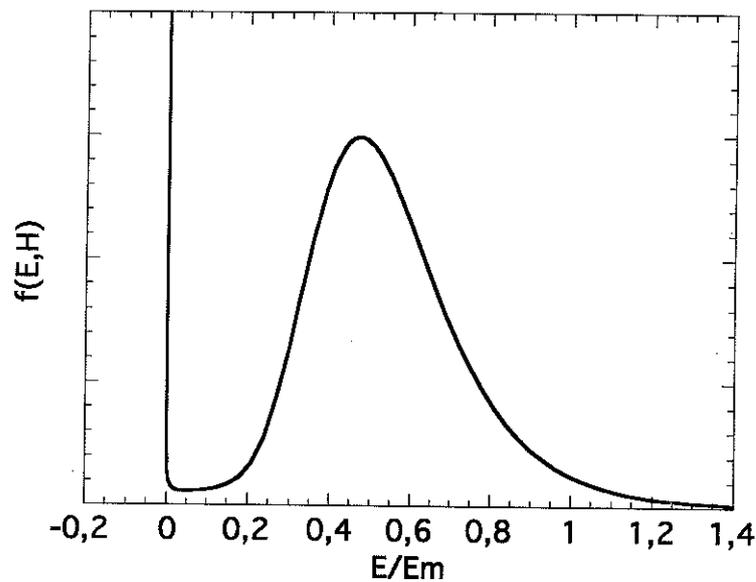


Figure 3c - Détail des figures 3a et 3b, c'est-à-dire, $f(E, H)$ en fonction de E pour H égal à 1000 Oe ($0,28 H_{0m}$) et avec $\sigma=0,1$; $\Delta=360 \text{ Oe}$ ($0,1 H_{0m}$) et $\alpha=2$.

iii) Sur la figure 3e, on trace $f(E, H)$ en fonction de Δ (la largeur de $\nu(H_0)$) pour une valeur E d'énergie très faible (à très basse température) et pour un champ H fixe. Pour cette limite de E , la valeur de la distribution $f(E, H)$ représente la partie divergente. Notons que dans l'insert la divergence sur $f(E, H)$ disparaît lorsque $\Delta \rightarrow 0$. Cette limite correspond à un système composé de particules parfaitement orientées. Dans le cas opposé, de grandes valeurs de Δ impliquent que $f(E, H)$ tende vers une valeur constante. Nous pouvons conclure qu'en s'écartant d'une configuration de particules parfaitement orientées vers une configuration avec des particules uniformément désordonnées, la divergence de $f(E, H)$ apparaît, augmente puis se stabilise.

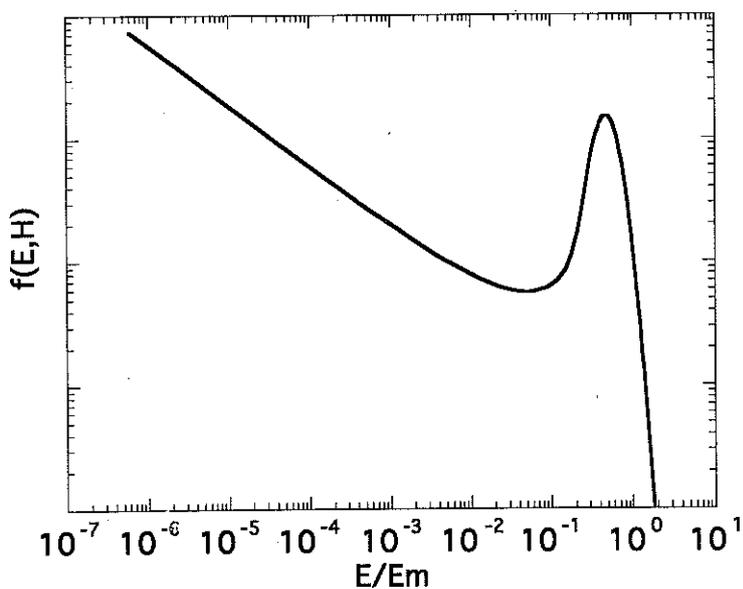


Figure 3d - Détail de la divergence montrée sur la figure 3c, en échelle logarithmique.

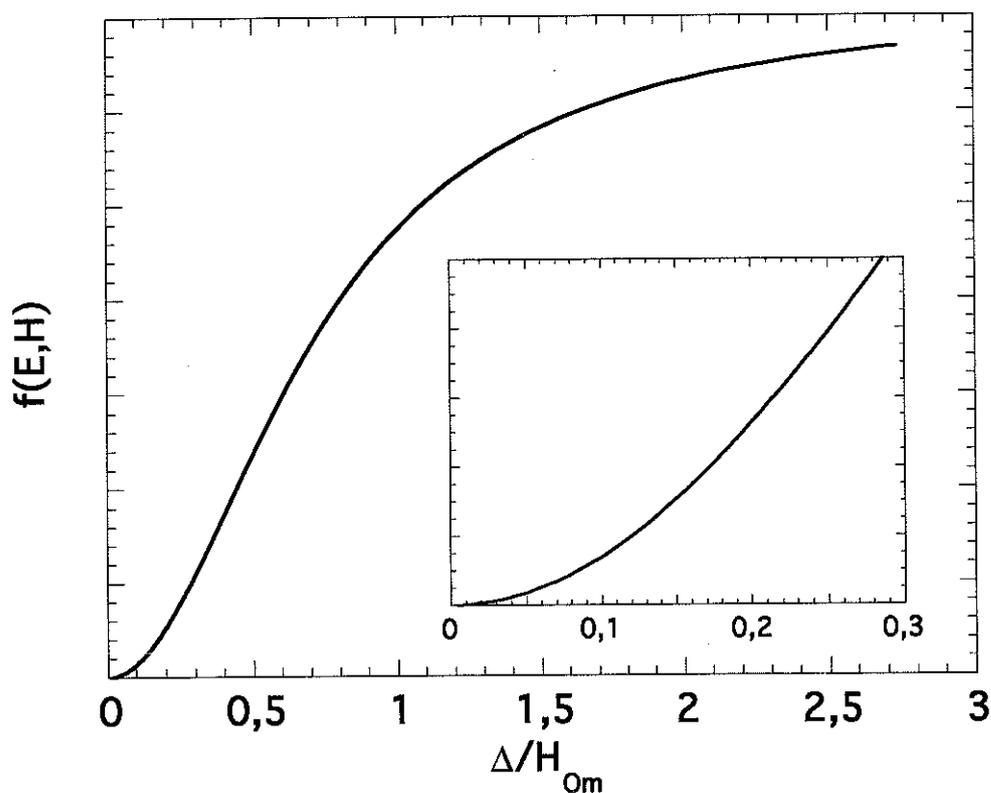


Figure 3e - $f(E,H)$ en fonction de Δ (largeur de $v(H_0)$) pour $E/E_m=0,001$, $\sigma=0,1$, $H=1000$ Oe ($0,28 H_{0m}$) (voir figure 3c) et $\alpha=2$.

Dans le but d'obtenir une forme plus simple pour l'expression de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ pour la limite des très basses

températures, on applique sur l'expression 2 les conditions suivantes : i) $E \rightarrow 0$ ou $E \ll K_a V$, ii) la fenêtre d'observation sur la distribution $v(H_0)$ tend vers le champ appliqué ($H_{0,obs} \rightarrow H$) et $v(H_0) \rightarrow v(H)$. En faisant cela, $f(E,H)$ devient égale à,

$$f(E,H) = E^{1/\alpha-1} H v(H) \int_{V_c}^{\infty} \frac{\rho(V)}{\alpha (K_a V)^{1/\alpha}} dV . \quad (4)$$

Dans cette expression, l'intégrale ne dépend pas du champ appliqué. Nous remarquons aussi que la partie divergente, qui correspond à l'influence de $v(H_0)$, ne dépend pas du champ. Par contre, comme on l'a discuté en (i) pour le cas des petites particules, l'application d'un champ magnétique fait déplacer $f(E,H)$ vers les petites énergies, et ceci correspond à une contribution de la distribution de volume $\rho(V)$ sur $f(E,H)$.

Il est très important de remarquer que *la puissance de la divergence de $f(E,H) \propto (E)^{1/\alpha-1}$ n'est due qu'à la puissance α de l'expression de la barrière d'énergie E ($E=K_a V(1-H/H_0)^\alpha$).* Pour des petites particules, cette puissance α peut prendre des valeurs entre 1 et 2 [Vic,1989], selon la forme exacte de la barrière d'une particule et de la distribution de leurs axes. Ainsi, dans le cas de particules non orientées et avec $\alpha > 1$, $f(E,H)$ diverge.

Dans le cas général, si $f(E,H)$ diverge, il peut être très difficile de savoir si la divergence est due à une distribution de champ de retournement H_0 , ou bien à une dynamique intrinsèque du système, telle que la dynamique quantique. Nous en concluons que, pour ne pas avoir l'effet de $v(H_0)$ sur la relaxation, nous devons travailler avec des petites particules orientées (voir chapitre).

2.4 - Viscosité magnétique $S(H,T)$ avec les distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$

Comme nous l'avons montré au chapitre 2, nous pouvons calculer la viscosité magnétique $S(H,T)$ en prenant simplement l'expression suivante : $S(H,T) \propto k_B T \cdot f(E_c(t,T),H)$. Il faut seulement calculer alors, la distribution $f(E,H)$ en tenant compte des distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$; comme celle montrée sur la figure 3c. En faisant varier l'énergie (champ) sur $f(E,H)$, nous calculons la dépendance en température (en champ) de la viscosité magnétique $S(H,T)$.

La forme générale de $S(H,T)$ en considérant la distribution effective des barrières d'énergie $f(E,H)$, et ceci avec les distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$, est donnée par,

$$S(H,T) = (k_B T)^{1/\alpha} (\ln(t/\tau_0))^{1/\alpha-1} H \int_{v_c}^{\infty} \frac{\rho(V) v(H_0(H, E_c(T,t), V))}{\alpha (K_a V)^{1/\alpha} \left(1 - (E_c(T,t)/K_a V)^{1/\alpha}\right)^2} dV \quad (5)$$

avec $E_c(t,T) = k_B T \ln(t/\tau_0)$.

Pour les basses températures, on fait $H \rightarrow H_0$ dans 5, ce qui permet de retourner à l'expression de $f(E,H)$ obtenue pour les basses températures (voir l'expression 4) et la viscosité magnétique $S(H,T)$ devient,

$$S(H,T) = (k_B T)^{1/\alpha} (\ln(t/\tau_0))^{1/\alpha-1} H v(H) \int_{v_c}^{\infty} \frac{\rho(V)}{\alpha (K_a V)^{1/\alpha}} dV \quad (6)$$

A titre d'exemple, on présente sur les figures 4a et 4b, une courbe de $S(H,T)$ en fonction de la température. On remarque que sa forme est dominée surtout par celle de $f(E,H)$ et qu'aux basses températures (détaillé sur la figure 4b), $S(H,T)$ varie en $(T)^{1/\alpha}$ (ou $(T)^{1/2}$ pour $\alpha=2$). Ce comportement en $(T)^{1/\alpha}$ est très important lorsqu'on étudie la dynamique de $S(H,T)$ aux basses températures. Nous savons que pour un processus dominé par l'activation thermique, la limite $T \rightarrow 0$ donne une relaxation nulle, et cela se retrouve dans ce modèle.

Dans le cadre d'une étude expérimentale, la limite inférieure en température du système de mesure n'est parfois pas très basse, disons 1,5 K, et avec un comportement en $(T)^{1/\alpha}$, manifestement l'extrapolation de $S(H,T)$ pour une température égale à zéro peut être différente de zéro. Pour expliciter cette remarque, nous pouvons imaginer que cette extrapolation (voir figure 4b) depuis les hautes températures donne aisément pour $S(H,T)$ une valeur différente de zéro. Cette observation a été rapporté pour la première fois par S.B. Oseroff pour des particules des $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ déposées sur des rubans [Ose,1985 et Tob,1988], où la relaxation suit une loi en $(T)^{1/2}$. Cette remarque devient très importante au moment de la mise en évidence d'une dynamique dominée par des effets quantiques, où effectivement, le système peut relaxer jusqu'à la limite $T \rightarrow 0$.

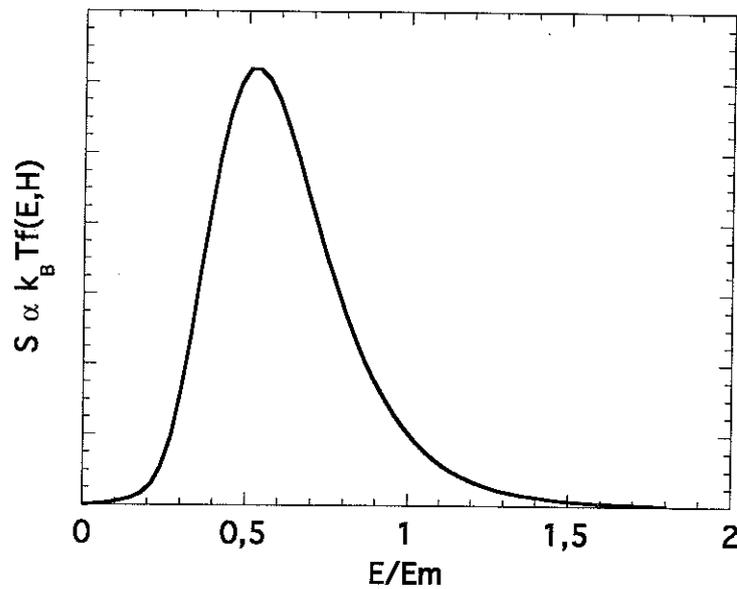


Figure 4a - La relaxation $S \propto T f(E,H)$ pour H égal à 1000 Oe ($0,28 H_{0m}$). $f(E,H)$ a été montrée sur la figure 3c.

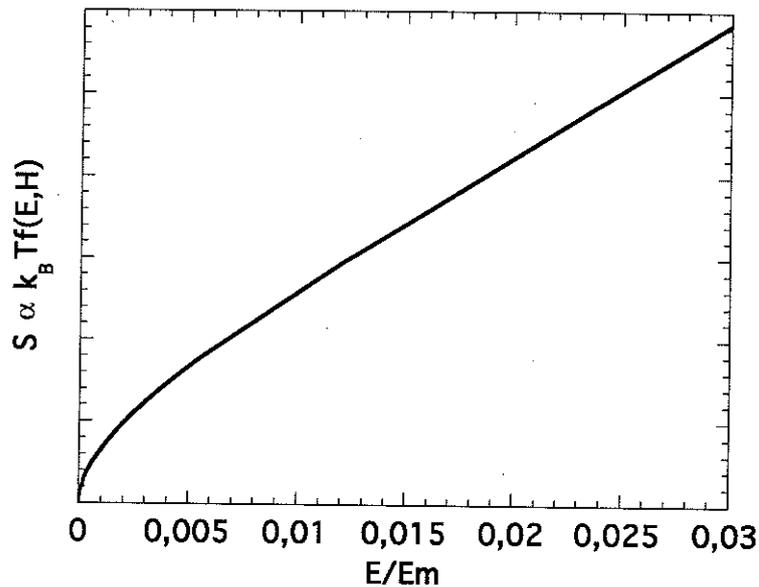


Figure 4b - Détail de la figure 4a pour basses températures.

Dans le but d'étudier le comportement de la viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction du champ magnétique appliqué, on présente sur la figure 5 des courbes de $S(H,T)$ en fonction du champ appliqué pour plusieurs températures. Pour cela, nous avons utilisé l'expression générale (5). Deux remarques sont à faire à la vue de cette figure :

i) tout d'abord, nous observons que les courbes se déplacent vers les champs faibles à cause de l'énergie d'activation thermique. Dans l'autre limite, vers les basses températures, la forme de $S(H,T)$ se confond avec celle de $v(H_0)$ où la seule façon de

retourner l'aimantation des particules est d'appliquer un champ magnétique égal à son champ de retournement H_0 .

ii) les valeurs correspondantes au maximum de $S(H,T)$ augmente au fur et à mesure que la température augmente. Cela équivaut à mesurer $S(H,T)$ sur la valeur maximale de la distribution effective de barrières $f(E,H)$. Autrement dit, on mesure pendant la relaxation toujours les mêmes particules. Ce comportement sera discuté par la suite dans la section 2.6.

Pour mettre en évidence l'effet de la largeur Δ de la distribution $v(H_0)$ sur la dépendance en champ de $S(H,T)$, nous présentons sur la figure 6, deux courbes de $S(H,T)$ calculées à partir de l'expression (4), pour différentes valeurs de Δ à basse température (1K). Cela équivaut à calculer $S(H,T)$ pour deux assemblées de particules, l'une étant plus orientées que l'autre. Ce résultat confirme ce qui était attendu avec l'équation (5), où $S(H,T)$ est directement lié à $v(H_0)$ aux basses températures.

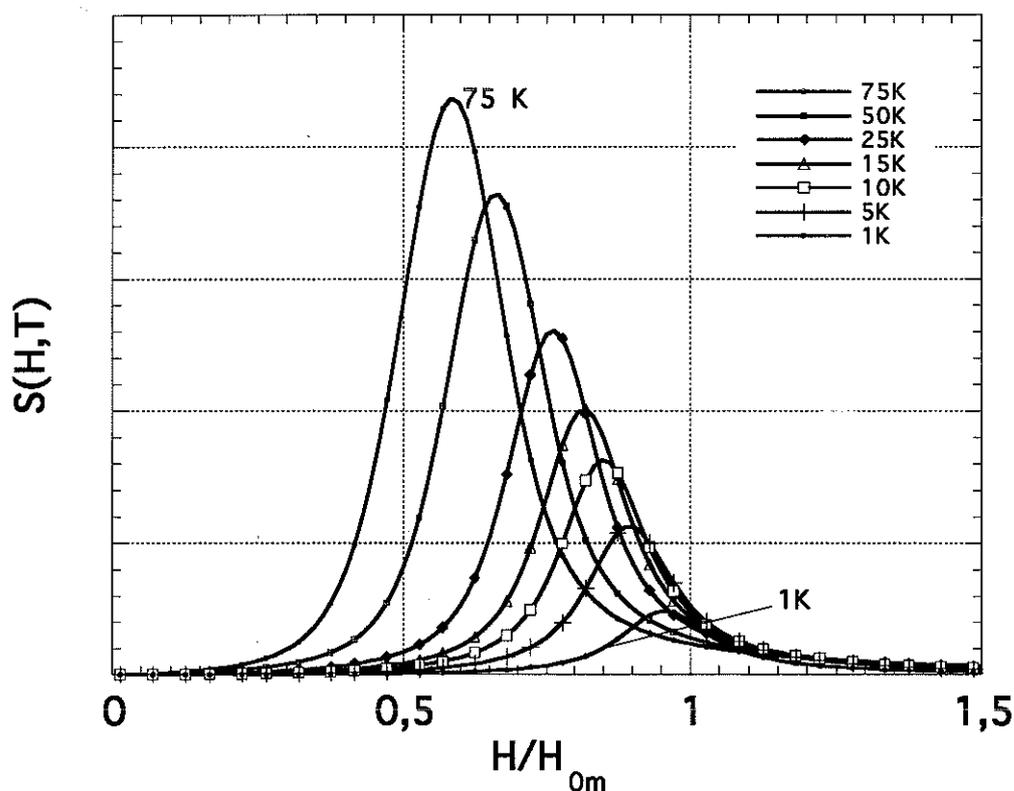


Figure 5 - $S(H,T)$ en fonction du champ pour différentes températures ($\sigma=0,1$ et $\Delta=0,1 H_{0m}$) et pour $\alpha=2$.

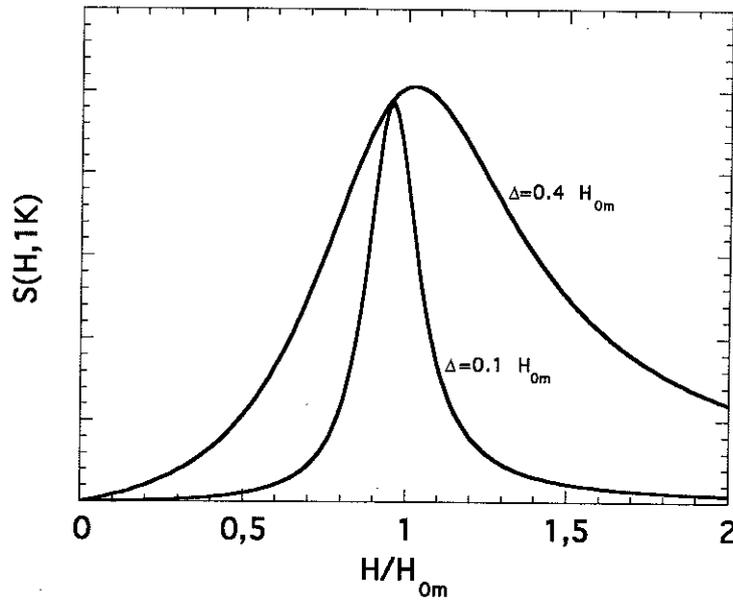


Figure 6 - $S(H, T)$ en fonction du champ pour $T = 1K$ et pour deux valeurs de Δ (largeur de $v(H_0)$).

2.5 - Dépendance en température du champ coercitif $H_C(T)$

Nous pouvons calculer la dépendance en température du champ coercitif $H_C(T)$ à partir de l'expression générale de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E, H)$ (voir l'expression 4). Pour cela, nous nous servons de l'équation 9 (chapitre 1), à savoir, $M(t, T)/M_s = 1 - 2 \int_0^{E_c(t, T)} f(E, H) dE$. Pour le champ coercitif, l'aimantation est nulle et nous avons alors la condition : $\int_0^{E_c(t, T)} f(E, H_c) dE = 1/2$. La fenêtre d'observation $E_c(t, T)$ sépare également l'intégration de $f(E, H)$ en deux parties ($E_c(t, T)$ est donné par $E_c(t, T) = k_B T \ln(t/\tau_0)$). Cette fenêtre est placée sur les particules qui ont une énergie correspondante à $K_a V' (1 - H_c/H_{0m})^\alpha$, où K_a est la constante d'anisotropie, V' est un volume plus petit que le volume le plus probable, H_{0m} est le champ de retournement moyen et H_c est le champ coercitif. Remarquons qu'en raison de la divergence de $f(E, H)$, le volume V' correspondant à l'énergie qui divise $f(E, H)$ en deux parties identiques, est plus petit que le volume le plus probable V_m .

En faisant $E_c(t, T) = k_B T \ln(t/\tau_0) = K_a V' (1 - H_c/H_{0m})^\alpha$, et en explicitant H_c on trouve,

$$H_c(T) = H_{0m} (1 - BT^{1/\alpha}) \quad (7)$$

avec $B = (k_B T \ln(t/\tau_0) / K_a V')^{1/\alpha}$.

Cette expression est un très bon accord avec l'expérience. Le fait que V' est plus petit que le volume le plus probable V_m est vérifié expérimentalement et signifie qu'en traçant l'aimantation en fonction de $k_B T \ln(t/\tau_0)$, l'aimantation s'annule pour une température *plus petite* que celle qui correspond au maximum de $f(E,H)$.

2.6 - Dépendance en température du maximum de la viscosité magnétique $S_{Max}(H,T)$ obtenue à partir des courbes de $S(H,T)$ en fonction du champ magnétique appliqué.

Jusqu'à présent, nous avons toujours mis en évidence l'importance que prend la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ sur le comportement de la viscosité magnétique $S(H,T)$, principalement pour les mesures aux basses températures. *Cependant, si nous plaçons la fenêtre d'observation sur une même valeur d'énergie dans la distribution $f(E,H)$ pour toutes les mesures de relaxation, les valeurs de $S(H,T)$ mesurées ne seront plus influencées par la forme de $f(E,H)$.* En réalité, cela n'est pas valable aux basses températures car la partie divergente est toujours présente. La procédure expérimentale qui nous permet de réaliser cette hypothèse est, tout d'abord, de mesurer la viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction du champ pour plusieurs températures. On prend ensuite leurs valeurs maximales et on les trace en fonction de la température. En faisant cela, *nous mesurons toujours la relaxation des particules qui sont sur le maximum de $f(E,H)$.* Comme la bosse à haute énergie (température) correspond à la contribution de la distribution de volume $\rho(V)$, la procédure décrite mesure alors les particules qui ont leurs volumes égaux au volume le plus probable V_m . Cela est facilement réalisé à la vue des figures 3a et 3c. Comme la fenêtre d'observation est placée sur le volume le plus probable, nous avons alors : $E_c(t,T) = k_B T \ln(t/\tau_0) = K_a V_m (1 - H_{mes}/H_{om})^\alpha$. Cette fois-ci, le champ H est simplement un champ de mesure H_{mes} qui donne la valeur maximale de $S_{Max}(H,T)$.

Nous sommes intéressé principalement au comportement de la viscosité magnétique aux basses températures, en vue de mettre en évidence une dynamique dominée par des effets quantiques. Nous avons développé une expression pour $S_{Max}(H,T)$ pour les basses températures (voir l'expression 6), à savoir $S_{Max}(H,T) \propto T^{1/\alpha} H v(H)$. En explicitant le champ de mesure dans l'expression du paragraphe précédent et en l'appliquant dans l'expression ci-dessus, nous trouvons,

$$S_{Max}(H,T) \propto (T^{1/\alpha} - BT^{2/\alpha}) . \quad (8)$$

avec $B = (k_B T \ln(t/\tau_0) / K_a V_m)^{1/\alpha}$.

Ce résultat est vraiment en bon accord avec les mesures correspondantes, aussi bien pour sa forme que pour la valeur de α , comme nous verrons par la suite à section 4.4. Bien que les mesures de relaxation sont très longue, cette procédure nous assure une mesure la véritable de la dynamique en température sans avoir l'influence de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$. Nous rappelons qu'un seul point de la courbe de $S_{Max}(H,T)$ en fonction de la température représente une dizaine de mesures de relaxation.

2.7 - Loi d'échelle de l'aimantation

Nous retrouvons une loi d'échelle pour l'aimantation où l'on prend en compte le temps t , la température T et le champ H (voir l'annexe 2),

$$M(t, T, H) = M_S - (M_S - M_{eq}) \int_0^{Ec} f(E, H) dE \quad (9)$$

avec $f(E,H)$ donnée par l'équation (2).

Nous pouvons obtenir une forme simple pour la loi d'échelle en prenant l'expression (4) aux basses températures, à savoir,

$$M(t, T, H) = M_S - (M_S - M_{eq}) (k_B T \ln(t / \tau_0))^{1/\alpha} H v(H) \int_0^{V_c} \frac{\rho(V)}{\sqrt{K_a V}} dV . \quad (10)$$

Nous pouvons obtenir le temps τ_M que met le système pour relaxer entre l'aimantation à saturation M_S et un certain niveau d'aimantation M . Pour des raisons de simplicité, nous allons obtenir τ_M pour des basses températures, mais la procédure qui sera utilisé est générale. Cette relaxation correspond à une variation d'aimantation donnée par l'expression (10), en faisant $\Delta M = -(M - M_S) / (M_S - M_{eq})$ on trouve $\Delta M = H v(H) (k_B T \ln(\tau_M / \tau_0))^{1/\alpha} I$ (I correspond à l'intégration en volume) et en explicitant τ_M nous trouvons,

$$\tau_M = \tau_0 \exp \frac{(\Delta M / H v(H) I)^\alpha}{k_B T} . \quad (11)$$

Nous pouvons vérifier si la relaxation suit une telle expression en considérant une température effective T^* à la place de T . Tout d'abord, considérons la distribution $v(H_0)$ comme étant uniforme. A partir du tracé de $\log \tau$ en fonction de $1/H^\alpha$

(α en générale est égal à 2), on obtient la dérivée suivante $d(\log\tau)/d(1/T^*)$, qui est égale à l'inverse d'une température effective ($1/T^*$). A haute température, cette température effective T^* est égal à la température T mesuré par le thermomètre. En général, une déviation par rapport à cette égalité ($T^*=T$) aux basses températures est attribuée à une relaxation de l'aimantation par l'effet tunnel. Cependant, si nous prenons en compte la vrai forme de la distribution $v(H_0)$, T^* est égal à $T/(Iv(H))^\alpha$, et l'observation d'une déviation par rapport à l'égalité ($T^*=T$) peut n'être qu'un effet de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$.

2.8 - Divergence de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ aux basses températures

Dans le modèle développé dans ce chapitre, nous avons vu que la fonction de distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ prend une forme divergente aux basses énergies (basses températures), et ceci est directement lié à l'existence de la fonction de distribution de champ de retournement $v(H_0)$. La fonction $f(E,H)$ mentionnée a la forme suivante : $f(E,H) \propto E^{1/\alpha-1}$ pour α plus grand que 1.

Lorsqu'à une température T on applique un champ magnétique H à un système composé de petites particules, l'aimantation des particules dont $H_0 < H$ se retournent dès l'application du champ H . Pour les autres particules avec $H_0 \geq H$, l'aimantation se retournera mais après un temps de relaxation τ , et nous ne mesurons que la relaxation des particules qui ont un H_0 correspondant à la fenêtre d'observation. Sur la figure 7, la position de cette fenêtre $H_{0,obs}$ est montrée par la ligne épaisse et est égal à $H_{0,obs}=H/(1-(E/K_aV)^{1/\alpha})$. En raison de l'activation thermique, le champ par lequel l'aimantation des particules se retourne, est d'autant plus éloignée de H_0 que la température est élevée.

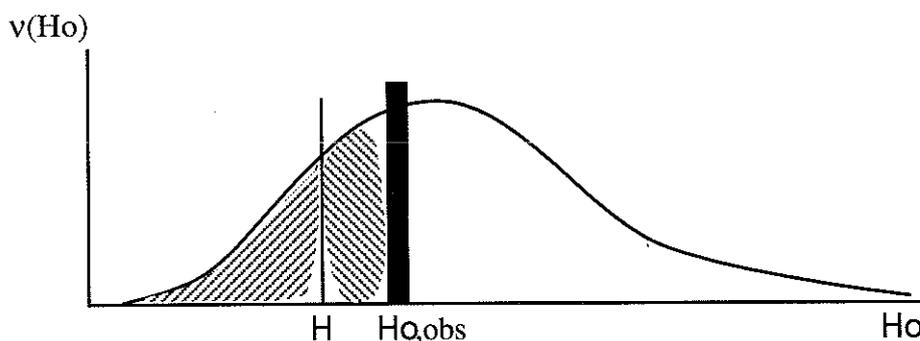
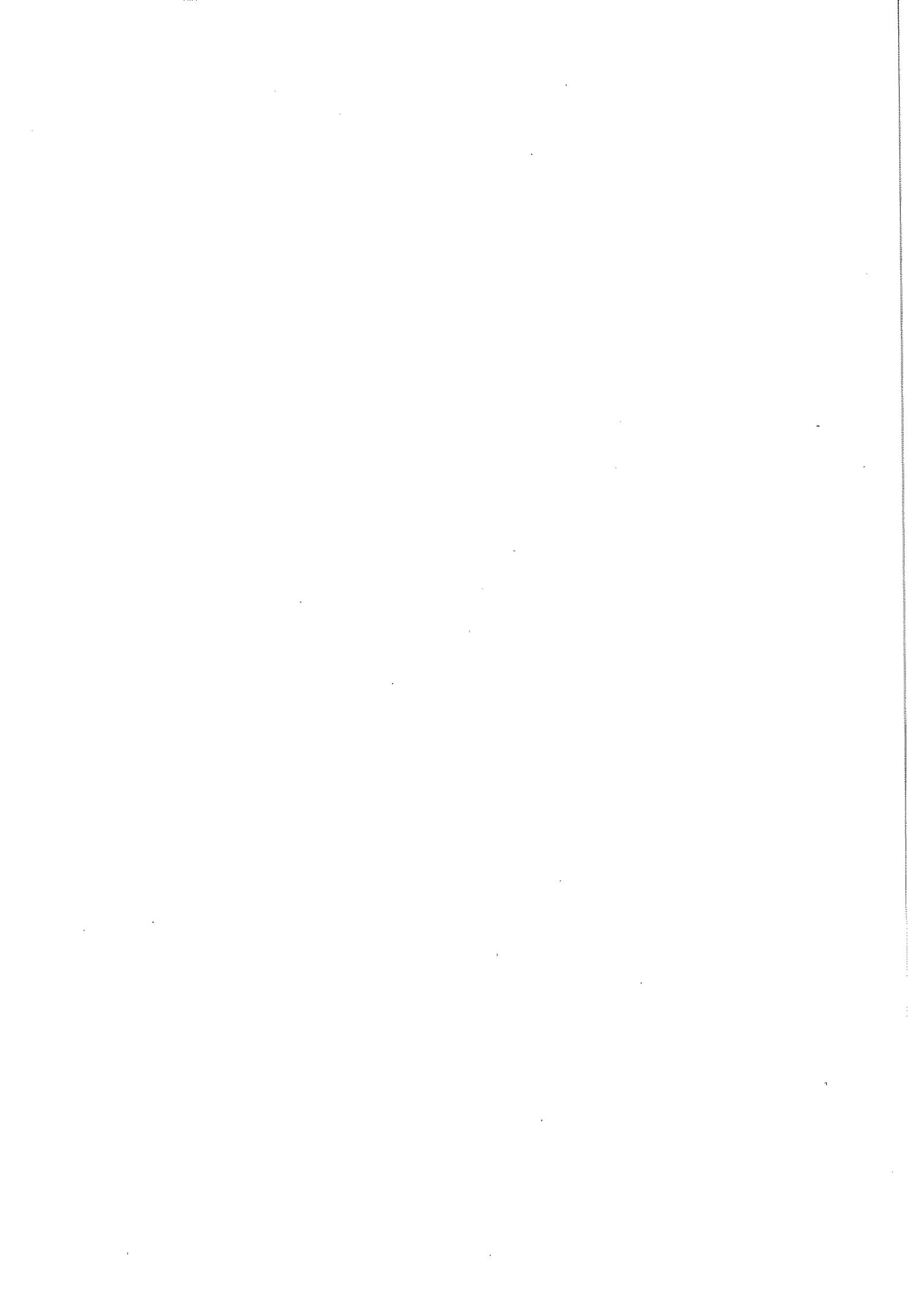


Figure 7 - Schéma de la distribution $v(H_0)$.

Ce scénario change lorsque la température tend vers zéro. Dans ce cas, à mesure que la température décroît, la position de $H_{O,obs}$ tend vers le champ appliqué H , et pour retourner l'aimantation d'une particule il faut appliquer un champ H égal à son champ de retournement H_O . Cela entraîne la divergence de $f(E,H)$, car $f(E,H)$ est égal à $\rho(V)/K_a(1-H/H_O)^\alpha$, selon une loi en $E^{1/\alpha-1}$. Ce comportement ressemble à un phénomène critique avec une température de transition égale à zéro. Cette sorte de transition de phase est une transition piégeage-dépiégeage qui se produit dans la limite $T \rightarrow 0$ [Bar,1994]. Nous aussi pouvons faire une *analogie* entre ce phénomène et une paroi piégée à la température nulle qui se débloque seulement à partir d'une valeur critique du champ magnétique appliqué. Le problème de passage d'une barrière d'énergie par activation thermique a été récemment traité comme un phénomène critique, par exemple voir A.A. Middleton et al. [Mid,1993] ou S. Singh et al. [Sin,1994].

