

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Physique - Nanophysique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Yann Perrin

Thèse dirigée par **Nicolas Rougemaille** et
codirigée par **Benjamin Canals**

préparée au sein du **CNRS, Institut Néel**
dans **l'École Doctorale de physique de Grenoble**

Réseaux artificiels à frustration géométrique

Thèse soutenue publiquement le **21 octobre 2016**,
devant le jury composé de :

M. Peter HOLDSWORTH

Rapporteur

M. André Thiaville

Rapporteur

Mme Virginie Simonet

Présidente

M. Daniel LACOUR

Examineur

M. Nicolas ROUGEMAILLE

Directeur de thèse

M. Benjamin CANALS

Coencadrant de thèse



Remerciements

Je tiens avant tout à remercier Nicolas et Benjamin pour leur encadrement de grande qualité, aussi bien sur le plan humain que scientifique, ce qui a grandement contribué à la réussite de ma thèse. Vous m'avez laissé une grande liberté dans la conduite de mes recherches, tout en maintenant un cadre solide (mais pas rigide !). Vous n'avez pas été avares en précieux conseils pour la préparation de ma thèse et pour la suite de ma carrière. Durant ces trois années et demie à travailler ensemble, nous nous sommes bien marrés aux pauses café, en manips, en conférence... mais nettement moins lorsqu'il fallait préparer un oral ! Ce fut un plaisir de travailler avec vous et je pense qu'Élie est entre de bonnes mains. J'en profite pour lui souhaiter bonne chance pour sa thèse !

Je remercie chaleureusement les membres de mon jury Virginie Simonet, Daniel Lacour, André Thiaville et Peter Holdsworth pour avoir accepté de consacrer du temps à l'aboutissement de cette thèse. Merci pour vos remarques qui ont permis d'améliorer ce tapuscrit. Merci à mes rapporteurs André et Peter, qui ont eu le courage de lire attentivement ma prose dans ses moindre détails. J'espère que ce fut une expérience agréable.

Ce travail n'aurait pas été possible sans l'aide des nombreuses personnes impliquées dans les composantes techniques et administratives inhérentes à toute thèse. Un grand merci à Thierry Fournier, qui m'a appris à faire les fameuses « lithos ». Merci à Jeff, Thierry Crozes, Seb, Gwen, Bruno, Philippe et Corinne Perret pour les formations et les dépannages sur les machines de microfabrication. Je dois aussi remercier Dai pour son aide lors de mes premiers dépôts de permalloy.

Mais fabriquer des échantillons est inutile si l'on ne les regarde pas, et pour cela Simon et Olivier m'ont été d'une aide précieuse. Au début de mon stage, ils m'ont formé à l'AFM et au MFM. Ils ont par la suite toujours été présents pour résoudre les bugs et me prodiguer leurs précieux conseils. De même, nos expériences d'imagerie PEEM n'auraient pas pu être menées sans la participation de nombreuses personnes. Mille merci aux beamtime's guys Onur, Andrea et Alessandro du synchrotron ELETTRA ainsi qu'à Lucia et Michael d'ALBA pour leur savoir faire, et pour nous avoir laissé faire des nuits sur leurs instruments. Heureusement que Dan, Damien, François et Michel étaient là pour nous prêter main-forte ! Je n'oublierai pas toutes ces bières et ces pizzas englouties, une vraie bombe « superatomica » à la sauce Duchesse de Bourgogne ! Merci à Aurélien le toulousain pour son investissement dans le projet des bancs de poissons, même si nos résultats n'étaient pas terribles...

Je remercie également les membres de l'équipe MNM pour leur accueil, leur conseils et les coups de mains. Il n'était pas toujours facile de se rendre à la réunion d'équipe du lundi matin ! Enfin, merci beaucoup à Sabine Gadad, Florence Pois, Mathilde Mauro, Jordan François, Émeline Mendez et Sandrine Ferrari pour avoir su démêler mes déboires avec l'administration, les missions, l'université...

L'Institut Néel étant aussi un lieu de rencontres, j'ai eu la joie d'y découvrir des personnes remarquables et d'y nouer de nombreuses amitiés. Je pense en particulier à AbdelKarim, Gogo, Alexandre, Alexis, Émilie, Ioan, Élie et Chloé. En plus d'être un ami, Ioan m'a beaucoup aidé pour ma thèse et m'a montré le chemin de l'honnêteté ; multumesc ! Merci aussi à Karim pour ses explications théoriques qui m'ont bien dépanné, même si tu me parlais parfois en

chinois... Je n'oublierai pas nos apéros tous ensemble, nos barbecues, nos « bouteilles de Perrier azotées » ni nos pauses café avec le hamster boiteux José-Ioan. À l'Institut, j'ai aussi rencontré des vieux très sympa, comme l'indécent Édouard, David premier ou les cégétistes Pierre et Lilian. Je remercie chaleureusement toute l'équipe du midi, pour tous ces déjeuners dans la bonne humeur et pour les restes que vous me laissiez parfois. Même si les tables de quinze sont devenues de moins en moins courantes, j'en garde un très bon souvenir. Et merci à la dame des badges de cantine, pour sa patience et sa bonne humeur !

Je remercie tous mes camarades passés par l'open space, avec une mention spéciale à Glandré et Gildas pour les pauses bière et les batailles de cale-wafers, qui nous ont fait perdre des après-midis entiers... Je n'oublierai pas non plus mes camarades d'infortune de la webteam, avec qui j'ai passé mes mercredis matins à manger des croissants en construisant le site web des non-permanents, qui est maintenant à l'abandon ! Je remercie Jorge d'avoir bien voulu reprendre ma place au conseil de labo, j'espère qu'il ne le regrette pas... Merci aux organisateurs des séminaires non-permanents passés et présents, qui nous ont permis de nous retrouver régulièrement dans des moments conviviaux. Merci aussi à Clément pour ses soirées nanars. Un grand merci à Pierre Molho et Florence Fernandez qui m'ont fait découvrir le plaisir de la vulgarisation scientifique, en participant entre autres aux fêtes de la science. Je remercie aussi mes collègues de Phelma avec qui j'ai encadré les séances de travaux pratiques, en particulier Fabien pour sa bonne humeur.

J'ai été très touché par la venue de ma famille proche pour ma soutenance. Un grand merci à vous tous pour avoir été présents ce jour là. Ce fut un réel plaisir de vous recevoir à Grenoble. Merci à mes parents pour leur soutien et la totale liberté qu'ils m'ont laissée au cours de mon cursus scolaire et universitaire.

Je remercie mes amis de la fac Clément, Guillaume, Martin, Anaïs, Roro, Yohann, Trash et Bitou qui se sont déplacés jusqu'à Grenoble pour assister à ma soutenance. Votre présence m'a fait très plaisir !

Je terminerai en remerciant Marine du fond du cœur, elle qui a tant contribué à mon épanouissement ces dernières années. Merci d'être là, c'est une vraie joie pour moi d'être à tes côtés.

Résumé

Certains composés cristallins, comme la glace ou les glaces de spin, présentent la caractéristique de ne pas s'ordonner à basse température. Ce comportement surprenant trouve son origine dans le phénomène de frustration. Celui-ci apparaît en présence de forces en compétition qui ne peuvent pas être simultanément satisfaites. Cette frustration donne lieu à des états exotiques de la matière, désordonnés mais pourtant fortement corrélés. Les composés frustrés sont étudiés en matière condensée depuis plusieurs décennies. Mais à ce jour, les techniques expérimentales ne permettent pas d'accéder aux configurations locales de ces systèmes. Les réseaux de nanoaimants semblent être de bons candidats pour contourner cette difficulté. La taille typique de ces nanoaimants est de quelques centaines de nanomètres. Les techniques d'imagerie magnétique permettent donc d'observer chaque objet individuellement. Il est alors possible d'étudier localement comment les degrés de liberté s'accommodent de la frustration. De plus, leur géométrie est aisément modulable puisqu'ils sont fabriqués par lithographie. Il est donc possible de fabriquer des objets qui n'ont pas d'équivalent naturel. L'intérêt porté aux réseaux de nanoaimants provient de cette grande flexibilité, alliée à la possibilité d'observer les configurations locales.

Depuis les travaux pionniers de Wang *et al.* [104], le réseau carré de nanoaimants a reçu une grande attention. Il a été conçu dans le but de réaliser expérimentalement le modèle de Lieb, aussi appelé « glace carrée ». Ce modèle, qui a déjà fait l'objet de plusieurs études théoriques, est un analogue bidimensionnel de la glace et des glaces de spin. Mais pour des raisons géométriques, le réseau de nanoaimants carré ne présente pas les propriétés attendues : il s'ordonne au lieu de présenter des états de basse énergie désordonnés. C'est pourquoi la communauté s'est tournée vers d'autres géométries. Mais à ce jour, les états de basse énergie du modèle de Lieb n'ont pas été observés expérimentalement. Cette thèse vise à réaliser et à étudier ce modèle grâce aux réseaux de nanoaimants.

Nous explorons dans ce manuscrit une première approche, qui consiste à ajouter des aimants supplémentaires au réseau carré initial. Nous prouvons que cette solution permet théoriquement d'obtenir une physique de glace dans le système. Expérimentalement, les aimants additionnels produisent l'effet recherché, mais un biais dans nos expériences masque les corrélations que nous recherchons. Nous observons toutefois qu'ils ont une influence notable sur les fluctuations et les excitations du réseau.

Notre seconde approche consiste à surélever la moitié des nanoaimants du réseau carré. Les travaux théoriques prouvent qu'une physique de glace peut être rétablie en ajustant cette surélévation. Nous avons réussi à élaborer un tel système et à étudier ses états de basse énergie. Expérimentalement, l'effet de la surélévation concorde parfaitement avec nos prévisions. Notre analyse prouve que nous avons réussi à réaliser le modèle de Lieb avec des nanoaimants. Les facteurs de structure magnétiques obtenus présentent des points de pincement, signature d'un liquide de spin algébrique. Cette approche permet de visualiser pour la première fois des configurations magnétiques appartenant à une phase de Coulomb. Ce travail ouvre des perspectives intéressantes pour l'étude des excitations de cette phase, analogues à des monopoles magnétiques classiques.

Abstract

Some crystalline compounds, such as ice or spin ices, remain disordered at low temperature. This surprising behaviour is due to the phenomenon of frustration. Frustration arises in the presence of competing forces that can not be simultaneously satisfied. It can lead to highly correlated and disordered states. Frustrated compounds have been studied in condensed matter for decades. But state of the art experimental techniques do not provide a local access to the spins degree of freedom in these systems. Arrays of nanomagnets appears as good candidates to overcome this issue. Their are made of few hundreds nanometers sized magnetic islands, which can be easily observed using magnetic imaging techniques. It is then possible to investigate how the magnets locally accommodate to frustration. Arrays of nanomagnets are made using highly flexible lithography techniques. It is therefore possible to realise systems which do not have any natural counterpart. This high flexibility, combined with the ability to image local information, explain the broad interest of the community for these arrays.

Since the pioneering works of Wang *et al.* [104], many studies have been devoted to square geometry. This geometry was first designed for realising the so-called Lieb square ice model. Previous theoretical studies have been dedicated to this model, which can be viewed as a two dimensional version of ice and spin ices. But for geometrical reasons, square arrays of nanomagnets do not show the expected behaviour : the system orders, instead of having a disordered low-energy manifold. The community then focuses on other geometries. Up to now, the low-energy manifold of the Lieb model has never been experimentally revealed. This thesis aims to overcome this issue and to investigate the Lieb square ice model using arrays of nanomagnets.

The first approach presented here consists to add small magnetic islands next to the magnets which form the square arrays. We prove that these additional magnets provide a fine tuning of the effective couplings between the nanomagnets. An ice physics can be then recovered in the system. Experimentally, we observe that additional magnets avoid the formation of an ordered ground state in the network. But the spin liquid correlations were hidden by an experimental bias. We report however an unexpected phenomenon, where additional magnets influence thermal fluctuations in the network.

We then explore a different approach, where one of the two sublattices is raised above the substrate. Theoretical works showed that an ice physics can be restored by introducing a specific height offset. We succeed to realise experimentally such a network and to study its low-energy manifold. We observe a perfect match between our experiments and the expected effect of the height offset. From our analysis, we argue that we succeed to realise the Lieb model using nanomagnets. Experimental magnetic structure factors clearly show the pinch points associated with an algebraic spin liquid. Our approach reveals a bidimensional Coulomb phase in real space for the first time. This works opens new avenues for the study of excitations within a Coulomb phase, analogous to classical magnetic monopoles.

Introduction

Cette thèse a été effectuée à l’Institut Néel (CNRS), au sein de l’équipe Micro et Nanomagnétisme (MNM), sous la codirection de Nicolas Rougemaille et de Benjamin Canals. Elle porte sur les réseaux de nanoaimants à frustration géométrique. Ce sujet, qui a émergé il y a maintenant dix ans, se situe à l’interface entre le nanomagnétisme et les modèles de spins étudiés en physique statistique. L’objectif principal de cette thèse est la réalisation d’un modèle de vertex connu sous le nom de « glace carrée », ou « modèle de Lieb », du nom du physicien qui a calculé l’entropie de ce modèle. Il n’a à ce jour aucun équivalent expérimental connu, mais les réseaux de nanoaimants apparaissent comme prometteurs pour observer ses propriétés physiques singulières. Comme nous allons le voir, le modèle de glace carrée fait partie de la classe plus large des systèmes physiques à frustration géométrique. Ces derniers font l’objet de nombreuses investigations expérimentales et théoriques depuis plusieurs décennies en matière condensée. Le phénomène de frustration apparaît en présence de forces en compétition qui ne peuvent pas être simultanément satisfaites. Il est à l’origine de divers comportements inhabituels de la matière, qui peuvent se traduire, selon les systèmes, par des propriétés thermodynamiques ou magnétiques atypiques, des phases magnétiques exotiques, l’émergence de quasiparticules, des ordres non-conventionnels, un désordre à basse température... la diversité des systèmes frustrés rend ardu l’établissement d’une liste exhaustive.

Le premier chapitre de ce manuscrit vise à introduire le concept général de frustration et quelques phénomènes associés, puis à établir un état de l’art des réseaux frustrés artificiels. Un intérêt particulier est porté aux réseaux de nanoaimants qui font l’objet de cette thèse. Le second chapitre, plus technique, introduit les outils et la méthodologie que nous emploierons pour l’étude expérimentale et théorique de ces réseaux. Les deux chapitres suivants sont dédiés à deux approches expérimentales distinctes, permettant de réaliser le modèle de Lieb avec des nanoaimants. À cette occasion, nous présenterons la première observation directe d’une phase de Coulomb dans un réseau artificiel.

Table des matières

| | |
|---|-----------|
| 1 Frustration géométrique et réseaux artificiels | 9 |
| 1.1 Effet de la frustration sur un système physique | 10 |
| 1.1.1 Modèle de Curie-Weiss | 10 |
| 1.1.2 Systèmes frustrés | 11 |
| 1.1.3 Exemple de la glace | 13 |
| 1.1.4 Glaces de spin | 15 |
| 1.2 Glace carrée bidimensionnelle | 18 |
| 1.2.1 Modèle à 16 vertex | 19 |
| 1.2.2 Modèles à 6 vertex | 20 |
| 1.2.3 Propriétés du modèle de glace carrée | 22 |
| 1.3 Systèmes frustrés artificiels | 24 |
| 1.3.1 Réalisations pionnières | 25 |
| 1.3.2 Réseaux de nanoaimants | 27 |
| 1.3.3 Désaimantation en champ | 32 |
| 1.3.4 Réseaux thermiquement actifs | 35 |
| 1.3.5 Intérêt en nanomagnétisme | 39 |
| Conclusion et objectifs de la thèse | 39 |
| 2 Concepts pour l'étude des réseaux de nanoaimants | 41 |
| 2.1 Outils d'analyse de réseaux | 41 |
| 2.1.1 Quantités dénombrables | 42 |
| 2.1.2 Corrélations de spin dans le réseau direct | 45 |
| 2.1.3 Facteur de structure magnétique | 46 |
| 2.2 Modélisation micromagnétique | 51 |
| 2.2.1 Rappels de magnétisme | 51 |
| 2.2.2 Éléments de micromagnétisme | 54 |
| 2.2.3 Simulations micromagnétiques par différences finies | 56 |
| 2.2.4 Application aux glaces artificielles | 58 |
| 2.3 Modèles simplifiés | 60 |
| 2.3.1 Point de vue du dipôle ponctuel | 60 |
| 2.3.2 Modèle de charges magnétiques | 61 |
| 2.3.3 Distribution de Boltzmann | 63 |
| 2.4 Analyse spectrale du hamiltonien | 65 |
| 2.4.1 Spectre dans l'espace réciproque | 65 |
| 2.4.2 Influence du rapport $\frac{J_1}{J_2}$ sur le spectre | 68 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 2.4.3 | Interprétation des vecteurs propres | 72 |
| | Conclusion | 76 |
| 3 | Glace carrée dopée | 78 |
| 3.1 | Analyse spectrale | 80 |
| 3.1.1 | Spectre pour un modèle J_1, J_2, J_3 | 80 |
| 3.1.2 | Comparaison avec le modèle de glace dégénérée | 82 |
| 3.1.3 | Comparaison par calcul des vecteurs propres | 85 |
| 3.2 | Étude dans l'espace direct | 87 |
| 3.2.1 | Analyse du modèle J_1, J_2, J_3 dans le réseau direct | 87 |
| 3.2.2 | Interactions à longue portée | 88 |
| 3.2.3 | Absorbeurs dans un modèle de charges magnétiques | 89 |
| 3.3 | Étude micromagnétique d'un vertex isolé | 91 |
| 3.3.1 | Contrôle des niveaux d'énergie | 92 |
| 3.3.2 | Effet des autres paramètres libres | 94 |
| 3.3.3 | Conclusion des simulations micromagnétiques | 95 |
| 3.4 | Étude expérimentale de la glace carrée dopée | 96 |
| 3.4.1 | Détails expérimentaux | 97 |
| 3.4.2 | Effet des absorbeurs sur les configurations magnétiques | 100 |
| 3.4.3 | Fluctuations thermiques | 104 |
| | Conclusion | 109 |
| 4 | Glace carrée surélevée | 111 |
| 4.1 | Rétablir la dégénérescence de l'état fondamental | 113 |
| 4.1.1 | Effet de la surélévation sur le spectre en énergie | 113 |
| 4.1.2 | Étude micromagnétique | 117 |
| 4.2 | Phases magnétiques obtenues par désaimantation en champ | 120 |
| 4.2.1 | Désaimantation numérique | 121 |
| 4.2.2 | Phases ordonnées dans le réseau carré | 123 |
| 4.2.3 | Liquide de spin ou coexistence de phases AF/M | 126 |
| 4.3 | Résultats expérimentaux | 128 |
| 4.3.1 | Fabrication et aspects techniques | 129 |
| 4.3.2 | Variation de la géométrie à surélévation fixe | 131 |
| 4.3.3 | Variation de la surélévation à géométrie fixe | 133 |
| | Récapitulatif | 138 |
| 5 | Conclusion et perspectives | 140 |
| A | Énergie micromagnétique d'un vertex | 154 |
| B | Microfabrication | 157 |
| C | Microscopie à force magnétique | 160 |
| D | Imagerie XMCD-PEEM | 164 |

| | | |
|---|---|-----|
| E | Glace carrée surélevée thermiquement active | 167 |
| F | Corrélations de monopoles | 170 |

Chapitre 1

Frustration géométrique et réseaux artificiels

Le phénomène de frustration a été introduit en matière condensée pour expliquer les propriétés atypiques de certains composés naturels ou synthétiques. Le cas de la glace est remarquable. Dans sa phase hexagonale, les molécules d'eau sont localisées sur des sites bien déterminés et forment un cristal en apparence ordonné. Mais les différentes orientations que chaque molécule peut adopter engendre une indétermination, à l'origine d'un certain désordre. Cela n'est pas sans conséquences sur les propriétés thermodynamiques de la glace. Elle possède notamment une entropie résiduelle à basse température, qui a été mesurée dès le début du XXe siècle [26]. Nous expliquerons dans ce chapitre comment la frustration peut mener à cette entropie résiduelle.

Le phénomène de frustration apparaît en présence de forces en compétition qui ne peuvent pas être simultanément satisfaites. Cela se traduit par des contraintes contradictoires qui ne peuvent pas se propager dans l'espace. D'abord propre à la matière condensée, ce concept a plus récemment été étendu à d'autres champs, comme la biologie [107], les polymères [37] ou le magnétisme moléculaire [114]. D'un point de vue applicatif, les composés et les molécules magnétiquement frustrés présentent un intérêt en cryogénie et en réfrigération. Grâce à leurs propriétés magnéto-caloriques, ils apparaissent comme de bons candidats pour la technique de désaimantation adiabatique [93].

En matière condensée, des phénomènes originaux ont pu être mis en évidence dans les composés magnétiquement frustrés comme les glaces de spin. De manière analogue à la glace, elles présentent une entropie résiduelle à basse température [83]. Des études plus récentes y ont révélé d'autres effets exotiques, comme l'émergence de quasi-particules fractionnaires [9], les transitions d'ordre par le désordre [11], la fragmentation de spin [5, 78] ou l'apparition d'ordres magnétiques complexes.

Dans ce premier chapitre bibliographique, nous commencerons par introduire le concept de frustration géométrique. Une attention particulière sera portée au cas historique de la glace. Nous présenterons ensuite certains aspects essentiels des modèles de vertex, intimement liés à ce travail de thèse. Enfin, nous aborderons le cas des systèmes frustrés artificiels en insistant sur les réseaux de nanoaimants, qui font l'objet des chapitres suivants.

1.1 Effet de la frustration sur un système physique

Avant d'aborder la physique de la frustration, nous allons rappeler quelques propriétés d'un système conventionnel. Le paragraphe suivant s'inspire de l'étude de Kochmanski *et al.* [44].

1.1.1 Modèle de Curie-Weiss

Considérons un système de N spins Ising classiques s_i en interaction ferromagnétique sur un réseau quelconque. Chaque variable Ising prend la valeur $+1$ ou -1 . Nous notons J le couplage entre spins premiers voisins. Nous supposons ici l'absence de tout champ magnétique externe. Ce problème peut être traité dans l'approximation de champ moyen ; nous nous contentons ici de rappeler les résultats essentiels concernant la transition para-ferromagnétique.

La figure 1.1a représente l'évolution de l'aimantation M en fonction de la température T . Elle fait apparaître une température caractéristique $T_c = \frac{J}{k_B}$. Au delà de T_c , l'aimantation est nulle, le système est paramagnétique. En deçà, une aimantation spontanée apparaît dans le système qui devient ferromagnétique. Il s'ordonne en privilégiant une direction de l'espace (vers le haut ou vers le bas sur la figure 1.1a). La transition ferromagnétique implique donc une brisure spontanée de symétrie.

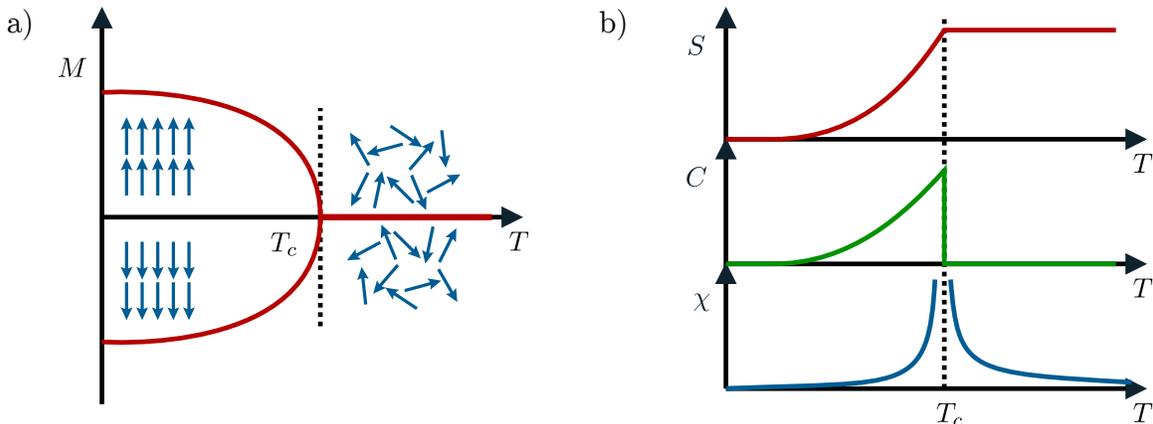


FIGURE 1.1 – a) Évolution de l'aimantation M en fonction de la température T , montrant l'apparition d'un ordre ferromagnétique à la température critique T_c . b) Variation de l'entropie S , de la chaleur spécifique C et de la susceptibilité magnétique χ en fonction de la température T .

Les variables thermodynamiques présentent un comportement singulier à $T = T_c$. La figure 1.1b représente l'entropie S et la chaleur spécifique C en fonction de T . L'entropie décroît avec la température et un pic de chaleur spécifique apparaît à $T = T_c$. Comme cette transition implique une divergence de la susceptibilité magnétique χ , il s'agit d'une transition du second ordre. L'aimantation M est un bon paramètre d'ordre pour caractériser la phase ferromagnétique. Au voisinage de T_c , avec $T_c > T$, les corrélations de spin c_{ij} sont exponentielles :

$$c_{ij} \sim \exp \frac{-r_{ij}}{\xi}$$

où $\xi = (T_c - T)^{-\nu}$ est une longueur de corrélation, qui dépend de T_c et d'un exposant critique ν . Cette longueur de corrélation diverge à la température de transition. Cela signifie que le système se trouve dans un état critique.

L'état fondamental du modèle considéré ici est clairement défini puisqu'il est possible de satisfaire l'ensemble des liaisons en fixant les variables Ising à $+1$ ou -1 . C'est pourquoi l'état ferromagnétique s'établit progressivement lorsque l'énergie thermique devient inférieure au couplage entre les spins. Nous allons voir que dans les systèmes frustrés, l'impossibilité de satisfaire toutes les interactions empêche l'établissement d'un ordre à grande échelle.

1.1.2 Systèmes frustrés

Pour introduire la notion de frustration, nous allons placer des pastilles colorées sur différents types de polygones. La couleur d'une pastille représente un degré de liberté de type Ising, les deux états accessibles étant les couleurs rouge (R) et bleu (B). Physiquement, ces couleurs peuvent représenter des charges électriques, des spins, ou la position d'atomes par exemple. Les pastilles sont en interaction antiferromagnétique, c'est à dire qu'une liaison R-B est plus favorable énergétiquement qu'une liaison B-B ou R-R. La figure 1.2 représente les états de plus basse énergie pouvant être obtenus en plaçant les pastilles aux angles de plusieurs polygones. Si le nombre d'angles est pair, il n'existe que deux états de basse énergie, symétriques par renversement du temps. C'est le cas du segment, du carré et de l'hexagone. Pour les polygones au nombre d'angles impair, une liaison est nécessairement non-satisfaite. Cette frustration engendre une bien plus grande multiplicité de l'état fondamental : 6 pour le triangle, 10 pour le pentagone, 14 pour l'heptagone etc.

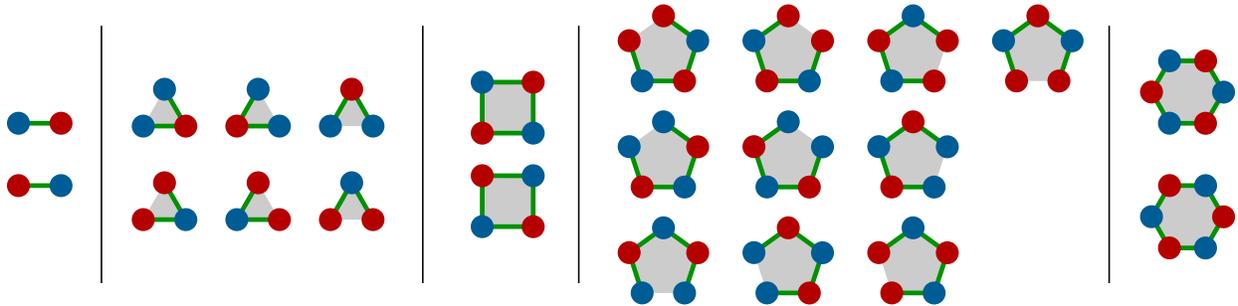


FIGURE 1.2 – États de plus basse énergie de différents polygones. Les polygones au nombre d'angles impair présentent un état fondamental plus dégénéré. Les liaisons satisfaites apparaissent en vert.

La multiplicité des états de basse énergie est exacerbée par la connexion de motifs élémentaires frustrés. Pour montrer cette propriété, créons une chaîne avec le motif triangulaire : en partant d'une des six configurations de basse énergie, nous faisons croître la chaîne en connectant les triangles par les sommets. Il apparaît sur la figure 1.3 qu'à chaque nouvelle génération, chaque état donne naissance à trois nouvelles possibilités. Le nombre d'états de basse énergie Ω semble augmenter de façon exponentielle en fonction de nombre de pastilles N : $\Omega \sim q^N$ ($q > 1$). Le calcul exact du nombre de configurations de basse énergie de tout un réseau est souvent un problème complexe. Cela dépend du motif élémentaire, de la connectivité du réseau et de sa dimensionnalité. À partir de la définition de l'entropie statistique

$S = k_B \ln \Omega$, l'entropie par site de la chaîne de triangles s'exprime, à basse température, $S = k_B \ln q$. Elle possède une valeur finie indépendante de la température. Elle est à l'origine de propriétés thermodynamiques atypiques. Le système pourrait fluctuer même lorsque la température tend vers le zéro absolu. Nous avons vu au §1.1.1 qu'un milieu ferromagnétique s'ordonne en dessous de sa température de Curie $T_c = \frac{J}{k_B}$. Les systèmes frustrés, eux, présentent des transitions de phase à des températures $T \ll T_c$.

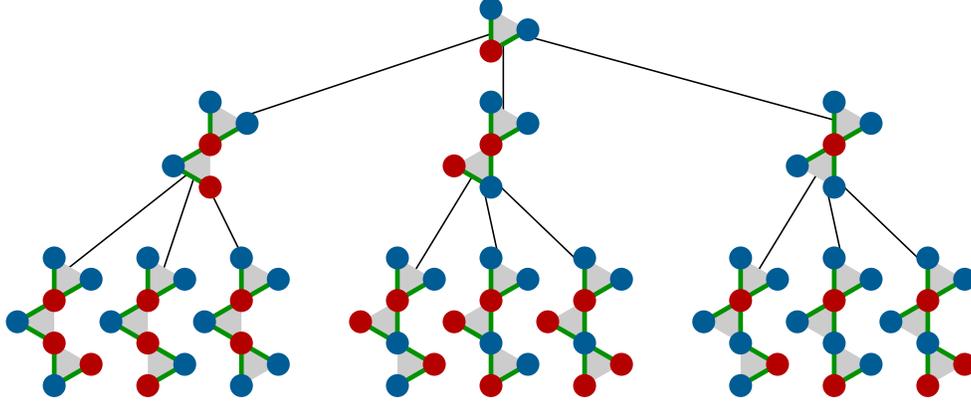


FIGURE 1.3 – Croissance d'une chaîne de triangles à sommets jointifs, illustrant l'augmentation exponentielle de la dégénérescence de son état fondamental.

Frustration géométrique La frustration apparaît en présence de forces en compétition et/ou lorsque la structure du réseau empêche la minimisation simultanée des énergies d'interaction. Dans le cas du triangle ou du pentagone, la géométrie induit une contradiction lors du placement des pastilles, empêchant l'ordre local de se propager dans l'espace. Cette contradiction subsiste à l'échelle d'un réseau. Comme nous allons le voir, les systèmes frustrés sont étudiés depuis les années 30. Le terme de frustration est introduit par Anderson, puis repris en 1977 par Toulouse qui formule un critère pour déterminer si un hamiltonien est frustré. Ce critère se traduit par la mesure de la parité de boucles fermées : un réseau est frustré s'il existe une boucle fermée \mathcal{L} pour laquelle $(-1)^{N_{AF}} = -1$. Ici, N_{AF} représente le nombre de liaisons antiferromagnétiques traversées par \mathcal{L} . La figure 1.4 illustre ce critère avec quatre réseaux possédant des liaisons antiferromagnétiques. Sur cette figure, seul le réseau carré avec des interactions à courte portée (cf. fig. 1.4c) n'est pas frustré. Il est possible de tracer des boucles paires ou impaires dans les autres réseaux. D'après cette définition, la frustration ne devrait exister qu'en présence d'interactions antiferromagnétiques. Mais nous verrons que des composés frustrés ferromagnétiques existent aussi.

Lacorre propose de déterminer le niveau de frustration d'un réseau par un critère énergétique, la fonction de contrainte [46]. Notons E_{GS} l'énergie minimale qui puisse être obtenue dans un réseau donné. Notons E_{min} l'énergie calculée en satisfaisant toutes les liaisons, sans tenir compte des contraintes locales. Un système n'est pas frustré si le rapport $\frac{E_{GS}}{E_{min}} = 1$. C'est le cas du segment, du carré et de l'hexagone de la figure 1.2. Pour le triangle et le pentagone, $\frac{E_{GS}}{E_{min}}$ vaut respectivement $\frac{1}{3}$ et $\frac{3}{5}$. D'après ce critère, le triangle serait donc plus frustré que l'hexagone. Remarquons qu'un rapport $\frac{E_{GS}}{E_{min}} = -1$ correspond à une frustration maximale. La frustration d'un système pourrait aussi être définie de manière entropique :

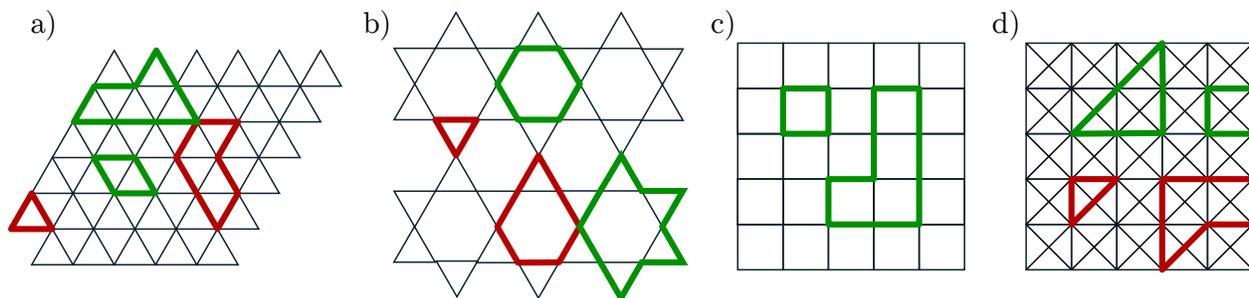


FIGURE 1.4 – La frustration d’un système antiferromagnétique se révèle par l’existence de boucles fermées passant par un nombre impair de liaisons. C’est le cas des boucles rouges. Les boucles paires sont tracées en vert. a) Réseau triangulaire, b) réseau kagomé, c) réseau carré, d) réseau carré avec des interactions seconds voisins.

plus un système est frustré, plus son état fondamental est dégénéré et son entropie résiduelle élevée.

Influence de la connectivité et de la portée des interactions Les réseaux triangulaire et kagomé représentés en figure 1.4a et b sont construits à partir de la même brique de base : le triangle. Mais il se différencie par la connectivité de ces triangles : par les arrêtes pour le premier, par les sommets pour le second. L’entropie résiduelle du réseau triangulaire antiferromagnétique a été calculée par Wannier en 1950. Grâce à la méthode de Kaufman-Onsager, il a obtenu une entropie résiduelle $S = 0.338314R$, où R est la constante de Boltzmann rapportée à une mole [105]. En 1953, Kanô et Naya ont montré que l’entropie résiduelle du réseau kagomé est plus élevée : $S = 0.50183R$ [38]. Connecter les triangles par les arrêtes transmet plus de contraintes entre premiers voisins. C’est pourquoi le réseau triangulaire est moins frustré et son entropie résiduelle plus faible.

La portée des interactions joue aussi un rôle, particulièrement visible dans le cas de la géométrie carrée. Le réseau carré n’est pas frustré si les interactions sont restreintes aux premiers voisins (cf. fig.1.4c). En étendant cette interaction aux seconds voisins (1.4d), de nouveaux chemins permettent l’existence de produits de boucles négatifs ; la frustration apparaît. Nous nous sommes restreints au cas d’école des spins Ising antiferromagnétiques sur des réseaux plans. Mais la dimensionnalité des spins (Ising, XY, Heisenberg) et du réseau (1d, 2d, 3d) joue aussi un rôle. Dans la partie suivante, nous allons traiter le cas de la glace, qui est un composé frustré naturel.

1.1.3 Exemple de la glace

Historiquement, la glace fut le premier composé frustré mis au jour. Ce solide présente des propriétés inhabituelles : les expériences de diffraction X ont montré que les molécules sont positionnées périodiquement, mais il subsiste pourtant un désordre, lié aux degrés de liberté des atomes d’hydrogène [1]. La glace présente plus d’une dizaine de phases selon les conditions de température et de pression. À pression atmosphérique, elle se trouve dans une phase hexagonale (Ih) ou, pour des températures inférieures à 70 K, dans une phase cubique (XI). Nous nous intéressons ici à la phase Ih ; la phase XI présente des propriétés similaires.

Entropie manquante Au début du XXe siècle, les expérimentateurs remarquèrent une incohérence entre l'entropie absolue de l'eau mesurée par spectroscopie et celle calculée par calorimétrie. Expliquons succinctement le principe de cette dernière méthode : la chaleur spécifique C_p d'un corps de masse m s'obtient en mesurant le transfert de chaleur δQ engendré par une variation de sa température dT .

$$C_p = \frac{\delta Q}{m dT}$$

L'entropie à une température T se calcule alors en intégrant C_p du zéro absolu à T :

$$S(T) = \int_{T=0}^T C_p(T) \frac{dT}{T}$$

Les mesures expérimentales peuvent être extrapolées jusqu'à 0 K grâce à la fonction de Debye. Cette méthode nécessite la connaissance d'une entropie de référence. Le troisième principe de la thermodynamique fixe à zéro l'entropie d'un corps pur à température nulle (formulation de Nernst). Cela permet de fixer le point $S(0) = 0$.

Par une méthode spectroscopique, il est également possible de déterminer l'entropie d'un gaz de manière absolue, c'est à dire sans point de référence. Dans le cas de l'eau, les deux entropies ne correspondent pas. À mesure que la précision des expériences augmente, cette incohérence devient une certitude. Un mauvais équilibre thermique au cours des mesures de chaleur spécifique est alors l'explication avancée. En 1936, Giaouque et Stout effectuent des mesures calorimétriques très lentes sur la glace jusqu'à une température de 16K. Ils mesurent un écart de $0.82 \text{ cal.K}^{-1}\text{mol}^{-1}$ par rapport à la valeur spectroscopique [26]. L'existence d'une entropie résiduelle à basse température, à l'encontre du principe de Nernst, ne laisse plus de doute.

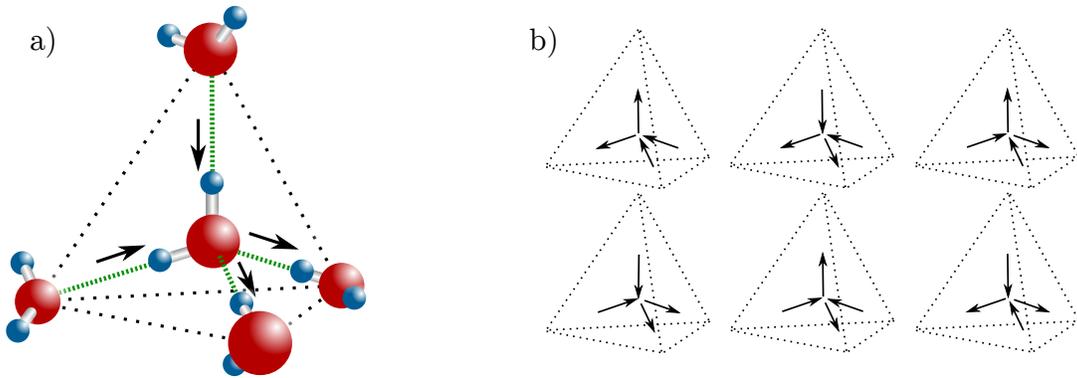


FIGURE 1.5 – a) Schéma de la structure locale des molécules d'eau dans la glace. Les ponts hydrogène apparaissent en pointillés verts. Les flèches symbolisent le décalage des atomes d'hydrogène par rapport à la position centrale. b) Schéma des six configurations de basse énergie dégénérées. Elles correspondent aux différentes orientations des molécules d'eau.

Règles de la glace En 1935, sur la base des travaux de Bernal et Fowler [1], le chimiste L. Pauling propose une explication à cette entropie résiduelle en utilisant un raisonnement

de mécanique statistique [76]. Dans la phase Ih de la glace, les atomes d'oxygène forment un réseau de type diamant. Chaque atome d'oxygène est lié à quatre atomes d'hydrogène, par deux liaisons covalentes et deux ponts hydrogène. La structure de la glace est représentée en figure 1.5a. Comme les deux types de liaisons O-H n'ont pas la même nature, les atomes d'hydrogène ne sont pas centrés entre les atomes d'oxygène. La distance O-O est de 2.75 Å, tandis que la liaison covalente O-H est longue d'un Å seulement. Chaque atome H est donc décalé de $\delta L = 0.37$ Å vers un des deux atomes O.

Ces contraintes, appelées règles de la glace (*ice rule*) suffisent à expliquer pourquoi la glace ne s'ordonne pas à basse température. Comme les quatre liaisons O-O ont deux états possibles (selon le signe de δL), $2^4 = 16$ états sont dénombrables pour un atome d'oxygène. Seulement six d'entre eux mettent en jeu deux liaisons covalentes et deux ponts hydrogène. Ils sont représentés en figure 1.5b. Le raisonnement de Pauling est simple. Pour un cristal de N molécules, il existe $2N$ atomes d'hydrogène avec, pour chaque, deux états possibles. Le nombre total de configurations est alors de 2^{2N} . Cependant, les règles de la glace imposent des restrictions sur ces 2^{2N} états. Une pondération, d'un facteur $\frac{6}{16}$ par molécule, doit être ajoutée pour traduire la contrainte locale. Cela restreint le nombre d'états accessibles au système à $\Omega = 2^{2N} \left(\frac{6}{16}\right)^N$. Ces Ω états ont la même énergie donc, à basse température, l'entropie par molécule s'exprime, une fois rapportée à une mole :

$$S = \frac{\mathcal{N}_A}{N} k_B \ln \Omega = \mathcal{N}_A k_B \ln \frac{3}{2} = 3.37 \text{ J.K}^{-1}\text{mol}^{-1} = 0.806 \text{ cal.K}^{-1}\text{mol}^{-1}$$

L'entropie calculée par Pauling correspond remarquablement bien à la mesure de Giauque et Stout. La phase Ih de la glace ne s'ordonne pas en raison des différentes orientations discrètes que peuvent adopter les molécules d'eau dans le cristal. Cet exemple a introduit le concept d'état fondamental massivement dégénéré. Il fut une confirmation historique de la puissance de la mécanique statistique. La position des atomes d'hydrogène reste toutefois insondable par diffraction des rayons X. En 1949, l'avancée des techniques de diffraction de neutrons a permis l'observation directe du désordre prédit par Pauling, sur de la glace d'eau lourde D₂O [108].

1.1.4 Glaces de spin

Depuis les années 50, les composés magnétiquement frustrés font l'objet d'un vif intérêt en matière condensée. Un grand nombre de systèmes expérimentaux et théoriques ont été identifiés, avec des interactions locales de type antiferromagnétiques. Mais en 1997, Harris *et al.* parviennent à synthétiser un composé frustré avec des interactions ferromagnétiques (Ho₂Ti₂O₇) [29]. Ses propriétés magnétiques sont due aux ions Ho³⁺, localisés aux nœuds de tétraèdres à sommets jointifs. Ils forment une structure de type pyrochlore (cf. fig. 1.6a). Les ions Ho³⁺ sont porteurs d'un moment d'environ $10\mu_B$ qui persiste même à basse température. La frustration dans un système ferromagnétique peut paraître surprenante. La géométrie du réseau ne peut pas à elle seule expliquer son existence. Elle apparaît ici en raison du champ cristallin local, qui confine les moments dans la direction des bissectrices des tétraèdres. À basse température (<10 K) les moments magnétiques de Ho³⁺ se comportent comme des spins Ising, pointant vers l'intérieur ou l'extérieur des tétraèdres (cf. fig. 1.6b). Les degrés de liberté magnétiques sont alors très semblables à ceux des atomes d'hydrogène dans la

glace. L'énergie d'un tétraèdre est minimale lorsque deux spins sont entrants et deux spins sont sortants (*two-in/two-out*); en d'autres termes, lorsque le tétraèdre vérifie les règles de la glace. Un tel système ne s'ordonne pas à basse température et présente une entropie résiduelle proche de celle de la glace. Il s'agit de la première réalisation d'un système magnétique analogue à la glace, ce qui a mené à l'introduction du terme « glace de spin ».

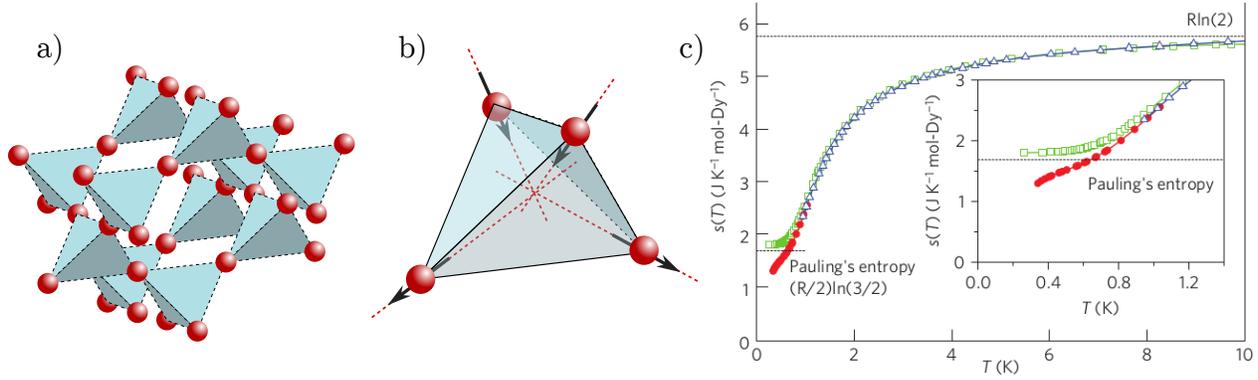


FIGURE 1.6 – a) Schéma du réseau pyrochlore, constitué de tétraèdres connectés par leur sommets. Dans les glaces de spin, les atomes de terres rares (en rouge) sont situés aux angles des tétraèdres. b) L'axe de quantification des spins Ising est selon les bissectrices des tétraèdres; ils peuvent pointer vers l'intérieur ou l'extérieur. c) Entropie expérimentale du composé $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, sur une plage de température allant de 0.34 à 12 K. Les points verts et rouges correspondent respectivement aux mesures de Ramirez et de Pomaranski. Extrait de la référence [80].

Les mesures de diffraction de neutrons de Harris *et al.* sur le composé $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ confirment l'analogie avec la glace. En l'absence de champ magnétique externe, aucun ordre à longue portée n'apparaît jusqu'à une température de 0.35 K (température minimale de l'expérience). Des corrélations ferromagnétiques à courte portée sont néanmoins observées [29]. En 1999, Ramirez *et al.* mesurent une entropie résiduelle proche de celle de la glace dans le composé $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ (aux propriétés similaires à $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$). Leur mesure apparaît en figure 1.6c. Nous avons vu au §1.1.1 que l'apparition d'une phase magnétique ordonnée se manifeste par une discontinuité apparente de l'entropie. Ce comportement n'est pas observé sur les mesures de Ramirez. Le désordre magnétique, régi par les règles de la glace, persiste donc à basse température.

Glace de spin dipolaire Les ions Ho^{3+} et Dy^{3+} sont porteurs d'un fort moment magnétique, d'environ $10\mu_B$, et se comportent comme des spins Ising classiques. Ces moments élevés engendrent de fortes interactions dipolaires, d'intensité comparable au couplage d'échange entre spins premiers voisins. Au sein d'un tétraèdre, les interactions dipolaires sont de type ferromagnétique. Le couplage d'échange est lui de type antiferromagnétique et tend à amener le système vers un état ordonné de type *all-in/all-out*. La physique de glace qui est observée expérimentalement est donc due aux interactions dipolaires [21]. C'est pourquoi ces composés sont désignés par le terme « glaces de spin dipolaires ». Les interactions dipolaires sont à longue portée (en r^{-3}); le couplage entre seconds voisins est encore d'une intensité comparable aux interactions internes à un tétraèdre. Cela devrait engendrer une levée de dégénérescence

de la variété de basse énergie et favoriser un état ordonné. Mais un phénomène d'écrantage entre les tétraèdres annihile presque parfaitement les termes d'interaction à longue portée. Ils n'affectent donc pas la dégénérescence de l'état fondamental. Cette correspondance presque parfaite entre modèle dipolaire et modèle proche voisins est un exemple d'équivalence projective [35]. Une phase ordonnée (appelée MDG) apparaissant sous l'effet des interactions dipolaires à néanmoins été prédite numériquement, sans être observée à ce jour.

Des mesures plus récentes de chaleur spécifique menées par Pomaranski *et al.* sur $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ s'écartent à basse température de celles de Ramirez [80]. Les deux mesures sont représentées en figure 1.6c. Par un refroidissement très lent, ils parviennent à obtenir une entropie inférieure à celle de Pauling. D'après les auteurs, la mesure de Ramirez n'était pas à l'équilibre thermodynamique en raison du temps de relaxation des spins extrêmement lent à basse température. La question de l'existence d'un état fondamental ordonné dans les glaces de spin dipolaires reste pour le moment en suspens.

Phase de Coulomb La glace dipolaire est désordonnée à basse température et ses états de basse énergie vérifient la règle de la glace. Cette contrainte locale, qui se propage de tétraèdre en tétraèdre, a des conséquences importantes sur les corrélations du système. Une phase de Coulomb est un état de la matière qui apparaît lorsque les contraintes locales peuvent être modélisées par un champ vectoriel à divergence nulle. Dans cette phase particulière, désordonnée mais fortement corrélée, les spins présentent des corrélations algébriques (en loi de puissance). Les conditions d'apparition d'une phase de Coulomb sont les suivantes [30] :

- Les degrés de liberté peuvent être décrits par un champ vectoriel \mathbf{M} ;
- Une contrainte existe sur ces variables, par exemple la divergence nulle imposée par la règle de la glace dans chaque tétraèdre ;
- Le système est dans une phase désordonnée, sans aucun ordre à longue portée. La coexistence de ce désordre avec de fortes corrélations évoque le comportement d'un liquide.

Dans les glaces de spin, les moments magnétiques portés par les atomes de terre rares peuvent être décrits par un champ discret \mathbf{M} . La règle de la glace *2-in/2-out* se traduit par la condition $\nabla \cdot \mathbf{M} = 0$. Comme le système est désordonné, la glace dipolaire présente toutes les caractéristiques d'une phase de Coulomb.

Une phase de Coulomb se caractérise par des corrélations de spin algébriques. Elles décroissent de la même manière qu'une interaction dipôle-dipôle [25]. La longueur de corrélation diverge sans que cela implique l'apparition d'un ordre. Dans l'espace réciproque, ces corrélations particulières se traduisent par des points de pincement sur le facteur de structure (cf. fig. 1.7a). Un point de pincement a une expression non-analytique qui, dans sa direction transverse, peut être approchée par une fonction lorentzienne. La largeur de cette fonction permet de définir une longueur de corrélation ξ du système. Les points de pincement ont été observés expérimentalement pour la première fois par Bramwell *et al.* sur le composé $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [4].

Monopoles magnétiques À température finie, la règle de la glace n'est pas forcément vérifiée en tout point. Des défauts de type *3-in/1-out*, *1-in/3-out* (cf. fig. 1.7b) peuvent subsister en raison de temps de relaxation parfois élevés. Ils peuvent aussi apparaître en raison

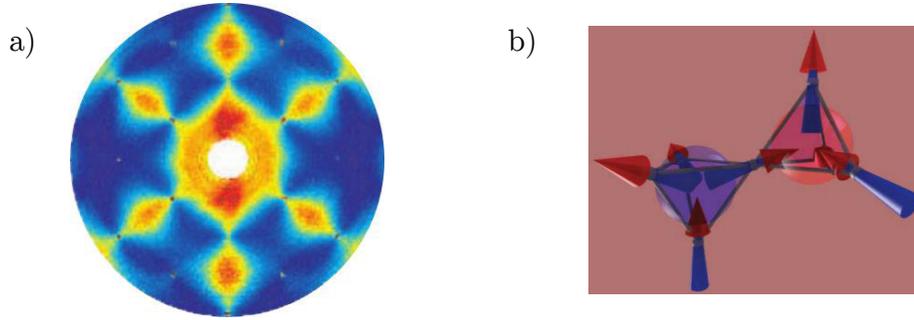


FIGURE 1.7 – a) Facteur de structure expérimental mesuré par diffusion de neutrons sur $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, présentant des points de pincements. Extrait de la référence [25]. b) Représentation schématique d’une paire de monopole-antimonopole magnétiques générée par une inversion de spin. La règle de la glace n’est plus vérifiée dans les deux tétraèdres. Extrait de la référence [9].

d’inversions de spins stimulées par la température. Ces points de divergence, où $\nabla \cdot \mathbf{M} \neq 0$, se comportent comme des sources ou des puits du champ émergent \mathbf{M} . Castelnovo *et al.* ont montré en 2008 que ces excitations peuvent être décrites comme des monopoles émergents de nature magnétique [9]. La valeur de la charge magnétique portée par ces monopoles se calcule en modélisant les spins par des paires de charges (*dumbbell model*). Ces monopoles n’ébranlent pas le paradigme de l’électromagnétisme classique car ces excitations ne correspondent en rien aux monopoles de Dirac. Leur charge magnétique peut d’ailleurs être modulée par l’application d’une contrainte axiale sur le réseau. Cela prouve qu’il ne s’agit pas d’une particule élémentaire.

En conclusion, les systèmes frustrés forment une classe de matériaux propices à l’émergence d’une physique non-conventionnelle. Du point de vue de la thermodynamique d’une part, avec la persistance de fluctuations jusqu’à des températures extrêmement basses et l’existence d’une entropie résiduelle ; d’autre part avec des corrélations de spin algébriques et l’émergence de quasi-particules fractionnaires, comme les monopoles magnétiques. Nous nous sommes restreints aux cas classiques, mais l’analogie avec l’électromagnétisme peut être poussée d’avantage dans les glaces quantiques. Une électrodynamique émergente, avec des excitations analogues à des photons, pourrait même apparaître [30].

1.2 Glace carrée bidimensionnelle

Il existe également dans la nature des systèmes frustrés bidimensionnels. Un exemple bien connu s’obtient en appliquant un champ magnétique à une glace de spin de type pyrochlore, dans la direction (111). Cela mène à une physique de plans kagomé indépendants [32]. Cette section est consacrée au réseau frustré bidimensionnel à géométrie carré. Sa structure peut s’obtenir à partir de celle des glaces de spin : en observant le réseau pyrochlore dans la direction (100), les tétraèdres apparaissent comme des carrés connectés par leurs arrêtes. Les spins semblent positionnés dans une structure similaire au réseau représenté en figure 1.8b. Il faut rester prudent avec cette analogie entre réseaux carré et pyrochlore. Ces deux systèmes n’ont pas la même dimensionnalité et leurs connectivités sont différentes. Nous allons voir que le réseau carré peut être traité comme un modèle de vertex, faisant ainsi le lien avec

une branche de la physique statistique. Les physiciens ont élaboré des modèles de vertex dans le but de décrire certains composés liés par des liaisons hydrogène. Le modèle de Lieb, aussi appelé glace carrée, est un modèle de vertex bidimensionnel analogue à la glace. Le but de cette section est de présenter quelques modèles de vertex puis de décrire les propriétés essentielles du modèle de Lieb. Nous montrerons que celui-ci possède une entropie résiduelle et présente une phase de Coulomb.

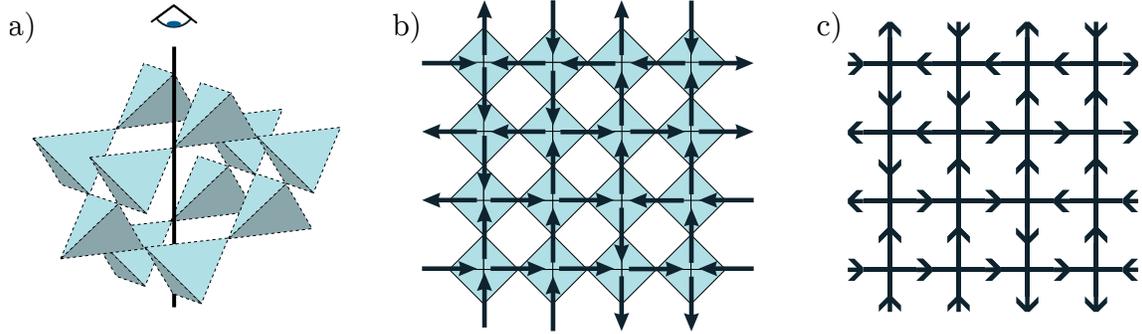


FIGURE 1.8 – a) Réseau pyrochlore constitué de tétraèdres à sommets jointifs. Un observateur regardant ce système dans la direction (100) voit le réseau représenté en b). c) Modèle de vertex équivalent au modèle de spin en b). Soulignons que la connectivité des tétraèdres n'est plus la même après cette transformation. L'analogie entre le réseau carré et les glaces de spin de type pyrochlore trouve donc des limites.

1.2.1 Modèle à 16 vertex

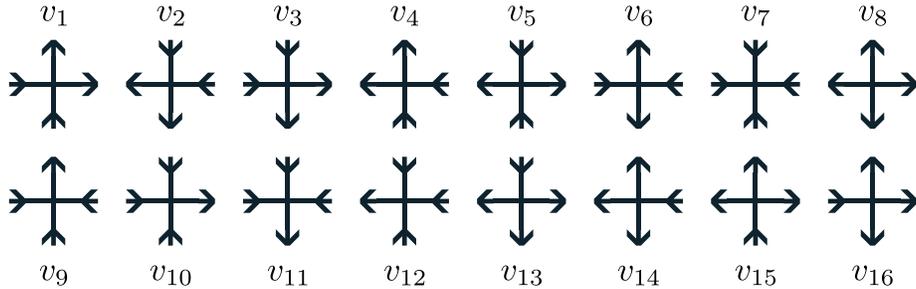


FIGURE 1.9 – Représentation des 16 vertex possibles pour une géométrie carrée de coordonnée 4.

Considérons le cas du modèle de vertex à géométrie carrée de coordonnée 4, représenté en figure 1.8c. Un vertex se caractérise par quatre degrés de liberté, situés aux interfaces entre vertex. Comme chaque degré de liberté est commun à deux vertex, ceux-ci sont liés par une contrainte. Dans le cas général, il peut exister $2^4 = 16$ vertex, représentés en figure 1.9. À chaque vertex i est associée une énergie ϵ_i et une charge q . L'énergie totale H du réseau s'exprime comme la somme des énergies des vertex :

$$H = \sum_{i=1}^{16} \epsilon_i n_i$$

où n_i est le nombre de vertex d'énergie ϵ_i . La charge d'un vertex correspond à la différence entre le nombre de flèches entrantes et sortantes. Les vertex 7 et 8 portent une charge $q = \pm 4$, contre $q = \pm 2$ pour les vertex de 9 à 16. Les vertex 1 à 6 ne sont pas chargés ($q = 0$).

Dans une vision en terme de spin, l'énergie totale s'exprime en fonction de chaque degré de liberté individuel. Dans le cas des vertex, les interactions locales sont groupées dans le terme d'énergie ϵ_i . Le passage du modèle de spin à un modèle de vertex traduit donc implicitement une restriction des interactions aux premiers voisins.

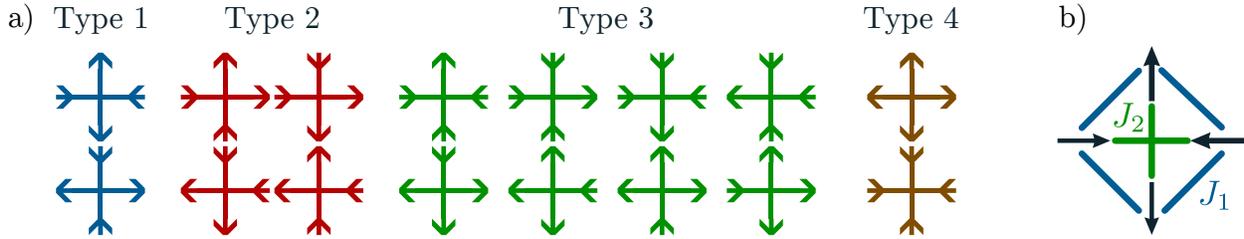


FIGURE 1.10 – a) En considérant une invariance par rotation de $\frac{\pi}{4}$ et par renversement du temps, les 16 vertex se répartissent sur quatre niveaux d'énergie. b) Interactions internes à un vertex, déterminées par les couplages de spins J_1 et J_2 .

Nous allons calculer l'énergie des 16 vertex dans un cas symétrique : nous considérons qu'ils sont invariants par rotation de $\frac{\pi}{4}$ et par renversement du temps. Dans ce cas, les 16 vertex se répartissent sur quatre niveaux d'énergie E_i , i allant de 1 à 4 (cf. fig. 1.10a). La figure 1.10b représente les interactions internes d'un vertex, correspondant aux couplages des quatre spins qui le composent. Avec les notations de cette figure, l'énergie de chaque niveau s'exprime :

$$\begin{aligned} E_1 &= -4J_1 + 2J_2 \\ E_2 &= -2J_2 \\ E_3 &= 0 \\ E_4 &= 4J_1 + 2J_2 \end{aligned}$$

Ce modèle est adapté à la description du réseau carré de nanoaimants, qui est l'objet de cette thèse. Dans notre cas, les couplages J_1 et J_2 sont déterminés par les interactions magnétostatiques entre aimants. Dans les prochains chapitres, nous utiliserons la classification en figure 1.10a en faisant référence aux vertex T1, T2, T3 ou T4. Pour le moment, nous considérons la classification générale en figure 1.9. Des cas particuliers du modèle à 16 vertex ont fait l'objet d'investigations.

1.2.2 Modèles à 6 vertex

Dans le cas général, tous les vertex peuvent apparaître, y compris ceux portant une charge. Mais ces états ne vérifient pas la règle de la glace *2-in/2-out*. C'est pourquoi une classe de modèles ne comportant que les six premiers vertex a été définie. Nous présentons ici trois modèles, qui ont été résolus de façon exacte par Lieb en 1967 par la méthode des matrices de transfert.

| | | | | | | |
|-----------------|---|---|---|--|---|---|
| | v_1 | v_2 | v_3 | v_4 | v_5 | v_6 |
| |  |  |  |  |  |  |
| Modèle F | ϵ | ϵ | ϵ | ϵ | 0 | 0 |
| Modèle KDP | 0 | 0 | ϵ | ϵ | ϵ | ϵ |
| Modèle de glace | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |

FIGURE 1.11 – Schéma des six vertex autorisés dans la nouvelle classe, qui vérifie la règle de la glace. L'énergie de chaque vertex est indiquée en dessous, pour les trois modèles que nous allons décrire ($\epsilon > 0$).

Modèle Rys-F Le modèle F a été introduit par Rys en 1963 et s'est avéré utile pour décrire les propriétés de certains antiferroélectriques, notamment le phosphate de monoammonium $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$. Dans le modèle F, $v_5 = v_6 = 0$ et $v_1 = v_2 = v_3 = v_4 = \epsilon$ avec $\epsilon > 0$. L'état fondamental est clairement défini, il s'agit d'un pavage antiferromagnétique de vertex v_5 et v_6 dégénéré deux fois (cf. fig. 1.12a). Nous montrerons au §1.3.2 une réalisation expérimentale de ce modèle avec des nanoaimants.

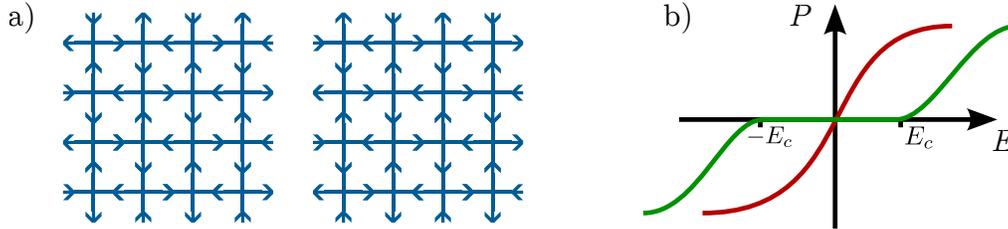


FIGURE 1.12 – a) Représentation des deux états fondamentaux du modèle F. b) Schéma de la courbe $P = f(E)$ à $T > T_c$ (en rouge) et à $T < T_c$ (en vert). La valeur du champ électrique critique E_c dépend du rapport $\frac{\epsilon}{k_B T}$.

Les propriétés thermodynamiques du modèle F sont originales [53]. Il présente une transition de phase d'ordre infini à une température critique T_c . Cela signifie que l'énergie libre et toutes ses dérivées restent finies et continues. L'application d'un champ électrique E révèle un comportement singulier. Pour $T > T_c$, la polarisation P en fonction de E suit une courbe en S. Ceci est typique d'un paraélectrique. Mais en dessous de T_c , la polarisation reste nulle tant que le champ E est inférieur à une valeur critique E_c , qui dépend de la température. Les courbes $P = f(E)$ sont schématisées en figure 1.12b.

À température finie, l'état fondamental apparaît dans le réseau sous forme de domaines séparés par des parois constituées de vertex v_1, v_2, v_3, v_4 .

Modèle Slater-KDP Slater a introduit un modèle différent pour décrire la position des atomes d'hydrogène dans le phosphate de monopotassium KH_2PO_4 . Ce dernier possède des propriétés ferroélectriques à basse température. Dans le modèle KDP, l'énergie d'une paire de vertex v_1, v_2 ou v_3, v_4 est fixée à zéro, tandis que les autres ont une énergie $\epsilon > 0$. Nous choisissons $v_1 = v_2 = 0$ et $v_3 = v_4 = v_5 = v_6 = \epsilon$. Ce modèle s'ordonne en dessous d'une

température critique T_c , en sélectionnant les vertex v_1 ou v_2 ¹. La transition à $T = T_c$ est du premier ordre, avec un transfert de chaleur latente [54].

Modèle de Lieb Dans le modèle de Lieb, aussi appelé modèle de glace carrée, les six vertex ont la même énergie ($v_1 = v_2 = v_3 = v_4 = v_5 = v_6 = 0$). Il s'agit de l'équivalent bidimensionnel de la glace H_2O ou des glaces de spin de type pyrochlores. Il ne s'ordonne pas à basse température et présente lui aussi une entropie résiduelle. Celle-ci peut être estimée par la méthode de Pauling expliquée au §1.1.3. Le passage de trois à deux dimensions ne joue pas ici puisque cette estimation néglige la coordinence des vertex. Pour rappel, $S_{Pauling} = 3.37 \text{ J.K}^{-1}\text{mol}^{-1}$. En 1967, Lieb a démontré que l'entropie exacte de la glace carrée s'exprime [55] :

$$S_{Lieb} = k_B \mathcal{N}_a \ln \left(\frac{4}{3} \right)^{\frac{3}{2}} = 3.588 \text{ J.K}^{-1}\text{mol}^{-1}$$

Ce résultat est cohérent avec l'estimation de Pauling. Il est également très proche d'une estimation numérique faite antérieurement par Nagle.

Tel qu'il est défini ici, le modèle de glace carrée ne possède pas de thermodynamique car les six vertex autorisés ont exactement la même énergie. La solution de Lieb se ramène finalement à un problème de combinatoire. La constante de Lieb $\left(\frac{4}{3}\right)^{\frac{3}{2}}$ est d'ailleurs utilisée en mathématiques pour l'étude des graphes réguliers. Dans la partie suivante, nous allons expliquer les propriétés essentielles d'un réseau décrit par ce modèle de glace.

1.2.3 Propriétés du modèle de glace carrée

Raisonnons maintenant en terme de spins ; si ces derniers vérifient la règle de la glace, cette vision est équivalente au modèle de Lieb. Nous allons voir que la règle de la glace est une contrainte locale forte, qui conditionne les corrélations de spin et fait émerger des propriétés originales.

Topologie Les états de la variété *ice rule* sont connectés par des inversions de boucles de spins. La figure 1.13 montre deux configurations magnétiques différentes et leur soustraction. Elles sont séparées par deux boucles, l'une fermée et l'autre ouverte. Les boucles doivent être composées de spins en « tête à queue » pour qu'elles renversent un spin *in* et un spin *out* dans chaque vertex. Cette condition est nécessaire pour que l'inversion d'une boucle ne génère pas de violations de la règle de la glace. Une autre propriété intéressante touche à la notion de nombre de coordination et de secteur topologique. Considérons un réseau en conditions de bords périodiques. Le nombre de coordination m_y mesure l'aimantation verticale le long d'une ligne. De même, m_x mesure l'aimantation horizontale le long d'une colonne. Ces nombres, qui apparaissent sur la figure 1.13, sont invariants dans le réseau si celui-ci respecte la règle de la glace. Ces deux nombres définissent un secteur topologique, qui est lié à l'aimantation totale. Les boucles fermées (verte en fig. 1.13) ne changent pas le secteur topologique de la configuration, à l'inverse des boucles ouvertes (rouge en fig. 1.13). La présence de défauts

1. Les vertex v_1 et v_2 ne peuvent pas être présents simultanément sans faire apparaître de vertex v_5 ou v_6 . C'est pourquoi l'état fondamental n'est composé que d'un seul des deux vertex.

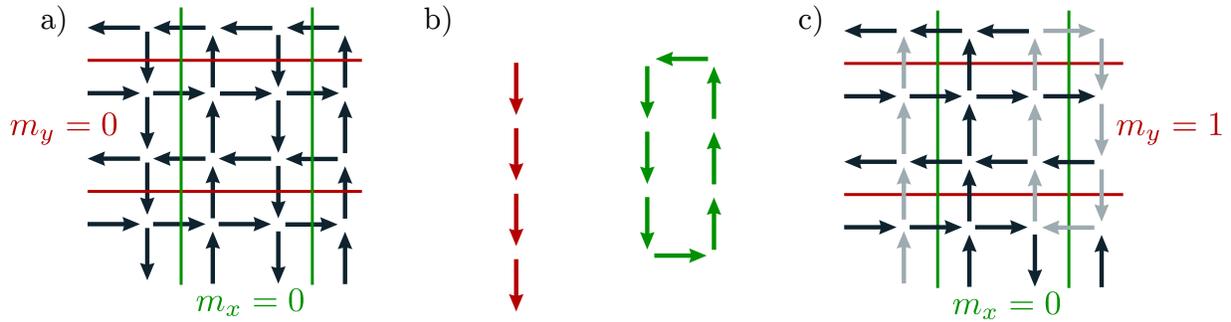


FIGURE 1.13 – Les configurations a) et c) respectent la règle de la glace. La différence entre ces états est représentée en b). Deux boucles séparent les deux configurations, l’une ouverte (en rouge) et l’autre fermée (en vert). La première modifie les nombres de coordination m_x et m_y , à l’inverse de la seconde.

violant la règle de la glace brise ces propriétés topologiques. Remarquons qu’elles ne sont en partie plus valables en conditions de bords libres.

Phase de Coulomb Le modèle de Lieb présente tous les ingrédients d’une phase de Coulomb, que nous avons évoqués au §1.1.4. Son facteur de structure est représenté en figure 1.14a, pour un réseau de taille finie (128000 spins) en conditions de bords libres. Il présente des points de pincement localisés en Γ dans l’espace réciproque. Nous expliquerons le calcul de ce facteur de structure au chapitre suivant. Le modèle de glace carrée est un exemple de liquide de spin algébrique en deux dimensions. La largeur des points de pincement permet d’extraire une longueur de corrélation ξ . La figure 1.14b montre une coupe perpendiculaire d’un point de pincement, avec un ajustement lorentzien d’expression :

$$I(q) = A \frac{\xi^{-2}}{(q - q_0)^2 + \xi^{-2}} + B$$

Après ajustement, $\xi = 13 \pm 1.8$ en unité de paramètre de maille pour un réseau de 12800 spins. La valeur finie de ξ est due aux dimensions finies du réseau. Pour un réseau infini, le point de pincement serait infiniment fin et ξ infiniment grande.

Conclusion Nous avons présenté trois modèles, qui sont des cas particuliers du modèle à 16 vertex. Le modèle de glace carrée est une version bidimensionnelle de la glace H_2O et des glaces de spin. Il n’a à ce jour aucun équivalent expérimental, contrairement aux modèles F et KDP. Nous avons vu que la glace carrée possède les caractéristiques d’une phase de Coulomb. Les phénomènes émergents, comme les monopoles magnétiques, doivent donc pouvoir y être observés. L’objectif de ce travail de thèse est de créer et d’étudier expérimentalement un objet physique décrit par le modèle de Lieb. Les systèmes frustrés artificiels apparaissent comme prometteurs pour atteindre cet objectif.

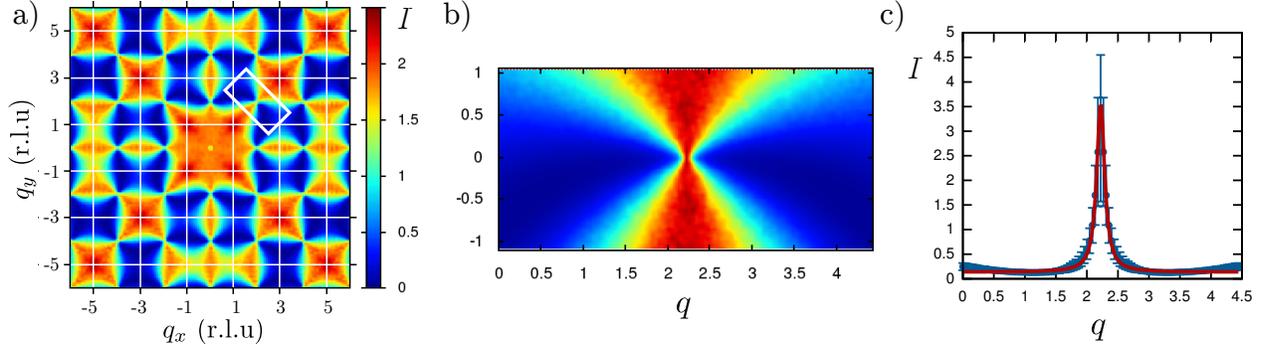


FIGURE 1.14 – a) Facteur de structure du modèle de glace carrée (Lieb) présentant des points de pincement localisés en Γ . Le rectangle blanc indique la région qui est agrandie en b). Sur l’axe vertical du point de pincement, l’intensité est constante tandis qu’elle présente un pic étroit dans la direction perpendiculaire. c) Coupe transverse du point de pincement et son ajustement lorentzien. Pour ce réseau de 12800 spins, la longueur de corrélation est de $\xi = 13 \pm 1.8$ (en unité de paramètre de maille).

1.3 Systèmes frustrés artificiels

À la fin des années 90, la diffusion croissante des outils de microfabrication dans les laboratoires a ouvert de nouvelles perspectives. Il est devenu possible de fabriquer de véritables cas d’école de systèmes frustrés, présentant deux avantages :

- Leur géométrie est modulable à volonté. Ce n’est pas le cas des systèmes étudiés en matière condensée car la synthèse d’un nouveau composé peut être longue et complexe.
- Les techniques d’imagerie permettent d’observer l’état de chaque élément dans l’espace direct. En matière condensée, l’accès à cette information locale est encore extrêmement difficile. Cela nécessite de sonder l’état d’atomes individuels au sein du composé.

Les systèmes frustrés artificiels apparaissent donc comme très prometteurs pour tester les prédictions de modèles de spin. Cependant, ils souffrent de deux inconvénients :

- Ils se limitent à des modèles uni et bidimensionnels. La réalisation d’un modèle tridimensionnel serait néanmoins possible avec la technologie actuelle ; des idées à ce sujet ont été proposées [12, 59]. Mais l’observation des éléments internes à la structure reste encore problématique.
- Les réseaux artificiels se limitent à des ensembles allant de quelques milliers à un milliard d’éléments. Pour les plus grands, l’information locale n’est même pas récoltée (études globales de cycles d’hystérésis [67] ou par diffraction de surface [77]). Ces systèmes sont donc loin de la limite thermodynamique. En comparaison, le nombre d’objets sondés en matière condensée est de l’ordre du nombre d’Avogadro. Cette limitation sur la taille des réseaux artificiels est le corollaire de la volonté de sonder chaque objet individuellement : il serait illusoire de vouloir stocker l’information locale pour un système de taille thermodynamique.

Nous allons dans cette section montrer quelques exemples de systèmes frustrés artificiels réalisés expérimentalement. Nous porterons un intérêt particulier aux réseaux de nanoaimants, qui sont certainement les objets les plus étudiés par la communauté. Cette partie n’a pas vocation à être exhaustive. Nous nous limiterons aux systèmes bidimensionnels avec des in-

teractions de nature magnétique. Mentionnons que les chaînes 1D antiferromagnétiques de nanoaimants ont déjà fait l'objet d'investigations [18, 34]. Des réseaux artificiels 3D, fabriqués par auto-organisation de particules, sont aussi étudiés mais l'accès à l'état magnétique de chaque objet reste difficile [17, 59]. Les matériaux supraconducteurs offrent aussi des possibilités pour l'étude de la frustration. Par exemple, les vortex présents dans certains supraconducteurs peuvent réaliser des réseaux frustrés directement observables [49]. Nous expliquerons aussi dans cette section comment des anneaux supraconducteurs en interaction reproduisent des modèles de spin Ising. Des effets dus à la frustration ont été mis en évidence au sein de polymères structurés [37] et dans le comportement collectif de bactéries motiles [107]. Cela laisse présager une diversification des systèmes frustrés artificiels, actuellement dominés par les réseaux de nanoaimants.

1.3.1 Réalisations pionnières

Réseaux d'anneaux supraconducteurs En 1995, Davidovic *et al.* ont réalisé des réseaux artificiels en couplant des anneaux supraconducteurs microscopiques [19]. Voyons d'abord comment créer un pseudospin Ising avec cette brique de base. La quantification du flux magnétique impose que le flux total ϕ traversant un anneau soit égal à un multiple entier du quantum de flux $\phi = n\phi_0 = n\frac{h}{2e}$, avec $n \in \mathcal{Z}$. Sous l'action d'un champ externe produisant un flux $\frac{1}{2}\phi_0$ dans les anneaux, un supercourant s'établit. Il s'adapte de manière à annuler le flux total, ou à l'augmenter pour qu'il atteigne ϕ_0 . Les deux états sont représentés en figure 1.15a. Ils ont la même énergie et l'anneau peut passer de l'une à l'autre par activation thermique. Le moment magnétique de l'anneau se comporte alors de manière très analogue à un spin Ising. Si les anneaux sont rapprochés, une interaction proportionnelle à leur inductance mutuelle apparaît. Elle est similaire à une interaction dipôle-dipôle, ici antiferromagnétique car les anneaux sont dans le même plan. La figure 1.15b montre une image de microscopie

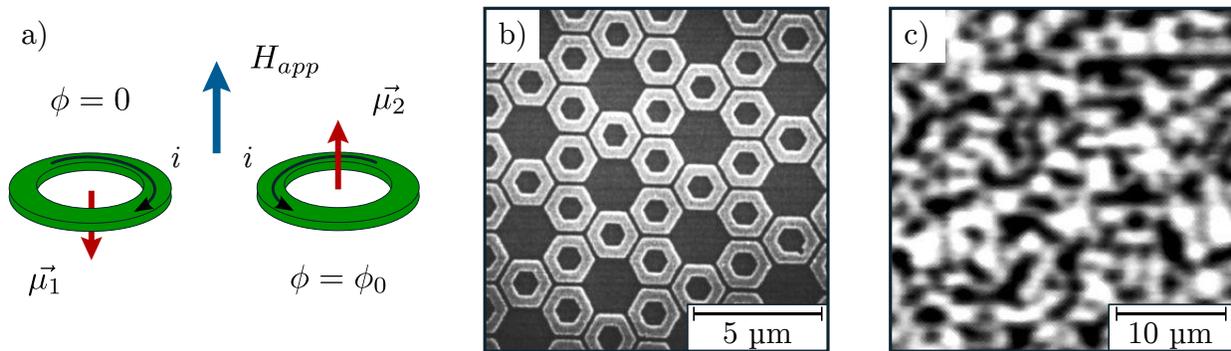


FIGURE 1.15 – a) Schéma de deux anneaux supraconducteurs soumis à un champ H_{app} produisant un flux de $\frac{1}{2}\phi_0$ à l'intérieur. Chaque anneau est bistable. Celui de gauche compense le flux externe, tandis que celui de droite l'augmente de manière à amener le flux total à ϕ_0 . b) Image MEB montrant un réseau kagomé d'anneaux d'aluminium. c) Image magnétique d'une portion plus large de réseau kagomé, obtenue par microscopie Hall à basse température. Le réseau est dans un état désordonné. Les images b) et c) sont extraites de la référence [20].

électronique à balayage (MEB) d'un réseau kagomé d'anneaux. D'autres géométries ont été

réalisées grâce à la flexibilité de leur fabrication. Davidovic *et al.* ont employé l'imagerie par sonde de Hall pour mesurer l'état magnétique de leurs réseaux (cf. fig. 1.15c). Ils ont prouvé l'existence de corrélations antiferromagnétiques entre les anneaux. Elles sont plus significatives pour les réseaux non-frustrés car ces derniers tendent à s'ordonner. Mais, en raison du faible couplage entre anneaux et de leurs défauts structurels, les corrélations à longue portée sont inexistantes.

Un bon candidat pour la réalisation de réseaux artificiels doit s'ordonner s'il est construit selon une géométrie peu frustrée. Ce n'est pas le cas des réseaux carrés et hexagonaux de Davidovic *et al.* car ils se trouvent toujours loin de leur état fondamental [20]. Renforcer les interactions entre anneaux et diminuer leurs défauts pourrait améliorer leur capacité à réaliser des modèles de spin. Cette approche pose aussi une difficulté expérimentale : l'emploi de matériaux supraconducteurs implique de travailler à des températures cryogéniques (<2 K ici).

Réseaux de boussoles Les réseaux artificiels ne sont pas nécessairement fabriqués à l'échelle microscopique. Une simple aiguille de boussole montée sur un pivot, libre en rotation, se comporte comme un spin XY macroscopique. Il devrait donc être possible de réaliser certains modèles de physique statistique au moyen de réseaux de boussoles en interaction dipolaire. Des travaux pionniers ont été effectués en 1890 par J.A. Ewing qui s'intéressait aux cycles d'hystérésis de boussoles couplées. Plus récemment, en 1998, Olive et Molho ont étudié le réseau carré de boussoles (cf. fig. 1.16a) qui a un état fondamental bien défini [74]. L'impossibilité d'introduire des fluctuations thermiques sur des boussoles macroscopiques (longueur ~ 1 cm) est certainement l'inconvénient majeur de ces réseaux. Les excitations sont induites par un champ magnétique pseudo-aléatoire jouant le rôle de bain thermique. Olive et Molho ont montré que les résultats obtenus sont en bon accord avec les simulations Monte Carlo. Cela signifie que le champ pseudo-aléatoire donne naissance à une thermodynamique effective, où les paramètres du champ influencent la « température ».

En 2012, Mellado *et al.* ont étudié la géométrie kagomé avec des aimants montés sur des axes horizontaux (cf. fig. 1.16b) [56]. La rotation des aimants se fait hors du plan du réseau. À l'équilibre, tous les aimants sont dans le même plan et le système peut être modélisé par des spins Ising. Pour amener le réseau dans un état de basse énergie, Mellado *et al.* appliquent un champ vertical suffisamment élevé pour que tous les aimants pointent hors du plan. Lorsque le champ est coupé brutalement, le réseau s'équilibre dans un état de basse énergie avec une dynamique en plusieurs étapes. Cette méthode n'est cependant pas comparable avec un processus thermodynamique.

Un réseau de boussoles soumis à un champ magnétique reste un système dynamique très complexe. Les aiguilles ont leur propre inertie et leurs défauts mécaniques (jeu dans le pivot, déséquilibre, forme, frottements). Il est impossible d'y introduire des fluctuations thermiques. Nous verrons dans ce chapitre d'autres systèmes qui ne présentent pas ces limitations.

Colloïdes en interaction Les travaux de Libal *et al.* se sont attachés dès 2006 à montrer que des particules colloïdales en interaction pourraient réaliser des modèles de spin [52]. Les particules seraient confinées dans des pièges optiques bistables. Les deux positions accessibles, séparées par une barrière d'énergie ajustable, peuvent être représentées par une variable Ising.

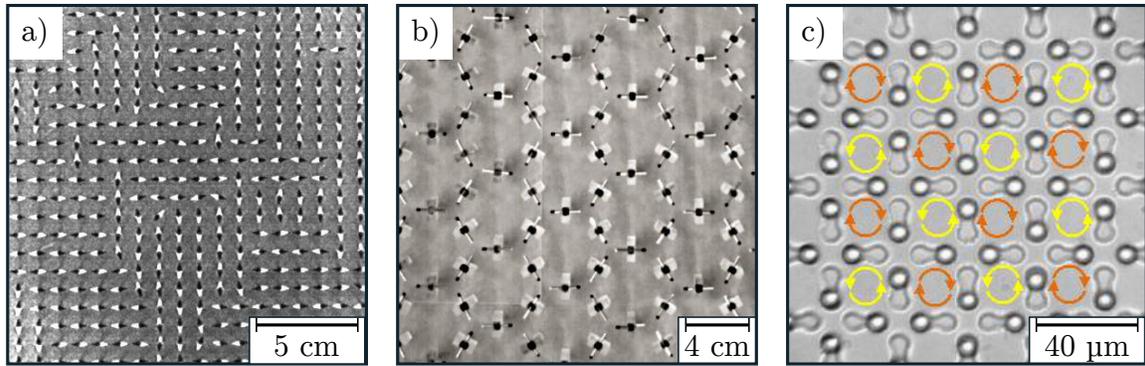


FIGURE 1.16 – a) Photographie d’un réseau carré de boussoles présentant localement un ordre ferromagnétique. Extraite de la référence [74]. b) Photographie d’un réseau kagomé d’aimants sur pivots, libres de tourner hors de leur plan. La règle de la glace est vérifiée en tout point. Extraite de [56]. c) Image de microscopie optique montrant un réseau carré de particules paramagnétiques colloïdales piégées dans des puits de potentiel. Extraite de [75].

Les particules seraient en interaction électrostatique répulsive, d’intensité modulable par la charge des particules. La génération d’un tel réseau de pièges optiques nécessite une puissance lumineuse très importante. Le contrôle de la charge électrique des particules est également problématique. C’est pourquoi la réalisation expérimentale d’une glace artificielle colloïdale s’est faite dix ans après sa proposition.

La solution d’Ortiz-Ambriz *et al.* est basée sur des particules colloïdales paramagnétiques piégées dans des puits de potentiel gravitationnel (cf. fig. 1.16c) [75]. Ils sont creusés dans une couche de résine par lithographie et leur remplissage se fait manuellement au moyen d’une pince optique. En l’absence de champ magnétique, les particules paramagnétiques ne sont pas polarisées et n’interagissent pas. Sous un champ perpendiculaire au réseau, des interactions dipolaires répulsives apparaissent entre les particules. Leur diamètre élevé ($\sim 10 \mu\text{m}$) permet d’employer la microscopie optique pour observer l’état du réseau. En contrepartie, il reste insensible aux fluctuations thermiques.

Cette approche offre un accès à la dynamique du système grâce une simple caméra optique. C’est un avantage considérable. La possibilité d’un remplissage partiel ou d’une double occupation des puits offre aussi l’opportunité d’étudier de nouveaux modèles. Le remplissage manuel des puits pose, certes, une limitation sur la taille du système. Mais il permet de commencer une expérience à partir d’un état défini. Pour des études futures, l’introduction de fluctuations grâce à un champ magnétique oscillant est envisagée. La glace artificielle colloïdale n’en est qu’à ses balbutiements, mais elle pourrait tenir un rôle de premier plan à l’avenir.

1.3.2 Réseaux de nanoaimants

L’étude de Wang *et al.* est généralement citée comme étant l’avènement des réseaux artificiels à base de nanoaimants [104]. Cependant, plusieurs travaux antérieurs ont porté sur le même objet d’étude. Des assemblages compacts de nanoaimants sont étudiés depuis le début des années 2000 par les communautés du nanomagnétisme et de l’enregistrement

magnétique. Les films magnétiques nanostructurés étaient vus comme de bons candidats pour augmenter la capacité de stockage des disques durs. L'effet des interactions entre domaines d'enregistrement était aussi un sujet d'intérêt. Les travaux menés sur des assemblages de disques et de plots magnétiques ont montré que leurs interactions jouent un rôle sur la coercitivité et l'anisotropie d'un film magnétique [86, 94]. Les travaux pionniers de Cowburn sur les chaînes 1D de nanoaimants soulignent déjà l'intérêt de ces réseaux pour la réalisation de modèles de spin [18]. En 2002, Saitoh *et al.* ont présenté un réseau de permalloy en nid d'abeille qu'ils décrivent en terme de vertex [89]. Trois ans plus tard, le même groupe identifie les règles de la glace et la dégénérescence de l'état fondamental dans ce système [98]. Mais leur étude porte plutôt sur les propriétés de magnétorésistance du réseau.

En 2006, Wang *et al.* réalisent un réseau de nanoaimants carré [104]. L'originalité de cette étude provient du rassemblement de notions propres à la matière condensée et au nanomagnétisme. Leur motivation est d'étudier d'une manière alternative la physique des glaces de spin au moyen de nanoaimants. Cette étude a créé un entre les communautés de la frustration et du nanomagnétisme. Dans cette section bibliographique, nous allons montrer la diversité des réseaux qui ont été étudiés à ce jour, en insistant sur les réseaux carré et kagomé. Nous n'aborderons pas la question de leur fabrication (se référer à l'annexe B pour plus de détails).

Géométrie carrée Le réseau carré réalisé par Wang *et al.* est représenté en figure 1.17a. Son état magnétique peut être résolu localement par microscopie à force magnétique (cf. fig. 1.17b, voir l'annexe C pour plus de détails sur cette technique). Ce réseau semble être un bon candidat pour réaliser un modèle de glace. La description en termes de vertex T_i ($i \rightarrow 1, 4$) expliquée au §1.2.1 est ici directement applicable. Après désaimantation du réseau, les auteurs ont obtenu des états magnétiques en apparence désordonnés. Le système montre une propension significative à respecter localement la règle de la glace : les vertex T1 et T2 représentent 70% de la population. Mais l'état fondamental du réseau est en fait bien défini. Pour des raisons géométriques, le couplage orthogonal J_1 est plus élevé que le couplage colinéaire J_2 (couplages définis en fig. 1.10). Par conséquent, le vertex T1 est l'état fondamental du système. Le réseau de Wang *et al.* est en fait une réalisation expérimentale du modèle F (cf. §1.2.2). Le désordre observé est dû à une procédure de désaimantation inefficace pour amener le système dans son état fondamental. Cela explique la fréquence élevée de vertex T3 observée.

Ce réseau a servi de référence pour étudier :

- différentes procédures de désaimantation en champ [7, 66, 103] ;
- l'effet d'un recuit sur des réseaux activables thermiquement [24, 39] ;
- le rôle joué par l'intensité des interactions entre aimants [27] ;
- l'effet du désordre intrinsèque dans les réseaux [6] ;

À l'état de l'art des recuits thermiques, des réseaux carrés de plusieurs milliers d'éléments peuvent être amenés dans un état fondamental parfait [22]. Celui-ci est de type antiferromagnétique, nous le noterons AF. Cet état peut former des domaines séparés par des parois constituées de vertex T2 (cf. fig. 1.17c). Bien qu'il s'ordonne de façon triviale, le réseau carré reste néanmoins intéressant pour l'étude de la dynamique des excitations à température finie. Par exemple, des expériences de relaxation résolues en temps ont révélé par quel processus le réseau transite d'un état aimanté vers l'état AF [23].

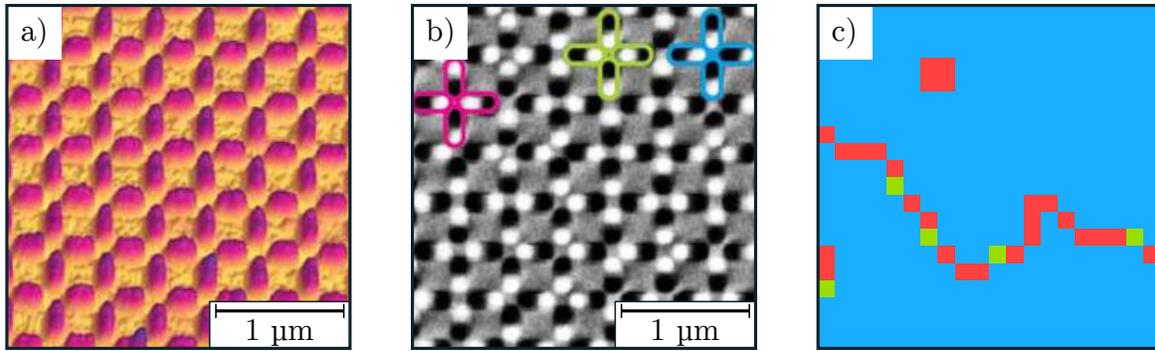


FIGURE 1.17 – a) Image de microscopie à force atomique (AFM) du réseau carré de nanoaimants de Wang *et al.* b) Image MFM associée, sur laquelle l’aimantation de chaque nanoaimant apparaît nettement. Les différents types de vertex sont identifiables. Figures extraites de [104]. c) Réseau carré de 840 nanoaimants après désaimantation en champ tournant. Deux grands domaines antiferromagnétiques se sont formés (en bleu). Ils sont séparés par des parois composées de vertex T2 (en rouge), parfois entrecoupées de vertex T3 (en vert).

Afin de rétablir la dégénérescence du modèle de glace, Möller et Moessner ont proposé de surélever un des deux sous-réseaux. Cela provoque une diminution du couplage J_1 tout en gardant J_2 constant [63]. Il existe une surélévation critique pour laquelle la dégénérescence des six vertex de basse énergie est effectivement rétablie. La réalisation d’un tel système, qui n’a à ce jour jamais été reportée dans la littérature, fera l’objet du dernier chapitre de cette thèse.

Géométrie kagomé Nous avons vu au §1.1.2 que le réseau kagomé est un cas d’école de système à frustration géométrique. Dans sa version « nanoaimants » la plus courante, il est constitué de nanoaimants à aimantation planaire placés le long des bissectrices des triangles. Il est parfois désigné par l’appellation « réseau kagomé multiaxe ». La position des nanoaimants dans ce réseau apparaît en figure 1.18a. Le réseau kagomé peut lui aussi être décrit en termes de vertex, cette fois composés de trois spins. Géométriquement, deux vertex se distinguent : les vertex λ et Y . Pour chaque, il existe $2^3 = 8$ configurations, représentées en figure 1.18b. En raison de la coordinence impaire de ce modèle, une adaptation des règles de la glace s’impose : l’énergie d’un vertex est minimale si deux spins sont sortants et un entrant, et vice versa. La figure 1.18b montre que pour un vertex λ ou Y , il existe six états *ice rule* et deux états excités *3-in/3-out*. À la différence du réseau de Wang *et al.*, tous les états *ice rule* du réseau kagomé multiaxe ont la même énergie. Avec des interactions premiers voisins, l’état fondamental de ce réseau est massivement dégénéré.

Dans un modèle d’interactions dipolaires à longue portée, le réseau possède un diagramme de phase très riche, représenté en figure 1.18c. Il présente quatre phases distinctes, énumérées par température décroissante [64] :

- Phase paramagnétique : à haute température, les spins sont décorrélés les uns des autres et tous les vertex apparaissent de façon équiprobable.
- Phase SI (*Spin Ice*) : le réseau reste désordonné mais la règle de la glace est vérifiée en

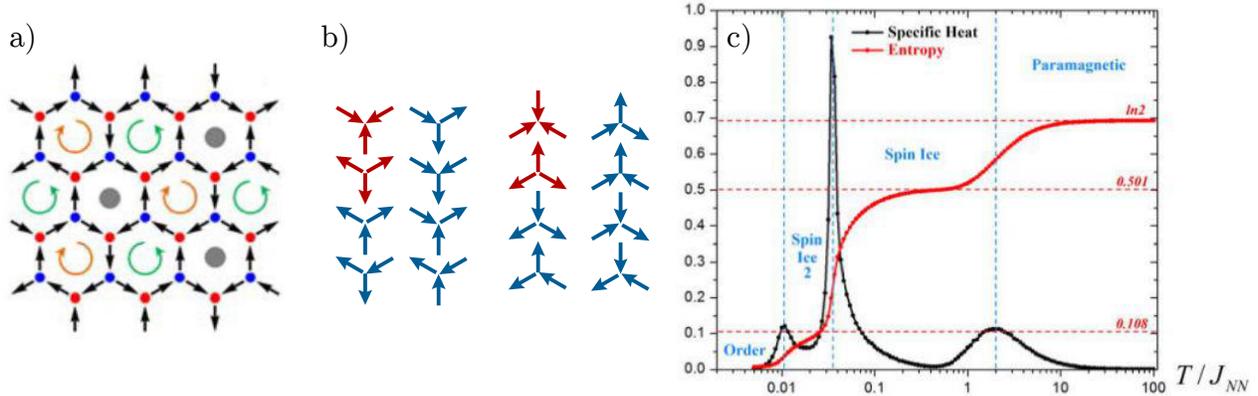


FIGURE 1.18 – a) Représentation des spins d’une portion de réseau kagomé multiaxe dans l’état fondamental favorisé par les interactions dipolaires. b) Schéma des huit vertex Y (à gauche) et λ (à droite) du modèle. Ils se répartissent sur deux niveaux d’énergie : les vertex de haute énergie *3-in/3-out* sont en rouge et les vertex de basse énergie en bleu. c) Diagramme de phase de ce réseau, obtenu à partir de simulations Monte Carlo. Les figures a) et c) sont extraites de la référence [13].

tout point².

- Phase SI2 (*Spin Ice 2*) : les charges magnétiques ± 1 portées par les vertex *ice rule* s’ordonnent antiferromagnétiquement, mais les spins sont toujours libres de fluctuer. La dégénérescence de cette phase reste extensive malgré la présence de ce cristal de charges. L’entropie de la phase SI2 est cinq fois plus faible que celle de la phase SI.
- Phase ordonnée : l’entropie diminue jusqu’à zéro, le réseau s’ordonne dans l’état fondamental représenté en figure 1.18a.

La désaimantation en champ permet d’atteindre aisément la phase SI [82] mais seulement partiellement la phase SI2 [87]. Les réseaux thermiquement actifs permettent d’obtenir des domaines plus étendus de la phase SI2 [65, 112]. Mais à ce jour, la phase ordonnée (cf. fig. 1.18a) n’a jamais été atteinte expérimentalement.

Le réseau kagomé uniaxe à aimantation hors plan a également fait l’objet d’investigations [16, 113]. Les spins sont placés sur les mêmes sites, mais leur axe de quantification est cette fois perpendiculaire au plan du réseau. Si les interactions sont restreintes aux premiers voisins, la physique du réseau uniaxe ne diffère pas du cas multiaxe précédent. Mais les termes d’interaction dipolaire à longue portée sont à l’origine de différences entre les deux diagrammes de phase. Les simulations Monte Carlo ne parviennent pas à prédire l’état fondamental du réseau kagomé uniaxe. Pourtant, il est certain que les interactions à longue portée lèvent la dégénérescence des états de basse énergie. Un candidat plausible pour l’état fondamental a récemment été proposé Chioar *et al.* [15]. Expérimentalement, les réseaux kagomé uniaxe et multiaxe se comportent différemment. Les termes d’interaction à longue portée ont donc une influence significative sur les réseaux de nanoaimants [16, 87].

2. Si les interactions sont restreintes aux premiers voisins, cette phase persiste jusqu’à température nulle. Le réseau se comporte alors comme un liquide de spin classique.

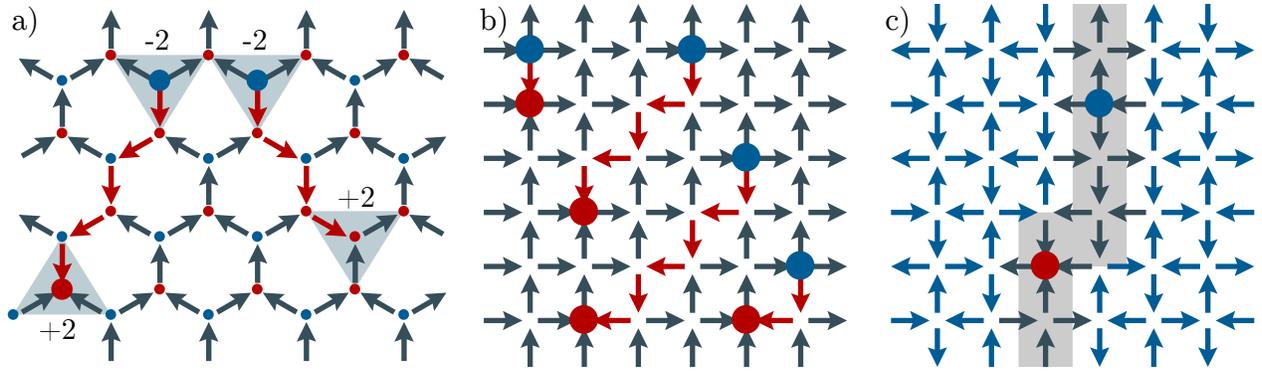


FIGURE 1.19 – a) Avalanches de monopoles lors du renversement de l’aimantation d’un réseau kagomé. Des états *all-in/all-out* apparaissent aux extrémités de chaînes de spins, représentées en rouge. Ces états traduisent un défaut de charge ± 2 par rapport à l’ordre initial. Le défaut $+2$ en bas à droite montre que cet excès ne fait pas systématiquement intervenir un vertex *all-in/all-out*. b) Avalanches similaires cette fois au sein d’un réseau carré. En raison de la coordinence 4 de ce réseau, l’excès de charge ± 2 se traduit toujours par un vertex T3. c) Réseau carré ordonné en deux domaines AF de chiralités différentes. Ils sont séparés par une paroi constituée de vertex T2. Parfois, des monopoles apparaissent au sein de cette paroi de domaine.

Monopoles magnétiques Il est naturel de chercher les monopoles magnétiques émergents dans les réseaux artificiels, après leur découverte dans les glaces de spin [9]. Leur présence devrait se traduire par une violation locale des règles de la glace, sous la forme de vertex T3 dans le réseau carré ou *all-in/all-out* dans le réseau kagomé. Ils ont d’abord été identifiés dans le réseau artificiel kagomé par Ladak *et al.* [47]. Dans cette étude, les auteurs ont observé l’apparition de vertex excités lors de cycles d’hystérésis, effectués selon l’un des trois axes principaux (cf. fig. 1.19a). Expliquons le principe de l’apparition de ces monopoles. Dans un réseau kagomé saturé, tous les vertex vérifient les règles de la glace. L’inversion d’un aimant peut créer une paire de monopoles de charges opposées. L’application d’un champ magnétique peut séparer cette paire en propageant les monopoles dans des directions différentes. La figure 1.19a montre que ces monopoles ne se traduisent pas nécessairement par des vertex *all-in/all-out*. Il s’agit en fait de défauts topologiques, chargés ± 2 , qui se déplacent sur les sites chargés ± 1 du réseau saturé. Leur propagation a fait l’objet d’un vif intérêt [33, 58, 88]. Des monopoles similaires ont été reportés dans la géométrie carrée (cf. fig. 1.19b) [79]. En fait, ces objets apparaissent transitoirement lors du cycle d’hystérésis de n’importe quel réseau.

L’analogie avec les monopoles n’a véritablement de sens que s’ils existent au sein d’un réseau désordonné, se trouvant dans une phase de Coulomb. Les « monopoles » qui apparaissent lors des cycles d’hystérésis correspondent en fait à des parois de domaines. Comme ils appartiennent à une phase ordonnée, il s’agit d’objets différents des monopoles magnétiques identifiés en matière condensée. Les monopoles émergents au sens de Castelnovo n’ont à l’heure actuelle jamais été observés dans les réseaux artificiels. Les meilleurs candidats à ce titre seraient les vertex *all-in/all-out* qui apparaissent parfois au sein du réseau kagomé dans une phase SI. Mais en raison de la coordinence impaire de ce réseau, les monopoles peuvent s’auto-annihiler en se propageant.

Autres géométries Ces dernières années ont vu naître un engouement particulier pour les systèmes à coordinences mixtes comme celui représenté en figure 1.20a. D'autres exemples sont présentés dans l'étude de Morisson *et al.* [69]. Le principe est ici de créer un réseau à l'état fondamental dégénéré par l'assemblage de vertex non-frustrés. L'exemple du réseau « shatki » est représenté en figure 1.20a. Dans ces systèmes, c'est la connexion de vertex aux géométries différentes qui est à l'origine de la frustration. Mentionnons que beaucoup d'autres réseaux ont aussi été étudiés. Nous pouvons citer le réseau triangulaire [61, 85], les réseaux Ising planaires [42], le réseau *brickwork*, et les pavages de type « quasi-cristal » [2] (cf. fig. 1.20b). Les géométries carrée et kagomé restent néanmoins les plus étudiées à ce jour. Des travaux ont aussi été menés sur des réseaux de quelques dizaines d'aimants (cf. fig. 1.20c), avec des effets de bord exacerbés. Ils sont désignés par le terme « building blocks » [51, 57]. Le faible nombre de spins qui les composent permet de calculer directement leur fonction de partition.

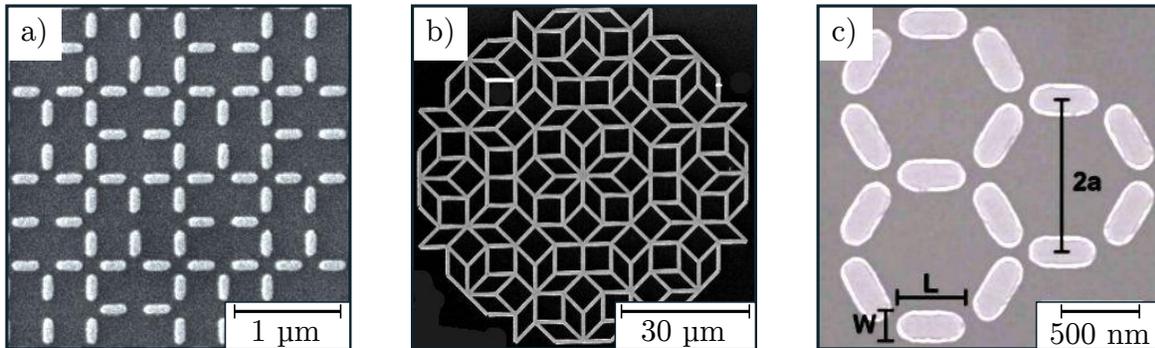


FIGURE 1.20 – a) Réseau « shatki » à coordinence mixte, extrait de [27]. b) Pavage non-périodique, extrait de [3]. c) *Building block* composé de 15 nanoaimants, extrait de [57].

Dans cette partie, nous avons présenté les principaux réseaux de nanoaimants et expliqué quelle physique ils permettent d'étudier. Nous allons dans la partie suivante aborder le problème des fluctuations dans ces réseaux. Les premiers travaux sur le sujet emploient un processus de désaimantation pour exciter les réseaux. Deux méthodes ont depuis fait leurs preuves pour introduire des fluctuations thermique dans un réseau. La première consiste à effectuer un recuit au delà de la température de Curie des aimants. La seconde vise à dépasser la température de blocage des aimants pour atteindre un régime superparamagnétique.

1.3.3 Désaimantation en champ

Jusqu'en 2013, les réseaux de nanoaimants sont constitués d'une couche magnétique d'une épaisseur typique de 20 nm. Cela garantit un fort signal pour l'imagerie. Mais le moment magnétique important porté par les aimants engendre des barrières d'énergie de retournement très élevées. Cela interdit l'existence de fluctuations superparamagnétiques : les températures requises seraient bien au delà de la température de destruction de l'échantillon. Nous expliquerons au §1.3.4 comment ce problème a été résolu. La première approche employée pour exciter les réseaux repose sur l'application d'un champ magnétique oscillant, d'enveloppe décroissante. Nous avons déjà évoqué au §1.3.1 comment un champ magnétique aléatoire

peut jouer le rôle de température effective dans un système athermique. La situation est comparable à une boîte d'allumettes qui serait secouée. L'application d'un champ oscillant pour conduire un réseau de nanoaimants vers ses états de basse énergie est attribuable à Cowburn, dans son étude de 2002 sur les chaînes de spins [18]. Le paragraphe suivant explique le mécanisme de retournement d'un nanoaimant par l'application d'un champ magnétique.

Renversement d'un nanoaimant En 1948, Stoner et Wohlfarth présentent un modèle pour les alliages hétérogènes ferromagnétiques basé sur un ensemble de particules uniformément aimantées avec une anisotropie uniaxiale [97]. L'application d'un champ magnétique inverse sur une telle particule provoque une rotation cohérente de son aimantation. Lorsque le champ atteint une valeur critique, dépendante de l'anisotropie de l'objet, l'aimantation s'inverse brusquement. Le mécanisme est représenté en figure 1.21a. Ce modèle est souvent invoqué dans l'étude des réseaux de nanoaimants. Mais sa validité se limite aux particules de petite taille (quelques dizaines de nanomètres), pour lesquelles l'énergie démagnétisante est négligeable devant l'énergie d'échange. Ce n'est pas le cas dans les nanoaimants des réseaux artificiels car leur longueur atteint plusieurs centaines de nanomètres. Une inversion cohérente de leur aimantation nécessiterait un champ beaucoup plus élevé que ce qui est constaté expérimentalement.

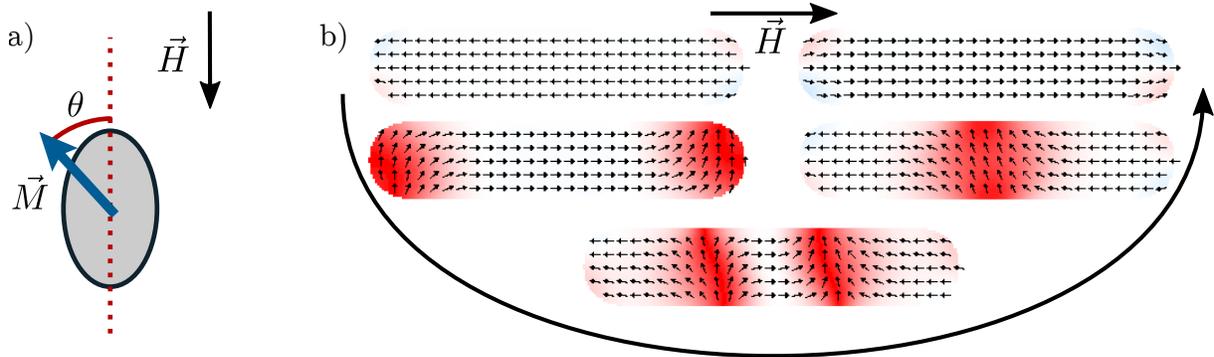


FIGURE 1.21 – a) Schéma illustrant la rotation cohérente de l'aimantation d'une particule anisotrope sous champ. L'angle θ de l'aimantation résulte d'un équilibre entre le champ et une force de rappel élastique vers l'axe. Le macrospin s'inverse brusquement lorsque $\theta > \frac{\pi}{4}$. b) Simulation micromagnétique de l'inversion de l'aimantation pour un nanoaimant de 500 nm de long, 100 nm de large et 3 nm d'épaisseur. Le champ appliqué engendre la nucléation de deux parois de domaine qui traversent l'aimant.

Une modélisation plus précise doit tenir compte des effets micromagnétiques. À ces dimensions, l'inversion de l'aimantation se fait par un mécanisme de nucléation/propagation d'une paroi de domaine. La figure 1.21b montre une simulation micromagnétique du phénomène dans un nanoaimant de 500 nm de long. La nucléation des parois s'effectue ici à chaque extrémité de l'objet, puis elles traversent l'aimant pour fusionner au centre. À l'état final, l'objet est aimanté dans un sens opposé à l'état initial. Les parois qui apparaissent sur cette simulation sont de type transverse. En l'absence de champ, la structure d'une paroi de domaine dans une bande magnétique dépend de sa géométrie. Pour certaines conditions de largeur et d'épaisseur, des parois de type vortex peuvent aussi exister [70]. Remarquons que

ce dernier cas est très instable en présence d'un champ magnétique externe. La structure d'une paroi peut aussi changer au cours de sa propagation si le champ appliqué est supérieur au champ critique de Walker [90]. En résumé, l'inversion d'un nanoaimant sous l'effet d'un champ magnétique résulte d'un processus complexe de nucléation et de propagation de parois de domaine.

La forme des extrémités de l'aimant peut influencer fortement la coercitivité de l'objet. Par exemple, une extrémité carrée est plus favorable à la nucléation qu'une extrémité effilée [43]. Les défauts des aimants et la rugosité de leurs bords ont aussi une influence. Cela explique pourquoi, dans une assemblée d'aimants isolés, tous n'ont pas exactement le même champ coercitif. L'expérience de la figure 1.22 montre que la distribution des champs coercitifs suit une loi gaussienne. Dans ce cas, la probabilité pour un spin n d'avoir un champ coercitif H_c^n s'exprime :

$$P(H_c^n) = \frac{1}{\Delta H_c \sqrt{2\pi}} \exp -\frac{(H_c^n - H_c)^2}{2\Delta H_c^2}$$

où H_c est le champ coercitif moyen des aimants et ΔH_c la dispersion de la distribution. Expérimentalement, nous obtenons pour notre assemblée d'aimants $H_c=25$ mT et $\Delta H_c=4$ mT. Nous reviendrons sur cette notion de distribution des champs coercitifs au dernier chapitre, pour simuler le processus de désaimantation en champ.

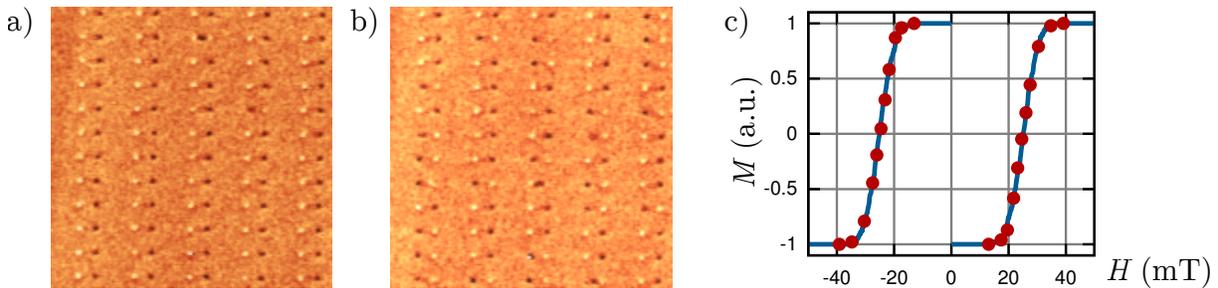


FIGURE 1.22 – a) Image MFM montrant 60 nanoaimants quasi-isolés dans un état saturé. b) Même région après application d'un champ magnétique inverse de 24.6 mT. Environ la moitié des aimants ont changé d'état (largeur d'image : 10 μm). c) Cycle d'hystérésis d'un ensemble plus large de 440 nanoaimants quasi-isolés. Le cycle n'est pas carré, ce qui confirme que tous les aimants n'ont pas exactement la même coercitivité. La courbe bleue est un cycle simulé pour 440 aimants avec $H_c=25$ mT et $\Delta H_c=4$ mT (16 %).

Désaimantation Nous avons vu comment un champ magnétique peut inverser un nanoaimant isolé. Le principe de la désaimantation est de soumettre le réseau à un champ magnétique tournant³ d'amplitude décroissante et éventuellement oscillante. La méthode généralement employée consiste à fixer l'échantillon sur un rotor dans l'entrefer d'un électroaimant (cf. fig. 1.23a). L'amplitude initiale du champ doit être suffisamment élevée pour saturer l'ensemble du réseau. Au cours de la décroissance du champ, les aimants au champ coercitif le plus élevé sont les premiers à se figer. Ils rayonnent un champ qui s'ajoute au champ local ressenti par

3. La rotation n'est pas nécessaire pour les systèmes uniaxiaux, comme les chaînes de spins [34] ou les réseaux à aimantation perpendiculaire [113].

les aimants environnants. C'est à cette étape que les corrélations s'établissent dans le réseau. Lorsque l'amplitude du champ est très inférieure au champ coercitif le plus faible du réseau, le processus est terminé. La désaimantation est donc active à l'intérieur d'une fenêtre de champ, représentée en figure 1.23b. La largeur de cette fenêtre augmente avec la dispersion des champs coercitifs ΔH_c . Elle diminue si le réseau a un état fondamental bien défini et de fortes interactions. L'efficacité de la procédure de désaimantation peut être estimée en mesurant l'aimantation rémanente des réseaux et ses population de vertex. Plusieurs études ont porté sur le rôle du pas de champ et de la durée de la désaimantation [41, 66, 103]. Il ressort de ces travaux que la désaimantation est plus efficace si elle est effectuée lentement, avec un pas de champ faible et de fortes interactions entre aimants. Budrikis *et al.* ont montré qu'une source de désordre, comme une dispersion des champs coercitifs, permet d'amener plus efficacement un réseau dans ses états de basse énergie [7].

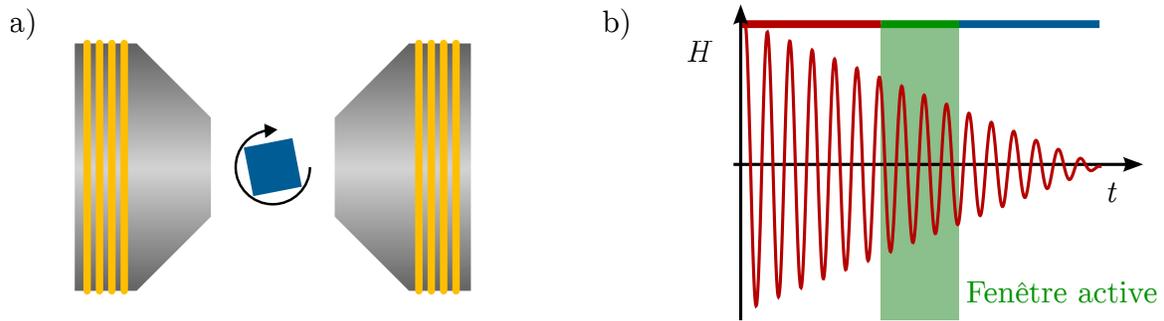


FIGURE 1.23 – a) Schéma de notre dispositif expérimental de désaimantation. L'échantillon placé sur un moteur est en rotation à 40 Hz dans l'entrefer d'un électroaimant. b) Allure du courant circulant dans l'électroaimant. Il s'agit d'un sinus, de fréquence 0.25 Hz, modulé par une rampe décroissante d'une durée de typiquement 70 heures.

Il est remarquable qu'un processus a priori déterministe puisse amener un système dans un état désordonné. Les travaux de Nisoli *et al.* ont montré que les configurations obtenues après désaimantation sont bien décrites par une distribution canonique [72, 73]. La notion de température effective, introduite pour l'étude des milieux granulaires, peut s'appliquer ici. Le champ magnétique agit sur les réseaux d'une manière analogue à des vibrations sur un milieu granulaire ; il joue ici le rôle de bain thermique (le terme de magnéto-fluidification est parfois avancé [71]). La « température » peut être contrôlée avec la rampe de champ appliquée lors de la désaimantation. À partir de l'état magnétique d'un réseau, sa température effective peut être estimée par comparaison avec des modèles théoriques ou numériques (simulations monte Carlo). Lors d'une désaimantation, la température effective peut atteindre plusieurs milliers ou dizaines de milliers de kelvins. Mais il est certain que ce processus n'explore pas l'espace des configurations de la même manière que des fluctuations thermiques. Cela explique pourquoi l'état fondamental ne s'établit que partiellement dans la glace carrée désaimantée. Dans le réseau kagomé, la règle de la glace est bien vérifiée après désaimantation mais les phases SI2 et ordonnée demeurent toujours inaccessibles. C'est pourquoi la communauté s'est efforcée à concevoir des réseaux excitables thermiquement.

1.3.4 Réseaux thermiquement actifs

Nous allons voir dans cette section comment réaliser des réseaux thermiquement actifs, qui s'affranchissent des défauts de la désaimantation. Le phénomène d'activation thermique d'un macrospin a été modélisé conjointement par L. Néel et W.F. Brown. Dans une approximation de macrospin, la barrière d'énergie E_r de retournement d'une particule uniformément aimantée s'exprime :

$$E_r = KV = \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 \Delta N V \quad (1.1)$$

Où V est le volume de la particule et K sa constante d'anisotropie uniaxiale. Dans un matériau doux comme le permalloy, K ne dépend que de l'aimantation à saturation M_s et du facteur démagnétisant ΔN . Ce dernier est déterminé par la géométrie de la particule, son calcul exact n'est possible que dans le cas d'une ellipsoïde. Pour que les fluctuations thermiques affectent l'état magnétique de la particule, il faut que $E_r \sim k_B T$. La probabilité P pour que le macrospin ne change pas d'état au cours d'une durée d'observation Δt suit une loi exponentielle :

$$P = \exp \frac{-\Delta t}{\tau} \quad \text{avec} \quad \tau = \tau_0 \exp \frac{E_r}{k_B T}$$

τ est le temps caractéristique de stabilité thermique, aussi appelé temps de relaxation de Néel. Il suit une loi d'Arrhénius. τ_0 est un temps caractéristique intrinsèque, dépendant notamment de l'amortissement du matériau (*damping*) et de la température. Dans le modèle de Néel-Brown, τ_0 est supposé constant pour des raisons de simplicité. À durée d'observation Δt constante, la dynamique de l'aimantation est fortement influencée par la température. À basse température, le macrospin apparaît comme bloqué. À haute température son aimantation fluctue fortement, la particule est dans un régime dit superparamagnétique. Ces deux régimes sont séparés par une température de blocage T_b . Elle est définie comme la température pour laquelle $\tau(T_b) = \Delta t$. Elle s'exprime [81] :

$$T_b = \frac{KV}{k_B \ln \frac{\Delta t}{\tau_0}} \quad (1.2)$$

Comme T_b dépend de Δt , il devrait être possible d'observer des fluctuations sur n'importe quel macrospin pourvu que la durée d'observation soit suffisamment longue. Cette propriété est à prendre en compte pour assurer la pérennité de l'information lors de la conception d'un support de stockage magnétique (comme un disque dur) [48].

Le modèle de Néel-Brown est utilisé pour décrire les propriétés magnétiques d'assemblées de particules (composés massifs ou films minces). Mais il faut attendre 1997 pour voir la première vérification directe de ces lois par Wernsdorfer *et al.* sur un macrospin isolé [106]. Cette étude a entre autres permis de mesurer le temps caractéristique τ_0 d'une particule de cobalt monocristalline de 25 nm de diamètre ; il est de l'ordre de la nanoseconde. Le volume d'activation expérimental est proche du volume de la particule. Cela signifie que la rotation de l'aimantation est cohérente lors du processus d'activation thermique.

Ce modèle est valable pour un macrospin, mais sa généralisation aux nanoaimants des glaces artificielles est délicate. Comme leur taille caractéristique est de plusieurs centaines de nanomètres, il s'agit d'objets micromagnétiques complexes très différents d'un macrospin. La

barrière d'énergie E_r correspond ici à l'énergie de nucléation d'une paroi de domaine, puisqu'il s'agit du mode de renversement de l'aimant (cf. fig. 1.21b). Le volume d'activation est aussi très difficile à estimer. Kapaklis *et al.* l'ont fixé au volume total de l'aimant [39]. Ce choix suppose implicitement que l'aimantation tourne de façon cohérente, ce qui est très coûteux énergétiquement dans un aimant de plusieurs centaines de nanomètres. Le modèle de Néel-Brown peut fournir une base théorique pour l'interprétation des expériences sur les réseaux thermiquement actifs. Mais à l'échelle d'un nanoaimant, le mécanisme de renversement de l'aimantation sous l'effet de la température est inconnu. L'application de ce modèle aux réseaux artificiels mérite donc quelques réserves.

D'après l'expression de la température de blocage 1.2, une diminution du volume V des aimants abaisse la valeur de T_b . Les dimensions latérales des aimants ne peuvent pas être réduites significativement en raison de la résolution limitée des techniques de lithographie et d'imagerie. En revanche, l'emploi de couches minces magnétiques (quelques nanomètres) permet un très bon contrôle de T_b . Une autre approche consiste à exploiter la dépendance en température de la constante d'anisotropie. Comme celle-ci dépend de l'aimantation à saturation du matériau constituant le réseau, elle devient très faible au voisinage de sa température de Curie. Nous allons voir comment ces deux approches peuvent être réalisées expérimentalement.

Recuit au delà de la température de Curie Il est possible de changer l'état magnétique d'un réseau en l'échauffant au delà de sa température de Curie T_c . Mais avec les matériaux couramment employés dans les réseaux artificiels ($T_c = 853$ K pour le permalloy, $T_c = 1388$ K pour le cobalt) le recuit provoque une dégradation des nanostructures. Par exemple, dans le cas du permalloy, un problème d'interdiffusion entre le matériau et le substrat rend inutilisable l'échantillon. Plusieurs solutions ont été développées pour contourner ces difficultés.

La première réalisation d'un réseau thermiquement actif est attribuée à Kapaklis *et al.* [40]. Leurs nanoaimants sont faits d'un empilement de monocouches de palladium et de fer. La température de Curie d'une couche mince de fer encapsulée dans du palladium peut être ajustée grâce à son épaisseur. Cette approche leur a permis d'abaisser T_c à 230 K. Cette température est à comparer au cas du fer massif, pour lequel $T_c = 1043$ K. Une autre approche, présentée par Porro *et al.*, consiste à diminuer la T_c d'un alliage de NiFe en agissant sur sa stoechiométrie. Pour le permalloy usuel ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$), $T_c = 853$ K. En abaissant la proportion de fer, cette température diminue : pour un alliage $\text{Ni}_{87}\text{Fe}_{13}$, $T_c = 768$ K. Par un recuit au delà de cette température, les auteurs sont parvenus à introduire des fluctuations thermiques dans le réseau sans l'endommager [81]. Zhang *et al.* ont eux inséré une couche de nitrure de silicium pour bloquer l'interdiffusion entre le substrat et les nanoaimants de permalloy. Sa présence permet de préserver les nanoaimants jusqu'à une température de 820 K, ce qui est suffisant pour atteindre un régime thermiquement actif. Les auteurs ont ainsi obtenu de larges portions du réseau carré dans son état fondamental (cf. fig. 1.24a) [112]. D'autres matériaux à basse température de Curie sont aussi employés, comme les alliages GdCo [14] ou FePd [22].

Les fluctuations induites par un recuit à $T > T_c$ ont une nature particulière. Lorsque $T > T_c$, les aimants perdent leur aimantation et leurs interactions sont inexistantes. Lors du refroidissement, les corrélations du réseau s'établissent selon un certain mécanisme. Une première hypothèse postule qu'à température proche de T_c , les aimants sont faiblement aimantés.

Le terme d'anisotropie KV est donc très faible, ce qui abaisse la température de blocage T_b . Les aimants se trouvent donc dans un régime semblable à du superparamagnétisme. L'autre hypothèse suppose l'existence d'une cinétique de réaimantation de proche en proche. Lors du refroidissement, un premier aimant se réaimante. Sous l'effet de son champ dipolaire, ses proches voisins se réaimantent à leur tour dans des configurations de basse énergie. La réaimantation se propage ainsi à tout le réseau, qui à la fin du processus se trouve dans un état de basse énergie. Les configurations finales obtenues par simulation de ce processus cinétique sont différentes de celles obtenues par des fluctuations thermiques. Expérimentalement, Chioar *et al.* ont montré que l'état final de réseaux kagomé en GdCo sont mieux décrits par le processus cinétique [14].

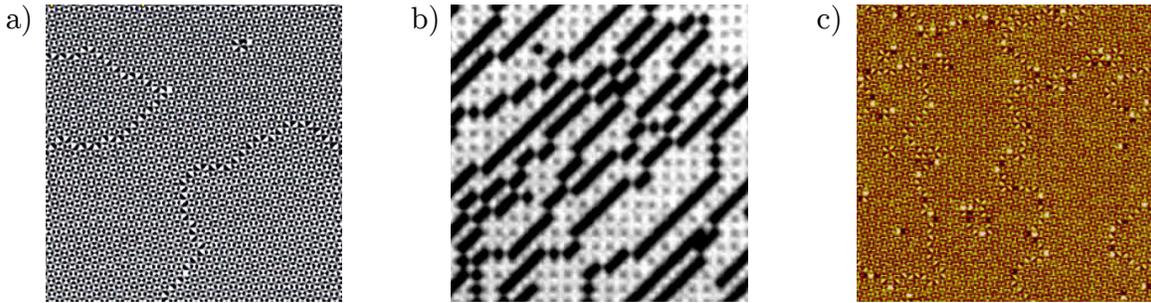


FIGURE 1.24 – a) Image MFM d'une portion d'un réseau de permalloy épais (25 nm) après recuit au delà de sa température de Curie T_c . Trois grands domaines d'état AF se sont formés, séparés par des parois de domaine composées de vertex T2. Image extraite de la référence [112]. b) Image XMCD-PEEM du processus de relaxation d'un réseau carré fait d'une couche mince de permalloy (3 nm). Initialement, le réseau est dans un état saturé (entièrement blanc). Lorsque la température atteint la température de blocage T_b , des chaînes de spins s'inversent et traversent le réseau. Ce processus de relaxation continue jusqu'à ce que le réseau atteigne l'état fondamental AF. Image extraite de la référence [24]. c) Image MFM d'un réseau athermique après fabrication, présentant de grands domaines d'état fondamental. L'ordre s'est établi lors des premières phases du dépôt magnétique. Extrait de [68].

Régime thermiquement actif Réduire le volume V des aimants en diminuant leur épaisseur à quelques nanomètres est un moyen efficace d'atteindre un régime thermiquement actif. Avec des aimants de permalloy de 3 nm d'épaisseur, Fahran *et al.* ont observé des fluctuations thermiques à une température de 320 K [23]. À une telle épaisseur, la température de Curie ne s'écarte que peu de celle du matériau massif (853 K). Il est donc clair que les nanoaimants portent encore la totalité de leur moment magnétique et que les fluctuations sont semblables à du superparamagnétisme. Cette approche présente l'avantage d'offrir un contrôle de la température du réseau, et même de résoudre temporellement les fluctuations thermiques. Elle a notamment permis l'observation du mécanisme de relaxation d'un réseau carré saturé vers son état fondamental AF (cf. fig. 1.24b) [24]. Au troisième chapitre de ce manuscrit, nous présenterons des expériences effectuées en employant ce type de réseaux. La finesse de la couche magnétique engendre cependant des difficultés d'imagerie magnétique. Des techniques plus lourdes, comme le XMCD-PEEM (cf. annexe D), sont alors requises.

État *as-grown* En 2011, Morgan *et al.* ont observé la formation de grands domaines d'état fondamental (cf. fig. 1.24c) après fabrication d'un échantillon de permalloy épais, a priori athermique [68]. Ce phénomène trouve son origine dans les premières phases du dépôt magnétique. Lorsque le matériau est encore suffisamment fin (< 3 nm), des fluctuations de type superparamagnétique se produisent à température ambiante. Le réseau peut alors atteindre des états de basse énergie, qui « gèlent » une fois l'épaisseur de permalloy trop élevée pour permettre l'existence de fluctuations. On parle alors d'état *as-grown*. Le bâti de dépôt doit cependant être exempt de tout champ magnétique parasite. La vitesse de dépôt est un paramètre important puisque c'est elle qui conditionne la durée pendant laquelle le réseau est libre de fluctuer. Cette thermalisation des réseaux durant leur fabrication a été traitée théoriquement par Nisoli [72].

Dans cette partie sur les réseaux de nanoaimants, nous nous sommes cantonnés aux aspects concernant la frustration et les modèles de spin. Néanmoins, ces systèmes présentent un intérêt à part entière dans le domaine du nanomagnétisme. Le paragraphe suivant a pour but de donner un aperçu de cette autre facette des glaces artificielles.

1.3.5 Intérêt en nanomagnétisme

La propagation de parois de domaine sous l'effet d'un champ ou d'un courant électrique fait l'objet de nombreuses investigations en magnétisme. Le réseau kagomé connecté est un système intéressant pour ce type d'études. Comme le montre la figure 1.25a, à chaque bifurcation, la paroi doit choisir une direction parmi deux. Plusieurs études numériques et expérimentales ont montré que les degrés de liberté micromagnétiques de la paroi de domaine déterminent sa direction de propagation [92, 102, 111]. Dans certains cas, elle se propage de manière directionnelle en bifurquant systématiquement du même côté. Autre point remarquable, si les aimants sont déconnectés la paroi peut se piéger au centre d'un vertex en créant un état *3-in/3-out*. Celui-ci présente dans certaines conditions une structure micromagnétique chirale [88]. Celle-ci serait une réminiscence de la chiralité de la paroi qui lui a donné naissance. Une partie de cette thèse a par ailleurs porté sur la mise en évidence expérimentale de ce degré de liberté interne. Une image MFM d'un tel état est représentée en figure 1.25b. Des déflexions de l'aimantation similaires sont aussi étudiées dans le réseau carré [28]. Les réseaux de nanoaimants font également l'objet d'investigations par résonance ferromagnétique [3, 36, 95], par mesures de magnétorésistance [50, 99] ou de cycles d'hystérésis [2, 45, 79]. Ils sont vus comme des métamatériaux magnétiques aux propriétés ajustables par construction.

Conclusion et objectifs de la thèse

La frustration est une propriété exotique de la matière qui donne naissance à des phénomènes non conventionnels. Elle est parfois associée à une dégénérescence massive de l'état fondamental, à l'origine de l'entropie résiduelle mesurée sur certains composés. À basse température, ces systèmes ne présentent pas de transition de phase, ou alors très en dessous de leur température de Curie. Dans les glaces de spin dipolaires, la règle de la glace peut amener le système dans une phase de Coulomb. Ces corrélations particulières se traduisent par des

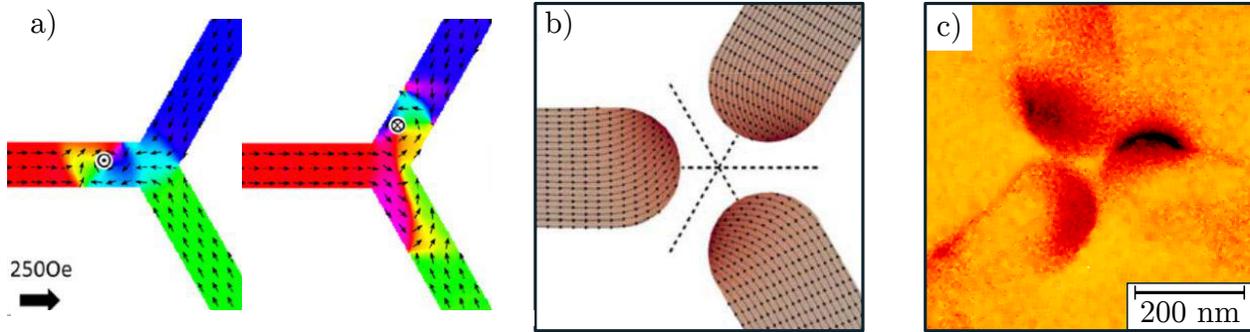


FIGURE 1.25 – a) Simulation micromagnétique de la propagation sous champ d’une paroi de type vortex à travers un embranchement en Y. Les deux directions sont a priori équivalentes. Dans certaines conditions, la chiralité de la paroi détermine la direction de propagation. Extrait de [102]. b) Simulation micromagnétique d’un état β -in dans le réseau kagomé, correspondant à un pseudo-monopole. L’aimantation adopte une structure chirale pouvant être inversée par application d’un champ. Extrait de [88]. c) Image MFM d’une configuration présentant une aimantation chirale très similaire à celle représentée en b).

points de pincement sur le facteur de structure. Cet état particulier est propice à l’émergence de quasi-particules comme les monopôles magnétiques.

Il existe un modèle de vertex bidimensionnel analogue à la glace, appelé modèle de glace carrée. Son entropie résiduelle a été calculée de façon exacte par Lieb. Ce modèle se comporte comme un liquide de spin classique algébrique, avec toutes les propriétés associées. À ce jour, aucun équivalent expérimental n’a été reporté dans la littérature.

Les systèmes frustrés artificiels permettent de réaliser une grande variété de modèles de spin. Nous avons donné un aperçu de l’état de l’art dans ce domaine, en insistant sur les réseaux de nanoaimants qui font l’objet de cette thèse. Ils présentent l’avantage d’être modulables à souhait et observables directement par imagerie magnétique. Il est cependant délicat de les amener à l’équilibre thermodynamique. De plus, ils se limitent pour le moment à des modèles à deux dimensions. À ce jour, aucune observation d’une phase de Coulomb n’a pu être réalisée dans les systèmes frustrés artificiels. Les réseaux de nanoaimants étudiés jusqu’à présent s’ordonnent, à une échelle plus ou moins grande.

L’observation d’une phase de Coulomb et de monopoles magnétiques dans un réseau de nanoaimants constitue l’objectif principal de cette thèse. Le prochain chapitre regroupe la partie technique de ce manuscrit. Nous y présenterons notre méthodologie pour l’analyse des réseaux, du point de vue théorique, numérique et expérimental. Les deux derniers chapitres sont consacrés à deux approches différentes visant à réaliser le modèle de Lieb. Nos expériences s’appuieront systématiquement sur un socle théorique et des simulations numériques.

Chapitre 2

Concepts pour l'étude des réseaux de nanoaimants

Ce chapitre vise à introduire les outils de modélisation et d'analyse de réseaux employés dans cette thèse. Dans la première section, nous expliquerons quelles quantités nous pouvons extraire d'une configuration magnétique expérimentale ou issue de simulations. Nous nous intéresserons aux populations de vertex, à l'aimantation rémanente, puis aux corrélations spin-spin dans le réseau direct et dans l'espace réciproque.

Nous modéliserons les nanoaimants et leurs interactions de trois manières différentes. La description micromagnétique est certainement la plus réaliste car elle tient compte de la géométrie tridimensionnelle des nanoaimants, ainsi que de leurs degrés de liberté internes micromagnétiques. Son temps de calcul élevé, ainsi que la difficulté de l'étendre à une assemblée de plusieurs centaines d'aimants, sont ses inconvénients majeurs. Par exemple, elle n'est pas exploitable pour simuler une désaimantation en champ ou calculer l'énergie de tout un réseau. Pour ces besoins spécifiques, nous préférons employer les modèles simplifiés du type dipôle ponctuel ou de « charges magnétiques ». Nous établirons dans ce chapitre des liens quantitatifs entre ces trois modélisations.

La dernière partie est consacrée à l'étude du réseau carré avec des interactions premiers voisins, par analyse spectrale de son hamiltonien. Nous montrerons que selon les couplages entre aimants, le réseau possède un état fondamental antiferromagnétique, ferromagnétique, ou massivement dégénéré. Dans ce dernier cas, il se comporte comme le liquide de spin algébrique attendu dans le modèle de Lieb.

2.1 Outils d'analyse de réseaux

Nous serons systématiquement amenés à caractériser des configurations magnétiques expérimentales ou numériques. Un certain nombre de quantités ont pour cela été conçues, comme les populations de vertex ou les corrélateurs de spin. Cette partie vise à introduire plusieurs outils complémentaires pour l'analyse des réseaux. Ils seront notamment utiles pour confronter les résultats aux prédictions des simulations. Nous nous restreindrons ici au cas particulier du réseau carré bidimensionnel. Ces outils seraient cependant généralisables à d'autres géométries, voire en trois dimensions.

2.1.1 Quantités dénombrables

Populations de vertex L'analyse des populations (ou fréquences) de vertex est un outil commode pour visualiser l'état d'un réseau. La figure 2.1a rappelle les quatre types de vertex existant dans le réseau carré. À partir d'une configuration de spin, il est aisé d'identifier et de dénombrer les différents vertex. Le nombre de vertex de type i est noté n_i . Par exemple, sur la configuration de la figure 2.1b, $n_1=6$, $n_2=8$, $n_3=9$ et $n_4=2$. La population de vertex de type i , notée ρ_i , s'exprime :

$$\rho_i = \frac{n_i}{\sum_{i=1}^4 n_i}$$

Si les interactions dans le réseau sont à courte portée, alors l'énergie du réseau s'obtient directement à partir des populations de vertex. L'énergie par maille unité s'exprime dans ce cas :

$$E = \sum_{i=1}^4 \rho_i E_i$$

où E_i représente l'énergie du vertex de type i . La mesure des populations ρ_i permet de caractériser rapidement un réseau, par exemple pour savoir si la règle de la glace est vérifiée ($\rho_1 + \rho_2 = 1$). Mais mis à part les cas triviaux où le réseau est composé d'un seul type de vertex ($\exists i$ tel que $\rho_i = 1$), elle apporte peu d'information sur l'ordre ou le désordre magnétique. Sur les schémas et les graphes de ce manuscrit, les couleurs bleu, rouge, vert et jaune seront

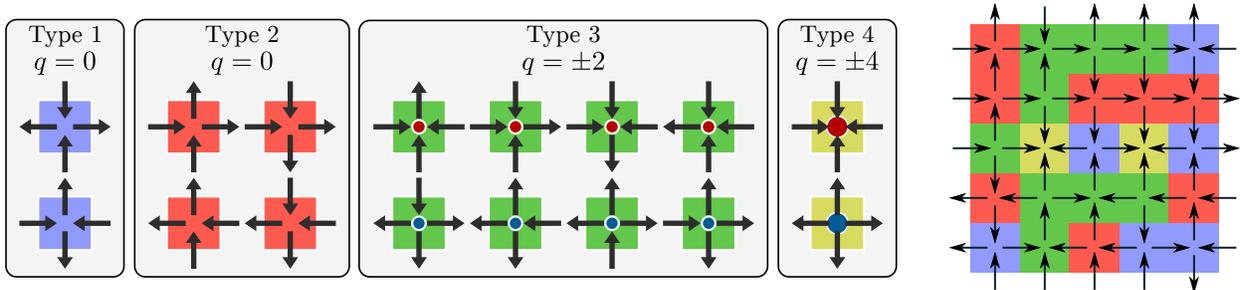


FIGURE 2.1 – Rappel des quatre types de vertex du réseau carré. Les vertex T3 et T4 portent respectivement une charge magnétique $\pm 2q$ et $\pm 4q$. À droite, les vertex ont été identifiés sur une configuration de spin aléatoire.

respectivement associées aux vertex T1, T2, T3 et T4.

Tailles de domaines Nous serons parfois confrontés à des réseaux plus ou moins ordonnés. Dans ce cas, mesurer la taille moyenne des domaines permet de quantifier jusqu'à quel point l'ordre s'est établi. Nous distinguerons par la suite deux états ordonnés :

- L'état antiferromagnétique (AF) composé de vertex T1 ;
- L'état de lignes de spins alternées, dit « Manhattan » (M), composé de vertex T2. Nous expliquerons au §2.4.2 dans quels cas il apparaît.

Ces deux états et leur maille unité sont représentés en figure 2.2a et b. Nous considérons qu'une région ordonnée constitue un domaine si elle contient au moins une maille unité. La convention de comptage pour les domaines AF est simple : s'il existe au moins deux vertex

T1 jointifs, alors ils forment un domaine. Le cas des domaines M est plus complexe : la maille unité est constituée de quatre vertex T2, qui doivent avoir la bonne configuration locale. Tout vertex T2 jointif ayant la bonne configuration est inclus dans le domaine, même s'il ne fait pas partie d'une maille unité. Dans les deux cas, la taille d'un domaine correspond au nombre de vertex qui y sont impliqués. La figure 2.2c montre un réseau avec plusieurs domaines de différentes tailles, indiquées par les chiffres noirs. Remarquons qu'un système est parfaitement ordonné s'il n'est composé que d'un seul domaine de la taille du réseau.

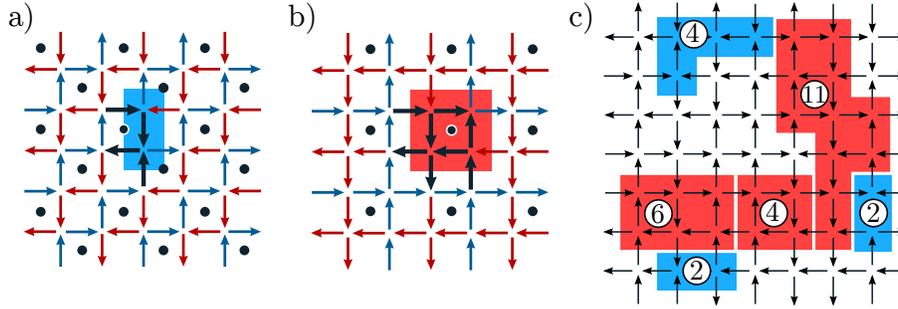


FIGURE 2.2 – a) Portion de réseau dans l'état AF. La maille unité est définie par quatre spins (en noir) appartenant à deux vertex (en bleu). Elle se propage sur un réseau triangulaire. b) Portion de réseau dans l'état M. La maille unité est cette fois définie par huit spins (en noir) appartenant à quatre vertex (en rouge). Elle se propage sur un réseau carré. c) Portion de réseau présentant des domaines AF et M de tailles variées. Les vertex blancs n'appartiennent à aucun domaine.

Ces tailles de domaines seront utiles pour analyser des réseaux partiellement ordonnés. Intéressons-nous maintenant aux corrélations qui existent entre les spins.

Aimantation rémanente Un réseau est systématiquement saturé avant un processus de désaimantation en champ ou de recuit thermique. Cela permet de partir d'une configuration initiale connue et reproductible. Si le processus a amené avec succès le réseau dans un état de basse énergie décorrélé de l'état initial, plus aucune trace de cette saturation ne doit subsister. Calculer l'aimantation globale du réseau est un moyen commode de vérifier cela. L'aimantation \mathbf{M} du réseau de N spins \mathbf{S}_i est donnée par la relation :

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \end{pmatrix} = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{S}_i \quad (2.1)$$

Le facteur 2 permet d'avoir $M_x = M_y = 1$ pour un réseau saturé. Rappelons qu'avec nos définitions, chaque sous-réseau se compose de $\frac{1}{2}N$ spins (selon les axes x et y , cf. fig. 2.1). À première vue, une configuration désordonnée devrait avoir une rémanence nulle. Cette affirmation est vraie pour un réseau quasi-infini, à la limite thermodynamique. Mais pour un réseau de quelques centaines ou milliers d'aimants, la présence d'une rémanence finie est normale. Prenons l'exemple d'une configuration de N spins aléatoires. $\frac{1}{2}N$ spins se trouvent dans chaque direction du réseau. Par mesure de simplicité, nous ne raisonnons que sur un

seul axe du réseau. Son aimantation M s'exprime :

$$M = \sum_{i=0}^{\frac{1}{2}N} S_i \quad (2.2)$$

Elle s'exprime comme la somme de $\frac{1}{2}N$ variables aléatoires S_i prenant les valeurs ± 1 . La situation est analogue à une expérience de Bernoulli renouvelée $\frac{1}{2}N$ fois. Dans la loi de Bernoulli, la variable aléatoire X_i prend les valeurs 1 ou 0 avec des probabilités respectives p et $1-p$. En l'absence de champ magnétique, les deux orientations de spin sont équiprobables donc la probabilité de succès p vaut $\frac{1}{2}$. Dans le cas de l'aimantation, la variable aléatoire S_i prend les valeurs $+1$ et -1 . Les variables S_i et X_i sont liées par la relation :

$$S_i = 2X_i - 1 \quad (2.3)$$

Les relations (2.2) et (2.3) permettent de relier les sommes M et X des variables aléatoires M_i et X_i :

$$M = \sum_{i=0}^{\frac{1}{2}N} S_i = \sum_{i=0}^{\frac{1}{2}N} 2X_i - 1 = 2X - \frac{1}{2}N \quad (2.4)$$

D'après la loi binomiale et l'équation (2.4), la probabilité $P(M = k)$ que l'aimantation M prenne une valeur k s'exprime :

$$P(M = k) = P\left(X = \frac{1}{2}k + \frac{1}{4}N\right) = \binom{\frac{1}{2}N}{\frac{1}{2}k + \frac{1}{4}N} \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{1}{2}N} \quad (2.5)$$

La fonction de masse de cette loi de probabilités discrète est représentée sous forme d'histogramme en figure 2.3a, pour $\frac{1}{2}N = 20$. En vertu du théorème de la limite centrale, $P(M = k)$ doit converger vers une loi normale pour un réseau de grande taille :

$$f(x) = \sqrt{\frac{2}{N\pi}} \exp -\frac{1}{2} \left(\frac{x}{\sqrt{N}} \right)^2 \quad (2.6)$$

La courbe sur le graphe 2.3a montre la densité de probabilité de cette fonction, pour $\frac{1}{2}N=400$ (ce qui correspond aux réseaux expérimentaux de cette thèse). Il apparaît qu'en moyenne, l'aimantation d'un réseau doit être nulle. Mais pour une réalisation donnée de taille finie, une rémanence peut subsister pour des raisons purement stochastiques.

Intéressons nous maintenant à la rémanence absolue R qui apparaît en moyenne dans une assemblée de $\frac{1}{2}N$ spins. Cette variable aléatoire est définie, pour la loi discrète (2.5), par :

$$R = \sum_{m=-\frac{1}{2}N}^{m=\frac{1}{2}N} |m|P(M = m) \quad (2.7)$$

où $|m|$ fait référence à la valeur absolue de m . Dans le cas continu de la loi normale (2.6), l'expression de R (2.7) prend la forme d'une intégrale. La rémanence absolue R est représentée en fonction de la taille du réseau en figure 2.3b dans les cas continu et discret. Pour des

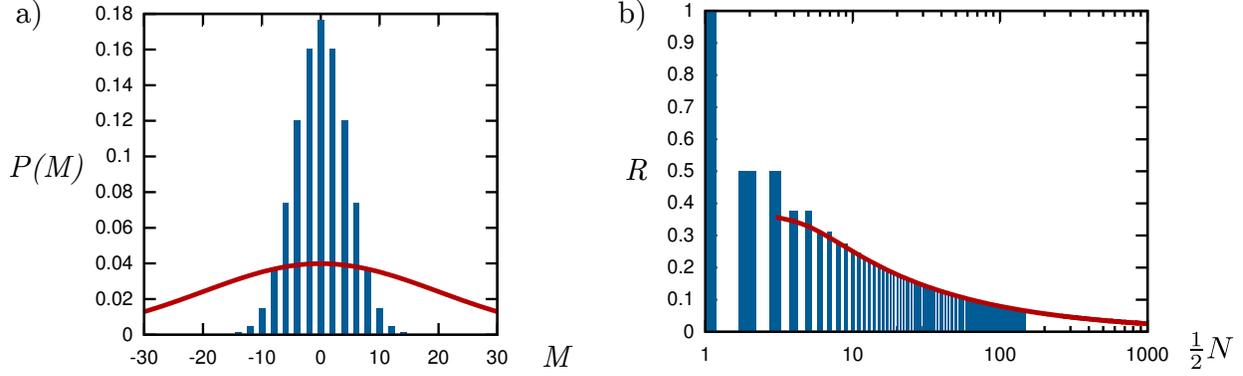


FIGURE 2.3 – a) En bleu, fonction de masse de la loi binomiale (2.5) calculée pour $\frac{1}{2}N = 20$. En rouge, densité de probabilité de la loi normale (2.6) pour $\frac{1}{2}N = 400$. b) Rémanence absolue moyenne d’un sous-réseau en fonction de son nombre de spins $\frac{1}{2}N$.

valeurs de $\frac{1}{2}N$ inférieures à 10, les lois (2.5) et (2.6) ne concordent plus. D’après ce graphe, dans un réseau de taille $N = 800$ (taille expérimentale) la rémanence attendue est de 4%. Soulignons que le raisonnement précédent est vrai pour une configuration de spin aléatoire. Cette hypothèse est fautive dans le cas d’un réseau réel, dans lequel les spins sont corrélés. Par exemple, un réseau carré dans l’état AF possède une rémanence nulle. Mais le cas d’un réseau composé de vertex T2 est aussi intéressant. Ses corrélations locales sont de type ferromagnétique et chaque sous-réseau est constitué de lignes de spins. Un sous-réseau de 400 spins a dans ce cas les mêmes degrés de liberté qu’un sous-réseau de 20 spins isolés. La rémanence attendue pour un tel état est singulièrement plus élevée (17.6%). Nous pouvons donc nous attendre à observer une rémanence plus ou moins importante dans les réseaux expérimentaux, en fonction des corrélations de spin. Celle-ci n’est pas pour autant le signe d’un biais expérimental. Il s’agit d’un effet de taille finie qui doit disparaître avec des réseaux plus larges.