Afin de conclure ce chapitre, remarquons l'importance que prend la distribution d'orientation ou de champ de retournement $v(H_O)$ sur la viscosité magnétique $S(H,T)$ à basse température pour une assemblée de petites particules. L'effet de la distribution $v(H_O)$ sur la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ est d'augmenter le nombre des faibles barrières d'énergie et cela consiste à augmenter $S(H,T)$ à basse température. En considérant que l'aimantation relaxe par activation thermique, $S(H,T)$ prend à basse température la forme suivante : $S(H,T) \propto T^{1/\alpha}$.

Cette dernière expression devient extrêmement importante lorsque nous étudions le mécanisme de relaxation de l'aimantation à basse température, c'est à dire une relaxation par activation thermique ou effet tunnel. Si les mesures ne sont pas faites à assez basse température, disons en dessous de 1,5 K, une extrapolation non nulle de $S(H,T)$ à la limite $T \rightarrow 0$ peut être obtenue, et par conséquent interprétée comme un effet tunnel. Néanmoins, pour une relaxation par activation thermique et en tenant compte de la distribution $v(H_O)$, nous pouvons bien comprendre un tel comportement (voir page 3 ou section 4.4).



Chapitre 3

Effet tunnel de l'aimantation

La question posée dans ce chapitre, et qui d'ailleurs constitue l'une des motivations de ce travail, est de savoir si l'aimantation d'une petite particule peut passer d'une direction de facile aimantation à l'autre à travers de sa barrière d'énergie (l'anisotropie) par effet tunnel. Dès les années 80, en restant dans un cadre très général, A.J. Leggett avait fait une mise au point sur la question de savoir s'il est possible de définir l'état d'un objet macroscopique comme étant une superposition linéaire des états (de base) ayant chacun *différentes propriétés macroscopiques* [Leg,1980 et Leg,1984].

Avant d'aborder l'effet tunnel de l'aimantation d'une manière plus approfondie, regardons tout d'abord un système à l'échelle microscopique en prenant comme exemple la molécule d'ammoniac [Fey,1965]. Cette molécule a un atome d'azote et trois atomes d'hydrogène disposés dans un plan sous l'azote, de sorte que la molécule a la forme d'une pyramide. Dans ce cas, on sait bien qu'on peut décrire l'état $|\psi\rangle$ de ce système comme une superposition linéaire d'états. Ces derniers sont déterminés avec l'atome d'azote au-dessus $|\text{II}\rangle$ du plan des atomes d'hydrogène et au-dessous $|\text{III}\rangle$, et l'état du système $|\psi\rangle$ est donné par $|\psi\rangle = a |\text{II}\rangle \pm b |\text{III}\rangle$.

En passant à l'échelle macroscopique un exemple célèbre et qui illustre bien cette même description, est l'expérience imaginaire du "chat de Schrödinger" [Sch,1935]. Ici, un objet macroscopique comme un chat est placé dans une boîte fermée (hors du regard de l'observateur) où il existe un revolver qui est déclenché par la désintégration d'un noyau radioactif. Après un certain temps et avant d'ouvrir la boîte (i.e. faire la mesure) on ne sait pas si le chat est mort ou vivant. En utilisant les mêmes arguments que ci-dessus, l'état du chat est décrit comme $|\phi\rangle = a |\text{M}\rangle \pm b |\text{V}\rangle$, où $|\text{M}\rangle$ représente le chat mort et $|\text{V}\rangle$ le chat vivant.

Les deux fonctions d'ondes $|\psi\rangle$ et $|\phi\rangle$ semblent bien représenter l'état de chacun de ces deux systèmes, sauf par le fait qu'un chat ne peut être que vivant ou mort avec une certaine probabilité, indépendamment de la mesure. Autrement dit, on interprète $|\phi\rangle$ comme une description probabiliste qui dit que le système est en $|\text{M}\rangle$ ou en $|\text{V}\rangle$ avec des probabilités $|a|^2$ ou $|b|^2$, et que la mesure a pour seule effet de supprimer notre ignorance sur l'état du système. En termes plus technique, $|\phi\rangle$ est un mélange d'états, contrairement de $|\psi\rangle$

qui est un état pur (voir H. Zwirn [Zwi,1992]). Par ce dernier, il existe vraiment des effets d'interférence de la fonction d'onde et comme nous allons voir par la suite, ces effets peuvent aussi être observés dans certains systèmes macroscopiques suffisamment isolés de l'environnement [Leg,1980 et Leg,1984].

Comme cela a aussi été discuté par A.J. Leggett [Leg,1980], un système décrit par une fonction d'onde $|\psi\rangle$ "en contact" avec l'environnement, subit un effet comparable à celui d'une mesure, c'est-à-dire que sa cohérence quantique est détruite. Si un tel système est placé dans l'un des deux puits d'une barrière à double puits, et si l'environnement, lui, "observe" avec une fréquence égale ou supérieure à la fréquence naturelle de vibration du système, alors il ne sera pas possible de passer au travers de la barrière par effet tunnel. Il est très important de remarquer que "l'observation" du système par l'environnement est inhérente aux couplages qui existent presque toujours entre le système et l'environnement. Par ailleurs, le terme "dissipation" qui est très souvent utilisé, signifie principalement l'interaction ou le couplage entre le système et l'environnement [Cal,1983, Leg,1986 et Leg,1987].

Naturellement, la question qu'on peut se poser ici est de savoir, jusqu'où les effets quantiques restent possibles lorsque l'on augmente la taille d'un système en partant de l'échelle microscopique et dans quelles conditions.

3.1 - Effet tunnel en échelle macroscopique

Des phénomènes tels que la supraconductivité, la superfluidité ou l'effet Josephson sont des effets collectifs qui se manifestent à l'échelle macroscopique. Pour une jonction Josephson par exemple, c'est la différence de phase $\Delta\phi$ de la fonction d'onde des paires de Cooper entre les deux côtés de la jonction qui servira de variable macroscopique pour le système entier, c'est-à-dire pour toutes les paires de Cooper. Nous sommes intéressés de savoir si un tel état peut être décrit comme une superposition d'états ($|\psi\rangle = a_1 |M_1\rangle + a_2 |M_2\rangle + \dots + a_i |M_i\rangle$) ayant chacun des *propriétés macroscopiques différentes* ($|M_i\rangle$). Un système qui illustre bien cette idée est le SQUID. Celui-ci est constitué d'une boucle supraconductrice fermée par une jonction Josephson (voir la figure 1). Ici la variable macroscopique est le flux piégé dans la boucle. En appliquant un flux externe on change la structure de la barrière d'énergie où chaque minimum correspond à un certain nombre de Φ_0 . Si le système est dans un minimum métastable (voir la figure 2b), il peut passer vers un autre minimum de moindre énergie par effet tunnel *ou bien* par activation thermique [Cla,1988 et Mar,1985].

Les deux systèmes les plus étudiés ont été les jonctions Josephson et les SQUIDs. Dans ces derniers un flux externe $\Phi_{\text{ext}} = \Phi_0/2$ appliqué donne deux configurations d'équilibre symétriques (fig. 2b), et pour $\Phi_{\text{ext}} = 0$, le potentiel a un seul minimum (figure 2a). Pour le premier système (jonctions Josephson), des potentiels équivalents peuvent être obtenus en appliquant un courant électrique.

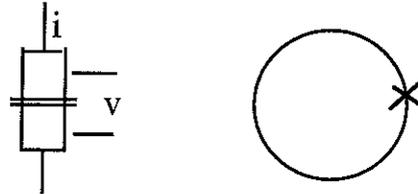


Figure 1 - Jonction Josephson et SQUID. Systèmes utilisés pour l'étude des effets quantiques un échelle macroscopique.

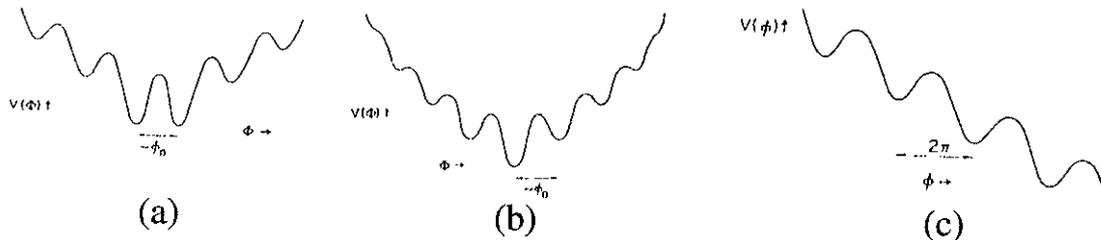


Figure 2 - Potentiels pour un SQUID avec (a) et sans (b) flux appliqué et pour une Jonction Josephson (c) avec un courant appliqué.

Lorsque la forme du potentiel est symétrique il est a priori possible d'avoir des effets de cohérence. Dans la littérature ce phénomène est appelé par "Macroscopic Quantum Coherence" (MQC). Si le potentiel est très asymétrique, il donnera plutôt lieu à l'effet tunnel macroscopique ou "Macroscopic Quantum Tunneling" (MQT).

Dans le cas du MQT, la dépendance thermique du taux de passage par effet tunnel au travers de la barrière est donnée, pour les *basses températures*, par $\ln(\Gamma(T)/\Gamma(T=0)) = s T^2$ [Gra,1984] où $\Gamma(T=0)$ et la constante s dépendent du degré de couplage entre le système et l'environnement. A *haute température*, ce taux correspond au passage au-dessus de la barrière par activation thermique, $\Gamma(T) = \Gamma_0 \exp(-E/k_B T)$, où Γ_0 est la fréquence caractéristique du système et E est l'énergie de la barrière. Il existe une température qui sépare ces deux régimes. Cette température diminue lorsque le couplage entre le système et l'environnement augmente, et est donnée par $T_c = (\hbar\omega/4\pi k_B) [(1+\alpha^2)^{1/2} - \alpha]$ (α mesure le degré de couplage). Afin de mieux illustrer le changement de comportement entre ces deux régimes, nous présentons sur la figure 3 une tracé de $\Gamma(T)$. Remarquons que ce changement est plus abrupt pour des faibles valeurs de α .

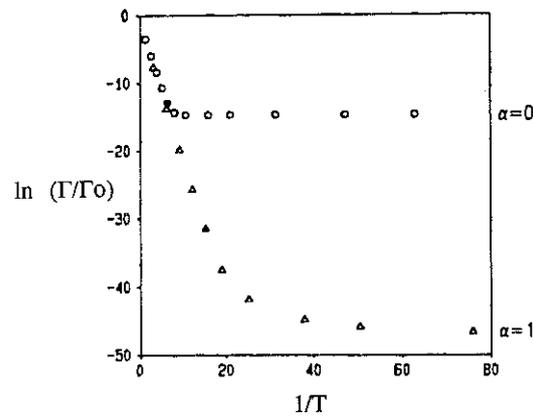


Figure 3 - Taux de passage en fonction de $1/T$. Notons la loi d'activation thermique pour des faibles valeurs de $1/T$ et une relaxation par effet tunnel à basse température. D'après H. Grabert [Gra,1984].

Il est remarquable qu'un tel comportement a été observé pour les jonctions Josephson. Le taux $\Gamma(T)$ de passage par effet tunnel mesuré en fonction de la température pour une jonction Josephson est représenté sur figure 4, [Cla,1988 et Mar,1985]. Pour des raisons de présentation, pour les deux régimes (quantique et classique) $\Gamma(T)$ a été exprimé par une température effective T_{esc} obtenue à partir du rapport $\Gamma(T) = \Gamma_0 \exp(-E/k_B T_{esc})$. Notons que pour le régime classique T_{esc} est égal à la température mesurée par le thermomètre T et pour le régime quantique T_{esc} tend vers une valeur non nulle dans la limite $T \rightarrow 0$. Dans ces systèmes, la température de changement est très basse, ici elle est d'environ 44 mK. Notons sur cette figure la valeur de T_{esc}^* , celle-ci correspond à T_{esc} calculée pour une dissipation nulle. Lorsque la constante de dissipation α augmente, les valeurs de T_{esc} tendent vers les valeurs de températures mesurées.

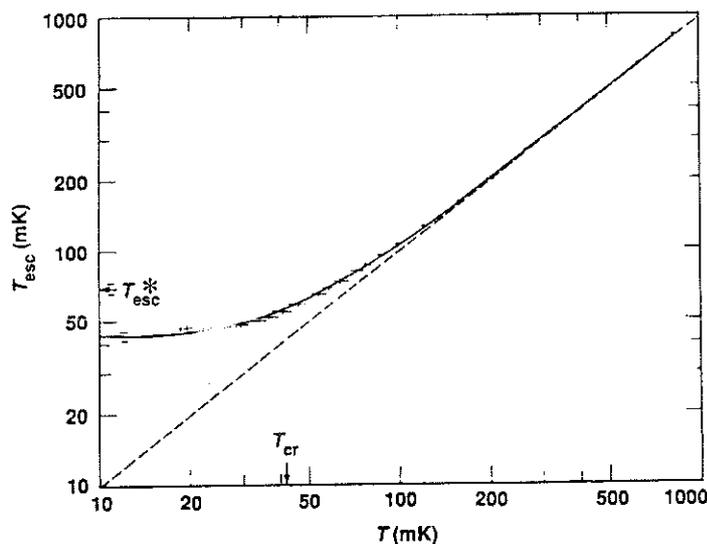


Figure 4 - La température effective T_{esc} en fonction de la température pour une jonction Josephson. Notons que pour le régime actif thermiquement T_{esc} est égal à la température mesurée par le thermomètre. D'après J. Clark, J. Martinis et collaborateurs [Cla,1988 et Mar,1985].

Etant donné qu'il est possible de mesurer un taux $\Gamma(T)$, qui aux très basses températures, caractérise bien une relaxation par effet tunnel, il serait intéressant de mettre en évidence des propriétés quantiques comme la quantification de l'énergie dans le puits. Cela a été effectivement observé, comme nous le présentons sur la figure 5. Dans ce cas là, le taux $\Gamma(T)$ est mesuré en présence d'une micro-onde ($\omega = 2$ GHz) en fonction du courant appliqué pour une température correspondant à $k_B T / (h/2\pi)\omega = 0,29$. Cette température est assez haute pour peupler quelques niveaux d'énergie. La forme du puits et aussi la différence d'énergie $\Delta E_{n,n+1}$ entre deux niveaux d'énergie de nombre quantiques consécutifs est modifiée avec un courant injecté à la jonction. Lorsque $(h/2\pi)\omega$ correspond à $\Delta E_{n,n+1}$ le système passe d'un certain niveau au prochain niveau excité ($n \rightarrow n+1$); cela fait augmenter $\Gamma(T)$ [Mar,1985]. *Remarquons que l'expérience présentée sur la figure 5 démontre l'existence de niveaux d'énergie discret pour un système caractérisé par une variable macroscopique.*

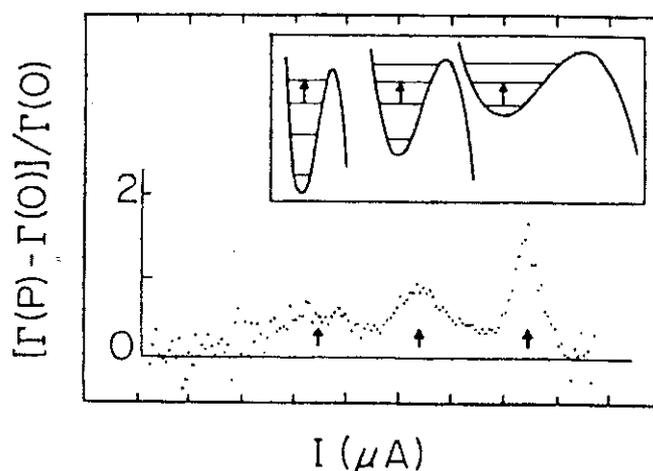


Figure 5 - Variation relative du taux de passage par la barrière Γ en fonction du courant en présence d'une micro-onde de 2 GHz. Ici, le caractère discret d'énergie dans le puits est mis en évidence [Cla,1988 et Mar,1985].

Un système qui nous permet d'étudier le cas du puits symétrique (MQC) est le SQUID, où la variable macroscopique est le flux piégé par la boucle. Dans le cas du MQC, le taux de passage par la barrière $\Gamma(T)$ aux très basses températures et en présence de dissipation est donné par $\Gamma(T) \propto T^{2\alpha-1}$ où α est coefficient de dissipation [Cha,1984 et Leg,1987]. Pour ce régime de dissipation le système passe au travers de la barrière par effet tunnel incohérent. L'effet de cohérence fait que le système fasse des allers et retours entre les deux puits de façon périodique.

Il est intéressant remarquer que pour un système avec des puits symétrique la limite $T \rightarrow 0$ donne un $\Gamma(T)$ nul, contrairement à ce qui correspond à des puits asymétrique. En réalité, pour des puits symétrique $\Gamma(0)$ est différent de zéro seulement pour des valeurs de α a peu près nulle, autrement dit en l'absence d'interaction avec l'environnement. En

pratique, cela est très difficile d'être réalisé pour des systèmes macroscopiques. Sur la figure 6a est représenté le taux de passage $\Gamma(T)$ au travers de la barrière mesuré en fonction de la température pour un SQUID avec des puits symétriques [Han,1991]. Cette figure montre bien une dépendance en puissance, et on trouve $\alpha = 1,44 \pm 0,04$. Sur la figure 6b, on présente des mesures de $\Gamma(T)$ pour des hautes températures où la loi d'activation thermique est observée [Han,1989]. La température de changement de régime est égal à 200 mK.

D'autres auteurs ont aussi rapportés l'observation d'un effet tunnel macroscopique pour d'autres systèmes avec des puits symétriques et asymétriques, comme par exemple les jonctions Josephson longues (L. Stahel et O.G. Symko [Sta,1992]) ou les fils supraconducteur ultra-fin (N. Giordano et E.R. Schuler [Gio,1989]). Nous présentons sur la figure 6c, $\Gamma(T)$ pour une jonction Josephson longue avec un puits symétrique; ici l'effet tunnel est incohérent et $\Gamma(T)$ suit l'expression : $\Gamma(T) \propto T^{2\alpha-1}$.

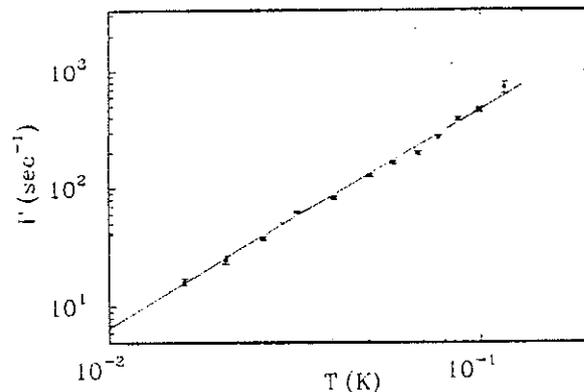


Figure 6a - Dépendance en température du taux de passage à travers de la barrière pour un SQUID avec des puits symétriques. Cette figure montre un effet tunnel incohérent avec $\Gamma(T) \propto T^{2\alpha-1}$. D'après S. Han [Han,1991].

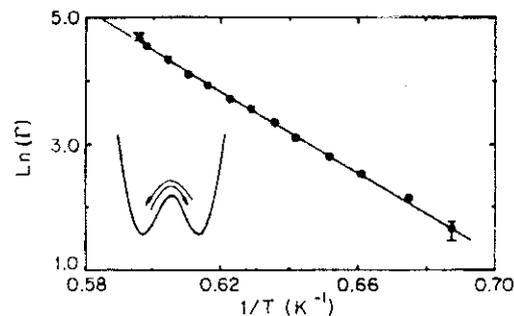


Figure 6b - Dépendance avec la température du taux de passage au dessus de la barrière (activation thermique) pour un SQUID avec des puits symétriques. L'échantillon est le même que celui utilisé pour la mesure montrée sur la figure précédente mais la température est plus élevée. D'après S. Han [Han,1989].

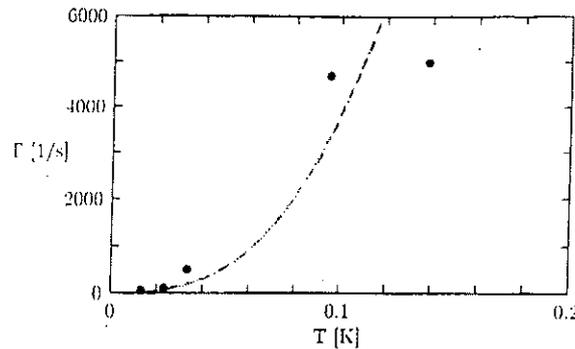


Figure 6c - Taux de passage au travers de la barrière Γ en fonction de la température pour une jonction Josephson longue et pour un puits symétrique. Γ suit l'expression $\Gamma(T) \propto T^{2\alpha-1}$ avec $\alpha=2,0$. D'après L. Stahel et O.G. Symko [Sta,1992].

Pour conclure ce paragraphe, les systèmes caractérisés par une variable macroscopique peuvent donner lieu à un effet tunnel macroscopique, à condition que le système ne soit pas très couplé avec l'environnement.

3.2 - Effet tunnel de l'aimantation

3.2.1 - Résumé de la théorie

Dans cette section nous discuterons brièvement la théorie des effets quantiques macroscopiques en magnétisme, afin de mieux comprendre le problème et surtout pour mettre en évidence la difficulté expérimentale de l'observation d'un tel phénomène.

Considérons une petite *particule ferromagnétique* monodomaine ($\cong 100 \text{ \AA}$) à très basse température. Prenons pour cette particule une symétrie uniaxiale, et un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation et en sens opposé à son moment magnétique. Dans ce cas, l'aimantation a un état métastable et un autre stable. Ils sont séparés par une barrière d'énergie résultant de l'anisotropie magnétocristalline (voir figure ci-dessous).

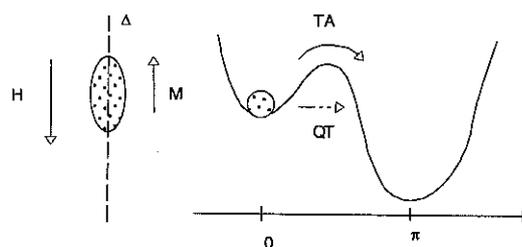


Figure 7 - Schéma d'une particule monodomaine soumise à un champ magnétique appliqué dans le sens inverse de l'aimantation et ses configurations d'énergie métastable (en haut) et stable (en bas). Le système relaxe vers l'équilibre par effet tunnel (QT) à basse température et par activation thermique (TA) à haute température.

Pour les très basses températures, nous pouvons négliger les excitations (magnons, phonons, ...) et considérer tous les spins comme étant alignés. Ainsi, la largeur de la paroi doit être plus grande que la particule pour que le retournement de l'aimantation soit uniforme. Etant donné que les spins sont toujours alignés, nous pouvons définir une variable macroscopique qui caractérise la particule comme son aimantation totale, et qui peut avoir deux valeurs différents : $|\uparrow\rangle$ pour tous les spins vers le haut et $|\downarrow\rangle$ pour tous les spins vers le bas. L'état de la particule peut alors être exprimé comme étant égal à $|\Psi\rangle = a |\uparrow\rangle \pm b |\downarrow\rangle$.

Le taux de passage au travers de la barrière par effet tunnel pour la limite $T \rightarrow 0$ peut être calculé en utilisant l'approximation WKB. Ce taux est donné par $\Gamma_{QT} = \Gamma_0 \exp(-B)$ avec $B \propto MV (K_{\parallel} / K_{\perp})^{1/2} (1-H/H_0)^{3/2}$ où M est l'aimantation de la particule, V est son volume, et K_{\perp} est la constante d'anisotropie perpendiculaire à la direction de facile aimantation [Chu,1988, Enz,1986 et Sch,1987]. La température de changement de régime T_C est définie comme la température à laquelle les taux quantique et thermique sont du même ordre de grandeur. On l'obtient en faisant $\Gamma_{QT} \cong \Gamma_{TA}(T_C)$ avec $B=U/k_B T_C$ et finalement $T_C \propto (K_{\parallel} K_{\perp})^{1/2} (1-H/H_0)^{1/2} / M$.

Par contre, pour des températures élevées, le système relaxe vers l'équilibre par activation thermique en passant par dessus de la barrière. Dans ce cas là, le taux de passage est donné par $\Gamma(T) = \Gamma_0 \exp(-U/k_B T)$, où U est la hauteur de la barrière et est égale à $U = V K_{\parallel} (1-H/H_0)^{1/2}$, K_{\parallel} est la constante d'anisotropie parallèle à la direction de facile aimantation et H_0 est le champ d'anisotropie.

Des remarques très importantes sont à faire sur l'expression du taux par effet tunnel Γ_{QT} : i) Γ_{QT} décroît exponentiellement avec la taille (où nombre de spins) de la particule. Cela signifie que pour de grosses particules, l'observation de cet effet devient très difficile. ii) Γ_{QT} s'annule lorsque K_{\perp} tends vers zéro. Cette constante a le rôle d'une masse effective [Chu,1988]. Un champ appliqué dans la direction perpendiculaire à la direction de facile aimantation a le même effet que l'anisotropie K_{\perp} . iii) Γ_{QT} croît lorsque le rapport $K_{\parallel} / K_{\perp}$ atteint des valeurs importantes et l'aimantation M est faible. Pour que l'effet tunnel soit observable même à très basse température, nous devons tenir compte de ces trois points.

Le calcul de Γ_{QT} par effet tunnel peut aussi être fait dans le cas où les spins de la particule s'ordonnent antiparallèlement, formant une *particule antiferromagnétique*. Dans ce cas, la variable macroscopique est définie par le vecteur de Néel $\vec{N} = (\vec{M}_1 - \vec{M}_2) / 2M_0$ où $\vec{M}_1 = -\vec{M}_2 = M_0 \hat{\Delta}$ (\vec{M}_i ($i=1,2$) est l'aimantation de sous-réseaux et $\hat{\Delta}$ est la direction de facile aimantation). Cette variable macroscopique qui caractérise complètement le système,

peut prendre deux valeurs ($|\vec{L}|=+1,-1$). L'état du système est alors donné par: $|\Psi\rangle = a|+1\rangle \pm b|-1\rangle$. Notons que pour la variable \vec{L} , la structure du potentiel est symétrique, ce qui correspond à du MQC. En calculant Γ_{QT} pour la limite $T \rightarrow 0$ avec l'approximation WKB, on trouve $B \propto (K \chi_{\perp})^{1/2} V$ et $T_C \propto (K_{//} / \chi_{\perp})^{1/2}$ où χ_{\perp} est la susceptibilité transverse [Bar,1990 et Kri,1990]. Si l'on compare cette expression à celle équivalente du T_C d'un ferromagnétique (en mettant des valeurs typiques d'aimantation, anisotropie parallèle et perpendiculaire et susceptibilité) nous trouvons que pour les antiferromagnétiques T_C peut être largement supérieure à celle correspondant aux ferromagnétiques [Bar,1990]. Remarquons que pour les calculs de Γ_{QT} et T_C la dissipation n'a pas été prise en compte.

Dans les deux paragraphes précédents, nous avons vu qu'en passant d'une particule ferromagnétique à une particule antiferromagnétique, le taux quantique et la température de changement de régime n'ont plus les mêmes expressions. Récemment, un résultat très curieux concernant le spin total de la particule a été démontré. Pour une particule ferromagnétique de spin total est demi-entier, aucun effet quantique ne peut être observé. *Cependant, si le spin total est entier l'effet quantique à l'échelle macroscopique est permis.* [Los, 1992 et Del,1992].

Si l'on augmente la taille des particules, pour des particules qui sont plus grandes que la parois de domaine du même matériau, le retournement de l'aimantation n'est plus uniforme. En effet, il peut y avoir des nucleations puis propagations de parois à la surface de la particule. Le volume initial qui si retourne, est bien sûr plus petit que celui de la particule [Sta,1976]. En progressant encore dans la taille du système, on arrive à des échantillons massifs. Dans ce cas, la variation de l'aimantation est accompagnée par des nucléations et déplacements simultanés d'un grand nombre de parois. L'un des premiers travaux sur le déplacement d'une paroi par effet tunnel a été fait par T. Egami en 1973 [Ega,1973]. Son modèle considère une paroi très étroite qui se déplace d'une distance interatomique par effet tunnel. Plus récemment, P.C.E. Stamp a analysé le déplacement par effet tunnel d'une parois en termes de diffusion d'un soliton [Sta,1992]. Selon leurs prévisions, pour des matériaux isolants le nombre de spins qui participe à un tel événement peut être de l'ordre de 10^{10} spins.

Dans la section précédente nous avons mentionné, que le couplage du système avec l'environnement (dissipation) peut produire une decohérence de la fonction d'onde du système, et par conséquent, supprimer l'effet tunnel. Essentiellement l'environnement est représenté par des phonons, magnons et électrons. Comme cela a été fait pour des jonction Josephson et des SQUIDS, il est possible de prendre en compte les effets

de dissipation en utilisant le formalisme de Caldeira-Leggett [Cal,1983]. Pour des systèmes magnétiques, ce formalisme peut encore être appliqué pour des petites particules mais cela devient très compliqué pour des parois de domaine. P.C.E. Stamp a réalisée une discussion détaillée de ce problème [Sta,1992].

3.2.2 - Résultats expérimentaux

L'observation de l'effet tunnel de l'aimantation a été proposé pour la première fois par C.P. Bean & J.D. Livingston [Bea,1959] à la fin des années 50, afin d'interpréter les résultats expérimentaux de L. Weil [Wei,1954] sur des petites particules de Nickel. L. Weil avait, en effet, trouvé à partir de la variation thermique de l'aimantation rémanente qu'une fraction du nombre total de particules ne se bloque pas jusqu'à 2 K. Il en a déduit une distribution en taille obtenue avec une divergence pour des tailles inférieures à 50 Å (voir la figure ci-dessous).

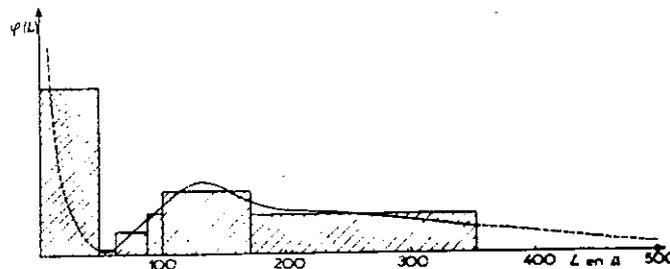


Figure 8 - Distribution de taille obtenue pour des particules de Nickel d'après L. Weil [Wei,1954].

Cette distribution, de type bi-modale, ne semble à priori pas très naturelle, et peut être comprise à l'aide du modèle développé dans le chapitre précédent. Dans ce cas, la remonté observée en dessous de 50 Å est artificielle et provient de la distribution d'orientation de la direction de facile aimantation des particules. La distribution réelle en taille a un diamètre le plus probable de 120 Å. Cependant pour ce système, la possibilité d'effet tunnel de l'aimantation ne doit pas être éliminée, et pour mettre en évidence de façon indubitable nous devons travailler aussi à très basse température (< 1 K).

Dans les années 70 et 80, B. Barbara et M. Uehara ont étudiés la dépendance en température de la relaxation de l'aimantation sur des échantillons massifs monocristallins de Dy_3Al_2 et $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ [Bar,1972 et Ueh,1986]. Dans le cas du $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$, nous présentons sur la figure 9 le tracé d'une température effective T^* en fonction de la température T mesurée par le thermomètre (T^* représente une température qui correspondrait à une relaxation thermique donnée par $\tau = \tau_0 \exp(E/K_B T^*)$). En pratique, on trace T/T^* en fonction de T afin de mettre en évidence la différence entre ces deux températures.

Effectivement, nous voyons qu'à haute température, $T^* = T$ comme cela est attendu dans un régime thermique, tandis qu'au-dessous de 10 K, $T^* > T$. Ce changement de régime trouvé vers 10 K est attribué au passage de portions de parois au travers de barrière d'énergies locale (un défaut ou une impureté non magnétique dans le sous réseau magnétique) par effet tunnel. Le premier calcul de l'effet tunnel d'une paroi étroite a été fait par T. Egami [Ega,1973] en 1973, afin d'interpréter les résultats expérimentaux sur Dy_3Al_2 .

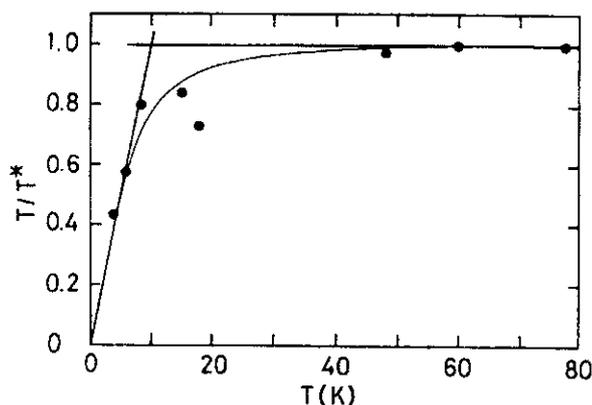


Figure 9 - L'inverse de la température effective T^* en fonction de la température de mesure T . T^* est normalisée par T . D'après B. Barbara et M. Uehara [Ueh,1986].

Une remarque intéressante que l'on peut faire sur les systèmes massifs est que dès qu'un événement (déplacement d'une portion de paroi) est déclenché, il existe par un échauffement local qui peut induire de nouveaux événements, et qui cette fois-ci sont thermiques. Ces nouveaux événements peuvent encore induire d'autres événements ce qui constitue un effet d'avalanche. Cet effet est important aux basses températures car la chaleur spécifique devient très petite. Les figures 10a et 10b montrent des cycles d'hystérésis de $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ pour la partie démagnétisante, où on voit l'apparition de paliers d'aimantation à 2,1 K (figure 10a), et qui s'établissent à 1,8 K (figure 10b).

Signalons que pour chaque saut d'aimantation il existe un échauffement de tout l'échantillon qui est facilement mesurable. Ce saut correspond à 0,2 K dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ ($T=1,8$ K) et à 15 K dans un autre échantillon à base de $Sm_2(CoCu)_{17}$. Les différentes variations de température montrent le rôle crucial joué par les paramètres tels que la chaleur spécifique ou la conductivité thermique. Dans le cas de $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ un échauffement de 0,2 K \ll 10 K n'est pas gênant pour une mise en évidence indirecte de l'effet tunnel (la première) [Ueh,1986]. Il peut y avoir aussi échauffement local sans effet d'avalanche. Une façon d'éliminer cet effet d'échauffement et les avalanches qui peuvent en résulter, consiste à travailler avec des systèmes isolés à l'échelle mésoscopique où l'on ne mesure que l'événement initial. Nous reviendrons à ce point par la suite.

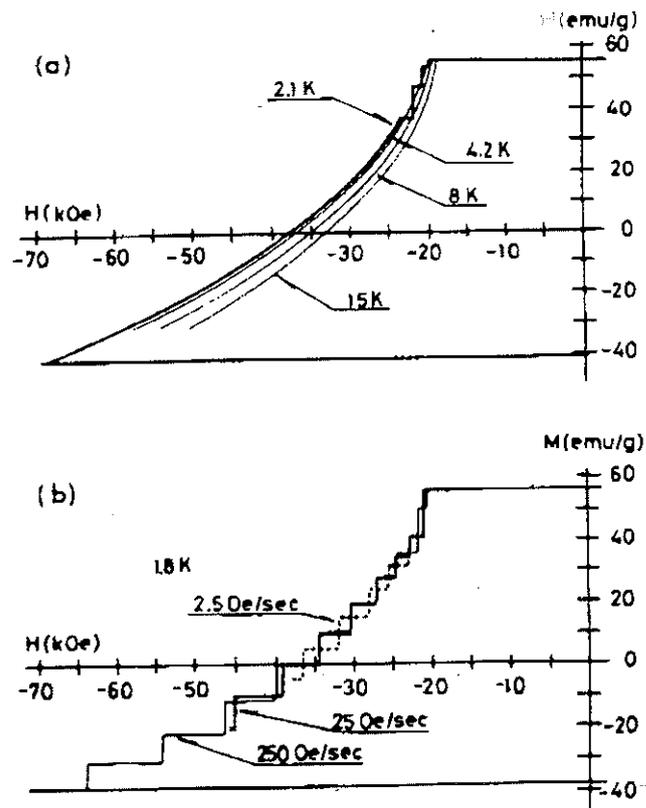


Figure 10 - (a) Cycles d'hystérésis mesurés à différentes températures dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$. Remarquons les paliers d'aimantation à 2,1 K. (b) Détail des paliers à 1,8 K pour différentes vitesses de changement du champ magnétique. D'après B. Barbara et M. Uehara [Ueh,1986].

Récemment, grâce à l'apport des travaux théoriques sur les effets quantiques macroscopiques en magnétisme, nous avons été conduits à étudier en détail la dépendance en température de la relaxation de l'aimantation de petites particules non orientées de $\text{Ce}_{0,5}\text{Tb}_{0,5}\text{Fe}_2$ mélangées dans un polymère [Pau,1991 et Pau,1992]. L'échantillon a été élaboré par D. Fruchart au Laboratoire de Cristallographie par la méthode d'hydruration. Les particules ont en moyenne 150 Å de diamètre, avec cependant une large distribution de taille. La largeur de la paroi de domaine est estimée à 30 Å. Nous nous attendons donc à un retournement de l'aimantation par le déplacement d'une paroi. Le champ coercitif à 4,2 K est de 5,5 kOe.

Nous avons défini le temps de relaxation par la dérivée $\tau = (1/2M_S)(dM/dt)_{(M=0)}$ à l'instant t où l'aimantation s'annule. Comme cela a été rapporté par B. Barbara et al. [Bar,1973] pour les systèmes intermétalliques, l'énergie de barrière pour des champs proches du champ coercitif a la forme suivante, $E(H) \propto (1/H - 1/H_0)$. En tenant compte alors de la loi d'activation thermique ($\tau = \tau_0 \exp(E(H)/k_B T)$), le temps de

relaxation τ est donc donné par $\log \tau \propto ((1/H - 1/H_0)/k_B T)$. Cette dépendance en champ et en température est vérifiée, voir figure ci-dessous.

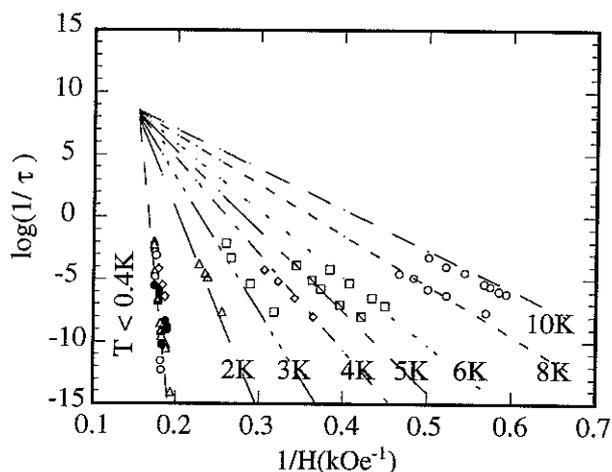


Figure 11 - Le temps de relaxation τ en fonction de $1/H$ pour des petites particules non orientées de $Ce_{0,5}Tb_{0,5}Fe_2$. D'après C. Paulsen et al. [Pau,1991 et Pau,1992].

Remarquons qu'à partir de ce tracé de $\log \tau$ en fonction de $1/H$, la température T^* définie antérieurement peut être obtenue par l'expression : $1/T^* \propto d(\log \tau)/d(1/H)$; cette température correspond simplement aux pentes des courbes montrées ci-dessus. A haute température (au dessus de 2 K) on trouve $T^* = T$, tandis qu'à basse température (au dessous de 0,4 K) on trouve que T^* est presque indépendant de T : tout les droites se superposent. Une tracé détaillé des points à basse température fait cependant apparaître une faible variation thermique qui peut être attribuée aux effets de dissipation (figure 12).

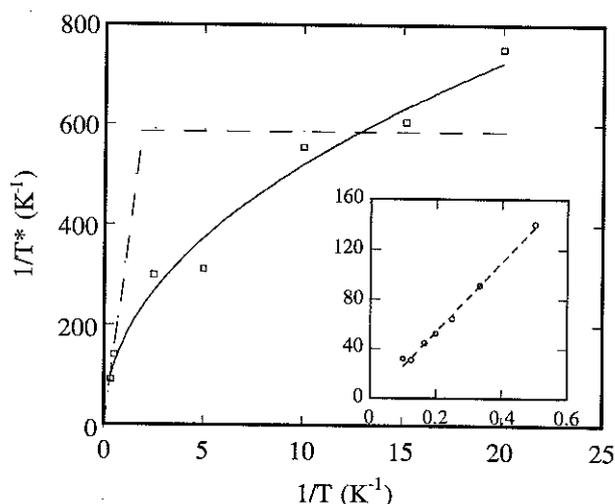


Figure 12 - Inverse de la température effective en fonction de l'inverse de la température de mesure pour des particules de $Ce_{0,5}Tb_{0,5}Fe_2$. La ligne continue sert juste de guide, et celle au pointillée correspond à une relaxation par activation thermique pour des faibles valeurs de $1/T$ et par effet tunnel pour la partie horizontale. L'insert est un zoom sur la relaxation thermique. D'après C. Paulsen et al. [Pau,1991 et Pau,1992].

Etant donné qu'il existe des parois de domaines dans ces particules (probablement une) car deux ou plus coûteraient trop d'énergie, ces parois sont piégées par des rugosités à la surface ou par le désordre. D'une façon indirecte, nous avons attribué la déviation du comportement linéaire de $1/T^*$ en fonction de $1/T$ à une relaxation de l'aimantation par effet tunnel correspondant au déplacement d'une paroi dans une particule [Pau,1991 et Pau,1992].

De nombreux travaux ont aussi été fait par J. Tejada et X.X. Zhang et al. à Barcelone. Leurs études portent essentiellement sur la dépendance en température de la viscosité magnétique dans le cas de petites particules et couches minces. Pour des raisons de présentation, nous discuterons les résultats expérimentaux seulement sur des couches de $TbFe_3$ car nous avons fait une étude semblable sur le même système qui sera discuté dans le chapitre 5. Les résultats présentés ici pour ces couches sont similaires à ceux d'autres systèmes étudiés ailleurs (par exemple [Tej,1993 et Zha,1994]).

Les couches ont été faites par pulvérisation cathodique en évaporant des métaux isolés. L'échantillon est composé d'une superposition d'une cinquantaine de couches $TbFe_3$ qui font environ 7 \AA séparées par d'autres d'Ag de 100 \AA [Tej,1993]. Le substrat utilisé est le Kapton. Afin d'effectuer des mesures de viscosité magnétique, l'échantillon est refroidi depuis la température ambiante sous champ faible (100 Oe), la température est stabilisée, un champ symétrique est appliqué (-100 Oe) et ensuite l'aimantation est mesurée au cours du temps. Sur les figures ci-dessous, nous présentons cette mesure de relaxation de l'aimantation en fonction du logarithme du temps (figure 13a) aussi que la viscosité magnétique $S(T)$ correspondante (figure 13b).

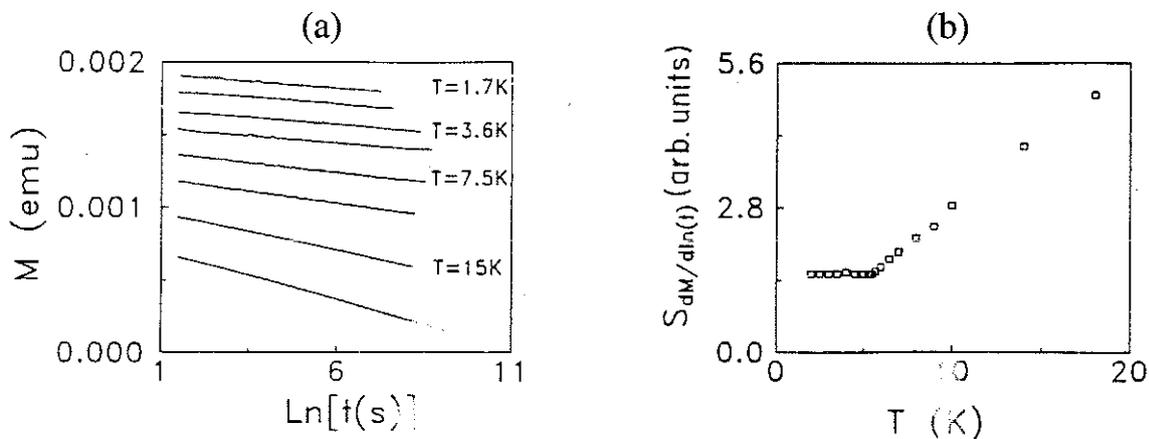


Figure 13 - (a) Relaxation de l'aimantation pour plusieurs températures, (b) et la viscosité magnétique $S(T)$ correspondant. D'après J. Tejada et X.X. Zhang [Tej,1993].

A propos des ces mesures (figure 13b) notons que pour les plus hautes températures, $S(T)$ est proportionnel à la température comme cela c'est attendu pour une relaxation par activation thermique. Nous voyons clairement un changement de régime vers 5 K. Les auteurs attribuent ce changement de régime à une relaxation par effet tunnel au-dessous de 5 K.

Concernant ce changement de régime, nous présentons sur la figure 14 des résultats récents de mesures de $S(T)$ pour des couches de Tb(770 Å)/Mo(180 Å) et Dy(900 Å)/Mo(180 Å) où pour la couche de Tb la température d'un tel changement d'environ 20 K est la plus grande rapportée jusqu'à présent [She,1993]. La procédure de mesure est la même que celle utilisée pour les mesures montées sur la figure 13.

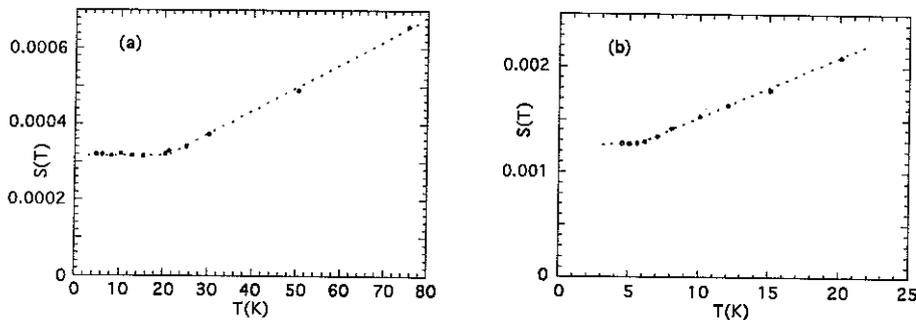


Figure 14 - Viscosité Magnétique en fonction de la température pour de couches de Tb(770 Å)/Mo(180 Å) (a) et Dy(900 Å)/Mo(180 Å) (b). D'après M.J. O'Shea et P. Perera [She,1993].

Des résultats équivalents ont été trouvés aussi sur des alliages amorphes de $(\text{Gd,Tb})_2\text{Cu}$ et TbFe_2 [Arn,1993 et Arn,1994] comme le montre la figure ci-dessous.

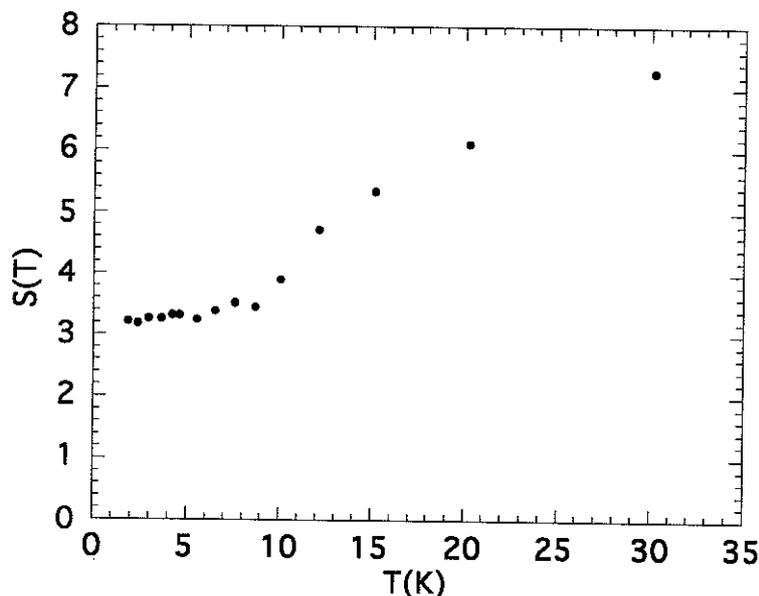


Figure 15 - Dépendance en température de la viscosité magnétique pour un amorphe de TbFe_2 . D'après J.I. Arnaudas et al. [Arn,1993 et Arn,1994].

Comme nous l'avons observé sur ces dernières figures, un changement de régime de relaxation a été vraiment observé. Cependant, la réalisation de mesures aux très basses température sont souhaitables pour une mise en évidence plus sûre de l'effet tunnel de l'aimantation. Comme nous l'avons montré à la fin du chapitre 1, une distribution effective de barrières d'énergie de forme divergente ($f(E) \propto 1/E$) aux basses énergies peut effectivement donner un palier sur la viscosité magnétique à basse température (la fonction $f(E)$ peut éventuellement avoir une valeur de coupure minimale). L'origine de cette distribution *effective* peut être par exemple, un échauffement local intrinsèque au retournement des spins.

Une expérience assez intéressante a été effectuée par D.D. Awschalom et al. [Aws,1993] où un effet de cohérence quantique macroscopique (MQC - "macroscopic quantum coherence") est supposé avoir été observé dans un système composé de particules de ferritine de 75 Å de diamètre ($\cong 4500$ spins), avec une couche de protéine de 20 Å autour. Ces particules sont antiferromagnétiques ($T_N \cong 240$ K) et ont des moments non compensés à la surface. A partir de mesures de $\chi_{AC}(T)$ l'existence de moments non compensés est observé et correspond à 43 spins par particule, c'est à dire une petite fraction de la particule. L'échantillon utilisé est très dilué (1000:1 et 10000:1) et a environ 38000 particules de ferritine (ces deux dilutions donnent les mêmes résultats). Pour les mesures de susceptibilité et de bruit un micro SQUID a été utilisé.

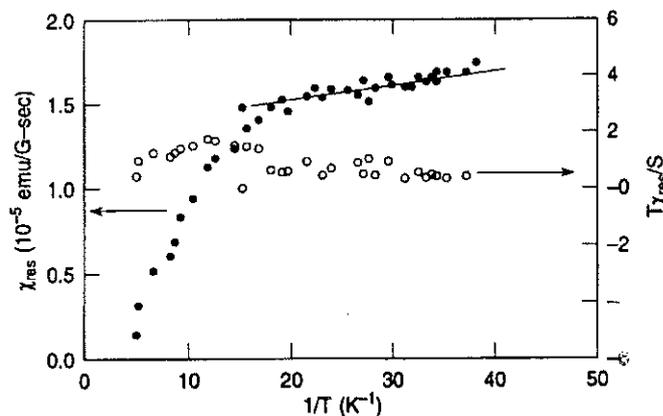


Figure 16 - Dépendance en température de la susceptibilité à la fréquence de résonance $\chi_{ac}(\omega_{res})$ (à gauche) et vérification du théorème de fluctuation-dissipation (à droite) pour des particules de ferritine. D'après D.D. Awschalom et al. [Aws,1993].

Les mesures de susceptibilité en fonction de la fréquence $\chi_{ac}(\omega)$ présentent un pic de résonance ω_{res} à 940 kHz pour des températures au-dessous de 200 mK. Au-dessus de cette température la résonance n'est plus observée. La fréquence ω_{res} ne dépend pas de la température. Ce pic $\chi_{ac}(\omega_{res})$ est plus prononcé à plus basse température et devient à peu près constant au dessous de 50 mK. Des résultats identiques sont trouvés à partir de

mesures de bruit $S(\omega)$, ce qui se comprend par le théorème de fluctuation-dissipation $\chi_{ac}(\omega) = [1 - \exp(-(\hbar/2\pi)\omega/k_B T)] S(\omega) / 2(\hbar/2\pi) \equiv (\omega/2k_B T) S(\omega)$ (ici l'approximation est valable car $(\hbar/2\pi)\omega_{res}/k_B T < 10^{-3}$). Ces deux résultats sont présentés sur la figure 16. Nous observons que le théorème est vérifié. Notons que la mesure du bruit ne perturbe presque pas le système, autrement dit, le système et l'appareil de mesure n'interagissent pas.

Afin de comprendre le phénomène observé, considérons une particule antiferromagnétique dont le vecteur de Néel oscille de façon cohérente entre les deux orientations dégénérées de la direction de facile aimantation (le vecteur de Néel est défini comme $\vec{L} = (\vec{M}_1 - \vec{M}_2) / 2M_0$ est l'aimantation de chaque sous-réseaux). Le moment résultant de la non compensation des spins à la surface de la particules suivent le vecteur \vec{L} au cours de sa rotation. Ce vecteur est une variable macroscopique qui caractérise l'état de la particule. Awschalom et al. attribuent la résonance observée à un effet tunnel cohérent entre les deux états.

Avant d'étudier l'influence d'un champ statique sur la fréquence ω_{res} , considérons le Hamiltonien,

$$H = \begin{pmatrix} E_0 - MH & \Delta \\ -\Delta & E_0 + MH \end{pmatrix}$$

où E_0 est l'énergie des états initiaux dans chaque puits, M est le moment non compensé et Δ est le terme de couplage entre les deux états. La base choisie correspond à \vec{L} sous une orientation ou l'autre de la direction de facile aimantation. Cet Hamiltonien a comme valeurs propres $E_{\pm} = E_0 \pm (\Delta^2 + (MH)^2)^{1/2}$, et un "splitting" égal à $\Delta E = E_+ - E_-$. Lorsqu'on applique une radiation de fréquence $\omega_{res} = \Delta E / (\hbar/2\pi)$, le système l'absorbe. En effet $\omega_{res}(H) = [\omega_{res}(H=0)^2 + (MH/(\hbar/2\pi))^2]^{1/2}$. La mesure de $\omega_{res}(H)$ est présentée sur la figure ci-dessous.

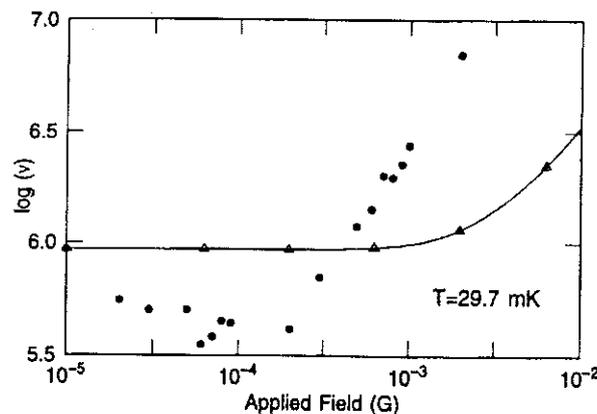


Figure 17 - Dépendance en fréquence de la fréquence de résonance $\omega_{res}(H)$ pour des particules de ferritine. Les triangles correspondent à ce qui est prévue par la théorie. D'après D.D. Awschalom et al. [Aws,1993].

Bien qu'un accord qualitatif soit observé entre l'expérience et la théorie, A. Garg a publié une longue série de communications (au Workshop/NATO à Chichillianne aussi) qui mettent en doute cette interprétation des résultats. Selon lui l'interprétation en termes de cohérence quantique entre deux états macroscopiques n'est pas valable [Gar,1993]. Par exemple pour un champ de 2,5 mG la fréquence de résonance diffère d'un ordre de grandeur par rapport à la valeur attendue. De plus, la puissance absorbée à la résonance est 50 fois supérieure à la valeur attendue, l'orientation des particules, la distribution de taille des particules ainsi que les effets de dissipation devraient élargir la résonance beaucoup plus que ce qui est mesuré, ... Finalement, Garg attribue la résonance observée à un effet microscopique d'origine électronique.

Afin d'éliminer l'influence de la distribution effective de barrières d'énergies $f(E)$, qui probablement joue un rôle fondamental sur tous les systèmes décrits jusqu'à présent (ensemble des petites particules, couches minces et alliages massifs ...), il est plus convenable d'étudier une seule petite particule, ou encore une assemblée de petites particules identiques, orientées, sans distribution de taille et qui n'interagissent pas.

Récemment, un système très intéressant a été étudié en χ_{AC} par M. Novak et al. [Nov,1994 et Can,1993]. En effet ce système qui est composé d'agrégats de 12 atomes de Mn dans une matrix organique, ne possède pas de distribution de temps de relaxation de l'aimantation mais est décrit par un seul temps de relaxation. Un tel système apparaît très intéressant pour l'étude d'effets quantiques de "grands" spins. Cette étude a été réalisée par notre équipe en collaboration très étroite avec C. Paulsen et M. Novak [Bar,1994b]. Ces particules sont isolées, identiques et orientées selon l'axe c du cristal. Chaque particule a un spin total $S = 10$ [Gat,1994] et les niveaux S_Z varient de -10 à +10. Il est très intéressant signaler que certains niveaux de cette structure d'énergie quantifiée ont été observés par résonance électronique paramagnétique (EPR) [Can,1991]. Remarquons que la fonction d'onde décrit l'état de la particule qui contient 12 atomes de Mn et que cette échelle est assez réduite par rapport aux études précédentes. Autrement dit, tout ce passe à l'échelle microscopique. Ce type d'étude peut constituer un bon test pour la mise en évidence de l'effet tunnel de l'aimantation d'un "grand" spin.

Afin d'étudier la variation thermique du temps de relaxation, on applique un champ de saturation à l'échantillon, puis un champ négatif pour lequel l'aimantation est mesurée en fonction du temps. Etant donné que les particules sont isolées, identiques et orientées, il n'existe qu'une seule barrière d'énergie E . Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, l'aimantation doit alors relaxer comme $M(t)/M_S = 2e^{-t/\tau} - 1$, où τ est donné par la loi d'activation thermique $\tau = \tau_0 e^{E/k_B T}$. Nous présentons sur la figure ci-dessous des

mesures de relaxation de l'aimantation en fonction du temps pour des particules de Mn_{12} [Pau,1994]. Remarquons que la dépendance attendu pour $M(t)$ est vérifiée. Ainsi, ce système est le premier rapporté dans la littérature à présenter une telle dépendance [Can,1993], puisque normalement il existe une distribution de temps de relaxation qui donne à $M(t)$ une décroissance en logarithme du temps.

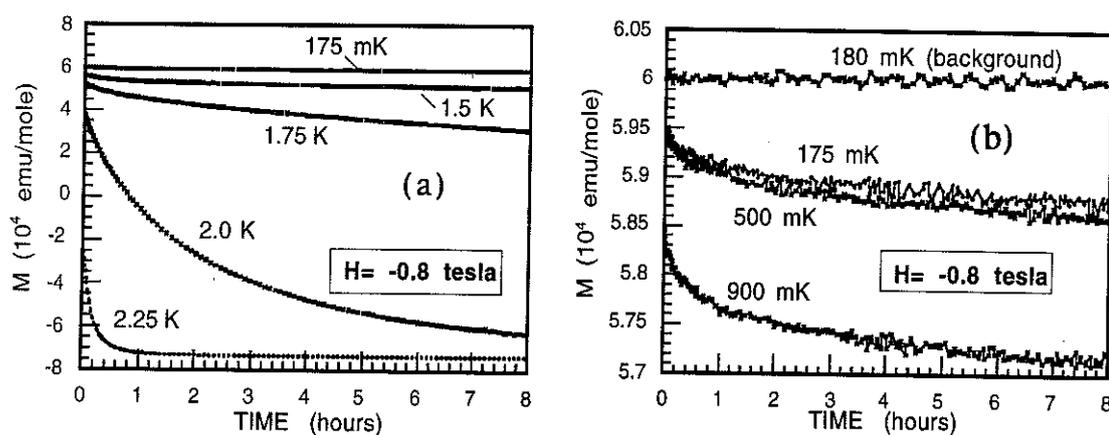


Figure 18 - Mesures de aimantation en fonction du temps à différentes températures pour Mn_{12} . D'après C. Paulsen et al. [Pau,1994].

A partir d'un ajustement fait sur les courbes de relaxation ci-dessus, on trouve la dépendance en température du temps de relaxation $\tau(T)$. La valeur de τ_0 a été trouvée à partir de cette courbe et est égale à $2,1 \cdot 10^{-7}$ s. Remarquons qu'une telle valeur est plus élevée que celles rapportées dans la littérature (entre 10^{-10} à 10^{-12} s). Selon J. Villain, pour le régime thermique cette différence correspond au passage de l'état $S_z = -10$ à $S_z = +10$ en passant par tous les niveaux intermédiaires, $-9, -8, \dots, 0, \dots, 8, 9$ [Vil,1994]. Ce processus est intrinsèquement lent et par conséquent ceci fait augmenter τ_0 .

A la vue de la figure 18b on observe qu'aux basses températures la dépendance en température de $\tau(T)$ devient très faible; voir par exemple 175 et 500 mK sur la figure 18b. Nous avons présenté sur la figure 19 les valeurs mesurées du temps de relaxation τ en fonction de la température. Pour des raisons de présentation, ce temps τ est exprimé comme $(\log(\tau/\tau_0))^{-1}$ et qu'à partir de la loi d'activation thermique cela est égal à T/E . Remarquons que cette dépendance linéaire en température est observée à haute température, où l'on vérifie que l'aimantation relaxe par activation thermique. Cependant, au-dessous de 2 K la relaxation mesuré ne varie presque pas avec la température. Ce comportement est attribué à la relaxation de l'aimantation par effet tunnel comme le prévoit la théorie (par

exemple H. Grabert et al. [Gra,1984] et aussi comme cela a été mesuré pour des jonctions Josephson (voir figure 4).

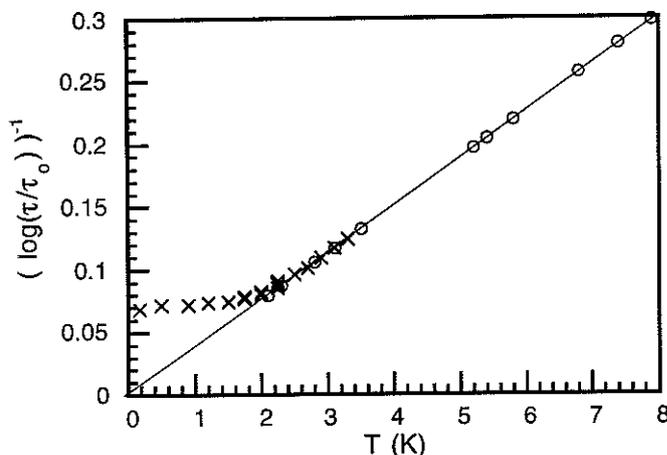


Figure 19 - Temps de relaxation en fonction de la température pour Mn_{12} . La ligne droite correspond à une relaxation par activation thermique. Les points (X) et (O) ont été mesurés sur différents systèmes de mesures. D'après C. Paulsen et al. [Pau,1994].

Bien que Mn_{12} soit un système microscopique, il semble clair que l'aimantation relaxe par effet tunnel au-dessous de 2 K. Néanmoins, il est souhaitable de faire les mêmes analyses en augmentant la taille et de la parité de spin de la particule (par exemple : Mn_{14} , Mn_{25} , ...) pour qu'une cohérence globale de tous les résultats soit vérifiée.

D'après l'analyse des expériences décrites ci-dessus aussi que l'étude des effets classiques développés dans cette thèse (où nous avons mis en évidence l'importance de la fonction de distribution d'énergie sur des mesures de relaxation de l'aimantation) nous considérons que le système le plus adapté pour l'observation de l'effet tunnel de l'aimantation à l'échelle macroscopique est celui composé d'une seule petite particule.

Un tel type d'expérience est en train d'être développée par W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit et B. Barbara dans les laboratoires du CNRS de Grenoble (CRTBT, Louis Néel et le L2M à Bagnex). La particule à mesurer est déposée sur un micro SQUID-DC (voir la figure ci-dessous). Nous présentons sur la figure 21 l'une de leurs mesures; un cycle d'hystérésis à 200 mK pour une seule particule de ferrite de Baryum [Wer,1994]. Jusqu'à présent les tailles de particules sont encore un peu trop grandes (environ 1000 Å) mais des progrès très rapides se font dans cette direction. Les résultats les plus récents *suggèrent* l'existence d'effet tunnel de l'aimantation à échelle macroscopique (10^6 spins de Co).



Figure 20 - Photo d'un SQUID-DC avec une particule de Ni ($100 \times 80 \times 30 \text{ nm}^3$). D'après W. Wernsdorfer.

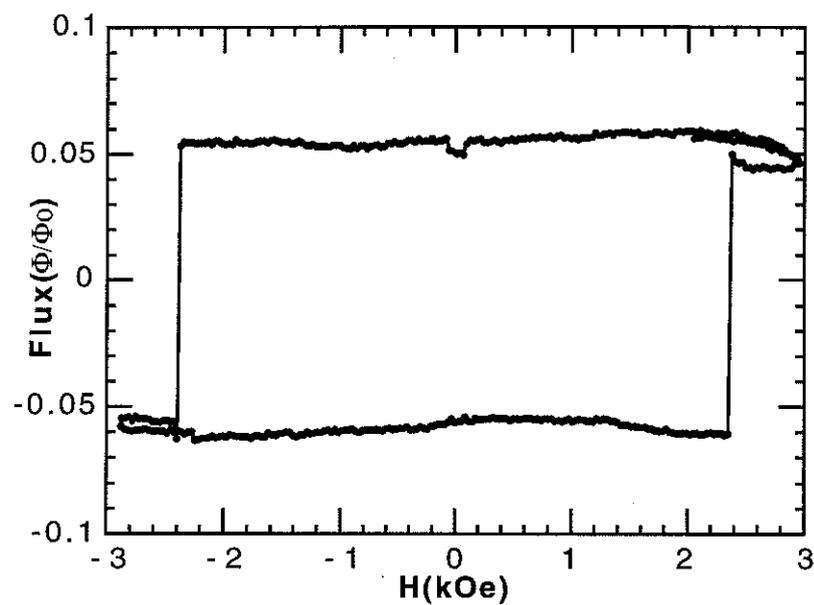
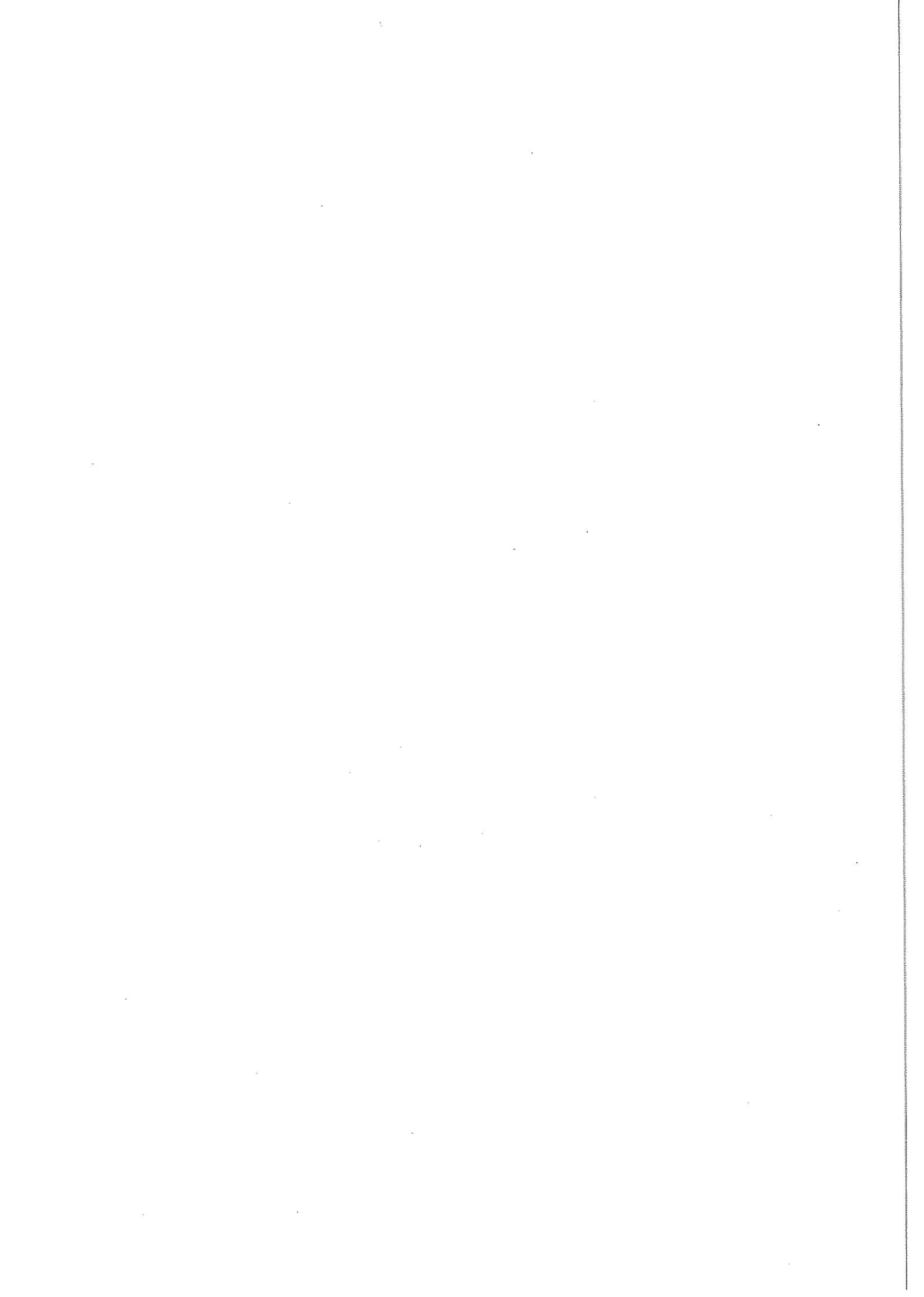


Figure 21 - Cycle d'hystérésis mesuré à 200 mK sur une seule particule de ferrite de Baryum d'un diamètre entre 140 et 600 Å [Wer,1994]. ϕ est le flux mesuré et ϕ_0 un quantum de flux.