2.1.2 Corrélations de spin dans le réseau direct

Calculer les corrélations de spin est un moyen commode pour caractériser une configuration magnétique. Cette grandeur mesure comment l’état d’un spin donné détermine celui des autres spins du réseau. Le corrélateur entre les spins \mathbf{S}_i et \mathbf{S}_j s’exprime :

$$C_{ij} = \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \rangle$$

Voyons comment calculer un corrélateur dans le cas simple d’une chaîne de spins (cf. fig. 2.4a). Pour une chaîne ferromagnétique, tous les spins sont parallèles. Par conséquent, toutes les corrélations entre spins sont égales à 1. Cela signifie que la connaissance d’un spin et des corrélations permet de reconstruire l’ensemble du réseau. Pour une chaîne antiferromagnétique, les variables Ising changent de signe de proche en proche et sont reliées par la relation : $\mathbf{S}_{i+1} = -\mathbf{S}_i$. Les corrélations entre spins séparés par un nombre pair (respectivement impair) de spins est donc égal à -1 (respectivement 1). Cette fois encore, la connaissance de l’état d’un spin et des corrélations permet de reconstruire la chaîne complète. Le cas de la troisième

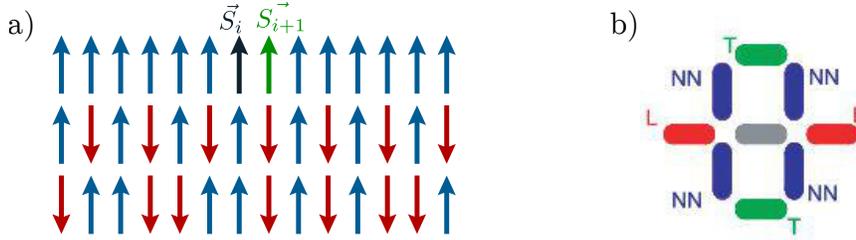


FIGURE 2.4 – a) Exemple d’une chaîne de spins Ising ordonnée ferromagnétiquement (en haut), antiferromagnétiquement (au milieu), et désordonnée (en bas). b) Étiquetage des corrélateurs des trois premiers voisins dans le réseau carré (image extraite de la référence [104]).

chaîne de la figure 2.4 est plus complexe car elle est désordonnée. Le calcul des corrélations entre premiers voisins donne $C_{i,i+1} = -0.38$. De même, entre seconds voisins $C_{i,i+2} = -0.15$. Ces valeurs ne sont pas entières donc la connaissance de l’état d’un spin ne permet plus de reconstruire toute la chaîne. Comme $C_{i,i+1} = -0.38$, nous pouvons seulement affirmer que deux spins voisins ont une plus grande probabilité d’être antiparallèles que parallèles. Autrement dit, la troisième chaîne de la figure 2.4 est plus proche de l’état antiferromagnétique que de l’état ferromagnétique. Plus la valeur absolue des corrélateurs est faible, plus le réseau est désordonné. Un système paramagnétique est un cas limite pour lequel les corrélations sont nulles puisque les spins sont isolés les uns des autres. La connaissance de l’état d’un spin ne donne alors aucune indication sur l’état des spins avoisinants. Les corrélations de spin sont un outil puissant qui est très employé pour la caractérisation des réseaux de nanoaimants. Des conventions d’étiquetages sont définies pour la géométrie carrée [104] (cf. fig. 2.4b), le réseau Shatki [27] et le réseau kagomé [87]. Remarquons que le calcul des populations de vertex est une mesure indirecte des corrélations entre premiers voisins. Dans la partie suivante, nous allons voir comment calculer et représenter ces corrélations dans l’espace réciproque.

2.1.3 Facteur de structure magnétique

Les corrélateurs décrits précédemment doivent être calculés pour une paire de spins donnée dans le réseau direct. Mais il est possible de représenter ces corrélations de façon continue dans l’espace réciproque. Commençons dans notre cas par construire le réseau réciproque. Le réseau direct est un réseau carré bidimensionnel de paramètre de maille a , avec des vecteurs de base \mathbf{i}, \mathbf{j} . Les vecteurs de base $\mathbf{i}^*, \mathbf{j}^*$ du réseau réciproque sont définis par :

$$\mathbf{i}^* \cdot \mathbf{j} = 2\pi\delta(i, j) \quad (2.8)$$

Le réseau réciproque associé à notre réseau carré est donc un réseau carré de paramètre de maille $\frac{2\pi}{a}$. La figure 2.5 représente les réseaux direct et réciproque, la première zone de Brillouin ainsi que quelques directions cristallographiques particulières. Nous allons dans cette partie expliquer deux manières de sonder les corrélations de spin, en calculant deux types de facteurs de structure.

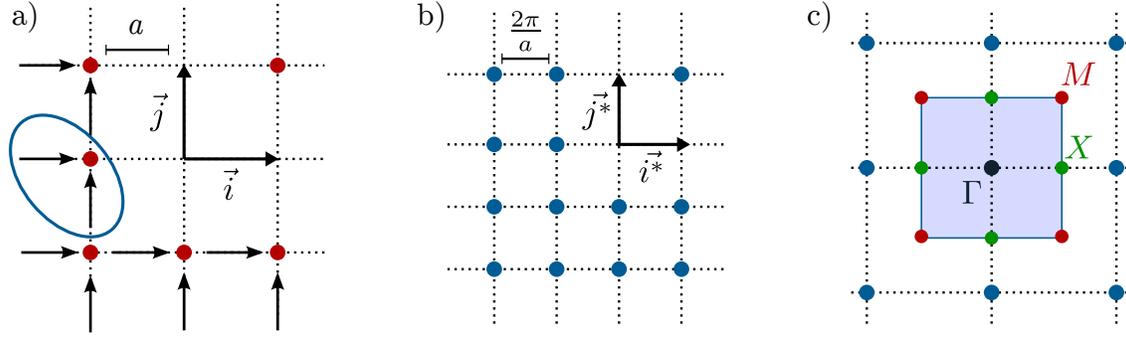


FIGURE 2.5 – Réseau carré, de paramètre de maille a , a) dans l'espace direct et b) dans l'espace réciproque. La maille unité est entourée en bleu dans le réseau direct. c) La première zone de Brillouin se construit en prenant la maille de Wigner-Seitz du réseau réciproque. Elle s'étend donc sur l'intervalle $q_x, q_y \in [-\frac{\pi}{a} : \frac{\pi}{a}]$. Γ , M et X représentent les directions cristallographiques particulières.

Corrélations longitudinales Le facteur de structure d'une configuration magnétique peut s'exprimer :

$$\mathcal{S}(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_{i,j=1}^N \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \cdot \exp -i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{ij} \quad (2.9)$$

où i et j balayent les spins du réseau. $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i$ représente la distance entre les spins i et j . Le vecteur \mathbf{q} est un vecteur quelconque du réseau réciproque. Dans le réseau carré, le produit scalaire $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ est égal à ± 1 si les spins i et j appartiennent à un même sous-réseau. Sinon, $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j = 0$. Il apparaît donc clairement que $\mathcal{S}(\mathbf{q})$ mesure les corrélations dans chaque sous-réseau indépendamment l'un de l'autre. $\mathcal{S}(\mathbf{q})$ ne contient aucune information sur les corrélations entre spins perpendiculaires.

Nous allons montrer qu'avec la définition (2.9), il n'est pas nécessaire de calculer \mathcal{S} en dehors de la première zone de Brillouin. Chaque terme $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ de la somme (2.9) est non nul si les spins i et j appartiennent au même sous-réseau. Dans ce cas, leur distance relative s'exprime $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i = m\mathbf{i} + n\mathbf{j}$ où m et n sont des entiers, et \mathbf{i} et \mathbf{j} les vecteurs de base du réseau direct. Considérons un vecteur \mathbf{q} de la première zone de Brillouin, et un vecteur quelconque \mathbf{q}' du réseau réciproque. Celui-ci peut s'exprimer $\mathbf{q}' = \mathbf{q} + 2n'\mathbf{i}^* + 2m'\mathbf{j}^*$, avec m' et n' entiers. $\mathcal{S}(\mathbf{q}')$ s'exprime alors :

$$\begin{aligned} \mathcal{S}(\mathbf{q}') &= \frac{1}{N} \sum_{i,j=1}^N \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \cdot \exp -i(\mathbf{q} + 2n'\mathbf{i}^* + 2m'\mathbf{j}^*) \cdot \mathbf{r}_{ij} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{i,j=1}^N \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \cdot \exp -i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{ij} \exp i(2nn'\mathbf{i} \cdot \mathbf{i}^* + 2mm'\mathbf{j} \cdot \mathbf{j}^*) \\ &= \mathcal{S}(\mathbf{q}) \end{aligned}$$

Le passage à la dernière ligne s'opère en employant la définition des vecteurs du réseau réciproque (2.8). Avec cette définition de $\mathcal{S}(\mathbf{q})$, les corrélations internes à la maille ne sont pas prises en compte. La conséquence directe est que le facteur de structure se représente entièrement dans la première zone de Brillouin.

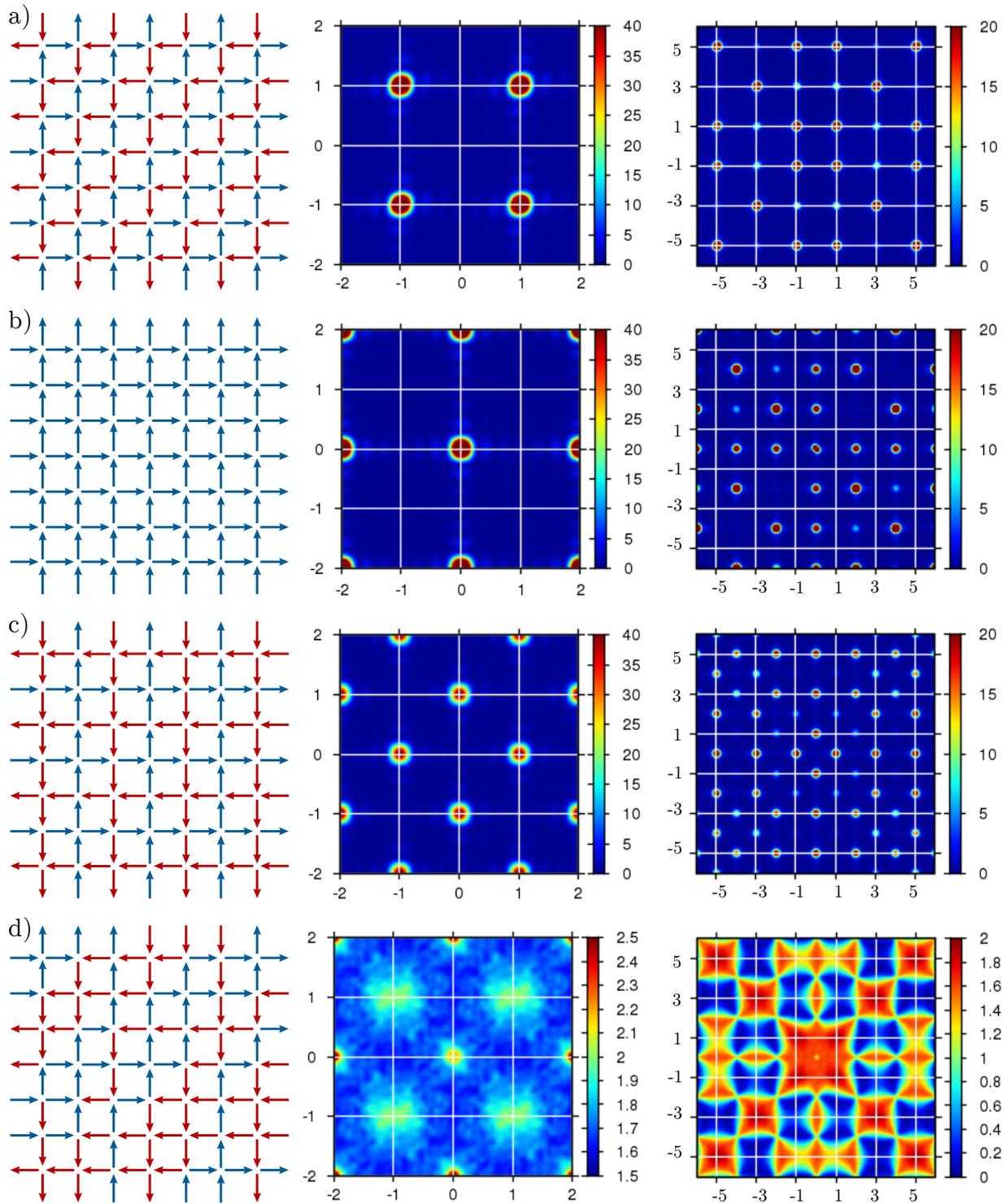


FIGURE 2.6 – Configuration de spin dans l'espace réel (à gauche), facteurs de structure $\mathcal{S}(\mathbf{q})$ (au milieu) et $I(\mathbf{q})$ (à droite) pour quatre états : a) Antiferromagnétique, b) Ferromagnétique, c) Manhattan. Pour des raisons de visibilité, les pics ont été élargi en prenant des réseaux de petite taille (100 spins). d) phase de Coulomb dans le réseau carré. Dans ce cas, \mathcal{S} et I sont calculés à partir de 1000 configurations aléatoires vérifiant la règle de la glace. Nous verrons au §2.4.3 comment générer de tels états.

Intéressons-nous au calcul de $\mathcal{S}(\mathbf{q})$ pour quelques cas particuliers. La figure 2.6 représente des cartes de $\mathcal{S}(\mathbf{q})$ calculées pour différents états magnétiques. L'état saturé fait apparaître des pics de Bragg en Γ car il est aimanté. Les pics en M et X correspondent respectivement aux états AF et Manhattan. Les pics de Bragg que nous obtenons ne sont pas ponctuels car nos réseaux ont une taille finie. Pour un réseau infini, chaque pic tendrait vers une distribution de Dirac. En $\mathbf{q} = \mathbf{0}$, le facteur de structure s'exprime :

$$\mathcal{S}(\mathbf{0}) = \frac{1}{N} \sum_{i,j=1}^N \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$$

$\mathcal{S}(\mathbf{0})$ mesure donc l'aimantation globale du réseau. C'est pourquoi un réseau saturé engendre des pics de Bragg aux points Γ .

La figure 2.6 représente le facteur de structure \mathcal{S} calculé pour une phase de Coulomb désordonnée. Celui-ci est diffus et ne semble pas présenter de corrélations particulières. Pourtant, nous avons vu que des points de pincements sont attendus pour cette phase puisque il s'agit d'un liquide de spin algébrique. Le facteur de structure tel qu'exprimé en (2.9) est donc incomplet. Les produits scalaires $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ nuls masquent une partie des corrélations. Ce problème est spécifique au réseau carré, pour lequel les deux spins de la maille unité sont orthogonaux. Dans le réseau kagomé, ce problème ne serait pas apparu car les spins de la maille sont à des angles de $\frac{2\pi}{3}$. La définition de $\mathcal{S}(\mathbf{q})$ donnée en (2.9) suffit alors à sonder toutes les corrélations. Nous allons donc employer un autre type de facteur de structure, inspiré des expériences de diffusion de neutrons.

Corrélations selon le vecteur de diffusion En matière condensée, la structure magnétique d'un composé peut être sondée par diffusion de neutrons. Nous allons décrire succinctement les principes physiques sous-jacents. La neutralité électrique du neutron implique l'absence d'interactions coulombiennes entre le faisceau et le composé étudié. La diffusion d'un faisceau de neutrons à travers un échantillon résulte alors de deux phénomènes. Le premier est la diffusion nucléaire, due à l'interaction entre les neutrons et les noyaux atomiques de l'échantillon. Il permet d'obtenir des informations structurales sur le composé étudié. Le second phénomène est la diffusion magnétique. Elle traduit l'interaction entre le moment magnétique du neutron et le champ magnétique interne de la matière. Elle apporte notamment des renseignements sur la texture magnétique du composé. Si celle-ci est ordonnée, des pics de Bragg se forment dans des directions \mathbf{q} dépendant du vecteur de propagation de l'ordre. La figure 2.7 représente de façon très schématique et simplifiée une expérience imaginaire de diffusion de neutrons sur le réseau carré.

Lorsque un neutron interagit avec la matière, son vecteur d'onde initial \mathbf{q}_i devient \mathbf{q}_f après diffusion. Si la diffusion est élastique, seule la direction du vecteur change. Leur différence correspond au vecteur de diffusion $\mathbf{q} = \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_f$ (cf. fig. 2.7). Il est possible de démontrer que l'amplitude de diffusion magnétique dépend de la projection de l'aimantation perpendiculaire au vecteur de diffusion \mathbf{q} . Nous définissons donc la composante \mathbf{S}_i^\perp perpendiculaire au vecteur de diffusion :

$$\mathbf{S}_i^\perp = \mathbf{S}_i - (\hat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{S}_i) \hat{\mathbf{q}} \quad (2.10)$$

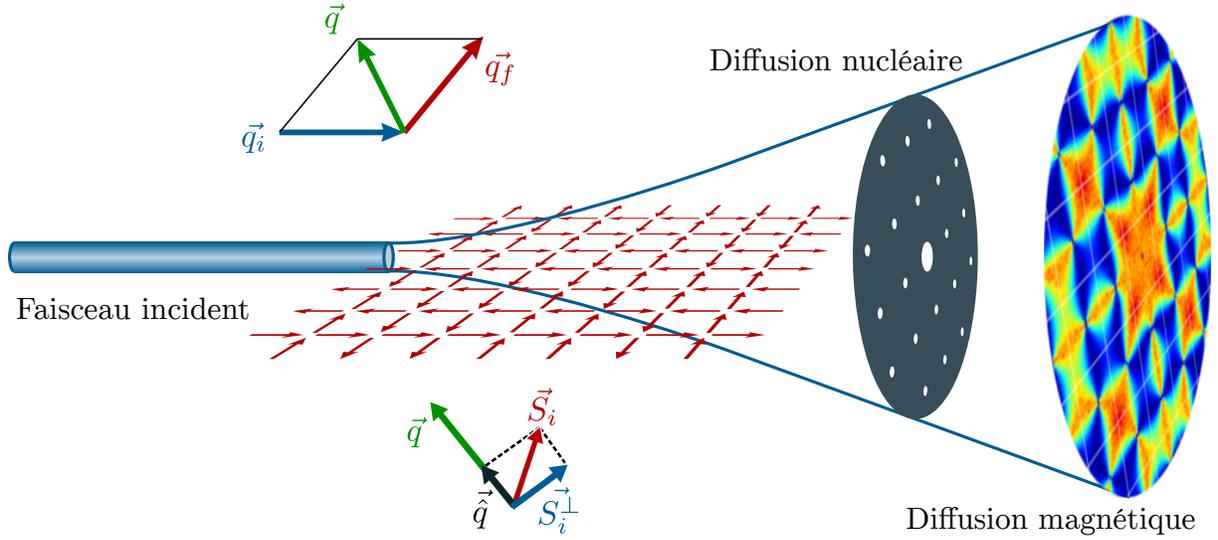


FIGURE 2.7 – Schéma simplifié de la diffusion d'un faisceau de neutrons sur un réseau carré. La construction des vecteurs \mathbf{q} et \mathbf{S}_i^\perp apparaît respectivement en haut et en bas de la figure.

où $\hat{\mathbf{q}}$ est le vecteur unitaire dans la direction du vecteur de diffusion \mathbf{q} :

$$\hat{\mathbf{q}} = \frac{\mathbf{q}}{\|\mathbf{q}\|}$$

La figure 2.7 montre la construction géométrique des vecteurs de l'équation (2.10). Nous notons $I(\mathbf{q})$ l'intensité diffractée dans la direction \mathbf{q} de l'espace réciproque. Elle s'exprime :

$$I(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_{i,j=1}^{\frac{1}{2}N} \sum_{\alpha,\beta=1}^2 \mathbf{S}_{i\alpha}^\perp \cdot \mathbf{S}_{j\beta}^\perp \exp -i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{i\alpha,j\beta} \quad (2.11)$$

Dans cette expression, i et j balayent les $\frac{1}{2}N$ nœuds du réseau. Les nombres α et β balayent les deux sites de la maille unité. Comme les corrélations internes à la maille sont maintenant prises en compte, le facteur de structure (2.11) n'est plus périodique dans l'espace réciproque. La figure 2.6 montre que des règles d'extinction sont apparues sur les pics de Bragg des phases ordonnées. Le cas de la phase de Coulomb est remarquable. Il présente maintenant un diagramme structuré, avec des points de pincements en Γ . Dans la suite de cette thèse, nous utiliserons cette dernière représentation.

Nous avons expliqué dans cette section quels outils seront employés pour analyser les configurations du réseau carré. Ils sont bien entendu complémentaires. Le facteur de structure est certainement le plus puissant, puisqu'il permet de mesurer simultanément le niveau d'ordre du réseau, son aimantation et les corrélations de spin. Mais cela ne doit pas occulter l'intérêt majeur des réseaux artificiels, qui réside dans la possibilité d'accéder aux configurations locales dans l'espace direct. Dans la suite de ce chapitre, nous nous intéressons aux différentes modélisations des réseaux de nanoaimants.

2.2 Modélisation micromagnétique

Après avoir rappelé quelques notions essentielles, nous expliquerons comment le micromagnétisme permet de saisir la complexité d'un objet aimanté. Nous appliquerons cette modélisation aux nanoaimants des glaces artificielles, à l'aide du logiciel libre OOMMF¹. Le but de cette section est d'expliquer notre méthodologie pour ces simulations. Nous verrons pourquoi nos aimants doivent avoir une forme allongée et des dimensions sub-microniques pour réaliser des modèles de pseudospins Ising.

2.2.1 Rappels de magnétisme

Il est difficile de dater la découverte des effets magnétiques qui existent dans certains minéraux naturels comme la magnétite. Mais il est bien connu que la boussole constitue la première exploitation par l'homme de ce phénomène. Il faut attendre le XIXe siècle pour voir l'apparition des premières théories rigoureuses du magnétisme. L'expérience d'Ørsted, qui fit le lien entre électricité et magnétisme, joua en cela un rôle fondamental. La théorie classique de l'électromagnétisme prend forme à la seconde moitié du XIXe siècle avec les équations de Maxwell. Cependant, l'origine des propriétés magnétiques de la matière n'est réellement comprise qu'à l'avènement de la mécanique quantique.

Définitions Le champ magnétique est un pseudovecteur, noté \mathbf{B} , dont la norme s'exprime en teslas. Il trouve sa source dans les courants électriques ou les dipôles élémentaires présents dans la matière. D'après les équations de Maxwell, ce champ vectoriel est à divergence nulle. Cette propriété interdit l'existence de charges (ou monopoles) magnétiques. Ce champ \mathbf{B} sert à modéliser les effets magnétiques qui apparaissent dans le vide ou dans la matière. L'influence de la matière sur le champ magnétique amène à définir deux autres quantités vectorielles : l'aimantation \mathbf{M} et l'induction magnétique \mathbf{H} . L'aimantation représente la densité volumique de dipôles magnétiques. Elle s'exprime en ampères par mètre.

$$\mathbf{M} = \frac{d\boldsymbol{\mu}}{dV}$$

où $\boldsymbol{\mu}$ est le moment magnétique contenu dans un volume élémentaire. Cette grandeur dépend du matériau considéré, et s'annule dans le vide. Les vecteurs \mathbf{B} , \mathbf{H} et \mathbf{M} sont liés par la relation :

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (2.12)$$

où μ_0 représente la perméabilité du vide. Dans le système international d'unités, μ_0 est fixé à $4\pi \cdot 10^{-7} \text{ kg.m.s}^{-2}.\text{A}^{-2}$. Dans le vide, \mathbf{B} correspond à \mathbf{H} , au facteur μ_0 près. La terminologie employée, associée à l'évolution des systèmes d'unités contribue à entretenir une certaine confusion entre champ et induction magnétique. Nous allons voir qu'il existe dans la nature des matériaux avec des propriétés magnétiques très diverses.

1. OOMMF User's Guide, Version 1.0, M.J. Donahue and D.G. Porter Interagency Report NISTIR 6376, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (Sept 1999)

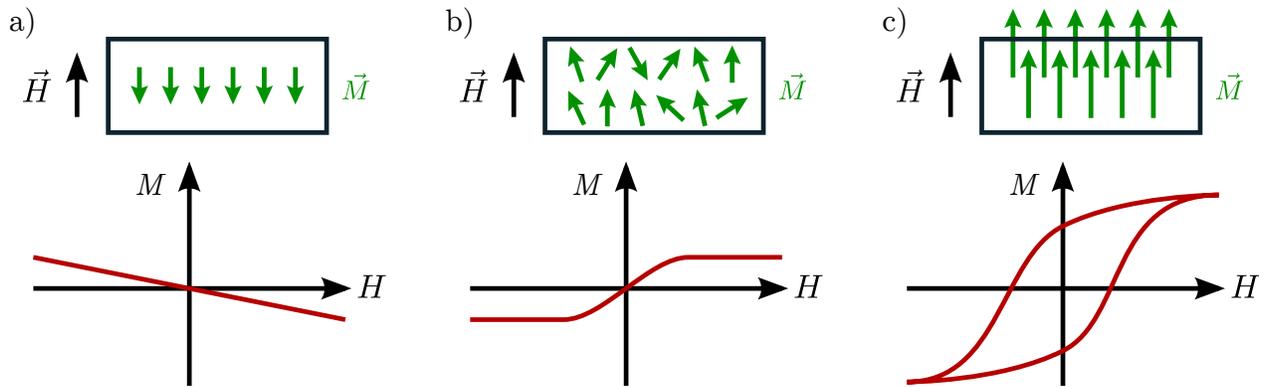


FIGURE 2.8 – Schéma de l'effet d'un champ magnétique sur l'aimantation locale \vec{M} et de la courbe caractéristique $M = f(H)$ associée, pour un matériau a) diamagnétique, b) paramagnétique et c) ferromagnétique.

Propriétés magnétiques de la matière L'équation (2.12) traduit l'influence de \vec{M} sur \vec{B} . Mais l'aimantation dépend elle-même de l'induction magnétique à laquelle est soumis le milieu magnétique. Cette dépendance peut être traduite par une grandeur sans dimension, notée χ , définie par :

$$\chi = \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_{H=0}$$

χ est la susceptibilité magnétique, qui est intrinsèque au matériau considéré. Selon la valeur de χ , nous pouvons distinguer trois comportements généraux de la matière :

- Diamagnétisme ($\chi < 0$, cf. fig. 2.8a) : les matériaux diamagnétiques génèrent un champ opposé au champ appliqué. Une force répulsive peut donc apparaître. Ces matériaux ont généralement des susceptibilités très faibles en valeur absolue (guère plus de 10^{-6}) indépendantes de la température. Les forces générées sont donc très faibles. Certains matériaux, comme le graphite pyrolytique, peuvent toutefois léviter sur des aimants permanents. Le diamagnétisme trouve son origine dans le mouvement orbital des électrons autour du noyau atomique. Toute la matière est concernée, mais l'effet diamagnétique peut être dominé par le paramagnétisme ou le ferromagnétisme. La matière vivante est diamagnétique, ce qui a permis la réalisation de la célèbre expérience de lévitation d'une grenouille. Les supraconducteurs sont parfois désignés comme des diamagnétiques parfaits ($\chi = -1$) mais ce phénomène a une origine physique différente.
- Paramagnétisme ($\chi > 0$, cf. fig. 2.8b) : les matériaux paramagnétiques génèrent un champ dans le sens du champ appliqué. Ils subissent donc des forces attractives vers les zones de fort champ magnétique. Les valeurs de χ sont généralement faibles ($< 10^{-3}$). Mais pour un matériau donné, χ présente une forte dépendance en température. Dans le modèle de Langevin, le paramagnétisme s'explique par la présence de moments magnétiques indépendants dans le matériau, dirigés aléatoirement en l'absence de champ. L'application d'un champ magnétique polarise plus ou moins le système, selon la température et l'intensité du champ. Un paramagnétique n'est pas strictement linéaire car il existe un régime de saturation à fort champ. À saturation, tous les moments sont orientés dans le sens du champ.
- Ferromagnétisme ($\chi \gg 1$, cf. fig. 2.8c) : à la différence des matériaux paramagnétiques,

les matériaux ferromagnétiques sont localement aimantés même en l'absence de champ. Leurs susceptibilités peuvent être très élevées (jusqu'à 10^4), ce qui leur confère des propriétés intéressantes du point de vue applicatif. Ils sont localement ordonnés grâce aux interactions qui existent entre les moments magnétiques présents dans la matière. Cet ordre magnétique disparaît au delà de la température de Curie du matériau. Il devient alors paramagnétique. Cette dépendance en température est représentée en figure 2.9a.

Deux familles de ferromagnétiques se distinguent. Les matériaux doux sont globalement désaimantés en l'absence de champ bien que l'ordre ferromagnétique local soit conservé (cf. fig. 2.9b). Les matériaux durs conservent eux une aimantation globale significative en l'absence de champ. Les premiers sont employés pour leur linéarité, par exemple pour fabriquer des transformateurs ou des électroaimants. Les seconds trouvent des applications pour leur coercitivité, notamment dans l'enregistrement magnétique ou la réalisation d'aimants permanents. La figure 2.9c compare les cycles d'hystérésis obtenus pour ces deux types de matériaux ferromagnétiques.

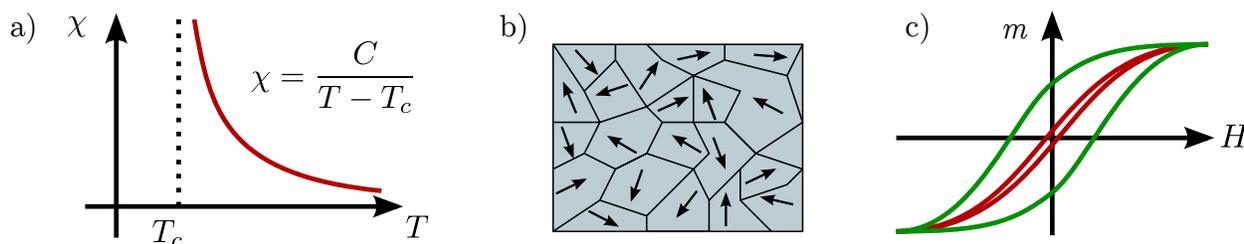


FIGURE 2.9 – a) Loi de Curie-Weiss exprimant la susceptibilité χ d'un ferromagnétique au delà de sa température de Curie T_c . À $T = T_c$ se produit une transition de phase vers un état magnétique ordonné (cf. chap. 1, §1.1.1). Le matériau acquiert une aimantation spontanée, ce qui se traduit par une divergence de χ . b) En l'absence de champ appliqué, un matériau ferromagnétique doux se trouve dans un état localement ordonné mais à aimantation globale nulle. Les domaines de Weiss correspondent aux secteurs aimantés. c) Comparaison des cycles d'hystérésis de milieux ferromagnétiques dur (en vert) et doux (en rouge). À champ nul ($H = 0$), le milieu doux est faiblement aimanté tandis que le milieu dur possède une plus grande coercitivité.

Nous nous sommes restreints ici aux trois principaux types de comportements magnétiques. D'autres cas ont été découverts plus récemment, comme l'antiferromagnétisme, le ferrimagnétisme ou l'hélimagnétisme. Les systèmes frustrés, qui sont l'objet de cette thèse, présentent par ailleurs des propriétés magnétiques singulières. Par exemple, les glaces de spin sont désordonnées en l'absence de champ, comme le serait un paramagnétique. Mais les moments magnétiques internes (spins) sont en interaction et sont fortement corrélés, à la manière d'un ferromagnétique. Leurs susceptibilités peuvent alors être très élevées. Par exemple, le composé $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ s'aimante suffisamment pour pouvoir « coller » à un aimant permanent, ce qui est inhabituel pour un matériau paramagnétique. Ces composés frustrés sont un exemple de paramagnétisme coopératif.

Nous avons jusque ici supposé que le paramagnétisme ou le ferromagnétisme apparaissent en raison de moments magnétiques présents dans la matière. Il s'agit d'une vision localisée

du magnétisme, qui est correcte dans le cas de composés à base de terres rares par exemple. Le ferromagnétisme des métaux de transition (comme le fer, le cobalt et le nickel) trouve lui son origine dans les propriétés électroniques du matériau. Le magnétisme est alors de type itinérant. Dans de nombreux cas, les deux phénomènes contribuent simultanément aux propriétés magnétiques d'un composé.

La figure 2.9b montre qu'en l'absence de champ, un matériau ferromagnétique doux se fractionne en une multitude de domaines aimantés dans des directions différentes. Ces domaines ont été découverts par Pierre Weiss au début du XXe siècle. Ses travaux ont mis au jour une nouvelle richesse au sein des matériaux magnétiques, qu'il faut désormais comprendre à l'échelle locale. L'étude de ces hétérogénéités de l'aimantation touche au domaine du micromagnétisme.

2.2.2 Éléments de micromagnétisme

Le micromagnétisme se base sur le principe élémentaire selon lequel l'aimantation est une fonction continue de l'espace et du temps, définie en tout point du matériau. La norme de l'aimantation est généralement choisie comme constante, fixée à l'aimantation à saturation M_s du matériau considéré. Ces affirmations sont correctes à des échelles supérieures aux distances inter-atomiques du matériau. Nous nous restreignons à partir de maintenant au cas d'un ferromagnétique. Dans un milieu magnétique au repos, la configuration adoptée par l'aimantation résulte de la minimisation d'un certain nombre de termes d'énergie.

Énergie d'échange L'interaction d'échange est à l'origine de l'alignement des moments magnétiques voisins dans un milieu ferromagnétique. Elle a une origine purement quantique (principe de Pauli) et agit à l'échelle locale, avec une portée d'au plus quelques nanomètres. En trois dimensions, l'énergie d'échange E_{ex} peut s'écrire, en première approximation :

$$E_{ex} = A(\nabla \cdot \mathbf{m})^2$$

A est une constante dépendant de la structure cristallographique du matériau et des moments magnétiques qu'il contient. L'énergie d'échange est minimisée lorsque l'aimantation est uniforme. Le vecteur \mathbf{m} se réfère à l'aimantation normalisée $\frac{\mathbf{M}}{M_s}$.

Énergie magnétocristalline Dans un milieu uniformément aimanté, toutes les directions d'aimantation devraient être a priori équivalentes. Mais dans beaucoup de cas, la structure cristalline lève cette dégénérescence et privilégie une ou plusieurs directions particulières. Cette anisotropie est due à l'influence combinée du champ cristallin local sur les électrons et du couplage spin-orbite. L'expression de ce terme d'anisotropie dépend de la structure cristalline de l'objet considéré. Dans le cas d'une anisotropie uniaxiale, il peut s'exprimer :

$$E_{mc} = K \sin^2 \theta$$

où θ est l'angle entre l'aimantation et l'axe d'anisotropie. L'énergie E_{mc} est minimale si l'objet est uniformément aimanté dans la direction d'anisotropie (axe facile). Elle est maximale lorsque \mathbf{m} est perpendiculaire à cette direction (axe difficile). Pour la réalisation de glaces de spin artificielles, les nanoaimants ne doivent pas être influencés par une source d'anisotropie

autre que leur forme. C'est pourquoi nous employons des matériaux doux, comme le permalloy, pour lesquels cette contribution est négligeable.

Énergie Zeeman Lorsque un milieu aimanté est soumis à un champ magnétique externe uniforme \mathbf{H}_a , un couple s'exerce sur l'aimantation. Ce couple tend à orienter \mathbf{M} dans la direction du champ. C'est cette interaction qui est responsable de l'alignement d'une boussole dans la direction du champ terrestre. Cette contribution se traduit par un terme d'énergie dit Zeeman :

$$E_z = \mu_0 \mathbf{H}_a \cdot \mathbf{M}$$

Cette énergie est minimale lorsque l'objet est uniformément aimanté dans la direction du champ. Elle est notamment à l'origine du renversement des aimants sous l'effet d'un champ (lors de la désaimantation d'un réseau par exemple).

Énergie magnétostatique L'énergie magnétostatique traduit l'interaction d'un objet avec le champ produit par lui-même. Elle est aussi appelée énergie dipolaire, ou énergie démagnétisante. Elle dépend de la forme de l'objet et de sa distribution d'aimantation. Il s'agit de la contribution la plus complexe et la plus longue à calculer dans les simulations micro-magnétiques. Elle s'exprime analytiquement pour une ellipsoïde, ou dans les cas limites du plan et du fil aimantés. C'est ce terme d'énergie qui est à l'origine de la non-uniformité des distributions d'aimantation et de la subdivision en domaines (cf. fig. 2.9b). Pour une particule monodomaine de forme allongée, l'énergie magnétostatique favorise une aimantation dans la direction d'élongation. On parle alors d'anisotropie de forme. C'est pour cette raison que nous employons des aimants de forme allongée dans nos expériences.

Évolution temporelle Nous nous sommes pour le moment restreints à une étude statique ou quasistatique d'un milieu ferromagnétique. Mais sur des échelles de temps inférieures à la nanoseconde, la dynamique propre de l'aimantation doit être considérée. Sous l'effet d'un champ, un moment magnétique entre en précession à la manière d'un gyroscope dans un champ gravitationnel. La conservation du moment angulaire est à l'origine de ce comportement. Le champ magnétique \mathbf{H} appliqué à l'aimantation \mathbf{m} se traduit par un couple $\mathbf{\Gamma}$ tel que :

$$\mathbf{\Gamma} = \frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\mu_0 \gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H} \quad (2.13)$$

où $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar}$ est le facteur gyromagnétique. La figure 2.10a représente le mouvement de précession d'un moment magnétique \mathbf{M} sous un champ \mathbf{H} . L'équation (2.13) est conservative, ce qui implique que la précession est perpétuelle. Dans un matériau réel, plusieurs sources de dissipation d'énergie (émission de phonons, couplage avec les électrons) provoquent un amortissement du mouvement de précession. Gilbert propose en 1935 l'ajout d'un terme phénoménologique de dissipation visqueuse à l'équation (2.13). Cela mène à l'équation dite LLG (Landau-Lifshitz-Gilbert), fondamentale en magnétisme :

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\mu_0 \gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H} + \alpha \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (2.14)$$

L'amortissement du mouvement de précession est représenté en figure 2.10b. Il est déterminé par la valeur du paramètre α . L'équation (2.14) permet de décrire de nombreux phénomènes,

comme la propagation de paroi de domaines sous champ, la résonance ferromagnétique ou les ondes de spin. Le logiciel de simulations micromagnétiques employé pour cette thèse est une implémentation de cette équation.

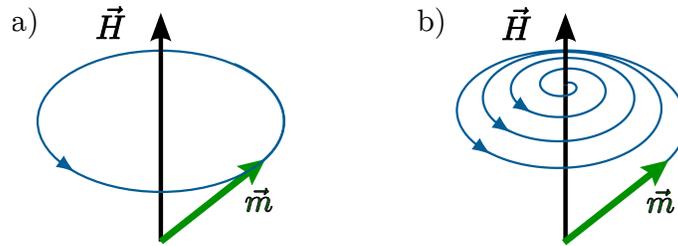


FIGURE 2.10 – a) Pour un système conservatif, la précession de l’aimantation sous un champ \mathbf{H} est perpétuelle. b) Si le système est dissipatif, la précession suit une trajectoire convergente vers la direction d’équilibre.

2.2.3 Simulations micromagnétiques par différences finies

Dans cette partie, nous allons expliquer le principe de nos simulations micromagnétiques sur la base des notions introduites précédemment. Nous avons utilisé le logiciel OOMMF (*Object Oriented Micromagnetic Framework*) qui intègre l’équation LLG par l’approche des différences finies (FD).

Discrétisation de l’espace En différences finies, l’espace est modélisé par un maillage parallélépipédique régulier. Chaque cellule est uniformément aimantée et son moment total a une orientation libre. Cette méthode est bien adaptée pour décrire des géométries régulières. Mais un problème de rugosité numérique apparaît dès lors que les structures ne sont pas selon les axes du maillage. La figure 2.11a montre les conséquences de cet effet sur un disque. Ce problème peut être contourné grâce à une approche par éléments finis (FE), qui discrétise l’espace avec des cellules triangulaires (2D) ou tétraédriques (3D). Cela permet de mieux épouser la forme de l’objet original sans faire apparaître d’axes privilégiés. Pour des raisons de simplicité, nous avons choisi de rester sur l’approche FD. Les effets de rugosité peuvent être minimisés par l’emploi de cellules de dimensions faibles devant celles de l’objet étudié. Cette amélioration se fait au prix du temps de calcul et d’une plus grande demande en mémoire machine. Nous avons généralement employé des cellules de 3 nm x 3 nm dans le plan, parfois plus dans la direction verticale.² Remarquons qu’une méthode a été proposée pour atténuer cet effet de rugosité numérique. Son principe est d’attribuer à chaque cellule une valeur d’aimantation proportionnelle au volume de l’objet original englobé par la cellule (cf. fig. 2.11b) [84]. Nous n’avons pas implémenté cette méthode par manque de temps.

Évolution temporelle À partir d’une configuration magnétique initiale, OOMMF calcule par une méthode itérative l’évolution temporelle du système vers son état d’équilibre. Le

2. À titre d’exemple, 10^6 cellules sont nécessaires dans ces conditions pour simuler un vertex de glace carrée, avec des aimants de 500 nm de long et de 18 nm d’épaisseur. La mémoire requise est d’environ 1 Go

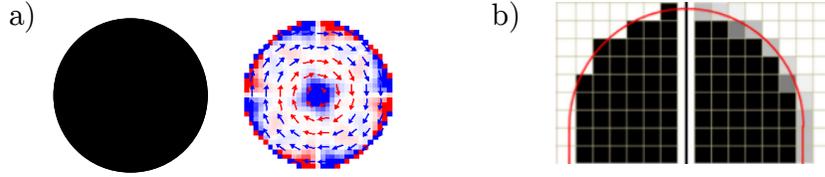


FIGURE 2.11 – a) Le maillage par différences finies de formes courbes, comme un disque, fait apparaître une rugosité numérique (pixellisation). Cet effet est d’autant plus marqué que les dimensions des structures sont proches de la taille des cellules. b) Attribuer à chaque cellule un moment magnétique proportionnel au volume d’aimant contenu à l’intérieur permet d’amoinrir cet effet. Partie gauche : maillage standard. Partie droite : maillage adaptatif; les niveaux de gris représentent le moment porté par chaque cellule (blanc $m = 0$, noir $m = M_s$). Extrait de la référence [84].

logiciel implémente plusieurs algorithmes de résolution d’équations différentielles, comme celui de Runge-Kutta ou celui d’Euler. Nous avons choisi d’utiliser le dernier. Son principe est le suivant : si $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$ représente l’aimantation en \mathbf{r} à un instant t , l’aimantation au même point à l’instant $t + \Delta t$ s’exprime :

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}, t + \Delta t) = \Delta t \frac{d\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)}{dt}$$

où $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ est donné par l’équation LLG (2.14). Par itérations successives, il est possible de reconstruire l’évolution temporelle du champ d’aimantation. Il est nécessaire de définir un critère d’arrêt à partir duquel l’équilibre est considéré comme atteint. S’il est choisi à une valeur trop élevée, la simulation risque de s’arrêter dans un état hors-équilibre ; trop faible, elle ne convergerait pas en une durée raisonnable. Pour toutes nos simulations, le critère d’arrêt a été choisi à $\frac{d\mathbf{m}}{dt} < 1 \text{ A.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$.

Avec ces simulations, nous souhaitons calculer l’énergie des quatre niveaux e_1, e_2, e_3, e_4 correspondant aux quatre types de vertex de la glace carrée. Comme nous nous intéressons uniquement aux configurations à l’équilibre, nous négligeons la dynamique d’évolution de \mathbf{m} en fixant l’amortissement à $\alpha = 1$. Une telle valeur n’est pas réaliste mais permet d’accélérer considérablement les calculs. Par conséquent, l’échelle temporelle des simulations et les états intermédiaires pris par le système n’auront pas réellement de sens physique.

Méthodologie Les paramètres que nous avons choisi sont ceux couramment employés pour le permalloy :

- Aimantation à saturation : $M_s = 8.10^5 \text{ A.m}^{-1}$;
- Échange : $A = 10^{-11} \text{ J.m}^{-1}$;
- Rapport gyromagnétique : $\gamma_0 = \mu_0\gamma = 2.21.10^5 \text{ m.A}^{-1}.\text{s}^{-1}$.

La figure 2.12a représente l’évolution de trois termes d’énergie (énergie totale, d’échange et dipolaire) en fonction du nombre d’itérations lors de la simulation d’un vertex T1 (dimensions d’aimants : 500 nm x 100 nm x 21 nm). L’énergie d’échange E_{ex} augmente car la distribution d’aimantation passe d’un état initial uniforme à une configuration hétérogène. À l’inverse, cette évolution permet une baisse importante de l’énergie démagnétisante E_d . Remarquons que E_d est 50 fois plus élevée que E_{ex} ; l’énergie du système est donc essentiellement dipolaire. À l’équilibre, nous obtenons une énergie totale $E_1 = 4.56.10^{-17} \text{ J}$ pour la configuration

magnétique en figure 2.12b. Nous serons souvent amenés à représenter les niveaux d'énergie sous forme normalisée, en fixant le vertex T1 à l'origine de l'échelle des énergies. Les énergies normalisées E_i s'expriment :

$$E_i = \frac{e_i - e_1}{e_1 - e_4}$$

Comme nous le verrons, cette représentation est commode pour mettre en évidence l'effet des différents paramètres géométriques sur les niveaux d'énergie. Après cette brève introduction au micromagnétisme et aux simulations par différences finies, nous revenons au cas spécifique des réseaux de nanoaimants.

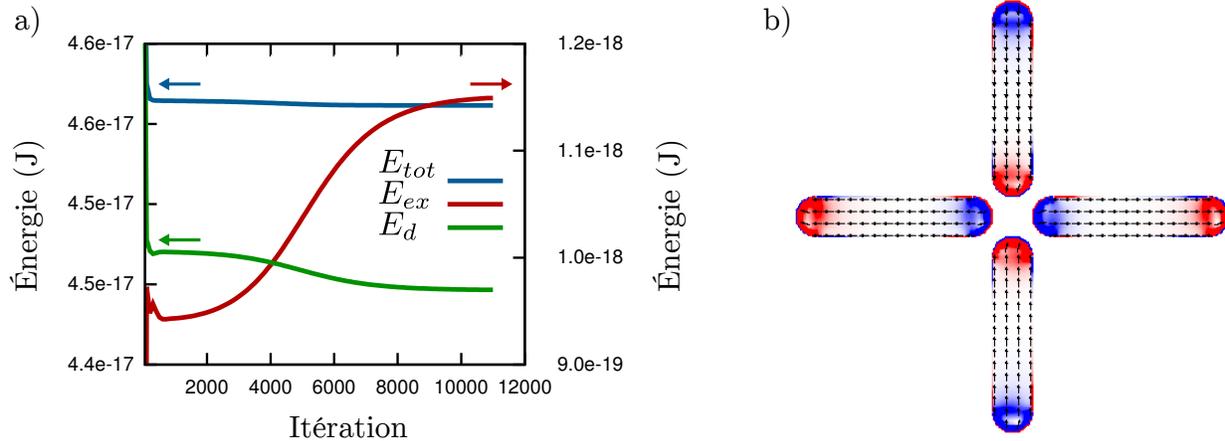


FIGURE 2.12 – a) Graphe montrant l'évolution de l'énergie totale E_{tot} , d'échange E_{ex} et démagnétisante E_d au fil des itérations, pour un vertex T1. b) Configuration magnétique obtenue à l'équilibre. Les couleurs représentent la divergence du champ d'aimantation. Dimensions d'aimants : 500 nm x 100 nm x 21 nm, taille de cellule 3x3x3 nm³.

2.2.4 Application aux glaces artificielles

Dans les glaces artificielles, les aimants doivent se comporter comme des pseudospins Ising. Nous devons donc fabriquer un système bistable à partir d'un aimant. Dans le cas des chaînes de spins de Cowburn *et al.* [18], leur axe de quantification est défini par une anisotropie magnétocristalline. Mais cela ne permet pas un contrôle continu des axes d'anisotropie, car ils sont déterminés par les conditions de croissance du matériau. Une autre approche consiste à donner une forme allongée aux aimants. Cela engendre une anisotropie de forme, qui astreint l'aimantation à rester dans la direction d'élongation. Toute autre source d'anisotropie qui pourrait entrer en compétition avec l'anisotropie de forme doit être évitée. C'est l'intérêt des matériaux doux, comme le permalloy, qui sont isotropes pour des échelles supérieures à quelques dizaines de nanomètres³. L'axe de quantification des spins est alors contrôlable en orientant les aimants sur le masque.

Un aimant possède une longueur L , une largeur w , une épaisseur e et une forme aux extrémités (cf. fig. 2.13a). Pour cette thèse, nous nous restreindrons à des extrémités circu-

3. Localement, le matériau reste structuré en grains de quelques nanomètres.

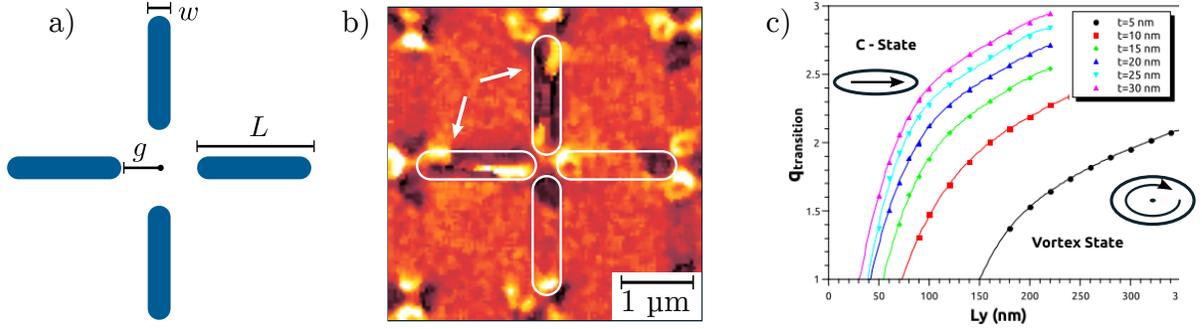


FIGURE 2.13 – a) Schéma d’un vertex sur lequel sont définis les paramètres géométriques. Les aimants ont une épaisseur e . b) Image MFM d’une portion de réseau carré, constitué d’aimants de permalloy avec $L = 2 \mu\text{m}$, $w=400 \text{ nm}$ et $e=30 \text{ nm}$. Certains aimants sont instables sous l’effet de la pointe MFM et se fractionnent en plusieurs domaines. c) Diagramme de stabilité des configurations monodomaine (« C-state ») et vortex dans des ellipses. L’abscisse représente la largeur des ellipses (de 50 à 300 nm) et l’ordonnée leur rapport d’aspect (de 1 à 3). Plusieurs épaisseurs sont comparées (de 5 à 30 nm). Extrait de la référence [101].

laire avec un rayon de courbure $\frac{w}{2}$ ⁴. Si l’aimant a des dimensions trop importantes, il risque de se fractionner en domaines (cf. fig. 2.13b). D’après les simulations micromagnétiques en figure 2.13c, plus les dimensions des aimants sont élevées, plus leur rapport d’aspect doit être important pour qu’ils conservent leur caractère monodomaine. Les aimants épais sont aussi plus enclins à former des états de type vortex. Remarquons que ce caractère monodomaine peut aussi être influencé par les forces extérieures, comme l’interaction magnétostatique avec d’autres aimants ; le domaine doit donc être robuste pour ne pas se fractionner sous l’effet du champ dipolaire environnant. C’est pourquoi il est préférable de se limiter à des aimants submicroniques. Nous fixerons généralement le rapport d’aspect $\frac{L}{w}$ de nos aimants à 5 et leur longueur à 500 nm.

Rappelons que leur caractère monodomaine n’est assuré qu’en l’absence de champ. Nous avons vu au chapitre précédent qu’à ces dimensions, le renversement de l’aimantation s’effectue par un processus de nucléation/propagation d’une paroi (cf. §1.3.3). Qualifier ces nanoaimants de macrospins est donc un abus de langage, qui est couramment fait dans la littérature.

Dans cette section, nous avons expliqué le principe des simulations micromagnétiques et notre méthodologie pour l’étude des réseaux de nanoaimants. Il s’agit de la description la plus fine que nous emploierons dans cette thèse. Mais parfois, pour contourner la complexité des simulations micromagnétiques, nous serons amenés à employer des modèles plus approximatifs.

4. Cette forme est fréquemment rencontrée dans la littérature, même si les extrémités carrées sont parfois employées.

2.3 Modèles simplifiés

Une simulation micromagnétique d'un réseau expérimental de 840 aimants nécessiterait plus de 600 milliards de cellules (avec un maillage de $3 \times 3 \times 3 \text{ nm}^3$). En dehors du problème du temps de calcul d'un tel système, la quantité de mémoire requise n'est pas raisonnable pour une petite station de calcul. C'est pourquoi nous n'emploierons ces simulations que dans le cas d'études de vertex isolés. Pour travailler sur de plus grands ensembles, nous utilisons des modèles simplifiés. Le modèle du dipôle ponctuel décrit bien les interactions entre aimants à des distances supérieures à leur extension spatiale. Le modèle de charges magnétiques permet de mieux décrire les interactions à faible distance. Dans cette section, nous allons comparer ces différentes descriptions.

2.3.1 Point de vue du dipôle ponctuel

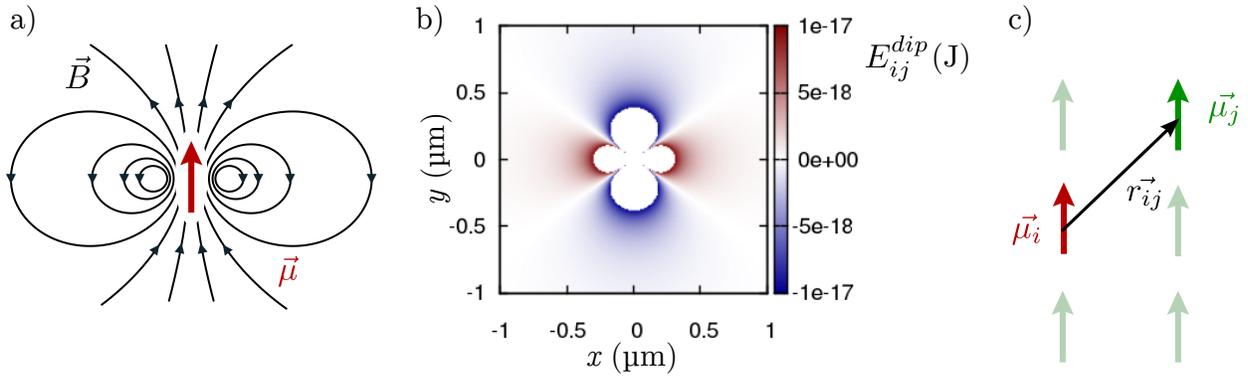


FIGURE 2.14 – a) Représentation du champ magnétique rayonné dans l'espace par un dipôle ponctuel de moment μ . b) Énergie d'interaction entre deux dipôles colinéaires en fonction de leurs positions respectives. Le premier dipôle est fixé sur l'origine tandis que le second balaye l'espace, à direction fixe. Les grandeurs expérimentales $L = 500 \text{ nm}$, $w = 100 \text{ nm}$ et $e = 30 \text{ nm}$ ont été utilisées pour le calcul. c) Schéma des deux dipôles colinéaires en interaction, distants de \mathbf{r} , pour le calcul de b).

Un observateur, placé à une distance r d'un aimant grande devant son extension spatiale ($r \gg L$), voit tout son volume concentré en un point. Dans ce cas, le champ magnétique rayonné par l'aimant peut être décrit par l'approximation du dipôle ponctuel :

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} \left(\frac{3}{r^2} (\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{r}) \mathbf{r} - \boldsymbol{\mu} \right)$$

Les lignes de champ rayonnées par un dipôle sont représentées en figure 2.14a. $\boldsymbol{\mu}$ représente le moment magnétique total porté par l'aimant. Cette grandeur se calcule en intégrant l'aimantation sur tout son volume :

$$\boldsymbol{\mu} = \iiint_V \mathbf{M}(x, y, z) dx dy dz$$

Si l'objet est uniformément aimanté, son moment magnétique total s'exprime simplement comme le produit de son volume par son aimantation à saturation. Dans ce cas, en tenant compte des extrémités circulaires, il vient :

$$\mu = M_s V = M_s ((L - w)we + \pi w^2 e)$$

Nous ferons cette approximation à chaque fois qu'une équivalence entre aimant et dipôle ponctuel sera faite. Une application numérique pour les grandeurs typiques $L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $e = 30$ nm, $M_s = 8.10^5$ A.m⁻¹ donne un moment $\mu = 1.6.10^8 \mu_B$. Il s'agit donc d'un moment magnétique purement classique. L'énergie d'interaction entre deux dipôles ponctuels i et j s'exprime comme l'énergie Zeeman d'un dipôle placé dans le champ rayonné par son voisin :

$$E_{ij}^{dip} = -\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{B}_j(\mathbf{r}_i) = -\boldsymbol{\mu}_j \cdot \mathbf{B}_i(\mathbf{r}_j) = -\frac{\mu_0}{4\pi r_{ij}^3} \left(\frac{3}{r_{ij}^2} (\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \mathbf{r}_{ij}) - \boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j \right) \quad (2.15)$$

La figure 2.14b représente l'énergie d'interaction E_{ij}^{dip} entre deux dipôles colinéaires, en fonction de leur position relative \mathbf{r} . La situation correspondante est représentée en figure 2.14c. Selon les positions respectives de ces dipôles, l'énergie E_{ij}^{dip} peut changer de signe. Dans les zones rouges, le couplage est antiferromagnétique. Dans les zones bleues, il est ferromagnétique. Il existe entre ces régions des lignes nodales sur lesquelles l'interaction est nulle. Ce modèle présente l'avantage d'offrir une forme analytique des interactions, simple à implémenter dans un programme. Il néglige cependant l'extension spatiale des aimants. Nous allons voir comment une modélisation en termes de charges magnétiques permet de tenir compte de leur allongement, tout en conservant une expression simple des interactions.

2.3.2 Modèle de charges magnétiques

Un dipôle peut être modélisé par une paire de charges opposées $\pm q$ séparées d'une distance l (cf. fig. 2.15a) (*dumbbell model*). Le potentiel au voisinage du dipôle est égal à la somme des contributions des deux charges. Nous considérons qu'une charge rayonne un « potentiel magnétique » en $\frac{1}{r}$. Les lignes de champ correspondantes sont représentées en figure 2.15a. Nous ne tenons pas compte de l'énergie interne au dipôle, c'est à dire l'interaction entre ses deux charges. Pour un système constitué de deux dipôles, l'énergie totale se calcule en sommant les interactions des quatre charges. Avec les notations de la figure 2.15b, l'énergie d'interaction s'exprime :

$$E_{ij}^q = E_{i_1 j_1} + E_{i_1 j_2} + E_{i_2 j_1} + E_{i_2 j_2} = q^2 \left(\frac{1}{r_{i_1 j_1}} + \frac{1}{r_{i_2 j_2}} - \frac{1}{r_{i_1 j_2}} - \frac{1}{r_{i_2 j_1}} \right)$$

Si les dipôles i et j sont séparés d'une distance grande devant leur extension spatiale l , cette énergie doit concorder avec E_{ij}^{dip} . Cette propriété va nous permettre d'établir un lien quantitatif entre ces deux descriptions. Nous allons donner une valeur à la charge q , qui est pour le moment arbitraire. Pour faire ce lien quantitatif, considérons deux dipôles orientés dans le même sens selon l'axe \mathbf{u}_y , séparés d'une distance $\mathbf{r} = r\mathbf{u}_x$ (cf. fig. 2.15c). Pour des

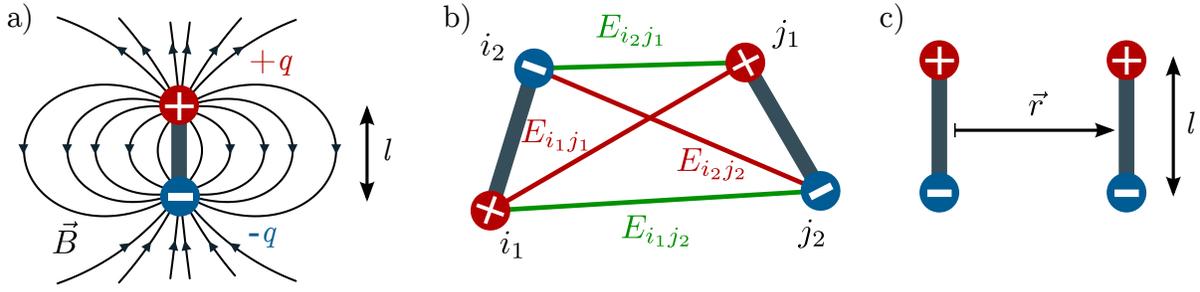


FIGURE 2.15 – a) Représentation du champ rayonné par un dipôle de charges $\pm q$ distantes de l . À grande distance, les lignes de champ s'apparentent à celles obtenues par l'approximation de dipôle ponctuel. b) L'interaction entre deux dipôles est la somme des quatre interactions coulombiennes $E_{i_1j_1}, E_{i_1j_2}, E_{i_2j_1}, E_{i_2j_2}$. Les charges positives et négatives sont respectivement étiquetées 1 et 2. c) Schéma des deux dipôles colinéaires utilisés pour le calcul des charges q .

raisons de symétrie, nous avons $E_{i_1j_1} = E_{i_2j_2}$ et $E_{i_1j_2} = E_{i_2j_1}$. L'énergie totale s'exprime :

$$E_{ij}^q = \frac{2q^2}{r} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{l}{r}\right)^2}} \right)$$

Si $r \gg l$, le développement limité de E_{ij}^q au premier ordre permet d'en obtenir une forme simplifiée :

$$E_{ij}^q = \frac{q^2 l^2}{r^3} \quad \text{si } r \gg l$$

L'énergie d'interaction E_{dip} entre deux dipôles ponctuels dans la configuration de la figure 2.15c peut être calculée à partir de l'équation (2.14). Elle s'exprime, $\forall r$:

$$E_{ij}^{dip} = \frac{\mu^2}{r^3}$$

Pour $r \gg l$, $E_{ij}^q = E_{ij}^{dip}$ donc la valeur de la « charge magnétique » q s'exprime :

$$q = \frac{\mu}{l}$$

La charge magnétique s'apparente donc à un moment magnétique par unité de longueur.

La figure 2.16a représente l'énergie d'interaction entre deux dipôles de charges colinéaires E_{ij}^q , en fonction de leur positions relatives r . La situation est la même que celle représentée en figure 2.14c. La longueur des dipôles (distance entre les charges) a été fixée à 500 nm, ce qui correspond à la longueur des aimants expérimentaux. Ce graphe montre que E_{ij}^q s'écarte de E_{ij}^{dip} (cf. fig. 2.14a) à mesure que les dipôles se rapprochent (faibles distances r_{ij}). Le modèle de charges devrait, dans cette région, offrir une estimation du couplage entre nanoaimants plus fidèle aux simulations micromagnétiques. Pour vérifier cela, comparons les interactions E_{ij}^{dip} et E_{ij}^q avec les couplages E_{ij} issus de simulations micromagnétiques, faites dans les mêmes conditions.

La figure 2.16b représente la différence $E_{ij} - E_{ij}^{dip}$ en fonction des positions relatives des nanoaimants. À grande distance r_{ij} , elle est proche de zéro. Cela signifie que les couplages

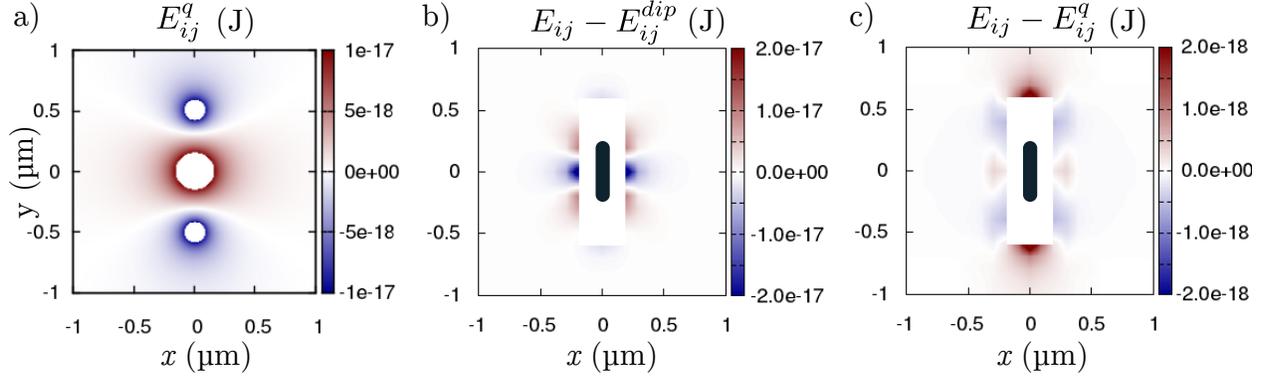


FIGURE 2.16 – a) Énergie d’interaction entre deux dipôles de charges colinéaires (séparées de 500 nm) en fonction de leurs positions respectives. Des différences notables par rapport au cas du dipôle ponctuel sont visibles au voisinage des charges. b) Différence d’énergie $E_{ij} - E_{ij}^{dip}$ en fonction des positions relatives des nanoaimants. Dans le rectangle blanc central, les couplages micromagnétiques ne peuvent pas être calculés car les aimants entrent en contact. Pour donner une échelle, un nanoaimant est représenté à l’origine. c) Même type de graphe, représentant cette fois $E_{ij} - E_{ij}^q$. Le modèle de charges est une meilleure approximation au voisinage de l’aimant.

micromagnétiques sont bien approchés par la description en termes de dipôles ponctuels. Au voisinage de l’aimant ($r_{ij} < L$), des écarts très importants apparaissent. Le même comportement se retrouve dans le modèle de charges (cf. fig. 2.14b). Cependant, les différences $E_{ij} - E_{ij}^q$ observées sont plus faibles d’un ordre de grandeur par rapport au cas précédent. Cela montre qu’une modélisation en termes de charges magnétiques offre une meilleure approximation que le dipôle ponctuel pour décrire un aimant réel.

2.3.3 Distribution de Boltzmann

À partir des quatre niveaux d’énergie des vertex, calculés micromagnétiquement ou grâce aux modèles simplifiés évoqués précédemment, il est possible d’estimer de façon simple le comportement en température d’un réseau. Le modèle de glace carrée peut être décrit comme un système à quatre niveaux E_i avec une dégénérescence g_i . En postulant que les populations de vertex ρ_i suivent une distribution canonique, nous avons :

$$\rho_i = \frac{g_i}{Z} \exp -\beta E_i$$

où $\beta = k_B T$ représente le facteur de Boltzmann, et Z la fonction de partition. Elle s’exprime :

$$Z = \sum_{i=1}^4 g_i \exp -\beta E_i$$

Pour un quadruplet donné de niveaux E_i , il est possible d’observer la variation en température des populations. Rappelons que la dégénérescence g_i vaut respectivement 2, 4, 8 et 2 pour les vertex T1, T2, T3 et T4. Les distributions obtenues pour différents couplages J_1 et J_2 apparaissent en figure 2.17.

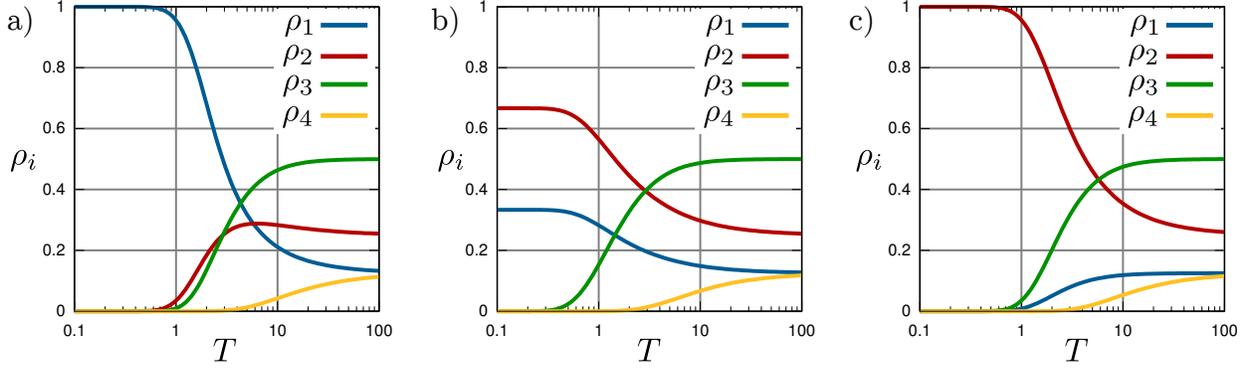


FIGURE 2.17 – Variation des populations de vertex ρ_i en fonction de la température, obtenues par une distribution de Boltzmann dans trois cas : a) $J_1 = 2, J_2 = 1$ b) $J_1 = 1, J_2 = 1$ et c) $J_1 = 1, J_2 = 2$. Les couplages sont rapportés à la constante de Boltzmann

À basse température, le cas $J_1 > J_2$ s'ordonne avec $\rho_1 = 1$. Il s'agit de l'état AF observé dans la glace carrée artificielle. Pour $J_1 = J_2$, à basse température les populations s'équilibrent à $\rho_1 = \frac{1}{3}$ et $\rho_2 = \frac{2}{3}$. Ces proportions sont dictées par les dégénérescences respectives des vertex. Ce cas correspondrait au modèle de Lieb. Pour $J_1 < J_2$, l'état fondamental est maintenant à $\rho_2 = 1$. À haute température, les trois cas convergent vers les populations $\rho_1 = \frac{1}{8}$, $\rho_2 = \frac{1}{4}$, $\rho_3 = \frac{1}{2}$ et $\rho_4 = \frac{1}{8}$. Cela correspondrait à une phase paramagnétique dans laquelle les spins sont décorrélés.

La simplicité de ce modèle s'obtient au prix d'une approximation conséquente : la connectivité des vertex est complètement négligée. Il s'agit d'un modèle de vertex indépendants. De plus, les barrières d'énergie individuelles, intrinsèques aux nanoaimants, ne sont pas prises en compte. Malgré ces défauts, nous utiliserons cet outil au chapitre suivant pour interpréter nos résultats. Les énergies E_i seront dans ce cas extraites des simulations micromagnétiques.

Conclusion Dans cette section, nous avons expliqué plusieurs niveaux de modélisation des nanoaimants et discuté de leur précision. Il s'agit d'objets micromagnétiques complexes, loin du cas simple d'un macrospin. Grâce à l'introduction d'une anisotropie uniaxiale contrôlée géométriquement, il est possible de faire d'un nanoaimant un système bistable. À l'équilibre, l'objet est alors semblable à un pseudospin Ising. Il est possible d'obtenir une forme simplifiée des interactions entre nanoaimants grâce aux modèles du dipôle ponctuel ou des charges magnétiques. Ce dernier est plus précis car il décrit la longueur des aimants. Thonig *et al.* ont présenté une approche intermédiaire. Ils modélisent la forme tridimensionnelle des aimants, mais les considèrent comme uniformément aimantés [100]. La précision de cette méthode est certainement supérieure à celle du modèle de charges.

À partir de la valeur des interactions entre spins ou de l'énergie micromagnétique des vertex, une distribution de Boltzmann peut donner une estimation du comportement en température du réseau. Dans la section suivante, nous allons nous placer dans le modèle du dipôle ponctuel pour traiter le problème du réseau carré. Nous allons étudier son paysage en énergie dans l'espace réciproque, dans le but de comprendre comment les interactions influencent son état fondamental.

2.4 Analyse spectrale du hamiltonien

Pour des raisons de commodité, le terme « spin » sera souvent employé dans cette section pour désigner nos dipôles magnétiques.

Pour décrire un réseau de N spins dans l'espace direct, il faudrait représenter son énergie dans un espace à $N+1$ dimensions (pour les N variables Ising et l'énergie totale). En matière condensée, un moyen communément employé pour étudier un modèle de spin consiste à effectuer la transformée de Fourier de son hamiltonien. Cette transformation aboutit à une représentation de l'énergie dans un espace réciproque de même dimensionalité que le système, sous forme de bandes. Nous désignerons par « spectre » la représentation de ces bandes. Si le réseau a un état fondamental défini, celui-ci se traduit par un ou plusieurs minima sur le spectre d'énergie. Dans certains cas, la position de ce minima dans l'espace réciproque permet directement de déduire la configuration magnétique correspondante. Cette méthode a été appliquée au réseau de Wang *et al.* [104] par Möller et Moessner [63] pour étudier l'effet d'un rehaussement d'un sous-réseau. Plus de détails sur cette méthode sont présentés dans les thèses de G. Möller [62] et de L.P. Henry [31]. Dans la section suivante nous allons rappeler son principe. Nous porterons une attention particulière à l'interprétation physique des vecteurs propres associés aux bandes, qui est un problème délicat.

2.4.1 Spectre dans l'espace réciproque

Nous considérons le réseau carré constitué de $2N$ spins représenté en figure 2.18a. La maille unité contient deux spins. Les paramètres géométriques choisis, ainsi que les conventions adoptées pour les étiquettes de la maille unité, apparaissent en figure 2.18b. Nous allons d'abord définir le hamiltonien du réseau. Ensuite, nous montrerons comment l'écrire sous la forme d'une matrice 2×2 par transformée de Fourier.

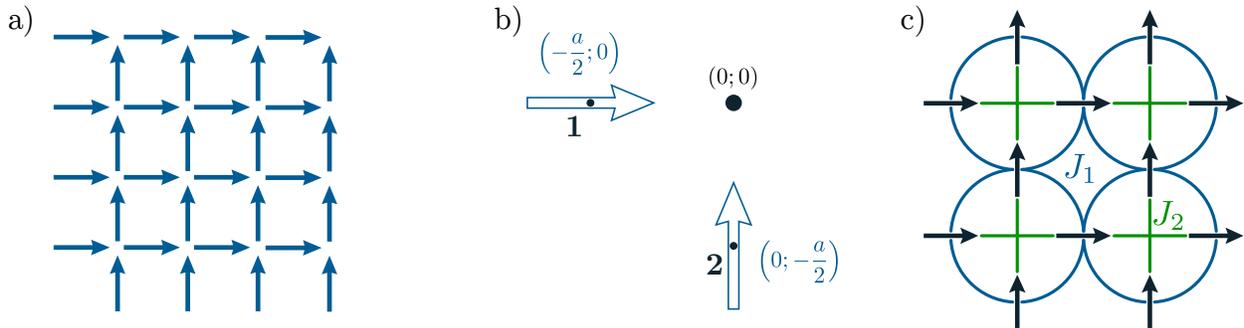


FIGURE 2.18 – a) Schéma du réseau de $2N$ spins étudié dans cette partie. b) Représentation de la maille unité, montrant les positions des deux spins et leur étiquetage. c) Représentation des couplages entre spins, pour un modèle avec des interactions entre premiers voisins J_1 (bleu) et J_2 (vert).