Chapitre 4

Présentation et discussion des résultats expérimentaux sur des petites particules non orientées de ferrite de Baryum

Ce chapitre constitue une mise en évidence expérimentale du modèle développé dans le chapitre 2, où les distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$ sont prises en compte pour le calcul de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ et de la viscosité (ou traînage) magnétique $S(H,T)$. Dans ce modèle, il n'a été considéré que l'activation thermique comme force motrice responsable de la relaxation de l'aimantation. Etant donné qu'aux basses températures l'aimantation peut, en principe, relaxer aussi par effet tunnel, la prise en compte de ce modèle est d'une extrême importance. Nous présentons ici, les résultats expérimentaux sur une assemblée de petites particules *non orientées* de ferrite de Baryum, et les comparons aux prédictions du modèle.

4.1 - Particules de ferrite de Baryum non orientées

Ces dernières années, le ferrite de Baryum ($\text{BaFe}_{12-2x}\text{Co}_x\text{Ti}_x\text{O}_{19}$) a été très étudié en raison du potentiel qu'il représente pour l'enregistrement magnétique de haute densité. Les nombreux travaux réalisés sur ces ferrites concernent notamment les méthodes de préparation, les propriétés structurales, et surtout les propriétés magnétiques à haute température [Koj,1982]. Le ferrite de Baryum a une structure hexagonale compacte (HCP) avec les paramètres de maille $a=5,88 \text{ \AA}$ et $c=23,2 \text{ \AA}$. Sa structure magnétique est ferrimagnétique avec un moment magnétique de $20 \mu_B$ par maille. La température de Curie est de 720 K et il n'existe pas de température de compensation [Koj,1982].

Les échantillons sur lesquels nous avons travaillé ont été préparés par la méthode de cristallisation vitreuse ("glass crystallisation") par O.Kubo chez Toshiba au Japon [Kub,1987]. Les particules ont la forme de plaquettes hexagonales, et la direction de facile aimantation est perpendiculaire au plan des plaquettes. La fonction de distribution de diamètre a été caractérisée par microscopie électronique à transmission (TEM). Cette distribution est log-normale avec un diamètre moyen de 317 \AA et un écart type de $0,2$ (140 \AA). Les diamètres minimum et maximum observés sont respectivement 140 et 600 \AA . Le rapport diamètre-épaisseur est pratiquement indépendant de la taille et vaut $2,2$. Sur la figure 1, nous présentons cette fonction de distribution. Remarquons que ces particules sont des monocristaux et n'ont pas de défauts à la surface. De plus, comme la ferrite est un

oxyde, nous n'avons pas de problème d'instabilité d'ordre structural ou magnétique ni de problèmes d'oxydation. Cela est important étant donné qu'un échantillon composé de nombreuses particules a une très grande surface.

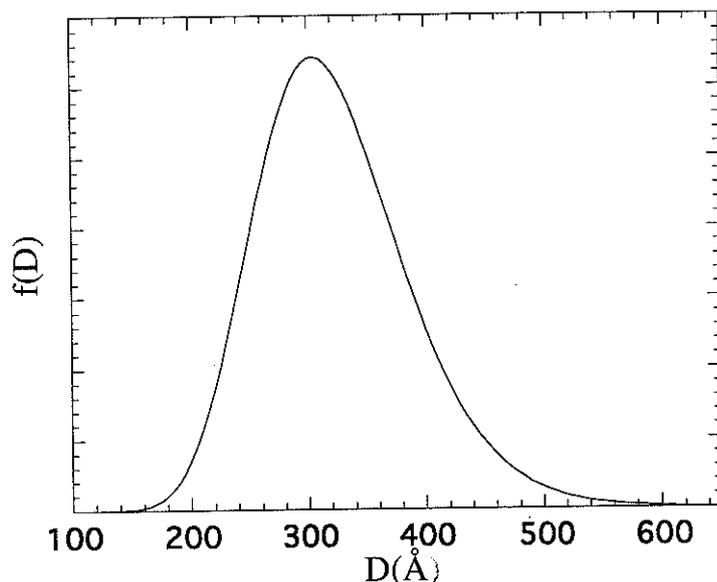


Figure 1 - Fonction de distribution de diamètre de particules de ferrite de Baryum déterminée par microscopie électronique - Le diamètre moyen est de 317 Å et la largeur à mi-hauteur est 140 Å.

Une deuxième distribution qui caractérise notre assemblé de particules est la distribution d'orientation ou de champ de retournement $v(H_0)$. Nous savons que le cycle d'hystérésis mesuré avec un champ appliqué parallèle à la direction de facile aimantation de particules orientées est carré, parce que, toutes les particules ont la même valeur de champ de retournement H_0 . Bien sûr, dans ce cas où il n'existe pas de distribution de champ de retournement $v(H_0)$, la dérivé de l'aimantation par rapport au champ ($\partial M/\partial H$) donne un pic très étroit. Par contre, pour des particules désordonnées (non orientées), la dérivé ($\partial M/\partial H$) est élargie, tout en restant plus ou moins symétrique par rapport au champ de retournement moyen H_{om} . Ce comportement est illustré sur la figure 2, où nous représentons la dérivé ($\partial M/\partial H$) mesurée à 4,2 K pour des particules orientées et non orientées. Sur la figure 3, on représente le cycle d'hystérésis à 4,2 K pour les particules non orientées.

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, pour retourner l'aimantation d'une particule à très basse température il faut appliquer un champ magnétique égal à son champ de retournement H_0 . Si l'on considère que le retournement de l'aimantation d'une particule est un événement indépendant du retournement des autres particules, le cycle d'hystérésis est égal à la superposition des cycles correspondant à chaque particule; plus il y a des particules avec un certain H_0 , plus l'aimantation totale varie et plus la dérivée ($\partial M/\partial H$) pour cette valeur de H_0 est grande. Cela nous permet de voir une relation entre la dérivé de

l'aimantation par rapport au champ ($\partial M/\partial H$) et la distribution de champ de retournement $v(H_0)$. Plus précisément, considérons un ensemble de particules avec une distribution de champ de retournement $v(H_0)$ et qui est soumis, à zéro Kelvin, à un champ H . Une variation ΔH du champ appliqué provoquera le retournement de toutes les particules dont le champ de retournement H_0 est de l'ordre de H . La variation correspondante d'aimantation est $\Delta M = v(H_0)\Delta H$, qui donne $v(H=H_0) = (\partial M/\partial H)_{T=0}$. Sur la figure 2, on voit que la demi-largeur Δ de la distribution $v(H_0)$, est égal à environ 1000 Oe pour les particules non orientées et à 35 ± 5 Oe pour celles orientées.

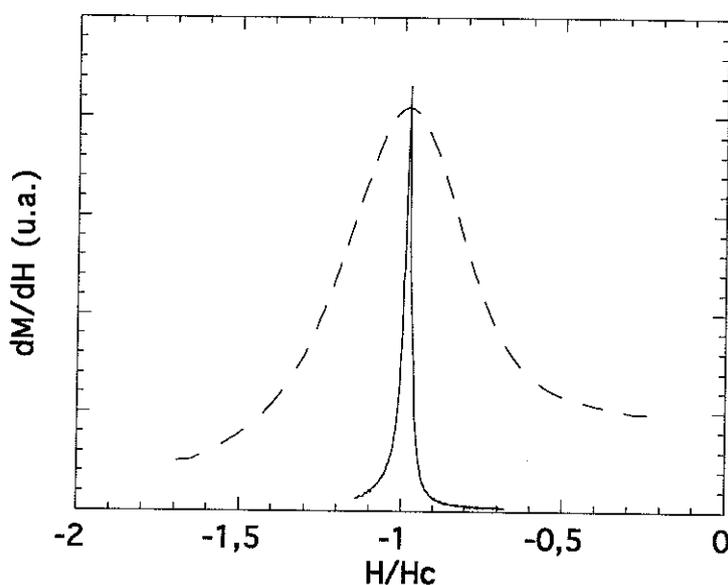


Figure 2 - Dérivée de l'aimantation par rapport au champ mesurée à 4,2K pour des particules de ferrite de Baryum orientées (—) et non orientées (- -). Le champ est normalisé par le champ coercitif. L'échelle de dM/dH est arbitraire.

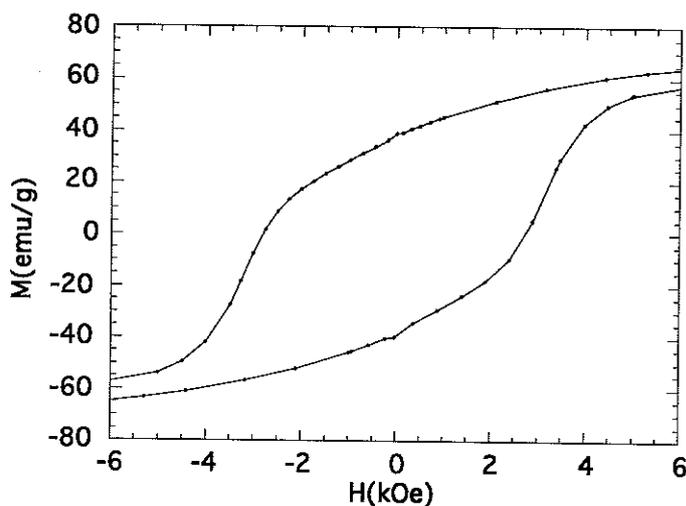


Figure 3 - Cycle d'hystérésis mesuré à 4,2 K sur les particules non orientées et ayant servi à obtenir la courbe en pointillé de la figure 2. (Pour des particules orientées un tel cycle sera montré par la suite - section 5.1).

Avant d'aller plus loin dans la discussion des résultats, il est intéressant de faire quelques commentaires concernant le rapport entre le processus de retournement de l'aimantation d'une petite particule et la barrière d'énergie associée. Au sein de l'équipe, R. Ferré [Fer,1994] est en train d'effectuer des calculs micromagnétiques sur ces particules. Deux points sont à remarquer à partir de ses résultats : i) Pour les cycles d'hystérésis calculés, l'aimantation reste à sa valeur de saturation jusqu'au champ de retournement. Après le retournement, l'aimantation atteint sa valeur de saturation négative. ii) Pour des taille de particule plus petites que l'épaisseur de parois, le retournement est cohérent. D'autre part, pour des taille juste en dessus, le retournement n'est plus cohérent et se déclenche à partir du bord de la particule.

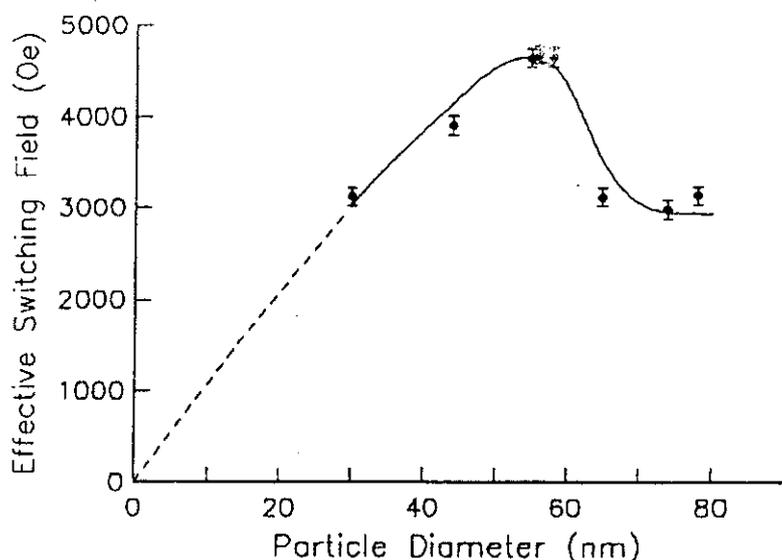


Figure 4a - Champ de retournement en fonction de la taille mesuré à la température ambiante pour une seule particule de ferrite de Baryum dopée. D'après T. Chang [Cha,1993].

En vue de voir de façon plus détaillée les configurations de spins d'une seule particule, nous présentons des mesures du champ de retournement en fonction de la taille à la température ambiante pour *une seule particule* (figure 4a) et pour un ensemble de particules ayant une fonction de distribution de volume très étroite (figure 4b). Nous nous attendons à ce que, pour une rotation de l'aimantation uniforme ou cohérente, le champ de retournement ne dépend pas de la taille. A l'inverse, si le retournement n'est pas uniforme le champ de retournement doit décroître lorsque la taille de la particule augmente [Aha,1959] (voir figure 4c). A la vue des figures 4a et 4b, nous observons un changement de régime pour le retournement de l'aimantation. Les deux régimes sont séparés par un maximum, le retournement est uniforme pour les petites dimensions et non uniforme pour les grandes dimensions. En fait, les valeurs du champ de retournement ne sont pas constantes au-dessous d'environ 550 Å (fig. 4a) et 1000 Å (fig. 4b), partie qui correspond au retournement uniforme, car l'expérience a été faite à la température ambiante. Dans ce cas,

les particules plus petites deviennent super-paramagnétique, et donc le champ de retournement diminue.

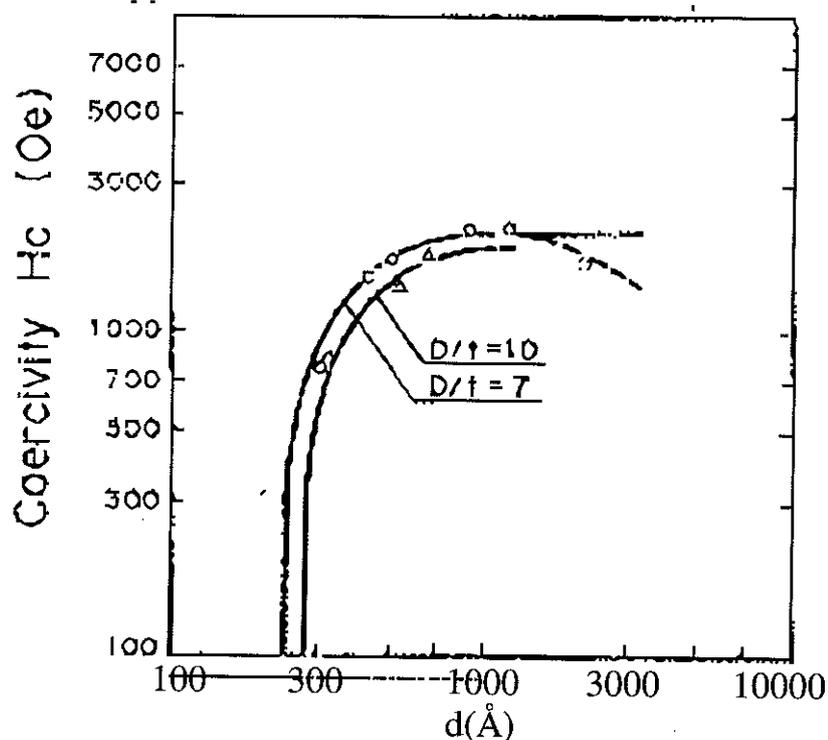


Figure 4b - Champ de retournement en fonction de la taille mesuré à la température ambiante pour des particules de ferrite de Baryum dopée. D/t est le rapport largeur-épaisseur. D'après O. Kubo [Kub,1985].

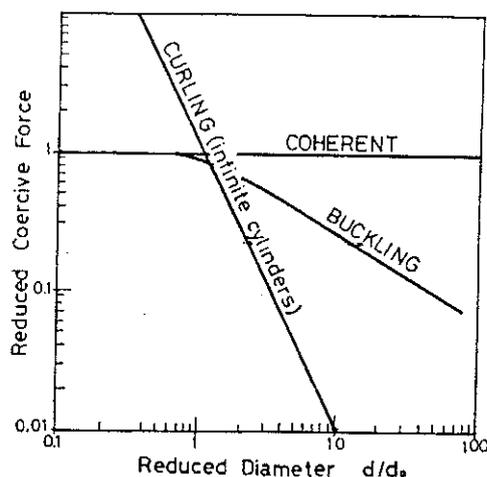


Figure 4c - Dépendance attendue du champ de retournement en fonction de la taille de la particule. d_0 est un diamètre critique au delà duquel l'aimantation se retourne de façon non cohérente. Pour une rotation cohérente, le champ de retournement ne dépend pas de la taille.

Nous présentons sur la figure 5, la mesure du champ de retournement en fonction de l'angle entre le champ appliqué et la direction de facile aimantation pour *une seule particule*. Cette mesure pour une particule de 550 Å de diamètre et avec un rapport diamètre-épaisseur de 2,4 (figure 5b), correspond bien à un retournement uniforme comme

le prévoit le modèle de Stoner-Wohlfarth [Sto,1948]. Selon ce modèle, le champ de retournement est égal à H_a pour θ égal à zéro ou $\pi/2$, et a un minimum ($1/2 H_a$) pour θ égal à $\pi/4$. Par contre, pour des plus grosses particules et/ou plus grand rapport diamètre-épaisseur le retournement n'est plus uniforme (figure 5).

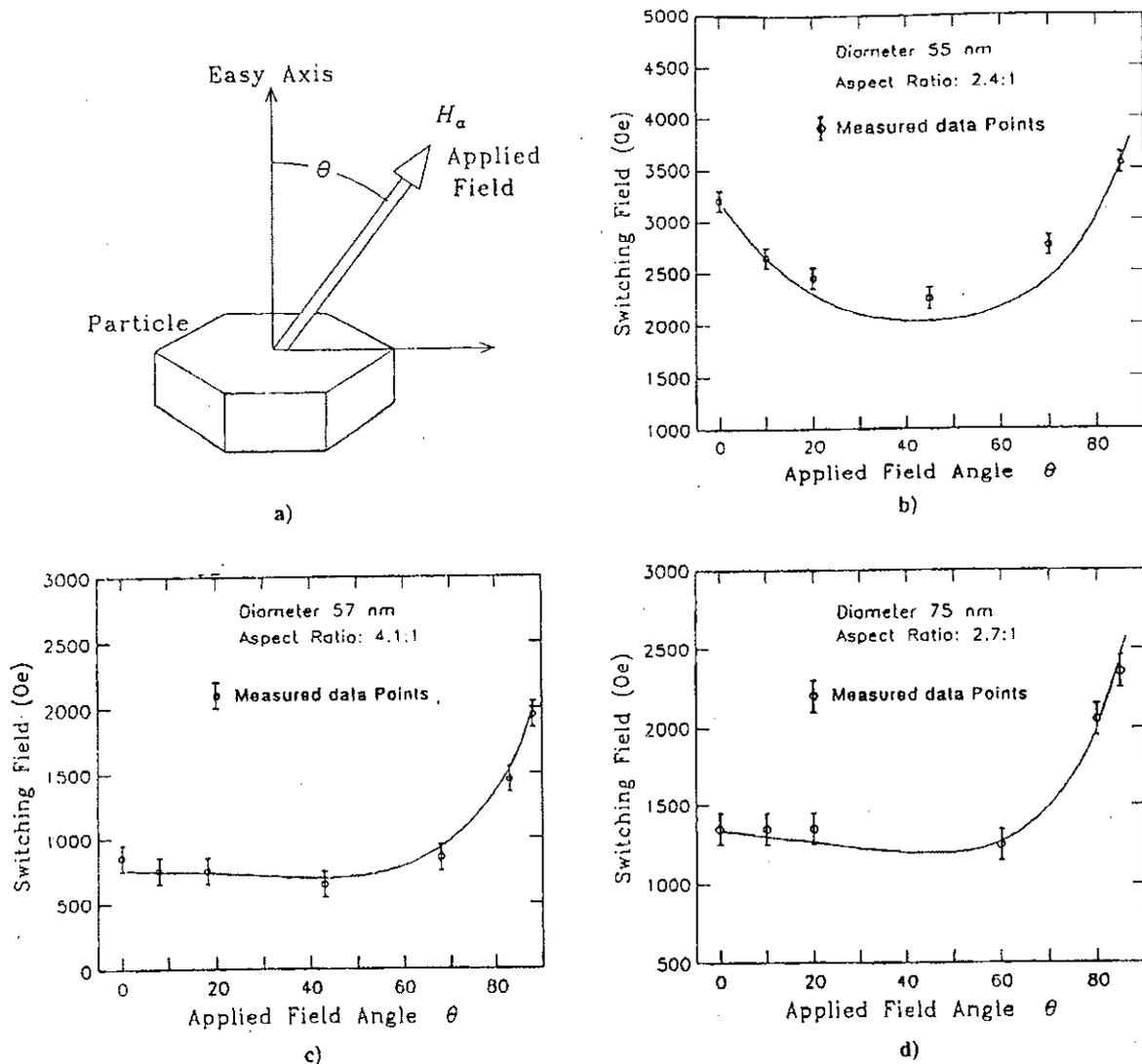


Figure 5 - Champ de retournement en fonction de l'angle. Mesure faite sur une seule particule. D'après T. Chang [Cha,1994].

Rappelons que pour les particules que nous avons étudiées, la fonction de distribution de taille correspond à des diamètres compris entre 140 et 600 Å et un rapport diamètre-épaisseur moyen de 2,2. Nous en concluons que pour nos particules, le retournement est quasi-uniforme et la barrière d'énergie est proportionnelle au volume, $E \propto K_{a,ef}V$ où $K_{a,ef}$ est la constante d'anisotropie effective ou totale, et V est le volume de la particule. Cette constante d'anisotropie effective diffère de celle du matériau en raison de la contribution du champ démagnétisant à l'intérieur de la particule. Elle est donnée par

$K_{a,ef} = H_a M_s / 2$ avec le champ d'anisotropie $H_a = 2K_a / M_s - N M_s$, où N est le coefficient de champ démagnétisant. Comme nous allons le voir par la suite, en considérant que le retournement de l'aimantation est uniforme, la valeur de $K_{a,ef}$ qui s'ajuste le mieux aux mesures de viscosité magnétique en fonction de la température et du champ est de $1,3 \cdot 10^5$ erg/cm³. En prenant cette valeur d'anisotropie et pour une constante d'échange J de 10^{-7} erg/cm [Koj,1982], on trouve une largeur de paroi $\delta = \pi a (J/K)^{1/2}$, (a est la distance entre deux moments magnétiques) d'environ de 1000 Å, qui est effectivement plus grande que la taille des particules étudiées.

4.2 - Mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$

L'échantillon utilisé pour les mesures d'aimantation et de relaxation est composé des particules de ferrites de Baryum mentionnées ci-dessus, avec une masse de 0,28003 g. Les particules ont été comprimées dans le porte échantillon pour interdire toute rotation. Pour les mesures au dessus de 1,5 K, nous avons utilisé un magnétomètre à extraction, à flux continu d'He, et au dessous, nous avons utilisé un magnétomètre à SQUID contenant un réfrigérateur à dilution de petites dimensions (diluette) au CRTBT.

Pour les mesures de relaxation nous avons utilisé la procédure suivante : la température est d'abord stabilisée, on aimante l'échantillon à saturation, puis on lui applique un champ compris entre zéro et le champ de saturation négatif. Ensuite, on mesure l'aimantation au cours du temps $M(t)$ pendant environ une heure. Pour l'échantillon de ferrite de baryum non orientées nous avons utilisé un champ de saturation de 20 kOe, et des champs de mesure H égaux à -0,10, -1,69, -2,07, -2,20, -2,36, -2,59, -2,67 et -2,83 kOe. Pour chaque champ H , on a mesuré $M(t)$ pour plusieurs températures entre 1,5 et 300 K et quelques mesures entre 100 mK et 1,5 K.

Sur la figure 6a, nous présentons des courbes typiques de relaxation $M(t)$, et sur la figure suivante, un détail à basse température (3 K). Nous signalons que ces mesures sont très longues, et pour avoir une seule courbe de viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température, avec une trentaine de points, il faut environ 50 heures de mesure.

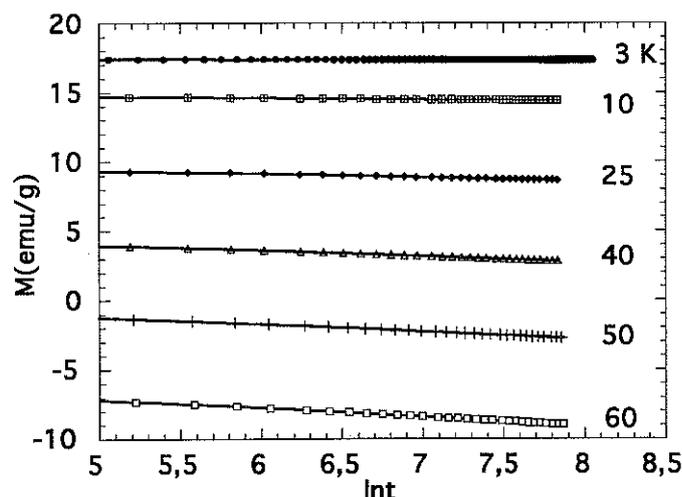


Figure 6a - Relaxation de l'aimantation mesurée à différentes températures pour un champ de saturation $H_s=20$ kOe et un champ appliqué de $H=-2,2$ kOe.

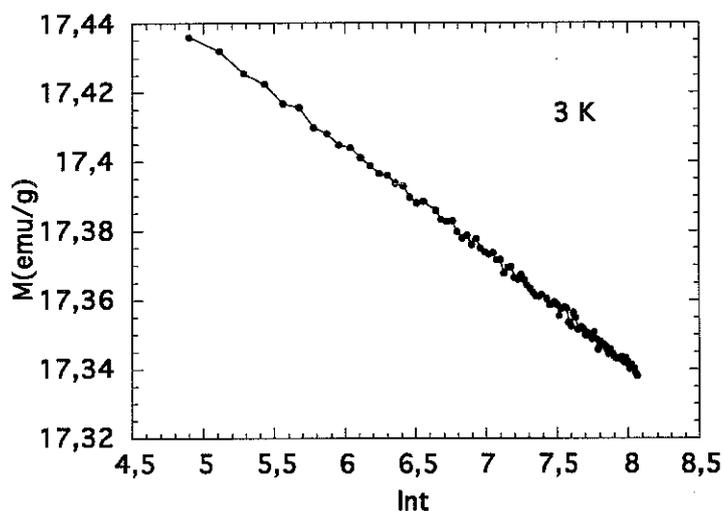


Figure 6b - Détail de la figure 6a, pour une température égale à 3 K.

La viscosité magnétique définie comme $S(H,T) \equiv dM/d \ln t$ mesure la vitesse de relaxation. Elle dépend du champ magnétique appliqué et de la température. Dans le but d'étudier le comportement général de $S(H,T)$, nous avons effectué de nombreuses mesures de relaxation, à savoir :

- i) $S(H,T)$ en fonction de la température pour plusieurs champs appliqués,
- ii) $S(H,T)$ en fonction du champ pour plusieurs températures,

Comme nous le savons, pour la limite $T \rightarrow 0$ le temps de relaxation τ donné par une loi d'activation thermique tend vers l'infini et la viscosité magnétique $S(H,T)$ doit s'annuler. Un comportement typique de $S(H,T)$ en fonction de la température pour notre échantillon - ferrite de Baryum ($D_m=317 \text{ \AA}$, $\sigma=0,2$ (140 \AA)) est présenté sur la figure 7. Une

remarque importante est à faire à la vue de cette figure : la valeur de $S(H,T)$ extrapolée pour la limite $T \rightarrow 0$ semble atteindre des valeurs non nulles. Dans la littérature, ce comportement est très souvent interprété comme une signature d'une relaxation dominée par l'effet tunnel. Comprendre ce comportement constitue la motivation principale de ce travail.

Tout d'abord, nous allons essayer de comprendre le comportement de $S(H,T)$ aux basses températures en considérant une relaxation par activation thermique, et en tenant compte des distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$. Nous avons récemment mis en valeur l'influence de la forme de la barrière d'énergie E et de la distribution effective des barrières d'énergie $f(E)$ sur la viscosité magnétique $S(H,T)$ [Bar,1992, Bar,1994, Sam,1994] (ces points sont détaillés dans les chapitres 1 et 2).

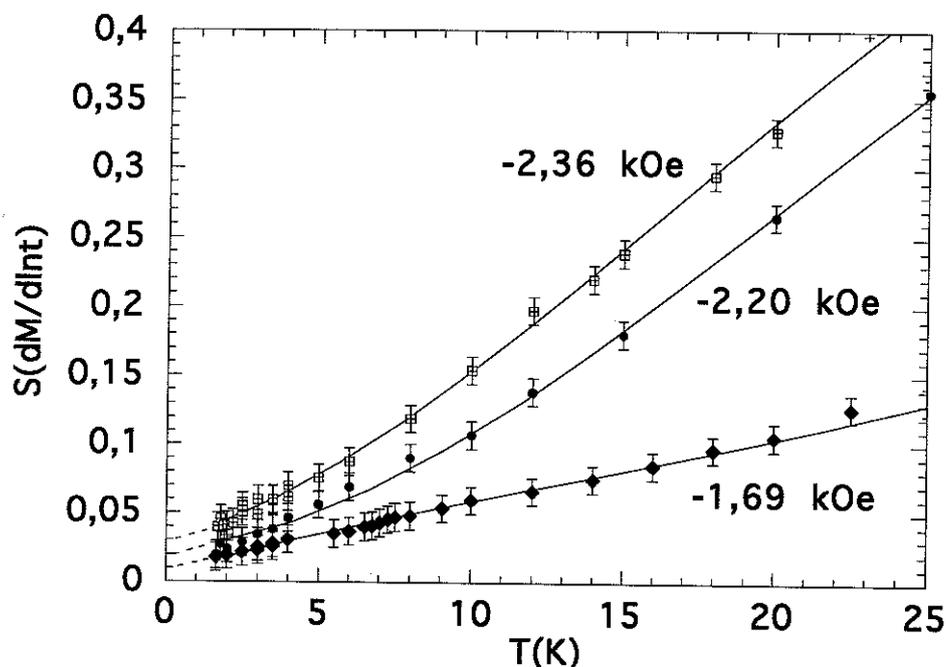


Figure 7 - Viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour $H = -1,69$ kOe, $-2,20$ kOe et $-2,36$ kOe pour des particules non orientées de ferrite de Baryum. Les lignes tracées servent juste pour de guide.

Nous avons montré au chapitre 2 (équation 6) que si l'on prend en compte les distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$, la viscosité magnétique $S(H,T)$ prend aux basses températures une dépendance en puissance : $S(H,T) \propto T^{1/\alpha}$. Il est extrêmement important de remarquer que la puissance α est la même puissance qui intervient dans l'expression de la barrière d'énergie $E \propto (1-H/H_0)^\alpha$, ce qui implique alors que la forme de l'expression de la barrière détermine le comportement de $S(H,T)$ aux basses températures. En pratique, lorsque les mesures ne sont pas effectuées à assez basse température, c'est cette dépendance en puissance qui fait que $S(H,T)$ semble atteindre des valeurs non nulles pour l'extrapolation à la température nulle.

Nous insistons sur le fait qu'il suffit de connaître la valeur de α pour savoir quelle forme prendra $S(H,T)$ aux basses températures. Pour des valeurs de α très grandes, $S(H,T)$ montrera un plateau, et bien sûr ira vers zéro dans la limite $T \rightarrow 0$. Dans ce cas, l'observation d'un plateau ne peut pas constituer une évidence de relaxation due à l'effet tunnel. Pour les petites particules, α doit valoir 2, si elles sont orientées (voir appendice 1 / chapitre 1) et 3/2 si elles ne sont pas orientées [Vic,1989] et $S(H,T)$ prend alors une forme proche de la racine carrée de la température.

Étant donné que les paramètres qui caractérisent les deux distributions $\rho(V)$ et $v(H_0)$ sont connus, nous pouvons calculer le comportement général de la viscosité magnétique $S(H,T)$. Sur la figure 8, il est présenté une courbe de $S(H,T)$ calculée d'après ce modèle (voir équation 5 / chapitre 2) pour un champ de $-2,07$ kOe. Nous avons pris 3400 Oe pour la valeur moyenne du champ de retournement H_{Om} et 750 Oe pour la largeur (Δ) de $v(H_0)$, et aussi ajustée une valeur pour la constante d'anisotropie égal à $1,3 \cdot 10^5$ erg/cm³. Celle-ci est tout à fait en accord avec la littérature. Observons un bon accord avec les points expérimentaux. Nous signalons que les paramètres ($H_{Om} = 3400$ Oe, $\Delta = 750$ Oe) qui caractérisent la distribution $v(H_0)$, sont très proches de ceux obtenus à partir d'un cycle d'hystérésis mesuré à basse température, à savoir ($H_{Om} \cong 3000$ Oe, $\Delta \cong 1000$ Oe, voir figure 3 et 2). Il est intéressant de remarquer que si l'on ne prend pas en compte la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ mais seulement celle de volume $\rho(V)$, les valeurs calculées sont très loin de celles qui ont été mesurées (figure 8).

Afin de voir l'allure de $S(H,T)$ en fonction de la température, nous portons sur la figure 9 les mesures de $S(H,T)$ en fonction de la température pour un champ fixe, depuis des basses températures jusqu'à des températures élevées. Comme nous l'avons signalé aux chapitres 1 et 2, le maximum observé est simplement donné par la distribution de volume $\rho(V)$ puisque $S(H,T) = k_B T \rho(V_c) / (1-H/H_{Om})^\alpha$ ($\alpha \approx 2$) où V_c est le volume vu dans la fenêtre d'observation ($V_c = k_B T \ln(t/\tau_0) / K_a (1-H/H_{Om})^\alpha$).

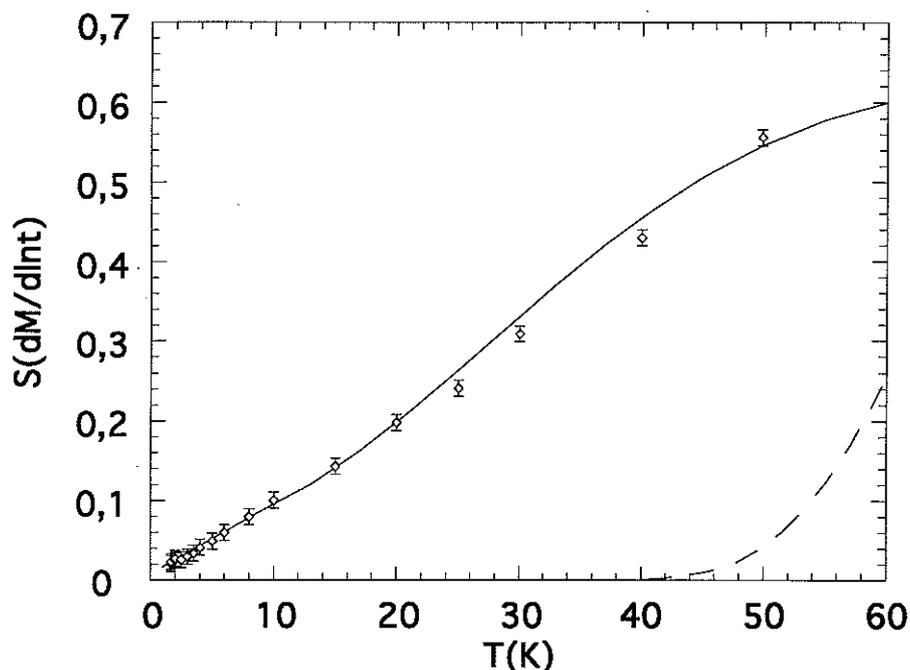


Figure 8 - La viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour $H=-2,07$ kOe. La ligne continue a été calculée en prenant en compte les distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$. La ligne pointillée a été calculée avec $\rho(V)$ seulement. Les symboles \diamond sont des points expérimentaux. Notons que $\rho(V)$ et $v(H_0)$ ont été déterminées indépendamment par TEM et à partir de $\partial M/\partial H$, respectivement.