Transformation du hamiltonien Le réseau de $2N$ spins étudié ici est infini, à géométrie carrée, de paramètre de maille a . Son hamiltonien s'écrit, dans sa forme la plus générale :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^{2N} J_{ij} \sigma_i \sigma_j \quad (2.16)$$

Cette forme est indépendante de la géométrie du réseau et des interactions entre spins. Nous étudions le cas de spins Ising. Les variables Ising σ_i , qui représentent les spins, ne sont pas des grandeurs vectorielles mais des scalaires qui valent ± 1 . Nous choisissons une convention qui associe les σ_i positifs aux spins pointant vers le centre de la maille unité. Une valeur négative de σ_i indique que le spin i pointe vers l'extérieur de la maille. Par exemple, sur la figure 2.18a toutes les variables σ_i sont positives. Dans l'équation (2.16), les variables i et j balayent tous les spins du réseau. Pour obtenir une forme plus commode de cet hamiltonien, nous séparons le déplacement de site en site du déplacement interne à un site :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^N \sum_{\alpha,\beta=1}^2 J_{i\alpha,j\beta} \sigma_{i\alpha} \sigma_{j\beta}$$

Maintenant, les variables i et j balayent les N nœuds du réseau de Bravais tandis que les variables α et β balayent les sites à l'intérieur de la maille unité. Comme celle-ci contient deux spins (cf. fig. 2.18b), la seconde somme s'effectue sur des variables allant de 1 à 2. Les spins sont maintenant étiquetés par un nombre identifiant leur nœud (i ou j) qui indique la position de la maille dans le réseau direct. Les nombres α et β indiquent le site occupé par le spin dans la maille unité, selon les étiquettes définies en figure 2.18b. La position $\mathbf{r}_{i\alpha}$ d'un spin $i\alpha$ peut s'exprimer comme :

$$\mathbf{r}_{i\alpha} = \mathbf{r}_i + \boldsymbol{\rho}_\alpha \quad \text{où} \quad \boldsymbol{\rho}_\alpha = \begin{cases} -\frac{a}{2} \mathbf{u}_x & \text{si } \alpha = 1 \\ -\frac{a}{2} \mathbf{u}_y & \text{si } \alpha = 2 \end{cases} \quad (2.17)$$

\mathbf{r}_i représente la position du nœud i dans le réseau, et $\boldsymbol{\rho}_\alpha$ celle du site α dans la maille unité. La matrice d'interaction $J_{i\alpha,j\beta}$ correspond aux interactions entre les spins $i\alpha$ et $j\beta$. Elle contient toutes les grandeurs physiques du système étudié. Effectuons maintenant la transformée de Fourier du hamiltonien. Les conventions que nous adoptons sont :

$$\sigma_{\mathbf{q}\alpha} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N \sigma_{j\alpha} \cdot \exp -i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{j\alpha} \quad \text{pour la transformée directe de } \sigma_{j\alpha} \quad (2.18)$$

$$\sigma_{j\alpha} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}} \sigma_{\mathbf{q}\alpha} \cdot \exp i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{j\alpha} \quad \text{pour la transformée inverse de } \sigma_{\mathbf{q}\alpha} \quad (2.19)$$

Dans l'expression (2.19), le vecteur \mathbf{q} de la somme balaye les N nœuds du réseau réciproque. Après substitution dans le hamiltonien, il vient l'expression suivante :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2N} \sum_{i,j=1}^N \sum_{\alpha,\beta=1}^2 \sum_{\mathbf{q},\mathbf{q}'} J_{i\alpha,j\beta} \sigma_{\mathbf{q}\alpha} \sigma_{\mathbf{q}'\beta} \exp i(\mathbf{q} + \mathbf{q}') \cdot \mathbf{r}_i \exp i\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\rho}_\alpha \exp i\mathbf{q}' \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \boldsymbol{\rho}_\beta)$$

où \mathbf{r}_{ij} est défini comme $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i$. Par hypothèse, le système est infini et invariant par translation. Le terme de couplage $J_{i\alpha,j\beta}$ ne dépend donc pas de la position absolue sur laquelle il est calculé. Il ne dépend que de α , β et de la distance \mathbf{r}_{ij} entre les nœuds considérés. Il pourrait aussi bien s'écrire $J_{\mathbf{r}_{ij},\alpha,\beta}$. Pour les raisons de symétrie invoquées précédemment, le vecteur \mathbf{r}_{ij} balaye toutes les distances entre les nœuds du réseau, quelque soit la position i . Les seuls termes non nuls sont obtenus pour $\mathbf{q}' = -\mathbf{q}$, ce qui simplifie la somme sur i :

$$\sum_{i=1}^N \sum_{\mathbf{q}'} \exp i(\mathbf{q} + \mathbf{q}')r_i = N\delta(\mathbf{q}, \mathbf{q}')$$

L'expression du hamiltonien devient donc, pour un site i fixé :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \sum_{\alpha,\beta=1}^2 \sum_{j=1}^N J_{\mathbf{r}_{ij},\alpha,\beta} \sigma_{\mathbf{q}\alpha} \sigma_{-\mathbf{q}\beta} \exp i\mathbf{q}\cdot\boldsymbol{\rho}_{\alpha} \exp -i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r}_{ij} + \boldsymbol{\rho}_{\beta})$$

Ce hamiltonien montre que, grâce aux propriétés de symétrie et d'invariance de notre système, l'énergie totale ne dépend que de l'interaction entre un nœud i donné et son environnement. Il reste maintenant à déterminer les valeurs que prend le terme $J_{\mathbf{r}_{ij},\alpha,\beta}$. Avec des interaction à portée infinie (comme l'interaction dipôle-dipôle), ce terme ne s'annule que dans le cas ($i = j, \alpha = \beta$) car un spin n'interagit pas avec lui même. En se restreignant aux interactions entre plus proches voisins (J_1 et J_2 , cf. fig. 2.18c) la plupart des termes $J_{\mathbf{r}_{ij},\alpha,\beta}$ s'annulent.

Dans tout les cas, le hamiltonien peut s'écrire sous forme matricielle en explicitant la somme sur α et β :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} (\sigma_{-q_1} \quad \sigma_{-q_2}) \mathcal{J} \begin{pmatrix} \sigma_{q_1} \\ \sigma_{q_2} \end{pmatrix}$$

\mathcal{J} est une matrice 2x2 qui contient toutes les énergies d'interactions entre spins. L'élément de matrice $\mathcal{J}_{\alpha\beta}$ représente l'interaction entre les sites α et β de la maille unité. Cette interaction peut se faire à l'intérieur ou à l'extérieur de la maille. Les termes diagonaux sont composés uniquement d'interactions entre deux mailles différentes puisque un spin n'interagit pas avec lui même. Les dimensions de la matrice sont déterminées par le nombre de sites dans la maille élémentaire. Nous calculerons les termes $\mathcal{J}_{\alpha\beta}$ analytiquement ou numériquement selon la complexité du problème considéré. $\mathcal{J}_{\alpha\beta}$ s'exprime, pour n'importe quel nœud i du réseau :

$$\mathcal{J}_{\alpha\beta} = \sum_{j=1}^N J_{\mathbf{r}_{ij},\alpha,\beta} \exp i\mathbf{q}\cdot(\boldsymbol{\rho}_{\alpha} - \boldsymbol{\rho}_{\beta} - \mathbf{r}_{ij}) \quad \forall i \in [1; N]$$

Après transformée de Fourier, le hamiltonien du réseau infini se ramène donc au calcul de toutes les interactions d'un nœud i fixé avec les spins environnants. Les interactions sont pondérées par un terme de phase qui contient les paramètres géométriques du réseau. $\mathcal{J}_{\alpha\beta}$ vérifie la propriété $\mathcal{J}_{\alpha\beta} = \mathcal{J}_{\beta\alpha}^*$. Cela signifie que la matrice \mathcal{J} est hermitique. Nous aurions pu également déduire cette propriété des symétries du réseau.

\mathcal{J} s'exprime dans la base des $\sigma_{q\alpha}$, transformées de Fourier des variables Ising $\sigma_{j\alpha}$. Le sens physique de ces variables n'est pas évident. Elles caractérisent d'une certaine manière l'ordre magnétique des sites α . Nous les calculerons numériquement pour quelques cas particuliers au §2.4.3.

Les valeurs propres de \mathcal{J} peuvent être représentées par des bandes d'énergie dans l'espace réciproque à deux dimensions (q_x, q_y) . Comme il y a deux spins dans la maille unité, \mathcal{J} possède deux valeurs propres et nous obtenons deux bandes. À chaque bande est associé un vecteur propre construit par combinaison linéaire de variables $\sigma_{q\alpha}$. Ce vecteur propre contient l'information sur la configuration magnétique interne à la maille en chaque point d'une bande. Le vecteur \mathbf{q} indique la propagation de cette configuration locale dans le réseau. Nous allons maintenant appliquer ces résultats à un cas simple, en ne considérant que les interactions à courte portée.

Construction de \mathcal{J} pour un modèle J_1, J_2 Nous considérons ici le cas le plus simple, pour lequel les spins n'interagissent qu'entre premiers voisins. La figure 2.18c représente ces interactions dans le réseau. Ce cas est soluble analytiquement, le calcul détaillé se trouve dans le manuscrit de thèse de G. Möller [62]. En ne considérant que les couplages premiers voisins J_1, J_2 de la figure 2.18c, \mathcal{J} s'exprime :

$$\mathcal{J} = \begin{pmatrix} J_2(1 - 2u^2) & J_1(-2uv) \\ J_1(-2uv) & J_2(1 - 2v^2) \end{pmatrix}$$

avec $u = \sin \frac{a}{2}q_x$ et $v = \sin \frac{a}{2}q_y$. Les valeurs propres de cette matrice décrivent deux bandes d'énergie dans l'espace réciproque. Si le spectre possède un minimum localisé, alors le réseau a un état fondamental bien défini. Si la bande de basse énergie est plate, l'état fondamental est massivement dégénéré et le système se comporte à basse température comme un liquide de spin. Le profil de la bande de basse énergie est déterminé par les valeurs relatives des couplages J_1 et J_2 .

2.4.2 Influence du rapport $\frac{J_1}{J_2}$ sur le spectre

En diagonalisant \mathcal{J} dans le cas général ($J_1 \neq J_2$), nous pouvons observer comment évolue la bande de basse énergie en fonction des couplages. Nous allons voir que le système exhibe trois phases distinctes selon les valeurs de J_1 et J_2 .

Cas $J_1 > J_2$ La bande de basse énergie possède des minima clairement définis aux points M de l'espace réciproque, associés à l'état AF. Comme cet état fondamental est doublement dégénéré, son entropie par site est nulle. Il correspond au pavage de vertex T1 qui apparaît communément dans le réseau carré expérimental. En effet, avec des interactions dipolaires nous avons $J_1 = 3\sqrt{2}$ et $J_2 = 2$. La glace carrée expérimentale se trouve donc bien dans le cas $J_1 > J_2$. La bande de basse énergie est représentée en figure 2.19a pour $J_1 = 2$ et $J_2=1$.

Cas $J_1 = J_2$ Les couplages sont maintenant équivalents ($J_1 = J_2 = J$). Le spectre correspondant est représenté en figure 2.19b pour $J_1 = J_2 = 1$. Les valeurs propres de \mathcal{J} décrivent

deux bandes d'énergie $E_{\uparrow}^{ice}(\mathbf{q})$ et $E_{\downarrow}^{ice}(\mathbf{q})$ qui s'expriment :

$$E_{\uparrow}^{ice}(\mathbf{q}) = 2J \left(\sin^2 \frac{q_x}{2} + \sin^2 \frac{q_y}{2} - 1 \right) \quad \text{et} \quad E_{\downarrow}^{ice}(\mathbf{q}) = -2J$$

La bande de basse énergie E_{\downarrow}^{ice} est constante en tout point de l'espace réciproque, elle est donc plate. L'état fondamental est massivement dégénéré et le système présente des caractéristiques d'un liquide de spin. Les vecteurs propres \mathbf{V}_{\uparrow} et \mathbf{V}_{\downarrow} associés aux deux bandes s'expriment :

$$\mathbf{V}_{\uparrow}^{ice} = \frac{1}{\sqrt{u^2 + v^2}} \begin{pmatrix} v \\ -u \end{pmatrix} \quad \mathbf{V}_{\downarrow}^{ice} = \frac{1}{\sqrt{u^2 + v^2}} \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} \quad (2.20)$$

Nous montrerons dans la section 2.4.3 que $\mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$ décrit bien les états *ice rule*. Comme cette bande est plate (cf. fig. 2.19b), les états *ice rule* ont la même énergie et le système exhibe la physique du modèle de Lieb. Nous avons vu au chapitre 1 que cette phase possède une entropie par site égale à $S = \frac{4}{3}k_B \ln \frac{3}{2}$ [55] (cf. §1.2.2).

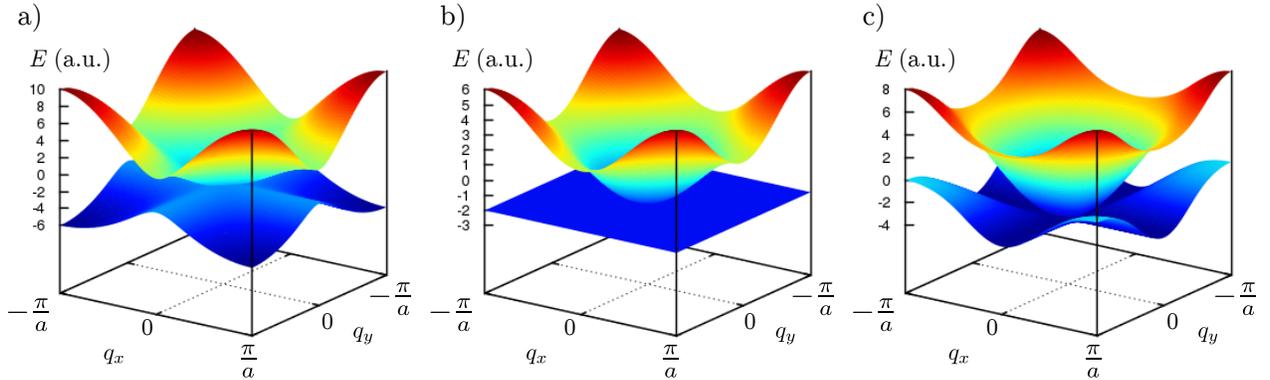


FIGURE 2.19 – Représentation des deux bandes du réseau carré, calculées dans la première zone de Brillouin pour : a) $J_1 = 2, J_2 = 1$ b) $J_1 = 1, J_2 = 1$ et c) $J_1 = 1, J_2 = 2$. La bande plate qui apparaît en b) indique que l'état fondamental du système est massivement dégénéré.

Cas $J_1 < J_2$ La bande de basse énergie présente des minima au niveau des axes ($q_x = 0$) et ($q_y = 0$). L'ordre est localement ferromagnétique car le réseau se compose entièrement de vertex T2 aimantés. Cependant, la bande *ice rule* est encore dégénérée sur les axes ($q_x = 0$) et ($q_y = 0$). Cela signifie que le réseau est globalement désordonné. Une telle configuration est représentée en figure 2.20a. Elle est constituée de lignes de spins aimantées traversantes, mais indépendantes les unes des autres. Calculons maintenant l'entropie de cette phase, que nous appelons F (localement ferromagnétique). Comme les spins sont corrélés en lignes, le réseau en figure 2.20a possède le même nombre d'états que les deux groupes de spins indépendants de la figure 2.20b. Un réseau de N spins dans cette phase a donc les mêmes degrés de liberté que $2\sqrt{N}$ spins indépendants. Le nombre d'états de cette phase s'exprime alors :

$$\Omega = 2^{2\sqrt{N}}$$

À partir de Ω et de l'expression de l'entropie statistique, nous en déduisons l'entropie par site :

$$S = \frac{1}{N} k_B \ln \Omega = \frac{2k_B \ln 2}{\sqrt{N}} \quad (2.21)$$

Bien que le nombre d'états Ω augmente exponentiellement avec la largeur du système, l'entropie par site de la phase F tend vers 0. Il ne s'agit donc pas à proprement parler d'une phase massivement dégénérée. Remarquons que cette dégénérescence peut être levée en ajoutant à \mathcal{J} des termes d'interaction à longue portée. L'état fondamental serait alors de type lignes de spins alternées (cf. fig. 2.20c). Nous appelons cet état Manhattan (M), par analogie avec la circulation routière de ce quartier.

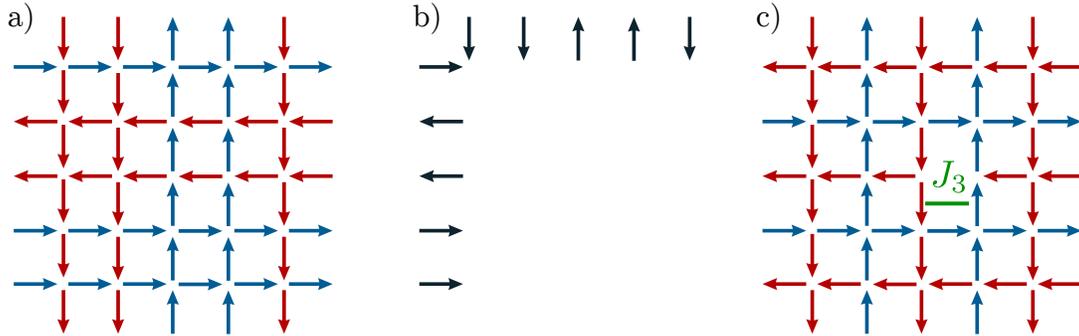


FIGURE 2.20 – a) Réseau de 60 spins dans un état de la phase F, composé entièrement de vertex T2 localement aimantés. b) De part les corrélations de la phase F, ces dix spins indépendants suffisent pour reconstruire le réseau en a). c) État ordonné de type Manhattan, composé de lignes alternées. Il s'établit sous l'effet de l'interaction dipolaire entre troisièmes voisins J_3 .

Selon les valeurs relatives de J_1 et J_2 , l'état fondamental du réseau peut donc être de type ferromagnétique, antiferromagnétique ou massivement dégénéré. Nous montrerons au chapitre 4 comment avoir un contrôle direct du rapport $\frac{J_1}{J_2}$ dans un réseau expérimental. Posons-nous maintenant la question du sens physique de ces spectres.

Lien entre énergie des bandes et état magnétique Une configuration de spin donnée dans l'espace direct n'est pas localisable de façon simple sur le spectre. Cependant, une telle correspondance peut être établie pour certaines configurations ordonnées. Leur facteur de structure doit présenter des pics de Bragg sur des points de haute symétrie de l'espace réciproque. L'état est alors localisé de façon ponctuelle. Et même dans ce cas, l'identification de la bande du spectre décrivant cette configuration reste un problème délicat. Il peut exister des états « spectralement purs » pour lesquels ne contribue qu'une seule bande. Mais l'énergie d'un état peut aussi résulter de la combinaison de plusieurs bandes. Nous nous proposons ici de localiser sur le spectre quelques configurations par un raisonnement énergétique simple. Nous allons calculer l'énergie d'états ordonnés puis, pour chacun, identifier la bande d'énergie correspondante.

Glace dégénérée $J_1 = J_2 = J$ Le spectre du modèle de glace conventionnelle, avec $J_1 = J_2 = J$, possède une bande plate d'énergie $E_{\downarrow}^{ice} = -2J$ par maille unité. Celle-ci est supposée représenter les états *ice rule* du réseau infini dans l'espace direct. Pour vérifier cette affirmation, calculons l'énergie de deux états *ice rule* typiques : l'état aimanté et l'état AF.

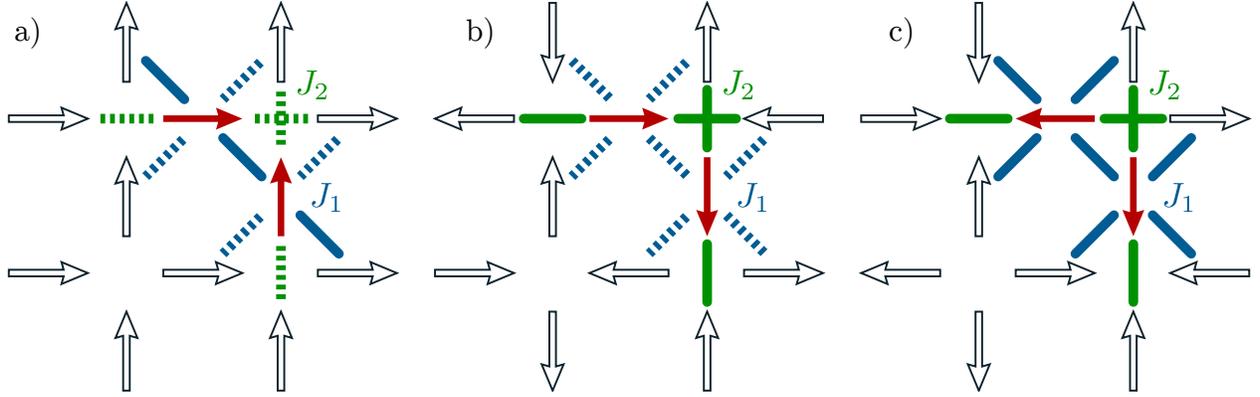


FIGURE 2.21 – Représentation des interactions entre une maille (en rouge) et le réseau environnant (en blanc), dans un modèle d’interactions à courte portée J_1, J_2 . Pour le calcul de l’énergie par maille, les interactions en traits pleins (resp. pointillés) sont comptées positivement (resp. négativement). Les trois cas correspondent aux configurations a) aimantée, b) antiferromagnétique, c) de type *all in/all out*.

La figure 2.21a représente les interactions d’une maille de l’état aimanté avec son environnement. Tous les vertex sont de type 2. L’énergie de cette maille s’exprime comme la somme des interactions internes avec la moitié des interactions externes :

$$E_{T2} = (E_{interne}) + \frac{1}{2}(E_{externe}) = J_1 + \frac{1}{2}(-4J_1 + 2J_1 - 4J_2) = -2J_2 = -2J$$

Calculons maintenant l’énergie de l’état AF représenté en figure 2.21b. Un même raisonnement montre que son énergie vaut :

$$E_{T1} = -J_1 + \frac{1}{2}(-6J_1 + 4J_2) = -4J_1 + 2J_2 = -2J$$

Pour les deux configurations *ice rule* triviales, nous avons calculé dans l’espace direct une énergie par maille identique à celle de la bande de basse énergie dans l’espace réciproque. De la même manière, nous pouvons identifier l’état de plus haute énergie. Celui-ci est composé d’un arrangement antiferromagnétique de vertex T4 (*all in/all out*) (cf. fig. 2.21c). L’énergie par maille de cet état vaut :

$$E_{T4} = J_1 + \frac{1}{2}(6J_1 + 4J_2) = 4J_1 + 2J_2 = 6J$$

Cette valeur correspond bien aux maxima du spectre du modèle de glace dégénérée, localisés en M . Nous obtenons encore une correspondance parfaite entre l’énergie calculée dans l’espace direct et celle lue sur le spectre.

Cas $J_1 \neq J_2$ La dégénérescence de la bande *ice rule* est maintenant levée. Nous traitons le cas du spectre en figure 2.19a, avec $J_1 = 2$ et $J_2 = 1$. Les énergies par maille des trois configurations précédentes s’expriment maintenant :

$$E_{T1} = 4J_1 - 2J_2 = -6 \quad E_{T2} = 2J_2 = -2 \quad E_{T4} = 4J_1 + 2J_2 = 10$$

Comme la bande *ice rule* n'est plus plate, il faut tenir compte de la localisation dans la première zone de Brillouin des états d'énergie E_{T_1} et E_{T_2} . À l'état aimanté d'énergie E_{T_2} correspond un pic de Bragg en Γ . À l'état AF d'énergie E_{T_1} sont associés des pics en M . L'observation du spectre en figure 2.19a permet de retrouver les énergies E_{T_1} et E_{T_2} sur la bande *ice rule*. L'état d'énergie E_{T_4} est lui toujours localisé sur la bande excitée.

La correspondance entre ces états particuliers et les bandes d'énergie peut sembler triviale. Pourtant, nous montrerons au prochain chapitre que cette propriété n'est pas toujours vraie. Dans la partie suivante, nous allons vérifier que la bande de basse énergie des spectres en figure 2.19 est bien associée aux états *ice rule*.

2.4.3 Interprétation des vecteurs propres

Intéressons-nous aux transformées de Fourier $\sigma_{q\alpha}$ des variables Ising $\sigma_{i\alpha}$. Nous rappelons que l'énergie d'une configuration donnée s'exprime en fonction de \mathcal{J} :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} (\sigma_{-\mathbf{q}_1} \sigma_{-\mathbf{q}_2}) \mathcal{J} \begin{pmatrix} \sigma_{\mathbf{q}_1} \\ \sigma_{\mathbf{q}_2} \end{pmatrix}$$

où $\sigma_{q\alpha}$ correspond à la transformée de Fourier des variables Ising $\sigma_{i\alpha}$. En utilisant la notation de Dirac, cette expression se réécrit indépendamment du nombre de spins dans la maille unité :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \langle \sigma_{\mathbf{q}} | \mathcal{J} | \sigma_{\mathbf{q}} \rangle \quad (2.22)$$

Nous voulons savoir si le vecteur $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ d'une configuration *ice rule* correspond bien au vecteur propre de la bande de basse énergie. Considérons une configuration magnétique donnée, constituée de N mailles, que nous notons \mathcal{C} . Son énergie $E_{\mathcal{C}}$ peut être calculée dans l'espace direct en sommant toutes les interactions sur les N mailles (équation (2.16)). Elle peut également être calculée dans l'espace de Fourier (équation (2.22)) à condition de connaître le vecteur $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ de \mathcal{C} . À \mathcal{C} fixée, les composantes $\sigma_{q\alpha}$ de $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ sont calculables directement à partir de la définition de la transformée de Fourier directe (2.18). Le vecteur $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ est alors exprimé dans la base associée aux variables Ising (base a) de notre problème. La diagonalisation de la matrice \mathcal{J} fait intervenir une matrice de passage \mathcal{P} de la base a vers la base des vecteurs propres de \mathcal{J} (base b).

$$\mathcal{P} \mathcal{J}^{(b)} \mathcal{P}^{-1} = \mathcal{J}^{(a)}$$

Dans b , $\langle \sigma_{\mathbf{q}} |$ et $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ s'expriment :

$$\begin{aligned} |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle^{(b)} &= \mathcal{P}^{-1} |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle^{(a)} \\ \langle \sigma_{\mathbf{q}} |^{(b)} &= \langle \sigma_{\mathbf{q}} |^{(a)} \mathcal{P}^{-1\dagger} \end{aligned}$$

Ce sont les composantes de $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle^{(b)}$ qui nous intéressent ici. Pour une configuration \mathcal{C} quelconque, $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle^{(b)}$ s'exprime comme une combinaison linéaire des vecteurs propres de \mathcal{J} . Plusieurs bandes du spectre peuvent alors contribuer à l'énergie, donnée par l'équation 2.22. Supposons maintenant que \mathcal{C} vérifie en tout point la règle de la glace. Nous cherchons à déterminer si son vecteur $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle^{(b)}$ se projette uniquement sur la bande de basse énergie. Pour cela, nous allons employer un grand nombre d'états *ice rule* de taille finie.

Génération de configurations *ice rule* aléatoires Le calcul du vecteur $|\sigma_q\rangle$ requiert la connaissance de toutes les variables Ising dans le réseau direct, pour une configuration donnée. Il faut pour cela disposer d'un réseau de taille finie, dont l'état de chaque spin est connu. Nous nous intéressons ici à la génération d'un tel réseau. L'obtention d'une configuration de spin aléatoire est triviale puisqu'il suffit d'attribuer une valeur ± 1 à chaque $\sigma_{i\alpha}$ de manière équiprobable. Cette méthode mène à une configuration composée des quatre types de vertex. En raison de la présence de vertex excités T3 et T4, le réseau est loin de sa variété de basse énergie. Une méthode alternative, basée sur les propriétés topologiques des glaces de spin, consiste à inverser des boucles de spins à partir d'une configuration *ice rule*.

Algorithme de boucles Nous avons expliqué au chapitre 1 que les états de la variété *ice rule* sont liés par des inversions de boucles (cf. §1.2.3). Partant d'une configuration *ice rule* donnée (un état aimanté ou AF par exemple), l'inversion de boucles de spins permet d'obtenir une configuration différente, vérifiant toujours la règle de la glace. Plus le nombre de boucles est grand, plus l'état final est décorrélié de l'état initial. Nous considérons que l'inversion de N boucles (autant que de spins) permet de décorréler l'état final de l'état initial. Le premier spin d'une boucle est tiré aléatoirement parmi l'ensemble des spins du réseau. Ses extrémités suivent ensuite une marche aléatoire à deux dimensions dans le réseau. À chaque itération, l'extrémité peut se propager dans deux directions. Dans un réseau de taille finie, nous pouvons distinguer les boucles qui se referment sur elles-mêmes de celles qui s'évacuent par les bords (cf. fig. 2.22a). Les premières ne modifient pas les nombres de coordination dans le réseau et laissent son aimantation inchangée, au contraire des secondes. L'occurrence de ces différentes boucles dépend des dimensions du réseau et de son état magnétique. Les boucles s'évacuant par les bords sont plus fréquentes dans un réseau de petite taille ou portant une aimantation rémanente élevée. L'algorithme de génération de réseaux *ice rule* aléatoires que

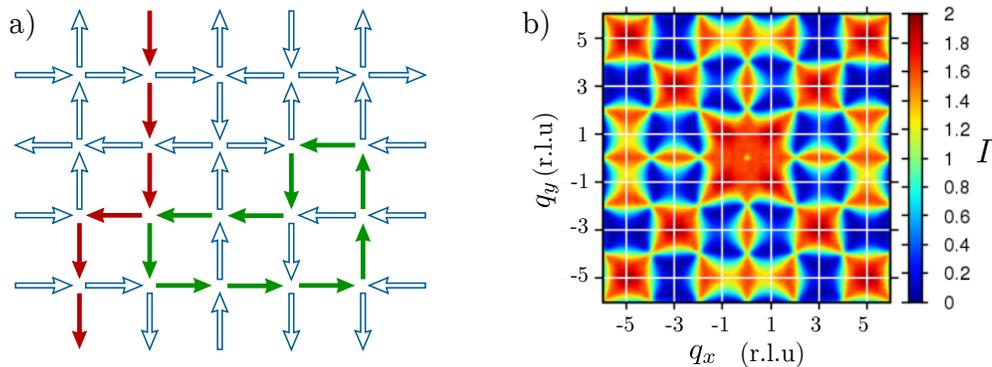


FIGURE 2.22 – a) Schéma d'une configuration *ice rule* de taille finie dans laquelle sont surlignées deux types de boucles. La boucle verte se referme sur elle-même et laisse inchangée l'aimantation du réseau. La boucle rouge s'évacue par les bords et change l'aimantation du réseau. b) Facteur de structure moyen calculé sur 1000 configurations *ice rule* de 12800 spins.

nous exploiterons ensuite est le suivant :

- Création d'un réseau de N spins saturé ;
- Inversion de N boucles pour changer significativement la configuration magnétique ;
- Extraction de la configuration magnétique ;

– Inversion de N boucles, etc.

Son exécution permet de générer un grand nombre de configurations *ice rule* pour un réseau aux dimensions choisies. La figure 2.22b montre le facteur de structure magnétique moyen obtenu sur 1000 configurations *ice rule* dans des réseaux de 12800 spins. Il présente des points de pincements qui sont la signature d’une phase de Coulomb. Remarquons que les populations de vertex s’écartent singulièrement des proportions $\rho_1 = \frac{1}{3}$, $\rho_2 = \frac{2}{3}$ prévues en considérant simplement les dégénérescences des vertex T1 et T2 (cf. §2.1.1). Cet effet est imputable aux contraintes qui lient les vertex. Nous avons observé que, pour de grandes tailles de réseaux, les populations s’établissent à $\langle \rho_1 \rangle = 0.378$ et $\langle \rho_2 \rangle = 0.622$. Ces valeurs sont extraites d’une analyse en taille finie. Pour des systèmes de petite taille, les effets de bord tendent à légèrement diminuer ρ_1 au profit de ρ_2 .

Grâce aux configurations de spin produites par cet algorithme de boucles, nous allons pouvoir calculer les vecteurs $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ associés aux configurations *ice rule*.

Calcul des vecteurs propres Les vecteurs $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ des configurations générées précédemment se calculent dans la base a grâce la définition de la transformée de Fourier directe (2.18). Par application de \mathcal{P} , nous exprimons $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ dans la base b des vecteurs propres de \mathcal{J} . Les projections sur les bandes du modèle sont alors directement données par les produits scalaires :

$$\langle \sigma_{\mathbf{q}} |_1 = \langle \sigma_{\mathbf{q}} |^{(b)} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \langle \sigma_{\mathbf{q}} |_2 = \langle \sigma_{\mathbf{q}} |^{(b)} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

où $\langle \sigma_{\mathbf{q}} |_1$ est associé à la bande de basse énergie et $\langle \sigma_{\mathbf{q}} |_2$ à la bande excitée. En calculant ces quantités sur la première zone de Brillouin, nous pourrions déterminer la contribution relative de chaque bande à l’énergie totale du réseau. Ces contributions sont obtenues en moyennant les $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i$ dans l’espace réciproque. Les projections moyennes $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i \rangle$ obtenues n’ont en soi pas de sens physique puisqu’elles dépendent de la convention de la transformée de Fourier. Nous choisissons ici de les normaliser tel que $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle + \langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2 \rangle = 1$. Nous pourrions par la suite affirmer que si $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2 \rangle = 0.36$, la bande excitée contribue à 36% de l’énergie totale du réseau. Nous nous plaçons ici dans le cas idéal $J_1 = J_2$.

Cas des états *ice rule* Les cartes des projections $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i \rangle$ sur les deux bandes, pour deux tailles de réseaux, sont représentées en figure 2.23. Pour 722 spins, la projection sur la bande 1 vaut en moyenne 0.88 tandis qu’elle n’est que de 0.12 sur la bande 2. Avec des réseaux de 4802 spins, ces quantités sont respectivement de 0.92 et 0.08. Les projections sont donc majoritairement sur la bande de basse énergie, et ce d’autant plus que le réseau est grand. Un signal significatif sur la bande 2 subsiste néanmoins autour du centre de zone. L’existence d’un point de contact entre les bandes en Γ a sûrement un lien avec cette observation (cf. spectres en fig. 2.19).

Par extrapolation de ces résultats, une configuration *ice rule* de taille infinie devrait se projeter parfaitement sur la bande de basse énergie. La bande excitée ne contribuerait donc pas à l’énergie du système. Tout porte à croire que la bande de basse énergie représente bien les états *ice rule*. Au paragraphe suivant, nous allons vérifier que la seconde bande est bien associée aux excitations. Pour cela, nous devons introduire des défauts chargés dans les configurations magnétiques employées précédemment.

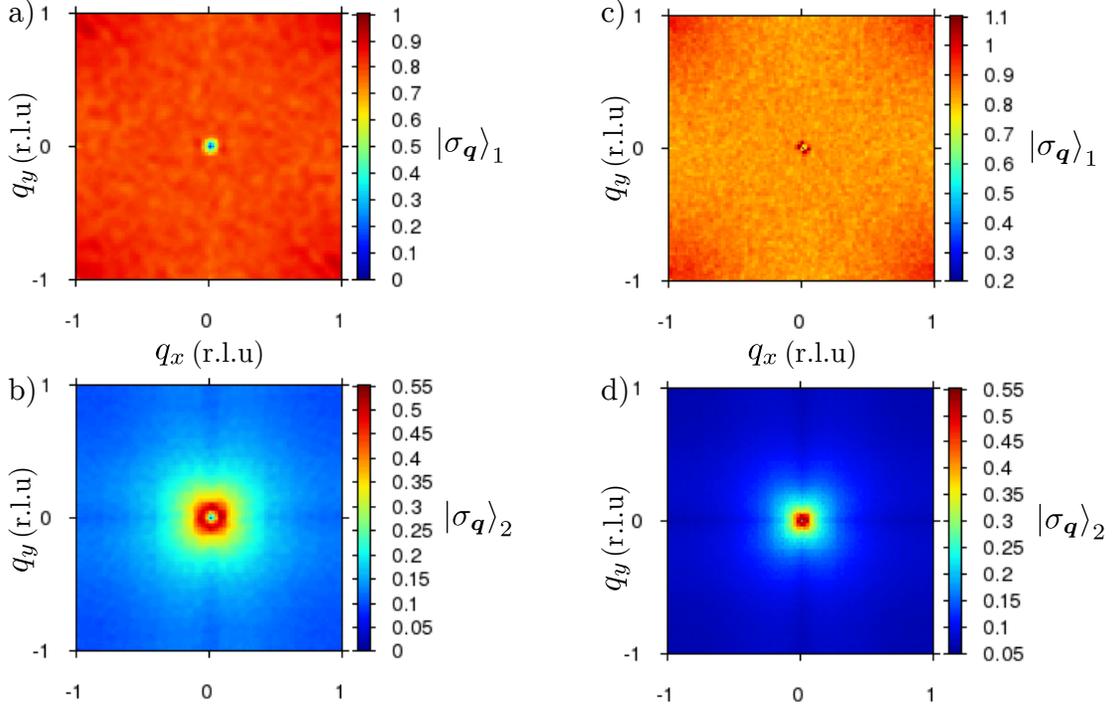


FIGURE 2.23 – a) et b) Projections de $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1$ et $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2$ sur la bande de basse énergie, pour 1000 réseaux de 722 spins. En moyenne, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle = 0.879$ et $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2 \rangle = 0.121$. c) et d) Projections équivalentes pour des réseaux de 4802 spins. Cette fois, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle = 0.92$ et $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2 \rangle = 0.08$. Ces résultats sont reportés dans le tableau 2.1.

Cas des états excités Nous pouvons générer des réseaux avec une densité contrôlée de défauts chargés à partir de configurations *ice rule*. Il suffit pour cela d’inverser l’état d’un certain nombre de spins, ce qui crée à chaque fois une paire de vertex T3⁵. Les spins inversés sont sélectionnés aléatoirement dans le réseau. Plus le nombre d’inversions est élevé, plus les populations de vertex tendent vers celles d’une configuration aléatoire ($\rho_1 = 0.125$, $\rho_2 = 0.25$, $\rho_3 = 0.5$, $\rho_4 = 0.125$). Nous pouvons calculer les nouveaux vecteurs $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle$ à partir de ces configurations excitées.

La figure 2.24 représente les cartes des projections $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i \rangle$ sur les bandes 1 et 2 du modèle, pour deux densités de défauts différentes. Pour une densité de 10% de vertex T3, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle$ a diminué, de 0.92 (cas *ice rule*) à 0.786. Cet effet est beaucoup plus marqué pour les fortes densités de vertex chargés. Avec 50% de vertex T3, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle$ n’est plus que de 0.533. La présence de vertex de T4 accentue certainement le transfert de la bande inférieure vers la bande excitée.

Ces résultats constituent une preuve numérique de la correspondance entre états *ice rule* et bande de basse énergie. La présence de vertex chargés donne du poids à la bande excitée et ce d’autant plus que leur fréquence est élevée. Les résultats précédents ont été calculés dans le cas $J_1 = J_2 = 1$. La correspondance mise en évidence reste correcte lorsque $J_1 \neq J_2$, mais est d’autant moins vraie que l’écart entre J_1 et J_2 est important.

5. Cette assertion n’est vraie que lorsque le spin inversé n’est pas voisin d’une charge magnétique.

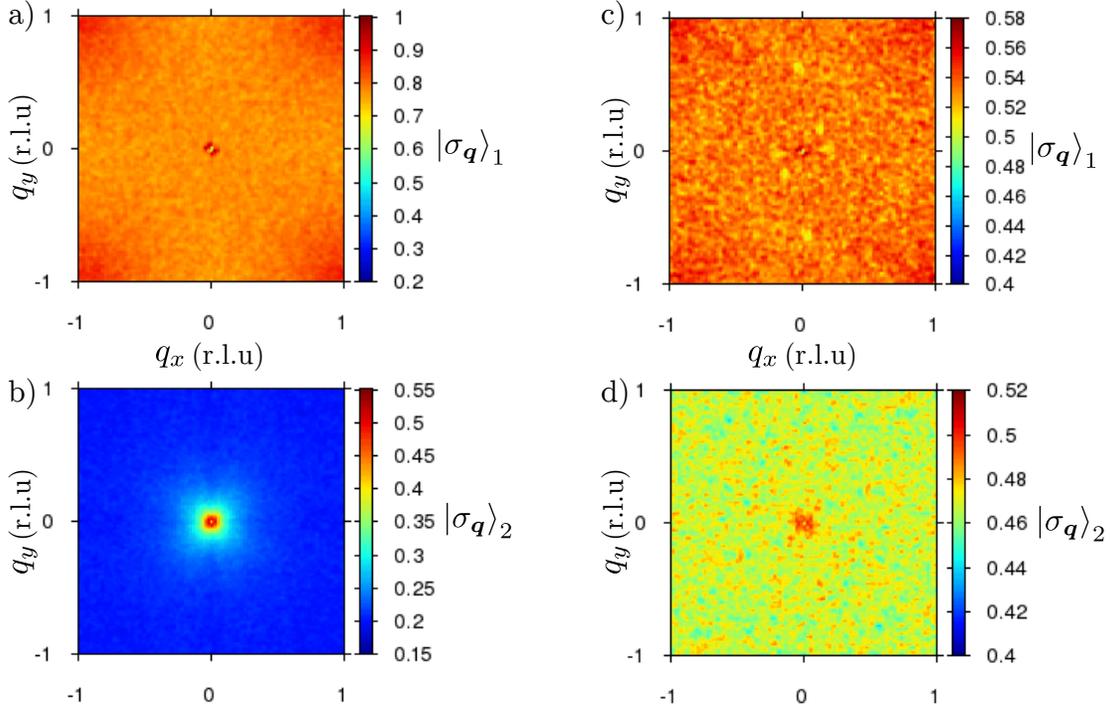


FIGURE 2.24 – a) et b) Projections de $|\sigma_q\rangle_1$ et $|\sigma_q\rangle_2$ pour 1000 réseaux de 4900 spins, avec des concentrations de vertex excités $\rho_3 = 0.105$ et $\rho_4 = 0.015$.
c) et d) Projections équivalentes, avec cette fois $\rho_3 = 0.491$ et $\rho_4 = 0.093$. Les résultats sont reportés dans le tableau 2.1.

Nous pouvons conclure que l’analyse de l’énergie dans l’espace réciproque est un outil puissant pour l’étude d’un modèle de spin. Il permet de détecter l’existence d’un état fondamental ou d’une phase de type liquide de spin. Le cas que nous venons d’étudier est un bon exemple : une bande de basse énergie plate apparaît lorsque l’état fondamental du modèle est dégénéré. Si des interactions lèvent cette dégénérescence, des minima localisés apparaissent. Mais nous verrons au chapitre suivant que cette approche peut parfois induire en erreur : dans le cas de la glace dopée, une bande plate apparaît alors le modèle possède un état fondamental bien défini.

Conclusion

Ce chapitre a introduit les outils que nous emploierons dans la suite de ce manuscrit. Une certaine méthodologie commence dès maintenant à se dégager. Les chapitres suivants portent sur deux réalisations du modèle de Lieb, obtenues par des approches différentes. Dans chaque cas, nous emploierons l’analyse spectrale du hamiltonien pour tenter de montrer qu’une physique de glace dégénérée peut émerger dans le réseau. Nous déterminerons une géométrie pertinente à réaliser expérimentalement grâce aux simulations micromagnétiques à l’échelle d’un vertex. Après une désaimantation ou un recuit thermique, nous pourrons analyser l’état dans lequel se trouvent nos réseaux grâce aux outils présentés en début de

| N | ρ_1 | ρ_2 | ρ_3 | ρ_4 | $\langle \sigma_q\rangle_1 \rangle$ | $\langle \sigma_q\rangle_2 \rangle$ |
|------|----------|----------|----------|----------|--------------------------------------|--------------------------------------|
| 722 | 0.374 | 0.626 | 0 | 0 | 0.879 | 0.121 |
| 4802 | 0.376 | 0.624 | 0 | 0 | 0.92 | 0.08 |
| 4802 | 0.336 | 0.558 | 0.105 | 0.015 | 0.786 | 0.214 |
| 4802 | 0.144 | 0.272 | 0.491 | 0.093 | 0.533 | 0.466 |

TABLE 2.1 – Projections moyennes $\langle |\sigma_q\rangle_i \rangle$ calculées pour différentes populations de vertex et deux tailles de réseaux.

chapitre, comme le facteur de structure ou les populations de vertex. Pour comparer les résultats expérimentaux aux modèles numériques, nous emploierons parfois des descriptions simplifiées comme le dipôle ponctuel.

Chapitre 3

Glace carrée dopée

En raison des couplages magnétostatiques non-équivalents $J_1 > J_2$, la glace carrée artificielle ne présente pas l'état fondamental dégénéré attendu. L'ajustement des paramètres géométriques des aimants (L, w, e, g) permet de moduler les niveaux d'énergie des vertex. Mais leur hiérarchie, qui conditionne la manière dont le réseau s'ordonne, n'est pas contrôlable de cette manière. C'est pourquoi la glace carrée artificielle se cantonne à la réalisation du modèle F. Nous recherchons un paramètre géométrique ajustable continûment qui permettrait un contrôle des niveaux d'énergie des vertex. Cette versatilité, qui est souvent invoquée comme un atout majeur des glaces de spin artificielles, reste pour le moment peu exploitée.

Nous allons explorer dans ce chapitre une nouvelle approche, basée sur une autre topologie de glace carrée artificielle. Afin de ne pas changer l'objet physique étudié, nous conservons le réseau carré de Wang *et al.* [104]. Le changement de topologie se fait par l'ajout de nouveaux aimants. Sur la figure 3.1a, le réseau carré initial apparaît en bleu et les nouveaux aimants en rouge. Dans ce chapitre, nous les identifierons par les termes « sous-réseau A » (SRA) et « sous-réseau B » (SRB). Les aimants SRA seront parfois appelés « aimants principaux » car ce sont eux qui sont porteurs de la physique de glace. Les aimants SRB seront souvent désignés par les termes « aimants additionnels » ou « absorbeurs » pour les raisons qui seront exposées dans ce chapitre. D'après la figure 3.1a, les absorbeurs respectent les symétries du réseau initial.

Nous allons expliquer leur effet grâce au schéma représenté en figure 3.1b. Considérons deux moments perpendiculaires en interaction J_1 (avec $J_1 > 0$). Il existe quatre configurations possibles. Deux d'entre elles sont de type HH ou TT (*head to head* ou *tail to tail*). Les deux autres sont de type HT (*head to tail*). L'état HH a une énergie plus élevée que l'état HT ($E_{HH} = J_1$ et $E_{HT} = -J_1$). Ajoutons maintenant un absorbeur sur la bissectrice entre ces aimants. Son couplage avec les aimants principaux est noté J_3 ($J_3 > 0$). Exprimons alors les nouvelles énergies des configurations HH et HT :

$$\begin{aligned} E_{HH} &= J_1 \pm 2J_3 \\ E_{HT} &= -J_1 + J_3 - J_3 = -J_1 \end{aligned}$$

L'ajout de l'absorbeur laisse l'énergie de l'état HT inchangée mais modifie celle de l'état HH. À cette étape du raisonnement, nous postulons que l'absorbeur se place toujours dans sa configuration de plus basse énergie pour « absorber » la charge magnétique de la configuration HH ($E_{HH} = J_1 - 2J_3$). Cette hypothèse implique que l'état de l'absorbeur est entièrement

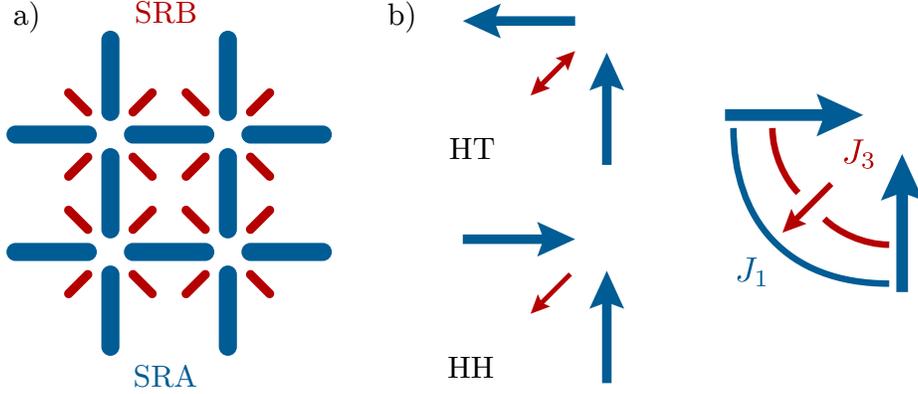


FIGURE 3.1 – a) Schéma du nouveau réseau de nanoaimants. Les sous-réseaux A et B sont représentés respectivement en bleu et en rouge. b) Schéma des configurations HT et HH, avec l'absorbeur placé dans son état préférentiel. Les deux couplages en jeu ici sont notés J_1 et J_3 .

déterminé par celui des aimants principaux ; l'absorbeur est donc passif. Nous expliquerons dans ce chapitre les conditions requises pour que cette « hypothèse de passivité » soit valide. L'absorbeur doit notamment porter un moment magnétique significativement plus faible que celui des aimants principaux pour qu'elle soit vérifiée. Si tel est le cas, l'état HH a une énergie $E_{HH} = J_1 - 2J_3$. En plaçant l'origine des énergies à $-J_3$, E_{HH} et E_{HT} s'expriment :

$$\begin{aligned} E_{HH} &= J_1 - J_3 = J'_1 \\ E_{HT} &= -J_1 + J_3 = -J'_1 \\ \text{avec } J'_1 &= J_1 - J_3 \end{aligned}$$

Le couplage J'_1 correspond à un couplage effectif entre les aimants principaux. Remarquons que pour $J_3 = J_1$, nous avons $J'_1 = 0$. Dans ce cas, l'interaction entre les moments perpendiculaires est écrantée par la présence de l'absorbeur. Nous montrerons qu'expérimentalement, la valeur de J_3 est ajustable continûment en agissant sur la géométrie des absorbeurs. Le couplage effectif J'_1 est donc modulable à volonté. La dégénérescence massive des états de basse énergie est rétablie si $J'_1 = J_2$. L'ajout d'absorbeurs pourrait donc permettre au réseau de transiter du modèle F vers le modèle de Lieb. Nous notons J_3^{ice} la valeur critique de J_3 pour laquelle la dégénérescence est rétablie (condition $J'_1 = J_2$). Le couplage critique J_3^{ice} s'exprime :

$$J_3^{ice} = J_1 - J_2 \quad (3.1)$$

Les deux premières parties de ce chapitre portent sur l'étude théorique du système formé par la superposition de SRA et SRB. Nous montrerons pourquoi l'analyse spectrale du hamiltonien est inadaptée à ce système, qui ne possède pas de bande associée aux états *ice rule*. C'est en calculant les énergies dans le réseau direct que nous identifierons la valeur de J_3^{ice} . Nous aborderons ensuite le problème des interactions à longue portée, avec le modèle du dipôle ponctuel puis des charges magnétiques. La troisième partie a pour but de déterminer les paramètres géométriques pertinents à employer pour une réalisation expérimentale. Nous nous appuyerons pour cela sur des simulations micromagnétiques. La dernière partie est consacrée à l'étude expérimentale de cette nouvelle topologie de glace carrée. Nous montrerons

comment les absorbeurs empêchent le système de s'ordonner dans la phase antiferromagnétique (AF). Les expériences indiquent qu'ils ont aussi une influence sur les fluctuations thermiques dans le réseau.

3.1 Analyse spectrale

Nous avons expliqué au second chapitre une méthode permettant de représenter l'énergie d'un système dans l'espace réciproque (cf. §2.4). Cela permet d'obtenir un spectre composé d'un certain nombre de bandes, selon la composition de la maille unité. Une bande de basse énergie plate traduit une dégénérescence massive de l'état fondamental. Si elle présente un ou plusieurs minima localisés, l'état fondamental du réseau est bien défini. Nous allons appliquer cette méthode à la glace dopée pour tenter de démontrer que le modèle de Lieb peut être obtenu par l'ajout d'absorbeurs. Nous verrons que, dans le cas particulier de ce réseau, l'analyse spectrale échoue car la bande de basse énergie ne représente pas les états *ice rule*.

3.1.1 Spectre pour un modèle J_1, J_2, J_3

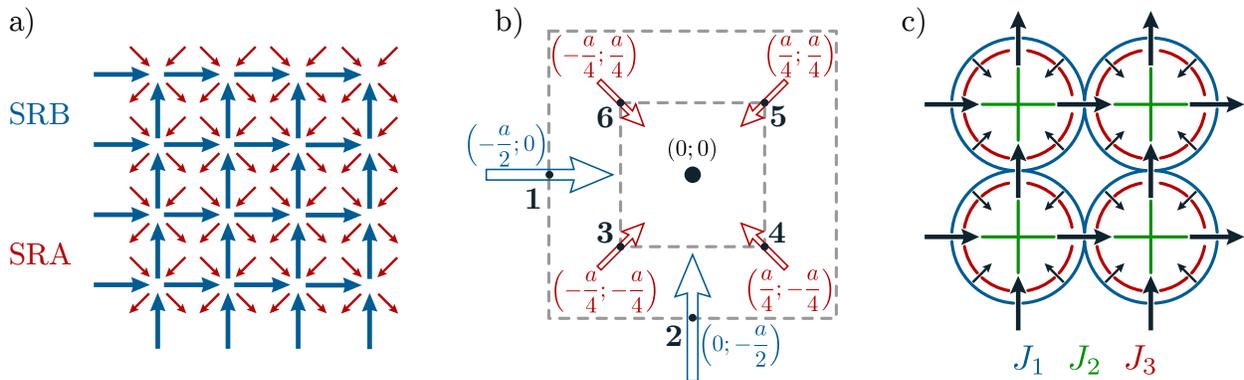


FIGURE 3.2 – a) Schéma du réseau de spins étudié dans cette partie. Les absorbeurs sont en rouge et les aimants principaux en bleu. b) Représentation de la maille unité, montrant la position des six spins et leur étiquetage. c) Représentation des couplages entre spins, pour un modèle avec des interactions entre premiers voisins J_1, J_2, J_3 .

Considérons le réseau de spins infini de périodicité a représenté en figure 3.2a. La maille unité contient maintenant six spins, au lieu de deux pour le réseau carré conventionnel. Les conventions d'étiquetage des sites et la position des spins dans la maille apparaissent en figure 3.2b. L'écriture du hamiltonien, sa transformation de Fourier et le remplissage de la matrice \mathcal{J} se font comme au chapitre précédent, mais cette fois en six dimensions. La position ρ_α de

chaque spin α dans la maille unit e s'obtient   partir de la figure 3.2b.

$$\boldsymbol{\rho}_\alpha = \begin{cases} -\frac{a}{2}\mathbf{u}_x & \text{si } \alpha = 1 \\ -\frac{a}{2}\mathbf{u}_y & \text{si } \alpha = 2 \\ -\frac{a}{4}\mathbf{u}_x - \frac{a}{4}\mathbf{u}_y & \text{si } \alpha = 3 \\ \frac{a}{4}\mathbf{u}_x - \frac{a}{4}\mathbf{u}_y & \text{si } \alpha = 4 \\ \frac{a}{4}\mathbf{u}_x + \frac{a}{4}\mathbf{u}_y & \text{si } \alpha = 5 \\ -\frac{a}{4}\mathbf{u}_x + \frac{a}{4}\mathbf{u}_y & \text{si } \alpha = 6 \end{cases} \quad (3.2)$$

Consid erons le cas simple d'interactions   courte port ee. Les trois couplages apparaissent en figure 3.2c. Les aimants principaux sont coupl es J_1 ou J_2 selon s'ils appartiennent ou non   un m eme sous-r eseau. Les absorbeurs sont coupl es J_3 avec les aimants principaux. Nous n egligeons pour le moment toute interaction entre absorbeurs. Dans ce cas, la matrice \mathcal{J} s' crit :

$$\mathcal{J} = \begin{pmatrix} 2J_2 \cos(aq_x) & 2J_1 f(\mathbf{q}) & -J_3 h(\mathbf{q}) & J_3 g^*(\mathbf{q}) & J_3 h^*(\mathbf{q}) & -J_3 g(\mathbf{q}) \\ 2J_1 f(\mathbf{q}) & 2J_2 \cos(aq_y) & -J_3 h^*(\mathbf{q}) & -J_3 g(\mathbf{q}) & J_3 h(\mathbf{q}) & J_3 g^*(\mathbf{q}) \\ -J_3 h^*(\mathbf{q}) & -J_3 h(\mathbf{q}) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ J_3 g(\mathbf{q}) & -J_3 g^*(\mathbf{q}) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ J_3 h(\mathbf{q}) & J_3 h^*(\mathbf{q}) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -J_3 g^*(\mathbf{q}) & J_3 g(\mathbf{q}) & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Les seize  l ements de matrice nuls traduisent le fait que les absorbeurs n'interagissent pas entre eux. Les fonctions f, g, h sont d efinies par :

$$\begin{aligned} f(q_x, q_y) &= \cos\left(\frac{a}{2}(q_x + q_y)\right) - \cos\left(\frac{a}{2}(q_x - q_y)\right) \\ g(q_x, q_y) &= \exp\left(i\frac{a}{4}(q_x + q_y)\right) \\ h(q_x, q_y) &= \exp\left(i\frac{a}{4}(q_x - q_y)\right) \end{aligned}$$

La notation $g^*(q_x, q_y)$ se r ef ere   la fonction complexe conjugu ee de g . Pour obtenir les bandes d' nergie du r eseau de spins, nous diagonalisons num eriquement \mathcal{J} en chaque point de la premi ere zone de Brillouin. Nous devons   cette  tape attribuer des valeurs num eriques aux couplages J_1 et J_2 . Dans un mod ele de dip oles ponctuels de moments μ en interaction dip ole-dip ole, ces couplages valent :

$$J_1 = 3\sqrt{2}\frac{\mu^2}{a^3} \quad \text{et} \quad J_2 = 2\frac{\mu^2}{a^3}$$

Pour simplifier notre propos, nous travaillons avec les couplages $J_1 = 2$ et $J_2 = 1$. Le couplage J_3 n'est pas fix e ici puisqu'il s'agit du param etre variable qui permet de changer le mod ele de spins. Le spectre   deux bandes du r eseau conventionnel est rappel e en figure 3.3a. Le spectre du r eseau   aimants additionnel appara t en figure 3.3b pour $J_3 = 0$. Nous retrouvons exactement les deux bandes pr ec edentes, en plus d'une bande d' nergie nulle quatre fois d eg en er ee. Celle-ci traduit les degr es de libert e apport es par les quatre absorbeurs de la

maille unité (qui sont isolés si $J_3 = 0$). Nous sommes ici dans un cas où les sous-réseaux A et B sont découplés. Le spectre est alors simple à interpréter : il résulte de la superposition du spectre initial avec celui des absorbeurs. La situation devient plus complexe lorsque $J_3 \neq 0$ car de nouvelles bandes contribuent à l'énergie totale. Nous allons montrer dans la partie suivante comment comparer ce nouveau modèle au cas de la glace carrée.

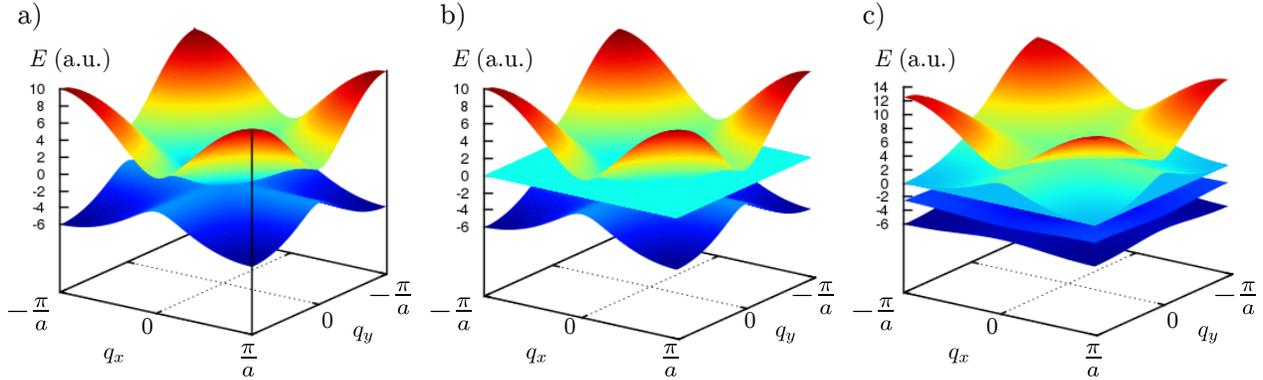


FIGURE 3.3 – a) Spectre du réseau carré conventionnel, calculé pour $J_1 = 2$ et $J_2 = 1$. b) Spectre obtenu après ajout des absorbeurs, pour $J_1 = 2$, $J_2 = 1$ et $J_3=0$. Une bande quatre fois dégénérée d'énergie nulle apparaît. c) Spectre de la glace à aimants additionnels, calculé pour $J_1 = 2$, $J_2 = 1$, $J_3 = 2$. La dégénérescence de la bande centrale est maintenant partiellement levée.

3.1.2 Comparaison avec le modèle de glace dégénérée

La figure 3.3c montre un spectre obtenu pour $J_3 = 2$. Parmi les quatre bandes dégénérées, deux ont acquis un relief. L'énergie du système dépend maintenant de quatre bandes alors que le spectre du réseau carré initial n'en possède que deux. La comparaison avec le modèle initial n'est donc plus aussi simple que dans le cas du paragraphe précédent $J_3 = 0$. Un problème d'identification des bandes se pose puisque les deux systèmes en ont un nombre différent.

Identification d'une bande *ice rule* par projection Nous allons présenter dans ce paragraphe un moyen simple de comparer deux modèles qui n'ont pas le même nombre de bandes. Nous notons \mathbf{V}_i le vecteur propre de la i ème bande du réseau à absorbeurs ($1 \leq i \leq 6$). $\mathbf{V}_\downarrow^{ice}$ correspond au vecteur propre de la bande de basse énergie du modèle de glace de référence. Deux conditions sont requises pour que le réseau à aimants additionnels reproduise une physique de glace dégénérée :

- Il existe une bande ayant un vecteur propre identique à celui de la bande *ice rule* du modèle de glace conventionnelle $\mathbf{V}_i = \mathbf{V}_\downarrow^{ice}$;
- L'énergie de cette bande est constante ; autrement dit, sa dispersion est nulle.

Pour vérifier la première condition, nous devons comparer les six vecteurs propres \mathbf{V}_i avec celui de référence $\mathbf{V}_\downarrow^{ice}$. S'il existe une bande i pour laquelle $\mathbf{V}_i = \mathbf{V}_\downarrow^{ice}$ en tout point de la première zone de Brillouin, alors celle-ci représente les états *ice rule*. Si elle est plate, ces états ont la même énergie et le réseau réalise le modèle de Lieb.

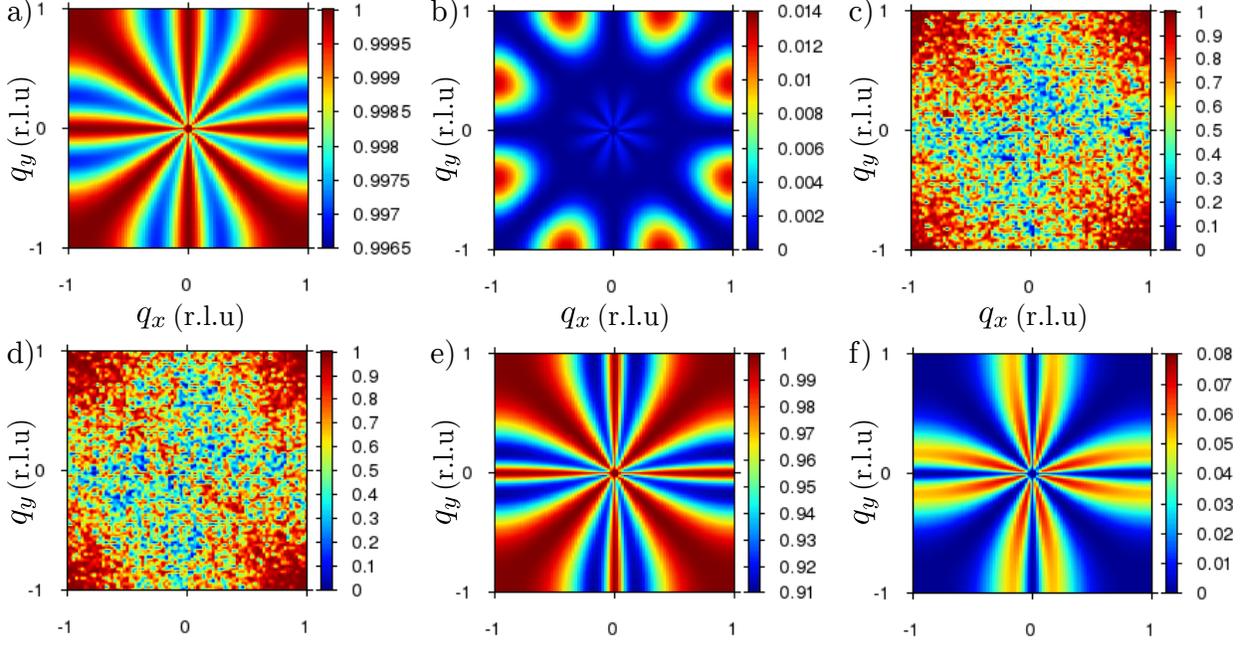


FIGURE 3.4 – Recouvrements des vecteurs propres $\mathbf{V}'_n \cdot \mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$ pour les six bandes de la figure 3.3c (calculées pour $J_1 = 2, J_2 = 1, J_3 = 2$). Les graphes de a) à f) sont classés par ordre croissant d'énergie de bande.

La comparaison des vecteurs propres est problématique car \mathbf{V}_i et $\mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$ n'ont pas les mêmes dimensions. \mathbf{V}_i possède six composantes, contre seulement deux pour $\mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$. La solution la plus simple consiste à tronquer les composantes excédentaires. D'après les conventions d'étiquetage de la figure 3.2b, les composantes $V_{i3}, V_{i4}, V_{i5}, V_{i6}$ sont associées aux absorbeurs. Comme l'organisation des aimants SRB ne nous intéresse pas a priori, nous pouvons exclure ces composantes des vecteurs propres. Il ne reste alors que les deux premières composantes associées aux aimants SRA qui sont notre objet d'étude. Le vecteur de dimension réduite \mathbf{V}'_i se transforme de la manière suivante :

$$\mathbf{V}_i = \begin{pmatrix} V_{i1} \\ \vdots \\ V_{i6} \end{pmatrix} \rightarrow \mathbf{V}'_i = \frac{1}{\sqrt{V_{i1}^2 + V_{i2}^2}} \begin{pmatrix} V_{i1} \\ V_{i2} \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{pmatrix}$$

après normalisation de \mathbf{V}'_i . Ce nouveau vecteur propre est directement comparable à $\mathbf{V}_{\uparrow}^{ice}$ et $\mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$. Le calcul du produit scalaire $\mathbf{V}'_i \cdot \mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$ permet de tester la correspondance des bandes, obtenues si $\mathbf{V}'_i \cdot \mathbf{V}_{\downarrow}^{ice} = 1$. La figure 3.4 représente le produit $\mathbf{V}'_i \cdot \mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$ dans première zone de Brillouin pour les six vecteurs propres. Ces cartes montrent que la bande de plus basse énergie est la plus en accord avec $\mathbf{V}_{\downarrow}^{ice}$. Remarquons que le calcul de $\mathbf{V}'_i \cdot \mathbf{V}_{\uparrow}^{ice}$ permettrait d'identifier quelle bande correspond aux excitations du réseau carré conventionnel.

À première vue, cette méthode de comparaison semble être un moyen efficace pour identifier la bande *ice rule* du spectre à six bandes (cf. fig. 3.3c). Mais nous allons voir qu'elle

engendre de graves incohérences.

Calcul d'états particuliers Nous avons vu au chapitre précédent que l'énergie des bandes doit correspondre en certains points à l'énergie de configurations magnétiques ordonnées (cf. §2.4.2). Par exemple, le maximum du spectre doit correspondre à la configuration qui frustre le plus liaisons. Si les trois couplages sont positifs, l'état de haute énergie correspond à une configuration *all in/all out*. Cet état est représenté en figure 3.5a. Son énergie par maille vaut :

$$E_{max} = 4J_1 + 2J_2 + 8J_3 = 18$$

Sur le spectre en figure 3.3c, l'énergie maximale est atteinte en $(\pm\pi; \pm\pi)$ et vaut 12.55. L'écart entre cette valeur et E_{max} montre qu'il faut rester très prudent dans l'interprétation d'un tel spectre. Cette énergie non entière ne peut pas résulter d'une somme de couplages J_1, J_2, J_3 entiers. Cette observation amène à supposer que certains états magnétiques correspondent à une combinaison d'au moins deux des six bandes du spectre.

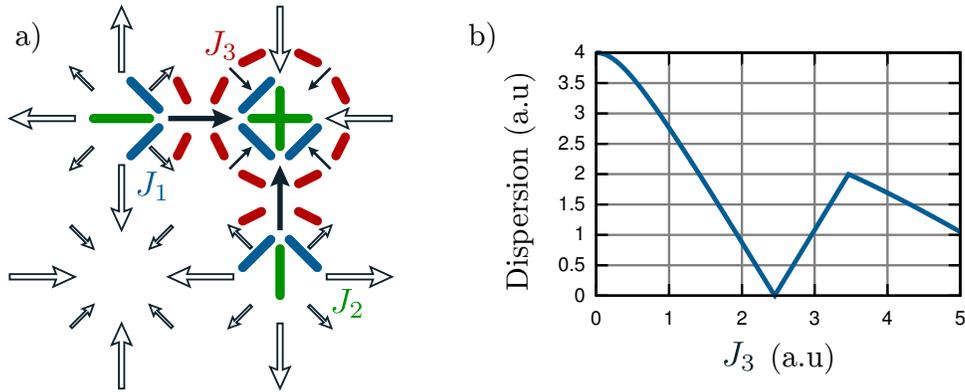


FIGURE 3.5 – a) Schéma des interactions d'une maille unité au sein d'un réseau à aimants additionnels, dans l'état *all in/all out*. b) Variation de l'amplitude de la bande de basse énergie du spectre en fonction de la valeur du couplage J_3 . La discontinuité à $J_3 = 2.45$ est associée à une bande dégénérée. La seconde discontinuité correspond à un recouvrement entre la première et la seconde bande.

Le raisonnement sur les configurations HH et HT en introduction de ce chapitre prédit que $J_3^{ice} = J_1 - J_2$. La bande de basse énergie devrait donc être dégénérée pour cette valeur. Le graphe en figure 3.5b représente la dispersion¹ de la bande de basse énergie pour $J_1 = 2$ et $J_2 = 1$. Pour $J_3 = J_3^{ice} = 1$, la dispersion est encore de $\Delta E = 2.76$ alors que la bande devrait être plate. Remarquons que la dispersion s'annule pour $J_3 = 2.45$, alors que le modèle ne peut clairement pas être dégénéré pour une telle valeur ($E_{T1} \neq E_{T2}$). Nous sommes donc face à un cas pour lequel les bandes sont très difficilement interprétables pour plusieurs raisons :

- Le spectre total n'a pas l'amplitude correspondant aux extrema d'énergie du réseau.
- Pour $J_3 = J_3^{ice}$, l'état fondamental devrait être dégénéré mais le spectre ne présente pas une bande d'énergie plate.

1. Cette grandeur, notée ΔE , correspond à la différence d'énergie entre le maximum et le minimum d'une bande. Elle est toujours positive, ou nulle si la bande est plate.

– Un bande de basse énergie plate apparaît pour un modèle dispersif.
 Afin de comprendre l’origine de ces incohérences, nous allons calculer numériquement le vecteur propre associé aux configurations *ice rule*.

3.1.3 Comparaison par calcul des vecteurs propres

Au chapitre précédent, nous avons montré que pour le réseau carré conventionnel la bande de basse énergie est bien associée aux états *ice rule* (cf. §2.4.3). Pour cela, nous avons calculé le vecteur propre moyen $\langle |\sigma_q\rangle \rangle$ d’un grand nombre de configurations. Dans cette section, nous allons faire le lien entre les projections $\langle |\sigma_q\rangle_i \rangle$ et les incohérences soulevées au §3.1.2. Nous allons montrer que les états *ice rule* ne se projettent pas uniquement sur la bande de basse énergie. Nous emploierons pour cela la même démarche que précédemment. Mis à part le passage de deux à six dimensions, la méthode et les calculs sont analogues.

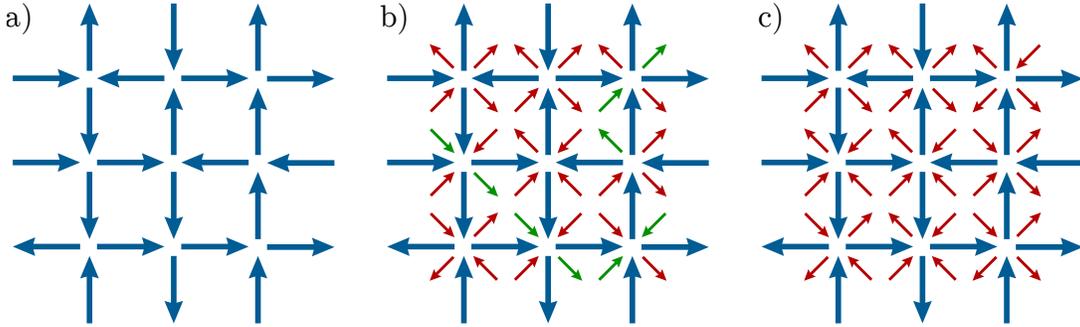


FIGURE 3.6 – a) Configuration *ice rule* initiale générée par l’algorithme de boucles. b) Même configuration après positionnement des absorbeurs dans des états aléatoires. Les spins verts doivent être inversés pour satisfaire l’hypothèse de passivité. c) Configuration finale pour le calcul de $|\sigma_q\rangle$.

Adaptation des configurations *ice rule* Nous réemployons les états de basse énergie du SRA générés au chapitre précédent (cf. §2.4.3). Quatre absorbeurs sont ajoutés au centre de chaque vertex, comme sur la figure 3.2. Le sens de chaque absorbeur est choisi aléatoirement. Les absorbeurs avoisinant les configurations HH et TT sont ensuite réorientés afin d’évacuer la charge magnétique des vertex (hypothèse de passivité). La figure 3.6b montre dans quels cas la réorientation est nécessaire. Nous supposons que les configurations ainsi obtenues sont celles de plus basse énergie, dans un modèle d’interactions à courte portée. Nous montrerons au §3.2.1 que cette hypothèse est vraie. La transformation des configurations *ice rule* est représentée en figure 3.6.

Projection des états *ice rule* pour $J_3 = J_3^{ice}$ Le spectre possède six bandes numérotées par ordre croissant d’énergie. D’après le raisonnement en introduction, pour $J_3 = J_3^{ice}$ les états *ice rule* ont tous la même énergie. Nous voulons vérifier que la bande 1 représente bien ces états. Pour cela, analysons comment ils se projettent sur le spectre.

Les bandes 3 et 4 sont plates et à énergie nulle, leur vecteur propre n’est donc pas défini. Les projections $|\sigma_q\rangle_3$ et $|\sigma_q\rangle_4$ que nous pouvons calculer n’auront pas de sens physique. Par

conséquent, nous ne calculons que les projections $|\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i$ sur les bandes 1, 2, 5 et 6. Celles-ci sont représentées en figure 3.7, pour 1000 configurations *ice rule* d'un réseau de 14406 spins². Le calcul des $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i \rangle$ montre que la situation est nettement plus complexe que dans le cas

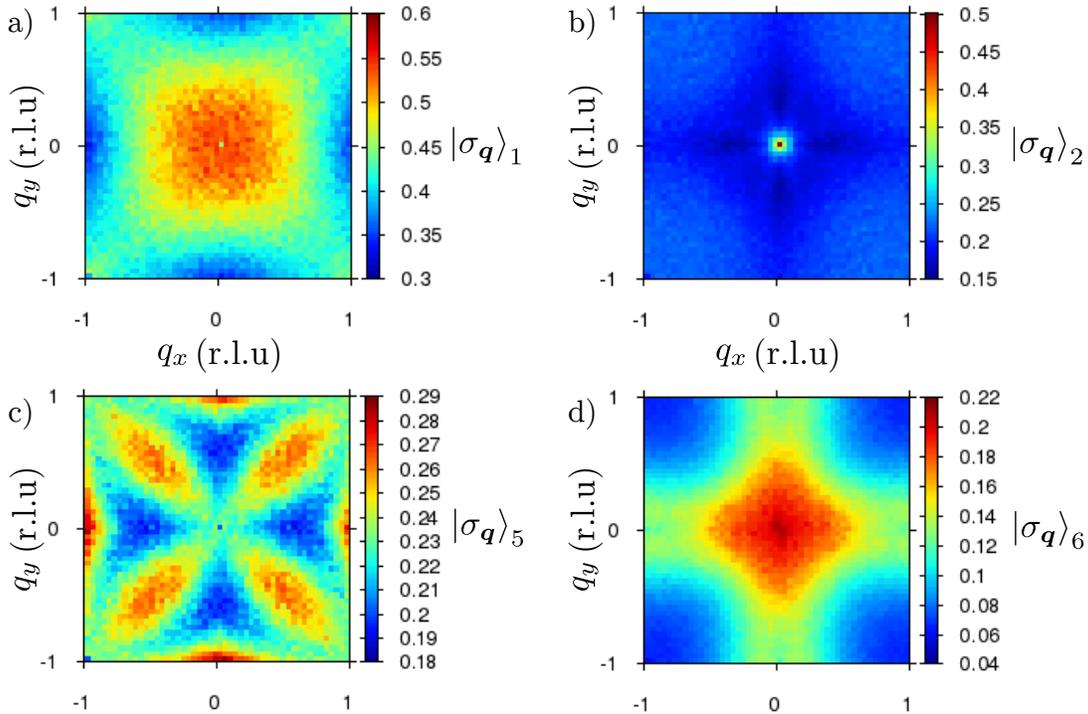


FIGURE 3.7 – Projections de 1000 configurations *ice rule* d'un réseau de 14406 spins sur les bandes 1 (b), 2 (c), 5 (d) et 6 (e). Sur ces bandes, les projections moyennes sont : $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle = 0.44$, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2 \rangle = 0.2$, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_5 \rangle = 0.23$, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_6 \rangle = 0.12$

du réseau carré standard. La bande 1 ne contribue qu'à 44% de l'énergie totale alors que tous les états vérifient la règle de la glace. L'énergie totale d'une configuration résulte donc de la contribution des quatre bandes du spectre. Autrement dit, aucun des vecteurs de la base pour laquelle \mathcal{J} est diagonale ne traduit la contrainte *ice rule*. Il n'est donc pas possible de démontrer par analyse spectrale qu'une physique de glace dégénérée apparaît dans le réseau carré à absorbeurs.