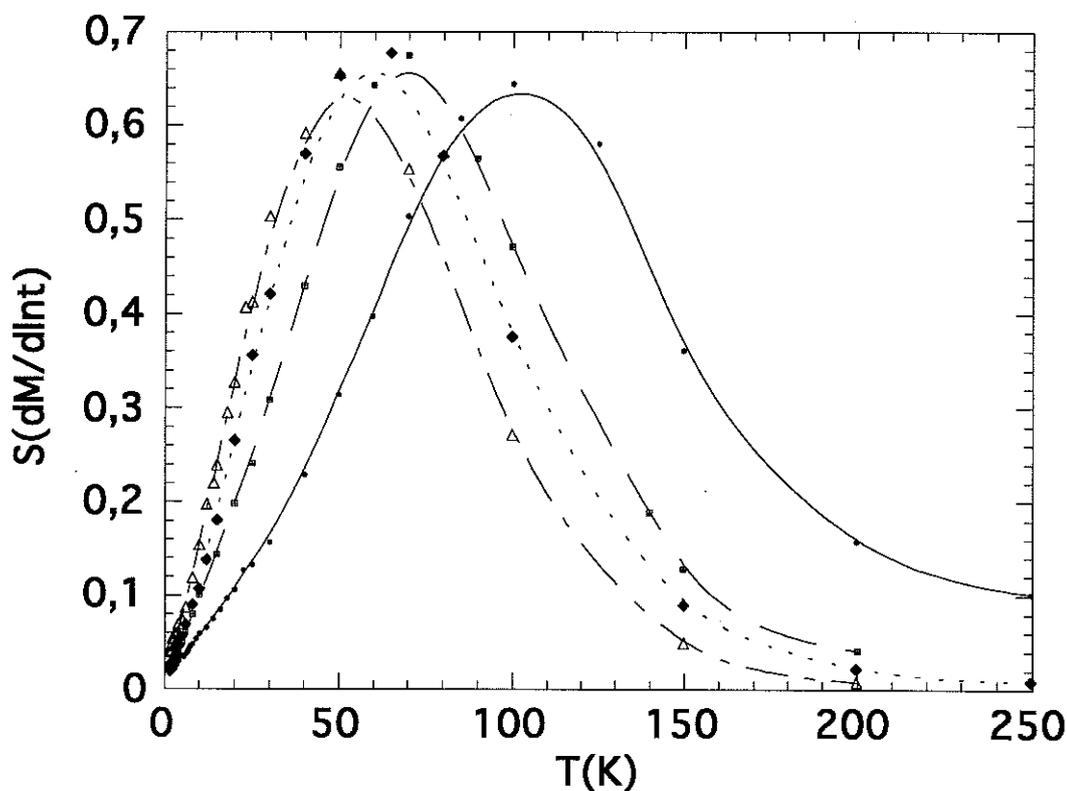


Figure 9 - $S(H,T)$ en fonction de la température pour des champs égaux à -1,69 kOe (—), -2,07 kOe (---), -2,36 (---), -2,59 kOe (-.-.). Les lignes tracées servent juste de guide.

vide

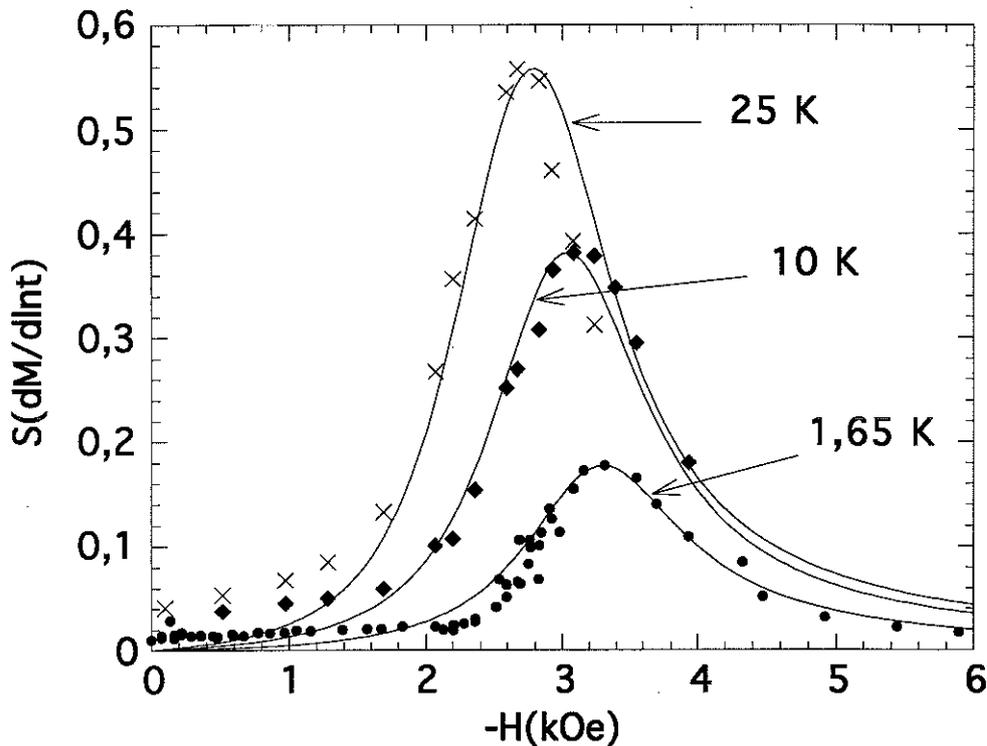


Figure 10 - $S(H,T)$ en fonction du champ à 1,65K (•), 10K (♦) et 25K (x). La ligne continue a été calculée en prenant en compte les distributions $\rho(V)$ et $v(H_0)$.

Nous présentons sur la figure 10, des mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction du champ pour différentes températures et les courbes calculées pour les mêmes températures. Là encore, nous avons pris en compte les deux distributions ($\rho(V)$ et $v(H_0)$) avec les mêmes paramètres utilisés pour le calcul de $S(H,T)$ en fonction de la température. La limite basse température montre que la courbe $S(H,T)$ se rapproche de $v(H_0)$ car il n'y a pas beaucoup d'activation thermique, et il faut alors atteindre le champ H_0 pour retourner l'aimantation d'une particule. Au fur et à mesure que la température augmente, l'activation thermique fait retourner l'aimantation pour des champs plus petits que H_0 . Nous observons un bon accord entre les courbes calculées et les points expérimentaux, sauf pour les plus petites valeurs du champ, comme nous allons le voir par la suite (section 4.7).

4.3 - Dépendance en température du champ coercitif $H_c(T)$

Le modèle développé au chapitre 2 nous a permis de calculer la dépendance en température du champ coercitif $H_c(T)$ à partir de la connaissance de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$. L'expression trouvée est donnée par,

$$H_c(T) = H_{om} [1 - BT^{1/\alpha}] . \quad (1)$$

avec $B = (K_B \ln(t/\tau_0) / K_a V')^{1/\alpha}$. Sur la figure 11, nous présentons un ajustement des points expérimentaux en utilisant l'équation ci-dessus. Nous observons un bon accord entre l'expérience et la courbe prévue par le modèle; les paramètres obtenus sont les suivantes : $H_{om} = 3,00$ kOe, $B = 0,027$ et $\alpha = 1,6$. Les valeurs de $H_c(T)$ ont été mesurées à partir de cycles d'hystérésis effectués sur un magnétomètre à extraction et sont définies par les valeurs de champ où l'aimantation s'annule. La vitesse de variation du champ est de l'ordre de 20 Oe/s.

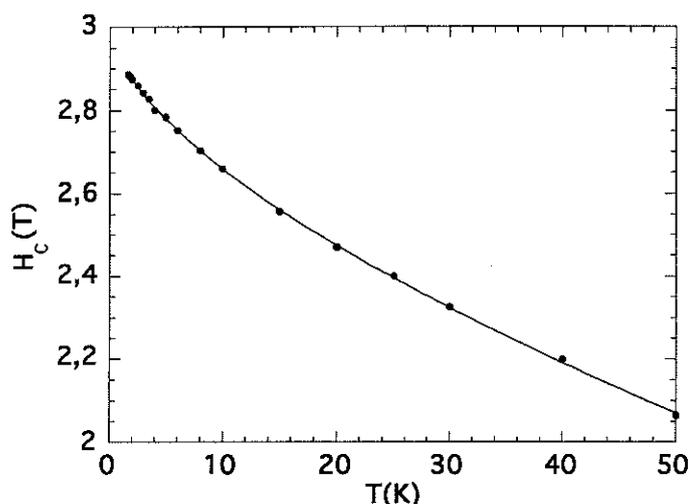


Figure 11 - Le champ coercitif $H_c(T)$ en fonction de la température. La ligne en traits pleins ajustée sur l'expression 1.

A partir du paramètre B , nous déduisons la valeur du diamètre correspondant au volume V' , comme étant égal à 277 Å. Celui-ci est plus petit que la valeur moyenne mesurée par microscopie électronique (317 Å) en raison de l'existence de la divergence de $f(E,H)$ aux basses énergies (voir section 2.5 / chapitre 2), qui décale la valeur moyenne de $f(E,H)$ vers les basses énergies.

4.4 - Dépendance en température du maximum de la viscosité magnétique $S_{Max}(H,T)$ obtenu à partir des courbes de $S(H,T)$

Jusqu'ici nous avons montré l'importance de la forme et le rôle de la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ sur la viscosité magnétique $S(H,T)$. Cependant, si on place la fenêtre d'observation sur *une même valeur* de $f(E,H)$, par exemple sur le maximum de $S(H,T)$ à haute température, on mesure la relaxation des particules dont le volume est proche du volume le plus probable. Alors, la forme de $f(E,H)$ ne joue aucun rôle, à l'exception des basses températures où la divergence de $f(E,H)$ est toujours présente. Remarquons que cette procédure a été quelques fois utilisée dans le but de se soustraire de la

forme de $f(E,H)$. En fait, la distribution de champ de retournement $v(H_C)$ si elle existe, celle-ci reste importante à basse température.

Nous avons calculé dans le chapitre 2 (équation 8) la dépendance en température de $S_{Max}(H,T)$. Ici H est un champ qui donne la valeur maximale de la viscosité magnétique mesurée en fonction du champ. Avec $B=(K_B \ln(t/\tau_0)/K_a V_m)^{1/\alpha}$,

$$S_{Max}(H,T) \propto T^{1/\alpha} - BT^{2/\alpha} \quad (2)$$

Il a été rapporté par S.B. Oseroff [Ose,1985 et Tob,1988] que pour des petites particules sur des bandes d'enregistrement magnétique, la mesure de $S_{Max}(H,T)$ donne une extrapolation non nulle pour la limite basse température. Plus tard, S.H. Charap [Cha,1988] puis R.H. Victora [Vic,1989] ont trouvé $S_{Max}(H,T)$ comme ayant un comportement en puissance, à savoir $S_{Max}(H,T) \propto T^{1/\alpha}$. Celle-ci diffère de l'expression (2), calculée par nous dans le modèle présent. Sur la figure 12a, nous présentons des points expérimentaux de $S_{Max}(H,T)$, et sur la figure 12b, nous mettons en évidence le terme en $T^{2/\alpha}$.

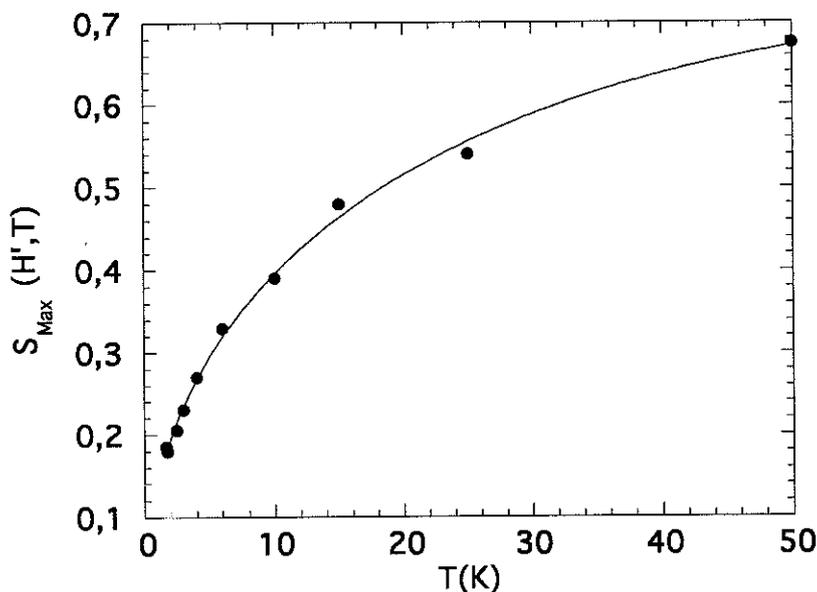


Figure 12a - Valeur maximale de la viscosité magnétique $S_{Max}(H,T)$ en fonction de la température mesurée pour des particules de ferrite de Baryum. La ligne continue représente la formule (2) avec les paramètres déduits sur la figure ci-dessous.

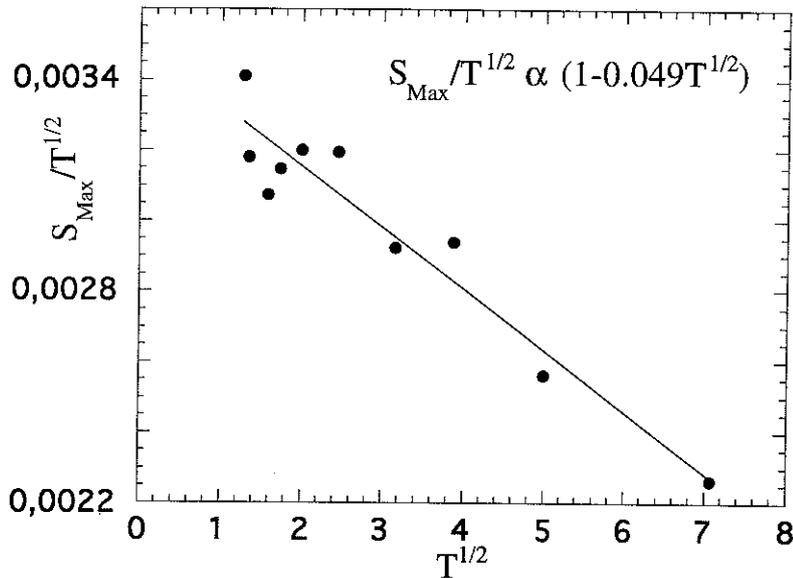


Figure 12b - Variation de $S_{Max}/T^{1/2}$ vs $T^{1/2}$ mettant en évidence la contribution en $T^{2/\alpha}$. La valeur trouvée pour α est égale à 2,0.

Nous pouvons évaluer la valeur du diamètre le plus probable D_m à partir de l'ajustement fait sur la figure 12b où la constante devant le terme $T^{2/\alpha}$ est égale à $(K_B \ln(t/\tau_0)/K_a V_m)^{1/\alpha}$. On en déduit que D_m est égal à 300 Å. Cette valeur est en bon accord avec le diamètre moyen obtenue par microscopie électronique (317 Å). Ainsi, la valeur trouvée pour α est égal à 2. A la vue de ces deux figures, nous observons un remarquable accord entre les points mesurés et l'expression 2 donné par notre modèle.

4.5 - Dépendance en champ de la température de blocage

La température de blocage T_B super-paramagnétique de l'assemblée de particules peut être obtenue à partir des mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$, en changeant la température et en permettant à $S(H,T)$ d'atteindre sa valeur maximale. D'après cette condition, la température de blocage peut être explicitée à partir de l'expression suivante: $E_c(t,T) = k_B T_B \ln(t/\tau_0) = K_a V_m (1-H/H_{Om})^\alpha$. On obtient alors $H = H_{Om} (1 - BT_B^{1/\alpha})$ avec B égal à $(K_B \ln(t/\tau_0)/K_a V_m)^{1/\alpha}$. Cette proportionnalité entre le champ appliqué et la température de blocage T_B est vérifiée sur la figure 13. Les valeurs de H_{Om} , B et α qui permettent le meilleur ajustement sont les suivantes : $H_{Om} = 4,1$ kOe, $B = 0,058$ et $\alpha = 2,005$. La valeur un peu élevée de H_{Om} sera discuté par la suite (jusqu'ici $H_{Om} = 3,4$ kOe), lors de la discussion de l'influence de l'interaction dipolaire sur la relaxation.

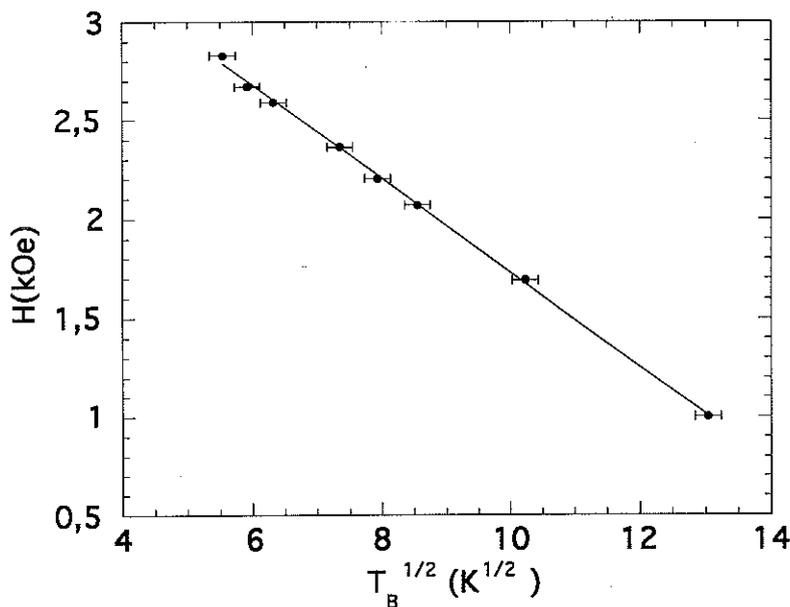


Figure 13 - Champ appliqué en fonction de la température de blocage.

Il faut remarquer que la ligne $T_B(H)$ donnée par la figure 13 n'est pas si triviale qu'elle le paraît. En effet, si l'on se place en champ $H \neq 0$, la barrière à double puits n'est pas symétrique et dans ce cas la droite représente un changement de régime entre deux régimes de relaxation. Ces régimes sont caractérisés par un taux de passage du puits du haut vers le puits du bas et vice-versa plus lent ou plus rapide que le temps de mesure (ou à la fenêtre d'observation) (voir figure 14). Le premier, correspond à la région au dessous de la droite (fig. 13), les deux taux de passage sont plus lent que le temps de mesure. Le deuxième régime, au dessus de la droite (fig. 13), correspond au taux de passage du puits du haut vers le puits du bas plus rapide et l'inverse plus lent que le temps de mesure. Dans ce cas, l'aimantation a tendance à se bloquer dans le puits du bas. *Remarquons que ce régime ne correspond pas au concept de superparamagnétisme habituel où l'aimantation fluctue entre les deux directions de facile aimantation plus rapidement que le temps d'observation.* Cependant l'état superparamagnétique devrait être observé à plus haute température, lorsque cette dernière sera suffisante pour compenser la différence les deux barrières. Comme la barrière vue par le système, lorsqu'il est dans le puits du bas, est $K_a V(1+H/H_0)^2$ (voir annexe 1), la dépendance en champ de la véritable température de blocage $T_B(H)$ devrait être: $H = T_B(H=0) (1+BT_B^{1/2})$. Nous schématisons ces trois régimes sur la figure ci-dessous.

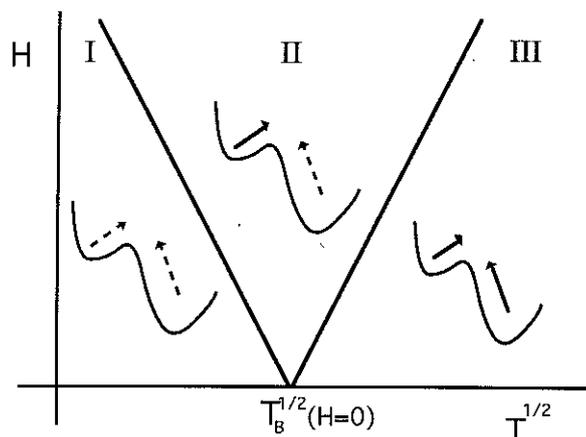


Figure 14 - Schéma des trois régimes décrits dans le paragraphe ci-dessus. La ligne pointillé signifie que temps de passage d'un puits à l'autre est plus lent que le temps d'observation. Par contre, la ligne continue signifie que ce temps est plus rapide que le temps d'observation.

4.6 - Mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ en dessous de 1,5K

Lors de la mise en évidence d'une relaxation de l'aimantation par effet tunnel, il est extrêmement important de mesurer la viscosité magnétique $S(H,T)$ à très basse température. Notre modèle qui ne prend en compte que l'activation thermique, montre non seulement la relation (2) pour S_{Max} , mais aussi il prévoit que la viscosité magnétique à un champ quelconque varie avec la température comme $S \propto T^{1/\alpha}$. Afin de vérifier aussi bien que possible cette expression, nous avons effectué des mesures de $S(H,T)$ jusqu'à 110 mK en champ faible et qui sont présentées sur la figure 15. Les cercles et les triangles correspondent à des montages expérimentaux différents. Clairement, nous observons d'après la courbe log-log, la dépendance de $S(H,T)$ en puissance avec la température, et la puissance α est ici trouvée égale à 2,4. Comme pour une telle dépendance, $S(H,T)$ s'annule à $T \rightarrow 0$, nous concluons que le processus de relaxation est dû à l'activation thermique, et que jusqu'à 100 mK *l'effet tunnel de l'aimantation n'est pas observé sur cet échantillon*. En revenant sur la figure 7, où les valeurs de $S(H,T)$ semblent atteindre des valeurs non nulles pour la limite $T \rightarrow 0$, nous pouvons maintenant conclure que ce comportement est un effet de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$. Ce comportement est probablement très général puisqu'il ne dépend pas de la forme de $v(H_0)$ mais seulement de son existence.

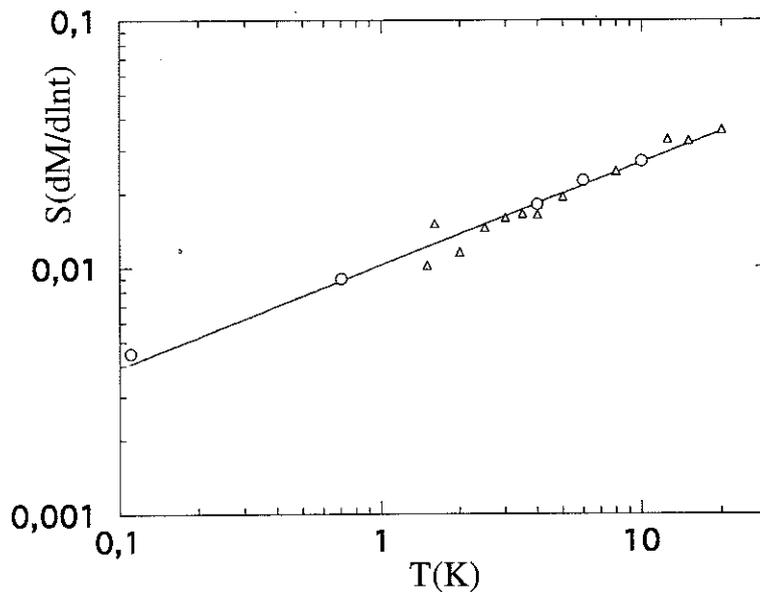


Figure 15 - $S(H,T)$ en fonction de la température pour un champ de $-0,1$ kOe. Les cercles et les triangles ont été mesurés avec des montages expérimentaux différents.

Jusqu'à présent, nous avons mis en évidence l'importance de la distribution du champ de retournement $v(H_0)$ sur la viscosité magnétique $S(H,T)$ avec le comportement en puissance, $S \propto T^{1/\alpha}$ aux basses températures. Nous nous sommes aussi intéressés à la valeur de la puissance α , car pour les petites particules, α dépend du degré d'orientation et peut aller de 2 et 1,5, respectivement pour les particules orientées et non orientées. Selon la méthode utilisée, nous avons trouvé différentes valeurs de α variant de 1,6 à 2,4, qui nous ne permettent pas de préciser la valeur de cet exposant ($\alpha = 2,0 \pm 0,4$). Pour résumer les valeurs de α trouvées par différentes méthodes, nous les présentons dans le tableau ci-dessous.

	α	gamme de T(K)
$H_C(T)$	1,6	$2 < T < 50$
$S_{Max}(\text{basse } T)$	2,0	$2 < T < 50$
T blocage(H)	2,0	$2 < T < 270$
$S(H \text{ faible, basse } T)$	2,4	$0,1 < T < 20$

Tableau 1 - Valeur de α obtenue par différentes méthodes, dans différentes gammes de températures.

4.7 - Détermination de la distribution $v(H_0)$ à partir des mesures de relaxation à basse température

Dans ce paragraphe nous allons aboutir à l'expression de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ à partir des mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ à basse température. Nous nous servons du fait que $S(H,T)$ prend une forme assez simple à basse

température. En prenant α égal à 2 (voir l'expression 6 / chapitre 2), on écrit $S(H,T)$ sous la forme,

$$S(H,T) = (k_B T)^{1/2} (\ln(t / \tau_0))^{-1/2} H v(H) \int_{v_c}^{\infty} \frac{\rho(V)}{2\sqrt{K_a V}} dV .$$

Nous remarquons à partir de l'expression ci-dessus que la dépendance en champ ne provient que de la forme de $Hv(H)$: on peut donc obtenir $v(H)$ simplement à partir des mesures de relaxation en traçant S/H en fonction du champ H . Ici $v(H)$ et $v(H_0)$ sont des fonctions identiques car aux basses températures le champ H nécessaire pour retourner l'aimantation d'une particule est égal à son champ de retournement H_0 .

En réalité, nous pouvons obtenir $v(H)$ par une loi d'échelle, si l'on prend aussi en compte la température; on trace alors : $S/HT^{1/2}$ en fonction du champ H . Sur la figure 16, nous représentons la distribution obtenue par cette loi d'échelle. Celle-ci ressemble bien à la distribution Lorentzienne que nous avons prise dans le modèle avec $H_{0m}=3400$ Oe et $\Delta=750$ Oe, à l'exception d'une remontée en champ faible. *Il est intéressant remarquer que les courbes de $v(H)$ obtenues à partir de $S/HT^{1/2}$ en fonction du champ se superposent bien pour les différentes températures entre 1,65 et 10 K.*

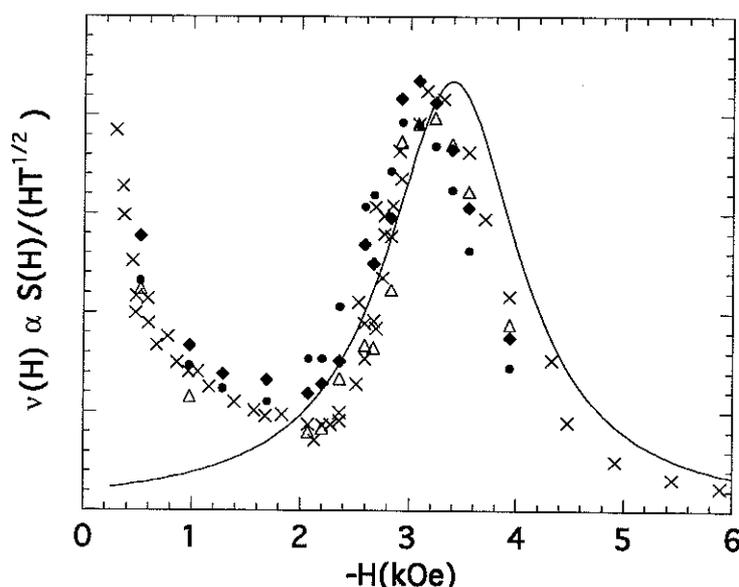


Figure 16 - La fonction $v(H_0)$ obtenue par la loi d'échelle $S/(HT^{1/2})$ en fonction du champ H aux températures suivantes : 1,65K (x), 2,5K (Δ), 6K (\blacklozenge) et 10K (\bullet).

Nous pouvons attribuer la remontée en dessous de 2 kOe au champ dipolaire qui devient prépondérant en champ appliqué faible. Le champ local H doit alors être la somme du champ appliqué et du champ démagnétisant local ($H=H_a + H_{dip}(M)$), qui dépend

de l'aimantation totale. Pour les mesures en champ appliqué inférieur à environ 1,5 kOe, la contribution de l'interaction dipolaire devient importante. Nous reviendrons sur ce point à la section 4.10.

4.8 - Détermination de la distribution $\rho(V)$ obtenue par des mesures de relaxation à haute température - Loi d'échelle en température et champ

Comme dans la section précédente, nous pouvons obtenir la fonction de distribution de volume $\rho(V)$ à partir des mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$. Pour cela, nous utiliserons le fait que la contribution de la distribution $v(H_0)$ sur la distribution effective de barrières d'énergies $f(E,H)$ devient négligeable à haute température. En effet, l'activation thermique doit être suffisamment forte pour donner des champs de retournement bien inférieurs à H_0 pour chaque particule. Ainsi, à partir de l'expression $f(E,H) \propto S/T = \rho(V)/(1-H/H_0)^2$ on voit que si H est très en dessous de H_0 , une variation de H_0 n'est pas importante dans le rapport H/H_0 et aussi dans l'expression de $f(E,H)$. La distribution $\rho(V)$ est donnée simplement par $(S/T) \cdot (1-H/H_0)^2$ (voir expression 8 / section 1.2). Signalons que la distribution $\rho(V)$ obtenue par cette méthode ne sera semblable à celle obtenue par microscopie que pour des grandes valeurs de volume, car cette méthode n'est valable que pour les grandes énergies.

La fonction $f(E,H)$ obtenue à partir des mesures de $S(H,T)$ pour plusieurs températures et champs appliqués est représentée sur la figure 17. Naturellement, les maxima se déplacent vers les basses énergies en raison de l'énergie Zeeman ajoutée. La divergence que nous observons sur $f(E,H)$ à basse température est due à l'existence de la distribution $v(H_0)$. Rappelons que dans la limite basse température, l'activation thermique n'est pas assez importante pour retourner l'aimantation d'une particule : pour ce faire, il faut appliquer un champ H très proche du champ de retournement H_0 . Nous avons alors dans la limite : $T \rightarrow 0$, $H \rightarrow H_0$ et cela fait diverger $f(E,H) (\propto \rho(V)/(1-H/H_0)^2)$, comme a été discuté dans la section 2.8.

Nous proposons la procédure décrite ci-dessus, qui consiste à tracer $f(E,H) \propto S/T$ pour obtenir la fonction de distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ pour un système quelconque. Dans le cas général, cette procédure peut nous permettre de prendre en compte l'effet d'interaction entre les particules ou encore l'échauffement lors de la relaxation [Fer,1994].

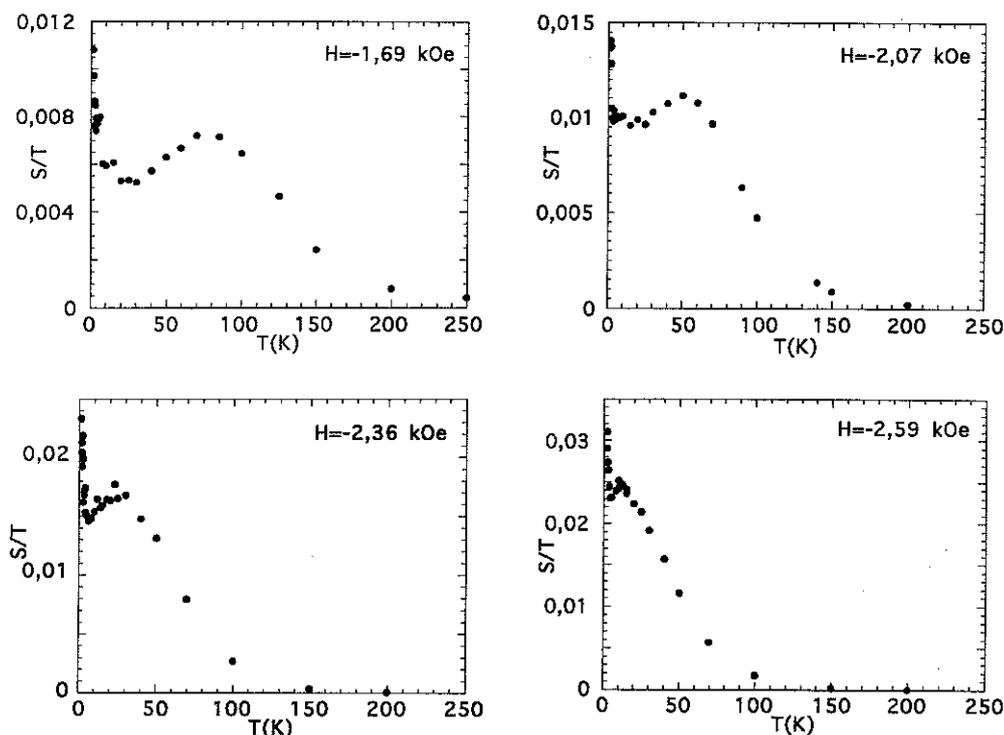


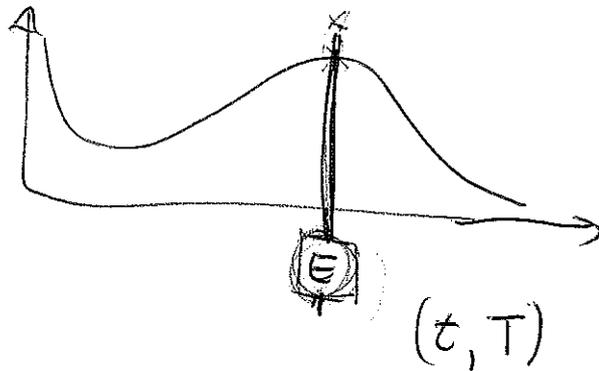
Figure 17 - $f(E) (\propto S/T)$ en fonction de la température (ou de l'énergie). L'échelle en température est la même pour les quatre graphiques.