Projection des états *ice rule* pour $J_3 = 2.45$ Le graphe en figure 3.5b montre que la bande est plate pour cette valeur de J_3 . D'après le calcul de $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_i \rangle$, les configurations *ice rule* se projettent encore sur les bandes 1, 2, 5 et 6 du spectre : $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_1 \rangle = 0.45$, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_2 \rangle = 0.19$, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_5 \rangle = 0.21$, $\langle |\sigma_{\mathbf{q}}\rangle_6 \rangle = 0.14$. Remarquons que les bandes 3 et 4 sont toujours à énergie nulle et ne contribuent pas. La bande plate à $J_3 = 2.45$ ne traduit en rien une dégénérescence des états *ice rule*. La bande plate observée n'a peut-être pas de sens physique.

Nous pouvons conclure que l'analyse de l'énergie dans l'espace réciproque peut dans certains cas induire en erreur. Le cas du réseau à absorbeurs illustre bien les limites de cette

2. 4802 de ces spins appartiennent au SRA et 9604 au SRB.

approche : nous avons obtenu une bande dispersive pour un modèle dégénéré ($J_3 = J_3^{ice}$) et une bande plate pour un modèle avec un état fondamental défini ($J_3 = 2.45$). Nous devons donc employer une autre méthode pour prouver que les absorbeurs rétablissent une physique de glace dans le réseau carré. Dans la section suivante, nous allons calculer l'énergie de configurations dans l'espace direct.

3.2 Étude dans l'espace direct

3.2.1 Analyse du modèle J_1, J_2, J_3 dans le réseau direct

Dans l'espace direct, l'énergie d'un réseau à aimants additionnels de N mailles s'exprime :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^N \sum_{\alpha,\beta=1}^6 J_{i\alpha,j\beta} \sigma_{i\alpha} \sigma_{j\beta} \quad (3.3)$$

Il est alors possible de calculer l'énergie d'une configuration donnée pour un triplet de couplages J_1, J_2, J_3 . Nous disposons d'un grand nombre de configurations *ice rule* pour différentes tailles de réseaux, que nous avons obtenues au chapitre précédent grâce à l'algorithme de boucles (cf. §2.4.3). Elles nous ont permis de calculer le facteur de structure attendu dans le modèle de Lieb. Si les absorbeurs rétablissent la dégénérescence des états *ice rule*, alors il doit exister une valeur J_3^{ice} pour laquelle toutes ces configurations ont la même énergie.

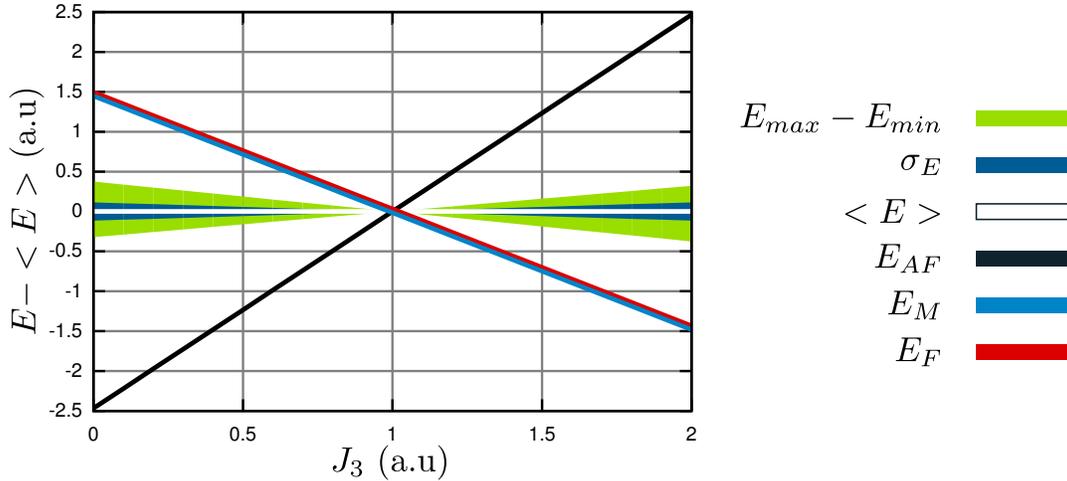


FIGURE 3.8 – Graphe montrant la dispersion des états *ice rule* en fonction de J_3 , pour $J_1 = 2$ et $J_2 = 1$. Elle a été calculée pour 1000 configurations *ice rule* aléatoires, composés de 722 spins SRA et de 1444 absorbeurs. Leur énergie moyenne $\langle E \rangle$ est placée à l'origine des énergies en ordonnée. L'enveloppe bleue σ_E correspond à l'écart type des énergies obtenues sur les 1000 réseaux. L'enveloppe verte $E_{max} - E_{min}$ représente les énergies minimales et maximales atteintes. Les lignes noire, bleue et rouge correspondent respectivement aux énergies des états AF, M et S.

Le graphe en figure 3.8 représente les énergies obtenues en fonction de J_3 , pour $J_1 = 2$ et $J_2 = 1$. Tous les états convergent vers la même énergie pour $J_3 = J_1 - J_2 = 1$, ce qui est

cohérent avec le raisonnement en introduction. Remarquons que cette méthode ne permet pas de rigoureusement montrer que le nouveau modèle est dégénéré. Nous n'avons calculé l'énergie que d'un millier de configurations, sur les 10^{56} états *ice rule* existants pour 722 aimants principaux [55]. Comme nous n'avons considéré qu'une fraction infinitésimale de ces états, il est possible que certains ne convergent pas vers la même énergie lorsque $J_3 = J_3^{ice}$. Mais dans le cas présent, le fait de ne considérer que les interactions à courte portée permet de répondre à cette question. L'énergie totale d'un réseau dépend ici uniquement des populations de vertex et de leurs énergies respectives. Par conséquent, si un réseau composé exclusivement de vertex T1 a la même énergie qu'un réseau composé de vertex T2, alors tous les états intermédiaires auront cette énergie. Les énergies des états saturé (S), antiferromagnétique (AF) et Manhattan (M) apparaissent en figure 3.8. Pour $J_3 = 1$, ces états convergent vers la même énergie. Nous pouvons donc affirmer avec certitude que tous les états *ice rule* sont dégénérés.

Conclusion de l'analyse J_1, J_2, J_3 Notre analyse montre que dans un modèle d'interactions à courte portée, les absorbeurs permettent de rétablir une physique de liquide de spin lorsque $J_3 = J_3^{ice}$. La dégénérescence des états *ice rule* est levée si le paramètre J_3 s'écarte de J_3^{ice} . L'état fondamental est de type AF si $J_3 < J_3^{ice}$, ou F si $J_3 > J_3^{ice}$. L'ajout d'absorbeurs est donc un moyen efficace de contrôler le modèle de spins. Le modèle considéré jusqu'ici se cantonne aux interactions premiers voisins. Mais la nature dipolaire des interactions dans un réseau réel soulève la question de l'influence des termes à plus longue portée. Cette question fait l'objet de la partie suivante.

3.2.2 Interactions à longue portée

Les aimants principaux et additionnels portent respectivement un moment magnétique μ_1 et μ_2 . Nous tenons compte de toutes les interactions dipôle-dipôle pouvant s'exercer entre les éléments du réseau. Elles s'expriment :

$$J_{ij} = \frac{1}{r_{ij}^3} \left(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j - \frac{3}{r_{ij}^2} (\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \mathbf{r}_{ij}) \right)$$

Nous limitons la portée de l'interaction à un certain rayon de coupure, que nous notons r_c . Le paramètre permettant d'ajuster le modèle n'est maintenant plus J_3 mais μ_2 ; expérimentalement, il se contrôle grâce aux dimensions des aimants additionnels. Nous allons calculer l'énergie de nos configurations *ice rule* grâce à l'expression (2.16), pour différentes valeurs de μ_2 et r_c . Les résultats sont présentés en figure 3.9.

Le graphe en figure 3.9a représente l'énergie des états *ice rule* en fonction de μ_2 , pour une portée $r_c = 15$ (en unité de paramètre de maille). Par rapport au cas J_1, J_2, J_3 (cf. fig. 3.8), une différence très importante apparaît : il n'existe pas de valeur de μ_2 pour laquelle toutes les énergies convergent. Pourtant, les courbes montrent que μ_2 entraîne bien une diminution de l'énergie de l'état F et une augmentation de l'énergie de l'état AF. La dispersion des énergies atteint un minimum qui est non-nul. Dans la zone du graphe 3.9a surlignée en rouge, la dispersion est due à la différence d'énergie entre les états F et M. Avec des interactions à courte portée, ces deux états ont la même énergie (ils appartiennent à la phase F dégénérée). Le couplage latéral entre les aimants est à l'origine de cette levée de dégénérescence.

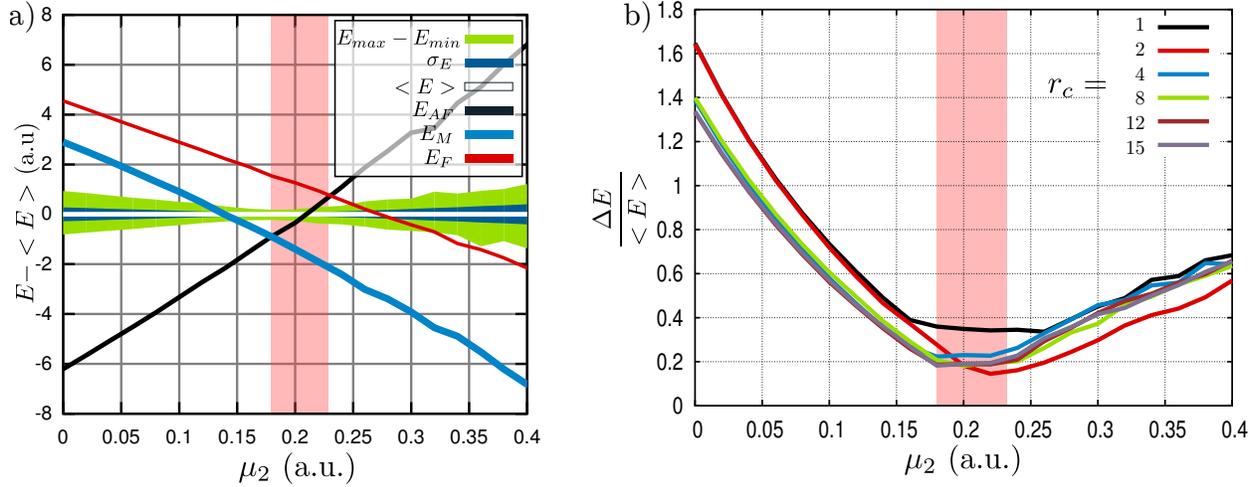


FIGURE 3.9 – a) Graphe équivalent à la figure 3.8, en considérant cette fois les interactions dipolaires jusqu’à $r_c = 15$. Les valeurs de μ_2 sont rapportées à μ_1 . b) Graphe montrant la différence entre l’énergie maximale et minimale des états étudiés en fonction de μ_2 . Le tracé est répété pour plusieurs portées d’interaction. L’énergie est normalisée par rapport à l’énergie moyenne des configurations.

Intéressons nous maintenant à l’effet de la portée des l’interactions. La figure 3.9b représente l’écart $\frac{\Delta E}{\langle E \rangle}$ entre les états de plus haute et plus basse énergie pour des rayons r_c allant de 1 à 15. La dispersion est maximale pour $r_c = 1$, minimale pour $r_c = 2$. Au delà de $r_c = 3$, l’augmentation de la portée des interactions dipolaires n’a plus d’effet significatif.

Nous pouvons conclure qu’il est impossible de ramener tous les états *ice rule* à la même énergie dès lors que le couplage latéral entre aimants est pris en compte. Les absorbeurs conservent néanmoins une certaine efficacité : la dispersion de la bande peut être divisé jusqu’à sept par rapport au modèle initial (cf. fig. 3.9b). Ce minimum est atteint aux alentours de $\mu_2 = 0.2\mu_1$. Du point de vue de la réalisation expérimentale, un tel rapport de volume entre les nanoaimants est tout à fait réalisable. Dans la partie suivante, nous allons modéliser les nanoaimants de façon plus réaliste.

3.2.3 Absorbeurs dans un modèle de charges magnétiques

Nous modélisons maintenant les nanoaimants par des paires de charges magnétiques. Cela nécessite l’ajout d’un paramètre L , correspondant à la distance entre les charges magnétiques des nanoaimants. Nous avons vu au §2.3.2 que ces charges Q s’expriment :

$$Q_i = \pm \frac{\mu_i}{L_i}$$

où μ_i représente le moment magnétique de l’aimant i et L_i sa longueur. Voyons maintenant comment modéliser les absorbeurs avec ces charges magnétiques.

Modélisation des absorbeurs

Expérimentalement, μ_2 est déterminé par le volume V_a des absorbeurs et leur aimantation à saturation M_s . Dans les expériences, nous avons choisi de fixer la largeur w_a des absorbeurs à la moitié de celle des aimants principaux w . L'épaisseur e de l'ensemble des aimants est déterminée par celle de la couche magnétique les constituant. L'aimantation à saturation M_s n'est, elle, pas contrôlable pour chaque spin puisqu'elle est déterminée par le matériau. Il ne reste que la longueur L_a des absorbeurs pour contrôler leur moment μ_2 . Exprimons d'abord μ_2 en fonction de L_a et de $\mu_1 = LweM_s$ (moment magnétique des aimants principaux) :

$$\mu_2 = V_a M_s = L_a w_a e M_s = \frac{L_a}{L} L \frac{w}{2} e M_s = \frac{L_a}{2L} \mu_1$$

Les absorbeurs sont donc représentés par des charges magnétiques Q_a telles que :

$$Q_a = \frac{\mu_2}{L_a} = \frac{1}{2L} \mu_1$$

Comme L et μ_1 sont des grandeurs fixes, il apparaît que les charges représentant les absorbeurs sont constantes quelque soit L_a et μ_a ³. Voyons maintenant l'effet de ces nouvelles interactions sur notre système.

Effet sur la dispersion des états

Nous calculons la dispersion des états de basse énergie de manière identique à celle employée au §3.2.2. Les interactions considérées sont maintenant de type coulombienne (donc à longue portée). La figure 3.10a montre que la dispersion calculée en fonction de μ_2 est semblable à celle obtenue dans le modèle de dipôles ponctuels (cf. fig. 3.9a). Les variations sont moins linéaires, mais la hiérarchie des états reste la même.

La dispersion rapportée à l'énergie moyenne est représenté en figure 3.10b pour différents rayons r_c . La portée de l'interaction semble critique lors du passage de $r_c = 1$ à $r_c = 2$. Pour $r_c = 1$, le minimum de la dispersion n'est pas atteint dans la plage de valeurs de μ_2 explorée. Il n'est pas pertinent d'étendre encore cette plage car, dans nos conditions de simulations, les charges des absorbeurs entrent en contact à $\mu_2 = 0.54$. À partir de $r_c = 2$, la dispersion possède un minimum en $\mu_2 = 0.37$. À ce point, l'amplitude reste déterminée par la différence d'énergie entre les état AF et F. Pour des portées d'interaction supérieures à $r_c = 2$, le graphe 3.10b ne montre pas de changement significatifs.

L'amplitude minimale obtenue est plus faible dans le cas du modèle de charges par rapport au modèle de dipôles ponctuels : 0.08 contre 0.2 après normalisation par rapport à l'énergie moyenne. L'extension spatiale des nanoaimants semble donc améliorer la capacité des absorbeurs à restaurer une physique de liquide de spin dans le réseau carré. Par contre, le moment μ_2 optimal est presque deux fois plus grand dans le modèle de charges ($\mu_2 = 0.37\mu_1$). Cela correspond à une longueur d'absorbeurs de $L_a = 0.74L$. Un L_a aussi élevé soulève un problème pratique d'encombrement dans le réseau.

3. Ce constat peut sembler surprenant mais se comprend aisément. Les charges varient de façon inversement proportionnelle à la longueur du dipôle mais proportionnellement à son moment magnétique. Comme la largeur et l'épaisseur de nos absorbeurs sont fixées, ces deux effets se compensent.

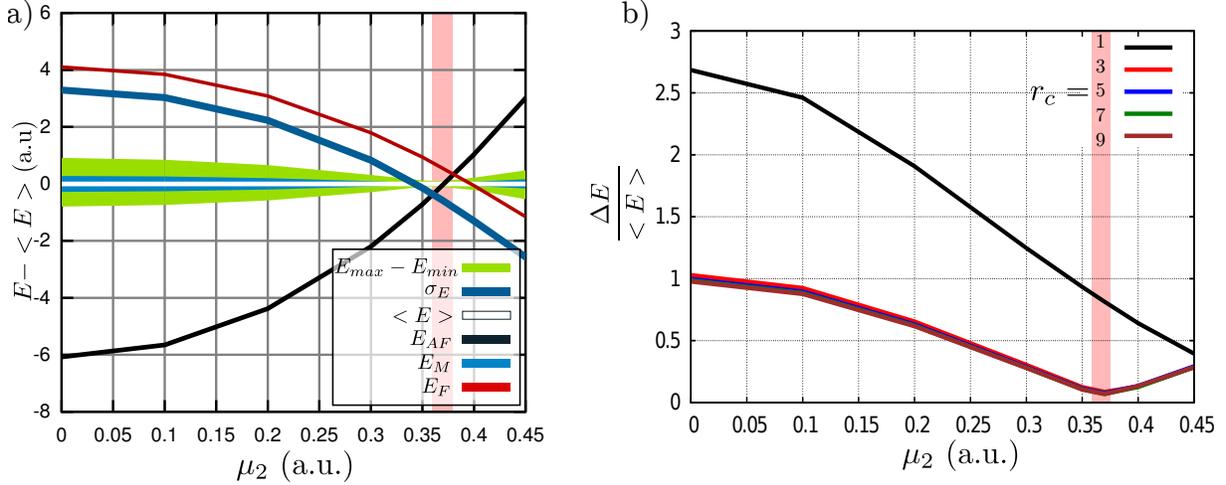


FIGURE 3.10 – a) Graphe équivalent à la figure 3.8 en considérant des interactions entre dipôles de charges jusqu’à $r_c = 10$. b) Graphe montrant la différence entre l’énergie maximale et minimale des états étudiés en fonction de μ_2 . Le tracé est répété pour plusieurs portées r_c . L’énergie est normalisée par rapport à l’énergie moyenne des configurations.

Conclusion de l’étude théorique

Nous avons tenté d’étudier l’effet des absorbeurs par analyse spectrale du hamiltonien. Cependant, ce modèle à six spins n’est pas « spectralement pur » et ses états *ice rule* se décomposent sur plusieurs bandes. Cette méthode ne peut donc pas être employée pour montrer que les absorbeurs rétablissent une physique de glace dans le réseau carré.

Nous nous sommes alors tournés vers une autre approche consistant à calculer l’énergie de configurations de basse énergie dans l’espace direct, pour des réseaux de taille finie. Dans un modèle simple de couplages J_1, J_2, J_3 , nous avons montré que les absorbeurs rétablissent parfaitement la dégénérescence des états *ice rule* pour $J_3^{ice} = J_1 - J_2$. Avec des interactions dipolaires à longue portée, qui sont plus représentatives des réseaux de nanoaimants, la situation est différente. L’écart d’énergie entre configurations *ice rule* atteint toujours un minimum non nul. Pour des dipôles ponctuels, la dispersion minimale est obtenue à $\mu_2 = 0.2\mu_1$. En modélisant les aimants par des charges magnétiques, avec $L = 0.6$ ⁴, la dispersion est minimale pour $\mu_2 = 0.37\mu_1$. Nous allons maintenant étudier les aspects micromagnétiques du problème à l’échelle d’un seul vertex.

3.3 Étude micromagnétique d’un vertex isolé

Nous avons montré que les absorbeurs peuvent amener un réseau d’aimants dans la variété de basse énergie du modèle de Lieb. Avant d’entamer une étude expérimentale, nous

4. Cette longueur est obtenue à partir des réseaux expérimentaux. Nous avons entre autres employé des aimants de 500 nm ayant des gaps de 75 nm. Le paramètre de maille est donc de 650 nm. Les charges sont distantes de 400 nm si elles sont placées au centre des cercles qui forment les extrémités des aimants. Une fois rapportée au paramètre de maille, $L = \frac{400}{650} = 0.615$.

devons explorer les aspects micromagnétiques du problème. Nous pourrions ainsi identifier les paramètres géométriques les plus pertinents pour une réalisation expérimentale.

Le principe de la glace dopée se base sur l'hypothèse de passivité, selon laquelle SRB s'adapte à SRA. Cette assertion est réalisée si les absorbeurs portent un moment magnétique faible et ont une petite barrière d'énergie de retournement. En d'autres termes, le volume d'un absorbeur doit être faible devant celui d'un aimant principal. De cette remarque émerge une nouvelle contrainte, inhérente aux techniques de microfabrication. Les dimensions des absorbeurs doivent être compatibles avec la résolution de l'appareil de lithographie électronique que nous employons. Par conséquent, nous ne pourrions pas créer des absorbeurs ayant une largeur en deçà de quelques dizaines de nanomètres. Pour la même raison, il ne serait pas raisonnable d'envisager des séparations entre aimants inférieures à quelques dizaines de nanomètres. Il est tentant de s'orienter vers des aimants de plus grandes tailles pour s'affranchir de cette limitation. Mais le besoin de conserver le caractère monodomaine de nos nanoaimants (cf. §2.2.4) pose une borne supérieure sur leurs dimensions.

3.3.1 Contrôle des niveaux d'énergie

Le vertex de glace dopée est composé de quatre aimants principaux ainsi que de quatre absorbeurs. Il faut définir la longueur, la largeur, l'épaisseur et le gap des aimants SRA et SRB, ce qui fait huit paramètres géométriques. Les notations choisies pour les paramètres géométriques sont explicitées en figure 3.11a. Commençons par réduire le nombre de variables libres. Tous les nanoaimants ont la même épaisseur e . Nous fixons la largeur des absorbeurs à la moitié de la largeur des aimants principaux : $L_a = 0.5L$. Nous fixons à 5 le rapport d'aspect des aimants principaux : $L = 5w$.

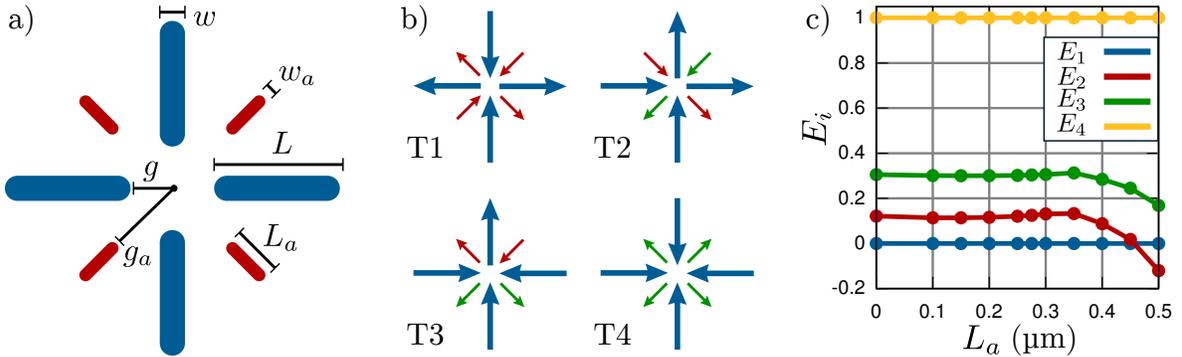


FIGURE 3.11 – a) Schéma montrant les notations adoptées pour décrire la géométrie d'un vertex composé de quatre aimants principaux et de quatre absorbeurs. b) Conditions initiales d'aimantation injectées dans les simulations. Elles définissent l'état des absorbeurs et des aimants principaux pour chaque type de vertex. Le sens des absorbeurs verts est déterminé par l'hypothèse de passivité. Celui des absorbeurs rouges est indéterminé dans un modèle J_1, J_2, J_3 . Il est choisi de manière à minimiser l'énergie de l'ensemble de la configuration dans un modèle dipolaire. c) Effet de la longueur des absorbeurs sur les niveaux d'énergie du vertex. $L = 1 \mu\text{m}$, $w=200 \text{ nm}$, $w_a=100 \text{ nm}$, $g=150 \text{ nm}$, $g_a = \frac{1}{2}(\sqrt{2}a - L_a)$, $e=3 \text{ nm}$.

Dans cette partie, nous allons simuler les quatre types de vertex pour extraire leur énergie en fonction d'un paramètre géométrique choisi. Nous devons choisir une configuration

à simuler systématiquement pour chaque type de vertex. Celle des aimants principaux est déterminée par le type de vertex (1, 2, 3 ou 4). Se pose maintenant la question de l'état des absorbeurs à simuler. L'état des absorbeurs en vert sur la figure 3.11b est imposé par l'hypothèse de passivité. Les absorbeurs en rouge sont indéterminés. Nous avons choisi de les orienter de manière à minimiser l'énergie dipolaire de la configuration totale.

Preuve de principe La figure 3.11c montre un exemple pour lequel les aimants additionnels offrent un fort contrôle des niveaux d'énergie. Pour $L_a < 350$ nm, les niveaux obtenus ne varient pas significativement par rapport à ceux du modèle de glace conventionnelle ($L_a=0$ nm). À partir de $L_a > 350$ nm, les énergies normalisées E_2 et E_3 diminuent. Pour $L_a > 450$ nm, les niveaux 1 et 2 s'inversent ce qui implique que l'état fondamental du réseau change de AF vers F. Cette simulation donne une première idée des tailles d'absorbeurs à employer expérimentalement sur un réseau réel. Les configurations micromagnétiques correspondantes, pour les quatre types de vertex, sont représentées en figure 3.15b. Nous allons maintenant étudier l'influence des autres paramètres géométriques.

Rôle du gap des absorbeurs g_a Dans le modèle théorique, nous avons toujours considéré des absorbeurs positionnés de façon régulière sur les bissectrices. Mais il est intéressant de les rapprocher du centre du vertex car cela intensifie le couplage J_3 . Avec les conventions en figure 3.11a, il faut diminuer g_a pour rapprocher les absorbeurs du centre. La figure 3.12a montre l'effet d'une variation de g_a dans une situation où tous les autres paramètres sont gardés constants. D'après cette simulation, E_2 est minimale lorsque $g_a = 180$ nm. Cette valeur est proche du gap entre les aimants principaux ($g = 150$ nm). C'est donc lorsque $g_a \sim g$ que l'effet des absorbeurs est maximal. Nous maintiendrons le gap g_a au plus près de

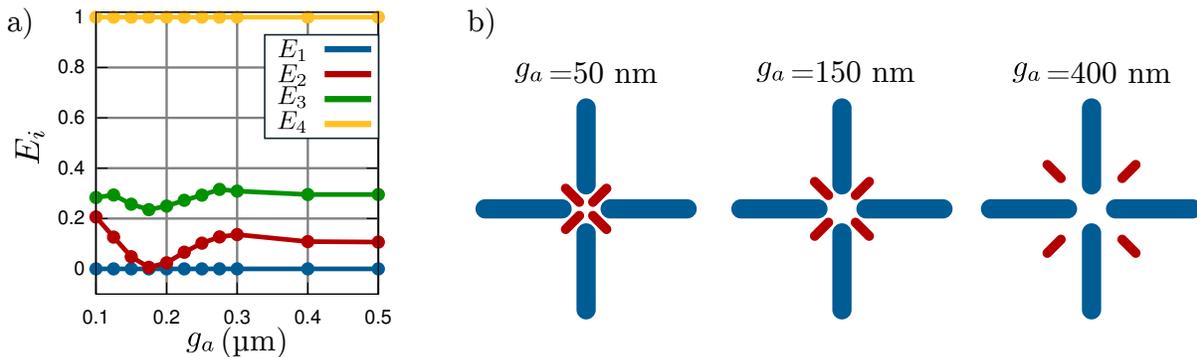


FIGURE 3.12 – a) Graphe montrant l'influence du gap des absorbeurs g sur les quatre niveaux d'énergie des vertex. L'effet est maximal lorsque $g_a = 180$ nm. Conditions : $L = 1 \mu\text{m}$, $w=200$ nm, $w_a=100$ nm, $g=150$ nm, $L_a = 300$ nm, $e=3$ nm. b) Schémas de vertex pour différentes valeurs de g_a , illustrant le paramètre variable dans la simulation de gauche.

g , si toutefois l'espace disponible le permet. Sinon, les absorbeurs seront placés à la plus faible distance des aimants principaux réalisable expérimentalement (environ 50 nm). Rappelons que cette valeur est déterminée par la résolution de nos techniques de fabrication. L'image de microscopie électronique à balayage (MEB) en figure 3.15f montre que les aimants fusionnent s'ils sont positionnés trop proches les un des autres.

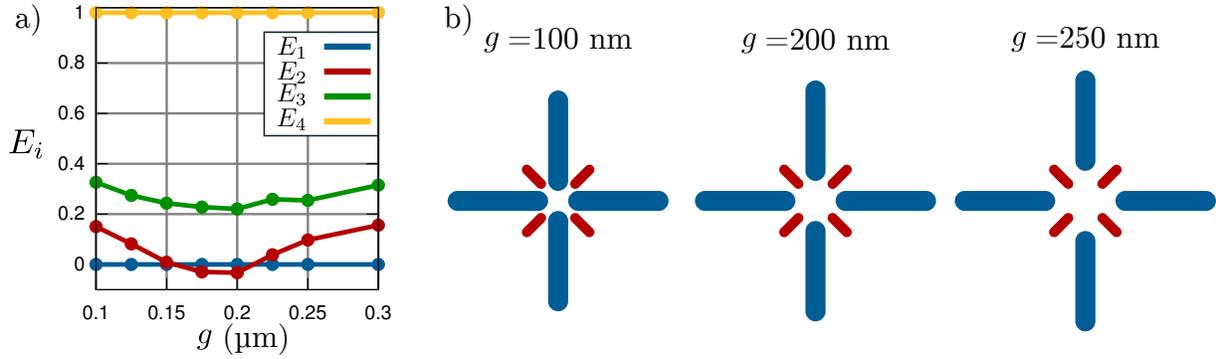


FIGURE 3.13 – a) Graphe montrant l’influence du gap g entre aimants principaux sur les quatre niveaux d’énergie principaux du vertex. E_2 atteint un minimum lorsque $g \approx g_a$, signe que l’effet des absorbeurs est maximal. Conditions : $L = 1 \mu\text{m}$, $w=200$ nm, $w_a=100$ nm, $g_a=200$ nm, $L_a = 300$ nm, $e=3$ nm. b) Schémas de vertex pour différentes valeurs de g , destinés à illustrer comment évolue le vertex dans les simulations.

Effet du gap des aimants principaux g Intéressons-nous au rôle joué par le gap entre aimants principaux. Tous les autres paramètres sont maintenus constants. Si $g < g_a$, les absorbeurs ne pénètrent pas à l’intérieur du vertex. Cette situation est représenté en figure 3.13b pour $g = 100$ nm. Les absorbeurs ne modifient alors pas significativement les niveaux d’énergie. Si au contraire $g > g_a$, les interactions entre absorbeurs et aimants principaux deviennent trop faibles et les absorbeurs perdent leur efficacité (situation $g = 250$ nm en figure 3.13b). D’après les niveaux en figure 3.13a, la modulation est maximale lorsque $g \approx g_a$. Cette observation est cohérente avec la conclusion du paragraphe précédent. Le gap g doit donc être suffisamment élevé pour que les absorbeurs puissent pénétrer dans le vertex. Ces résultats révèlent l’inconvénient majeur des absorbeurs : leur efficacité nécessite des gaps élevés entre aimants principaux. Par conséquent, ils limitent l’intensité des interactions J_1 et J_2 réalisables au sein de nos réseaux. Nous pouvons donc nous attendre à des difficultés pour atteindre expérimentalement les états de basse énergie.

3.3.2 Effet des autres paramètres libres

Plaçons-nous maintenant dans une géométrie pour laquelle $E_1 \sim E_2$. Voyons à quel point cette condition est robuste face aux variations des autres paramètres.

Taille du vertex Les niveaux présentés en figure 3.14a ne montrent pas de variation majeure après application d’un facteur d’échelle au vertex (à épaisseur constante). Nous possédons donc une certaine liberté au niveau du choix des dimensions des aimants. Il est certainement possible d’extrapoler les simulations faites pour une taille donnée à d’autres dimensions d’aimants ; à condition bien sûr de conserver les relations de proportionnalité.

Épaisseur des nanoaimants D’après les niveaux d’énergie représentés en figure 3.14b, l’épaisseur de la couche magnétique tend à diminuer l’effet des absorbeurs. Ce phénomène est attribuable à une relaxation micromagnétique plus importante dans les nanoaimants épais. Comme nous avons effectué nos expériences sur des couches d’une épaisseur d’environ 3 nm,

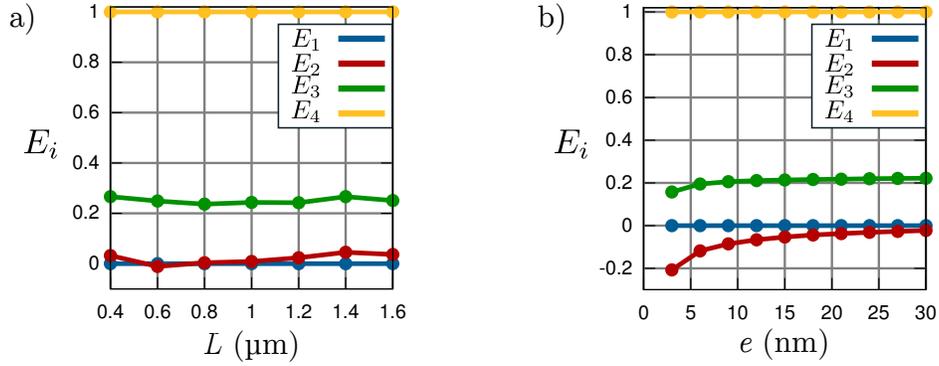


FIGURE 3.14 – a) Influence des dimensions du vertex sur les niveaux d’énergie. Tous les paramètres varient de façon proportionnelle, à l’exception de l’épaisseur qui reste constante. Il s’agit d’homothéties dans le plan horizontal. Conditions : $w = 0.2L$, $g = 0.15L$, $w_a = 0.1L$, $g_a = 0.2L$, $L_a = 0.3L$, $e=3$ nm. b) Influence de e sur les niveaux d’énergie. Augmenter l’épaisseur de la couche magnétique diminue l’efficacité des absorbeurs. Conditions : $L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $g = 75$ nm, $w_a = 50$ nm, $g_a=100$ nm, $L_a = 250$ nm.

nous nous contenterons de simuler les vertex à cette épaisseur. L’étude serait à refaire pour des aimants significativement plus épais. La longueur L_a nécessaire pour obtenir $E_1 = E_2$ serait alors certainement plus élevée.

Rapport d’aspect Jusque ici, nous nous sommes cantonnés à des rapports d’aspect $\frac{L}{w}$ de 5 pour les aimants principaux. Cette valeur est significativement plus élevée que dans la littérature. Mais insérer le SRB dans le SRA nécessite de l’espace. La figure 3.15a illustre le problème que pose une diminution du rapport d’aspect $\frac{L}{w}$; cela limite l’espace disponible pour les absorbeurs. Nous avons remarqué dans la section théorique que les interactions à longue portée, notamment entre absorbeurs, sont nuisibles pour la réalisation du modèle de Lieb. Réduire $\frac{L}{w}$ a pour conséquence de rapprocher les absorbeurs appartenant à différents vertex. C’est pourquoi nous conserverons dans ce chapitre un rapport $\frac{L}{w}$ de 5, valeur compatible avec l’insertion du SRB.

3.3.3 Conclusion des simulations micromagnétiques

Nous avons effectué un premier pas vers la réalisation expérimentale de la glace carrée dopée en identifiant les contraintes inhérentes à cette nouvelle topologie. Pour maximiser leur efficacité, les absorbeurs doivent être placés tels que $g_a = g$. Mais le gap des aimants principaux doit être suffisamment large pour pouvoir satisfaire cette condition. Cela entraînera nécessairement une diminution des couplages J_1 et J_2 . Il y a donc un compromis à faire entre intensité des interactions et liberté de modulation des niveaux d’énergie.

Dans cette section, nous avons simulé des ensembles isolés de quatre aimants. Les interactions à longue portée entre vertex voisins ont donc été implicitement ignorées. Obtenir $E_1 = E_2$ sur ces simulations n’implique donc pas qu’un réseau avec la même géométrie ait un état fondamental parfaitement dégénéré. Nous avons d’ailleurs montré aux §3.2.2 et 3.2.3 que cette situation est en toute rigueur impossible à obtenir. Il aurait été intéressant de

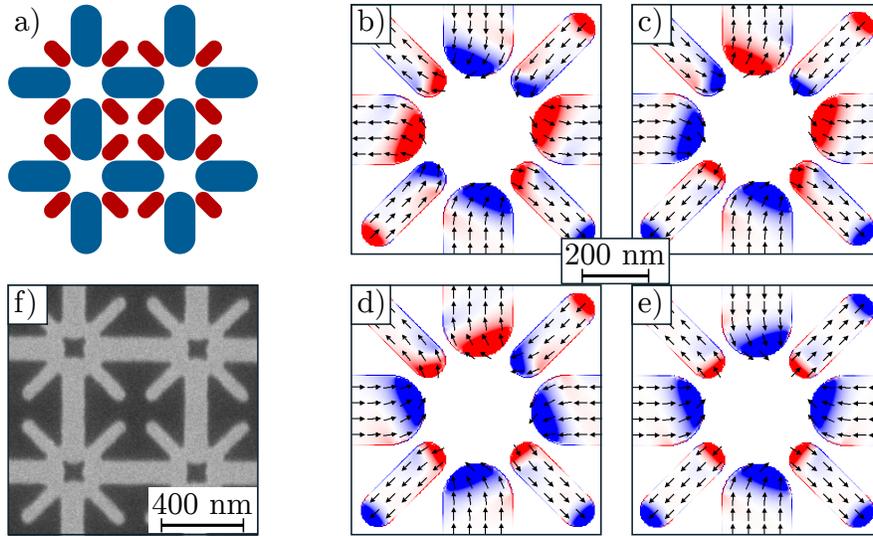


FIGURE 3.15 – a) Illustration du problème d’encombrement posé par la diminution du rapport d’aspect des aimants principaux. b), c), d), e) Configurations magnétiques simulées respectivement pour les vertex T1, T2, T3, T4. L’aimantation des aimants principaux forme une structure chirale au centre des vertex T1, T2 et T3. f) Image MEB d’un réseau sur lequel les deux sous-réseaux ont fusionné en raison d’une trop faible séparation entre absorbeurs et aimants principaux.

calculer la dispersion des énergies directement à partir de couplages issus des simulations micromagnétiques. Mais une telle étude serait coûteuse en termes de ressources de calcul.

Les dimensions des aimants qui composent les réseaux ne sont pas critiques. La nécessité de préserver leur caractère monodomaine pose toutefois une limite supérieure. La limite inférieure des dimensions d’aimants est, elle, déterminée par la résolution des techniques de fabrication. Dans la partie expérimentale qui suit, nous présenterons les résultats obtenus sur une seule taille d’aimants principaux, $L_a = 500$ nm.

3.4 Étude expérimentale de la glace carrée dopée

La fabrication de réseaux à aimants additionnels ne pose pas de difficulté particulière avec le protocole classique lithographie/dépôt/*lift-off* expliqué en annexe B. Des corrections de doses électroniques sont cependant à prévoir lors de la lithographie en raison de l’augmentation de la densité d’aimants engendrée par les absorbeurs.

Se pose maintenant la question de savoir avec quel type d’excitation nous souhaitons amener les réseaux dans leur variété de basse énergie. À première vue, la désaimantation en champ n’est pas adaptée à l’étude de la glace carrée dopée. L’hypothèse de passivité implique que les absorbeurs s’adaptent selon l’état des aimants principaux avoisinants. Or le champ coercitif d’un objet est d’autant plus élevé que ses dimensions sont faibles. Au cours de la désaimantation, il se pourrait que les absorbeurs se stabilisent avant les aimants principaux. Lorsque ces derniers cesseront de fluctuer, ils s’adapteront aux absorbeurs alors que le phénomène inverse est recherché. Sur la base de ce raisonnement, la désaimantation

ne semble pas adaptée.

Nous avons montré au chapitre 1 comment l’emploi de couches minces peut permettre d’atteindre un régime semblable à du superparamagnétisme (cf. §1.3.4). Pour la réalisation expérimentale de la glace dopée, nous avons fabriqué des échantillons de permalloy mince d’épaisseurs comprises entre 2 et 3 nm. De si fins aimants sont difficilement observables en MFM, c’est pourquoi nous avons employé l’imagerie XMCD-PEEM pour nos expériences. Les données présentées ici ont été obtenues sur la ligne de lumière *nanospectoscopy* du synchrotron ELETTRA. Quelques explications à propos de cette technique d’imagerie sont présentées en annexe D.

3.4.1 Détails expérimentaux

Géométries employées Afin de diminuer le nombre de paramètres géométriques variables, nous avons choisi de fixer les tailles d’aimants à $L=500$ nm et $w=100$ nm. Nous nous sommes focalisés sur deux tailles de gaps, $g=50$ nm (désigné par SG, *small gap*) et $g=75$ nm (désigné par LG, *large gap*). La largeur des absorbeurs est fixée à $w_a=50$ nm et leur centre est positionné de manière à former un sous-réseau régulier (comme sur la figure 3.1a). Le changement d’état fondamental se fait en jouant sur la longueur des absorbeurs L_a .

Nous avons fabriqué des réseaux SG et LG pour quatre valeurs de L_a . Pour simplifier la description des expériences, les réseaux seront identifiés par le préfixe SG ou LG suivi de la valeur de L_a en nanomètres. Les réseaux SG0 et LG0 désignent donc les réseaux sans absorbeurs. Nous avons étudié les réseaux SG0, SG150, SG200, SG250, LG0, LG135, LG185 et LG235. Les niveaux d’énergie micromagnétiques des vertex correspondant à ces huit réseaux sont représentés en figure 3.16. Pour la géométrie SG, la hiérarchie des niveaux reste inchangée. Par contre, la géométrie LG présente une inversion des niveaux 1 et 2 autour de $L_a = 200$ nm. Il faut donc nous attendre à observer des différences entre ces géométries.

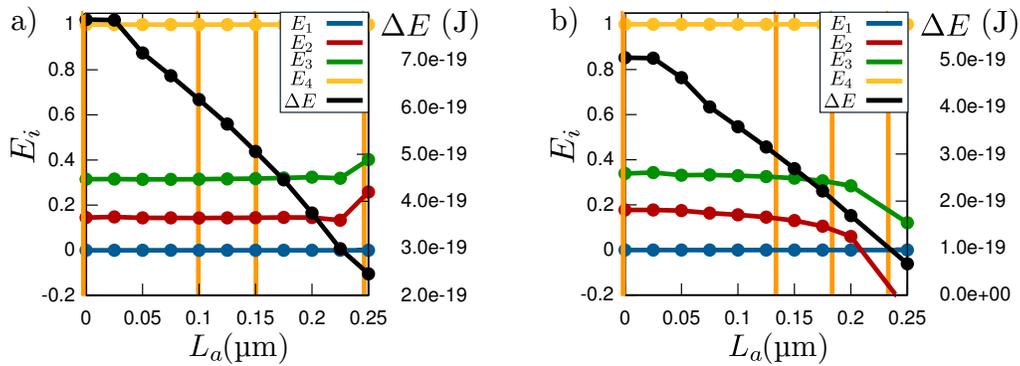


FIGURE 3.16 – Simulations micromagnétiques des niveaux d’énergie des vertex en fonction de L_a , pour la géométrie a) SG et b) LG. L’épaisseur de permalloy est fixée à 3 nm. Les barres verticales oranges représentent les valeurs de L_a réalisées expérimentalement.

Chaque réseau est composé de 840 aimants principaux et 1600 absorbeurs. Pour augmenter la statistique de nos résultats, nous avons mesuré plusieurs réalisations de chaque réseau. Les régions observées sur l’échantillon sont toujours les mêmes.

Échantillons thermiquement actifs Comme nous l'avons vu au chapitre 1, la température T_a d'activation des réseaux est très sensible à l'épaisseur e des nanoaimants. L'épaisseur de permalloy permettant d'obtenir des fluctuations thermiques au dessus de T_{room} est de l'ordre de 3 nm [24]. Nous ne connaissons pas cette valeur de façon exacte. C'est pourquoi nous avons réalisé une série d'échantillons pour des épaisseurs allant de 2 à 3.3 nm. Si e est trop faible, l'imagerie est impossible à température ambiante en raison des fluctuations spontanées des nanoaimants. Si e est trop élevée, il ne sera pas possible d'atteindre une température suffisante pour exciter le réseau. C'est finalement au moment de l'imagerie que nous avons déterminé quel échantillon avait l'épaisseur adaptée. Notre choix s'est porté sur les réseaux d'épaisseur $e = 2.8$ nm. Des images MEB des huit réseaux étudiés sont présentées en figure 3.17. La lithographie des réseaux LG semble de bonne qualité mais deux réseaux SG présentent des défauts majeurs. Dans le cas de SG250, les absorbeurs ont fusionné avec les aimants principaux car la distance les séparant est trop faible. Cet effet est encore légèrement présent sur les réseaux SG200. Dans les simulations micromagnétiques de la section précé-

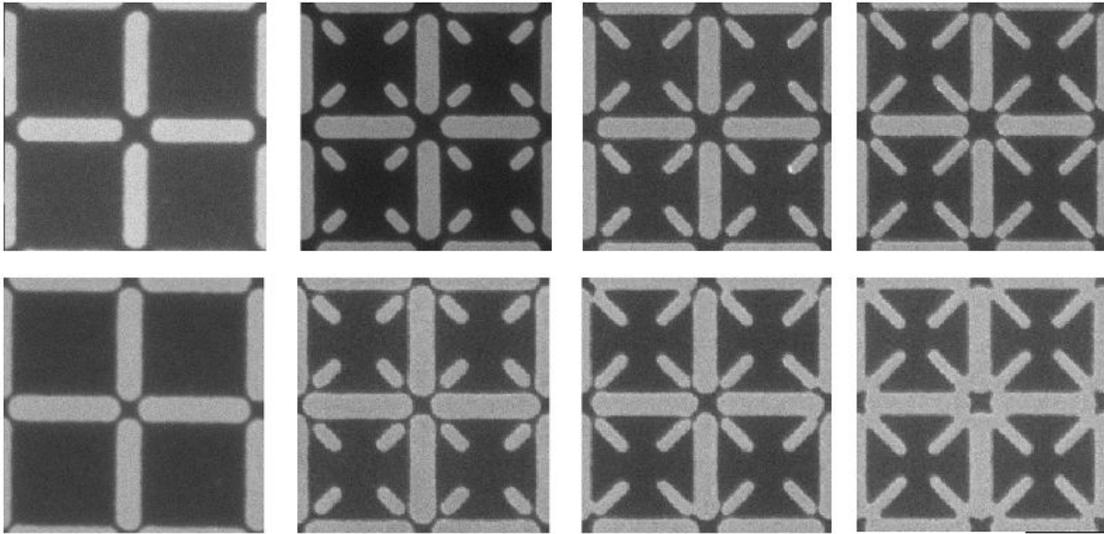


FIGURE 3.17 – Observations MEB sur les huit réseaux étudiés (LG en haut, SG en bas), faisant parfois apparaître des défauts de fabrication. Sur chaque image, les aimants principaux mesurent 500 nm de long.

dente, les discontinuités entre aimants sont bien marquées. La fusion des nanoaimants fait apparaître des parois de domaine, qui peuvent radicalement changer les niveaux d'énergie des vertex. Il faudra donc tenir compte de la présence de ces défauts lors de l'analyse des données expérimentales.

Imprécision sur la température Expérimentalement, nous avons recuit l'échantillon *in situ* dans la chambre du microscope sous ultravide. Le chauffage est assuré par un filament de tungstène parcouru par un courant I . Un thermocouple placé dans le porte-objet permet d'estimer sa température. Une vue en coupe de l'ensemble est représentée en figure 3.18. Cette méthode de mesure est problématique car rien n'assure l'efficacité et la reproductibilité du couplage entre le thermocouple et l'échantillon. Le porte-objet possède une inertie

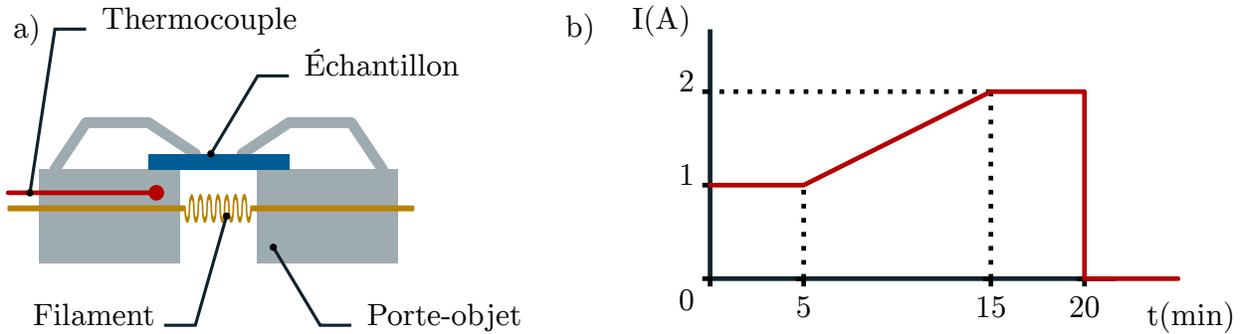


FIGURE 3.18 – a) Vue en coupe du porte-objet montrant l'échantillon et le filament de chauffage. b) Allure typique et ordres de grandeur de la rampe de chauffage employée. Le signal correspond à l'intensité du courant dans le filament.

thermique importante, à l'inverse de notre échantillon. Comme ce dernier est directement exposé au rayonnement du filament, sa température peut être beaucoup plus élevée que celle mesurée au thermocouple. Afin de garantir une certaine reproductibilité des recuits, nous avons effectué une rampe de courant $I(t)$ contrôlée, puis un palier chronométré terminé par une coupure brusque du courant (cf. fig. 3.18b). Nous avons choisi de couper brusquement le courant pour éviter de perturber les réseaux avec le champ magnétique parasite produit par le filament (qui est enroulé en solénoïde). Avec cette méthode, la vitesse de refroidissement n'est malheureusement pas contrôlable.

Nous estimons qu'avec cette procédure, l'échantillon atteint une température maximale de l'ordre de 420 K. Ce type de recuit est efficace pour amener un réseau dans ses états de basse énergie. Les réseaux SG0 et LG0 initialement saturés se trouvent systématiquement dans leur état fondamental AF après recuit. Toutes les conditions sont donc réunies pour pouvoir étudier expérimentalement l'effet des aimants additionnels.

Fluctuations Il est important de remarquer que, même à température d'imagerie ($\sim T_{room}$), quelques fluctuations thermiques subsistent dans certains réseaux. Le temps caractéristique d'imagerie est d'environ $\Delta t \sim 15$ minutes. Si un aimant change d'état pendant ce laps de temps, son contraste magnétique sur l'image finale diminue. Cette diminution est d'autant plus marquée que l'événement est proche du milieu de l'acquisition. Cela explique pourquoi sur les images expérimentales quelques aimants ne présentent pas de contraste XMCD significatif. Ces fluctuations inopinées peuvent se manifester plus directement en effectuant plusieurs images d'un même réseau. Les aimants qui ont changé d'état deviennent visibles sans ambiguïté, puisqu'ils ne sont pas dans le même état sur deux images. Nous reviendrons sur ces fluctuations dans une partie dédiée.

Si un aimant est identifié comme ayant fluctué au cours d'une acquisition, il est éliminé lors du traitement des données, laissant un trou dans le réseau. Étant donné le faible nombre d'aimants concernés par ce problème, cela n'affecte pas l'analyse statistique des réseaux.

3.4.2 Effet des absorbeurs sur les configurations magnétiques

Nous avons étudié l'échantillon pour trois recuits, effectués dans les conditions représentées en figure 3.18b. Après chaque recuit, nous avons observé l'état magnétique des huit réseaux. Comme leur comportement s'est révélé reproductible, nous avons moyenné les données recueillies après les trois cycles thermiques. Dans un premier temps, nous nous intéressons à l'effet des aimants additionnels sur les populations de vertex. Les résultats sont reportés en table 3.1 et représentés en figure 3.19.

Variation des populations de vertex Les réseaux sans aimants additionnels LG0 et SG0 se trouvent, après recuit, dans un état AF presque parfait. La fréquence des vertex T1 est en moyenne de 95% pour LG0 et de 99% pour SG0. Diminuer le gap g permet donc de mieux approcher l'état fondamental. Cette propriété a été remarquée aussi bien en régime thermique [112] qu'en désaimantation en champ [104]. Elle s'explique par le renforcement des interactions entre aimants qui est engendré par leur rapprochement.

L'ajout d'absorbeurs de petite taille (SG150, LG135) ne semble pas influencer significativement les populations observées. Ce comportement s'explique avec les simulations micromagnétiques de la figure 3.16. À ces longueurs d'absorbeurs, les niveaux d'énergie normalisés sont peu différents du cas $L_a = 0$. Toutefois, l'amplitude des spectre $\Delta E = E_4 - E_1$ devient presque deux fois plus faible. Mais cela ne semble pas influencer les populations, bien que l'on pourrait s'attendre à observer une plus grande fréquence de vertex T2 ou T3.

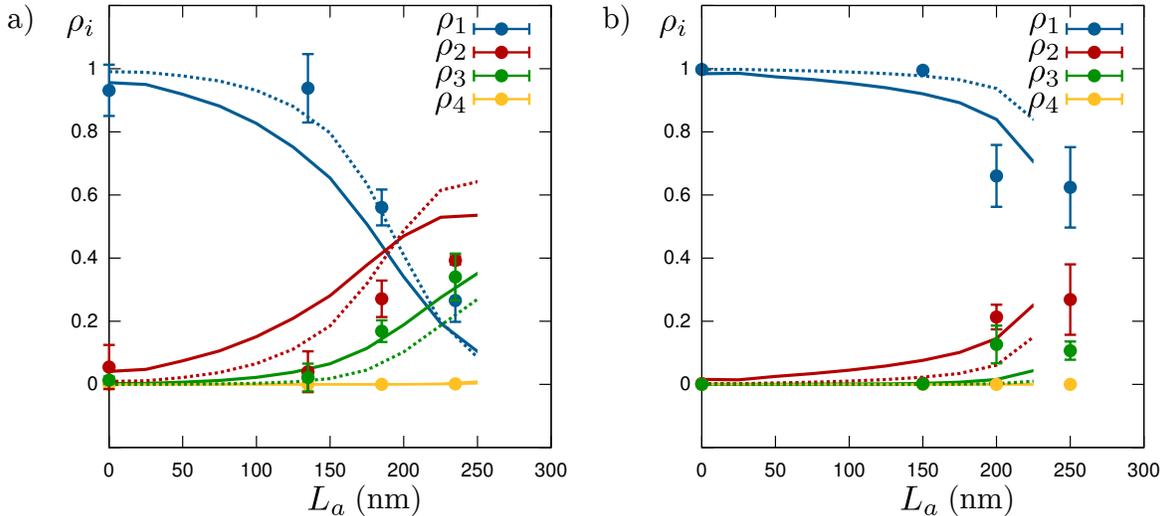


FIGURE 3.19 – Populations de vertex expérimentales (points) et théoriques (lignes continues) dans les réseaux a) LG et b) SG. Les résultats expérimentaux obtenus après les trois recuits ont été moyennés. Les données sont également reportées dans le tableau 3.1. Les lignes continues représentent les prévisions d'une distribution de Boltzmann basée sur les niveaux d'énergie micromagnétiques de la figure 3.16. Traits pleins, $T=420$ K. Traits pointillés, $T=300$ K

L'influence des absorbeurs devient visible à partir de la taille intermédiaire étudiée (LG185 et SG200). La fréquence de vertex T1 diminue (59% pour LG185 contre 60% pour SG200)

au profit des vertex T2 et T3. Ces deux derniers vertex ont des fréquences d'apparition comparables. Tout porte à croire que l'état fondamental AF est en train de disparaître des réseaux.

Jusque ici, il n'y avait pas de différence majeure entre les réseaux SG et LG. Ce n'est plus le cas pour les grandes tailles d'absorbeurs. Dans le réseau LG235, les populations de vertex s'inversent : $\rho_2 > \rho_3 > \rho_1$. Cette inversion d'est pas observée pour SG250, dans lequel $\rho_1 > \rho_2 > \rho_3$. Dans les réseaux SG, il n'y a que peu de différences entre les populations pour $L_a = 250$ nm ou $L_a = 200$ nm. Les simulations des niveaux d'énergie (cf. fig. 3.16a) expliquent bien ces comportements. Sur la géométrie SG, la hiérarchie des niveaux reste inchangée quelque soit la valeur de L_a . Le vertex T1 est toujours l'état fondamental. La situation est différente sur la géométrie LG. Pour $L_a = 235$ nm, $E_2 < E_1$ donc le vertex T2 devient l'état fondamental. Cela explique sa fréquence plus élevée observée dans LG235.

Dans les réseaux expérimentaux, la fréquence de vertex excités ρ_3 est particulièrement élevée pour les deux plus grandes tailles d'absorbeurs. Il s'agit d'une conséquence de la diminution de l'amplitude des spectres en énergie. Afin de vérifier cette proposition, nous allons comparer les populations expérimentales avec les prédictions d'un modèle simple, basé sur une distribution de Boltzmann. Nous avons expliqué le principe de ces calculs au chapitre précédent (cf. §2.3.3). Rappelons qu'ils négligent les contraintes entre vertex. De plus, les barrières d'énergies de retournement intrinsèques aux nanoaimants ne sont pas prises en compte. Mais cette méthode permet de faire un lien direct entre les niveaux d'énergie prédits micromagnétiquement et les populations expérimentales. Les populations calculées avec ce modèle apparaissent pour deux températures en traits continus sur la figure 3.19. Les énergies de vertex sont extraites des simulations micromagnétiques en figure 3.16.

| Gap | L_a (nm) | ρ_1 | ρ_2 | ρ_3 | ρ_4 |
|-----|------------|----------|----------|----------|----------|
| LG | 0 | 0.931 | 0.055 | 0.014 | 0.0 |
| | 135 | 0.938 | 0.040 | 0.022 | 0.0 |
| | 185 | 0.560 | 0.271 | 0.169 | 0.0 |
| | 235 | 0.266 | 0.392 | 0.340 | 0.002 |
| SG | 0 | 99.8 | 0.2 | 0 | 0.0 |
| | 150 | 99.5 | 0.3 | 0.2 | 0.0 |
| | 200 | 66.0 | 21.3 | 12.6 | 0.0 |
| | 250 | 62.4 | 26.9 | 10.7 | 0.0 |

TABLE 3.1 – Populations de vertex dénombrées expérimentalement. Les résultats obtenus sur les trois recuits ont été moyennés. Ces données sont représentées graphiquement en figure 3.19.

Malgré sa simplicité, ce modèle reproduit bien les tendances suivies par les populations expérimentales. Il explique la fréquence élevée de vertex T3 observée dans les réseaux LG. Mais pour la géométrie LG, il sous-estime ρ_1 par rapport aux observations expérimentales. Le modèle ne prévoit pas non plus l'apparition de l'ordre AF parfait observé dans les réseaux LG135 et SG150 ($\rho_1 \approx 1$). La distribution de Boltzmann prévoit pour ces réseaux la présence d'une population ρ_2 importante. Ces remarques soulèvent la question de l'équilibre thermodynamique de nos réseaux.

Bien que les recuits portent l'échantillon à une température proche de 420 K, les images sont acquises après refroidissement à $T_{room} \sim 300$ K. Comparons les courbes de populations théoriques obtenues à 420 K (traits pleins, fig. 3.19) avec celles à 300 K (traits pointillés, fig. 3.19). Les résultats expérimentaux semblent mieux décrits par les simulations à chaud. Dans ce cas, les configurations que l'on observe seraient un « cliché » des réseaux pris au cours du recuit. Cela peut s'expliquer par un refroidissement trop rapide qui aurait réalisé une trempe de l'échantillon. Il est néanmoins surprenant que les réseaux LG135 et SG150 soient si proches de leur état fondamental dans les mêmes conditions. Tout semble se passer comme si les différents réseaux ne subissaient pas la même température. Il faut cependant insister sur le fait que notre modèle est très simplifié. Des simulations Monte Carlo seraient nécessaires pour effectuer une analyse plus poussée de ces populations. Nous allons maintenant caractériser les phases magnétiques dans lesquelles se trouvent nos réseaux.

Changement de phase magnétique Une forte concentration de vertex T1 ($\rho_1 \sim 1$) implique nécessairement l'existence d'une phase ordonnée. Mais ce n'est pas les cas pour des distributions moins triviales impliquant plusieurs types de vertex. C'est pourquoi nous nous intéressons maintenant aux facteurs de structure expérimentaux⁵. Les résultats sont représentés en figure 3.20 pour quatre des huit réseaux étudiés. Les facteurs de structure des réseaux SG0, LG0, SG150 et LG135 présentent les pics de Bragg associés à la phase ordonnée AF. Ceci est inévitable puisque les réseaux sont essentiellement composés de vertex T1. C'est pourquoi leurs facteurs de structure n'apparaissent pas en figure 3.20.

Pour les autres réseaux, à l'exception de LG235, ces pics de Bragg sont toujours présents mais se trouvent plus dispersés. Cela traduit un fractionnement de la phase AF. Celle-ci semble avoir complètement disparu du réseau LG235 car l'intensité dans les angles de la zone de Brillouin est très diffuse. Mais sur ces quatre facteurs de structure, un pic en centre de zone (Γ) est apparu. Il traduit un état partiellement aimanté. Cela pourrait sembler normal puisque les réseaux concernés contiennent une population importante de vertex T2, qui portent un moment magnétique. Mais dans le modèle de Lieb, ces derniers ne doivent pas s'arranger dans un état aimanté.

Aucun des facteurs de structure de la figure 3.20 ne présente les corrélations prévues par le modèle de Lieb (cf. §1.2.3). Les comportements que nous avons décrits ici restent néanmoins intéressants. Nous avons observé le passage d'un ordre antiferromagnétique à un ordre ferromagnétique, avec parfois la coexistence des deux phases. Cela n'a jamais été reporté dans la littérature sur les réseaux de nanoaimants. Mais l'apparition des pics en Γ pourrait être due à un biais expérimental.

Aimantation rémanente des réseaux Pour en savoir plus, calculons l'aimantation rémanente des configurations magnétiques obtenues. Les valeurs sont représentées en figure 3.21. L'aimantation des réseaux SG0, LG0, SG150 et LG135 est très faible voire nulle car ils sont ordonnés dans l'état AF. Pour les autres réseaux, une rémanence systématique et de même signe apparaît le long de l'axe horizontal. Celle-ci peut être très importante, jusqu'à 40% dans le cas du réseau LG235. Plusieurs hypothèses expliquent ce phénomène :

5. Se référer au chapitre 2 pour plus d'explication à propos des facteurs de structure.

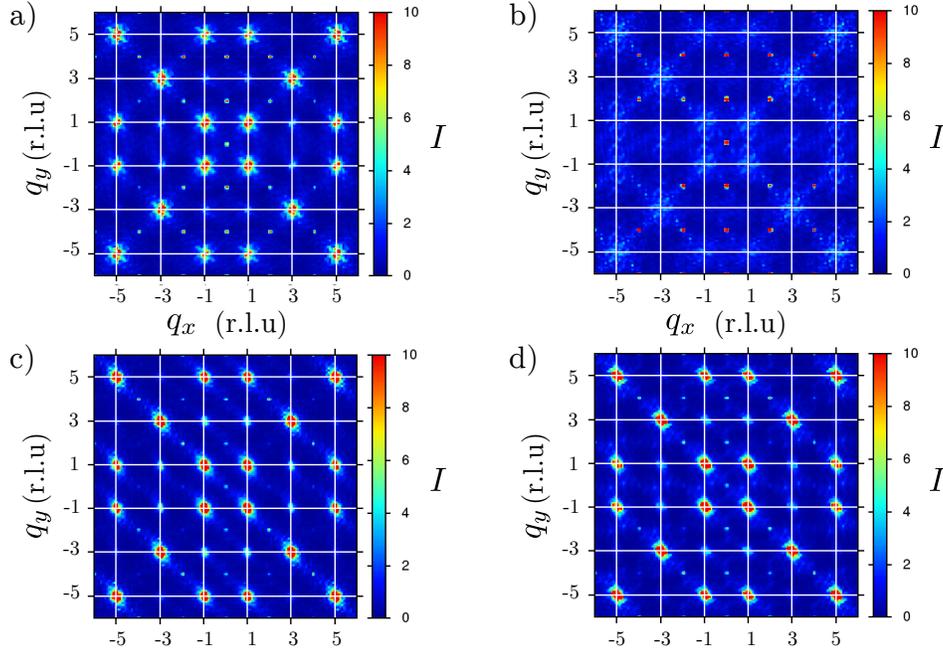


FIGURE 3.20 – Facteurs de structure calculés pour quatre réseaux étudiés. a) LG185, b) LG235, c) SG200, d) SG250. Ils résultent de la moyenne des trois recuits.

- La hausse de la population ρ_2 pourrait engendrer une organisation ferromagnétique entre ces vertex. L'aimantation résiduelle obtenue résulterait alors d'une brisure spontanée de symétrie. Mais le fait que cette rémanence apparaisse selon l'axe horizontal, systématiquement dans le même sens, réfute cette hypothèse. La symétrie est nécessairement brisée par un élément extérieur ou intrinsèque à l'échantillon.
- L'échantillon aurait conservé une partie de sa saturation initiale en raison d'un recuit trop court ou à trop basse température. Cette hypothèse paraît plus convaincante. Elle est appuyée par le fait que les réseaux avec $L = 1 \mu\text{m}$, que nous avons aussi étudiés, présentent des rémanences encore plus élevées. C'est d'ailleurs la raison pour laquelle nous n'avons pas présenté les données obtenues sur ces géométries. Cependant, cette hypothèse n'explique pas pourquoi l'axe vertical y n'est pas aimanté. Initialement, l'échantillon est saturé dans la direction diagonale. Il n'y a aucune raison pour que les fluctuations thermiques désaimantent uniquement l'axe vertical.
- Un biais expérimental, comme un champ magnétique parasite dans la direction horizontale par exemple, expliquerait mieux les rémanences observées. Il est possible que le champ d'Ørsted du filament de chauffage puisse influencer l'échantillon. Estimons l'ordre de grandeur de ce champ : le filament est composé de $N=10$ spires de rayon $R = 1 \text{ mm}$ parcourues par un courant $i=2 \text{ A}$. Son moment magnétique μ s'exprime $\mu = NI\pi R^2$. À une distance r telle que $\mathbf{r} \cdot \boldsymbol{\mu} = 0$, μ rayonne un champ d'Ørsted $B(r) = \frac{3\mu\mu_0}{4\pi r^3}$. La distance r qui sépare le filament de la surface de l'échantillon est d'environ 3 mm . L'application numérique donne un ordre de grandeur du champ parasite $B = 2 \text{ mT}$. Cette valeur est loin d'être négligeable puisque le champ coercitif de nos aimants est de quelques dizaines de mT. Le champ parasite est indissociable

du chauffage. Le réseau n'a alors que le temps de refroidissement pour effacer la trace de ce champ, ce qui n'est manifestement pas suffisant. Il aurait fallu effectuer un refroidissement plus lent. Mais avec notre dispositif expérimental, cela impliquerait de maintenir une certaine puissance de chauffage ; celle-ci exposerait à nouveau l'échantillon au champ parasite.

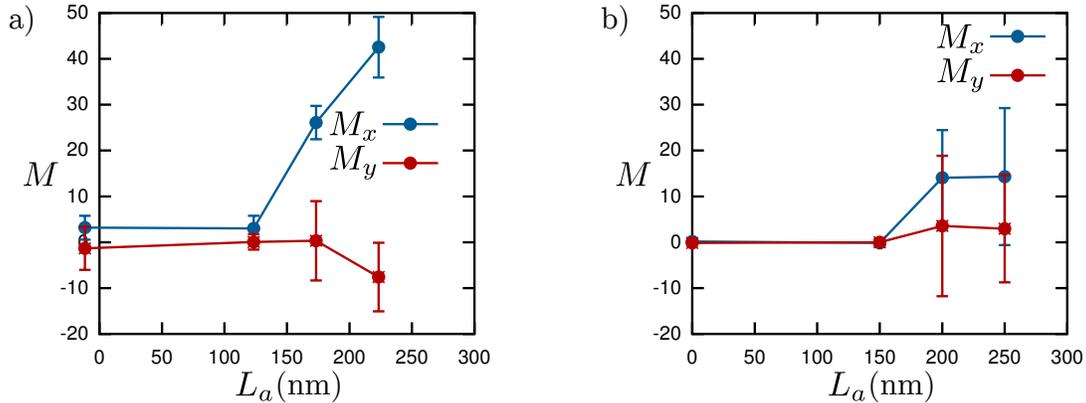


FIGURE 3.21 – Aimantation rémanente moyenne mesurée sur les huit réseaux a) LG et b) SG. Une rémanence apparaît systématiquement selon l'axe x .

La rémanence observée peut aussi provenir d'une combinaison des ces trois facteurs. Mais nous pouvons affirmer que le biais est très léger car il n'a pas empêché plusieurs réseaux de s'ordonner dans l'état AF. Les réseaux à absorbeurs sont extrêmement sensibles à tout champ magnétique parasite car la différence d'énergie entre un état saturé ou n'importe quel autre état *ice rule* est très faible (cf. §3.2.3). Dans la section suivante, nous allons nous intéresser aux fluctuations thermiques dans les réseaux.

3.4.3 Fluctuations thermiques

Sur certaines de nos images, la résolution s'est avérée suffisante pour distinguer la configuration magnétique des absorbeurs. Sur la base de ces images, nous allons vérifier expérimentalement la validité de l'hypothèse de passivité, formulée en début de chapitre. Au cours de nos expériences, nous avons également remarqué que les absorbeurs ont un effet sur les fluctuations thermiques. Nous montrerons que ce phénomène peut s'expliquer par des distributions de Boltzmann.

Contraste XMCD Pour cette partie, il est nécessaire d'expliquer la signification du contraste magnétique observé par XMCD-PEEM. L'acquisition d'une image se fait sur un temps d'intégration T_i qui est de typiquement 15 min dans notre cas. L'image finale présente un contraste dichroïque qui indique le signe de la projection de l'aimantation sur le faisceau de rayons X. Afin d'avoir un contraste maximal sur les deux axes du réseau carré, l'échantillon est orienté pour que le faisceau soit dans la diagonale des réseaux. Cette situation est représentée en figure 3.22a. Ce schéma montre que la moitié des absorbeurs ne peuvent pas présenter de contraste puisqu'ils sont orthogonaux au faisceau. Pour l'autre moitié, le signal sera maximal car ils sont colinéaires aux rayons X. Imaginons maintenant qu'un nanoaimant,

qui devrait apparaître en blanc (état 1), change d'état en cours d'imagerie à l'instant t_{sw} (état 2). Le contraste final observé dépend de la valeur de t_{sw} par rapport à T_i .

- Si $t_{sw} < \frac{1}{2}T_i$ l'objet apparaîtra plutôt noir car, au cours de l'acquisition, il aura passé plus de temps dans l'état 2 que dans l'état 1.
- Si $t_{sw} = \frac{1}{2}T_i$ l'objet apparaîtra sans contraste car il aura passé autant de temps dans chaque état.
- Si $t_{sw} > \frac{1}{2}T_i$ l'objet apparaîtra plutôt blanc car, au cours de l'acquisition, il aura passé plus de temps dans l'état 1 que dans l'état 2.

Le contraste est maximal si l'aimant ne change pas d'état en cours d'imagerie. Mais plusieurs inversions peuvent aussi se produire au cours d'une acquisition. Le contraste est alors déterminé par le temps moyen passé dans chaque état. Finalement, à partir d'une image XMCD-PEEM, il est impossible de déterminer si un nanoaimant est parfaitement stable ou non⁶. Le contraste observé indique seulement quel état a été privilégié au cours du temps d'acquisition. Bien entendu, un fort contraste sur un aimant implique généralement que l'objet concerné soit stable.

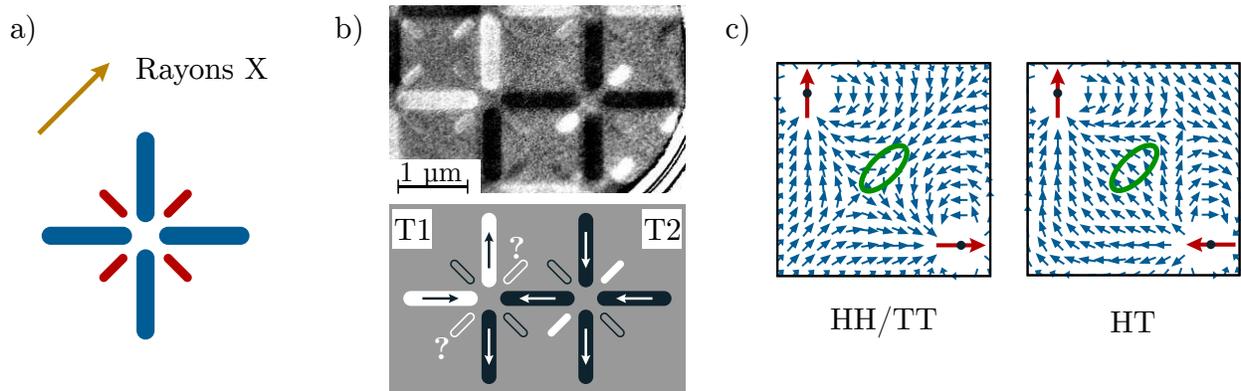


FIGURE 3.22 – a) Schéma d'un réseau à aimants additionnels montrant la direction du faisceau de rayons X pour l'imagerie. b) Image XMCD-PEEM d'un réseau montrant deux vertex (T1 à gauche, T2 à droite) et leurs absorbeurs. Les flèches indiquent la direction de l'aimantation dans les aimants principaux. c) Visualisation du champ magnétique (normalisé) produit par des configurations HH-TT ou HT. L'ellipse verte indique la région dans laquelle se situe l'absorbeur. Dans la configuration TT représentée, le champ local tend à faire pointer l'absorbeur vers l'intérieur du vertex. Dans la configuration HT, le champ local est perpendiculaire à l'absorbeur, il n'a donc pas d'influence.

Vérification de l'hypothèse de passivité Nous nous intéressons maintenant à l'état magnétique des absorbeurs. La figure 3.22b montre une image haute résolution d'une portion de réseau contenant deux vertex. Le vertex de gauche est de type 1, il ne présente que des configurations HT. Celui de droite est de type 2 et fait intervenir deux états HH/TT. La configuration magnétique associée à l'image expérimentale est schématisée en dessous. Sur le vertex de droite, les deux absorbeurs associés aux états HH/TT apparaissent en blanc. Leur

6. Nous avons expliqué au chapitre 1 que la température de blocage T_b d'une particule magnétique dépend de la durée d'observation δt .

contraste est fort, ce qui indique qu'il sont probablement stables. Leur direction est bien celle dictée par l'hypothèse de passivité.