Nous présentons sur la figure suivante (fig. 18) la distribution de $\rho(V)$ sous la forme d'une loi d'échelle où la température et le champ ont été également pris en compte. Nous avons mis sur la même courbe cinq mesures différentes de viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température, chacune pour un champ différent. Pour des raisons de simplicité, nous avons explicité cette distribution en fonction du diamètre D . Le diamètre des particules et leur distribution $\rho(D)$ sont données par $\rho(D) \propto S/T(1-H/H_{Om})^2$ et $(3^{1/2}D^3)/4 = k_B T \ln(t/\tau_0) / [K_a (1-H/H_{Om})^2]$. Comme le diamètre a été observée par microscopie électronique, nous avons supposée que les particules étaient hexagonales d'où un volume donnée par $(3^{1/2}D^3)/4$ (D est la distance entre deux arêtes de l'hexagone). Cependant, comme les particules peuvent être déformées par rapport à leur centre, et qu'il existe une incertitude sur τ_0 ($10^{-10} - 10^{-12}$ s), nous estimons la barre d'erreur comme étant à peu près de 15 Å, et on représente celle-ci en haut à droite sur cette figure (18).

Pour la distribution $\rho(D)$, il existe une divergence pour les petits diamètres pour la même raison que précédemment (la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$ diverge à cause de $v(H_0)$). *Il faut signaler que la divergence de $\rho(V)$ (ou de $\rho(D)$) apparaît sous une forme artificielle : elle ne représente pas une divergence du nombre des particules de plus petites taille.* En effet, nous savons à partir des mesures de taille par microscopie électronique qu'il n'existe pas de particules de diamètre inférieur à 140 Å. Les

$$S \propto T f(T \ln(t/t_0))$$

(i)



$$T \ln(t/t_0) = cte$$

$$\underline{S(T)} = T f\left(\frac{T \ln(t/t_0)}{cte}\right)$$

(cte)

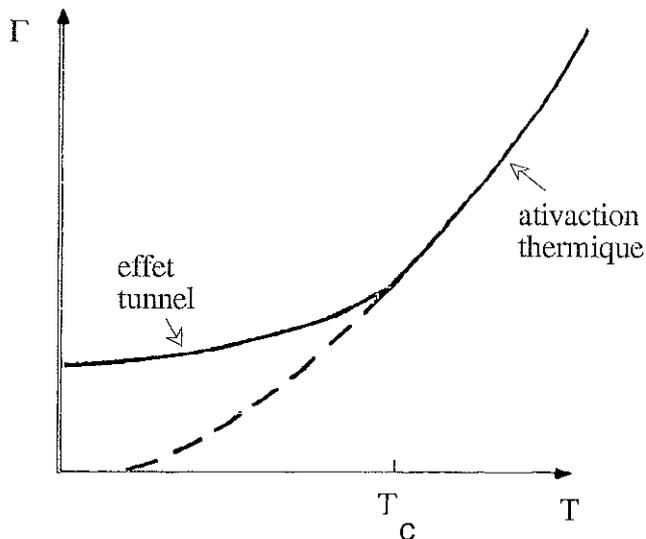
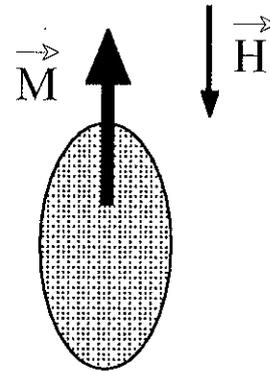
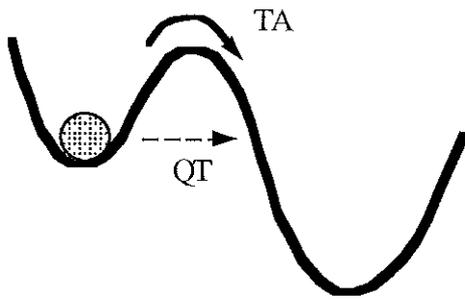
~~S_M~~ \Rightarrow f_{M} g.e.d. ~~cte~~

◆ Introduction

☞ étude des mécanismes de relaxation de l'aimantation à basse température.

◆ effet tunnel

◆ activation thermique



courbes continues ont été calculées en prenant différentes largeurs Δ de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$: $\Delta = 250, 750$ et 1000 Oe. Nous observons que la divergence disparaît lorsque l'on fait tendre Δ vers zéro. Pour la limite $\Delta \rightarrow 0$, nous retrouvons la distribution de volume, ce qui correspond à $f(E) \rightarrow \rho(V)$. Signalons que la fonction $\rho(V)$ obtenue à partir de cette procédure, donne aux erreurs expérimentales près, une distribution $\rho(V)$ semblable à celle obtenue par microscopie électronique représentée sur cette figure par la courbe pointillée. Il est très intéressant de remarquer qu'une loi d'échelle est vérifiée pour une large gamme de température et de champ.

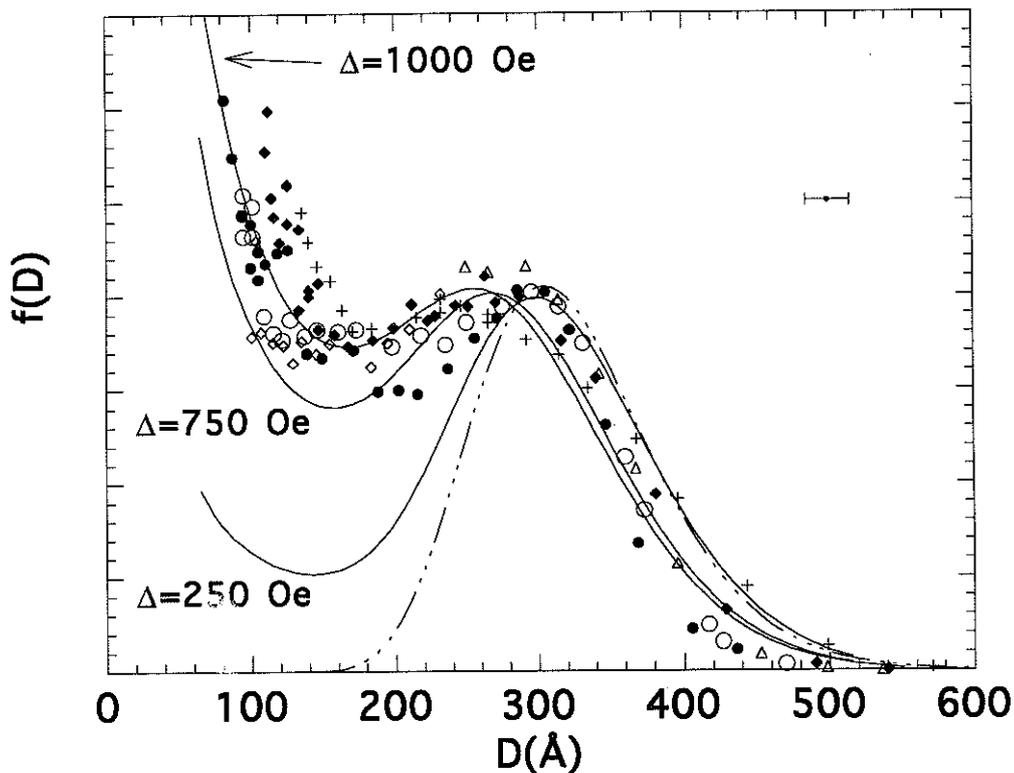


Figure 18 - Loi d'échelle obtenue à partir de mesures de viscosité en fonction de la température pour des champs différents : 1,69 kOe (O), 2,07 kOe (●), 2,20 kOe (◆), 2,36 kOe (◇), 2,59 kOe (+). Les courbes continues ont été calculées pour différentes largeurs Δ de la distribution $v(H_0)$. La courbe en pointillée représente la distribution $\rho(D)$ mesurée par microscopie électronique. Le symbole à droite en haut représente la barre d'erreur.

4.9 - Analyse critique du modèle

Jusqu'à présent, nous avons constaté qu'il existe un très bon accord entre l'expérience et le modèle développé, où nous avons pris également en compte la distribution de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$ pour un assemblé de petites particules. Comme nous l'avons vu dans la section 4.7, l'interaction dipolaire entre les particules

semble donner une contribution à la relaxation en champ faible. Dans cette section, nous discuterons brièvement l'influence de l'interaction dipolaire sur la viscosité magnétique $S(H,T)$.

Tout d'abord, nous présentons la dépendance de la "première" température de blocage T_B avec le champ magnétique appliqué H sur la figure 19. Comme nous l'avons déjà montré (section 4.5), le champ et cette température de blocage suivent l'expression : $H = H_{Om} (1 - BT_B^{1/\alpha})$; avec l'ajustement fait pour la partie linéaire, on trouve $H_{Om} = 4,11$ kOe, $B = 0,058$ et $\alpha = 2,005$. Nous attribuons la déviation observée à ce comportement linéaire, à la prédominance des interactions dipolaires en champ faible. En raisonnant en termes de champ moyen, nous prenons pour module du champ qui agissant sur une particule, $H = H_a - H_{dip}(M)$ où H_a est le champ appliqué et $H_{dip}(M)$ est le champ moyen due à l'interaction dipolaire. Le champ $H_{dip}(M)$ n'est autre que le champ de démagnétisant $\vec{H}_{dip}(M) \propto -\vec{M}$. Il est par conséquent en sens inverse de l'aimantation. En fait, étant donné qu'au cours des mesures de relaxation l'aimantation varie très peu, le champ $\vec{H}_{dip}(M)$ peut être considéré comme ayant une moyenne constante.

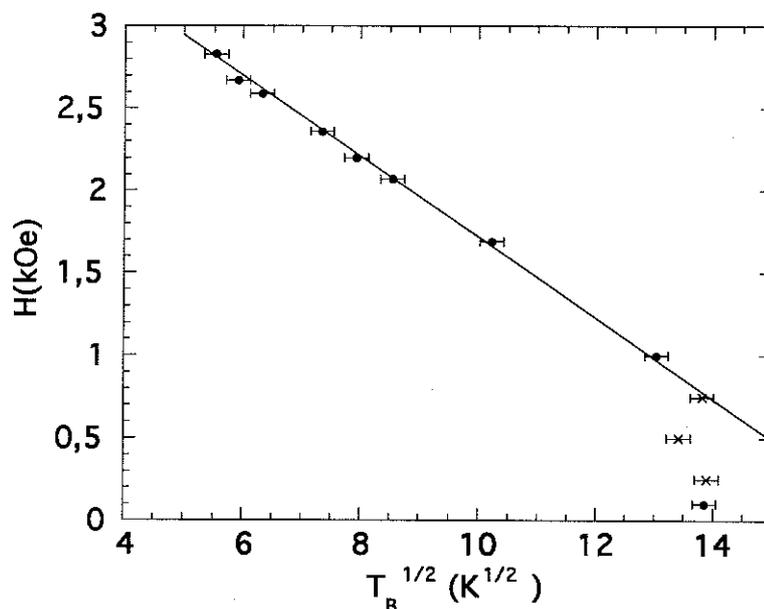


Figure 19 - Température de blocage T_B en fonction du champ magnétique appliqué H pour des petites particules de Ferrite de Baryum. Les points (•) et (x) ont été mesuré sur des montages expérimentaux différents.

Nous évaluons le champ $\vec{H}_{dip}(M)$ a peu près à la valeur du champ où il existe un changement de régime, vers 0,75 kOe. Si on insère cette valeur dans l'expression du champ total dans la dans l'expression de $T_B(H)$, on trouve : $H = (H_{dip}(M) + H_{Om}) - H_{Om}BT_B^{1/\alpha}$. Nous pouvons réécrire cette dernière comme $H = H'_{om} - H_{Om}BT_B^{1/\alpha}$ avec $H'_{om} = H_{dip}(M) + H_{Om}$. Etant donnée que le champ

d'interaction est d'environ 0,75 kOe, et que H_{Om} est égal à 3,4 kOe, nous avons H'_{om} égal à 4,15 kOe. A partir de l'extrapolation linéaire vers $T_B \rightarrow 0$, nous trouvons H'_{om} égal à 4,11 kOe, qui est en bon accord avec l'évaluation qui tient en compte de l'interaction dipolaire. Ainsi, la distribution de champ de retournement $v(H_O)$ obtenue par des mesures de $S(H,T)$ à basse température montre qu'en champ faible, nous devons prendre en compte le champ moyen due à l'interaction dipolaire.

Etant donné qu'au cours des mesures de relaxation magnétique la variation de l'aimantation n'est pas importante, le champ total agissant sur une particule est constant et différent de celui appliqué. Nous concluons que l'effet principal de l'interaction dipolaire entre les particules revient tout simplement à changer le champ vu par chaque particule et par conséquent la barrière d'énergie associée. Le modèle présenté reste alors valable.

Par ailleurs, on peut se demander si le comportement prévu par notre modèle, pour la viscosité magnétique $S(H,T)$ aux basses températures, qui est effectivement observé pour des petites particules de ferrite de Baryum, reste valable pour toutes les tailles ou types de particules. Cette question revient à celle de la validité de l'expression de la barrière d'énergie d'une particule, à savoir $E=K_a V(1-H/H_O)^\alpha$ avec $\alpha \cong 2$. Il est vrai que pour de grosses particules monodomaines (en champ nul) le processus de retournement de l'aimantation n'est pas uniforme ou cohérent, et par conséquent l'expression de la barrière montrée ci-dessus n'est plus valable.

En gros, plus la parois est étroite par rapport à la taille de la particule, moins le retournement de l'aimantation est uniforme *plus la barrière d'énergie associée est petite*. Dans ce cas là, d'une assemblée de particules, même en connaissant la distribution de volume $\rho(V)$, nous n'avons pas accès à la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$. *Ainsi, le retournement doit être particulièrement sensible aux défauts (eg. impuretés, défauts de surface) et la distribution $f(E,H)$ est large et souvent déplacée vers les basses énergies*. Par contre, pour des petites particules le retournement de l'aimantation est uniforme et la barrière d'énergie associée est donnée par $E=K_a V(1-H/H_O)^\alpha$ avec $\alpha \cong 2$. Naturellement, il existe un seuil pour le volume où au-dessous duquel la barrière d'énergie associée au processus de retournement suit l'expression mentionnée ci-dessus. Cette taille critique est caractéristique des dimensions, forme et nature du matériau qui forme la particule.

Nous *schématisons* sur la figure 20, les distributions $\rho(V)$ et $f(E,H)$, aussi que la viscosité magnétique $S(T,H)$ qui en résulte pour un ensemble de particules orientées au hasard au-dessous et au-dessus de cette taille critique V_c .

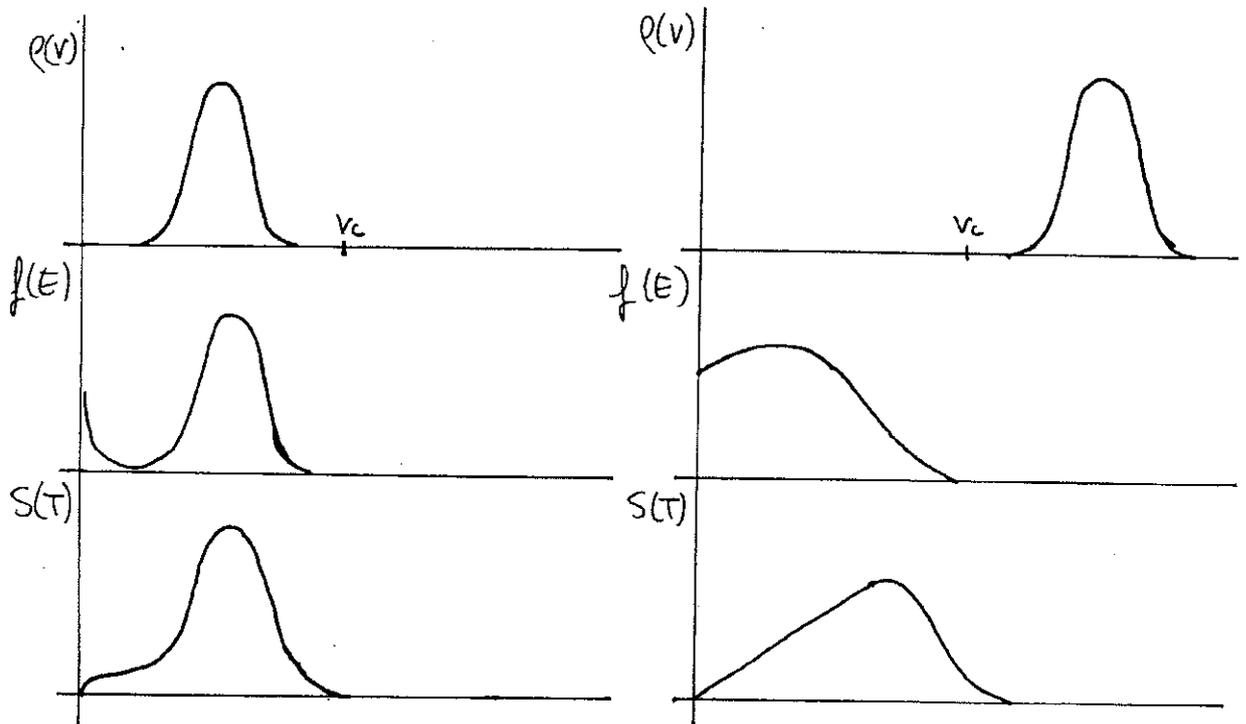
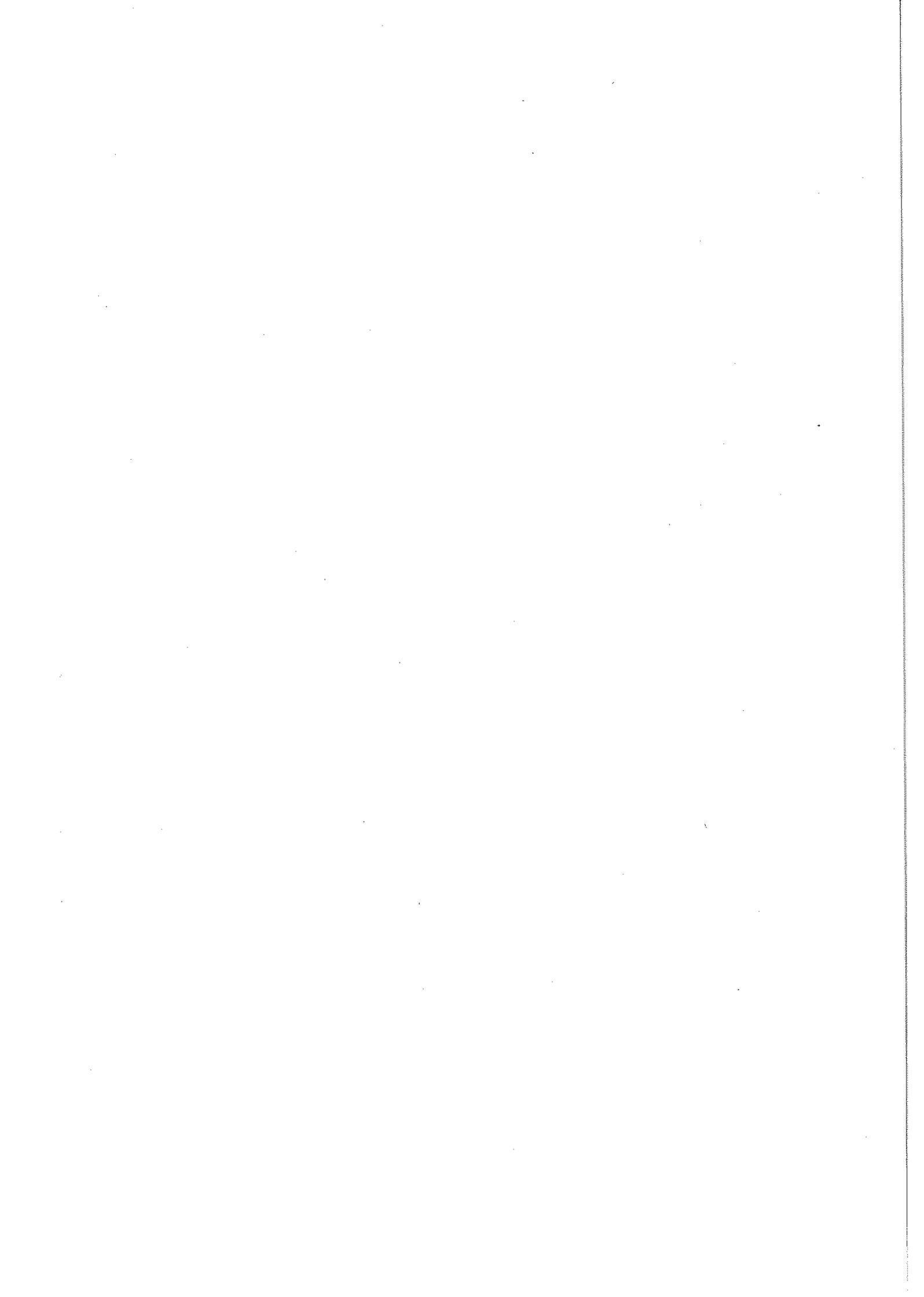


Figure 20 - Schéma de la viscosité magnétique $S(H,T)$ calculée pour des particules ayant des tailles en dessous (à gauche) et en dessus (à droite) d'une taille critique V_c .

Tout au long de ce chapitre nous avons remarqué un très bon accord entre les mesures sur les particules de ferrite de Baryum et le modèle développé au chapitre 2. Remarquons aussi l'importance que prend la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ pour la viscosité magnétique $S(H,T)$ à basse température. Comme nous l'avons vu, l'effet de $v(H_0)$ sur $S(H,T)$ est d'augmenter la relaxation de l'aimantation à basse température (voir figure 7), en ne prenant en compte que l'activation thermique. *Lors de l'étude d'une possible relaxation par effet tunnel, il est alors extrêmement important de prendre en compte la distribution $v(H_0)$. Signalons que cette considération remet en question l'interprétation de plusieurs travaux sur ce sujet.*



Chapitre 5

Petites particules orientées de ferrite de Baryum et couches minces de $TbFe_3$ et $SmCo_2$

Dans ce chapitre, nous étudierons le comportement de la viscosité magnétique $S(H,T)$ pour des particules orientées de ferrite de Baryum et des couches minces de $TbFe_3$ et $SmCo_2$. Comme nous l'avons discuté dans les chapitres précédents, la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ joue un rôle très important dans le cas de la viscosité magnétique $S(H,T)$ à basse température. Dans le but de supprimer l'influence de la distribution $v(H_0)$ et aussi de mettre en évidence d'une façon indubitable une possible relaxation de l'aimantation par l'effet tunnel aux basses températures, nous avons travaillé avec des particules orientées. Nous constaterons qu'à basse température des propriétés très intéressantes apparaissent. De plus, un comportement similaire a été observé pour des couches minces.

I - Particules orientées de ferrite de Baryum

5.1 - Largeur de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ pour des particules orientées

Nous avons décrit la distribution $v(H_0)$ comme étant uniquement dépendante de l'orientation des particules. Lorsque les particules sont parfaitement orientées dans la direction du champ magnétique appliqué, la distribution $v(H_0)$ est une fonction δ de Dirac. Dans ce cas, toutes les particules ont le même champ de retournement, et donc, le cycle d'hystérésis est carré.

L'échantillon étudié est composé de particules orientées de ferrite de Baryum dont le diamètre moyen, mesuré par microscopie électronique à transmission, est d'environ 400 Å. Cet échantillon a aussi été préparé par O. Kubo chez Toshiba au Japon. La distribution de volume $\rho(V)$ n'a pas été directement déterminée pour cet échantillon. Par comparaison avec l'échantillon étudiée précédemment, nous la considérons comme étant une fonction log-normale. L'écart type sera évalué à partir de mesures de relaxation. Les particules ont été déposées sur un ruban plastique (ou polymère), comme ceux qui sont utilisés pour les cassette vidéo : l'échantillon que nous avons utilisé a donc la forme d'un ruban de 1 cm de côté sur 10 cm de long. Le ruban a été bobiné et placé dans le porte échantillon pour les mesures d'aimantation. Nous avons effectués des mesures de viscosité

$S(H,T)$ en fonction du champ et de la température. Le champ est appliqué parallèlement ou perpendiculairement à la direction de facile aimantation.

Sur la figure 1, nous présentons un cycle d'hystérésis pour des champs appliqués parallèlement (ligne continue) et perpendiculairement (ligne pointillée) à la direction de facile aimantation. Si les particules étaient parfaitement orientées, le cycle mesuré en champ parallèle devrait être carré, alors qu'en champ perpendiculaire, il ne devrait pas y avoir d'hystérésis. Comme ce n'est pas exactement le cas, nous pouvons conclure que l'échantillon est formé de particules qui ne sont pas parfaitement orientées; il existe une distribution d'orientation très étroite. Nous pouvons estimer cette largeur Δ de la distribution $v(H_0)$ en considérant celle-ci égale à la dérivée de l'aimantation par rapport au champ à basse température ($\partial M/\partial H$) (voir section 2.2) : en prenant Δ comme la demi-largeur (largeur à mi-hauteur) sur cette courbe, on trouve Δ égal à environ 35 Oe (voir figure 2). Notons que cette valeur est beaucoup plus petite que celle estimée pour l'échantillon composé de particules non orientées (entre 750 et 1000 Oe) : ces deux valeurs de Δ diffèrent d'un facteur d'environ 1/25. Finalement, nous considérerons par la suite cet échantillon comme étant formé de particules avec un haut degré d'orientation, la distribution $v(H_0)$ de cet échantillon étant caractérisée par les paramètres suivants : $\Delta = 35 \pm 5$ Oe et $H_{0m} = 1670 \pm 10$ Oe.

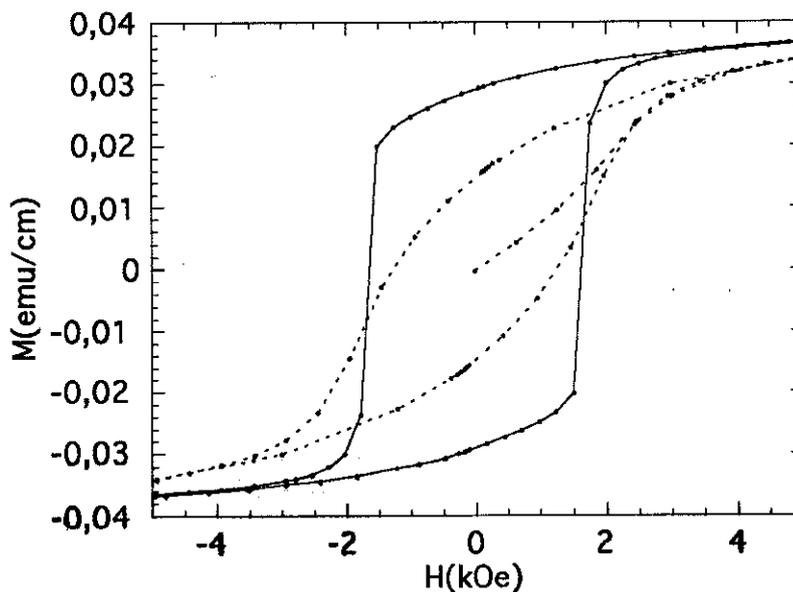


Figure 1 - Cycle d'hystérésis mesuré sur des particules orientées de ferrite de Baryum à 4,2 K. Pour la ligne continue le champ est appliqué parallèle à la direction de facile aimantation, et pour la ligne pointillée le champ est perpendiculaire.

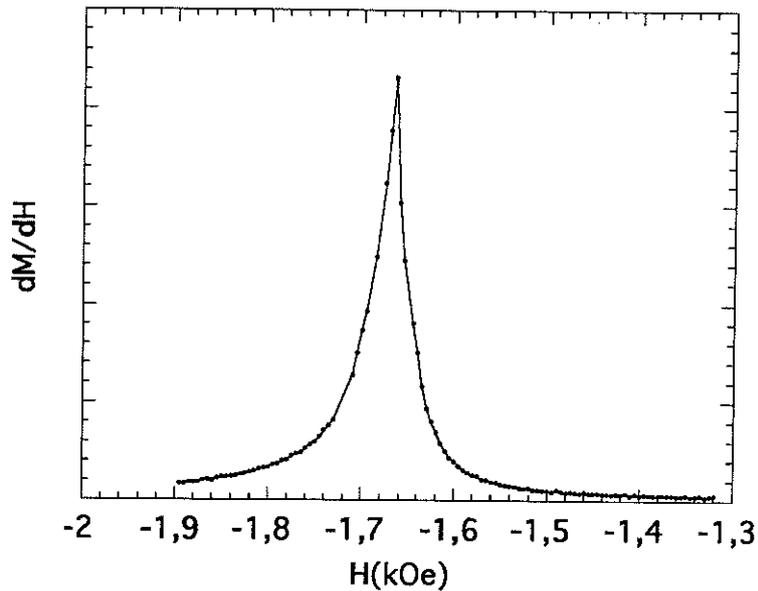


Figure 2 - Distribution de champ de retournement $v(H_0)$ pour un échantillon composé de particules orientées de ferrite de Baryum obtenue à partir d'un cycle d'hystérésis à basse température. La demi-largeur est d'environ 35 ± 5 Oe.

5.2 - Mesures de $S(H,T)$ sur des particules orientées

Il a été montré dans la section 4.9 que la divergence de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ aux basses énergies disparaît lorsque la largeur (Δ) de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ tend vers zéro. Pour des valeurs de Δ aussi petites que 35 Oe, l'influence de la distribution $v(H_0)$ sur la viscosité magnétique $S(H,T)$ est négligeable. Un autre point intéressant est à souligner : la contribution de la distribution $\rho(V)$ sur des mesures de $S(H,T)$ aux basses températures doit aussi être négligeable pour des champs faibles par rapport au champ de retournement moyen H_{0m} , et cela pour deux raisons : i) la contribution de l'énergie Zeeman à la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ est petite, et par conséquent $f(E,H)$ n'est pas beaucoup déplacée vers les basses énergies, ii) pour l'échantillon que nous étudions, la distribution de volume $\rho(V)$ est relativement étroite et la distribution d'énergie $f(E)$ l'est aussi (rappelons que $f(E)=\rho(V) / K_a(1-H/H_0)^\alpha$). *Dans ces conditions, quel que soit le comportement observé aux basses températures, il ne pourra pas être attribué à des effets des distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$.*

Nous pouvons calculer la relaxation $S(H,T)$ en utilisant les deux distributions : $\rho(V)$ et $v(H_0)$, avec Δ très petit, ou bien en prenant seulement $\rho(V)$. Comme mentionné, nous ne connaissons pas la largeur de $\rho(V)$ de cet échantillon. Cependant, nous pouvons la déduire de l'ajustement des points expérimentaux de $S(H,T)$ (voir la ligne continue de la figure 3). Si on considère $\rho(V)$ comme étant une fonction log-normale avec un

diamètre moyen mesuré de 400 Å (déterminé par TEM), on trouve un écart-type de 0,06 , et les diamètres minimum et maximum sont respectivement 320 et 480 Å. La connaissance des paramètres des distributions $\rho(V)$ et $v(H_0)$ nous permet de calculer $S(H,T)$ en fonction de la température et du champ, par exemple pour $H = -1,28$ kOe et $\Delta = 20$ Oe (ligne — — —) ou 40 Oe (ligne - - -) (figure 3). Nous avons utilisé ici la même constante d'anisotropie que celle utilisé dans le calcul de $S(H,T)$ pour le particule non orientées ($K_a = 1,3 \cdot 10^5$ erg/cm³). Nous observons que ces trois courbes s'ajustent bien à haute température, et que, comme attendu, l'effet de la distribution $v(H_0)$ se manifeste à plus basse température, vers 40 K. Plus précisément, pour cette gamme de température, la courbe qui s'ajuste le mieux correspond à Δ égal à 20 Oe. Cette valeur de Δ est proche (un peu en dessous) de celle estimée antérieurement (35 Oe). *Etant donné qu'il existe une petite distribution d'orientation des particules, sa contribution sur la relaxation est également petite, et l'ajustement pour des largeurs étroites de $v(H_0)$ montre bien la cohérence du modèle.*

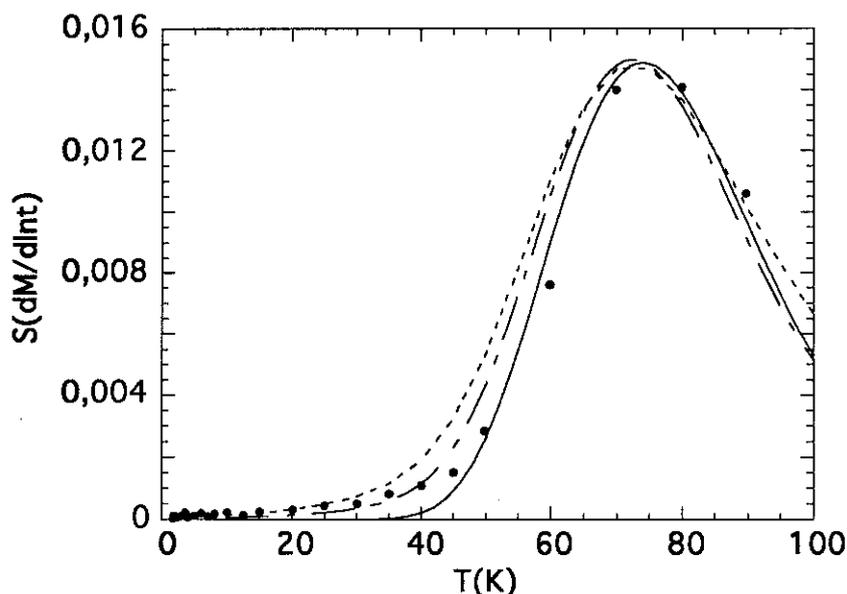


Figure 3 - Viscosité magnétique $S(H,T)$ mesurée pour des particules orientées de ferrite de Baryum. Le champ de saturation est de 20 kOe et celui de mesure est égal à $-1,28$ kOe. Les lignes en pointillées ont été calculées en tenant compte des deux distributions $\rho(V)$ et $v(H_0)$ avec Δ égal à 20 Oe (— — —), ou 40 Oe (- - -). Pour la ligne continue, on a pris en compte seulement $\rho(V)$.

5.3 - Mesures de $S(H,T)$ aux basses températures

Jusqu'à présent, nous avons insisté sur le fait que pour mettre en évidence une relaxation induite par l'effet tunnel, nous devons absolument prendre en compte toutes les contributions possibles d'origine thermique. Ainsi, nous avons montré pour des petites particules que l'existence de la distribution de champ de retournement $v(H_0)$ donne une dépendance en température à la viscosité magnétique $S(H,T)$ proportionnelle à $(T)^{1/\alpha}$ (α est

proche de 2). Nous remarquons que si les mesures $S(H,T)$ ne sont pas faites à assez basse température, ce dernier comportement peut être confondu avec une relaxation de l'aimantation par l'effet tunnel. Ici, comme nous travaillons avec des particules orientées, c'est-à-dire avec une distribution $v(H_0)$ très étroite, il ne doit pas avoir de relaxation thermique à basse température. En plus, il existe un bon accord entre les valeurs de $S(H,T)$ mesurées et le modèle au-dessus de 50 K.

A première vue, d'après la figure précédente, il semble bien que $S(H,T)$ s'annule aux basses températures. Cependant, une vision plus détaillée (figure 4a) montre que ce n'est pas le cas, contrairement à ce qui était attendu. En particulier, en champ faible (-0,5 kOe) une bosse apparaît nettement vers 5 K. En champ plus élevé elle est moins visible en raison de l'énergie Zeeman ajoutée. Celle-ci déplace le maximum de la distribution d'énergie $f(E - MH)$ vers les basses températures, et se superpose à cette bosse. Par conséquent, la viscosité magnétique $S(H,T)$ se déplace vers les basses températures. Cependant, même pour un champ de -1,28 kOe, cette bosse à 5 K reste visible. En effet, en calculant $S(H,T)$ à basse température (figure 4b) on voit que le modèle ne peut pas reproduire les valeurs mesurées.

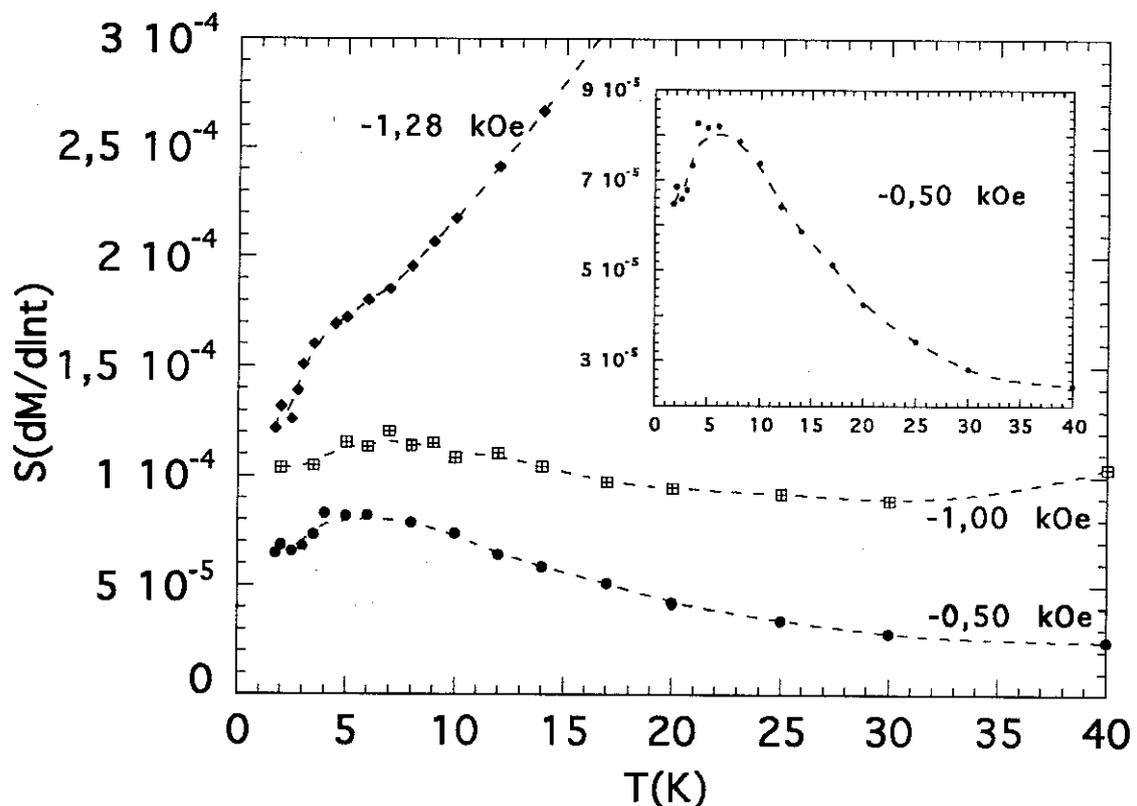


Figure 4a - Viscosité magnétique en fonction de la température pour trois champs différents parallèles à la direction de facile aimantation pour des particules orientées de ferrite de Baryum. Sur l'insert, on montre en détail la courbe correspondante au champ appliqué de -0,50 kOe. Les lignes servent de guides pour les yeux.

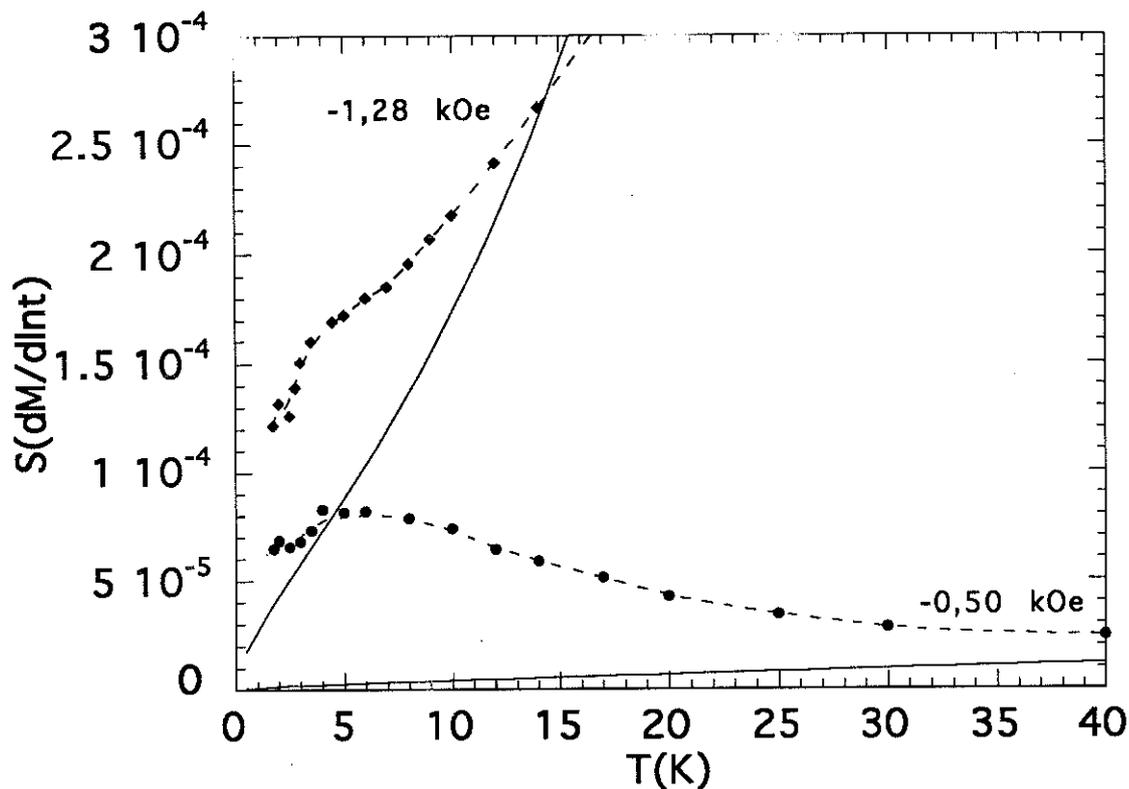


Figure 4b - En complétant la figure 4a, les lignes continues ont été calculées avec le modèle ($H_{0m}=1,67 \text{ kOe}$ et $\Delta=20 \text{ Oe}$). Pour $H=-1,28 \text{ kOe}$, on représente en détail la gamme de basse température de la figure 3.

La raison d'un tel comportement à basse température n'est pas encore tout à fait comprise. Nous allons voir par la suite que ce même comportement est aussi observé pour des couches minces.

Avant de discuter ce problème plus en détail, notons quelques points au sujet des figures ci-dessus :

i) La valeur du maximum de la viscosité magnétique $S(H,T)$ à 5 K , et celle du maximum de $S(H,T)$ correspondant à la distribution d'énergie $f(E,H)$ (pour $H=-1,28 \text{ kOe}$, elle est placée à 75 K) sont dans un rapport d'environ 200 : la bosse observée à 5 K est très petite par rapport à la partie correspondante à la distribution $f(E,H)$.

ii) La position du maximum de la bosse à 5 K ne dépend pas du champ de mesure contrairement à $f(E,H)$. Il semble donc, que l'énergie Zeeman ajoutée ne joue aucun rôle sur ce phénomène. Remarquons aussi que la différence entre les valeurs mesurées et calculées ne dépend pas du champ.

iii) Le maximum observé à 5 K n'est pas dû à un ordre dipolaire. Des mesures d'aimantation en champ faible ne montrent rien qui ressemble à cela. D'autre part, le fait que ce phénomène

ait aussi été observé dans des couches minces amorphes ne va pas dans le sens d'un ordre supplémentaire apparaissant à basse température.

iv) Il semble bien que la relaxation $S(H,T)$ s'annule dans la limite des basses températures. Cependant, pour en être sûr, nous avons besoin de mesures en dessous de 1K.

v) Nous observons un comportement semblable, si le champ est appliqué perpendiculaire à la direction de facile aimantation. Cela montre aussi de façon indubitable que la bosse à 5 K ne dépend pas directement du champ appliqué.

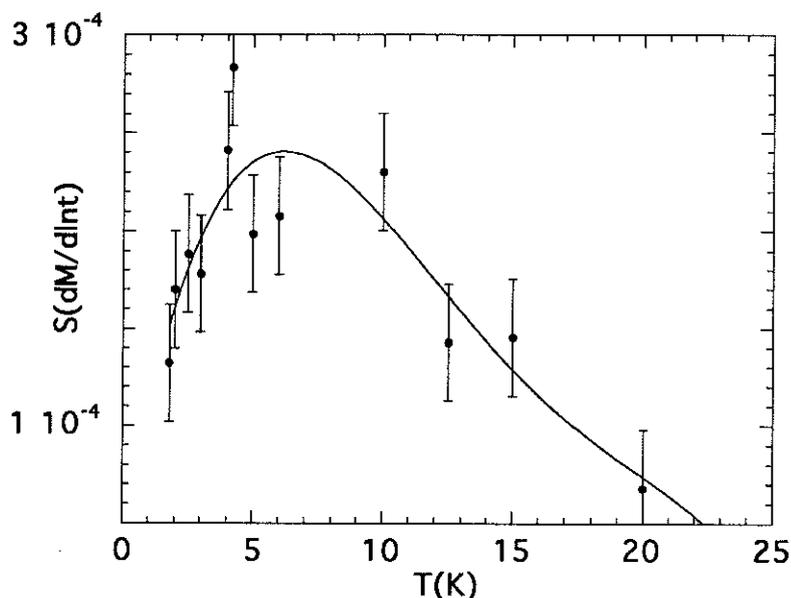


Figure 5 - Viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour le champ de -0.8 kOe appliqué perpendiculairement à la direction de facile aimantation. La barre d'erreur est grande car l'aimantation a été mesurée sur un magnétomètre à extraction. La ligne sert de guide.

Nous rappelons qu'en prenant en compte la distribution de champ de retournement $v(H_0)$, la dépendance en température attendue pour $S(H,T)$ est proportionnelle à $T^{1/\alpha}$. Il est très important de remarquer que ceci est *incompatible* avec le comportement mesuré aux basses températures (voir figures 4). Nous concluons alors, que l'effet observé ne peut pas être compris en prenant en compte uniquement de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$.

Récemment, l'influence de la dissipation d'énergie au cours de la relaxation a été étudiée à partir de simulations numériques [Fer,1994]. Il est très raisonnable de supposer que lorsque l'aimantation relaxe au cours du temps, l'énergie est dissipée vers le thermostat avec un certain retard. Cela doit se produire dans des systèmes à faible chaleur spécifique, c'est-à-dire à basse température, lorsqu'une petite quantité de chaleur dissipée peut générer une forte élévation locale de température [Ueh,1986 et Bar,1993b]. Cet échauffement local induit le retournement de l'aimantation environnante. Comme la chaleur spécifique décroît

avec la température, lorsqu'on refroidit le système, l'échauffement devient plus important, et par conséquent, la relaxation augmente. Dans la limite des très basses températures, il y aura très peu de particules qui déclencheront l'échauffement, et alors la relaxation doit s'annuler. Un tel comportement est montré sur la figure 6 [Fer,1994]. Il est tout à fait analogue à celui montré dans l'insert de la figure 4a. Comme un comportement semblable a été observé pour des couches minces, nous reviendrons sur ce point par la suite. Il faut noter que ce même type de courbe est aussi obtenu en simulation numérique lorsque le couplage entre différents retournements locaux de l'aimantation n'est pas un échauffement local mais tout simplement un couplage d'échange.

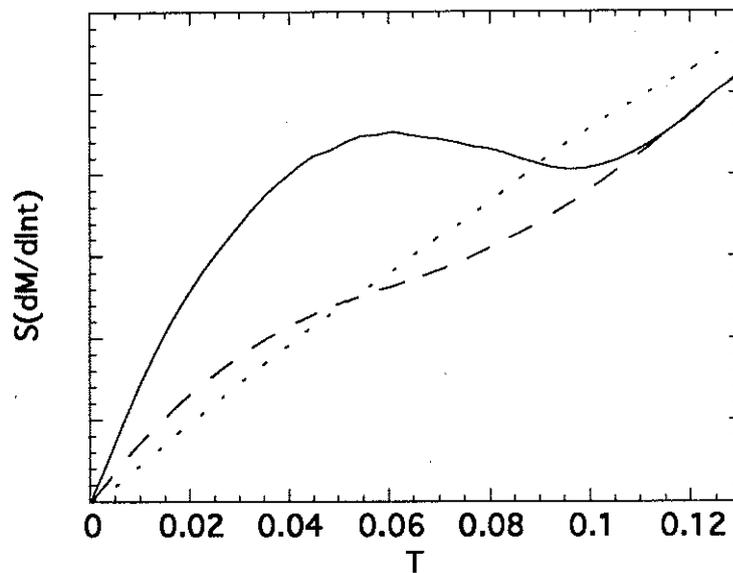


Figure 6 - Viscosité magnétique S calculée pour trois coefficients de dissipation différents, à savoir $\alpha = 0.4$ (---), 0.2 (— —) et 0 (- - -) (d'après R. Ferré [Fer,1994]). S et T sont données en unités arbitraires.

La remarque (ii) peut signifier que la relaxation mesurée n'est plus influencée par une barrière d'énergie [Weg,1994]. En effet, une étude récente propose un modèle décrivant la viscosité magnétique comme étant la relaxation lente d'une variable collective vers sa position d'équilibre thermodynamique, en réponse à un champ local ou à une excitation thermique initiale. L'existence d'un bruit quantique peut rendre compte d'une divergence en $1/T$ à basse température [Weg,1994].

11 Couches minces de $TbFe_3$

Jusqu'à maintenant, nous avons toujours travaillé avec des petites particules. En effet dans ce cas, l'interprétation des résultats expérimentaux devient plus simple car nous pouvons nous servir du fait qu'à partir de la connaissance des distributions de volume $\rho(V)$ et du champ de retournement $v(H_0)$, la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ et la

viscosité magnétique $S(H,T)$ sont aisément calculables. D'un point de vue théorique, il est très naturel d'étendre ce modèle à des systèmes plus complexes, comme des couches minces et des échantillons massifs. Néanmoins, il ne sera plus possible de calculer de façon simple la distribution $f(E,H)$.

5.4 - Mesures de $S(H,T)$ sur des couches de $TbFe_3$

Tout d'abord, nous allons présenter l'étude de couches minces de $TbFe_3$, car ce système a une forte anisotropie et une température de Curie élevée (600 K). Comme nous l'avons vu au le chapitre 3, ces propriétés sont convenables pour l'observation d'une relaxation par effet tunnel. Signalons que nous aurions pu choisir également un autre composé dans la série : Tb_aFe_b . L'échantillon est composé de 10 couches de $TbFe_3$ de 75 Å d'épaisseur, séparées par des couches d'argent de 200 Å d'épaisseur. Il y a une incertitude de 5% sur leurs épaisseurs. Cet échantillon a été élaborée par pulvérisation cathodique, et nous avons utilisé du kapton comme substrat. En vue de faire des mesures d'aimantation, l'échantillon a été découpé en plusieurs rubans, bobinés et mis dans le porte-échantillon. Une étude de diffraction de rayons X a montré le caractère amorphe de ces couche.

Des mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour plusieurs champs magnétiques appliqués nous ont permis d'étudier la dynamique de relaxation aux basses températures. La procédure de mesure de $S(H,T)$ est la même que celle décrite dans la partie 1. Cependant, nous avons utilisé une variante pour la saturation de l'aimantation en champ fort, qui a été effectuée : i) à la température de mesure ou ii) à la température de ambiante. Comme aucune différence n'a été observée, on peut conclure qu'à la température de la mesure, l'application d'un champ de 40 kOe est suffisante pour effacer "l'histoire magnétique". Pour ces mesures, nous avons appliqué un champ de saturation de 40 kOe et des champ de mesures de - 0,75, - 0,35 et 0 kOe. Nous avons toujours appliqué un champ parallèlement au plan de la couche.

Tout d'abord nous présentons sur la figure 7 les mesures de $S(H,T)$ en fonction de la température, pour les champs suivants : - 0,75 et - 0,35 kOe. On remarque que pour un champ de mesure égal à - 0,35 kOe, un palier semble apparaître au-dessous de 12 K. Dans le but de clarifier ce point, nous avons effectué la même mesure sans champ appliqué (voir figure 8a). En faisant cela, on déplace le maximum de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ vers les hautes énergies (températures), ce qui devrait rendre le palier plus net. Cependant, à basse température un deuxième maximum est observé. Nous le présentons en détail sur la figure 8b. Il est surprenant que ce comportement soit très semblable à celui observé pour des particules orientées de ferrite de Baryum, compte tenu du

fait que ces deux systèmes sont très différents. Il faut remarquer que ce comportement observé aux basses températures est un résultat expérimental très original. Il n'a jamais été rapporté dans la littérature, bien que les études effectués dans notre équipe l'aient mis en évidence sur au moins quatre échantillons différents.

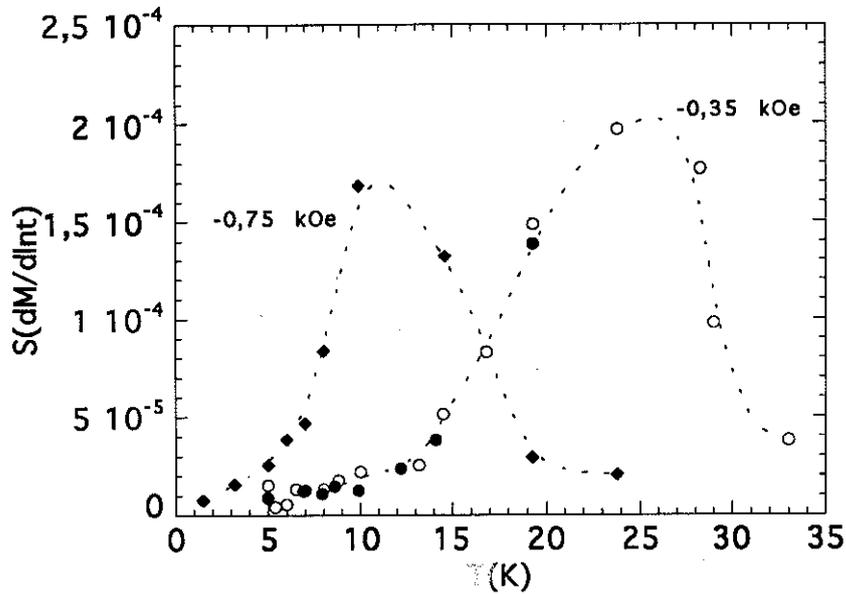


Figure 7 - Viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour une couche de $TbFe_3 / Ag (75 / 200) \times 10$. Les cercles pleins ont été mesurés en saturant l'échantillon en champ fort à 300 K et pour les cercles vide, la saturation a été obtenue à la température de mesure. Les lignes tracées servent uniquement de guide.

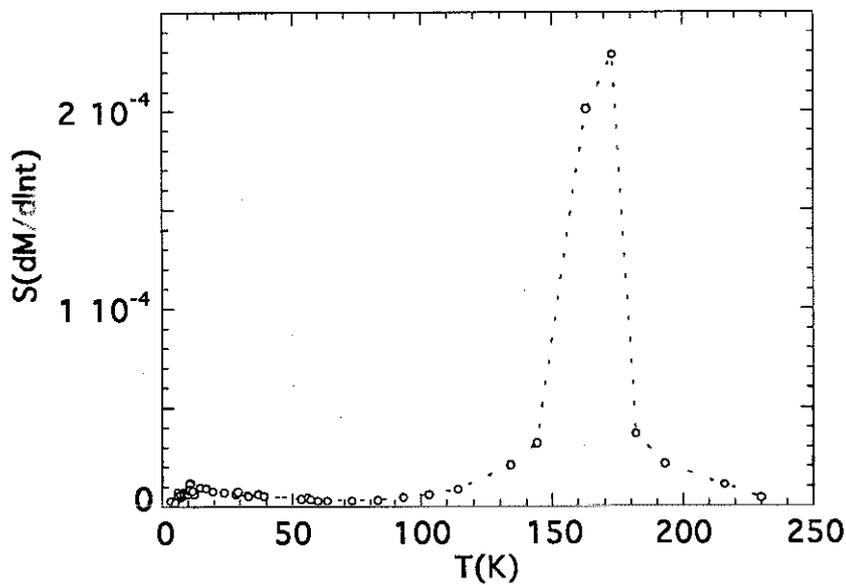


Figure 8a - Viscosité magnétique $S(H,T)$ en fonction de la température pour un champ nul. La ligne tracée sert de guide.

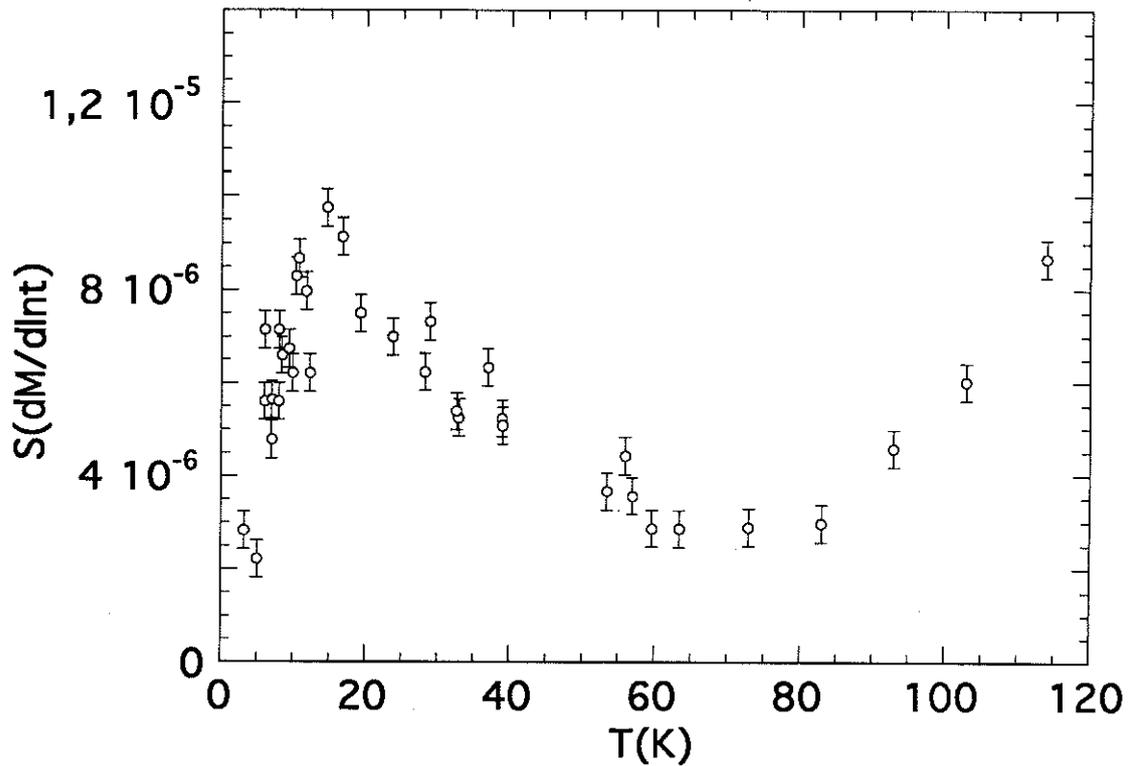


Figure 8b - Détail de la figure 8a pour les basses températures.

Comme nous l'avons *suggéré* pour le cas de petites particules orientées, ce phénomène pourrait être dû à l'auto-échauffement du système pendant la relaxation [Fer,1994], ou encore à une diffusion quantique dans le puits de potentiel [Weg,1994]. Cependant la température de 60 K, à laquelle ce phénomène de remontée de $S(H,T)$ se produit, semble être élevée pour que ce phénomène résulte de l'un de ces effets. Une étude plus approfondie est nécessaire pour clarifier ce point important. En ce moment, nous sommes en train de mesurer d'autres échantillons en changeant l'épaisseur de la couche séparatrice (Ag). Nous espérons alors changer le degré de contact thermique entre les couches de $TbFe_3$ et le thermostat. D'autre part, des mesures sont programmées vers les plus basses températures qui devrait nous renseigner sur la limite de la viscosité magnétique $S(H,T)$ à $T \rightarrow 0$.

III - Couches minces de $SmCo_2$

5.5 - Mesures de $S(H,T)$ sur des couches de $SmCo_2$

Dans cette section nous présentons les résultats de l'étude de couches minces de $SmCo_2$, équivalente à l'étude décrite dans la section précédente pour des couches de $TbFe_3$. Ainsi, les couches de $SmCo_2$ ont aussi une forte anisotropie et une température de

Curie égale à 220 K. Ces couches ont été préparées par pulvérisation cathodique, et d'après l'analyse par rayons X, nous avons constaté qu'elles sont amorphes. Pour réaliser cette étude, nous disposons de trois échantillons différents, à savoir : i) 150Å de SmCo_2 / 200 Å de Ag, ii) 750Å de SmCo_2 / 200 Å de Ag et iii) 600Å de SmCo_2 / 200 Å de Mo.

Tout d'abord, nous présentons sur les figures 9a, b des mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ pour des couches de 750 Å d'épaisseur (750Å de SmCo_2 / 200 Å d'Ag). $S(H,T)$ a été mesurée en fonction de la température pour un champ de saturation de 40 kOe et pour des champs de mesure de -0,23 et -0,87 kOe. Le champ est appliqué parallèlement au plan de la couche. Les mêmes mesures sont donnée sur la figure 10 sur une couche plus fine de SmCo_2 (150Å de SmCo_2 / 200 Å d'Ag).

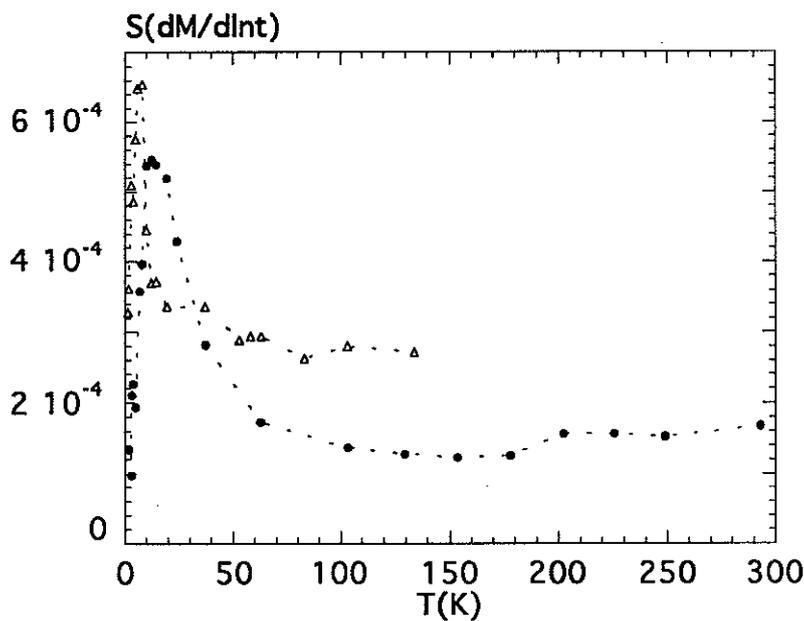


Figure 9a - $S(H,T)$ en fonction de la température pour un champ de -0,23 kOe (•) et -0,87 kOe (Δ) pour la couche de 750 Å de SmCo_2 et 200 Å d'Ag d'épaisseur.

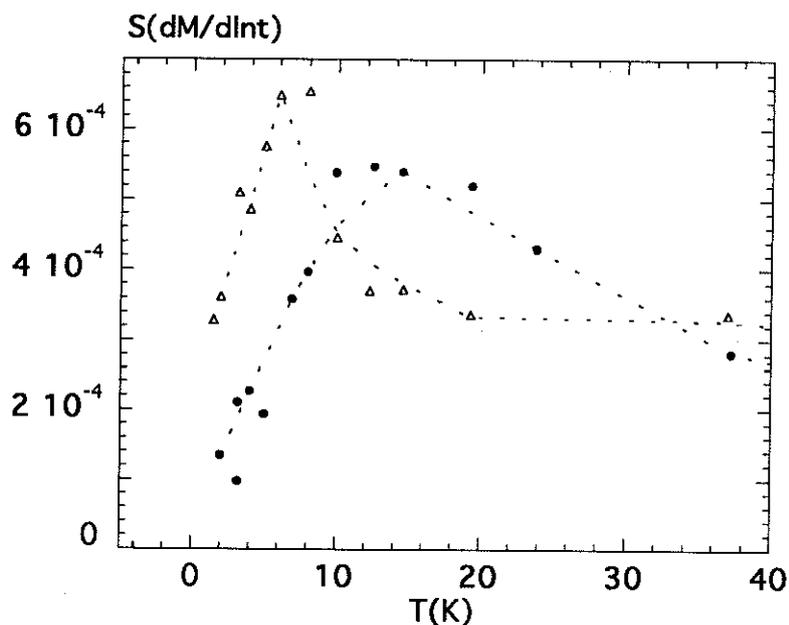


Figure 9b - Détail de la figure précédente pour les basses températures.

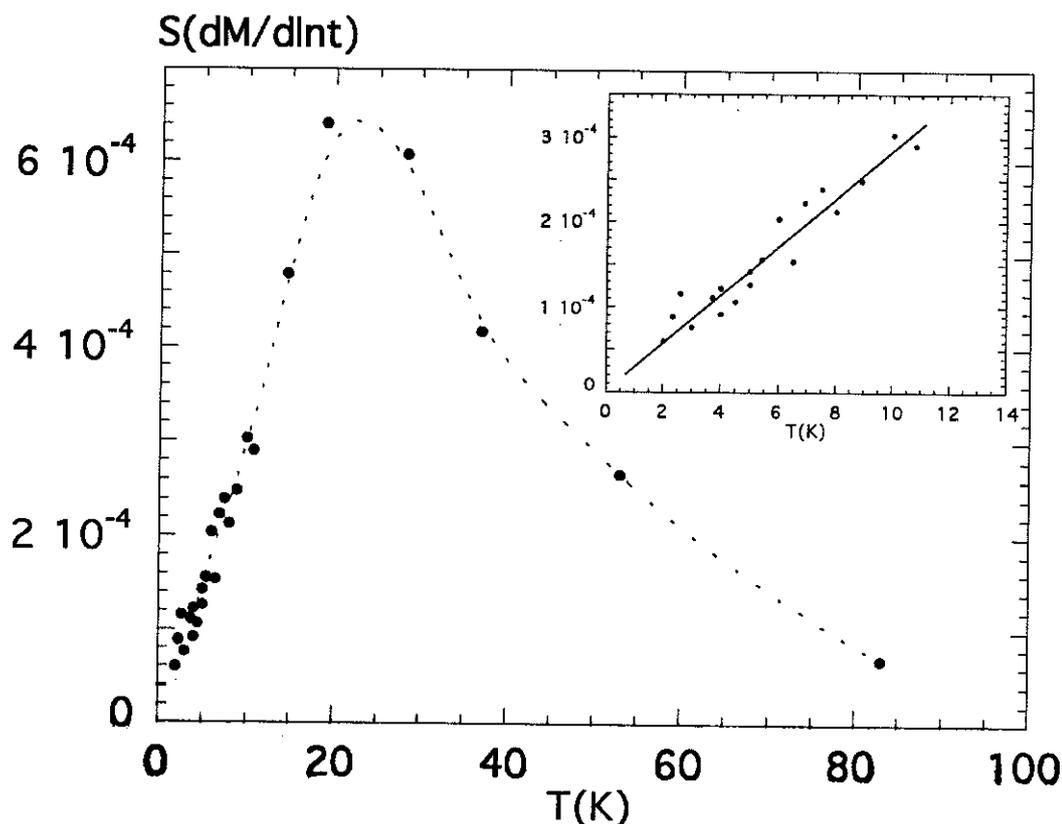


Figure 10 - $S(H,T)$ en fonction de la température pour un champ appliqué de $-0,10$ kOe pour la couche de 150 \AA de SmCo_2 et 200 \AA de Ag d'épaisseur.

Dans le cas de la couche épaisse de SmCo_2 , le maximum de $S(H,T)$ correspondant à la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$ est situé à basse température. La couche la plus fine (150 \AA de $\text{SmCo}_2 / 200 \text{ \AA}$ d'Ag), ne présente pas elle non plus la deuxième bosse. Dans le but d'étudier plus en détail le comportement de $S(H,T)$ à basse

température, nous avons effectué de nombreuses mesures entre 1,5 K et 10 K, montrées dans l'insert. Deux points sont à remarquer : i) la dépendance linéaire en température de $S(H,T)$, ii) $S(H,T)$ semble s'annuler pour la limite $T \rightarrow 0$. Ce comportement est caractéristique d'un système dont l'aimantation relaxe par activation thermique.

Enfin il faut noter qu'une multicouche de 600 Å de SmCo_2 avec 200 Å de Mo comme séparateur donne un comportement différent de celui observé pour d'autres couches de SmCo_2 . La différence entre cette troisième couche et les deux précédentes réside seulement dans la couche séparatrice, ici du Molybdène alors qu'il y avait de l'Argent pour les premières multicouches. Le diagramme de phase du système Co-Mo montre qu'il peut exister des composés de formule Co_aMo_b . En tenant compte cela, on peut penser que le Mo ait diffusé dans la couche de SmCo_2 durant le dépôt, formant alors une couche interfasciable intermédiaire. Nous présentons sur la figure 11, les mesures de viscosité magnétique $S(H,T)$ pour cette couche de SmCo_2/Mo . Dans ce cas, on observe à haute température une partie de la contribution de la distribution de barrières d'énergie $f(E,H)$, et aux basses températures une remontée est observée. Nous pensons que la couche formée par la diffusion de Mo dans la couche de SmCo_2 peut coupler les couches de SmCo_2 , et coupler ainsi les événements de retournement de l'aimantation des blocs des spins [Fer,1994].