À l'inverse, les absorbeurs des configurations HT du vertex de gauche ne présentent pas de contraste significatif. Cela indique qu'ils fluctuent au cours de l'acquisition. Ce constat prouve que les absorbeurs sont instables saufs s'ils avoisinent un état HH ou TT. Dans ce cas, ils se stabilisent dans le champ rayonné par les aimants principaux. Le champ magnétique rayonné au niveau de l'absorbeur par les configurations TT et HT est représenté en figure 3.22c, pour des dipôles ponctuels.

Ces observations soulèvent la question du domaine de validité de l'hypothèse de passivité. Nous disposons d'images de réseaux pour différentes tailles d'aimants principaux et d'absorbeurs. Il est alors aisé de recenser la proportion de configurations HH ou HT pour lesquelles les absorbeurs se comportent comme prévu. Les résultats sont rassemblés dans la table 3.2. Les absorbeurs des réseaux LG135 et SG150 ne sont pas visibles car leur petite taille les rend très fluctuants. À l'exception du réseau SG250, tous les absorbeurs d'une configuration HH qui ont pu être résolus vérifient l'hypothèse de passivité (taux de 1). Ce taux n'est que de 0.16 pour SG250, ce qui est probablement dû à la fusion entre les absorbeurs et les aimants principaux (cf. images MEB en fig. 3.17). L'hypothèse de passivité semble donc bien vérifiée tant que les discontinuités entre aimants sont assurées.

| Gap | L_a (nm) | N | N_{HT} | N_{HH} | Taux |
|-----|------------|-----|----------|----------|------|
| LG | 135 | 0 | 0 | 0 | × |
| | 185 | 158 | 32 | 126 | 1 |
| | 235 | 228 | 73 | 155 | 1 |
| SG | 150 | 0 | 0 | 0 | × |
| | 200 | 69 | 37 | 32 | 1 |
| | 250 | 254 | 181 | 73 | 0.16 |

TABLE 3.2 – Statistiques sur les configurations des absorbeurs, effectuées sur un seul recuit. N représente le nombre total d'absorbeurs qui ont pu être résolus sur les images. Il est généralement beaucoup plus faible que le nombre total d'absorbeurs dans la direction du faisceau (800). N_{HT} et N_{HH} représentent respectivement le nombre d'absorbeurs résolus appartenant à une configuration HT ou HH. Ces nombres sont liés par la relation $N = N_{HT} + N_{HH}$. Le taux correspond à la proportion d'absorbeurs vérifiant l'hypothèse de passivité.

Interactions à longue portée Intéressons nous maintenant aux configuration HT, pour lesquelles l'état de l'absorbeur est a priori indéterminé. Expérimentalement, leur contraste XMCD est faible voire inexistant (cf. fig. 3.22c, vertex de gauche). Mais les résultats du tableau 3.2 montrent que l'augmentation de L_a tend à les stabiliser. Par exemple, pour LG235 ce sont 73 absorbeurs normalement indéterminés qui ont adopté sans ambiguïté une position préférentielle. Il est, certes, concevable qu'un léger contraste apparaisse pour des raisons purement stochastiques si l'absorbeur fluctue lentement. Dans ce cas, le contraste de l'absorbeur doit être complètement décorrélé du reste du vertex. Mais dans certains cas, et plus particulièrement au sein des vertex T3, des corrélations apparaissent. La figure 3.23a montre plusieurs exemples de vertex de type 3 avec un absorbeur HT stabilisé. Comme prévu,

l'absorbeur non frustré (en bleu sur la figure 3.23b) s'aimante de manière opposée à ses deux voisins (1 et 2) pour absorber leur charge. L'absorbeur frustré (en rouge sur la figure 3.23b) ne devrait pas avoir de direction préférentielle s'il n'interagissait qu'avec ses premiers voisins. Pourtant, sur les six exemples cet absorbeur semble plutôt stabilisé dans le sens opposé à l'autre absorbeur. Cela s'explique par une interaction ferromagnétique avec les aimants 1 et 2. Ces observations prouvent qu'il existe des interactions significatives entre les huit aimants qui constituent un vertex. Rappelons que ces interactions sont naturellement prises en compte dans les simulations micromagnétiques, vues au §3.3.

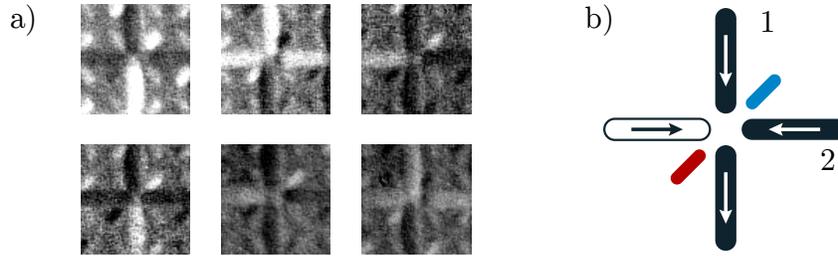


FIGURE 3.23 – a) Image XMCD-PEEM de plusieurs vertex T3 montrant la stabilisation d'un aimant HT normalement indéterminé. Les images ont une surface de $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$. b) Schéma d'un vertex T3 montrant l'absorbeur stable (bleu) et instable (rouge).

Les résultats exploités dans ce chapitre ont été obtenus sur un échantillon de permalloy de 2.8 nm d'épaisseur. À quelques fluctuations près, les réseaux de cet échantillon se sont avérés stables à température ambiante. Nous avons également tenté de travailler avec un échantillon plus mince, d'une épaisseur de 2.5 nm. Nous avons alors observé un effet inattendu des absorbeurs sur ces réseaux.

Fluctuations induites par les absorbeurs Les absorbeurs influencent les fluctuations thermiques dans les réseaux de nanoaimants. Les images des réseaux SG0 et SG150 apparaissent en figure 3.24. Ces réseaux se trouvent sur un échantillon de permalloy de 2.5 nm d'épaisseur. Le réseau SG0 apparaît clairement dans un état fondamental AF stable sur la durée d'acquisition. Par contre, aucun contraste n'est visible sur SG150 en raison de nombreuses fluctuations des nanoaimants. La différence entre les deux cas est frappante. Cette « stimulation » des fluctuations trouverait en partie son origine dans la diminution de l'amplitude du spectre en énergie.

Pour tester cette hypothèse, nous calculons les populations de vertex données par une distribution de Boltzmann à partir des énergies micromagnétiques. Les résultats sont représentés en figure 3.24c. Il apparaît que pour une même température T , le réseau SG150 contient un plus grand nombre d'excitations que SG0 (vertex T2 et T3). Ces courbes théoriques prédisent des fluctuations thermiques à partir de 500 K au lieu des 300 K des conditions expérimentales. Cet écart est attribuable à la simplicité du modèle employé. Mais le raisonnement permet tout de même d'expliquer pourquoi le réseau SG150 est plus instable que SG0.

Après avoir observé les fluctuations de SG150, nous avons étudié plus en détail une portion de ce réseau. Une visualisation image par image nous a permis d'avoir une résolution temporelle de 10 secondes au lieu de 10 minutes⁷. Nous avons observé que la portion de

7. Cela s'est fait au prix d'une forte dégradation de la qualité des images.

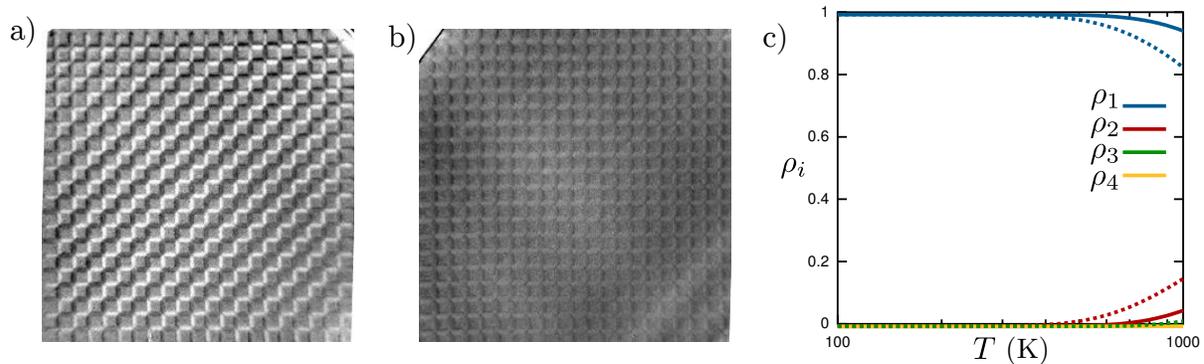


FIGURE 3.24 – Image XMCD-PEEM des réseaux a) SG0 et b) SG150, à température ambiante pour une épaisseur de 2.5 nm de permalloy. Le premier est stabilisé dans l'état AF. Le second ne présente aucun contraste magnétique, ce qui indique qu'il est fluctuant. c) Populations de ces réseaux en fonction de la température T , calculées par une distribution de Boltzmann de leur niveaux d'énergie micromagnétiques. En traits pleins : réseau SG0. En pointillés : réseau SG150.

réseau dans le champ (environ un quart du réseau complet) oscille entre les deux états AF dégénérés. En 10 minutes, nous avons observé une douzaine d'inversions. Ce comportement est cohérent avec les simulations Monte Carlo du modèle F trouvées dans la littérature. À température finie, le réseau s'ordonne localement en domaines AF séparés par des parois mouvantes. Si la zone observée expérimentalement est plus étroite que la taille des domaines, le champ peut apparaître parfaitement ordonné. Si une paroi de domaine traverse le champ de vue sous l'effet des fluctuations thermiques, l'état AF dans la région observée s'inverse.

Dans cette section, nous avons montré dans quelles conditions l'hypothèse de passivité est vérifiée. Nous avons pu mettre en évidence l'effet des interactions à longue portée. Enfin, nous avons expliqué comment les absorbeurs peuvent stimuler les fluctuations thermiques dans un réseau. Cela s'explique par la diminution de l'écart ΔE entre les niveaux d'énergie des vertex (cf. simulations en fig. 3.16). Les absorbeurs favorisent l'apparition d'excitations à température finie. Cela explique pourquoi les réseaux expérimentaux présentent parfois de grandes concentrations de vertex T3 chargés.

Conclusion

Dans un modèle d'interactions à courte portée J_1, J_2, J_3 , les absorbeurs peuvent rétablir la dégénérescence extensive de l'état fondamental du réseau carré. L'analyse du hamiltonien dans l'espace réciproque s'est malheureusement avérée impossible. Il s'agit en effet d'un cas particulier pour lequel les états *ice rule* se projettent sur toutes les bandes du spectre. Nous avons alors démontré que les absorbeurs rétablissent la dégénérescence du modèle de glace par calcul dans l'espace direct.

Les interactions dipolaires à longue portée tendent à lever la dégénérescence qui était rétablie dans le cas J_1, J_2, J_3 . Modéliser les aimants par des charges magnétiques permet de renforcer les interactions entre premiers voisins. Nous avons montré que ce modèle, plus fidèle à la réalité, limite la levée de dégénérescence induite par les interactions à longue portée. Tout porte alors à croire que la physique du modèle de Lieb peut apparaître dans le réseau carré à aimants additionnels.

Grâce à des simulations micromagnétiques, nous avons déterminé les géométries intéressantes à réaliser expérimentalement. Les absorbeurs doivent pouvoir « pénétrer » au cœur du vertex pour pouvoir évacuer les charges magnétiques plus efficacement. La situation optimale est obtenue lorsque les extrémités des huit aimants du vertex sont à la même distance du centre. Cette situation, qui se traduit par $g_a = g$, maximise l'effet des absorbeurs tout en minimisant leur volume. Ce travail numérique montre également le défaut majeur que comporte l'ajout des absorbeurs. La modulation des niveaux d'énergie se fait au prix d'un rétrécissement de la largeur du spectre $\Delta E = E_4 - E_1$, d'un facteur 10 dans certains cas. Cela a eu des conséquences notables sur les réseaux expérimentaux.

Nous avons étudié expérimentalement la glace dopée soumise à des fluctuations thermiques. Après un recuit, nos réseaux témoins (sans absorbeurs) se trouvent dans leur état fondamental AF. Nos méthodes expérimentales sont donc proches de l'état de l'art dans le domaine des glaces de spin artificielles. Nos expériences montrent que les absorbeurs ont clairement un effet sur l'état des réseaux après refroidissement. Ils empêchent l'établissement de l'état fondamental AF de la glace carrée. Mais les corrélations de spin mesurées ne correspondent pas à celles attendues dans le modèle de Lieb. Une phase aimantée apparaît nettement dans les réseaux. Ils présentent une rémanence systématique qui révèle un biais expérimental dans nos mesures. De plus, nous avons observé des populations de vertex excités T3 parfois très élevées alors qu'ils sont absents du modèle de Lieb. Les résultats sont cohérents avec les prévisions de distributions de Boltzmann calculées à la température du recuit (420 K). Cela suggère que le refroidissement, au cours duquel les réseaux atteignent leurs états de basse énergie, est trop rapide.

Le raisonnement théorique qui justifie cette étude se base sur l'hypothèse de passivité. Selon elle, les absorbeurs s'adaptent aux configurations des aimants principaux de manière à minimiser l'énergie du vertex. Nous avons prouvé expérimentalement la validité de cette hypothèse. Les expériences ont également révélé l'existence d'interactions à longue portée significatives à l'intérieur d'un vertex. Elles ont également mis en évidence un effet « stimulateur » des absorbeurs sur les fluctuations thermiques. Ce fait inattendu s'explique par la diminution de l'amplitude des niveaux d'énergie des vertex ΔE . Cela facilite l'apparition d'excitations pour une température donnée.

Des expériences ultérieures menées par désaimantation en champ ont donné des résultats

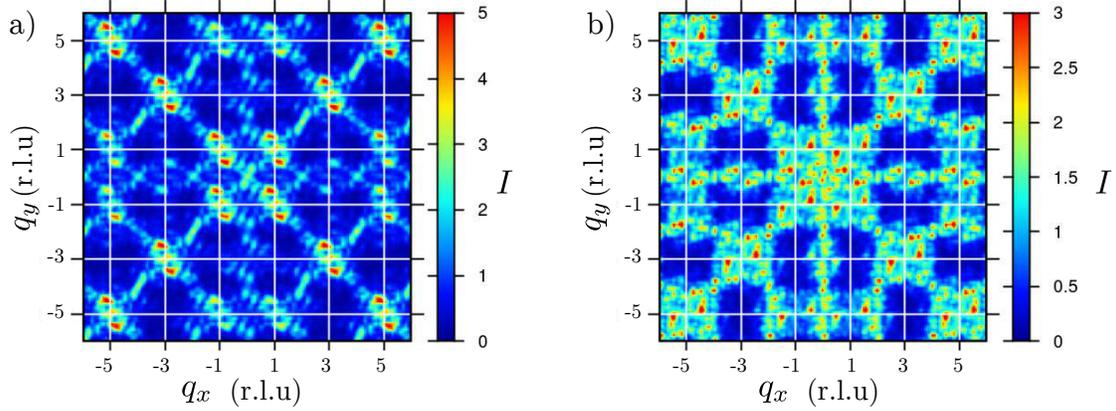


FIGURE 3.25 – Facteurs de structures obtenus par désaimantation du réseau carré dopé, pour deux tailles d’absorbeurs : a) $L_a = 250$ nm et b) $L_a = 300$ nm. Géométrie $1 \mu\text{m}$, $w = 200$ nm, $g = 150$ nm et $e = 30$ nm.

très prometteurs. Le problème du pic de Bragg en Γ ne se pose plus car les réseaux ont une aimantation quasi-nulle à la fin du processus de désaimantation. La figure 3.25 montre les facteurs de structure obtenus après désaimantation d’un réseau, pour deux tailles d’absorbeurs. Pour $L_a = 250$ nm (fig. 3.25a), l’intensité sur le facteur de structure est encore localisée autour des points M . Il s’agit d’une signature de l’état AF. Mais le cas de $L_a = 300$ nm (fig. 3.25b) est très intéressant. Son facteur de structure ne présente plus de pics de Bragg et il se structure de manière très similaire à ce qui est attendu dans le modèle de Lieb. Les absorbeurs semblent donc pouvoir jouer leur rôle par désaimantation en champ tournant.

Chapitre 4

Glace carrée surélevée

Au second chapitre, nous avons expliqué comment les couplages entre spins J_1 et J_2 influencent les états de basse énergie du réseau carré (cf. §2.4.2). Le cas le plus intéressant s'obtient lorsque $J_1 = J_2$; le réseau possède alors un état fondamental massivement dégénéré et ne s'ordonne pas. Sa physique est bien décrite par le modèle de glace carrée, dont l'entropie résiduelle a été calculée par Lieb en 1967 [55]. Le réseau carré de nanoaimants a été conçu dans le but d'observer les états de basse énergie de ce modèle [104]. Mais dans le réseau réel, pour des raisons géométriques la condition $J_1 = J_2$ n'est pas vérifiée. Expérimentalement, le réseau de nanoaimants carré s'ordonne dans un état antiferromagnétique. Ce réseau est donc une réalisation physique du modèle F décrit au premier chapitre (cf. §1.2.2). À ce jour, le modèle de Lieb n'a jamais pu être réalisé dans un réseau de nanoaimants. Nous avons proposé au chapitre 3 un nouveau système aux propriétés intéressantes. Ses états de basse énergie peuvent être modulés au moyen d'aimants de petite taille, ajoutés au réseau carré initial. Nous avons prouvé que cette solution est à même de réaliser un modèle de glace. Mais des problèmes expérimentaux ont fait obstacle à l'observation des variétés de basse énergie du modèle de Lieb. Des résultats obtenus par désaimantation en champ se sont toutefois montrés encourageants.

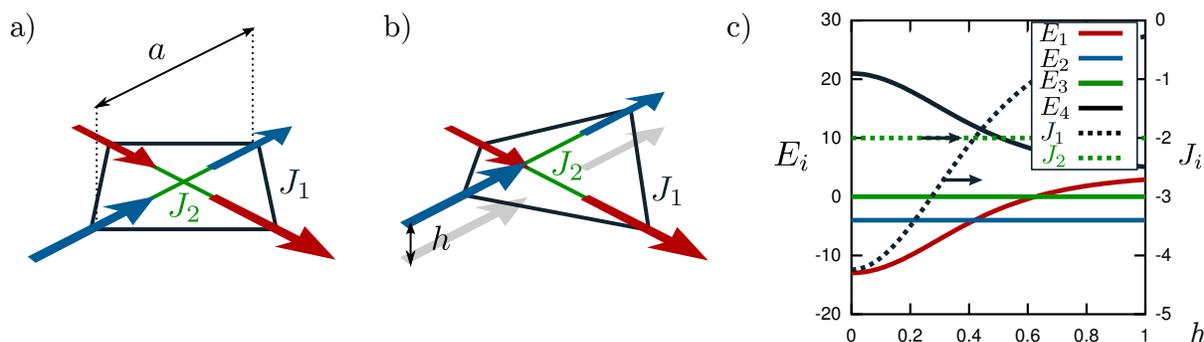


FIGURE 4.1 – a) Vertex appartenant au modèle de spin initial, où tous les aimants sont dans le même plan. Les dipôles d'un même sous-réseau sont couplés J_2 et ceux appartenant à des sous-réseaux différents J_1 . b) Vertex avec le sous-réseau bleu surélevé d'une hauteur h . J_1 diminue car les dipôles perpendiculaires s'éloignent. c) Graphe montrant l'effet de h sur les couplages J_1 et J_2 , ainsi que sur l'énergie des quatre types de vertex E_1, E_2, E_3 et E_4 .

Dans le réseau à aimants additionnels, l'interaction entre aimants principaux reste inchangée. Les absorbeurs agissent sur le réseau en créant des couplages effectifs modulables géométriquement. Nous allons présenter dans ce chapitre une autre approche, permettant d'agir directement sur le couplage J_1 . Elle a été proposée en 2006 par Möller et Moessner [63]. Son principe est de surélever l'un des deux sous-réseaux, ce qui diminue le couplage entre aimants perpendiculaires. Nous allons dans cette introduction expliquer leur raisonnement, à l'échelle du vertex isolé représenté en figure 4.1a. Les aimants perpendiculaires et parallèles sont couplés respectivement J_1 et J_2 . Le sous-réseau bleu est surélevé d'une hauteur que nous notons h (cf. fig. 4.1b). Dans un modèle de dipôles ponctuels en interaction dipôle-dipôle, les couplages J_1 et J_2 s'expriment en fonction de h :

$$\begin{aligned} J_1 &= -\frac{3}{4} \left(\frac{1}{2} + \left(\frac{h}{a} \right)^2 \right)^{-\frac{5}{2}} \frac{\mu^2}{a^3} \\ J_2 &= -2 \frac{\mu^2}{a^3} \end{aligned} \quad (4.1)$$

où μ est le moment magnétique des dipôles et a le paramètre de maille. Les expressions (4.1) montrent que la surélévation diminue le couplage J_1 entre aimants perpendiculaires ; J_2 reste lui inchangé. Intéressons-nous maintenant aux conséquences de la surélévation sur les niveaux d'énergie des vertex E_i . Pour rappel, les quatre niveaux s'expriment en fonction des couplages premiers voisins :

$$\begin{aligned} E_1 &= -4J_1 + 2J_2 \\ E_2 &= -2J_2 \\ E_3 &= 0 \\ E_4 &= 4J_1 + 2J_2 \end{aligned} \quad (4.2)$$

Par mesure de clarté, les longueurs seront exprimées en unité de paramètre de maille a . De même, les énergies seront exprimées en fonction de $\frac{\mu^2}{a^3}$. Les unités SI seront employées pour les simulations micromagnétiques et dans la partie expérimentale. Les couplages J_1, J_2 et les énergies des vertex E_i sont représentées en figure 4.1c en fonction de la surélévation h . D'après ce graphe, la valeur $h = 0.419$ marque une transition :

- Si $h < 0.419$, $J_1 > J_2$ et $E_1 < E_2$;
- Si $h > 0.419$, $J_1 < J_2$ et $E_2 < E_1$;
- Si $h = 0.419$, $J_1 = J_2$ et $E_1 = E_2$.

Le graphe montre que les énergies E_2 et E_3 ne dépendent pas de h . En effet, ces énergies sont indépendantes de J_1 . Pour la valeur $h = 0.419$, les couplages J_1 et J_2 sont égaux et les six états *ice rule* ont la même énergie. Si nous parvenions à introduire une telle surélévation dans un réseau de nanoaimants, nous devrions y observer la physique du modèle de Lieb. Cette idée semble poser un problème technique puisqu'une telle réalisation n'a jamais été reportée dans la littérature. Plusieurs études théoriques ont néanmoins été consacrées à ce système [60, 63, 64, 100].

Dans ce chapitre, nous rappellerons d'abord les travaux théoriques effectués sur le sujet. Nous montrerons que la surélévation permet de transiter d'un modèle antiferromagnétique à un modèle ferromagnétique. Au point intermédiaire, l'état fondamental est massivement

dégénéré et le réseau se comporte comme un liquide de spin algébrique. L'effet des interactions dipolaires à longue portée sera également étudié. Nous aborderons ensuite le problème du point de vue micromagnétique pour définir des géométries à réaliser expérimentalement. La seconde partie du chapitre sera consacrée aux simulations de désaimantation en champ du réseau carré surélevé. Cette étude servira de base pour l'interprétation des résultats expérimentaux présentés en troisième partie. Nous montrerons expérimentalement comment la surélévation amène le réseau de nanoaimants dans une phase de Coulomb.

4.1 Rétablir la dégénérescence de l'état fondamental

Le raisonnement en termes de couplages J_1, J_2 expliqué en introduction se focalise sur un vertex isolé. Une étude théorique plus rigoureuse du réseau carré surélevé a été faite par Möller et Moessner en 2006 [63]. Ils abordent, entre autres, l'effet de l'extension spatiale des dipôles et de leurs interactions à longue portée. Une partie de la thèse de L.P. Henry est également dédiée à ce système [31]. La section suivante est une synthèse de leurs travaux sur le sujet. Nous allons voir que la surélévation permet de passer d'un modèle antiferromagnétique à ferromagnétique. Au point intermédiaire, le réseau réalise le modèle de glace dont l'état fondamental est massivement dégénéré. Les interactions à longue portée tendent cependant à lever cette dégénérescence.

4.1.1 Effet de la surélévation sur le spectre en énergie

Le principe de l'analyse spectrale du hamiltonien a été exposé au second chapitre, §2.4. Elle permet de représenter l'énergie d'un modèle de spin sous forme de bandes dans l'espace réciproque. Leur nombre est déterminé par la structure de la maille unité, qui contient deux spins dans notre cas. Si la bande de basse énergie possède un ou plusieurs minima localisés, alors le système a un état fondamental défini. Si au contraire elle est plate, l'état fondamental du réseau est massivement dégénéré.

Le réseau que nous étudions apparaît en figure 4.2a. Le sous-réseau vertical, correspondant aux spins « 2 » de la maille unité, est surélevé d'une hauteur h . Étudions dans un premier temps le cas de spins en interaction à courte portée.

Couplage premiers voisins En ne considérant que les couplages J_1 et J_2 , la situation est identique à celle présentée au chapitre 2. Cette fois, les couplages ne sont plus fixés arbitrairement mais déterminés par les interactions dipôle-dipôle (4.1). La figure 4.3 représente les spectres en énergie obtenus pour trois valeurs de h .

- Pour $h < 0.419$ (cf. fig. 4.3a), la bande de basse énergie possède des minima clairement définis aux points M . Ils sont associés à une phase antiferromagnétique (AF). Il s'agit de l'état fondamental du modèle F constitué de vertex T1, qui apparaît communément dans le réseau carré artificiel.
- Pour $h = 0.419$ (cf. fig. 4.3b), les couplages sont égaux ($J_1 = J_2 = J$). La bande de basse énergie a une valeur constante en tout point de l'espace réciproque. L'état fondamental est massivement dégénéré, le système réalise le modèle de Lieb.

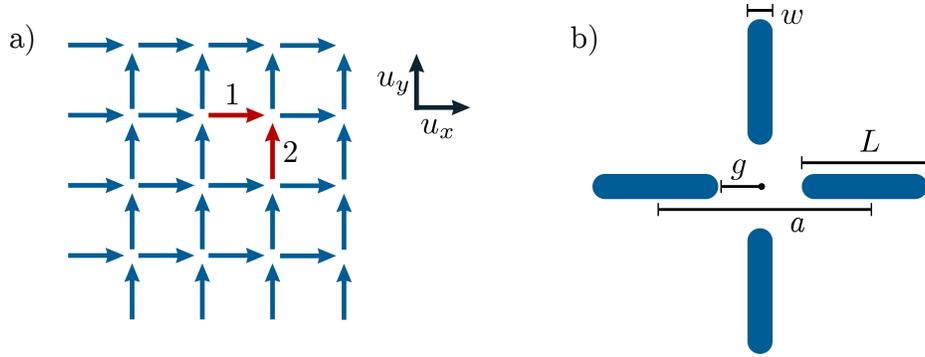


FIGURE 4.2 – a) Schéma du réseau de spins étudié. Sa maille unité est représentée en rouge ; les numéros indiquent l'étiquette de chaque site dans nos conventions. b) Définition des paramètres géométriques qui caractérisent les nanoaimants d'un vertex.

- Pour $h > 0.419$ (cf. fig. 4.3c), les minima de la bande de basse énergie se situent sur les axes ($q_x = 0$) et ($q_y = 0$). L'ordre devient localement ferromagnétique car le réseau se compose entièrement de vertex T2 aimantés. Cependant, la bande *ice rule* est encore dégénérée sur les axes ($q_x = 0$) et ($q_y = 0$). Il s'agit de la phase F décrite au second chapitre, §2.4.2. Pour rappel, le nombre d'états fondamentaux de cette phase augmente exponentiellement avec le nombre de lignes du réseau \sqrt{N} . Mais son entropie résiduelle par site tend vers une valeur nulle.

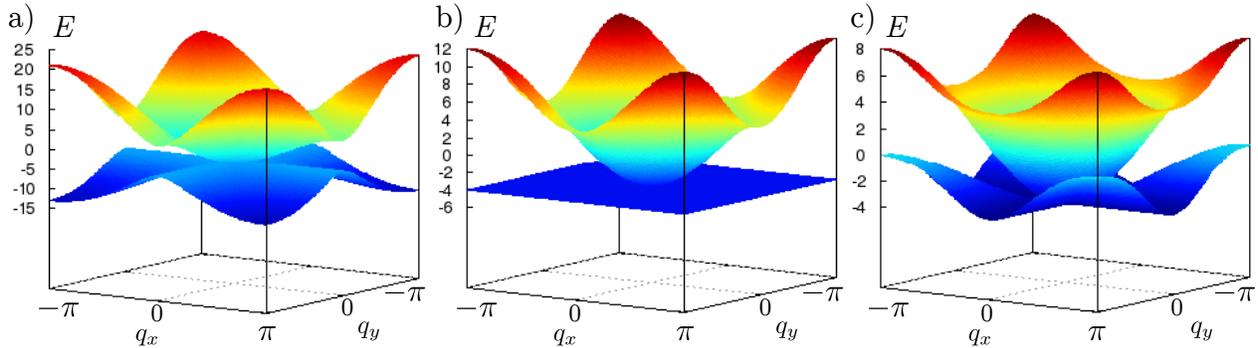


FIGURE 4.3 – Spectres en énergie du réseau carré dans la première zone de Brillouin, pour : a) $h = 0$, b) $h = 0.419$ et c) $h = 1$. La bande plate qui apparaît en b) indique que l'état fondamental du système est massivement dégénéré.

Nous notons h_{ice} la surélévation qui rétablit la dégénérescence des états *ice rule* et permet de réaliser le modèle le Lieb. Dans l'approximation de dipôles ponctuels, avec des interactions limitées aux plus proches voisins, $h_{ice} = 0.419$. La prise en compte de termes dipolaires d'ordre plus élevé complexifie la situation.

Interactions à longue portée En étendant les interactions dipolaires jusqu'à un certain rayon de coupure r_c , la matrice \mathcal{M} ne s'exprime plus aussi simplement qu'au §2.4. Ses composantes deviennent des sommes de nombreux termes décrivant les interactions à travers tout le réseau.

Après diagonalisation numérique de \mathcal{M} , les deux bandes obtenues sont légèrement différentes du cas J_1, J_2 . Il est désormais impossible d'obtenir une bande de basse énergie parfaitement plate, et ce, quelque soit la valeur de h . Nous définissons la largeur de bande ΔE comme la différence entre les points de plus haute et de plus basse énergie de la bande inférieure. Dans le cas idéal du modèle de glace, $\Delta E = 0$. Pour $h = 0.419$ l'augmentation de la portée des interactions lève la dégénérescence de la bande *ice rule*. Sa dispersion est maintenant de $\Delta E = 1.3$. Cette valeur peut toutefois être minimisée en réajustant h . Le graphe en figure 4.4a représente ΔE en fonction de h pour $r_c = 10$. À titre de comparaison, le cas des couplages premiers voisins J_1, J_2 apparaît en rouge. Le minimum de ΔE est maintenant atteint pour $h_{ice} = 0.44$.

La figure 4.4b représente la bande de basse énergie obtenue dans ces conditions. Ses minima sont localisés aux points M et X de la première zone de Brillouin, associés aux phases AF et Manhattan (M). Comme l'énergie de la bande est identique en ces points, nous pouvons conclure qu'à la surélévation h_{ice} , les états AF et M sont dégénérés. Dans leurs simulations Monte Carlo, Mol *et al.* obtiennent des résultats comparables ; ils observent le changement d'état fondamental à $h_{ice} = 0.444$ [60]. Pour cette valeur, à température finie le réseau se compose de domaines AF et M imbriqués.

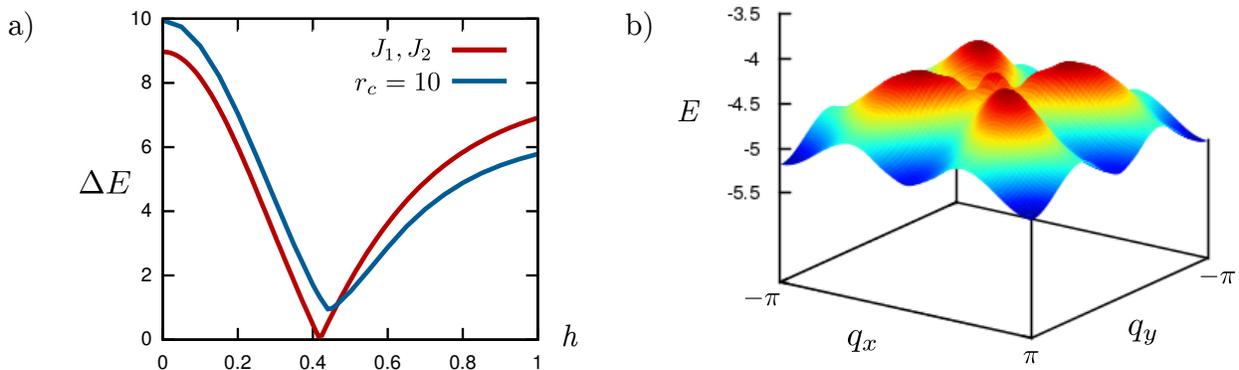


FIGURE 4.4 – a) Dispersion de la bande *ice rule* en fonction de la surélévation h , pour deux modèles : couplages premiers voisins (en rouge) ou interactions dipolaires jusqu'à $r_c = 10$. b) Allure de la bande de basse énergie à sa dispersion minimale, pour $h = h_{ice} = 0.44$ et $r_c = 10$. Les minima sont situés aux points M et X de la première zone de Brillouin.

Nous avons implicitement émis l'hypothèse selon laquelle la bande de basse énergie représente les états *ice rule*. Cette affirmation, qui était exacte dans le modèle J_1, J_2 , n'est plus rigoureusement vraie avec des interactions dipolaires. Un calcul de projection d'états *ice rule* similaire à ceux effectués aux chapitres 2 et 3 montre que la correspondance reste encore très bonne (supérieure à 0.97). Dire que cette bande représente les état *ice rule* est donc une bonne approximation [63].

Dans un réseau réel, les nanoaimants sont en interaction magnétostatique et celle-ci ne se limite pas aux premiers voisins. Nous pouvons donc nous attendre à obtenir expérimentalement une levée de dégénérescence de la bande *ice rule* similaire à celle représentée en figure 4.4b. Dans la partie suivante, nous allons voir que l'effet dispersif des interactions dipolaires peut être minimisé en modélisant les aimants par des charges magnétiques.

Spectre dans un modèle de charges Le modèle de charges magnétiques (cf. fig. 4.5a), expliqué au second chapitre §2.3.2, permet une modélisation des réseaux de nanoaimants plus fidèle à la réalité. Möller et Moessner ont montré que l’extension spatiale des dipôles réduit l’impact des interactions à longue portée sur la dispersion de la bande *ice rule*. La longueur d’un aimant est comprise entre 0 (dipôle ponctuel) et 1 (en unité de paramètre de maille a). Si les aimants ont une extension importante ($l \rightarrow 1$), les charges magnétiques se trouvent très proches les unes des autres au centre des vertex. Cela renforce considérablement les couplages entre premiers voisins J_1 et J_2 mais n’influence que très peu les interactions d’ordre supérieur $J_{n>2}$. Par conséquent, une longueur de dipôle l proche de 1 peut mener à une situation où $J_1, J_2 \gg J_{n>2}$. Le système peut alors mieux approcher le modèle de glace carrée [63].

La longueur des aimants a aussi pour effet de diminuer la surélévation requise pour avoir $J_1 = J_2$. La raison est géométrique : le renforcement des interactions dans modèle de charges est plus conséquent sur J_2 que sur J_1 . Pour s’en convaincre, avec $h > 0$ et $l = 1$ nous pouvons imaginer mettre en contact les charges magnétiques d’un même sous-réseau, alors que les charges des aimants perpendiculaires resteront au minimum distantes de h . Le graphe en figure 4.5b représente le rapport $\frac{E_1}{E_2}$ en fonction de la surélévation h et de l’allongement des dipôles l . La ligne de niveau noire représente la condition $\frac{E_1}{E_2} = 1$, pour laquelle la dégénérescence des vertex *ice rule* est rétablie. Il apparaît que h_{ice} est d’autant plus faible que l est élevée. Cette propriété est intéressante d’un point de vue expérimental car elle diminue les surélévations à introduire dans les réseaux de nanoaimants.

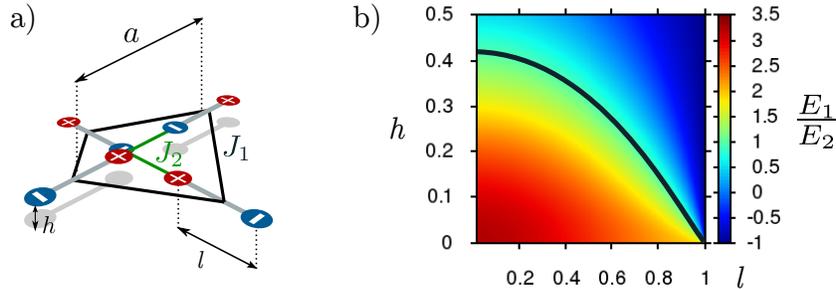


FIGURE 4.5 – a) Schéma d’un vertex surélevé avec des spins modélisés par des charges magnétiques $\pm q$. b) Graphe montrant le rapport $\frac{E_1}{E_2}$ en fonction de h et l avec des interactions à courte portée. Le modèle de glace est obtenu sur la ligne de niveau noire $\frac{E_1}{E_2} = 1$.

Cette étude montre que quelque soit la valeur de h , les interactions à longue portée empêchent l’existence d’un état fondamental massivement dégénéré. Mais cela n’est pas nécessairement un obstacle pour l’observation de la physique du modèle de Lieb. Dans un modèle de dipôles ponctuels, à $h = h_{ice}$ la dispersion ΔE est dix fois plus faible que celle du réseau conventionnel. En tenant compte de l’allongement des dipôles, elle diminue encore. La dispersion résiduelle n’est pas nécessairement problématique. En effet, en travaillant à température finie T telle que $k_B T \sim \Delta E$, le réseau devrait explorer les états *ice rule* d’une manière similaire au cas idéal. Mais à $T \rightarrow 0$, le réseau doit toujours s’ordonner dans l’état AF ou M. Nous pouvons conclure que dans le réseau carré, les interactions à longue portée ne s’écrantent pas aussi bien que dans le cas des glaces de spin dipolaires. Pour ces dernières, une équivalence projective annihile presque parfaitement les termes d’interaction dipolaire à longue portée [35]. L’équivalence projective ne semble pas s’appliquer au cas de la glace

carrée bidimensionnelle. Pour aller plus loin, nous allons maintenant modéliser le système avec plus de finesse au moyen de simulations micromagnétiques. Nous pourrions ainsi estimer les surélévations pertinentes d'un point de vue expérimental.

4.1.2 Étude micromagnétique

Le modèle de charges prend en compte l'allongement des dipôles, mais néglige leurs extensions latérale, verticale, ainsi que les effets micromagnétiques. Thonig *et al.* ont modélisé le réseau carré de manière plus réaliste en intégrant les interactions dipolaires sur tout le volume des aimants [100]. Ils ont toutefois négligé le micromagnétisme de ces objets en les considérant comme uniformément aimantés. Nous allons dans cette partie modéliser les vertex de manière plus précise grâce aux simulations micromagnétiques. Nous calculerons les niveaux d'énergie des quatre types de vertex pour différentes géométries de nanoaimants. Nous emploierons une méthodologie identique à celle présentée au chapitre précédent. Les aspects techniques sont détaillés au chapitre 2 (cf. §2.2.3). Nous allons calculer micromagnétiquement la surélévation h_{ice} nécessaire pour rétablir la dégénérescence des vertex T1 et T2. Nous nous focalisons sur un vertex isolé. Celui-ci est défini par cinq paramètres géométriques : la longueur des aimants L , leur largeur w , leur épaisseur e , le gap g et la surélévation h . Ces grandeurs sont définies en figure 4.2b. Observons d'abord l'effet de la surélévation pour une géométrie donnée.

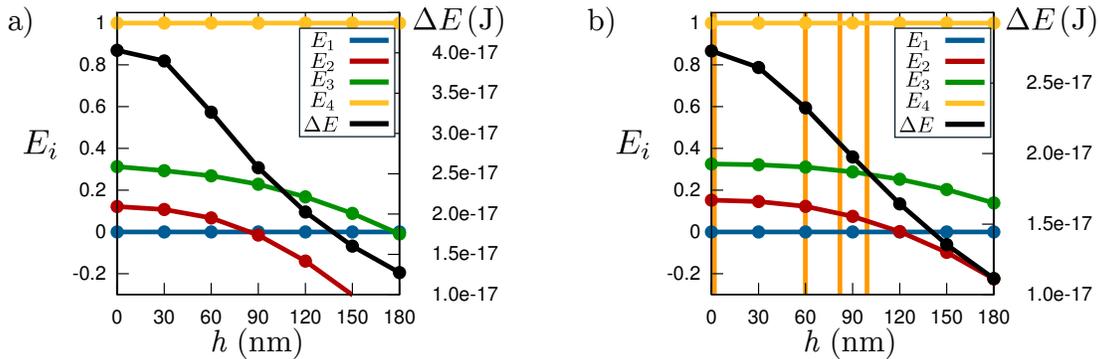


FIGURE 4.6 – Résultats de simulations micromagnétiques montrant l'influence de h sur les quatre niveaux d'énergie d'un vertex, pour deux valeurs de gap : a) $g = 50$ nm et b) $g = 75$ nm. Les barres oranges verticales indiquent les géométries réalisées expérimentalement. Paramètres : $L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $e = 30$ nm, cellules de $3 \times 3 \times 30$ nm³. Pour rappel, nous employons les paramètres du permalloy ($M_s = 8.10^5$ A.m⁻¹, $A = 10^{-11}$ J.m⁻¹, $\gamma_0 = 2.21.10^5$ m.A⁻¹.s⁻¹) et nous fixons l'amortissement à $\alpha = 1$.

Variation du paramètre h Considérons dans un premier temps les paramètres typiques employés expérimentalement ($L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $e = 30$ nm, $g = 50$ nm). La figure 4.6a représente les niveaux d'énergie des vertex en fonction de la surélévation¹. Dans cette simulation, la condition $E_1 = E_2$ est vérifiée pour $h_{ice} = 90$ nm. Comparons cette valeur de h_{ice} avec les prédictions des autres modélisations :

1. Rappelons que cette représentation est normalisée par rapport aux niveaux E_1 et E_4 . C'est pourquoi les niveaux E_2 et E_3 décroissent avec h , alors qu'ils apparaissent constants sur le graphe de la figure 4.1c.

- Pour ce réseau, le paramètre de maille vaut $a = L + 2g = 600$ nm. Pour obtenir $J_1 = J_2$, le modèle de dipôles ponctuels prédit $h_{ice} = 0.419a = 250$ nm.
- Dans cette géométrie, l'extension spatiale des aimants l s'exprime :

$$l = \frac{L}{a} = 0.833$$

Pour obtenir $J_1 = J_2$ le modèle de charges prédit $h_{ice} = 0.12a \sim 60$ nm [63]. Le modèle de charges donne donc une valeur de h_{ice} beaucoup plus proche de celle obtenue micromagnétiquement, par rapport au modèle de dipôles ponctuels. Cette comparaison montre que les effets micromagnétiques doivent être pris en compte car le modèle de charges sous-estime h_{ice} . L'écart est variable puisque les niveaux d'énergie dépendent aussi de la largeur et de l'épaisseur des aimants.

Influence de la largeur des aimants La figure 4.7a représente les niveaux d'énergie d'un vertex pour différentes largeurs d'aimants w . Les autres grandeurs sont maintenues constantes ($L = 300$ nm, $g = 30$ nm). Le rapport d'aspect des aimants est donc variable. La surélévation h est fixée à 66 nm ; pour cette valeur, E_2 est nettement inférieur à E_1 si la largeur w est faible ($w \ll L$). Il apparaît que l'augmentation de w provoque une augmentation du niveau E_2 . À $w = 120$ nm, les deux premiers niveaux retrouvent presque la même énergie.

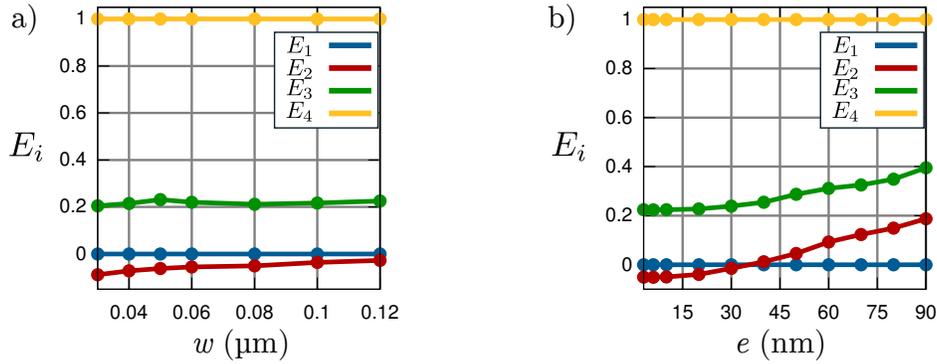


FIGURE 4.7 – a) Effet de la largeur w des aimants sur les quatre niveaux d'énergie d'un vertex. Sur l'intervalle simulé, leur rapport d'aspect varie de 10 à 2.5. Géométrie : $L = 300$ nm, $g = 30$ nm, $h = 66$ nm, $e = 30$ nm, cellules de $3 \times 3 \times 3$ nm³. b) Influence de l'épaisseur e des aimants sur l'énergie des vertex. Géométrie : $L = 300$ nm, $w = 60$ nm, $g = 30$ nm, $h = 81$ nm, $e = 48$ nm, cellules de $3 \times 3 \times 3$ nm³.

L'augmentation de E_2 est attribuable au changement du rapport d'aspect $\frac{l}{w}$ des aimants. Nous avons étudié le rôle de $\frac{l}{w}$ dans le réseau carré conventionnel ($h = 0$) ; les résultats apparaissent en annexe A. D'après eux, dans le réseau conventionnel l'augmentation du rapport d'aspect tend à diminuer l'énergie E_2 . Ce comportement est à l'opposé de ce que nous observons en figure 4.7a. Il est donc propre au réseau surélevé. Un argument géométrique simple explique cette variation : la distance bord à bord entre aimants perpendiculaires diminue lorsque leur largeur augmente. Par conséquent, augmenter w renforce le couplage J_1 , ce qui diminue le niveau E_1 . Dans notre représentation, comme E_1 est placé à l'origine des énergies cela se traduit par une augmentation de E_2 . Ce résultat nous apprend que les

réseaux d'aimants à rapport d'aspect élevé (longs et fins) nécessitent des surélévations h_{ice} plus faibles.

Rôle de l'épaisseur Les niveaux d'énergie représentés en figures 4.6 et 4.7a ont été calculés pour une épaisseur de permalloy $e = 30$ nm. Cette valeur n'est pas négligeable devant le paramètre de maille. Cela soulève la question de l'influence de l'épaisseur des aimants e sur h_{ice} . Les niveaux en 4.7b montrent qu'elle joue effectivement un rôle. Dans cette simulation, h est fixé à 81 nm. Pour les faibles épaisseurs, nous sommes dans la situation $E_2 < E_1$. Mais lorsque $e \approx h$, les niveaux obtenus sont similaires à ceux du réseau conventionnel. Il faudrait fortement augmenter h pour retrouver la condition $E_2 < E_1$. La surélévation requise pour avoir $E_1 = E_2$ augmente donc avec e . Cela s'explique par deux arguments simples :

- la distance entre aimants d'un même sous-réseau reste inchangée quelque soit leur épaisseur ;
- Pour des aimants épais, h rapproche les extrémités des aimants perpendiculaires.

En plus de cet aspect géométrique, l'effet du micromagnétisme est aussi à prendre en compte. Dans des aimants épais ($e > 20$ nm) l'aimantation se relaxe dans la direction verticale. La distribution d'aimantation calculée au centre d'un vertex T1 apparaît en figure 4.8, pour $h=60$ nm et $e=48$ nm. La configuration micromagnétique dans le plan xOy est similaire à celle décrite au chapitre 2 pour $h = 0$ (cf. fig. 2.12). Cependant, la vue latérale (cf. fig. 4.8b) révèle une nouvelle richesse apportée par la surélévation : l'aimantation sort du plan des aimants pour se fléchir dans la direction Oz . L'influence de l'épaisseur des aimants sur h_{ice} résulte donc d'effets géométriques et micromagnétiques.

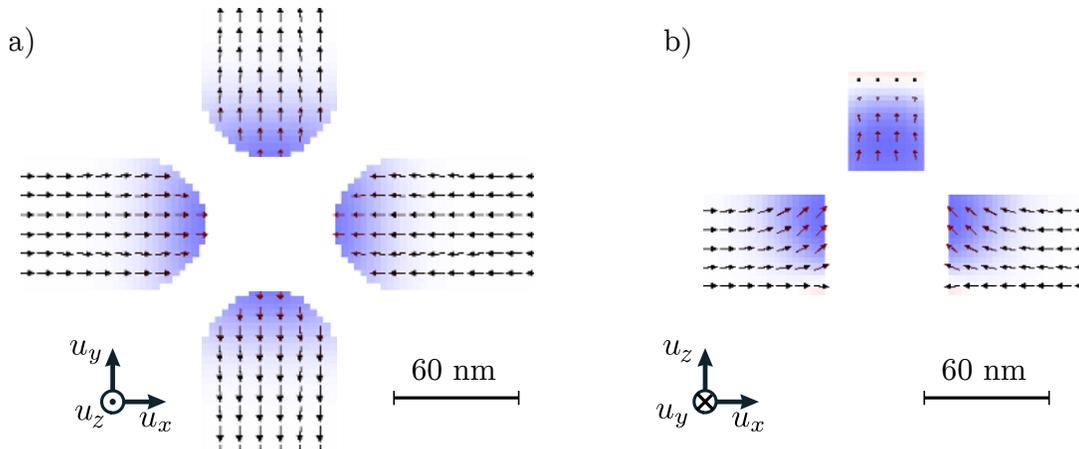


FIGURE 4.8 – Simulation micromagnétique d'un vertex T1, observé a) dans l'axe (Oz) et b) dans l'axe (Oy). Le contraste bleu indique la composante verticale de l'aimantation. Elle sort du plan des aimants au niveau du centre du vertex. Géométrie : $L = 300$ nm, $w = 60$ nm, $g = 30$ nm, $h = 60$ nm, $e = 48$ nm, cellules de $3 \times 3 \times 3$ nm³.

Influence de l'extension spatiale des aimants Nous n'avons pas encore étudié l'influence de l'extension spatiale des aimants l . Celle-ci est déterminée par la valeur de g , car $l = 1 - 2\frac{g}{a}$. Nous avons vu que h_{ice} diminue avec le gap dans un modèle de charges magnétiques (cf. §4.1.1). Les simulations micromagnétiques confirment cet effet. Les graphes 4.6a)

et b) comparent les niveaux d'énergie obtenus pour deux gaps. Il apparaît clairement que h_{ice} diminue pour les faibles gaps. Varier le gap entre aimants pourrait être un bon moyen de réaliser différents modèles, à h fixé. Cependant, il est expérimentalement problématique d'agir sur ce paramètre. Avec des gaps trop élevés ($g > \frac{L}{5}$), les aimants interagissent trop faiblement. Une désaimantation (thermique ou en champ tournant) ne parviendrait alors pas à amener le réseau dans ses états de basse énergie. À l'inverse, des gaps trop faibles ($g < \frac{L}{10}$) rendent difficile l'alignement des sous-réseaux au moment de la fabrication des échantillons. Ces aspects techniques seront abordés dans la section 4.3.

La largeur totale des spectres $\Delta E = E_4 - E_1$ est aussi affectée par la surélévation (cf. fig. 4.6). En éloignant les sous-réseaux, l'interaction J_1 perd de son intensité. L'amplitude du spectre s'en voit ainsi diminuée. Par exemple, pour la géométrie $500 \times 100 \times 30 \text{ nm}^3$, $E_4 - E_1$ est 30% plus faible pour $h = h_{ice}$ que pour $h = 0$. Une fréquence d'apparition de vertex chargés plus élevée est donc prévisible dans les réseaux surélevés.

Conclusion Dans cette section, nous avons étudié les propriétés énergétiques du réseau carré surélevé. D'après notre analyse théorique, il existe une surélévation critique h_{ice} pour laquelle le réseau présente un état fondamental massivement dégénéré. La valeur de h_{ice} dépend du modèle choisi (dipôle ponctuel, dipôle de charges, micromagnétisme). Les interactions dipolaires à longue portée sont à l'origine d'une levée de dégénérescence des états de basse énergie. Ces termes dipolaires ne s'écrantent pas aussi bien dans le réseau carré que dans les glaces de spin dipolaires. Les simulations micromagnétiques permettent d'identifier la surélévation critique h_{ice} à introduire dans un réseau. Celle-ci peut singulièrement s'écarter des estimations faites grâce aux modèles simplifiés. Dans la partie suivante, nous allons montrer numériquement que les corrélations de spin attendues dans le modèle de Lieb peuvent s'établir par désaimantation d'un réseau.

4.2 Phases magnétiques obtenues par désaimantation en champ

Dans la partie précédente, nous avons montré comment h influence les états de basse énergie du réseau carré. Nous nous sommes ensuite intéressés aux propriétés locales d'un vertex en considérant ses degrés de liberté micromagnétiques. Cependant, ces méthodes ne décrivent pas l'évolution d'un réseau qui serait soumis à des fluctuations thermiques ou à un champ magnétique tournant. Pour cela, il faut introduire une dynamique d'évolution décrivant l'effet de ces fluctuations.

Les simulations Monte Carlo sont couramment employées dans le but de décrire les propriétés thermodynamiques d'un réseau de spins. Grâce à cet outil, Thonig *et al.* ont montré que pour $h = h_{ice}$ ² les fluctuations thermiques amènent le réseau vers une phase de basse énergie désordonnée. Celle-ci est constituée de domaines de vertex T1 et T2 imbriqués [100].

Mol *et al.* se sont eux intéressés aux excitations qui émergent à température finie dans un réseau où $h = h_{ice}$ [60]. Au cours de cette thèse, nous avons tenté d'étudier expérimentalement le réseau carré surélevé activable thermiquement. Cette expérience peu concluante fait l'objet

2. Dans leur modèle d'aimants tridimensionnels uniformément aimantés, $h_{ice} = 0.27$.

de l'annexe E. Les résultats présentés dans la troisième section de ce chapitre ont été obtenus par désaimantation. Nous avons développé un outil permettant de simuler l'effet d'un champ tournant sur un réseau. La section suivante est dédiée aux simulations de désaimantation en champ du réseau carré surélevé. Elle nous offrira un socle numérique précieux pour l'analyse de nos résultats expérimentaux.

4.2.1 Désaimantation numérique

Nous avons expliqué au chapitre 2 que la désaimantation est plus complexe qu'un simple « mauvais chauffage » (cf. §1.3.3). Les fluctuations induites par le champ ne sont pas de la même nature que les fluctuations thermiques. Par conséquent, l'espace des configurations est exploré différemment et le procédé peut orienter le réseau vers d'autres états. C'est pourquoi les résultats obtenus par désaimantation s'écartent parfois des prédictions des simulations Monte Carlo. Nous commencerons ici par donner quelques détails techniques sur notre méthode de simulation d'une désaimantation. Nous décrirons ensuite les différentes phases magnétiques que nous avons obtenues numériquement en fonction de h .

Principe des ces simulations Considérons un modèle classique de dipôles ponctuels en interaction dipôle-dipôle. Nous négligeons ici toute température. Les seules influences que peuvent subir les spins sont le champ magnétique appliqué (énergie Zeeman) et le couplage avec les autres dipôles du réseau. La première étape consiste à définir une assemblée de N spins Ising. Afin de reproduire au mieux les résultats expérimentaux, nous nous plaçons en conditions de bords libres. À chacun des N spins est associé une position sur le réseau carré, une direction et un champ coercitif H_c^n . Il s'agit du champ local à dépasser pour inverser la variable Ising du spin n . Pour reproduire plus fidèlement les défauts d'un réseau réel, nous introduisons une dispersion gaussienne de ces champs H_c^n autour de la valeur moyenne H_c . Il s'agit d'une implémentation commune des imperfections d'un système réel, précédemment employée pour simuler les réseaux artificiels [7]. La probabilité pour un spin n d'avoir un champ coercitif H_c^n s'exprime³ :

$$P(H_c^n) = \frac{1}{\Delta H_c \sqrt{2\pi}} \exp - \frac{(H_c^n - H_c)^2}{2\Delta H_c^2}$$

ΔH_c est la dispersion des champs coercitifs des aimants du réseau. Cette grandeur caractérise le désordre intrinsèque qui est introduit artificiellement dans le système. Pour un réseau parfait, $\Delta H_c = 0$.

À partir de ce point, toutes les étapes de la désaimantation sont parfaitement déterministes. Elles sont représentées sous forme de diagramme en figure 4.9. La désaimantation commence par le choix du champ magnétique initial H_{ini} et de ses paramètres d'évolution en norme δH et en angle $\delta\alpha$. La valeur de H_{ini} est déterminée par le spin ayant le plus grand champ coercitif H_c^n .

3. Pour des valeurs de ΔH_c importantes et des réseaux de grande taille, cette distribution peut associer des champs coercitifs négatifs à certains spins. Afin d'éliminer ces cas qui n'ont pas de sens physique, les spins concernés voient leur champ H_c^n réattribué. Il en est de même pour les spins avec $H_c^n > 2H_c$. La distribution n'est dans ce cas plus purement gaussienne.

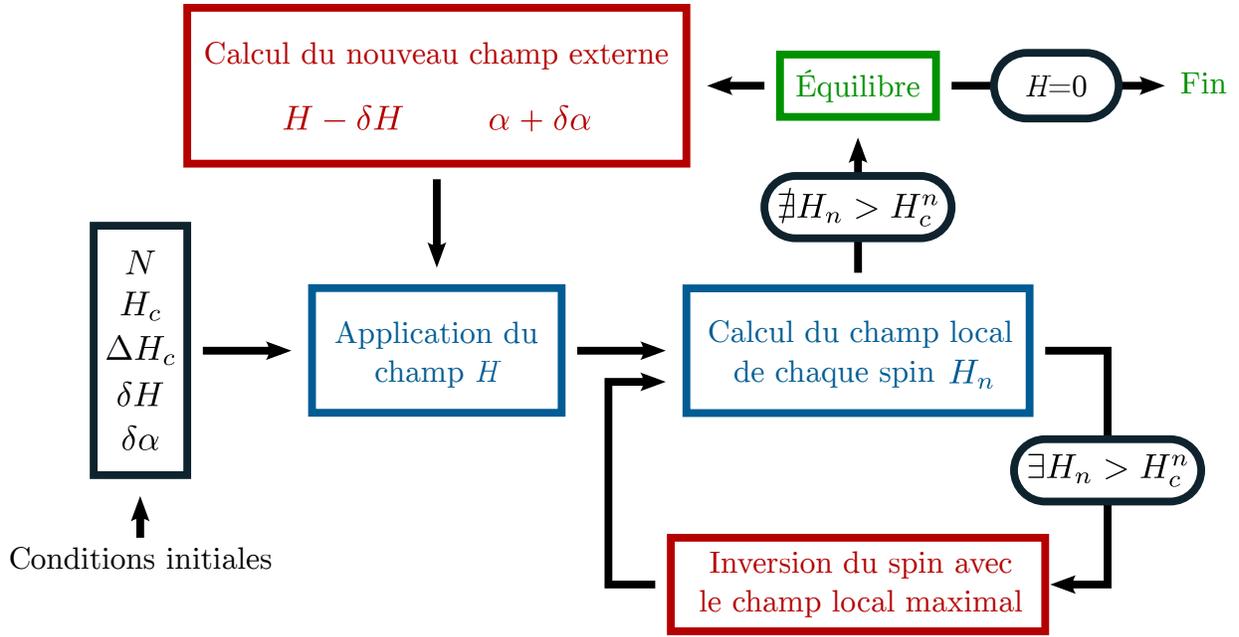


FIGURE 4.9 – Représentation de l’algorithme de désaimantation en champ employé dans ce chapitre.

À chaque itération, les N spins sont interrogés pour calculer leur champ local H_n (champ externe + champ dipolaire projetés sur l’axe du spin). Si H_n est supérieur à H_c^n , cela signifie qu’il est favorable énergétiquement d’inverser le spin, et que H_n est suffisamment important pour que cet événement se produise. S’il existe, le spin ayant le plus d’énergie à gagner et vérifiant cette condition voit sa variable Ising inversée. Comme cet événement influence les spins environnants (et ce d’autant plus que la portée de l’interaction est grande), les spins sont de nouveau interrogés. Cette boucle continue jusqu’à l’équilibre du réseau.

Une fois que le réseau atteint son équilibre, le champ appliqué \mathbf{H} peut évoluer. À chaque itération, sa norme est décrémentée de δH et sa direction tournée d’un angle $\delta\alpha$. L’algorithme progresse jusqu’à ce que le champ externe s’annule, ou qu’aucun événement ne se produise durant un tour complet de champ.

La désaimantation numérique est déterminée par trois paramètres critiques : ΔH_c , δH et $\delta\alpha$. La dispersion des champs coercitifs ΔH_c est intrinsèque à nos échantillons et il est indispensable d’en faire une estimation. Celle-ci peut être faite par comparaison entre simulations et expériences pour des réseaux conventionnels ($h=0$). Une mesure plus directe de ΔH_c a été présentée au chapitre 1, §1.3.3. En effectuant un cycle d’hystérésis sur des aimants isolés, nous avons mesuré $\frac{\Delta H_c}{H_c} = 16\%$. Les deux paramètres restants (δH et $\delta\alpha$) caractérisent l’évolution du champ externe. Dans une désaimantation réelle, \mathbf{H} varie continûment donc δH et $\delta\alpha$ tendent vers zéro. Cependant, le temps de calcul augmente inversement proportionnellement à ces grandeurs. Leur choix résulte donc d’un compromis entre durée et précision des simulations.

4.2.2 Phases ordonnées dans le réseau carré

Nous avons établi au §4.1.1 que pour $h < h_{ice}$ ou $h > h_{ice}$, l'état fondamental du réseau se compose respectivement de vertex T1 ou T2. Cette partie a pour but de montrer comment ces phases peuvent apparaître par désaimantation en champ tournant.

Phase AF Pour $h = 0$, le minimum d'énergie de la bande *ice rule* est situé aux points M de l'espace réciproque (cf. §4.1). Par conséquent, le réseau s'ordonne dans l'état AF, qui est deux fois dégénéré. Mais la désaimantation ne permet d'approcher que partiellement cet état fondamental. Généralement, l'état AF s'établit en domaines séparés par des parois. Celles-ci sont aimantées dans leur longueur car elles sont composées de vertex T2. Leur aimantation peut parfois faire une boucle parfaite autour d'un domaine. L'aimantation de la paroi peut aussi changer de direction, ce qui fait apparaître deux vertex T3 de signes opposés confinés dans la paroi. Ces deux cas apparaissent en figure 4.10b. L'état du réseau après désaimantation numérique est similaire à ce qui est obtenu expérimentalement [66] ou dans un état *as-grown* [68].

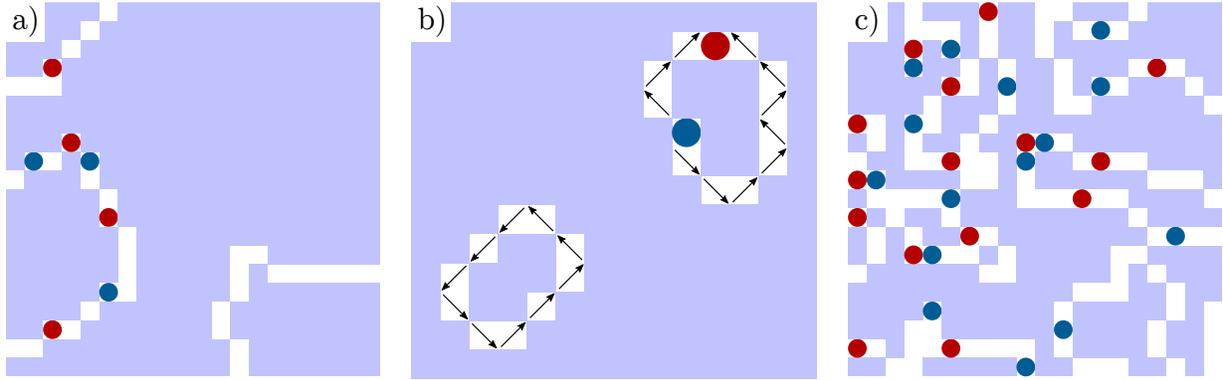


FIGURE 4.10 – Réseaux carrés après désaimantation, pour $h = 0$ et $r_c = 6$. Les zones bleues représentent les domaines d'état AF. Les carrés blancs représentent les vertex T2. Les disques bleus et rouges symbolisent respectivement les charges négatives et positives portées par les vertex T3. a) Réseau de 840 spins avec un désordre $\frac{\Delta H_c}{H_c} = 10\%$. b) Vue agrandie de deux petits domaines AF imbriqués dans un autre plus étendu, faisant apparaître l'aimantation des parois. Celle du domaine de gauche boucle sans défauts. Ce n'est pas le cas du domaine de droite, pour lequel deux défauts T3 sont apparus dans la paroi. c) Réseau de 840 spins avec une dispersion $\frac{\Delta H_c}{H_c} = 50\%$. La taille des domaines a diminué et de nombreuses paires de vertex T3 sont apparues.

La taille des domaines AF dépend de la dispersion des champs coercitifs δH_c . Lors de la désaimantation, la croissance de l'état fondamental s'amorce sur un site de nucléation. Ce site est généralement un spin possédant un champ coercitif H_c^n singulièrement plus élevé que son entourage. Les simulations montrent que pour $\Delta H_c = 0$, l'état AF ne parvient même pas à apparaître pendant la désaimantation et le réseau reste saturé. Le paramètre ΔH_c offre un contrôle de la densité de sites de nucléation. Plus il est élevé, plus la taille des domaines diminue et la fréquence d'apparition de défauts augmente.

Remarquons que deux types de vertex chargés se distinguent. Certains apparaissent lorsque l'aimantation d'une paroi de domaine s'inverse (cf. fig. 4.10b). Ou alors, lorsque la dispersion ΔH_c est importante, certains spins peuvent avoir un champ coercitif H_c^n singulièrement plus élevé que leur entourage. Ils seront les premiers à se figer au cours de la désaimantation. Ils constitueront des sites de nucléation pour l'état fondamental, ou deviendront des défauts. Ce dernier cas se matérialise par des paires de vertex T3 agglomérées, portant deux charges opposées. Quatre de ces paires sont visibles sur la configuration en figure 4.10c.

À surélévation nulle, l'établissement de la phase AF ne dépend pas des termes d'interaction à longue portée. Ils pourraient cependant influencer la taille des domaines AF et la structure de leurs parois.

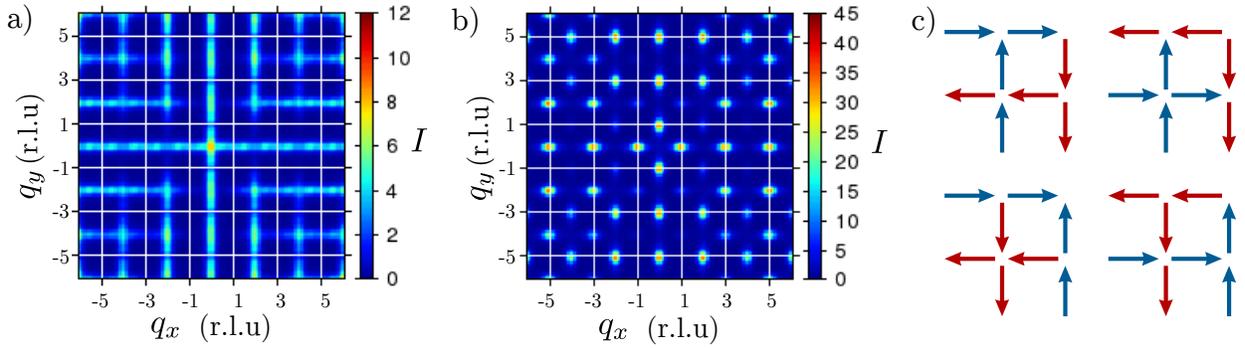


FIGURE 4.11 – Comparaison des facteurs de structure obtenus après désaimantation numérique d'un réseau de 12800 spins avec $h = 1$. a) Termes dipolaires J_1, J_2 seulement (phase F). b) Termes dipolaires jusqu'à $r_c = 6$ (phase M). c) Représentation de la maille unité pour les quatre états Manhattan dégénérés.

Phase ferromagnétique Le cas $h = 1$ se révèle tout aussi riche. À cette surélévation, le réseau est en quasitotalité composé de vertex T2. Les spins forment des lignes qui traversent tout le réseau. Dans un modèle avec des interactions à courte portée (J_1, J_2), ces lignes n'interagissent pas entre elles. Tous les états pour lesquels $\rho_2 = 1$ ont la même énergie et le réseau se trouve dans la phase F. C'est pourquoi l'état M, qui n'est qu'un cas particulier de la phase F, ne peut pas s'établir sous l'effet des interactions premiers voisins. Le facteur de structure de la phase F est représenté en figure 4.11a. Il ne possède pas de pics de Bragg magnétiques, ce qui prouve que le réseau est désordonné. Cependant, l'intensité est confinée sur les droites ($q_x, q_y = n\pi$), avec $n \in \mathbb{Z}$. Les spins sont donc fortement corrélés.

L'ajout de termes d'interaction d'ordre plus élevé introduit un couplage antiferromagnétique entre les lignes de spins. Celui-ci lève la dégénérescence de la phase F et permet la formation de l'état M. Cela se traduit par l'émergence de pics de Bragg magnétiques en X sur le facteur de structure de la figure 4.11b. Les mailles élémentaires des quatre états M dégénérés sont représentées en figure 4.11c. Ils s'obtiennent par réflexion de chaque ligne de spins indépendamment des autres. L'observation de l'intensité en X sur le facteur de structure nous permettra de déterminer si les interactions à longue portée jouent un rôle significatif dans les réseaux expérimentaux.

Phase Manhattan Pour $h = 1$, si les interactions sont à longue portée, l'état M est l'état fondamental du réseau. Dans les simulations de désaimantation, il n'est que très partiellement approché. La figure 4.12a montre une configuration désaimantée pour $h = 1$. Dans cet exemple, nous avons $\rho_2 = 0.95$ et $\rho_3 = 0.05$ seulement. Les vertex T1 ont complètement disparu du réseau car, pour une telle surélévation, $E_1 > E_3$ (voir les niveaux d'énergie en fig. 4.1c). Les statistiques de vertex semblent indiquer que le réseau se trouve proche de son état fondamental, pour lequel $\rho_2=1$. Cependant, les domaines M sont peu étendus par rapport aux domaines AF du paragraphe précédent. La difficulté d'obtenir l'état M dans le cas $h = 1$

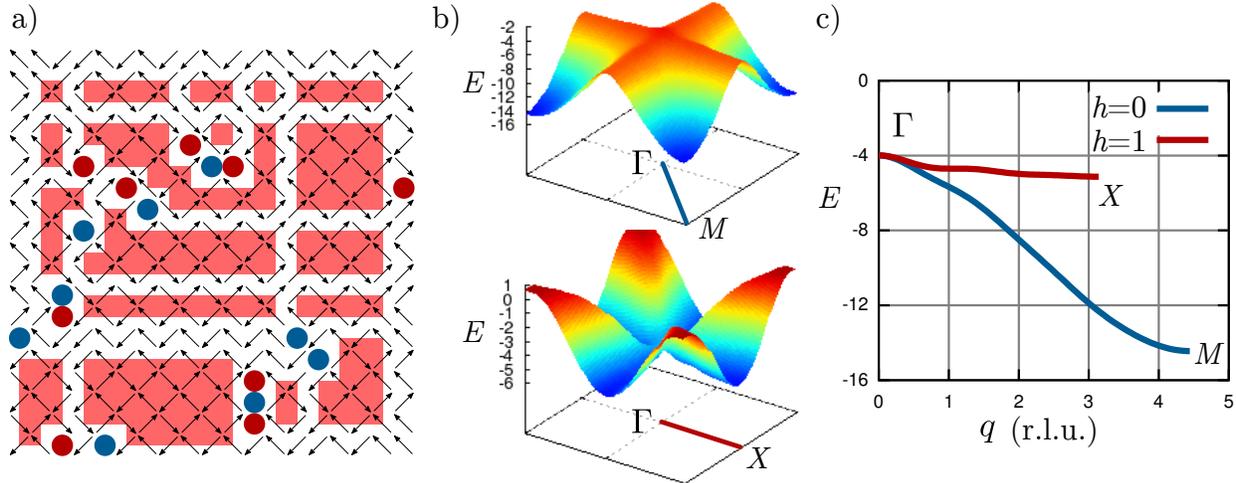


FIGURE 4.12 – a) Réseau de N spins après désaimantation, pour $h = 1$, $\Delta H_c = 10\%$ et $r_c = 6$. Chaque flèche représente l'aimantation moyenne des quatre spins d'un vertex T2. Les régions en rouge correspondent aux domaines d'état Manhattan. Les disques bleus et rouges indiquent les vertex chargés T3. b) Bandes de basse énergie dans la première zone de Brillouin, pour $h = 1$ (en haut) et $h = 0$ (en bas) avec des interactions jusqu'à $r_c = 6$. c) Coupes de ces bandes selon un segment reliant le point Γ au point correspondant à l'état fondamental (M ou X).

est surprenante, en comparaison des grands domaines d'état AF obtenus pour $h = 0$. Le graphe en figure 4.12c montre que la différence d'énergie entre l'état saturé (état initial de la désaimantation) et l'état fondamental est plus importante pour $h = 0$ que pour $h = 1$. Par conséquent, l'état M est plus difficile à atteindre que l'état AF en désaimantation. Ce phénomène trouve deux origines :

- Pour $h < h_{ice}$, la levée dégénérescence de la bande inférieure et l'apparition de minima d'énergie en M sont attribuables aux interactions à courte portée. Pour $h > h_{ice}$, ce sont les interactions à longue portée, d'intensité plus faible, qui créent les minima d'énergie en X .
- L'état M est quatre fois dégénéré, contre seulement deux pour l'état AF. Comme la nucléation d'un état se fait à de multiples endroits du réseau (selon la valeur de ΔH_c), toutes les formes d'état fondamental apparaissent de manière a priori équiprobable. C'est pourquoi l'état M se trouve plus fragmenté.

D'après nos simulations, pour $h = 0$ la désaimantation a la capacité d'ordonner un réseau dans un état AF presque parfait. Pour $h = 1$, l'état obtenu dépend de la portée des inter-

actions. Si celles-ci sont à courte portée, le réseau se trouve dans la phase F désordonnée. Avec les interactions dipolaires à longue portée, l'état M peut s'établir mais de façon très fragmentée. Intéressons nous maintenant au cas des surélévations intermédiaires.

4.2.3 Liquide de spin ou coexistence de phases AF/M

Nous avons pour le moment décrit les cas extrêmes $h = 0$ et $h = 1$, dans lesquels un ordre s'établit à des échelles plus ou moins grandes. Les cas intermédiaires sont plus complexes à analyser. La figure 4.13 représente les populations de vertex ρ_i en fonction de h , pour des couplages J_1, J_2 ou avec des interactions dipolaires à longue portée. Nous avons montré au chapitre 2 que les populations attendues dans le modèle de Lieb sont du type $\rho_1 = 0.378$ et $\rho_2 = 0.622$ (cf. §2.4.3). Mais à $h = h_{ice}$ les populations observées dans nos simulations présentent un fort excès de vertex T2. Nous imputons cette différence à la cinétique de désaimantation.

Différences induites par la cinétique Plaçons-nous dans le modèle J_1, J_2 pour lequel $h_{ice} = 0.419$. À cette surélévation, $\rho_2 = 0.79$ au lieu des $\rho_2 = 0.622$ attendus dans le modèle de Lieb. Le facteur de structure en figure 4.13e montre qu'à $h = 0.4$ le réseau se trouve plutôt dans la phase F, comme si $h > h_{ice}$. L'effet est encore plus marqué dans le cas des interactions à longue portée. Cette fois, $h_{ice} = 0.44$; pour cette surélévation, $\rho_2 = 0.88$. Le facteur de structure en figure 4.13j montre qu'à $h = 0.4$ le réseau est déjà localement ordonné dans l'état M. Cette différence est attribuable à la cinétique induite par la désaimantation en champ tournant. La désaimantation semble stimuler l'apparition de corrélations ferromagnétiques dans le réseau. C'est pourquoi nous observons dans nos simulations le changement de modèle à une surélévation $h < h_{ice}$. Les populations correspondantes au modèle de Lieb sont obtenues pour des surélévations environ 20% inférieures à celles prédites énergétiquement. La comparaison de nos données avec des simulations Monte Carlo, qui ont une cinétique de type thermique, permettrait sans doute de confirmer cette hypothèse.

Disparition de l'ordre pour des couplages J_1, J_2 Intéressons-nous aux facteurs de structure obtenus dans le cas des couplages à courte portée (cf. fig. 4.13b, c, d, e). Les pics de Bragg en M disparaissent dans l'intervalle $0.2 < h < 0.3$, ce qui signifie que l'état AF n'est plus présent pour $h > 0.3$. La concentration du signal sur les axes ($q_x = 0$), ($q_y = 0$) ne se produit qu'entre $0.35 < h < 0.4$. Par conséquent, le réseau est désordonné dans l'intervalle $0.3 < h < 0.35$. Le facteur de structure possède une allure très similaire à celui attendu dans le modèle de Lieb. Les points de pincement qui traduisent l'existence d'une phase de Coulomb sont bien présents. La désaimantation amène donc avec succès le réseau dans la phase de basse énergie recherchée.

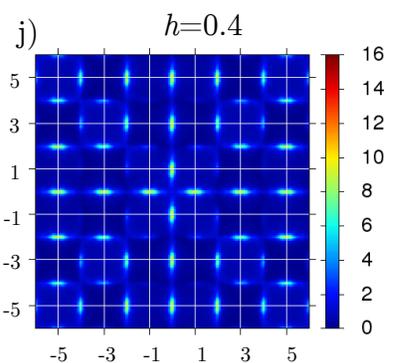
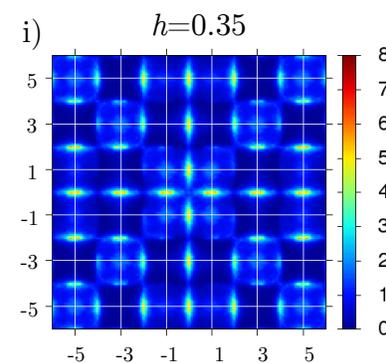
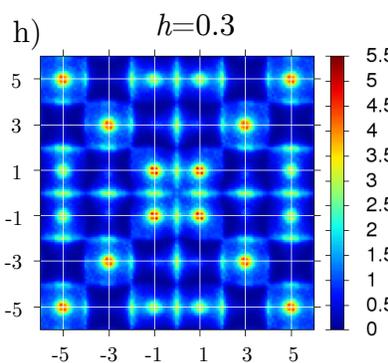
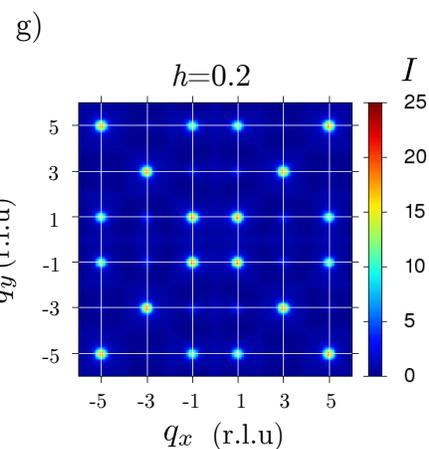
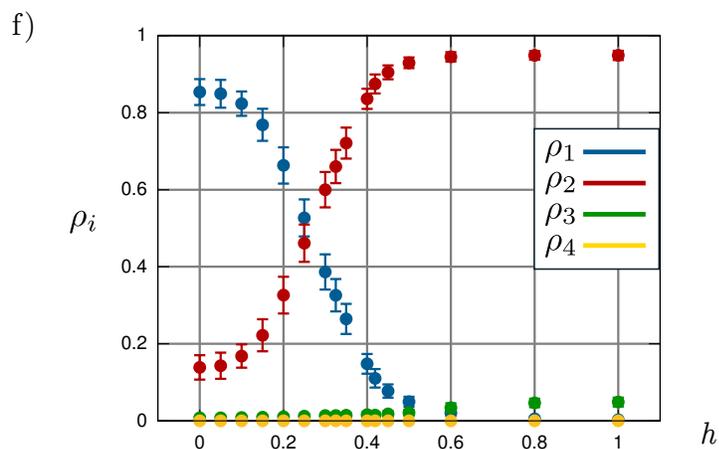
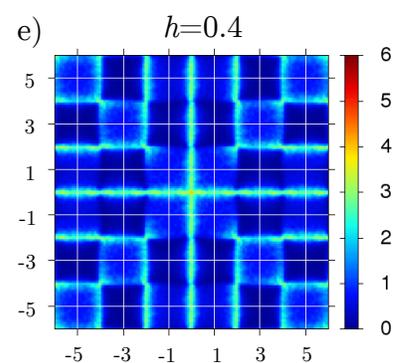
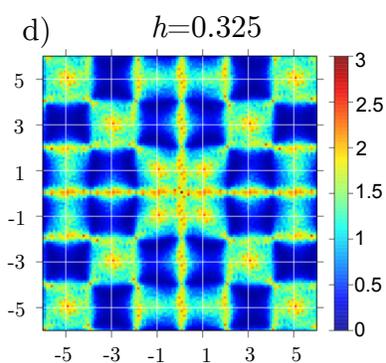
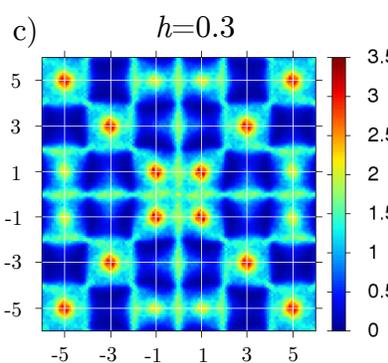
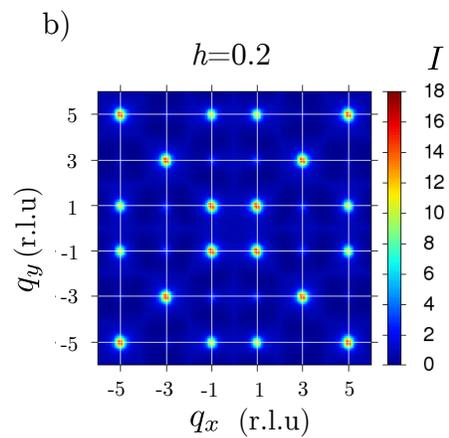
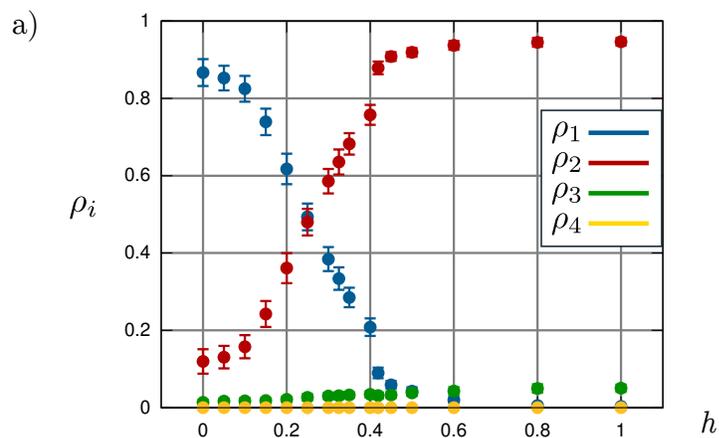


FIGURE 4.13 – Désaimantation numérique pour différentes surélévations h et deux portées d'interaction dipolaire : de a) à e) modèle avec interactions premiers voisins. De f) à j), modèle avec interactions jusqu'à $r_c = 20$. Les réseaux sont constitués de 840 spins (taille expérimentale). Chaque point et chaque facteur de structure résultent de la moyenne de 100 réalisations. Les barres d'erreur sur ρ_i représentent l'écart type calculé sur les populations des 100 réalisations.

Interactions à longue portée et coexistence de phases Avec des interactions dipolaires à longue portée, le réseau se comporte de façon singulièrement différente. Les facteurs de structure correspondants sont en figure 4.13g, h, i, et j. Les phases AF et M semblent subsister dans des intervalles de surélévations plus larges. L'état AF disparaît maintenant pour $h > 0.35$ tandis que la phase M apparaît à partir de $h > 0.3$. Nous observons une coexistence des deux phases sur l'intervalle $0.3 < h < 0.35$. Cela signifie que le réseau reste localement ordonné, ce qui empêche l'apparition de la phase désordonnée du modèle de Lieb. Des points de pincement semblent se dessiner dans le fond diffus des facteurs de structure, mais des pics de Bragg magnétiques subsistent. La phase de Coulomb ne peut donc pas s'établir dans un réseau avec des interactions à longue portée. Cette affirmation n'est valable que dans le cas d'un champ magnétique tournant. Une désaimantation par un champ aléatoire pourrait mener à des résultats différents [7].

Conclusion de cette étude numérique La désaimantation en champ tournant permet d'amener le réseau dans un état AF presque parfait lorsque $h \ll h_{ice}$. Pour $h \gg h_{ice}$, le réseau entre dans la phase F ou M selon la portée des interactions considérées. L'état M s'établit plus difficilement car il se forme sous l'effet des interactions à longue portée. L'observation de l'intensité aux points X du facteur de structure nous permettra d'estimer l'importance des ces termes dipolaires dans nos réseaux expérimentaux.

La surélévation critique h_{ice} correspondant à la transition de l'état AF vers l'état M (ou F) est inférieure à celle prédite énergétiquement. Cette différence est attribuable à la cinétique induite par la désaimantation. La portée des interactions considérées joue un rôle majeur. Avec des couplages premiers voisins, pour $h = 0.8h_{ice}$ le réseau présente un facteur de structure diffus similaire à celui attendu dans le modèle de Lieb. Mais dans le cas d'interactions dipolaires à longue portée, un ordre magnétique subsiste toujours. Le système transite alors continûment de l'état AF à l'état M. Pour des surélévations intermédiaires, les deux phases coexistent. Ces informations nous permettront d'interpréter les résultats expérimentaux qui font l'objet de la section suivante.

4.3 Résultats expérimentaux

Dix ans après la proposition de Möller et Moessner [63] plusieurs études théoriques et numériques ont été menées [12, 60, 100]. Mais à ce jour, aucune réalisation expérimentale d'un tel réseau de nanoaimants n'a été reportée dans la littérature. Il est certain que les glaces de spin artificielles présentent une grande flexibilité au niveau de la conception « dans

le plan ». Mais leur fabrication se complique lorsque les nanostructures doivent évoluer dans la troisième dimension. Les techniques de microfabrication (lithographie, dépôt ou gravure physique) sont essentiellement projectives. Par conséquent, des étapes successives alignées sont nécessaires pour créer un objet tridimensionnel plus complexe.

Cette section est consacrée à la fabrication et à l'étude expérimentale de réseaux surélevés. Les paramètres géométriques que nous employons s'inspirent des simulations micromagnétiques présentées au §4.1.2. Deux approches différentes nous ont permis d'étudier ce nouveau système. La première consiste à faire varier les dimensions des aimants tout en maintenant la surélévation constante. Dans la seconde, les dimensions des aimants sont fixes et la surélévation est variable. Ces approches doivent permettre d'explorer de façon équivalente les différentes phases magnétiques que nous recherchons.

4.3.1 Fabrication et aspects techniques

Le protocole standard de fabrication de nos échantillons est détaillé dans l'annexe B. Le cas du réseau surélevé nécessite quelques adaptations techniques. Nous effectuons une première lithographie pour déposer des cales d'épaisseur h , puis une seconde pour définir le réseau de nanoaimants. La figure 4.14a représente les deux étapes de lithographie et la forme optimale de cales retenue. La tolérance Δ à un désalignement est très faible. Cependant, en choisissant judicieusement les dimensions des cales, cette tolérance peut être maximisée. La situation optimale est obtenue lorsque la largeur des cales w_{cale} et leur longueur L_{cale} vérifient les relations :

$$w_{cale} = \sqrt{2}\left(g + \frac{w}{2}\right) \quad L_{cale} = L + w_{cale} - w$$

Dans ce cas, la tolérance Δ à un désalignement s'exprime :

$$\Delta = \frac{1}{2}(w_{cale} - w) = \frac{1}{\sqrt{2}}g - \frac{w}{2}\left(1 - \frac{1}{\sqrt{2}}\right)$$

Pour un réseau de nanoaimants typique ($L=500$ nm, $w=100$ nm, $g=50$ nm) la tolérance en translation est de $\Delta = 20$ nm. La lithographie électronique atteint des précisions telles qu'elle permet de satisfaire cette exigence. Le désalignement angulaire a été négligé ici. Pourtant, cette source d'erreur s'est aussi avérée problématique. La forme de cale dessinée en pointillés sur la figure 4.14a devrait être plus résistante à ce type de désalignement.

Une première étape de lithographie est destinée à insoler les cales et les croix d'alignement pour chaque champ d'écriture. Ces dernières serviront de référence pour la seconde étape de lithographie⁴. Chaque champ d'écriture contient quatre croix d'alignement et une demi-douzaine de réseaux (cf. masque en fig. 4.15a)). Lors de la seconde étape de lithographie, ces croix permettent d'aligner manuellement le nouveau champ sur le champ précédent en agissant sur les paramètres du faisceau électronique⁵.

Afin de pouvoir détecter les croix d'alignement à travers la résine au microscope électronique à balayage (MEB), elles doivent être constituées d'un matériau ayant une masse

4. Lors de la seconde lithographie, il faut absolument éviter d'exposer aux électrons la résine sur laquelle seront définis les aimants. C'est pourquoi il n'est pas possible d'aligner la seconde étape en utilisant directement les cales. Des croix d'alignement sont donc prévues à cet effet.

5. Le MEB ne disposant pas de platine interférométrique, un alignement mécanique aurait une précision de plusieurs micromètres.

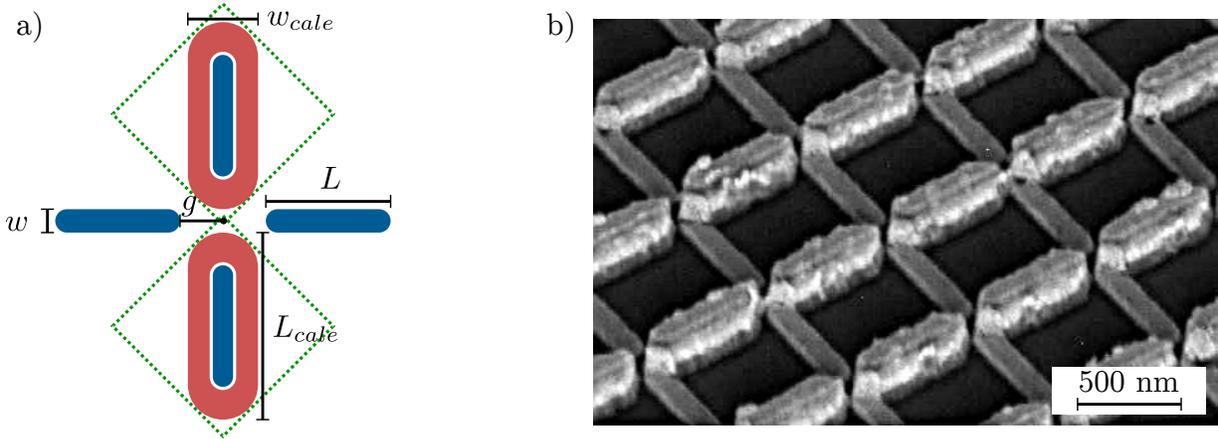


FIGURE 4.14 – a) Schéma des deux étapes de lithographie montrant les cales (en rouge, première étape) et les aimants (en bleu, seconde étape). b) Image MEB prise à un angle de 45° montrant un réseau correctement aligné.

atomique très différente de celle du silicium qui compose le substrat. L'or est un matériau de choix pour offrir un contraste à travers la résine ($M_{Au} = 197 \text{ g mol}^{-1}$ et $M_{Si} = 28 \text{ g mol}^{-1}$). De plus, il présente l'avantage d'être diamagnétique ($\chi_{Au} = -2.8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$ (cgs) à 300 K). Ce détail est important car ce matériau, qui constitue aussi les cales, ne doit pas interagir magnétiquement avec les nanoaimants. Sur ce point, les cales n'auront pas plus d'influence que le substrat de silicium, qui est lui aussi diamagnétique ($\chi_{Si} = -3.12 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$ (cgs) à 300 K)⁶.

L'enduction de résine pour la seconde lithographie pourrait être problématique car son épaisseur est comparable à celle des cales. Des variations d'épaisseur similaires à celles représentées en figure 4.15b sont alors prévisibles. Si tel était le cas, une diminution de l'exposition aux électrons du sous-réseau surélevé serait nécessaire. Cette méthode de fabrication nous a permis d'obtenir des réseaux satisfaisants, avec un taux de succès situé entre 10 et 20% selon les paramètres des réseaux. Nos réseaux sont composés de nanoaimants de permalloy, d'une épaisseur de 30 nm.

Inconvénients du procédé L'épaisseur de résine servant à définir les cales est d'environ 120 nm. Celle-ci est du même ordre de grandeur que les valeurs h_{ice} requises pour nos géométries (cf. simulations micromagnétiques §4.1.2). Cependant, pour que l'étape de *lift off* se déroule correctement il est recommandé d'avoir une épaisseur de résine bien supérieure à la couche métallique déposée⁷. Pour créer des cales d'épaisseur supérieure à 100 nm, il faudrait employer une résine plus épaisse. Mais cela pourrait avoir un impact négatif sur la résolution de la lithographie.

La rugosité des cales est également problématique. Elles sont constituées d'une couche d'or épaisse déposée par évaporation. Leur surface est de moins bonne qualité que celle du substrat de silicium; cet effet est visible sur l'image MEB de la figure 4.14b. La rugosité

6. Nous négligeons les effets de surface qui peuvent apparaître aux interfaces.

7. Il faut assurer une discontinuité entre les zones à enlever et les zones à conserver. Sans cela, le solvant ne pourrait pas dissoudre la résine. Se référer à l'annexe B pour plus de détails sur l'étape de *lift off*

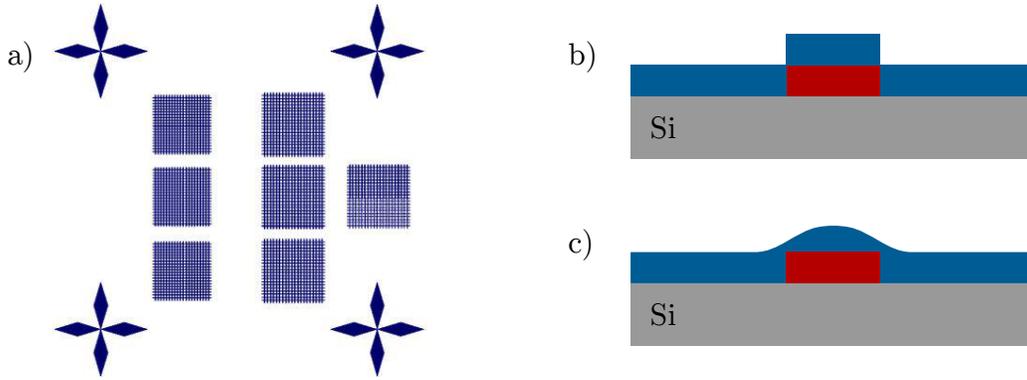


FIGURE 4.15 – a) Masque correspondant à un champ d’écriture de $80\ \mu\text{m}$. Les repères permettant l’alignement des deux couches apparaissent aux quatre angles. b) Illustration d’un étalement idéal de résine sur des cales épaisses. L’épaisseur de résine est homogène. c) Étalement réel présentant des variations d’épaisseur de résine. La résine apparaît en bleu, les cales en rouge.

des cales aura un impact inévitable sur les aimants surélevés, et ce d’autant plus que la couche magnétique qui les constitue sera mince. La distribution des champs coercitifs ΔH_c pourrait notamment se trouver élargie. Si la couche magnétique est mince, la rugosité peut aussi affecter le moment magnétique des aimants surélevés. Nous avons peut-être observé cet effet lors de nos expériences sur des réseaux thermiquement actifs (cf. annexe E). Dans la partie suivante, nous allons étudier les phases magnétiques que nous avons obtenues après désaimantation, pour différentes géométries et à h fixé.

4.3.2 Variation de la géométrie à surélévation fixe

Les réseaux carrés comportent 840 aimants. Nous fixons la surélévation à $h=80\ \text{nm}$ et varions de façon proportionnelle les grandeurs L , w , et g . Nous nous focalisons ici sur trois géométries :

- réseau \mathcal{L} : $L=500\ \text{nm}$, $w=100\ \text{nm}$, $g=75\ \text{nm}$;
- réseau \mathcal{M} : $L=350\ \text{nm}$, $w=75\ \text{nm}$, $g=53\ \text{nm}$;
- réseau \mathcal{S} : $L=250\ \text{nm}$, $w=50\ \text{nm}$, $g=37\ \text{nm}$.

Les simulations micromagnétiques en figure 4.16a prouvent que cette méthode permet de réaliser les cas $E_1 > E_2$ (\mathcal{L}), $E_1 = E_2$ (\mathcal{M}) et $E_1 < E_2$ (\mathcal{S}). Pour amener les réseaux dans leurs états de basse énergie, nous employons la désaimantation en champ tournant. La valeur initiale du champ magnétique est de $100\ \text{mT}$ et l’échantillon est en rotation à une fréquence de $40\ \text{Hz}$. Le champ, qui oscille à une fréquence de $250\ \text{mHz}$, est modulé par une droite décroissante. Cette enveloppe diminue linéairement et s’annule en une durée de 70 heures. Observons dans un premier temps l’état des réseaux témoins qui indiquent la qualité de la désaimantation.

Réseaux témoins Dans le but d’avoir des objets de référence, nous avons observé les réseaux conventionnels ($h = 0$) pour les trois géométries étudiées. Les populations mesurées sont représentées en figure 4.16b. Elles révèlent le défaut majeur de cette approche : l’état

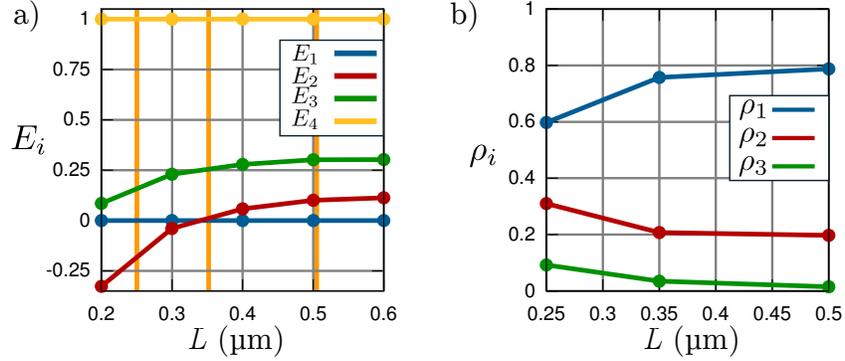


FIGURE 4.16 – a) Simulation micromagnétique montrant, à surélévation h fixée, l’effet de la variation des dimensions des aimants sur les niveaux d’énergie. Paramètres : $w=0.2L$, $g=0.15L$, $e=30$ nm, $h=80$ nm. b) Populations de vertex ρ_i mesurées après désaimantation sur les réseaux témoins ($h=0$) \mathcal{L} , \mathcal{M} et \mathcal{S} . Les barres verticales oranges indiquent les géométries réalisées expérimentalement.

AF ne s’établit pas de la même manière pour les trois réseaux témoins. Pour le réseau \mathcal{S} , $\rho_1 = 0.6$ tandis que pour \mathcal{L} , $\rho_1 = 0.8$. Diminuer la taille des aimants n’est donc pas sans conséquences sur l’approche de l’état fondamental par désaimantation.

Cette observation s’explique par un désordre intrinsèque ΔH_c plus élevé sur les réseaux \mathcal{S} . Les défauts des aimants sont créés par les imperfections de leur procédé de fabrication. Des effets intrinsèques aux matériaux employés (anisotropie, granularité) apportent aussi une contribution aux défauts des réseaux. Les imperfections prennent plus d’importance sur les aimants de petite taille. La fréquence anormalement élevée de vertex T3 mesurée dans le réseau témoin \mathcal{S} accrédite cette hypothèse.

Réseaux surélevés Les réseaux surélevés présentent des états magnétiques tout à fait cohérents avec les niveaux d’énergie simulés micromagnétiquement. Le facteur de structure du réseau \mathcal{S} (cf. fig. 4.17b) traduit clairement une phase F. L’intensité est répartie sur les axes $q_x = 0$ et $q_y = 0$. L’absence d’une surintensité aux points X indique que les interactions à longue portée n’influencent pas le système. Le réseau est cependant loin de sa variété de basse énergie car les vertex T3 représentent 25 % de la population de vertex.

Le réseau \mathcal{M} semble magnétiquement plus désordonné. Des trois, c’est celui qui présente le facteur de structure le plus proche d’un modèle de Lieb idéal. Mais les surintensités sur les axes $q_x = 0$ et $q_y = 0$ indiquent que la population ρ_2 est encore trop élevée. Pourtant, d’après les simulations micromagnétiques ce réseau devrait être dans le cas $E_1 = E_2$. Il est possible que la cinétique de désaimantation soit responsable de l’apparition préférentielle de ces vertex. En revanche, dans le réseau \mathcal{L} un ordre AF s’est nettement établi.

La faiblesse de cette approche tient au nombre de paramètres qui varient. En fixant la surélévation, nous devons changer la longueur, la largeur et le gap de façon proportionnelle pour changer de modèle. Des différences existent même entre les réseaux témoins, ce qui constitue un inconvénient majeur. Pour étudier les différentes phases magnétiques du réseau carré, nous avons alors choisi de travailler à géométrie fixe et surélévation variable. Ces expériences démontrent toutefois notre capacité à changer le modèle continûment.

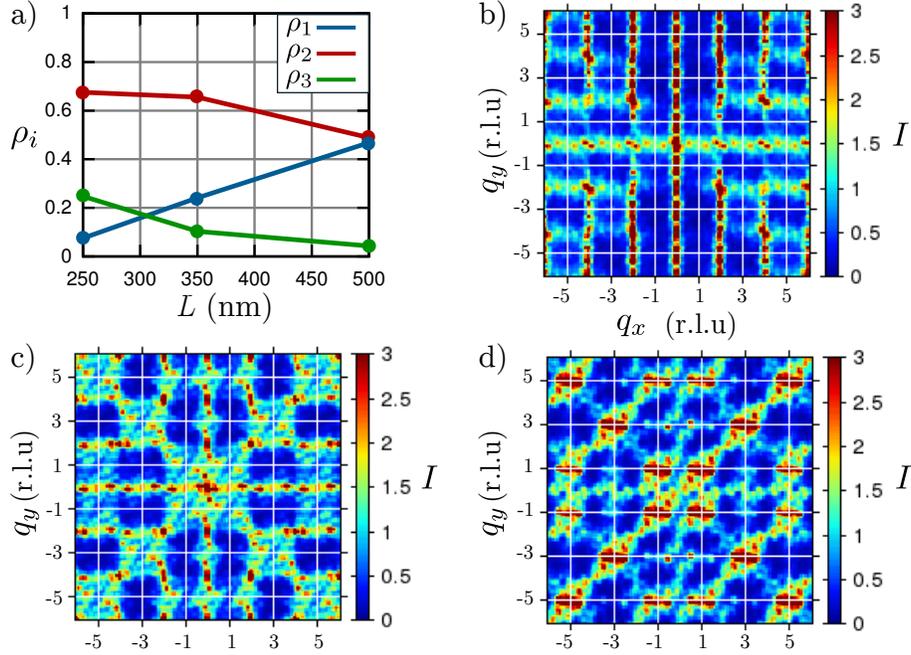


FIGURE 4.17 – a) Populations ρ_i mesurées dans les réseaux surélevés en fonction de L . Les facteurs de structures des trois réseaux \mathcal{S} , \mathcal{M} et \mathcal{L} sont représentés respectivement en b), c) et d). Nous n’avons effectué qu’une seule désaimantation sur ces systèmes.

4.3.3 Variation de la surélévation à géométrie fixe

Nous travaillons maintenant avec des aimants aux dimensions fixes : $L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $e = 30$ nm, $g = 75$ nm. Nous allons étudier l’effet de la surélévation sur leur état magnétique après désaimantation. Nous avons réalisé des réseaux surélevés de $h = 60, 80$ et 100 nm. Chaque échantillon comporte un réseau témoin ($h = 0$) qui est systématiquement observé en tant que référence. Nous employons la même procédure de désaimantation qu’au paragraphe précédent. Les trois échantillons sont désaimantés ensemble, ce qui permet une comparaison directe des résultats. Les simulations micromagnétiques présentées en figure 4.6b correspondent aux géométries employées dans cette partie. Elles montrent que pour ces réseaux, $h_{ice} = 120$ nm. Les surélévations réalisées (60, 80 et 100 nm) ne sont donc pas suffisantes pour inverser les niveaux d’énergie E_1 et E_2 . Dans les trois cas, le vertex T1 reste donc l’état fondamental. Nous allons voir que la cinétique induite par la désaimantation compense cet écart entre les niveaux, et permet d’observer une physique de glace dégénérée dans le réseau $h = 100$ nm. Nous montrerons que les résultats s’expliquent bien par les simulations de désaimantation avec des couplages entre premiers voisins. La signature des interactions à longue portée reste toutefois visible, même si elle n’empêche pas l’observation de points de pincement sur les facteurs de structure expérimentaux.

Réseaux témoins $h = 0$ L’examen des réseaux $h = 0$ révèle que cette désaimantation est très efficace et reproductible. D’après la figure 4.18a qui représente une configuration typique obtenue, les réseaux ont très bien approché l’état fondamental AF. Nous obtenons ici un résultat meilleur que l’état de l’art de la désaimantation (cf. fig. 4.18b). Cela s’explique par

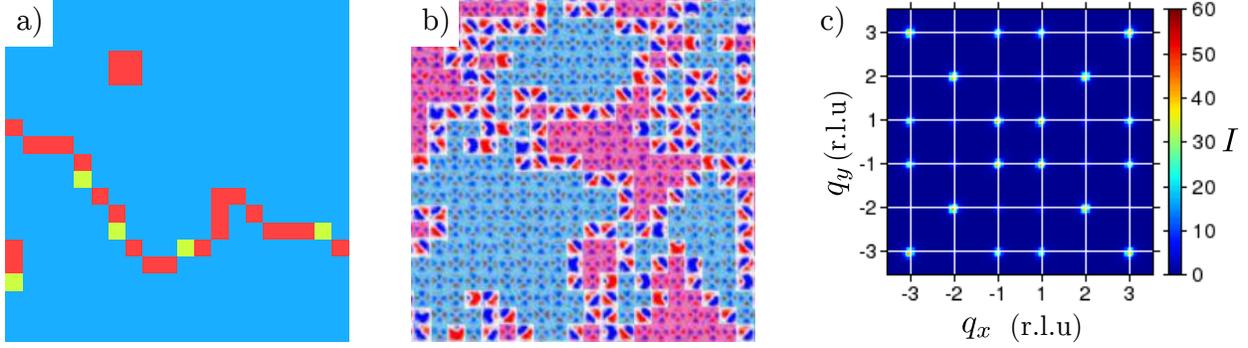


FIGURE 4.18 – Désaimantation des réseaux témoins. a) Exemple d’une configuration magnétique obtenue. Les vertex T1, T2 et T3 sont représentés respectivement en bleu, rouge et jaune. b) Portion de réseau carré désaimanté le plus proche de son état fondamental trouvé dans la littérature [66]. Dans cette fenêtre, qui contient le même nombre de spins que a), l’état AF est beaucoup plus fragmenté. c) Facteur de structure moyen calculé pour sur douze réseaux (quatre désaimantations de trois réseaux).

la décroissance particulièrement lente de notre rampe en champ (70 heures). Les domaines AF observés restent cependant moins étendus que ceux obtenus par recuit thermique au chapitre 3.

Nous avons observé les trois réseaux témoins après quatre désaimantations, faisant au total douze réalisations. Les populations de vertex correspondantes sont reportées dans le tableau 4.1. L’état fondamental AF est atteint lorsque $\rho_1 = 1$. Dans les expériences, cet

| ρ_1 | ρ_2 | ρ_3 | ρ_4 | M_x | M_y | D_{AF} |
|-----------------|-----------------|-----------------|----------|---------------|---------------|-------------|
| 0.86 ± 0.04 | 0.13 ± 0.04 | 0.02 ± 0.01 | 0 | 0 ± 0.003 | 0 ± 0.003 | 87 ± 36 |

TABLE 4.1 – Statistiques calculées sur les réseaux témoins. Les incertitudes correspondent aux écart-types des grandeurs mesurées.

état est fragmenté en domaines séparés par des parois de vertex T2. Le facteur de structure magnétique moyen associé à ces configurations est représenté en figure 4.18c. Des pics de Bragg magnétiques très intenses sont localisés aux points M de l’espace réciproque. Cette observation confirme que nos réseaux sont proches de leur état fondamental AF. L’aimantation résiduelle d’un réseau pris individuellement est en moyenne de 3%. Elle est due à l’aimantation des parois de domaines (les vertex T2 portent un moment magnétique) et aux dimensions finies des réseaux (cf. chap. 2 §2.1.1). La taille D_{AF} des domaines AF semble être le paramètre le moins reproductible. Ils sont en moyenne composés de 87 vertex T1 mais, dans les expériences, D_{AF} varie de 52 à 180. Cet écart s’explique par le faible nombre de domaines présents : les réseaux contiennent entre deux et six domaines. Par conséquent, l’addition d’un domaine fait chuter brutalement leur taille moyenne.

Les simulations de désaimantation en champ reproduisent ces résultats si $\Delta H_c = 10\%$. Les tailles de domaines et les populations obtenues sont alors très proches des valeurs expérimentales. Cette comparaison permet de nous assurer que les paramètres entrés dans les simulations sont pertinents. Remarquons que ce résultat est cohérent avec le cycle d’hys-

térésis mesuré au chapitre 1, §1.3.3. Sur des nanoaimants isolés, nous avons mesuré que $\Delta H_c = 16\%$.

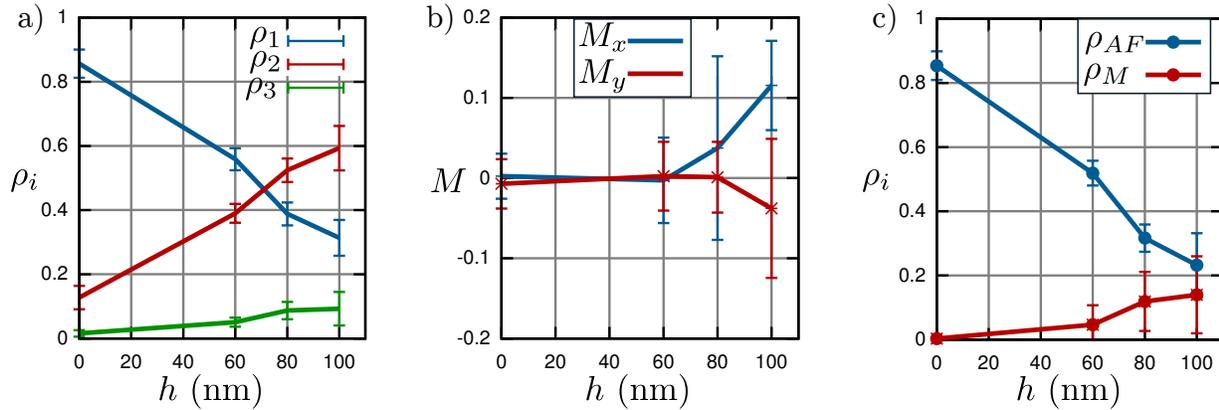


FIGURE 4.19 – a) Populations de vertex ρ_i , b) aimantation rémanente et c) domaines observées dans les réseaux expérimentaux, en fonction de h . Les quatre désaimantations ont été moyennées.

$h = 60$ nm Comme prévu, la surélévation a un fort impact sur les populations de vertex ρ_i et le nombre de domaines AF et M observés. Les résultats obtenus sont synthétisés en figure 4.19. Nous observons clairement une diminution de ρ_1 au profit de ρ_2 lorsque h augmente. Mais pour $h = 60$ nm, les vertex T1 dominent encore avec une fréquence $\rho_1 = 0.56$. La concentration de vertex appartenant aux domaines AF, ρ_{AF} , est inférieure à ρ_1 ($\rho_{AF} = 0.52$). Des vertex T1 isolés, qui étaient absents des réseaux témoins, sont donc apparus. Le facteur de structure associé à $h = 60$ nm est en figure 4.20a. Les pics de Bragg en M se sont élargis. L'intensité est beaucoup plus diffuse que pour $h = 0$, mais elle reste globalement concentrée autour de ces points. Nous pouvons donc conclure qu'à $h = 60$ nm, l'état AF est toujours localement présent mais se trouve fractionné en de multiples domaines. Les simulations de désaimantation donnent des résultats similaires pour $\Delta H_c = 10\%$ et $h = 0.3$.

Expérimentalement, très peu de vertex appartiennent à des domaines M ($\rho_M = 0.05$). La phase Manhattan n'est donc pas présente de façon significative dans les réseaux à $h = 60$ nm. L'existence de quelques domaines M n'est ici qu'anecdotique.

$h = 80$ nm Les populations (cf. fig. 4.19a) montrent qu'à cette surélévation, les vertex T2 sont devenus dominants ($\rho_2 = 0.52$). La proportion de vertex dans la phase AF a encore diminué. L'écart entre $\rho_{AF} = 0.32$ et $\rho_1 = 0.39$ signifie que 18% des vertex T1 sont maintenant isolés. Cette disparition progressive de l'état AF ne se fait pas nécessairement au profit de la phase M. Les vertex T2 sont nombreux dans le réseau, mais seulement 23% d'entre eux appartiennent à un domaine M. Le facteur de structure (cf. fig. 4.20b) confirme ces changements. L'intensité en M est devenue très faible, les pics de Bragg ont disparu. Cela signifie que l'ordre magnétique est en train de disparaître des réseaux, sans coexistence entre les phases AF et M. Sur ce point, nos expériences concordent avec les simulations de désaimantation dans un modèle de couplages premiers voisins J_1, J_2 .

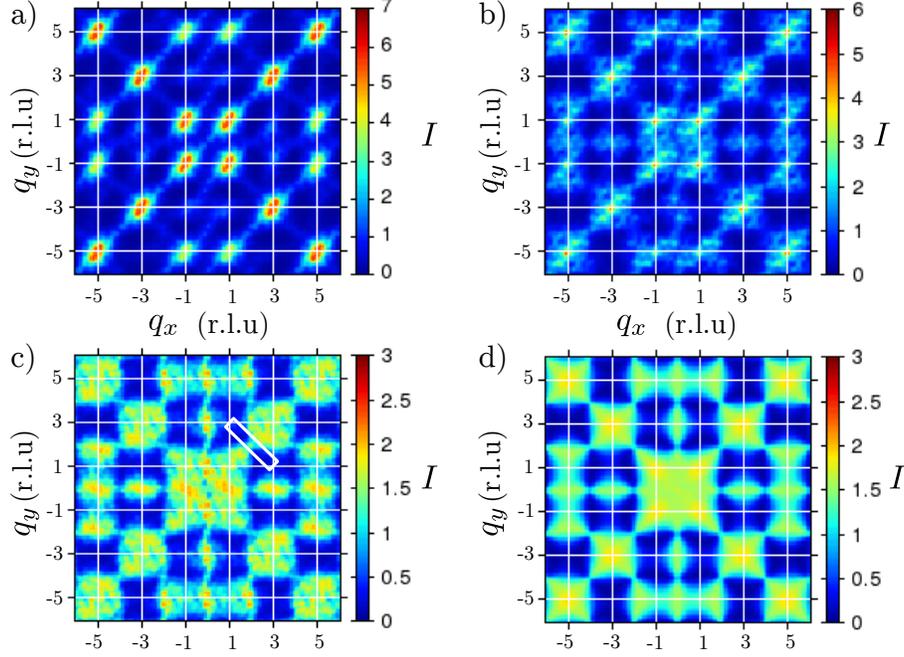


FIGURE 4.20 – Facteurs de structure obtenus pour a) $h = 60$ nm, b) $h = 80$ nm, c) $h = 100$ nm et d) un modèle de Lieb idéal. Les diagrammes a), b), c) sont calculés sur la moyenne de quatre désaimantations expérimentales. d) résulte de la moyenne de 1000 réseaux *ice rule* aléatoires, de même taille que les réseaux expérimentaux.

$h = 100$ nm Les vertex T1 ne représentent maintenant plus que 31.5% de la population. Cette baisse s’est notamment faite au profit des vertex chargés T3 ($\rho_3 = 0.09$). L’augmentation de ρ_3 était prévisible puisque la surélévation diminue aussi l’énergie des vertex T3. L’isolement des vertex T1 s’est accentué car un tiers d’entre eux ne font plus partie d’un domaine AF. La figure 4.19b représente l’aimantation rémanente des réseaux. Pour $h = 100$ nm, elle peut devenir supérieure à 10%. Ce changement est attribuable à la concentration élevée de vertex T2 aimantés, combinée à la taille finie du réseau.

Le facteur de structure en figure 4.20c confirme que les configurations magnétiques sont désordonnées pour $h = 100$ nm. Les pics de Bragg sont complètement absents et l’intensité est diffuse. La correspondance avec le facteur de structure d’un modèle de Lieb idéal (cf. fig. 4.20d) est frappante. Des objets semblables à des points de pincements (*pinch points*) sont localisés aux points Γ de la zone de Brillouin. Comme nous l’avons vu au second chapitre, l’analyse de la largeur de ces points de pincements permet d’extraire une longueur de corrélation du réseau (cf. §1.2.3). La figure 4.21a représente un agrandissement du point de pincement situé dans le rectangle blanc de la figure 4.20c. À son point le plus fin, cette structure possède une largeur non nulle. Par un ajustement lorentzien⁸, nous obtenons une longueur de corrélation $\xi_{exp} = 4.4 \pm 0.5$. Cette valeur est à comparer avec celle d’un modèle de Lieb idéal de même taille, $\xi_{20} = 5.2 \pm 0.2$. La longueur de corrélation ξ_{exp} est donc plus faible que ξ_{20} . Cela peut s’expliquer par la présence de vertex T3 à une fréquence non négligeable ($\rho_3 = 0.09$). Ces excitations, qui violent la contrainte locale, tendent à décorrélérer la phase de

8. L’expression de l’ajustement est explicitée au chapitre 2, §1.2.3.

Coulomb.

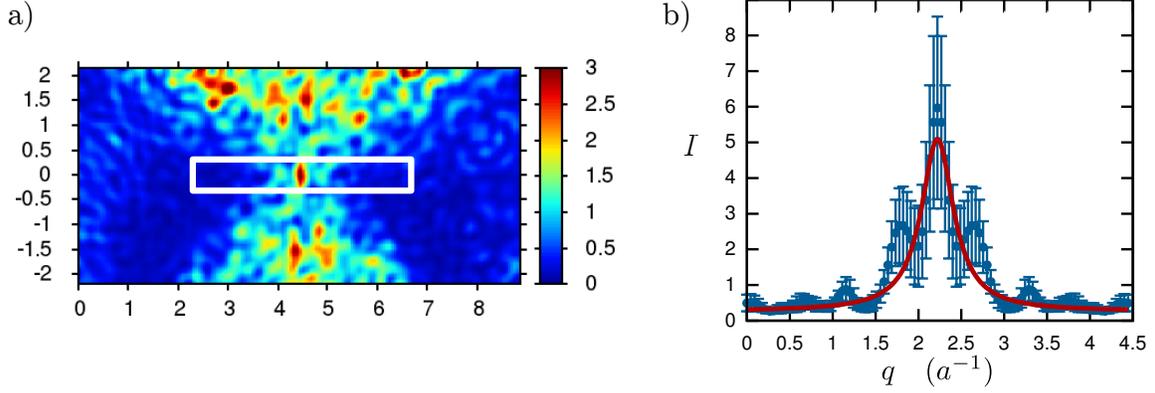


FIGURE 4.21 – a) Vue agrandie d’un point de pincement expérimental pour le réseau $h = 100$ nm. Le rectangle blanc symbolise la région analysée pour le calcul de ξ . b) Coupe transverse du point de pincement. La courbe rouge représente l’ajustement lorentzien de la coupe. Nous obtenons une longueur de corrélation $\xi = 4.4 \pm 0.5$.

Le réseau $h = 100$ nm réalise pour la première fois une phase de Coulomb dans le réseau carré de nanoaimants. Dans ce cas, les vertex T3 qui sont présents correspondent à l’équivalent bidimensionnel des monopoles magnétiques de Castelnovo [9]. Nous allons aborder dans le paragraphe suivant la question des interactions à longue portée dans nos systèmes.

Signature d’interactions à longue portée La physique de nos réseaux semble bien décrite par un modèle d’interactions premiers voisins. Au §4.2.2, nous avons montré qu’avec des interactions à longue portée, l’ordre ne disparaît jamais des réseaux : les simulations prédisent un passage continu de l’état AF à M. Le facteur de structure de la figure 4.20c prouve que ce n’est pas ce qui est observé expérimentalement. Nous pourrions conclure que la physique de nos réseaux est essentiellement gouvernée par les couplages entre premiers voisins.

Le facteur de structure du réseau $h = 100$ nm porte malgré tout la trace d’interactions dipolaires à longue portée. La figure 4.22 présente des coupes de facteurs de structure selon les axes ($q_x = 0$) et ($q_y = 0$). Ces coupes passent par les points X de la première zone de Brillouin, associés à la phase M. Nous comparons ici :

- quatre désaimantations expérimentales du réseau $h = 100$ nm (en bleu sur la fig. 4.22b) ;
- vingt désaimantations numériques avec des couplages J_1, J_2 (réseau de taille expérimentale, $h = 0.35$, en rouge sur la fig. 4.22b) ;
- vingt désaimantations numériques avec des interactions dipolaires ($h = 0.35, r_c = 10$, en vert sur la fig. 4.22b).

Sur le segment $[AB]$, la coupe ne présente pas de variations significatives dans le modèle J_1, J_2 . Cela signifie que les spins sont découplés latéralement, ce qui est normal puisque les interactions sont restreintes aux premiers voisins. En ajoutant les termes dipolaires à longue portée, des pics centrés en -1 et 1 apparaissent clairement sur $[AB]$. Il traduit une corrélation antiferromagnétique entre spins parallèles. Comparons maintenant la coupe expérimentale à ces deux cas. Des pics significatifs se détachent des barres d’erreur, toujours aux positions -1

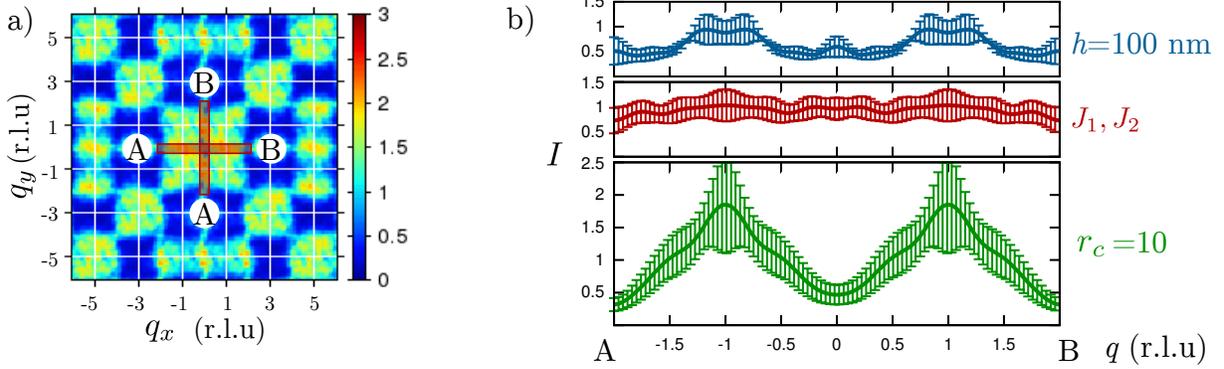


FIGURE 4.22 – Comparaison des coupes de trois facteurs de structure selon les axes $q_x = 0$ et $q_y = 0$. a) Facteur de structure expérimental, pour $h = 100$ nm. La surface des coupes apparaît en rouge, les deux directions sont moyennées. b) Comparaison de la coupe expérimentale (haut) avec celles obtenues par désaimantation numérique pour deux modèles : couplages J_1, J_2 (milieu) et interactions dipolaires à longue portée (bas). Dans les simulations, $h = 0.35$.

et 1. Leur amplitude est cependant trois fois plus faible que dans la simulation. Mais cette observation prouve que l'interaction au troisième voisin joue un rôle significatif dans nos réseaux. Expérimentalement, les interactions à longue portée ont cependant une importance moindre par rapport au modèle du dipôle ponctuel. L'extension spatiale des aimants renforce en effet les couplages entre proches voisins. Remarquons que l'effet des interactions à longue portée dans les réseaux de nanoaimants a déjà été mis en évidence expérimentalement [16, 87].

Récapitulatif

Dans ce chapitre, nous avons étudié la glace carrée surélevée sous plusieurs aspects. L'analyse théorique du réseau prédit l'existence de différents états de basse énergie selon la valeur de h . Il existe une surélévation $h = h_{ice}$ pour laquelle la dégénérescence massive de l'état fondamental du modèle de glace carrée est rétablie. La valeur de h_{ice} dépend du modèle considéré (dipôles ponctuels, charges magnétiques, micromagnétisme) et de la portée des interactions. Si h diffère de cette valeur critique, le réseau s'organise dans une phase dont l'ordre local peut être antiferromagnétique (cas $h < h_{ice}$) ou ferromagnétique (cas $h > h_{ice}$). Cependant, à $h = h_{ice}$ les interactions dipolaires tendent à lever la dégénérescence des états de basse énergie. Dans le réseau carré, les interactions à longue portée ne s'écrantent pas aussi bien que dans les glaces de spin dipolaires. La bande de basse énergie possède alors une dispersion résiduelle ΔE . À température finie, telle que $k_B T \sim \Delta E$, le réseau devrait toutefois explorer les états de basse énergie du modèle de glace carrée.

Nous avons développé un outil permettant de simuler l'effet d'une procédure de désaimantation en champ sur un réseau carré de nanoaimants. Nous avons montré qu'il est relativement aisé d'amener un réseau standard ($h = 0$) dans la phase AF par désaimantation. Cependant, la phase M semble beaucoup plus difficile à obtenir dans un réseau avec $h > h_{ice}$ car elle s'établit sous l'effet des interactions à longue portée. La désaimantation n'est pas suffisamment efficace pour permettre l'établissement de cette phase. Nous avons également remarqué

qu'en désaimantation, le passage de l'état AF à M se produit à une surélévation inférieure à celle prédite énergétiquement. Ce phénomène, que nous avons aussi constaté expérimentalement, est imputable à la cinétique particulière induite par la désaimantation. Localement, elle stimule l'apparition de corrélations ferromagnétiques. Cela explique pourquoi le modèle de glace est observé à des surélévations environ 20 % inférieures à h_{ice} .

La portée des interactions est également déterminante pour l'obtention d'une phase désordonnée. Avec uniquement des couplages premiers voisins, il existe une surélévation pour laquelle tout ordre disparaît du réseau. Le facteur de structure obtenu est alors similaire à celui prédit pour un modèle de Lieb idéal. Mais ce n'est plus le cas lorsque les termes dipolaires à longue portée sont pris en compte. Le passage de l'état AF à M se fait alors continûment. Les deux phases coexistent à la surélévation intermédiaire. Dans un réseau de dipôles ponctuels en interaction dipolaire, l'apparition d'une phase désordonnée par désaimantation est impossible.

Grâce à des simulations micromagnétiques, nous avons pu déterminer quelles géométries sont réalistes d'un point de vue expérimental. Nous avons montré que des relaxations micromagnétiques peuvent s'effectuer dans deux ou trois directions de l'espace selon l'épaisseur du matériau choisi. Ces simulations nous ont aussi permis d'étudier l'influence des paramètres géométriques d'un vertex (L, w, g, e) sur ses niveaux d'énergie E_i . Ce travail numérique nous a servi de base pour la fabrication de réseaux exhibant après désaimantation une phase AF, une phase M et une phase de type liquide de spin.

Nous avons proposé une technique de fabrication utilisant des cales d'or épaisses pour surélever les aimants. Elle nous a permis de créer des échantillons tout à fait satisfaisants. Le taux de réussite de notre technique d'alignement se situe entre 10 et 20 %. Nous avons fabriqué des réseaux de nanoaimants en permalloy épais, observables en MFM après désaimantation en champ tournant. Nous avons aussi tenté de créer des réseaux thermiquement actifs, mais plusieurs problèmes expérimentaux se sont posés. Ces expériences font l'objet de l'annexe E.

Pour la première fois, l'effet de la surélévation h a pu être mis en évidence expérimentalement. Nous avons travaillé sur différentes géométries de réseaux et plusieurs surélévations afin d'observer les phases attendues. Après désaimantation, nous avons obtenu de grands domaines d'état AF dans les réseaux témoins ($h = 0$). Cela prouve que notre procédure de désaimantation est efficace pour amener un réseau dans ses états de basse énergie. Nous avons montré expérimentalement le passage de la phase AF à une phase désordonnée en augmentant la surélévation. La phase désordonnée présente un facteur de structure diffus très proche de celui attendu dans le modèle de Lieb. Nous avons mis en évidence des points de pincement sur les facteurs de structure. La longueur de corrélation ξ_{exp} s'est avérée légèrement inférieure à celle prédite théoriquement ξ_{20} . Nous imputons cette différence à la présence d'excitations chargées dans nos réseaux. Ces expériences constituent la première réalisation directe d'une phase de Coulomb dans un réseau carré de nanoaimants. Les états excités T3 présents dans ce réseau correspondent donc aux monopoles magnétiques émergents identifiés en matière condensée. Ce travail ouvre de nouvelles portes pour l'étude de ces monopoles.

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

Conclusion générale

Il existe de nombreuses possibilités pour créer des systèmes frustrés artificiels. Les réseaux de nanoaimants, apparus il y a maintenant dix ans, sont certainement les plus étudiés à ce jour. Ils peuvent être employés pour la réalisation de modèles de pseudospins Ising classiques, dans des réseaux à géométrie modulable. Les réseaux qui possèdent un haut degré de frustration présentent le plus d'intérêt, en particulier pour leur état fondamental massivement dégénéré. Des états exotiques de la matière peuvent y apparaître, comme les phases de Coulomb, qui forment un terrain propice pour l'apparition de particules émergentes. Des ordres magnétiques non-conventionnels peuvent également s'y établir. Depuis dix ans, les travaux sur les réseaux de nanoaimants se nourrissent des concepts développés en matière condensée et en physique statistique, concernant notamment les glaces de spin. Mais grâce à l'observation dans l'espace direct de phases de Coulomb et de phénomènes nouveaux, comme la fragmentation de spin [8], les réseaux de nanoaimants pourraient avoir un jour la capacité d'améliorer la compréhension de certains composés étudiés en matière condensée. Ceci est rendu possible par les progrès techniques récents, comme les systèmes thermiquement actifs ou l'introduction de surélévations dans les réseaux.

Jusqu'à maintenant, la versatilité des réseaux de nanoaimants s'est limitée à des changements de géométrie, par l'étude des réseaux carré, kagomé, triangulaire, Shatki etc. Le point intéressant serait maintenant de pouvoir changer la physique d'un réseau donné, par une modulation continue d'un de ses paramètres géométriques. Cette possibilité n'a été pour le moment que peu exploitée, voire jamais dans le cas du réseau carré. Ce dernier présente pourtant un intérêt particulier puisqu'il s'agit de l'analogue bidimensionnel des glaces de spin, de la glace H_2O et des modèles de vertex en physique statistique. Mais en raison de la nature magnétostatique des interactions entre aimants, le réseau carré s'ordonne au lieu de présenter un état fondamental massivement dégénéré. Dans ce manuscrit, nous avons présenté deux nouvelles approches permettant de changer continûment le comportement du réseau carré. Elles nous ont permis d'observer pour la première fois ce réseau dans une variété de basse énergie désordonnée et fortement corrélée. Le résultat principal de cette thèse est sans nul doute l'observation d'une phase de Coulomb dans le réseau carré de nanoaimants. Celle-ci se traduit par des points de pincement sur les facteurs de structure, dont la largeur nous a permis de calculer la longueur de corrélation du système.

Nous avons montré que les absorbeurs ou la surélévation permettent de changer continûment l'état fondamental du réseau carré. Nous avons distingué trois phases. La première est la phase antiferromagnétique, qui s'établit spontanément dans le réseau carré. Elle est bien décrite par le modèle F. De nombreuses observations expérimentales de cet état ont été reportées dans la littérature. La seconde phase s'établit pour des tailles d'absorbeurs ou des surélévations intermédiaires. Le réseau ne parvient plus à s'ordonner car son état fondamental est massivement dégénéré. À basse température, il se trouve alors dans une phase de Coulomb. Nous avons pour la première fois démontré son existence dans le réseau carré. Il s'agit d'une réalisation du modèle de Lieb. Enfin, pour des grandes tailles d'absorbeurs ou des surélévations importantes, le réseau entre dans une phase de type ferromagnétique. Celle-ci ne s'ordonne pas, tout en possédant une entropie par site nulle. À notre connaissance, une telle phase n'a jamais été décrite dans un réseau de nanoaimants. Les deux approches expliquées dans ce manuscrit n'ont pas encore permis d'atteindre cette phase. Nous sommes toutefois parvenus à l'obtenir avec un autre type de réseau carré, dans lequel les aimants fusionnent et forment une grille. L'apparition de la phase ferromagnétique est ici attribuable à des effets micromagnétiques.

Les interactions entre nanoaimants sont de type magnétostatique et leur portée n'a pas de limite. C'est pourquoi la question du rôle joué par les termes dipolaires est centrale dans l'étude des réseaux de nanoaimants. Dans les glaces de spin dipolaires, les interactions à longue portée s'écrantent presque parfaitement et le système est très bien décrit par une physique à courte portée ; il s'agit d'un exemple d'équivalence projective. Ce phénomène n'existe pas dans le réseau carré bidimensionnel. Les interactions à longue portée lèvent alors la dégénérescence des états de basse énergie. À température finie, la physique de glace reste néanmoins observable, ce qui est le cas dans nos expériences. Une réminiscence des interactions à longue portée subsiste tout de même sur les facteurs de structure.

La désaimantation en champ a permis d'amener certains réseaux dans des états de basse énergie désordonnés, proches d'une phase de Coulomb. Le fait qu'un processus a priori déterministe puisse créer du désordre peut paraître surprenant. Cette stochasticité est attribuable aux défauts structurels des aimants. Nous pouvons aussi suspecter un effet d'activation thermique du renversement de l'aimantation sous champ. Nous avons montré que l'emploi de rampes en champ très lentes peut amener efficacement un réseau dans sa variété de basse énergie. Par exemple, nous avons obtenu de très grands domaines d'état fondamental dans les réseaux conventionnels après désaimantation.

Perspectives

Le concept des aimants additionnels peut être appliqué à d'autres géométries. Par exemple, nous étudions des réseaux kagomé avec différentes tailles d'absorbeurs, dans le but de stimuler les fluctuations thermiques. Il est possible que les absorbeurs permettent une meilleure approche des phases de basse énergie du réseau kagomé dipolaire.

Pour des études futures, le principe de la surélévation pourrait être appliqué à d'autres géométries. Cela permettrait de créer des systèmes à l'état fondamental massivement dégénéré, à partir de géométries qui s'ordonnent comme les chaînes 1D ou le réseau triangulaire. D'un point de vue technologique, plusieurs points restent cependant à étudier. Le choix de l'or

pour la réalisation des cales n'est pas forcément optimal car les nanoaimants des deux sous-réseaux ne sont pas dans le même environnement. De plus, l'état de surface des cales altère les propriétés des aimants qui reposent dessus. Les graver directement dans le substrat de silicium pourrait résoudre ces problèmes. Ainsi créées, les cales pourraient résister à un recuit thermique. Cela ouvrirait la voie vers l'étude de réseaux surélevés activables thermiquement.

Dynamique de monopoles L'accès aux configurations de spin locales dans une phase de Coulomb offre une occasion pour étudier les excitations analogues aux monopoles magnétiques. Ces objets devraient apparaître par paires de signes opposés dans les réseaux. Une paire peut être reliée par une ou plusieurs chaînes de spins, selon la configuration magnétique locale.

La figure 5.1 montre des configurations magnétiques expérimentales obtenues sur des réseaux surélevés de $h = 60$ (a), 80 (b) et 100 nm (c). Les monopoles qui apparaissent ont été reliés par paires de signes opposés, de manière à minimiser la longueur totale de chaînes. La neutralité ne semble pas forcément respectée sur les réseaux en figure 5.3. Un signe de monopoles peut être en excès par rapport à l'autre. Il s'agit d'un effet de taille finie. Les charges magnétiques manquantes, non représentées, sont en fait situées sur les bords des réseaux. Pour la surélévation $h = 100$ nm, nous avons mesuré une distance moyenne entre monopoles de 2.8. Cette longueur est presque deux fois plus faible que la longueur de corrélation ξ mesurée sur les points de pincement du facteur de structure.

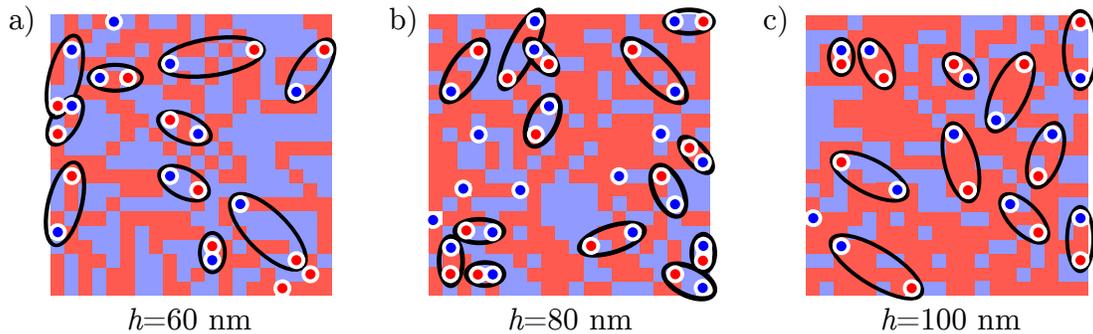


FIGURE 5.1 – Réseaux surélevés expérimentaux mettant en évidence des paires de monopoles de signes opposés (couleurs : vertex T1 et T2 resp. en bleu et rouge). Les monopoles ont été appariés de manière à minimiser la longueur totale de chaînes. a) $h = 60$ nm, b) $h = 80$ nm, c) $h = 100$ nm.

Lors d'expériences futures sur les réseaux surélevés thermiquement actifs, nous pouvons imaginer étudier la dynamique de création et d'annihilation de ces monopoles selon la température. Leur diffusion et leur déplacement sous l'effet d'un champ magnétique externe pourraient aussi être étudiés. Des expériences de relaxation de monopoles résolues temporellement et spatialement sont à l'avenir envisageables.

Phase de monopoles Nous avons observé parfois de fortes concentrations de monopoles dans le réseau carré à absorbeurs. Ce comportement est sans doute dû à la baisse de l'énergie des vertex T3 engendrée par la présence des absorbeurs. Cet effet peut être mis à contribution pour étudier la physique sous-jacente de ces excitations. Dans une récente étude, Xie *et*

al. [110] ont étudié numériquement le diagramme de phase du réseau carré pour une concentration fixée de monopôles. Grâce à une modification de leur algorithme Monte Carlo, les auteurs peuvent fixer la concentration ρ de monopoles (CMA, *Conserved Monopoles Algorithm*). Xie *et al.* prédisent un diagramme de phase très riche selon la densité de monopoles et la température du réseau (cf. fig. 5.2a) :

- À faible densité ($\rho \ll 1$) et haute température, les monopoles sont décorrélés et se comportent comme un gaz.
- Une phase de gaz de dimères apparaît en diminuant la température. Les monopôles s'assemblent par paires non chargées qui interagissent très peu entre elles (cf. fig. 5.2b).
- Pour $\rho \gg 1$ et à basse température, les monopôles forment un cristal sur un fond de vertex T1 (cf. fig. 5.2e).
- À des densités plus élevées ($\rho > 0.8$) une autre phase apparaît. Elle se caractérise par un ordre de charges et un désordre de spins. Ce type de phase a déjà été mis en évidence numériquement et expérimentalement dans le réseau de nanoaimants kagomé [65, 112].

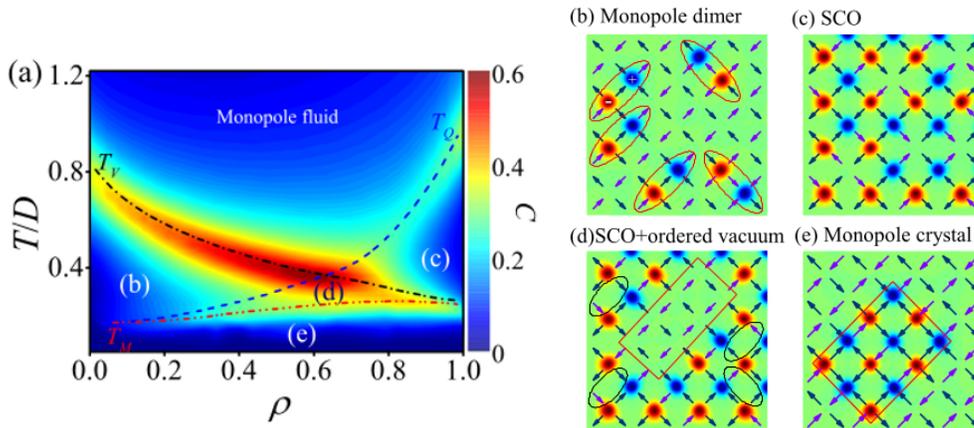


FIGURE 5.2 – a) Diagramme de phase du réseau carré en fonction de la température et de la densité de monopoles. Des exemples de phases correspondant à chacune des régions sont représentées à droite : b) Phase de dimères de monopoles. c) Phase ordonnée de monopoles. d) Phase de monopoles et phase AF (neutre) imbriquées. e) Cristallites de monopoles. Images extraites de la référence [110].

Dans la glace dopée, nous avons obtenu des concentrations de monopoles très variées, allant jusqu'à $\rho_3 = 0.4$. Nous pouvons alors essayer d'identifier dans quelle phase du diagramme en figure 5.2 se situent nos réseaux. La figure 5.3 présente quelques agencements de monopoles obtenus. Sur ces images, aucune phase pure ne semble apparaître car des monopoles isolés cohabitent avec des dimères ainsi que de plus gros agrégats. Cette observation pourrait indiquer que nos réseaux ne sont pas à l'équilibre thermodynamique.

Les monopoles apparaissent de façon isolée ou agglomérés. Intéressons-nous aux agglomérats de monopoles. Nous observons expérimentalement une corrélation négative significative entre les charges de monopoles voisins. S'ils étaient positionnés aléatoirement, le corrélateur de charges serait de -0.25 (cf. annexe F). Nous avons observé dans nos réseaux des corrélateurs allant jusqu'à -0.5. Cette valeur démontre qu'une force, comme une interaction coulombienne, corréle les monopoles.

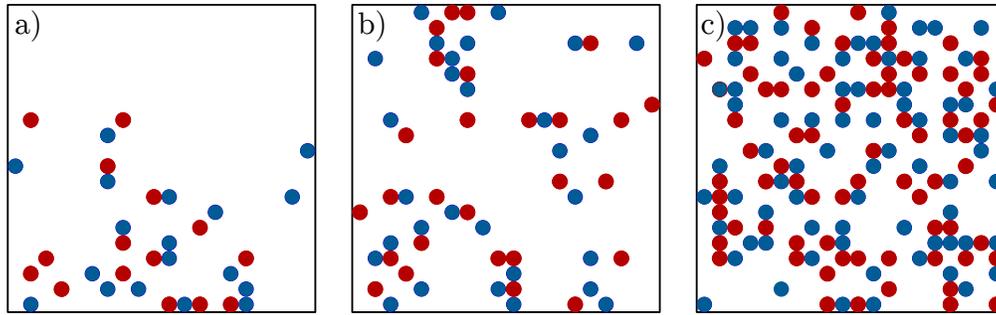


FIGURE 5.3 – Trois exemples de phases de monopoles obtenues pour des densités ρ_3 croissantes.

Les perspectives présentées dans cette ouverture sont directement liées à ce travail de thèse. Dans le champ plus large des réseaux de nanoaimants, de nombreuses voies restent à explorer. Les techniques actuelles permettent de réaliser des systèmes thermiquement actifs à aimantation planaire. Mais la réalisation de réseaux à aimantation hors plan thermiquement actifs demeure encore un défi.

Le phénomène de fragmentation de spin a récemment été mis en évidence dans des réseaux kagomé de GdCo [8]. Mais il ne semble pas se manifester dans les expériences sur le réseau carré présentées dans ce manuscrit. Cela pourrait être attribuable au processus de désaimantation que nous avons employé. Les systèmes à coordinance multiple, comme le réseau Shatki [27], pourraient aussi être de bons candidats pour observer le phénomène de fragmentation de spin.

Bibliographie

- [1] J. D. BERNAL AND R. H. FOWLER, *A theory of water and ionic solution, with particular reference to hydrogen and hydroxyl ions*, The Journal of Chemical Physics, 1 (1933), pp. 515–548.
- [2] V. S. BHAT, J. SKLENAR, B. FARMER, J. WOODS, J. T. HASTINGS, S. J. LEE, J. B. KETTERSON, AND L. E. DE LONG, *Controlled magnetic reversal in permalloy films patterned into artificial quasicrystals*, Phys. Rev. Lett., 111 (2013), p. 077201.
- [3] V. S. BHAT, J. SKLENAR, B. FARMER, J. WOODS, J. B. KETTERSON, J. T. HASTINGS, AND L. E. DE LONG, *Ferromagnetic resonance study of eightfold artificial ferromagnetic quasicrystals*, Journal of Applied Physics, 115 (2014).
- [4] S. T. BRAMWELL AND M. J. GINGRAS, *Spin ice state in frustrated magnetic pyrochlore materials.*, Science, 294 (2001), pp. 1495–501.
- [5] M. E. BROOKS-BARTLETT, S. T. BANKS, L. D. C. JAUBERT, A. HARMAN-CLARKE, AND P. C. W. HOLDSWORTH, *Magnetic-moment fragmentation and monopole crystallization*, Phys. Rev. X, 4 (2014), p. 011007.
- [6] Z. BUDRIKIS, J. P. MORGAN, J. AKERMAN, A. STEIN, P. POLITI, S. LANGRIDGE, C. H. MARROWS, AND R. L. STAMPS, *Disorder strength and field-driven ground state domain formation in artificial spin ice : Experiment, simulation, and theory*, Phys. Rev. Lett., 109 (2012), p. 037203.
- [7] Z. BUDRIKIS, P. POLITI, AND R. L. STAMPS, *Diversity enabling equilibration : Disorder and the ground state in artificial spin ice*, Phys. Rev. Lett., 107 (2011), p. 217204.
- [8] B. CANALS, I.-A. CHIOAR, V.-D. NGUYEN, M. HEHN, D. LACOUR, F. MONTAIGNE, A. LOCATELLI, T. O. MENTES, B. S. BURGOS, AND N. ROUGEMAILLE, *Fragmentation of magnetism in artificial kagome dipolar spin ice.*, Nat Commun, 7 (2016), p. 11446.
- [9] C. CASTELNOVO, R. MOESSNER, AND S. L. SONDHI, *Magnetic monopoles in spin ice.*, Nature, 451 (2008), pp. 42–5.
- [10] —, *Thermal quenches in spin ice.*, Phys. Rev. Lett., 104 (2010), p. 107201.
- [11] J. D. M. CHAMPION, M. J. HARRIS, P. C. W. HOLDSWORTH, A. S. WILLS, G. BALAKRISHNAN, S. T. BRAMWELL, E. CIZMAR, T. FENNELL, J. S. GARDNER, J. LAGO, D. F. MCMORROW, M. ORENDAC, A. ORENDACOVA, D. M. PAUL, R. I. SMITH, M. T. F. TELLING, AND A. WILDES, *Er₂Ti₂O₇ : Evidence of quantum order by disorder in a frustrated antiferromagnet*, Phys. Rev. B, 68 (2003), p. 020401.

- [12] G.-W. CHERN, C. REICHHARDT, AND C. NISOLI, *Realizing three-dimensional artificial spin ice by stacking planar nano-arrays*, Applied Physics Letters, 104 (2014).
- [13] I.-A. CHIOAR, *Artificial Kagome Spin Networks - From Short-Range Degeneracy towards Long-Range Dipolar Order*, PhD thesis, Université Grenoble Alpes, 2016.
- [14] I. A. CHIOAR, B. CANALS, D. LACOUR, M. HEHN, B. SANTOS BURGOS, T. O. MENTES, A. LOCATELLI, F. MONTAIGNE, AND N. ROUGEMAILLE, *Kinetic pathways to the magnetic charge crystal in artificial dipolar spin ice*, Phys. Rev. B, 90 (2014), p. 220407.
- [15] I. A. CHIOAR, N. ROUGEMAILLE, AND B. CANALS, *Ground-state candidate for the classical dipolar kagome ising antiferromagnet*, Phys. Rev. B, 93 (2016), p. 214410.
- [16] I. A. CHIOAR, N. ROUGEMAILLE, A. GRIMM, O. FRUCHART, E. WAGNER, M. HEHN, D. LACOUR, F. MONTAIGNE, AND B. CANALS, *Nonuniversality of artificial frustrated spin systems*, Phys. Rev. B, 90 (2014), p. 064411.
- [17] A. V. CHUMAKOVA, G. A. VALKOVSKIY, A. A. MISTONOV, V. A. DYADKIN, N. A. GRIGORYEVA, N. A. SAPOLETOVA, K. S. NAPOLSKII, A. A. ELISEEV, A. V. PETUKHOV, AND S. V. GRIGORIEV, *Periodic order and defects in ni-based inverse opal-like crystals on the mesoscopic and atomic scale*, Phys. Rev. B, 90 (2014), p. 144103.
- [18] R. P. COWBURN, *Probing antiferromagnetic coupling between nanomagnets*, Phys. Rev. B, 65 (2002), p. 092409.
- [19] D. DAVIDOVIC, S. KUMAR, D. H. REICH, J. SIEGEL, S. B. FIELD, R. C. TIBERIO, R. HEY, AND K. PLOOG, *Correlations and disorder in arrays of magnetically coupled superconducting rings*, Phys. Rev. Lett., 76 (1996), pp. 815–818.
- [20] D. DAVIDOVIC-ACUTE, S. KUMAR, D. H. REICH, J. SIEGEL, S. B. FIELD, R. C. TIBERIO, R. HEY, AND K. PLOOG, *Magnetic correlations, geometrical frustration, and tunable disorder in arrays of superconducting rings*, Phys. Rev. B, 55 (1997), pp. 6518–6540.
- [21] B. C. DEN HERTOEG AND M. J. P. GINGRAS, *Dipolar interactions and origin of spin ice in ising pyrochlore magnets*, Phys. Rev. Lett., 84 (2000), pp. 3430–3433.
- [22] J. DRISKO, S. DAUNHEIMER, AND J. CUMINGS, *Fepd3 as a material for studying thermally active artificial spin ice systems*, Phys. Rev. B, 91 (2015), p. 224406.
- [23] A. FARHAN, P. M. DERLET, A. KLEIBERT, A. BALAN, R. V. CHOPDEKAR, M. WYSS, L. ANGHINOLFI, F. NOLTING, AND L. J. HEYDERMAN, *Exploring hypercubic energy landscapes in thermally active finite artificial spin-ice systems*, Nat Phys, 9 (2013), pp. 375–382. Article.
- [24] A. FARHAN, P. M. DERLET, A. KLEIBERT, A. BALAN, R. V. CHOPDEKAR, M. WYSS, J. PERRON, A. SCHOLL, F. NOLTING, AND L. J. HEYDERMAN, *Direct observation of thermal relaxation in artificial spin ice*, Phys. Rev. Lett., 111 (2013), p. 057204.
- [25] T. FENNEL, P. P. DEEN, A. R. WILDES, K. SCHMALZL, D. PRABHAKARAN, A. T. BOOTHROYD, R. J. ALDUS, D. F. MCMORROW, AND S. T. BRAMWELL, *Magnetic coulomb phase in the spin ice ho2ti2o7*, Science, 326 (2009), pp. 415–417.