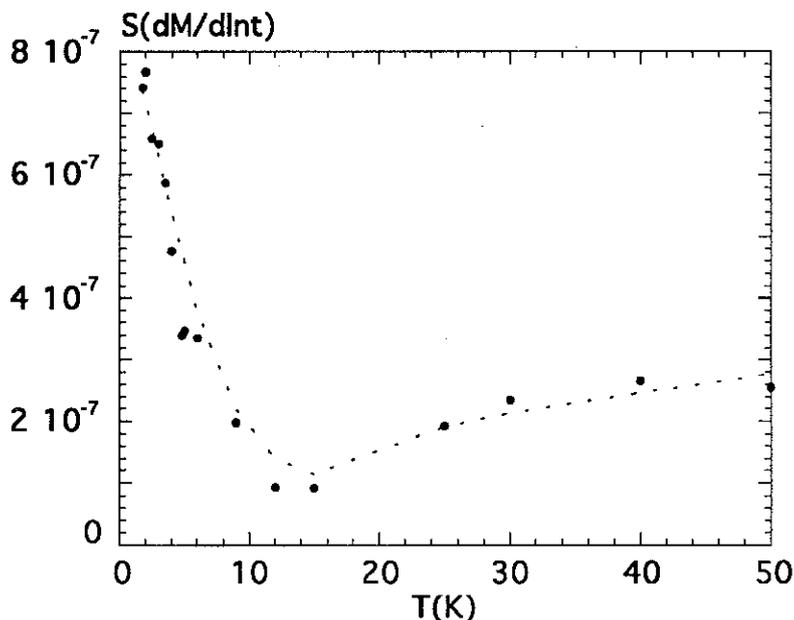
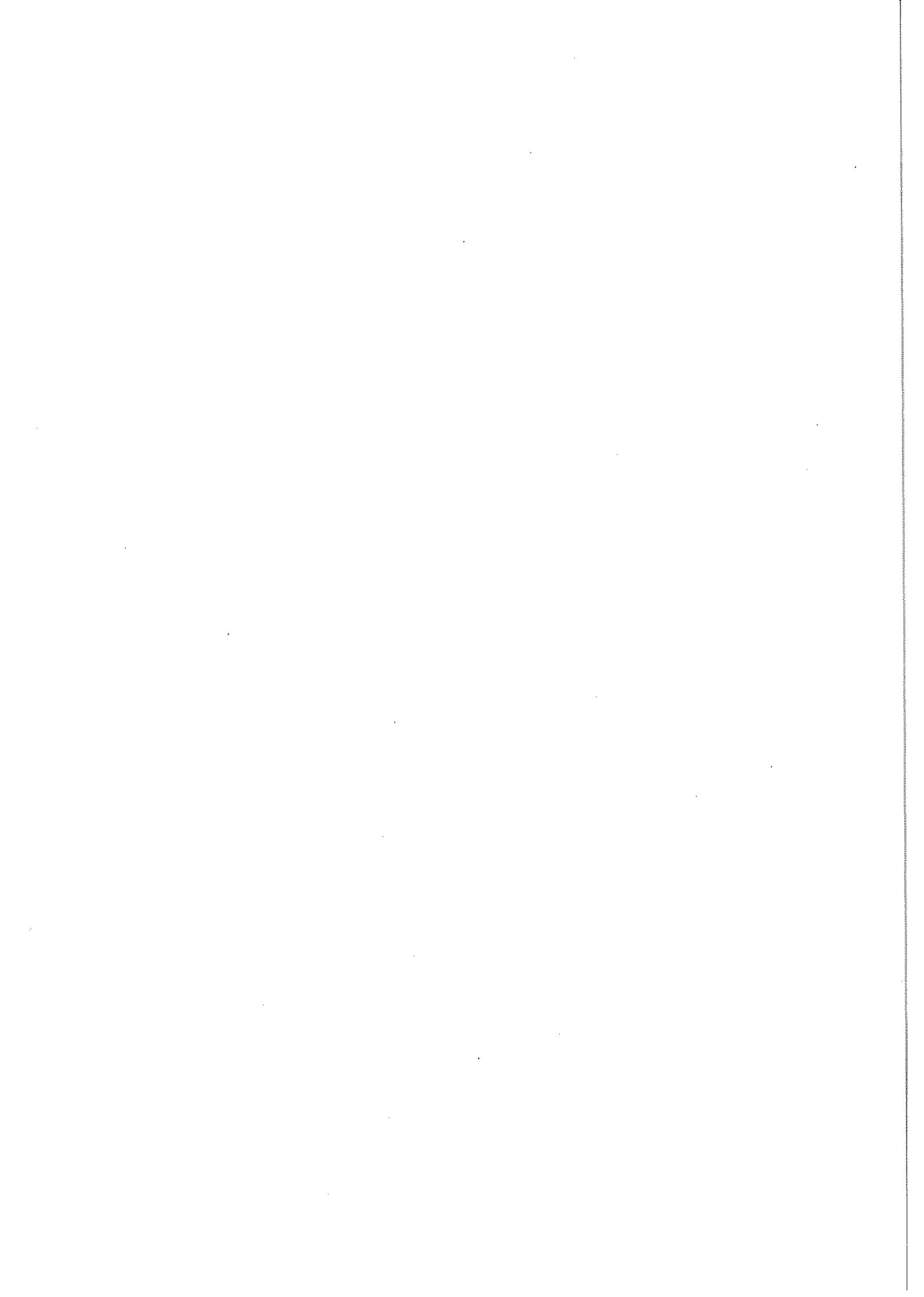


Figure 11 - $S(H,T)$ en fonction de la température pour en champ de -0,30 kOe pour la couche de 600 Å de SmCo_2 et 200 Å de Mo d'épaisseur.

Il est naturel de penser que cette remontée a la même origine que la bosse trouvée pour les particules orientées de ferrite de Baryum et pour des couches de TbFe_3 à basse température. Comme il a été mentionné antérieurement, ce comportement peut avoir

son origine dans un effet d'auto-échauffement ou de couplage de spins pendant la relaxation [Fer,1994], ou d'une relaxation quantique interne au puits de potentiel [Weg,1994].

Dans ce dernier chapitre, nous avons trouvé des résultats très originaux qui n'ont pas encore été rapporté dans la littérature. Ces résultats font apparaître une grande richesse et méritent une étude plus approfondie.



Conclusion

Ce travail apporte une contribution à la compréhension des mécanismes de relaxation de l'aimantation à basse température dans les systèmes de petites particules et de couches minces.

Nous avons concentré notre étude sur les deux aspects suivants : i) une possible relaxation par effet tunnel et ii) le rôle de la distribution de barrières d'énergie sur les mesures de la viscosité magnétique $S(H,T)$ lorsque l'aimantation relaxe par activation thermique. Etant donné qu'au cours de ces dernières années plusieurs travaux ont rapportés une relaxation par effet tunnel, cette étude est d'extrême importance.

Au cours de ce travail, nous avons réalisé une étude expérimentale complète de la relaxation de l'aimantation d'une assemblée de petites particules non orientées de ferrite de Baryum. Cette étude a été effectuée de 0 à 5 kOe pour de température de 110 mK à 300 K. Nous avons fait les observations suivantes :

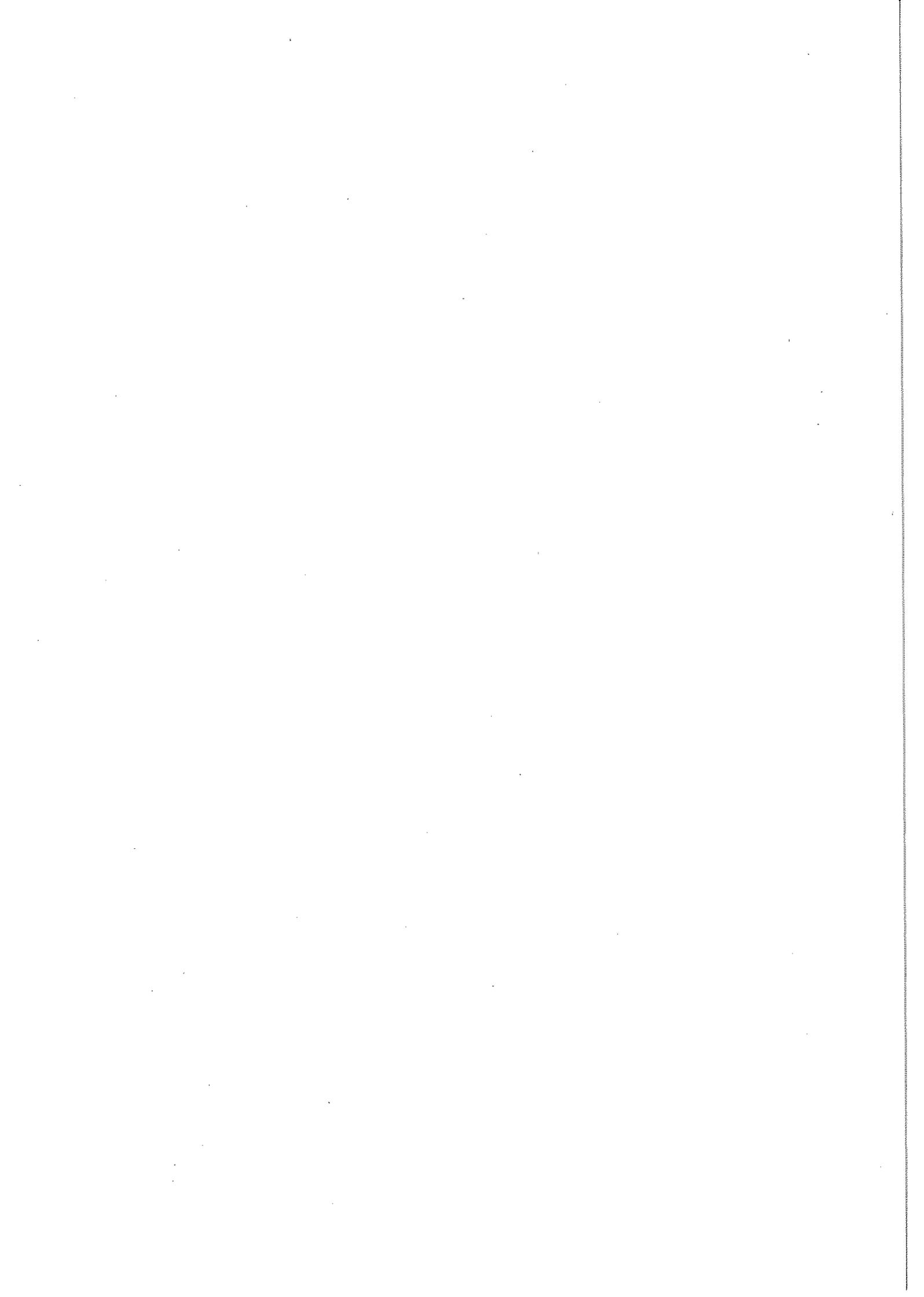
- Lorsque les particules ne sont pas orientées, les distributions de volume $\rho(V)$ et de champ de retournement $v(H_0)$ contribuent également à la distribution effective de barrières d'énergie $f(E,H)$. L'effet de la distribution $v(H_0)$ sur $f(E,H)$ est de peupler la gamme des faibles barrières d'énergie en donnant à $f(E,H)$ aux basses énergies (températures) une divergence en $E^{1/\alpha-1}$. Par conséquent, la viscosité magnétique prend une dépendance en température, $S(H,T) \propto T^{1/\alpha}$ avec $\alpha \cong 2$. Celle-ci est vérifiée jusqu'à des températures aussi basses que 110 mK.

- Une telle dépendance peut être confondue avec une relaxation de l'aimantation par effet tunnel si les mesures sont faites jusqu'à 1,5 K seulement. En effet, une relaxation par effet tunnel se caractérise surtout par une valeur non nulle à la limite $T \rightarrow 0$. *Signalons qu'à partir de cette observation, on remet en question l'interprétation de plusieurs travaux récents sur ce sujet, effectués seulement à des températures supérieures à 1,5 K.*

- Le modèle développé nous a aussi permis d'obtenir les dépendances en température du champ coercitif $H_C(T)$, et de la valeur maximale de la viscosité magnétique $S_{Max}(H,T)$, et de la dépendance en champ de la "température de blocage" $T_B(H)$. Nous avons aussi obtenu une expression générale de $S(H,T)$. Toutes les expressions calculées montrent un très bon accord avec les mesures [Bar,1993 et Sam,1994]. De plus, le modèle nous a permis de trouver la valeur de α , obtenue par ces différentes mesures comme étant égal à $2,0 \pm 0,4$.

Afin de supprimer la contribution de la distribution $v(H_0)$, la même étude a été reprise avec des particules orientées du même système (ferrite de Ba). Dans ce cas, nous avons trouvé un deuxième maximum qui ne semble pas avoir pour origine la distribution $f(E,H)$. Par ailleurs, l'étude de la dépendance en température de $S(H,T)$ à basse température sur des couches minces de $TbFe_3$ et $SmCo_2$ montre un comportement similaire. Ce comportement n'est pas encore bien élucidé. Pour l'expliquer nous suggérons les trois possibilités suivantes : i) l'échauffement de l'échantillon en cours de relaxation qui peut devenir important à basse température [Ueh,1986, Bar,1993, Bar,1993b et Fer,1994], ii) un effet quantique fortement dissipatif ou iii) un effet inhérent au bruit quantique [Weg,1994].

Cette étude confirme que l'approche "particule isolée" constitue le système le plus approprié pour l'étude de l'effet tunnel de l'aimantation, car dans ce cas, il n'existe pas d'influence de la distribution de barrières d'énergie ni d'effet de auto-échauffement. De toutes les façons cette étude montre, à l'évidence, que toute étude de relaxation quantique doit être effectuée jusqu'à des très basses températures.



Annexe 1

Dans cet appendice nous allons retrouver l'expression de la barrière d'énergie E pour une petite particule. La barrière d'énergie sera donnée pour un champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation. Pour cela, nous ajouterons le terme d'énergie Zeeman à l'énergie d'anisotropie totale de la particule. On considère que la particule est monodomaine et que le retournement de son aimantation est homogène.

En champ nul l'énergie d'une telle particule est composée de deux minima symétrique où chaque minimum est associé à une configuration d'énergie stable, comme cela est présenté figure 1a. Chaque configuration correspond respectivement aux angles entre l'aimantation et la direction de facile aimantation de 0 et π . La barrière d'énergie E est alors définie comme la différence d'énergie entre 0 et $\pi/2$.

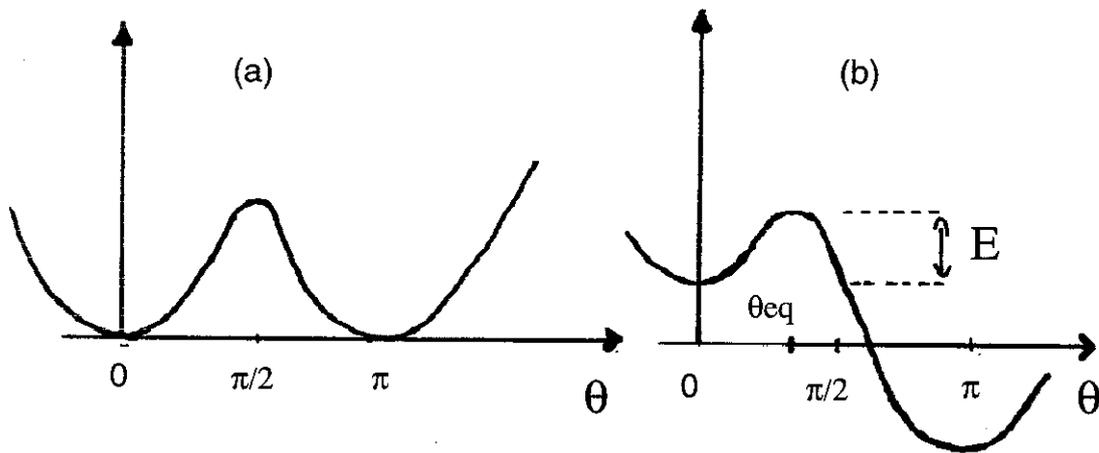


figure 1 - Énergie d'une petite particule en fonction de l'orientation sans champ (a) et sous champ appliqué (b).

Après l'application d'un champ H cette symétrie est brisée et E devient égale à la différence d'énergie entre 0 et θ_{eq} . Il est important de signaler que la nouvelle position d'énergie maximale θ_{eq} n'est plus $\pi/2$. Pour un angle θ quelconque la différence d'énergie entre 0 et θ est donnée par,

$$\Delta E = E(\theta) - E(0) = (K_a V \sin^2 \theta - M_S V H \cos(\pi - \theta)) - (-M_S V H \cos \pi) \quad (1)$$

$$\Delta E = K_a V \sin^2 \theta - M_S V H (1 - \cos \theta)$$

où K_a est la constante d'anisotropie et V est le volume de la particule.

Pour calculer θ_{eq} on dérive l'expression (1) par rapport à θ , et on trouve $\cos\theta_{eq} = H/H_0$ avec $H_0 = 2M_s/M_s$. Finalement, on reporte θ_{eq} dans l'expression (1) et l'expression de la barrière d'énergie devient,

$$E = E(\theta_{eq}) - E(0) = K_a V \left(1 - \left(\frac{H}{H_0}\right)^2\right) - M_s V H \left(1 - \frac{H}{H_0}\right) \quad (2)$$

$$E = K_a V \left(1 - \frac{H}{H_0}\right)^2$$

Ce résultat calculé pour une seule particule reste valable pour une assemblée de particules orientées et sans interaction. Il n'est par contre plus valable si les particules ne sont pas orientées. Le calcul a été récemment fait pour ce cas [Vic,1989]; la seule différence réside dans la valeur de l'exposant : $E = K_a V \left(1 - H/H_0\right)^{3/2}$.

Annexe 2

Nous allons trouver dans cet appendice la loi d'échelle de l'aimantation $M(t, T, H)$. Tout d'abord, rappelons que pour le calcul de la relaxation $S(H, T)$, nous avons simplement pris en compte les particules qui relaxent avec un temps de relaxation τ égal au temps de mesure. Pour le calcul de $M(t, T, H)$ on doit tenir compte de tous les temps τ entre τ_0 et le temps d'observation [Str, 1949].

Pour raison de simplicité, prenons l'expression (1) avec M_{eq} égal à $-M_s$. On définit $m(t, T, H) \equiv M(t, T, H) / M_s$ et ensuite on intègre l'expression (1) entre 0 et ∞ . On trouve alors,

$$m(t, T, H) = \int_0^{\infty} (2e^{-t/\tau} - 1) f(E) dE . \quad (1)$$

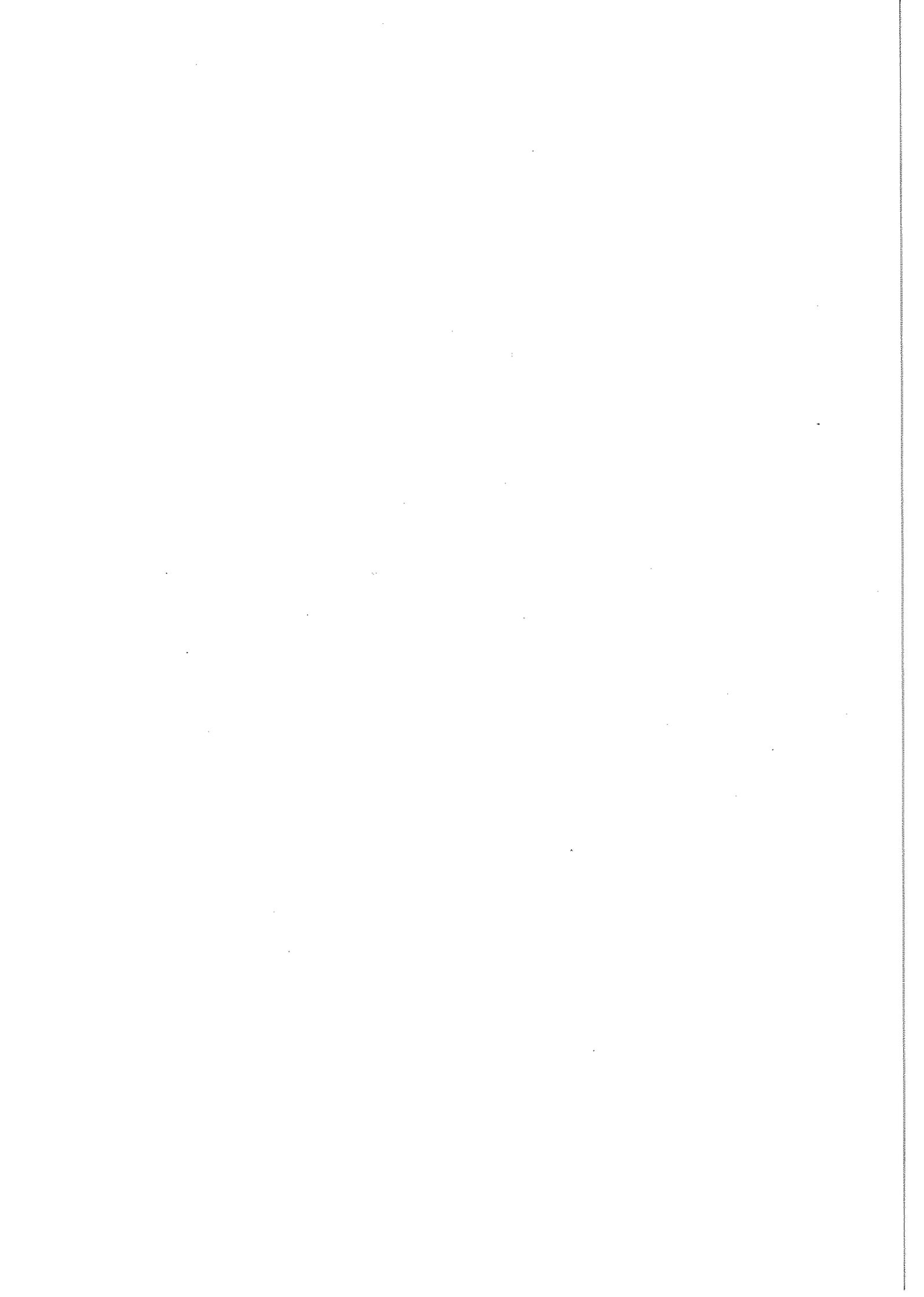
La fonction $e^{-t/\tau(E)}$ est une fonction qui se rapproche d'une fonction échelon unité (où Heaviside) $\mathcal{K}(E - E_c)$ où $\tau(E)$ est donné par une loi d'activation thermique ($\tau(E) = \tau_0 e^{E/k_B T}$) et E_c par $E_c = k_B T \ln(t/\tau_0)$. En assimilant la fonction $e^{-t/\tau(E)}$ à une fonction Heaviside, l'expression (1) se simplifiée en :

$$m(t, T, H) = 2 \int_{E_c}^{\infty} f(E) dE - \int_0^{\infty} f(E) dE . \quad (2)$$

La première intégration peut être substituée par $\int_{E_c}^{\infty} = \int_0^{\infty} - \int_0^{E_c}$. On trouve,

$$m(t, T, H) = 1 - 2 \int_0^{E_c} f(E) dE . \quad (3)$$

Maintenant il est facile de retrouver la loi d'échelle $M(t, T, H)$ en substituant une expression de $f(E)$ dans l'équation (3).



Références

[Aha,1959] - A. Aharoni, J. Appl. Phys. 30S, 705 (1959).

[Arn,1993] - J.L. Arnaudas, A. del Moral, C. de la Fuente et P.A.J. de Groot., Phys. Rev. B 47, 14977 (1993), J.L. Arnaudas, A. del Moral, C. de la Fuente et P.A.J. de Groot., idib 50 (1994).

[Arn,1994] - J.L. Arnaudas, A. del Moral et C. de la Fuente, ICM / 1994, Varsovie, Pologne.

[Aws,1992] - D.D. Awschalom, J.F. Smyth, G. Grinstein, D.P. DiVincenzo et D. Loss, Phys. Rev. Lett. 68 (20), 3092 (1992).

[Bar,1972] - B. Barbara, G. Fillion, D. Gignoux et R. Lemaire, Sol. Stat. Comm. 10, 1149 (1972).

[Bar,1990] - B. Barbara et E.M. Chudnovsky, Phys. Lett. A 145, 205 (1990).

[Bar,1992] - B. Barbara, C. Paulsen, L.C. Sampaio, M. Uehara, R. Fruchard, J.L. Tholence et A. Marchand, Proceedings of the International Workshop on the Studies of Magnetic Properties of Fine Particles and their Relevance to Materials Science, Roma, Italie, Novembre/1991.

[Bar,1993] - B. Barbara, J.E. Wegrowe, L.C. Sampaio, J.P. Nozières, M. Uehara, M. Novak, C. Paulsen, J.L. Tholence, Phys. Scripta, T49, 268 (1993).

[Bar,1993b] - B. Barbara, L.C. Sampaio, J.E. Wegrowe, B.A. Ratman, A. Marchand, C. Paulsen, M.A. Novak, J.L. Tholence, M. Uehara et R. Fruchard, J. Appl. Phys. 73 (10), 6703 (1993).

[Bar,1993c] - B. Barbara et L. Gunther, J. Magn. Magn. Mat., 128, 35 (1993).

[Bar,1994] - B. Barbara, L.C. Sampaio, A. Marchand, O. Kubo et H. Takeuchi, J. Magn. Magn. Mat., 135, 194 (1994).

partie Barry et al.

- [Bar,1994b] - B. Barbara, W. Wernsdorfer, L.C. Sampaio, J.G. Park, C. Paulsen, M.A. Novak, R. Ferré, D. Mailly, R. Sessoli, A. Caneshi, K. Hasselbach, A. Benoit et L. Thomas, ICM / 1994, Varsovie, Pologne.
- [Bak,1990] - P.Bak, *Physica A*, 163, 403 (1990) et références mentionnées.
- [Bea,1992] - C.P. Bean, J. Livingston, *J. Appl. Phys.* 30, 1205 (1959).
- [Ber,1992] - D.V.Berkov, *J. Magn. Magn. Mat.*, 111, 327 (1992).
- [Cal,1983] - A.O. Caldeira et A.J. Leggett, *Ann. Phys. (N.Y.)* 149, 118 (1983); erratum, *ibid.*, 153, 445 (1984).
- [Can,1991] - A. Caneshi et al. *J. Am. Chem. Soc.* 113, 5873 (1991).
- [Can,1993] - A. Caneshi, D. Gatteschi, R. Sessoli et M.A. Novak, *Nature*, 365, 141 (1993).
- [Cha,1984] - S. Chakravarty et A.J. Leggett, *Phys. Rev. Lett.* 52, 5 (1984).
- [Cha,1993] - T. Chang, J-G Zhu, J.H. Judy, *J. Appl. Phys.* 73 (10), 6716 (1993).
- [Cha,1994] - T. Chang, J-G Zhu, *J. Appl. Phys.* 75 (10), 5553 (1994).
- [C... 88] - S.H. Charap, *J. Appl. Phys.* 63 (6), 2054 (1988).
- [Chu,1988] - E.M. Chudnovsky et L. Gunther, *Phys. Rev. Lett.* 60, 661 (1988).
- [Cla,1988] - J. Clark, A.N. Cleland, M.H. Devoret, D. Esteve et J.M. Martinis, *Science* 239, 993 (1988).
- [Del,1992] - J. von Delft et C.L. Henley, *Phys. Rev. Lett.* 69 (22), 3236 (1992).
- [Ega,1973] - T. Egami, *Phys. Stat. Sol. (a)* 20, 157 (1973).
- [Enz,1986] - R. Enz et R. Schilling, *J. Phys. C*19, L711 (1986).
- [Fer,1994] - R. Ferré, L.C. Sampaio et B. Barbara. ICM / 1994, Varsovie, Pologne.
- [Fer,1994b] - R. Ferré et B. Barbara, soumis au *Phys. Rev. Lett.*

- [Fey,1965] - R.P. Feynman, R.B. Leighton et M. Sands, The Feynman Lectures on Physics 1965, vol. 3, chp. 9.
- [Gar,1993] - A. Garg, Phys. Rev. Lett. 70 (14), 2198 (1993), A. Garg, *ibid* 71 (25), 4249 (1993) et A. Garg, Physica B 194-196, 325 (1994).
- [Gat,1994] - D. Gatteschi, A. Caneschi, L. Pardi et R. Sessoli, Science vol. 265, 1054 (1994).
- [Geo,1991] - O. Geoffroy, J.L. Porteseil, J. Magn. Magn. Mat. 97, 198 (1991).
- [Gio,1989] - N. Giordano et E.R. Schuler, Phys. Rev. Lett. 63 (21), 2417 (1989).
- [Gra,1984] - H. Grabert, U. Weiss, P. Hanggi, Phys. Rev. Lett. 52, 2193 (1984) et H. Grabert et U. Weiss, Z. Phys. B56, 171.
- [Han,1989] - S. Han, J. Lapointe et J.E. Lukens, Phys. Rev. Lett. 63 (16), 1712 (1989).
- [Han,1989] - S. Han, J. Lapointe et J.E. Lukens, Phys. Rev. Lett. 66 (6), 810 (1991).
- [Hem,1988] - J.L. Hemmem, S. Sütö, Europhys. Lett. 1, 481 (1986), et J.L. Hemmem, S. Sütö, Physica 141B, 37 (1986).
- [Hil,1990] - M. el-Hilo, S.H. Uren, K. O'Grady et J. Popplewell, IEEE Trans. on Magn., vol 26, 1, (1990).
- [Kli,1990] - I. Klik et L. Gunther, J. Appl. Phys. 67 (9), 4505 (1990).
- [Koj,1982] - H. Kojima, Ferromagnetic Materials, Ed. E.P. Wohlfarth, vol. 3, chap. 5, pag. 305 (1982).
- [Kri,1990] - I.V. Krive et O.B. Zaslavskii, J. Phys. Cond. Matter 2, 9457 (1990).
- [Kub,1985] - O. Kubo, T. Ido, H. Yokoyama, Y. Koike, J. Appl. Phys. 57 (1), 15 (1985).
- [Kub,1987] - O. Kubo, T. Ido et H. Yokoyama, IEEE Trans. on Magn., vol. MAG-23, n°5 (1987).

[Lab,1993] - A. Labarta, O. Iglesias, L.I. Balcells and F. Badia, Phys. Rev. B. 48 (14), 10240 (1993).

[Leg,1980] - A.J. Leggett, Prog. Theor. Phys. Suppl. 69, 80 (1980).

[Leg,1984] - A.J. Leggett, Cont. Phys. 25 (6), 583 (1984).

[Leg,1986] - A.J. Leggett, Les Houches Summer School on Chance and Matter, J. Souletie, J. Vannimenus et R. Stora, Eds. North-Holland, Amsterdam 1987, p. 395.

[Leg,1987] - A.J. Leggett, S. Chakravarty, A.T. Dorsey, M.P.A. Fisher, A. Garg et W. Zwerg, Rev. Mod. Phys. 59 (1), 1 (1987).

[Los,1992] - D. Loss, D.P. DiVincenzo et G. Grinstein, Phys. Rev. Lett. 69 (22), 3232 (1992).

[Luo,1991] - W. Luo, S.R. Nagel, T.F. Rosenbaum et R.E. Rosensweig, Phys. Rev. Lett. 67 (19), 2721 (1991).

[Mar,1985] - J.M. Martinis, M.H. Devoret et J. Clark, Phys. Rev. B 35 (15), 1543 (1985) et ibid. 35 (10), 4682 (1989).

[Mid,1993] - A.A. Middleton et D.S. Fisher, Phys. Rev. B, 47 (7), 3530 (1993).

[Nee,1949] - L. Néel, J. Phys. Rad., 11, 49 (1950), J. Phys. Rad. 12, 339 (1951). Voir aussi : Les Ouvres Scientifiques (CNRS, 15 Quai A. France, 75700 Paris).

[Nov,1994] - M. Novak, R. Sessoli et B. Barbara, Workshop/NATO - Chichillianne 1994.

[Ose,1985] - S.B. Oserof, D. Clark, S. Schultz et S. Shtrikman, IEEE Trans. on Magn., vol. MAG-21, n°5 (1985).

[Pau,1991] - C. Paulsen, L.C. Sampaio, B. Barbara, D. Fruchart, A. Marchand, J.L. Tholence et M. Uehara, Phys. Lett. 161, 319 (1991).

[Pau,1992] - C. Paulsen, L.C. Sampaio, B. Barbara, R. Tucoulou-Tachoueres, D. Fruchart, A. Marchand, J.L. Tholence et M. Uehara, Europ. Lett. 19 (7) 643 (1992).

[Pau,1994] - C. Paulsen, J.G. Park, R. Sessoli et B. Barbara, ICM / 1994, Varsovie, Pologne.

[Sam,1994] - L.C. Sampaio, C. Paulsen et B. Barbara, ICM / 1994, Varsovie, Pologne.

[Sch,1935] - E. Schrödinger, *Naturwiss*, 23, 807 (1935), ou J.A. Wheeler, W.H. Zurek, *Quantum Theory and Measurement*, Princeton University Press, Princeton 1983.

[Sch,1987] - G. Scharf, W.F. Wreszinski et S.L. van Hemmem, *J. Phys.* A20 4309 (1987).

[She,1993] - M.J. O'Shea et P. Perera, preprint.

[Sin,1994] - S. Singh, R.Krishnan et G.W. Robinson, *Phys. Rev. E*, 49 (4), 2540 (1994).

[Sou,1984] - R. Omari, J.J. Préjean, J. Souletie, *J. Phys. France* (45), 1809 - 1818 (1984).

[Sta,1994] - L.B. Stahel et O.G. Symko, *Phys. Lett. A* 166, 399 (1992).

[Sta,1992] - P.C.E. Stamp, E.M. Chudnovsky et B. Barbara, *Int. J. of Mod. Phys. B*, 6 (9), 1355 (1992).

[Sta,1976] - D. Stauffer, *Sol. Stat. Comm.* 18, 533 (1976).

[Sto,1948] - E.C. Stoner et E.P. Wohlfarth, *Trans. R. Soc.* 240A, 599 (1948).

[Str,1949] - R. Street & J.C. Woolley, *Proc. Phys. Soc. A* 62, 562 (1949).

[Tej,1993] - J. Tejada, X.X. Zhang, E.M. Chudnovsky, *Phys. Rev. B* 47 (22) 14977 (1993).

[Tob,1988] - V.M. Tobin, S. Schultz, C.H. Chan et S.B. Oserof, *IEEE Trans. on Magn.*, vol. MAG-24, n° 6 (1988).

[Ueh,1986] - M. Uehara, B. Barbara, B. Dieny et P.C.E. Stamp, *Phys. Lett.* 114 A (1), 23 (1986) et M. Uehara, B. Barbara, *J. Physique* 47, 235 (1986).

[Vic,1989] - R.H. Victora, *Phys. Rev. Lett.*, 63 (4), 457 (1989).

[Vil,1994] - L. Villain, F. Hartman-Boutron, R. Sessoli et A. Retton, Europhys. Lett. 27 (2), 159 (1994).

[Vin,1994] - E. Vincent, J. Hammann, P. Prené et E. Tronc, J. Phys.I France (4), 273 (1994).

[Weg,1994] - soumis au Europhys. Lett.

[Wei,1954] - L. Weil, J. Chim. Phys., 725 (1954).

[Wer,1994] - W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara et A. Benoit, ICM / 1994, Varsovie, Pologne.

[Zha,1994] - X.X. Zhang et J. Tejada, J. Appl. Phys. 75 (10) 5637 (1994).

[Zwi,1992] - H. Zwirn, Pour la Science, 182, 38 (1992).