- [26] W. F. GIAUQUE AND J. W. STOUT, *The entropy of water and the third law of thermodynamics. the heat capacity of ice from 15 to 273°k.*, Journal of the American Chemical Society, 58 (1936), pp. 1144–1150.
- [27] I. GILBERT, G.-W. CHERN, S. ZHANG, L. O[BRIEN], B. FORE, C. NISOLI, AND P. SCHIFFER, *Emergent ice rule and magnetic charge screening from vertex frustration in artificial spin ice*, Nat Phys, advance online publication (2014). Article.
- [28] S. GLIGA, A. KÁKAY, L. J. HEYDERMAN, R. HERTEL, AND O. G. HEINONEN, *Broken vertex symmetry and finite zero-point entropy in the artificial square ice ground state*, Phys. Rev. B, 92 (2015), p. 060413.
- [29] M. J. HARRIS, S. T. BRAMWELL, D. F. MCMORROW, T. ZEISKE, AND K. W. GODFREY, *Geometrical frustration in the ferromagnetic pyrochlore $Ho_2Ti_2O_7$* , Phys. Rev. Lett., 79 (1997), pp. 2554–2557.
- [30] C. L. HENLEY, *The coulomb phase in frustrated systems*, Annual Review of Condensed Matter Physics, (2009).
- [31] L. P. HENRY, *Glace bidimensionnelle classique et quantique : phases de Coulomb et phases ordonnées*, PhD thesis, 2013.
- [32] R. HIGASHINAKA, H. FUKAZAWA, K. DEGUCHI, AND Y. MAENO, *A kagome ice state in the spin ice compound $Dy_2Ti_2O_7$* , Journal of Physics : Condensed Matter, 16 (2004), pp. –679.
- [33] R. V. HÜGLI, G. DUFF, B. O’CONCHUIR, E. MENGOTTI, L. J. HEYDERMAN, A. F. RODRÍGUEZ, F. NOLTING, AND H. B. BRAUN, *Emergent magnetic monopoles, disorder, and avalanches in artificial kagome spin ice (invited)*, Journal of Applied Physics, 111 (2012).
- [34] A. IMRE, G. CSABA, G. H. BERNSTEIN, W. POROD, AND V. METLUSHKO, *Investigation of shape-dependent switching of coupled nanomagnets*, Superlattices and Microstructures, 34 (2003), pp. 513–518. Proceedings of the joint 6th International Conference on New Phenomena in Mesoscopic Structures and 4th International Conference on Surfaces and Interfaces of Mesoscopic Devices.
- [35] S. V. ISAKOV, R. MOESSNER, AND S. L. SONDHI, *Why spin ice obeys the ice rules.*, Phys. Rev. Lett., 95 (2005), p. 217201.
- [36] M. B. JUNGFLEISCH, W. ZHANG, E. IACocca, J. SKLENAR, J. DING, W. JIANG, S. ZHANG, J. E. PEARSON, V. NOVOSAD, J. B. KETTERSON, O. HEINONEN, AND A. HOFFMANN, *Dynamic response of an artificial square spin ice*, Phys. Rev. B, 93 (2016), p. 100401.
- [37] S. H. KANG, S. SHAN, A. KOSMRLJ, W. L. NOORDUIN, S. SHIAN, J. C. WEAVER, D. R. CLARKE, AND K. BERTOLDI, *Complex ordered patterns in mechanical instability induced geometrically frustrated triangular cellular structures*, Phys. Rev. Lett., 112 (2014), p. 098701.
- [38] K. KANÔ AND S. NAYA, *Antiferromagnetism. the kagomé ising net*, Progress of Theoretical Physics, 10 (1953), pp. 158–172.
- [39] V. KAPAKLIS, U. B. ARNALDS, A. FARHAN, R. V. CHOPDEKAR, A. BALAN, A. SCHOLL, L. J. HEYDERMAN, AND B. HJÖRVARSSON, *Thermal fluctuations in artificial spin ice.*, Nat Nanotechnol, 9 (2014), pp. 514–9.

- [40] V. KAPAKLIS, U. B. ARNALDS, A. HARMAN-CLARKE, E. T. PAPAIOANNOU, M. KARIMIPOUR, P. KORELIS, A. TARONI, P. C. W. HOLDSWORTH, S. T. BRAMWELL, AND B. HJÖRVARSSON, *Melting artificial spin ice*, New Journal of Physics, 14 (2012), p. 035009.
- [41] X. KE, J. LI, C. NISOLI, P. E. LAMMERT, W. MCCONVILLE, R. F. WANG, V. H. CRESPI, AND P. SCHIFFER, *Energy minimization and ac demagnetization in a nanomagnet array*, Phys. Rev. Lett., 101 (2008), p. 037205.
- [42] X. KE, J. LI, S. ZHANG, C. NISOLI, V. H. CRESPI, AND P. SCHIFFER, *Tuning magnetic frustration of nanomagnets in triangular-lattice geometry*, Applied Physics Letters, 93 (2008).
- [43] K. J. KIRK, J. N. CHAPMAN, AND C. D. W. WILKINSON, *Switching fields and magnetostatic interactions of thin film magnetic nanoelements*, Applied Physics Letters, 71 (1997), pp. 539–541.
- [44] M. KOCHMAŃSKI, T. PASZKIEWICZ, AND S. WOLSKI, *Curie–weiss magnet—a simple model of phase transition*, European Journal of Physics, 34 (2013), p. 1555.
- [45] K. K. KOHLI, A. L. BALK, J. LI, S. ZHANG, I. GILBERT, P. E. LAMMERT, V. H. CRESPI, P. SCHIFFER, AND N. SAMARTH, *Magneto-optical kerr effect studies of square artificial spin ice*, Phys. Rev. B, 84 (2011), p. 180412.
- [46] P. LACORRE, *The constraint functions : an attempt to evaluate the constraint rate inside structures that undergo ordered magnetic frustration*, Journal of Physics C : Solid State Physics, 20 (1987), p. L775.
- [47] S. LADAK, D. E. READ, G. K. PERKINS, L. F. COHEN, AND W. R. BRANFORD, *Direct observation of magnetic monopole defects in an artificial spin-ice system*, Nature Physics, 6 (2010), pp. 359–363.
- [48] M. LAHMANI, C. DUPAS, AND P. HOUDY, *Les nanosciences, nanotechnologies et nanophysique*, Collection Échelles, 2004.
- [49] M. L. LATIMER, G. R. BERDIYOROV, Z. L. XIAO, F. M. PEETERS, AND W. K. KWOK, *Realization of artificial ice systems for magnetic vortices in a superconducting moqe thin film with patterned nanostructures*, Phys. Rev. Lett., 111 (2013), p. 067001.
- [50] B. L. LE, D. W. RENCH, R. MISRA, L. O’BIEN, C. LEIGHTON, N. SAMARTH, AND P. SCHIFFER, *Effects of exchange bias on magnetotransport in permalloy kagome artificial spin ice*, New Journal of Physics, 17 (2015), p. 023047.
- [51] J. LI, S. ZHANG, J. BARTELL, C. NISOLI, X. KE, P. E. LAMMERT, V. H. CRESPI, AND P. SCHIFFER, *Comparing frustrated and unfrustrated clusters of single-domain ferromagnetic islands*, Phys. Rev. B, 82 (2010), p. 134407.
- [52] A. LIBÁL, C. REICHHARDT, AND C. J. O. REICHHARDT, *Realizing colloidal artificial ice on arrays of optical traps*, Phys. Rev. Lett., 97 (2006), p. 228302.
- [53] E. H. LIEB, *Exact solution of the f model of an antiferroelectric*, Phys. Rev. Lett., 18 (1967), pp. 1046–1048.
- [54] —, *Exact solution of the two-dimensional slater kdp model of a ferroelectric*, Phys. Rev. Lett., 19 (1967), pp. 108–110.

- [55] —, *Residual entropy of square ice*, Phys. Rev., 162 (1967), pp. 162–172.
- [56] P. MELLADO, A. CONCHA, AND L. MAHADEVAN, *Macroscopic magnetic frustration*, Phys. Rev. Lett., 109 (2012), p. 257203.
- [57] E. MENGOTTI, L. J. HEYDERMAN, A. FRAILE RODRÍGUEZ, A. BISIG, L. LE GUYADER, F. NOLTING, AND H. B. BRAUN, *Building blocks of an artificial kagome spin ice : Photoemission electron microscopy of arrays of ferromagnetic islands*, Phys. Rev. B, 78 (2008), p. 144402.
- [58] E. MENGOTTI, L. J. HEYDERMAN, A. F. RODRIGUEZ, F. NOLTING, R. V. HUGLI, AND H.-B. BRAUN, *Real-space observation of emergent magnetic monopoles and associated dirac strings in artificial kagome spin ice*, Nat Phys, 7 (2011), pp. 68–74.
- [59] A. A. MISTONOV, N. A. GRIGORYEVA, A. V. CHUMAKOVA, H. ECKERLEBE, N. A. SAPOLETOVA, K. S. NAPOLSKII, A. A. ELISEEV, D. MENZEL, AND S. V. GRIGORIEV, *Three-dimensional artificial spin ice in nanostructured co on an inverse opal-like lattice*, Phys. Rev. B, 87 (2013), p. 220408.
- [60] L. A. S. MÓL, W. A. MOURA-MELO, AND A. R. PEREIRA, *Conditions for free magnetic monopoles in nanoscale square arrays of dipolar spin ice*, Phys. Rev. B, 82 (2010), p. 054434.
- [61] L. A. S. MÓL, A. R. PEREIRA, AND W. A. MOURA-MELO, *Extending spin ice concepts to another geometry : The artificial triangular spin ice*, Phys. Rev. B, 85 (2012), p. 184410.
- [62] G. MÖLLER, *Dynamically reduced spaces in condensed matter physics*, PhD thesis, 2006.
- [63] G. MÖLLER AND R. MOESSNER, *Artificial square ice and related dipolar nanoarrays*, Phys. Rev. Lett., 96 (2006), p. 237202.
- [64] —, *Magnetic multipole analysis of kagome and artificial spin-ice dipolar arrays*, Phys. Rev. B, 80 (2009), p. 140409.
- [65] F. MONTAIGNE, D. LACOUR, I. A. CHIOAR, N. ROUGEMAILLE, D. LOUIS, S. M. MURTRY, H. RIAHI, B. S. BURGOS, T. O. MENTES, A. LOCATELLI, B. CANALS, AND M. HEHN, *Size distribution of magnetic charge domains in thermally activated but out-of-equilibrium artificial spin ice*, Sci. Rep., 4 (2014), p. 5702. Article.
- [66] J. P. MORGAN, A. BELLEW, A. STEIN, S. LANGRIDGE, AND C. MARROWS, *Linear field demagnetisation of artificial magnetic square ice*, Frontiers in Physics, 1 (2013).
- [67] J. P. MORGAN, C. J. KINANE, T. R. CHARLTON, A. STEIN, C. SÁNCHEZ-HANKE, D. A. ARENA, S. LANGRIDGE, AND C. H. MARROWS, *Magnetic hysteresis of an artificial square ice studied by in-plane bragg x-ray resonant magnetic scattering*, AIP Advances, 2 (2012).
- [68] J. P. MORGAN, A. STEIN, S. LANGRIDGE, AND C. H. MARROWS, *Thermal ground-state ordering and elementary excitations in artificial magnetic square ice*, Nat Phys, 7 (2011), pp. 75–79.
- [69] M. J. MORRISON, T. R. NELSON, AND C. NISOLI, *Unhappy vertices in artificial spin ice : new degeneracies from vertex frustration*, New Journal of Physics, 15 (2013), p. 045009.

- [70] Y. NAKATANI, A. THIAVILLE, AND J. MILTAT, *Head-to-head domain walls in soft nano-strips : a refined phase diagram*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 290–291, Part 1 (2005), pp. 750–753. <ce :title>Proceedings of the Joint European Magnetic Symposia (JEMS' 04)</ce :title>.
- [71] C. NISOLI, *On thermalization of magnetic nano-arrays at fabrication*, New Journal of Physics, 14 (2012), p. 035017.
- [72] C. NISOLI, J. LI, X. KE, D. GARAND, P. SCHIFFER, AND V. H. CRESPI, *Effective temperature in an interacting vertex system : Theory and experiment on artificial spin ice*, Phys. Rev. Lett., 105 (2010), p. 047205.
- [73] C. NISOLI, R. WANG, J. LI, W. F. MCCONVILLE, P. E. LAMMERT, P. SCHIFFER, AND V. H. CRESPI, *Ground state lost but degeneracy found : The effective thermodynamics of artificial spin ice*, Phys. Rev. Lett., 98 (2007), p. 217203.
- [74] E. OLIVE AND P. MOLHO, *Thermodynamic study of a lattice of compass needles in dipolar interaction*, Phys. Rev. B, 58 (1998), pp. 9238–9247.
- [75] A. ORTIZ-AMBRIZ AND P. TIERNO, *Engineering of frustration in colloidal artificial ices realized on microfeatured grooved lattices.*, Nat Commun, 7 (2016), p. 10575.
- [76] L. PAULING, *The structure and entropy of ice and of other crystals with some randomness of atomic arrangement*, Journal of the American Chemical Society, 57 (1935), pp. 2680–2684.
- [77] J. PERRON, L. ANGHINOLFI, B. TUDU, N. JAOUEN, J. M. TONNERRE, M. SACCHI, F. NOLTING, J. LÜNING, AND L. J. HEYDERMAN, *Extended reciprocal space observation of artificial spin ice with x-ray resonant magnetic scattering*, Phys. Rev. B, 88 (2013), p. 214424.
- [78] S. PETIT, E. LHOTEL, B. CANALS, M. CIOMAGA HATNEAN, J. OLLIVIER, H. MUTKA, E. RESSOUCHE, A. R. WILDES, M. R. LEES, AND G. BALAKRISHNAN, *Observation of magnetic fragmentation in spin ice*, Nat Phys, 12 (2016), pp. 746–750. Letter.
- [79] S. D. POLLARD, V. VOLKOV, AND Y. ZHU, *Propagation of magnetic charge monopoles and dirac flux strings in an artificial spin-ice lattice*, Phys. Rev. B, 85 (2012), p. 180402.
- [80] D. POMARANSKI, L. R. YARASKAVITCH, S. MENG, K. A. ROSS, H. M. L. NOAD, H. A. DABKOWSKA, B. D. GAULIN, AND J. B. KYCIA, *Absence of pauling/'s residual entropy in thermally equilibrated $\text{dy}_2\text{ti}_2\text{o}_7$* , Nat Phys, 9 (2013), pp. 353–356. Letter.
- [81] J. M. PORRO, A. BEDOYA-PINTO, A. BERGER, AND P. VAVASSORI, *Exploring thermally induced states in square artificial spin-ice arrays*, New Journal of Physics, 15 (2013), p. 055012.
- [82] Y. QI, T. BRINTLINGER, AND J. CUMINGS, *Direct observation of the ice rule in an artificial kagome spin ice*, Phys. Rev. B, 77 (2008), p. 094418.
- [83] A. P. RAMIREZ, A. HAYASHI, R. J. CAVA, R. SIDDHARTHAN, AND B. S. SHASTRY, *Zero-point entropy in spin ice*, Nature, 399 (1999), pp. 333–335.
- [84] H. RIAHI, F. MONTAIGNE, N. ROUGEMAILLE, B. CANALS, D. LACOUR, AND M. HEHN, *Energy levels of interacting curved nanomagnets in a frustrated geometry : increasing accuracy when using finite difference methods*, Journal of Physics : Condensed Matter, 25 (2013), p. 296001.

- [85] J. H. RODRIGUES, L. A. S. MÓL, W. A. MOURA-MELO, AND A. R. PEREIRA, *Efficient demagnetization protocol for the artificial triangular spin ice*, Applied Physics Letters, 103 (2013).
- [86] C. A. ROSS, S. HARATANI, F. J. CASTAÑO, Y. HAO, M. HWANG, M. SHIMA, J. Y. CHENG, B. VÖGELI, M. FARHOUD, M. WALSH, AND H. I. SMITH, *Magnetic behavior of lithographically patterned particle arrays (invited)*, Journal of Applied Physics, 91 (2002), pp. 6848–6853.
- [87] N. ROUGEMAILLE, F. MONTAIGNE, B. CANALS, A. DULUARD, D. LACOUR, M. HEHN, R. BELKHOUD, O. FRUCHART, S. EL MOUSSAOUI, A. BENDOUNAN, AND F. MACCHEROZZI, *Artificial kagome arrays of nanomagnets : A frozen dipolar spin ice*, Phys. Rev. Lett., 106 (2011), p. 057209.
- [88] N. ROUGEMAILLE, F. MONTAIGNE, B. CANALS, M. HEHN, H. RIAHI, D. LACOUR, AND J. C. TOUSSAINT, *Chiral nature of magnetic monopoles in artificial spin ice*, New Journal of Physics, 15 (2013), p. 035026.
- [89] E. SAITOH, M. TANAKA, H. MIYAJIMA, AND T. YAMAOKA, *Domain-wall trapping in a ferromagnetic nanowire network*, Journal of Applied Physics, 93 (2003), pp. 7444–7446.
- [90] N. L. SCHRYER AND L. R. WALKER, *The motion of 180 domain walls in uniform dc magnetic fields*, Journal of Applied Physics, 45 (1974), pp. 5406–5421.
- [91] A. SCHUMANN, B. SOTHMANN, P. SZARY, AND H. ZABEL, *Charge ordering of magnetic dipoles in artificial honeycomb patterns*, Applied Physics Letters, 97 (2010).
- [92] P. SETHI, C. MURAPAKA, S. GOOLAUP, Y. J. CHEN, S. H. LEONG, AND W. S. LEW, *Direct observation of deterministic domain wall trajectory in magnetic network structures.*, Sci Rep, 6 (2016), p. 19027.
- [93] J. W. SHARPLES, D. COLLISON, E. J. L. MCINNES, J. SCHNACK, E. PALACIOS, AND M. EVANGELISTI, *Quantum signatures of a molecular nanomagnet in direct magnetocaloric measurements.*, Nat Commun, 5 (2014), p. 5321.
- [94] H. SHIMA, K. Y. GUSLIENKO, V. NOVOSAD, Y. OTANI, K. FUKAMICHI, N. KIKUCHI, O. KITAKAMI, AND Y. SHIMADA, *Magnetization reversal in magnetostatically coupled dot arrays*, Journal of Applied Physics, 91 (2002), pp. 6952–6954.
- [95] J. SKLENAR, V. S. BHAT, L. E. DELONG, AND J. B. KETTERSON, *Broadband ferromagnetic resonance studies on an artificial square spin-ice island array*, Journal of Applied Physics, 113 (2013).
- [96] J. STÖHR, H. A. PADMORE, S. ANDERS, T. STAMMLER, AND M. R. SCHEINFEIN, *Principles of x-ray magnetic dichroism spectromicroscopy*, Surface Review and Letters, 05 (1998), pp. 1297–1308.
- [97] E. C. STONER AND E. P. WOHLFARTH, *A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys*, Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 240 (1948), pp. 599–642.
- [98] M. TANAKA, E. SAITOH, H. MIYAJIMA, T. YAMAOKA, AND Y. IYE, *Domain structures and magnetic ice-order in nife nano-network with honeycomb structure*, Journal of Applied Physics, 97 (2005).

- [99] —, *Magnetic interactions in a ferromagnetic honeycomb nanoscale network*, Phys. Rev. B, 73 (2006), p. 052411.
- [100] D. THONIG, S. REISSAUS, I. MERTIG, AND J. HENK, *Thermal string excitations in artificial spin-ice square dipolar array.*, J Phys Condens Matter, 26 (2014), p. 266006.
- [101] D. S. VIEIRA JÚNIOR, S. A. LEONEL, R. A. DIAS, D. TOSCANO, P. Z. COURA, AND F. SATO, *Ground state study of the thin ferromagnetic nano-islands for artificial spin ice arrays*, Journal of Applied Physics, 116 (2014).
- [102] S. K. WALTON, K. ZEISSLER, D. M. BURN, S. LADAK, D. E. READ, T. TYLISZCZAK, L. F. COHEN, AND W. R. BRANFORD, *Limitations in artificial spin ice path selectivity : the challenges beyond topological control*, New Journal of Physics, 17 (2015), p. 013054.
- [103] R. F. WANG, J. LI, W. MCCONVILLE, C. NISOLI, X. KE, J. W. FREELAND, V. ROSE, M. GRIMSDITCH, P. LAMMERT, V. H. CRESPI, AND P. SCHIFFER, *Demagnetization protocols for frustrated interacting nanomagnet arrays*, Journal of Applied Physics, 101 (2007).
- [104] R. F. WANG, C. NISOLI, R. S. FREITAS, J. LI, W. MCCONVILLE, B. J. COOLEY, M. S. LUND, N. SAMARTH, C. LEIGHTON, V. H. CRESPI, AND P. SCHIFFER, *Artificial 'spin ice' in a geometrically frustrated lattice of nanoscale ferromagnetic islands.*, Nature, 439 (2006), pp. 303–6.
- [105] G. H. WANNIER, *Antiferromagnetism. the triangular ising net*, Phys. Rev., 79 (1950), pp. 357–364.
- [106] W. WERNSDORFER, E. B. OROZCO, K. HASSELBACH, A. BENOIT, B. BARBARA, N. DEMONCY, A. LOISEAU, H. PASCARD, AND D. MAILLY, *Experimental evidence of the néel-brown model of magnetization reversal*, Phys. Rev. Lett., 78 (1997), pp. 1791–1794.
- [107] H. WIOLAND, F. G. WOODHOUSE, J. DUNKEL, AND R. E. GOLDSTEIN, *Ferromagnetic and antiferromagnetic order in bacterial vortex lattices*, Nat Phys, advance online publication (2016). Letter.
- [108] E. O. WOLLAN, W. L. DAVIDSON, AND C. G. SHULL, *Neutron diffraction study of the structure of ice*, Phys. Rev., 75 (1949), pp. 1348–1352.
- [109] G. M. WYSIN, W. A. MOURA-MELO, L. A. S. MÓL, AND A. R. PEREIRA, *Magnetic anisotropy of elongated thin ferromagnetic nano-islands for artificial spin ice arrays.*, J Phys Condens Matter, 24 (2012), p. 296001.
- [110] Y.-L. XIE, Z.-Z. DU, Z.-B. YAN, AND J.-M. LIU, *Magnetic-charge ordering and phase transitions in monopole-conserved square spin ice.*, Sci Rep, 5 (2015), p. 15875.
- [111] K. ZEISSLER, S. K. WALTON, S. LADAK, D. E. READ, T. TYLISZCZAK, L. F. COHEN, AND W. R. BRANFORD, *The non-random walk of chiral magnetic charge carriers in artificial spin ice.*, Sci Rep, 3 (2013), p. 1252.
- [112] S. ZHANG, I. GILBERT, C. NISOLI, G.-W. CHERN, M. J. ERICKSON, L. O'BRIEN, C. LEIGHTON, P. E. LAMMERT, V. H. CRESPI, AND P. SCHIFFER, *Crystallites of magnetic charges in artificial spin ice.*, Nature, 500 (2013), pp. 553–7.

- [113] S. ZHANG, J. LI, I. GILBERT, J. BARTELL, M. J. ERICKSON, Y. PAN, P. E. LAMMERT, C. NISOLI, K. K. KOHLI, R. MISRA, V. H. CRESPI, N. SAMARTH, C. LEIGHTON, AND P. SCHIFFER, *Perpendicular magnetization and generic realization of the ising model in artificial spin ice*, Phys. Rev. Lett., 109 (2012), p. 087201.
- [114] X.-M. ZHANG, T. JIANG, H.-S. WU, AND M.-H. ZENG, *Spin frustration and long-range ordering in an alb₂-like metal-organic framework with unprecedented n,n,n-tris-tetrazol-5-yl-amine ligand*, Inorganic Chemistry, 48 (2009), pp. 4536–4541.
- [115] T. ZHAO, H. FUJIWARA, G. J. MANKEY, C. HOU, AND M. SUN, *Reconstruction of in-plane magnetization distributions from magnetic force microscope images*, Journal of Applied Physics, 89 (2001), pp. 7230–7232.

Annexe A

Énergie micromagnétique d'un vertex

Le but de cette annexe est de mettre en évidence l'effet des paramètres géométriques d'un vertex sur ses niveaux d'énergie. La méthodologie que nous appliquons pour les simulations micromagnétiques est la même que celle expliquée au chapitre 2. Les paramètres physiques sont ceux couramment employés pour le permalloy :

- Aimantation à saturation : $M_s = 8.10^5 \text{ A.m}^{-1}$;
- Échange : $A = 10^{-11} \text{ J.m}^{-1}$;
- Rapport gyromagnétique : $\gamma_0 = \mu_0\gamma = 2.21.10^5 \text{ m.A}^{-1}.\text{s}^{-1}$.

L'amortissement a été fixé à 1 pour accélérer la convergence des simulations. Elles nous permettent de calculer l'énergie e_i des vertex de type i ($i \in [1;4]$). Afin de mieux mettre en évidence les variations des niveaux, nous travaillerons avec les niveaux normalisés E_i :

$$E_i = \frac{e_i - e_1}{e_1 - e_4}$$

Nous allons nous intéresser à l'effet du gap g , de l'épaisseur e et du rapport d'aspect $\frac{L}{w}$ des nanoaimants. Les paramètres géométriques sont définis en figure §4.2.

Influence du gap entre aimants

Augmenter ou diminuer le gap est certainement le moyen le plus évident pour modifier les couplages entre aimants. Plus les aimants sont placés proches, plus leurs interactions sont fortes, et vice versa. La figure A.1 représente les niveaux d'énergie normalisés en fonction du gap. Les autres paramètres (L , w , e) sont maintenus constants.

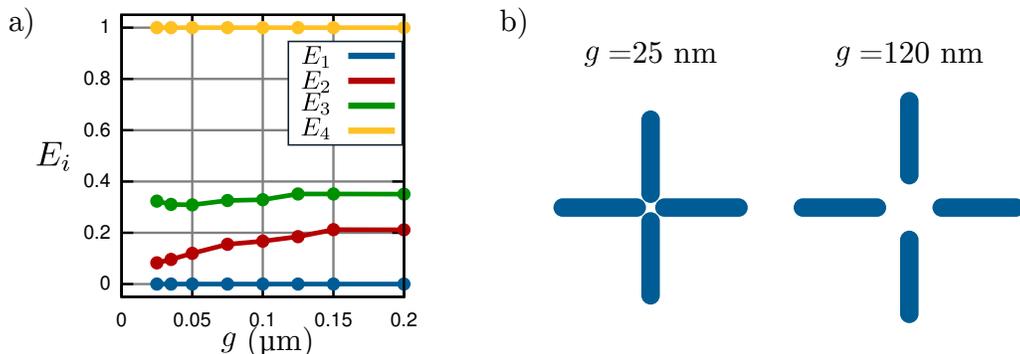


FIGURE A.1 – a) Simulations micromagnétiques de l’effet du gap sur les niveaux d’énergie du vertex. Paramètres : $L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $e = 21$ nm, cellules de $(3 \text{ nm})^3$. b) Allure des vertex pour $g = 25$ nm et $g = 120$ nm.

La diminution du gap entraîne une forte baisse de E_2 , sans cependant parvenir à inverser les niveaux E_1 et E_2 . Il n’est pas possible de réduire encore le gap car les aimants entreraient en contact. Si tel était le cas, des parois de domaine apparaîtraient au centre du vertex. Cela aurait un fort impact sur les niveaux d’énergie. La normalisation du spectre en énergie en figure A.1 masque la baisse des énergies absolues e_i engendrée par l’augmentation du gap. Avec des gaps élevés, les couplages deviennent très faibles. Une désaimantation ou un recuit ne parviendrait pas à amener le réseau dans sa variété de basse énergie. Le réseau aurait un comportement paramagnétique. C’est pourquoi il faut se restreindre à l’étude de faibles gaps, qui garantissent des interactions significatives entre aimants.

Influence l’épaisseur des aimants

L’épaisseur e peut être choisie précisément durant le dépôt de la couche magnétique. De cette épaisseur dépend directement l’intensité des moments magnétiques en jeu, et donc l’énergie des différents types de vertex. Il est plus aisé de travailler avec des épaisseurs importantes (entre 20 et 40 nm) pour les observations MFM. Cependant, des épaisseurs plus faibles (quelques nanomètres) sont requises pour pouvoir atteindre un régime thermiquement actif. L’épaisseur des aimants est donc un paramètre variable selon les expériences. L’étude son incidence sur les énergie de vertex est alors nécessaire.

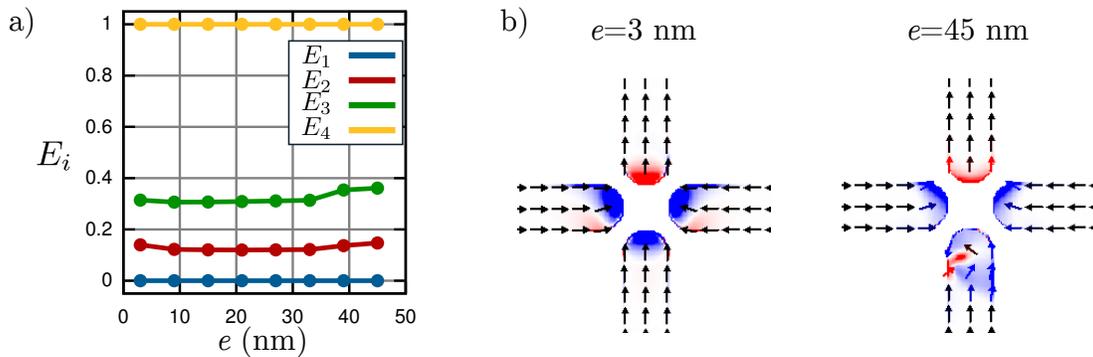


FIGURE A.2 – Simulations micromagnétiques montrant l’effet de l’épaisseur sur les niveaux d’énergie du vertex. Paramètres : $L = 500$ nm, $w = 100$ nm, $g = 50$ nm, cellules de $(3 \text{ nm})^3$. b) Configurations magnétiques de vertex T3, pour une épaisseur de 3 nm (à gauche) ou de 45 nm (à droite). Le vertex épais présente une distribution d’aimantation plus hétérogène.

Les simulations en figure A.2a montrent que les niveaux E_i ne varient pas de façon significative avec l’épaisseur de la couche magnétique. L’énergie du vertex T3 augmente cependant légèrement entre 35 et 40 nm. Cet effet est imputable aux degrés de libertés micromagnétiques qui prennent plus d’importance avec de fortes épaisseurs de matériau. Les configurations micromagnétiques en figure A.2b illustrent ce phénomène. Pour $e = 3$ nm, le vertex T3 présente une structure micromagnétique avec de légères déflexions de l’aimantation aux extrémités des aimants. Pour $e = 45$ nm, le même vertex T3 possède une structure magnétique plus

complexe. Un vortex magnétique est apparu à l'intérieur d'un des aimants. Ces changements pourraient expliquer les légères variations observées sur les niveaux en figure A.2.

Influence du rapport d'aspect des aimants

La géométrie des aimants employés dans la littérature varie selon les équipes de recherche :

- $L = 470$ nm, $w = 170$ nm ($\frac{L}{w} = 2.76$) [24]
- $L = 280$ nm, $w = 85$ nm ($\frac{L}{w} = 3.29$) [68]
- $L = 220$ nm, $w = 80$ nm ($\frac{L}{w} = 2.75$) [104]
- $L = 3000$ nm, $w = 300$ nm ($\frac{L}{w} = 10$) [91]

Pourtant, peu d'études ont été consacrées au rôle joué par ces paramètres [109]. L'extension spatiale des aimants a certainement une influence sur les couplages micromagnétiques internes à un vertex. De plus, c'est le rapport d'aspect qui détermine l'anisotropie de nos peusospins Ising. Son effet est visible sur le graphe en figure A.3.

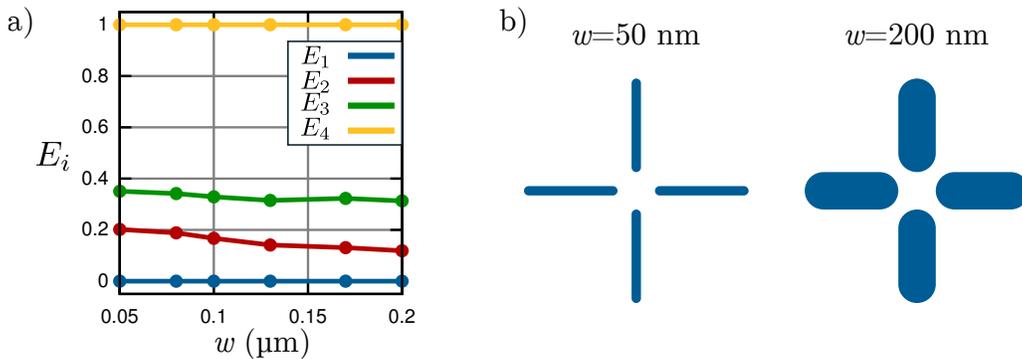


FIGURE A.3 – Simulations micromagnétiques de l'effet de la largeur des aimants sur les niveaux d'énergie des vertex. Tous les autres paramètres sont maintenus constants. Paramètres : $L = 500$ nm, $e = 21$ nm, $g = 50$ nm, cellules de $(3 \text{ nm})^3$. b) Allure des vertex pour $w = 50$ nm (à gauche) et $w = 200$ nm (à droite).

D'après ce graphe, l'énergie du vertex T2 diminue significativement lorsque les largeurs d'aimants augmentent. Nous pourrions imaginer obtenir une inversion des niveaux E_1 et E_2 par ce moyen. Mais pour $w > 200$ nm, l'anisotropie de forme n'est plus assez importante pour permettre aux nanoaimants de conserver leur caractère monodomaine.

Conclusion

Nous avons montré dans cette annexe que les niveaux d'énergie des vertex dépendent des paramètres géométriques L , w , e et g . Cependant, bien qu'il soit possible d'obtenir des modulations parfois importantes des niveaux, leur hiérarchie reste inchangée. Pour cela, il faudrait avoir un réel contrôle des couplages premiers voisins. C'est pourquoi nous avons employé des absorbeurs ou une surélévation pour réaliser la condition $E_1 = E_2$.

Annexe B

Microfabrication

Les échantillons des expériences présentées dans ce manuscrit ont été fabriqués majoritairement au pôle Nanofab de l'Institut Néel. Les dépôts de permalloy ont eux été réalisés à la Plateforme Technologique Amont du CEA de Grenoble. Le protocole que nous avons employé est très classique. Il se compose d'une étape de lithographie électronique, suivie d'un dépôt par évaporation puis d'un *lift-off*. Le cas de la glace surélevée nécessite de répéter une seconde fois ce protocole, en changeant le matériau déposé. Dans cette annexe technique, nous allons décrire succinctement notre méthode de fabrication. Celle-ci est résumée en figure B.1.

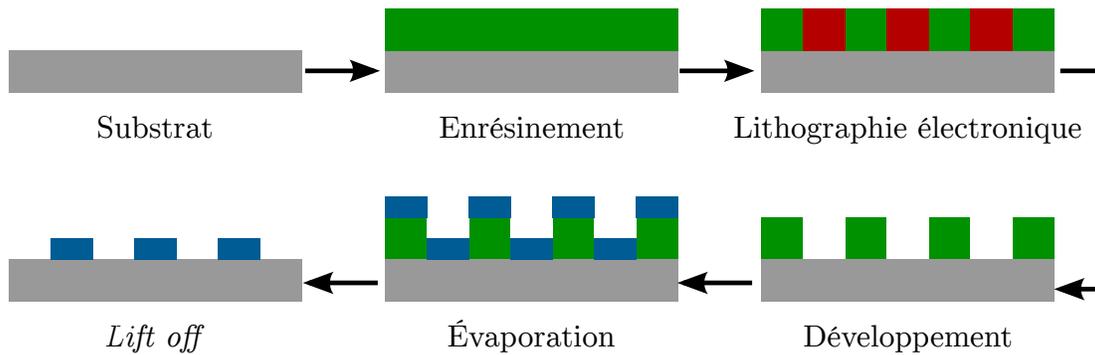


FIGURE B.1 – Schéma des cinq étapes de notre protocole de fabrication.

Les échantillons sont fabriqués à partir de *wafers* de silicium (100) dopés p. Leur conductivité se situe entre 1 et $10 \Omega \cdot \text{cm}^{-1}$. Un substrat peu résistif facilite l'évacuation des charges électriques lors de l'imagerie XMCD-PEEM et de la lithographie électronique.

Étalement de résine

L'étape préliminaire à toute lithographie est l'application d'une couche de résine par *spin coating*. Nous utilisons la résine positive électrosensible la plus courante : le polyméthacrylate de méthyle, ou PMMA. Sa viscosité peut être ajustée par dilution dans un solvant *ad hoc*, offrant ainsi un contrôle de son épaisseur. Notre PMMA est dilué à 4% dans du lactate d'éthyle (Allresist 679).

Nous avons toujours conservé les mêmes réglages pour la tournette :

- Vitesse : $4000 \text{ T} \cdot \text{min}^{-1}$

- Accélération : $4000 \text{ T} \cdot \text{min}^{-2}$
- Durée : 60 s

Le substrat est ensuite recuit à 180°C pendant cinq minutes afin d'évaporer toute trace du solvant de la résine. D'après nos mesures par profilométrie optique, ce procédé permet d'obtenir une épaisseur de résine de 157 nm.

Lithographie électronique

Pour cette étape, nous avons employé un microscope électronique à balayage Zeiss Leo1530 modifié pour permettre d'effectuer des insolations (environnement Raith Elphy Plus). Il ne possède pas de platine interférométrique, ce point est à prendre en compte pour la conception du masque. Nous avons systématiquement travaillé avec des champs d'écriture d'une largeur de $80 \mu\text{m}$ pour insoler les nanoaimants. L'appareil ne permettant pas d'obtenir des alignements précis, chaque réseau doit pouvoir entrer dans un seul champ.

Afin d'optimiser la résolution, nous avons travaillé à faible courant en introduisant un diaphragme de $7.5 \mu\text{m}$ dans le faisceau électronique. Selon l'état de la pointe à émission de champ, les courants d'insolation se situent entre 10 et 20 pA. Les structures sont subdivisées par le logiciel en cellules carrées de 5.2 nm de côté. Le temps d'exposition des cellules est ensuite calculé de manière à garantir une dose électronique de $300 \mu\text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$ sur les zones à développer. Dans ces conditions, le temps d'exposition typique pour un réseau carré de 840 éléments est de quelques minutes.

- Après insolation, l'échantillon est développé grâce à deux bains de solvants chronométrés :
- 30 secondes dans un mélange de $\frac{1}{3}$ MIBK (méthylisobutylcétone) + $\frac{2}{3}$ IPA (isopropanol) ;
 - 60 secondes dans de l'IPA pur.

Après séchage sous flux d'azote, l'échantillon est prêt pour l'étape de dépôt.

Dépôt par EBPVD

Les dépôts ont été effectués par la technique d'EBPVD (*Electron Beam Physical Vapor Deposition*). Expliquons succinctement le principe de cette technique : le métal à déposer, placé dans un creuset, est bombardé par un faisceau d'électrons. Cela provoque l'évaporation du métal dans la chambre, qui est maintenue sous un vide secondaire. Les vapeurs condensent sur les parois internes de la machine et sur la surface de notre échantillon. L'épaisseur de matériau et la vitesse de dépôt sont mesurées en temps réel par une balance à quartz.

Afin d'optimiser l'adhérence des matériaux sur le substrat, nous déposons préalablement une couche d'accroche de titane, d'une épaisseur de 5 nm. L'épaisseur voulue de permalloy peut ensuite être évaporée. Un revêtement de 3 nm d'aluminium est déposé en dernière étape pour protéger le matériau de l'oxydation. Le courant du faisceau d'électrons est asservi de manière à garantir une vitesse de dépôt de $1 \text{ \AA} \cdot \text{s}^{-1}$ pour tous les matériaux. Lors du dépôt, la pression dans la chambre est de l'ordre de 10^{-5} mBar. Celle-ci varie selon le matériau déposé. Une fois les matériaux déposés, la résine peut être dissoute.

Lift off

Afin d'éliminer la résine et les matériaux non-désirés, l'échantillon est plongé dans un bain de « Remover PG ». Il s'agit d'un solvant commercial à base de NMP (n-méthyl-2-pyrrolidone). Pour stimuler la dissolution de la résine, la température du bain est portée à 80°C. Pour faciliter le décollement du résidu métallique, l'échantillon est posé à l'envers dans le creux d'un verre de montre. Après une heure dans ces conditions, le bain est soumis à des ultrasons quelques secondes, ce qui disloque la couche métallique à éliminer. L'échantillon est alors extrait puis nettoyé dans un bain d'IPA qui élimine les restes de NMP. Après un dernier séchage sous flux d'azote, l'échantillon est terminé.

Annexe C

Microscopie à force magnétique

La microscopie à force magnétique (MFM) est une technique d'imagerie dérivée du microscope à force atomique (AFM), apparu dans les années 80. Les éléments essentiels qui composent un AFM sont schématisés en figure C.1a. Le microscope sonde la surface d'un échantillon au moyen d'une pointe microscopique, afin d'en extraire la topographie. La versatilité de cette technique a par la suite permis son application aux mesures locales électriques, magnétiques ou même tribologiques. Pour effectuer des mesures magnétiques, la pointe est recouverte d'un matériau ferromagnétique dur. Elle porte ainsi un moment magnétique permanent susceptible d'interagir avec l'échantillon. La MFM peut être mise en œuvre de diverses manières. Dans cette annexe, nous nous focalisons sur la technique employée pour les expériences de cette thèse. Elle s'effectue par un double balayage de l'échantillon : la topographie est mesurée au premier passage de la même manière qu'en AFM. À partir de cette information, un second passage est effectué à altitude constante (quelques dizaines de nanomètres) pour sonder magnétiquement la surface de l'échantillon.

Premier passage

Pour la mesure topographique, nous avons employé le mode « semicontact ». Comme le montre la figure C.1a, la pointe est montée sur un levier d'une longueur typique de 200 μm . Comme tout levier, il possède des modes de résonance vibratoires. La cale piezoélectrique sur laquelle est fixée la sonde permet d'exciter le levier à fréquence et amplitude contrôlées. La réponse du levier peut être mesurée grâce au système de détection optique représenté en figure C.1a. L'ensemble forme donc un analyseur de spectre mécanique. La figure C.2a représente le spectre typique obtenu au voisinage du premier mode de résonance d'une sonde isolée. Pour cette sonde, la fréquence du premier mode est de $f_1 = 65$ kHz. Le facteur de qualité de ce pic est de l'ordre de 50¹. La fréquence d'excitation f est fixée à la résonance f_1 . Les paramètres sont ajustés de manière à assurer une amplitude d'oscillation de l'ordre de $A = 50$ nm.

Dans le mode AFM semicontact, la pointe est approchée de l'échantillon jusqu'à observer l'écrêtage du pic de résonance. Cette situation est représentée en figure C.2c. À la fréquence f_1 , l'amplitude des oscillations est alors réduite par le contact entre la pointe et la surface.

1. Le facteur de qualité augmente fortement si la sonde est placée sous vide.

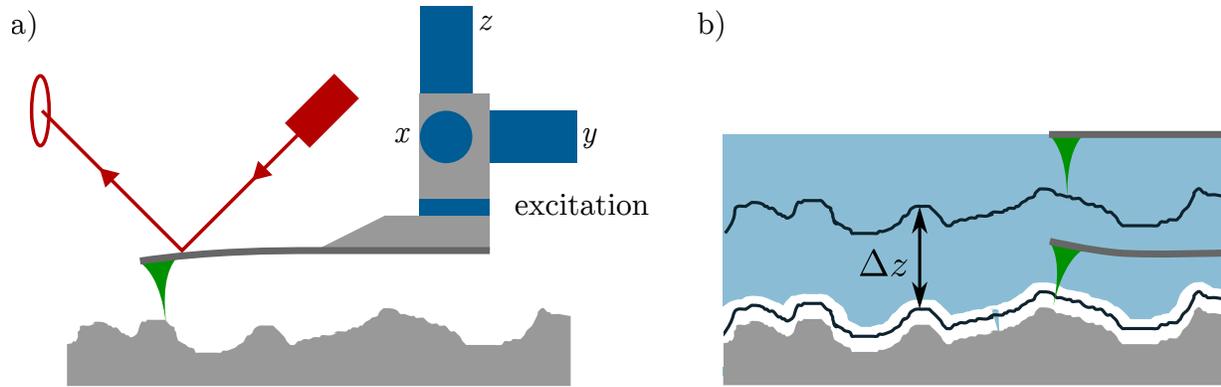


FIGURE C.1 – a) Schéma de principe d'un AFM. La pointe est fixée sur un levier souple dont la flexion est mesurée par réflexion d'un laser. Un actuateur piézoélectrique trois axes permet de positionner la pointe dans l'espace avec une précision sub-nanométrique. En mode semicontact, les oscillations du levier sont entretenues par une cale piézoélectrique solidaire de la sonde. b) Au premier passage, la sonde mesure la topographie de l'échantillon dans la région où les forces de contact (Wan de Waals) sont dominantes (zone blanche). Le second passage reproduit le profil précédent à une altitude Δz , pour laquelle les forces magnétiques dominant (zone bleue).

Ce mode permet d'obtenir une interaction sonde/échantillon significative, tout en limitant la dégradation des surfaces en contact.

L'altitude de la sonde est asservie par un régulateur PID, de manière à conserver l'amplitude des oscillations à une valeur de consigne A_c . Si $A > A_c$, l'interaction pointe/échantillon est trop faible, la rétroaction abaisse la sonde. Si $A < A_c$, l'interaction est trop forte et la rétroaction relève la sonde. Cet asservissement garantit une distance pointe/surface de quelques nanomètres lors des déplacements de la sonde. Au cours du balayage, la topographie de l'échantillon se révèle alors dans la commande (xyz) de la position de la sonde (cf. fig. C.1a).

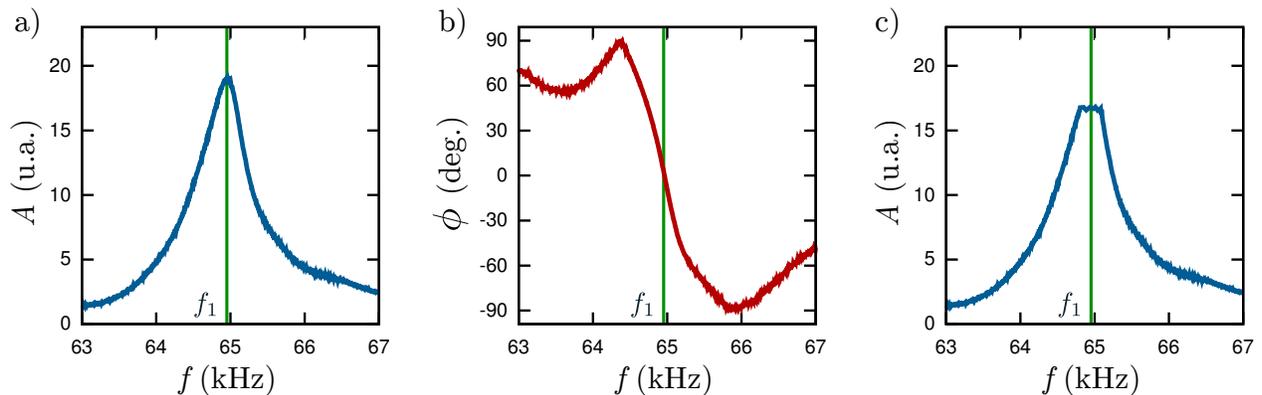


FIGURE C.2 – Amplitude (a) et phase (b) des oscillations d'un levier isolé en fonction de la fréquence d'excitation, mettant en évidence un pic de résonance à $f_1 = 65$ kHz. c) Allure du pic de résonance lorsque la pointe est au contact de l'échantillon. L'écrtéage est d'autant plus important que la pointe est proche de la surface.

Second passage

En mode MFM, un second passage reproduit chaque ligne à l'identique mais à une altitude Δz de quelques dizaines de nanomètres. La régulation PID est donc désactivée pour ce passage. À l'altitude Δz , la pointe est insensible aux forces de contact de type Wan der Waals qui étaient responsables de l'écrêtage du pic de résonance (cf. fig. C.1b). Mais les interactions magnétiques ont une plus grande portée que les forces de contact (qui décroissent en r^{-6}). À l'altitude Δz , la pointe ressent encore significativement le champ magnétique de l'échantillon. Comme la pointe porte un moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$, elle subit une force \mathbf{F} proportionnelle au gradient de champ magnétique :

$$\mathbf{F} = \boldsymbol{\mu} \cdot (\nabla \cdot \mathbf{B})$$

en considérant que le moment $\boldsymbol{\mu}$ porté par la pointe est vertical, il vient :

$$\mathbf{F} = \boldsymbol{\mu} \frac{\partial B_z}{\partial z} \quad (\text{C.1})$$

Le levier forme donc un oscillateur mécanique soumis à une force \mathbf{F} , ce qui affecte sa fréquence de résonance. Nous notons f'_1 la fréquence de résonance du levier soumis à la force \mathbf{F} . f'_1 s'exprime :

$$f'_1 = f_1 \sqrt{1 - \frac{1}{k} \frac{\partial F}{\partial z}} \quad (\text{C.2})$$

où k est la constante de raideur du levier au niveau de la pointe. En injectant (C.1) dans (C.2), l'influence du champ local sur la résonance du levier apparaît :

$$f'_1 = f_1 \sqrt{1 - \frac{\mu}{k} \frac{\partial^2 B_z}{\partial z^2}}$$

Le désaccord du levier dépend donc de la dérivée seconde du champ local, projeté sur le moment de la pointe. Si l'excitation du levier se fait à fréquence f_1 fixée, l'amplitude et la phase des oscillations seront affectées par le désaccord $f_1 - f'_1$. Comme ces variations sont beaucoup plus marquées sur la phase, l'information magnétique est obtenue à partir du déphasage $\Delta\phi$. La phase est calibrée de manière à avoir $\Delta\phi > 0$ en cas de forces attractives et $\Delta\phi < 0$ en cas de forces répulsives. Le second passage mesure $\Delta\phi$ sur la surface de l'échantillon, ce qui permet de visualiser directement la carte magnétique de l'échantillon.

La figure C.3a représente l'image topographique extraite au premier passage sur un réseau de plots magnétiques. La précision de l'image est de l'ordre de la dizaine de nanomètres ; celle-ci dépend avant tout de la qualité de la sonde. La phase mesurée au second passage révèle l'état magnétique des plots (cf. fig. C.3b). La reconstruction du champ d'aimantation à partir d'une image MFM est un problème complexe pour plusieurs raisons :

- La qualité des sondes et leur structure magnétique est très variable.
- Les variations de phase mesurées dépendent de $\frac{\partial F}{\partial z}$. La technique n'est donc pas sensible directement à l'aimantation, mais à la distribution de charges magnétiques.
- L'aimantation de l'échantillon peut être influencée par le champ rayonné par la pointe, et vice versa. Il s'agit d'une technique invasive.

En raison de ces difficultés, des modèles numériques sont généralement employés pour reconstruire l'aimantation d'un échantillon à partir des images MFM [115].

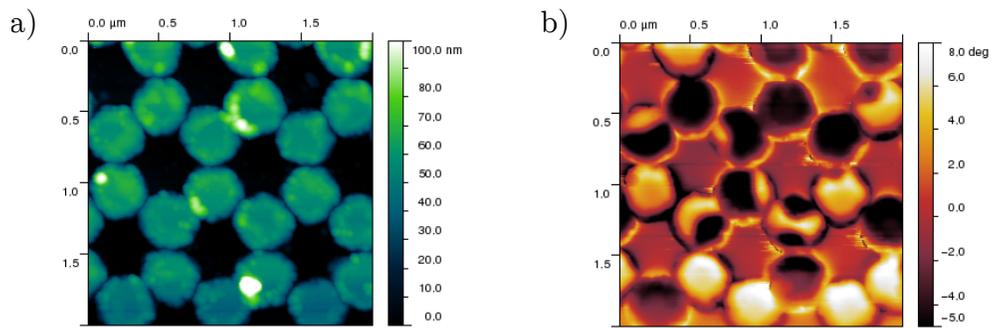


FIGURE C.3 – Image topographique (a) et magnétique (b) de disques magnétiques, extraites respectivement au premier et au second passage. Les disques sont aimantés hors de leur plan et certains se sont fractionnés en domaines.

Annexe D

Imagerie XMCD-PEEM

Le microscope électronique à photoémission (*photoemission electron microscopy*, PEEM) est une technique d'imagerie qui s'est développée dans les années 60. Elle se base sur l'effet photoélectrique, qui correspond à l'émission d'électrons par un matériau soumis à une radiation UV ou X. Dans un microscope PEEM, la surface de l'échantillon est soumise à un flux de photons incidents qui provoque une émission continue d'électrons. Grâce à un dispositif complexe d'électrodes et d'optique électronique, le microscope accélère ces photoélectrons pour former une image (cf. fig. D.1). Il s'agit d'une technique de surface car les électrons collectés proviennent des couches superficielles de l'échantillon. Le contraste traduit les variations locales de la quantité d'électrons photoémis. Les propriétés chimiques de la surface jouent ici un rôle prépondérant.

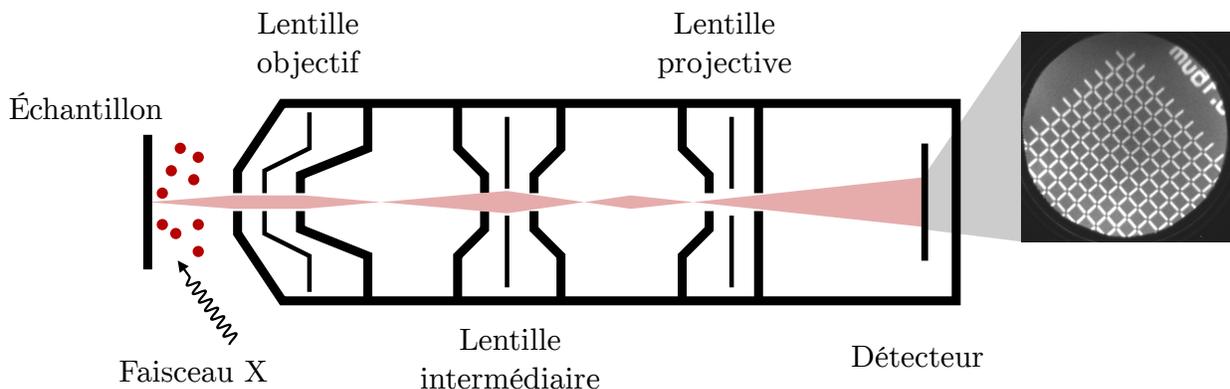


FIGURE D.1 – Schéma de principe d'un microscope PEEM. Les électrons de basse énergie photoémis sont accélérés et mis en forme par une optique électronique simplifiée, sur cette figure. Le détecteur est constitué d'une matrice de photomultiplicateurs couplée à une caméra CDD par l'intermédiaire d'un scintillateur. Une image brute typique obtenue sur un réseau de nanoaimants est représentée à droite.

Pour cette technique d'imagerie magnétique, il faut travailler avec des photons X d'énergie ajustable avec précision. Le rayonnement synchrotron répond à ces exigences, puisqu'il offre un faisceau de rayons X monochromatique d'énergie contrôlable. Le microscope permet l'acquisition de spectres d'absorption X comme celui représenté en figure D.2a. Il met en

évidence un pic d'absorption à $h\nu = 720$ eV, correspondant au seuil L2 du fer contenu dans les nanoaimants de permalloy.

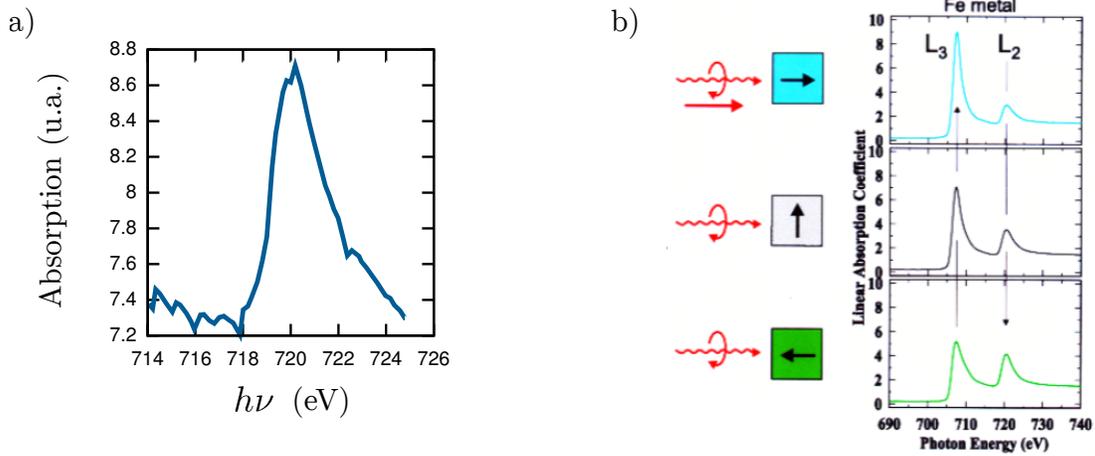


FIGURE D.2 – a) Spectre d'absorption X effectué sur un réseau de nanoaimants de permalloy. b) Illustration du dichroïsme circulaire des rayons X. Figure extraite de la référence [96].

Les onduleurs qui produisent le faisceau de rayons X offrent un contrôle de leur polarisation. Il est ainsi possible d'obtenir des photons polarisés circulairement gauche ou droite (que nous noterons σ^+ et σ^-). Cette polarisation a une influence sur l'absorption des rayons X par un milieu aimanté. Comme le montre la figure D.2b, l'absorption est favorisée si le moment angulaire du photon X est dans la même direction que l'aimantation. Par conséquent, la soustraction de deux images prises avec deux polarisations opposées met en évidence un contraste dichroïque (cf. fig. D.3). Ce contraste dépend de l'orientation de l'aimantation par rapport au faisceau de rayons X. Comme le faisceau est en incidence rasante (16° par rapport au plan de l'échantillon), le dichroïsme est maximal pour les systèmes à aimantation planaire (les réseaux nanoaimants étudiés dans cette thèse par exemple).

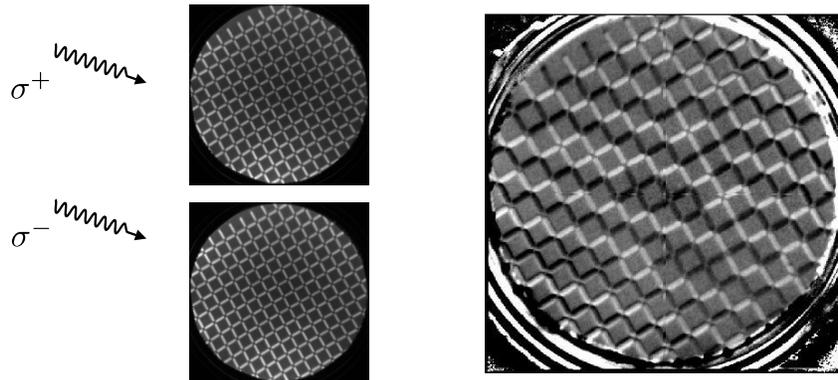


FIGURE D.3 – Images d'un réseau carré de permalloy, prises avec les polarisations circulaires σ^+ et σ^- . Le contraste magnétique apparaît nettement en soustrayant les deux images (à droite).

La qualité des images peut être améliorée en augmentant le temps d'intégration. Pour les

expériences de cette thèse, nous avons généralement acquis 40 images pour chaque polarisation, avec un temps d'exposition de 4 s. Notre résolution temporelle est dans ce cas de plus de 5 min. Mais celle-ci peut être réduite au prix de la qualité des images. Farhan *et al.* [24] ont ainsi pu résoudre temporellement le mécanisme de relaxation thermique d'un réseau de nanoaimants carré.

Contrairement au MFM, cette technique est non-invasive et mesure directement le champ d'aimantation. De plus, s'agissant d'une technique de surface, elle permet de travailler sur des couches minces. Sa selectivité chimique peut être mise à profit, par exemple pour mesurer l'aimantation des sous-réseaux d'un matériau ferrimagnétique. Elle est cependant plus lourde à mettre en œuvre puisqu'elle nécessite de travailler sous ultravide, avec un rayonnement synchrotron.

Annexe E

Glacé carrée surélevée thermiquement active

Les expériences du chapitre 3 ont été faites sur des réseaux de permalloy mince ($e \sim 3$ nm), capables d'atteindre un régime semblable à du superparamagnétisme pour des températures modérées. Nous avons tenté d'appliquer cette méthode à la glace carrée surélevée. Les résultats présentés ici ont été obtenus par microscopie XMCD-PEEM au synchrotron ALBA.

Pour n'avoir qu'un seul échantillon, la surélévation h des réseaux est fixée à 80 nm. C'est en agissant sur les dimensions des réseaux que nous agissons sur la hiérarchie des niveaux d'énergie. Les simulations micromagnétiques appuyant cette méthode sont présentées en figure 4.16. Nous avons fabriqué des réseaux faits de permalloy mince pour des longueurs d'aimants allant 300 à 500 nm. Une première difficulté est apparue en raison d'une finesse excessive de la couche magnétique : les réseaux se sont avérés thermiquement actifs à T_{amb} ($e = 2.8$ nm). Un refroidissement autour de 200 K a été nécessaire pour stabiliser et observer des configurations magnétiques. Dans ces conditions, nous avons observé les réseaux témoins $h = 0$ dans leur état fondamental AF. Mais les réseaux surélevés se sont, eux, avérés très difficiles à observer pour plusieurs raisons.

Difficultés expérimentales

Comme le rayonnement est en incidence rasante ($\gamma = 16^\circ$), les cales d'épaisseur $h = 80$ nm projettent une ombre importante sur le sous-réseau inférieur. La situation est schématisée en figure E.1a. Un calcul trigonométrique montre que leur ombre a une longueur s telle que :

$$s = h \frac{\cos \alpha}{\tan \gamma}$$

L'angle α représente l'orientation du faisceau par rapport au sous-réseau inférieur. Pour avoir un contraste magnétique significatif sur tous les aimants, les rayons X sont orientés dans la diagonale du réseau carré ($\alpha = \frac{\pi}{4}$). Avec ces paramètres, l'ombre a une longueur de l'ordre de 200 nm, ce qui est proche de la longueur des aimants étudiés.

L'image magnétique d'une portion de réseau est présentée en figure E.1b. L'ombre est présente mais le sous-réseau inférieur est encore visible. Par contre, le contraste magnétique du sous-réseau supérieur est très faible. Une diminution de l'aimantation à saturation des

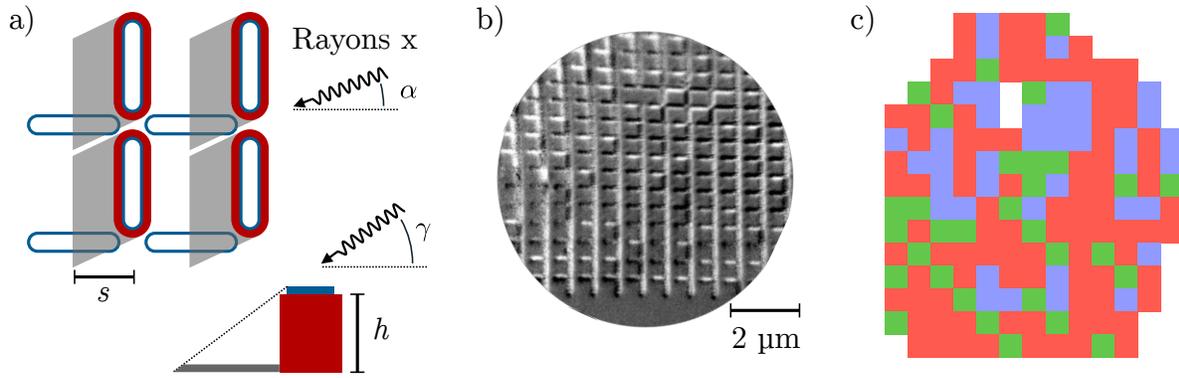


FIGURE E.1 – a) Schéma représentant un réseau carré irradié par le faisceau de rayons X du microscope XMCD-PEEM. Les cales projettent une ombre de longueur s sur le sous-réseau inférieur. b) Image XMCD-PEEM montrant la configuration magnétique d'un réseau carré surélevé, avec $h = 60$ nm et $a = 600$ nm. La température d'imagerie est de 143 K. c) Même portion de réseau après analyse. Les carrés bleus, rouges et verts représentent respectivement les vertex T1, T2 et T3. Les vertex T2 dominant sur cette configuration bien que des domaines d'état AF subsistent (en bleu).

aimants concernés pourrait expliquer ce phénomène. La rugosité des cales d'or pourrait être à l'origine du changement des propriétés magnétiques des aimants.

État magnétique des réseaux

L'analyse du réseau expérimental apparaît en figure E.1c. Quelques domaines de phase AF sont encore présents. Bien que le réseau soit composé à 54% de vertex T2, la phase M en est absente. L'aimantation rémanente révèle des différences entre les sous-réseaux : $M = 34\%$ pour le sous-réseau surélevé, contre 5% pour le second. Cette observation peut traduire un biais expérimental ou un changement des propriétés magnétique des aimants supérieurs. La fréquence élevée de vertex T3 (19%) est aussi remarquable. Elle peut traduire une augmentation du désordre intrinsèque du réseau, ou une mauvaise thermalisation. Le sous-réseau supérieur pose donc un problème d'imagerie et d'activation thermique.

Néanmoins, nous pouvons essayer d'observer l'effet du rehaussement sur le sous-réseau inférieur. La configuration des aimants non-surélevés, après refroidissement, apparaît en figure E.2a. Sa rémanence est faible (10%) et les moments semblent former des lignes. Le facteur de structure associé (E.2b) présente des maxima d'intensité en $(\pm\pi; 0)$. Ces régions traduisent un état de lignes de spins alternées, c'est à dire une phase Manhattan prise sur un seul sous-réseau. D'après les simulations micromagnétiques, cette géométrie ($L = 600$ nm, $h = 80$ nm) doit s'ordonner dans l'état AF. Ce n'est pas ce que nous observons sur les aimants inférieurs. Tout se passe comme si les sous-réseaux étaient découplés. Cette observation va dans le sens d'une baisse de l'aimantation à saturation des aimants du sous-réseau supérieur. Pour cette raison, nous n'avons pas pu étudier la glace carré surélevée dans un régime thermiquement actif.

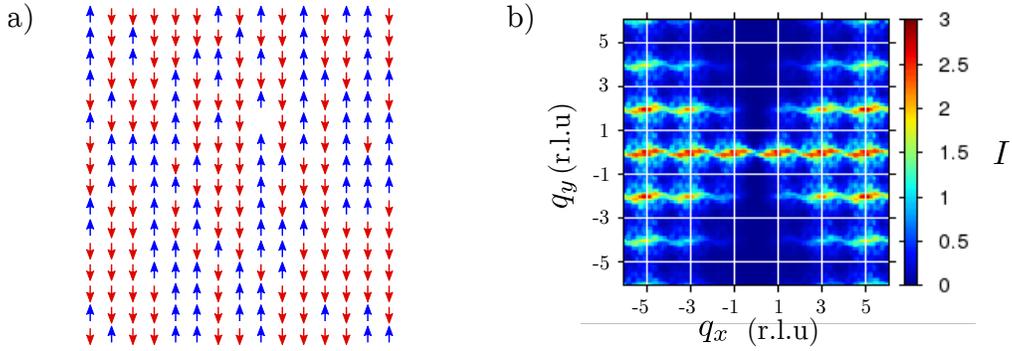


FIGURE E.2 – a) Aimants du sous-réseau inférieur observés après recuit, pour $a = 600$ nm et $h = 80$ nm. Les spins semblent former des lignes, ce qui est attendu lorsque $J_2 > J_1$. Nous ne sommes pas parvenus à résoudre le sous-réseau surélevé. b) Facteur de structure associé à cette configuration, présentant une intensité maximale autour des points $(\pm\pi, 0)$.

Solutions et alternatives

La différence que nous avons constatée entre sous-réseaux est certainement due à des effets d'interface. L'utilisation de couches magnétiques épaisses ($e > 10$ nm) pourrait être un moyen de minimiser ces effets. Mais il est impossible d'atteindre un régime thermiquement actif à de telles épaisseurs. Les alliages à basse température de Curie, comme le FePd ou le GdCo, permettent de réaliser des réseaux épais thermiquement actifs. Mais ces couches sont fabriquées par pulvérisation cathodique et cette technique n'est pas adaptée à l'étape de *lift-off*. Ces alliages ne sont donc pas utilisables avec la méthode de fabrication décrite dans ce manuscrit. Une autre possibilité serait d'insérer une couche de SiN sous des aimants de permalloy épais. Celle-ci éviterait l'interdiffusion entre le substrat et le matériau magnétique lors du recuit [112]. Cette méthode serait directement applicable avec notre protocole de fabrication. Les cales doivent cependant supporter le recuit au delà de T_c .

Annexe F

Corrélations de monopoles

Dans certains réseaux expérimentaux, les monopoles semblent s'agglomérer. Nous pouvons alors calculer les corrélations qui existent entre leurs charges magnétiques. Si chaque monopole est entouré de monopoles de signes opposés (resp. de même signe), ce corrélateur vaut -1 (resp. +1). Mais si les monopoles sont positionnés aléatoirement, ce corrélateur n'est pas nécessairement nul. En raison du spin qu'ils ont en commun, une contrainte lie les monopoles voisins. Nous allons montrer dans cette annexe que des paires de monopoles distribuées aléatoirement ont une corrélation de charge de -0.25.

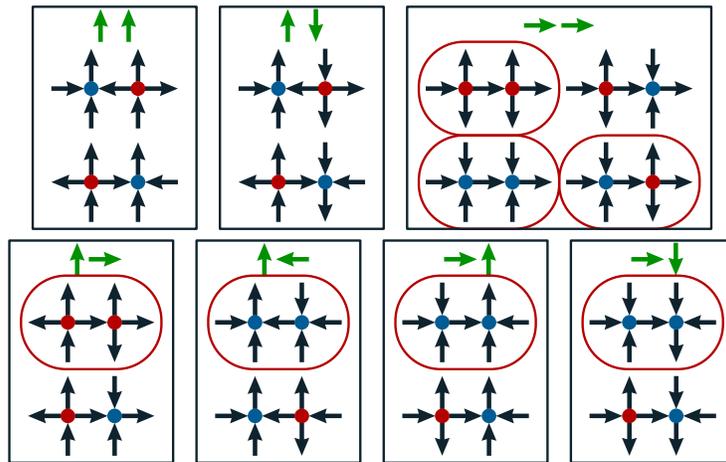


FIGURE F.1 – Schéma représentant la moitié des agencements possibles pour deux monopoles voisins. L'autre moitié des possibilités s'obtient par renversement du temps. Les disques bleus ou rouges représentent respectivement les charges positives ou négatives. Les paires de monopoles sont groupées selon la configuration qu'adoptent leurs aimantations moyennes respectives (flèches vertes). Les paires de monopoles non-contractables sont entourées en rouge.

Nous allons dénombrer les différentes manières de placer deux monopoles côte à côte horizontalement. Chaque monopôle porte un moment magnétique orienté selon un des axes du réseau, ce qui laisse 4 possibilités pour chaque. Il existe donc 16 manières d'agencer les moments de la paire de monopoles, dont seulement 14 sont autorisées par la contrainte liant les deux vertex. Sept de ces configurations sont représentées par les flèches vertes de la figure F.1.

Les autres se déduisent par renversement du temps. À chacune peut correspondre plusieurs configurations de spin. Au total, 16 possibilités sont dénombrables. Elles sont représentées en figure F.1. Parmi ces 16 états, seulement 6 mettent en jeu deux monopoles de même signe. Nous supposons que ces états ont la même probabilité d'apparaître dans un réseau avec des monopôles placés aléatoirement. Dans ce cas, le corrélateur de charges C_q attendu est :

$$C_q = \frac{1}{16} \sum_{i=1}^{16} q_1 q_2 = \frac{1}{16} (6 - 10) = -0.25$$

Le calcul numérique de C_q sur des configurations de spin aléatoires (populations typiques $\rho_1 = 0.125$, $\rho_2 = 0.25$, $\rho_3 = 0.5$, $\rho_4 = 0.125$) permet de retrouver cette valeur. Dans les expériences, nous avons mesuré des corrélateurs systématiquement inférieurs à -0.25. Cela va dans le sens de l'existence d'une interaction significative entre monopôles, de type coulombienne par exemple.

Les configurations représentées en figure F.1 peuvent aussi se grouper selon un autre critère, celui dit de contractibilité : dans certains cas, l'inversion du spin qui lie les deux monopôles permet de les annihiler, c'est à dire de rétablir la règle de la glace des deux côtés. Il s'agit alors d'un événement très favorable énergétiquement et la paire de monopoles est dite « contractable ». Dans d'autres cas, l'inversion produit un ou deux vertex T4 de haute énergie. Cet événement n'est a priori pas sensé se produire dans nos réseaux. La paire de monopoles est alors protégée topologiquement et elle est dite « non contractable ». Sur les 16 configurations représentées en figure F.1, 7 sont « non contractables ». Remarquons que deux monopôles de même signes sont nécessairement non contractables.

À basse température, les paires de monopoles contractables s'annihilent très rapidement puisque ce processus ne nécessite qu'une seule inversion de spin. Les paires de monopôles protégées topologiquement subsistent, elles, sur des durées plus grandes [10].

Résumé

Certains composés cristallins, comme la glace ou les glaces de spin, présentent la caractéristique de ne pas s'ordonner à basse température. Ce comportement surprenant trouve son origine dans le phénomène de frustration. Celui-ci apparaît en présence de forces en compétition qui ne peuvent pas être simultanément satisfaites. Cette frustration donne lieu à des états exotiques de la matière, désordonnés mais pourtant fortement corrélés. Les composés frustrés sont étudiés en matière condensée depuis plusieurs décennies. Mais à ce jour, les techniques expérimentales ne permettent pas d'accéder aux configurations locales de ces systèmes. Les réseaux de nanoaimants semblent être de bons candidats pour contourner cette difficulté. La taille typique de ces nanoaimants est de quelques centaines de nanomètres. Les techniques d'imagerie magnétique permettent donc d'observer chaque objet individuellement. Il est alors possible d'étudier localement comment les degrés de liberté s'accommodent de la frustration. De plus, leur géométrie est aisément modulable puisqu'ils sont fabriqués par lithographie. Il est donc possible de fabriquer des objets qui n'ont pas d'équivalent naturel. L'intérêt porté aux réseaux de nanoaimants provient de cette grande flexibilité, alliée à la possibilité d'observer les configurations locales.

Depuis les travaux pionniers de Wang *et al.* [104], le réseau carré de nanoaimants a reçu une grande attention. Il a été conçu dans le but de réaliser expérimentalement le modèle de Lieb, aussi appelé « glace carrée ». Ce modèle, qui a déjà fait l'objet de plusieurs études théoriques, est un analogue bidimensionnel de la glace et des glaces de spin. Mais pour des raisons géométriques, le réseau de nanoaimants carré ne présente pas les propriétés attendues : il s'ordonne au lieu de présenter des états de basse énergie désordonnés. C'est pourquoi la communauté s'est tournée vers d'autres géométries. Mais à ce jour, les états de basse énergie du modèle de Lieb n'ont pas été observés expérimentalement. Cette thèse vise à réaliser et à étudier ce modèle grâce aux réseaux de nanoaimants.

Nous explorons dans ce manuscrit une première approche, qui consiste à ajouter des aimants supplémentaires au réseau carré initial. Nous prouvons que cette solution permet théoriquement d'obtenir une physique de glace dans le système. Expérimentalement, les aimants additionnels produisent l'effet recherché, mais un biais dans nos expériences masque les corrélations que nous recherchons. Nous observons toutefois qu'ils ont une influence notable sur les fluctuations et les excitations du réseau.

Notre seconde approche consiste à surélever la moitié des nanoaimants du réseau carré. Les travaux théoriques prouvent qu'une physique de glace peut être rétablie en ajustant cette surélévation. Nous avons réussi à élaborer un tel système et à étudier ses états de basse énergie. Expérimentalement, l'effet de la surélévation concorde parfaitement avec nos prévisions. Notre analyse prouve que nous avons réussi à réaliser le modèle de Lieb avec des nanoaimants. Les facteurs de structure magnétiques obtenus présentent des points de pincement, signature d'un liquide de spin algébrique. Cette approche permet de visualiser pour la première fois des configurations magnétiques appartenant à une phase de Coulomb. Ce travail ouvre des perspectives intéressantes pour l'étude des excitations de cette phase, analogues à des monopoles magnétiques classiques.