

Dépendance en température des propriétés du couplage d'échange dans $\text{BiFeO}_3/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ polycristallin

J. Richy,^{1,3,*} T. Hauguel,¹ J. Ph. Jay,¹ S. P. Pogossian,¹ B. Warot-Fonrose,² C. J. Sheppard,³ J. L. Snyman,³ A. M. Strydom,³ J. Ben Youssef,¹ A. R. E. Prinsloo,³ D. Spenato¹ et D. T. Dekadjevi¹

¹Laboratoire de magnétisme de Bretagne, université de Bretagne occidentale, France.

²Groupe nanomatériaux — CEMES-CNRS, Toulouse, France.

³Department of Physics, university of Johannesburg, South Africa.

* jerome.richy@univ-brest.fr

Les nanostructures à base de matériaux multiferroïques (MF) combinant à la fois ferroélectricité (FE) et antiferromagnétisme (AF), avec un couplage éventuel entre ces fonctionnalités, suscitent un regain d'intérêt de la part de la communauté scientifique. En effet, un couplage magnétoélectrique contrôlé dans une nanostructure unique apporterait un contrôle direct de l'état magnétique du matériau MF. Ainsi, les matériaux multiferroïques sont des candidats idéaux pour des nanodispositifs comme les mémoires magnétiques ou les composants micro-ondes accordables (filtres, résonateurs, etc) [1–3]. Cependant, la plupart des matériaux MF possèdent une température de Néel bien inférieure à 300 K, réduisant de ce fait le nombre de candidats possibles pour des applications à température ambiante. L'un des rares MF connu pour garder ses propriétés à température ambiante est BiFeO_3 (BFO). Une utilisation intéressante des MF consiste à réaliser des bicouches MF/Ferromagnétique couplées par échange, permettant alors de contrôler l'aimantation de la couche F à l'aide d'un champ électrique par l'intermédiaire du couplage. Un tel couplage nommé couplage d'échange a été découvert par Meiklejohn et Bean [4]. Il consiste en un décalage horizontal caractéristique (champ d'échange H_e) du cycle d'hystérésis, et peut être interprété comme une anisotropie unidirectionnelle.

Des études précédentes réalisées sur du BFO épitaxié ou massif ont démontré le rôle clé de l'ordre cristallin (ie. la déformation) à l'origine des propriétés multiferroïques (ie. la présence d'une cycloïde magnétique) [5, 6]. De plus, il est communément admis que l'anisotropie unidirectionnelle dépend du désordre structural à l'interface, incluant le désordre cristallin. Ainsi, il est intéressant d'étudier les propriétés de H_e non seulement sur des systèmes épitaxiés mais également polycristallins. Suivant cela, nous avons récemment démontré qu'un couplage d'échange peut être induit dans des bicouches polycristallines $\text{BiFeO}_3/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (Py/BFO) [7, 8]. À 300 K, l'énergie du couplage d'échange interfacial dans des bicouches polycristallines BFO/Py est du même ordre de grandeur que celles rapportées dans des précédentes publications sur des bicouches BFO/F épitaxiées [9–11]. Cependant, une étude de la dépendance en température pourrait révéler des différences entre des systèmes épitaxiés et polycristallins.

Dans cette étude, nous rapportons une analyse de la dépendance en température des propriétés du couplage d'échange dans des bicouches BFO/Py en fonction de l'épaisseur de BFO. Les dépendances en température de H_e et du champ coercitif (H_c) sont d'abord présentées. Afin de comprendre le retournement magnétique dans les bicouches BFO/Py couplées par échange ainsi que les anisotropies magnétiques en présence, nous présenterons une étude azimutale de H_e et H_c à 300 K et 77 K. Finalement, les résultats d'un protocole de refroidissement sous champ de chaque échantillon sera discuté afin de comprendre la distribution d'énergie d'anisotropie.

Les bicouches ont été déposées par pulvérisation cathodique radiofréquence, suivant la structure $\text{Si}/\text{Pt}(14\text{ nm})/\text{BiFeO}_3(t_{\text{BFO}})/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(10\text{ nm})/\text{Pt}(10\text{ nm})$, avec t_{BFO} parmi 0 nm, 29 nm et 177 nm. Afin d'induire un axe d'anisotropie uniaxial, un champ magnétique H_{dep} de 300 Oe a été appliqué durant la croissance. L'analyse au DRX a confirmé la structure polycristalline du BFO.

De manière à sonder le mécanisme de renversement, le comportement magnétique azimutal à température ambiante a été mesuré à l'aide d'un magnétomètre vectoriel à échantillon vibrant (VVSM). L'évolution azimutale de H_e et H_c montre un comportement complexe, révélant la présence d'une anisotropie biquadratique. Un désalignement entre H_{dep} et la position angulaire du maximum de H_c est aussi observé pour $t_{\text{BFO}} = 0\text{ nm}$ et 29 nm, et disparaît pour l'échantillon le plus épais. Il indique

qu'un transfert d'anisotropie est présent entre les couches à travers le champ d'échange par l'intermédiaire de spins réversibles.

Comme l'énergie d'anisotropie dépend de la température, des mesures pour des températures appliquées de 10 K à 390 K ont été réalisées avec un SQUID MPMS (Quantum Design). Après un refroidissement sous champ selon H_{dep} , H_e et H_c ont été extraits des cycles d'hystérésis pour T croissant jusqu'à température ambiante (Fig. 1). Les résultats montrent un champ coercitif décroissant exponentiellement selon T croissant. L'évolution de H_e est plus complexe, car il n'est pas monotone pour l'ensemble des couches. Cela diffère du comportement habituel des systèmes F/AF couplés par échange où une diminution monotone décroissante avec T du champ d'échange et coercitif est attendu. Bien que ce comportement non usuel a précédemment été observé dans des bicouches BFO/F épitaxiées [12] et polycristallines [13], son origine reste encore indéterminée.

Afin de comprendre l'évolution du champ d'échange avec T et de sonder les directions d'anisotropie à basse température, les cycles d'hystérésis magnétique à 77K ont été mesurés en fonction de la position azimutale de l'échantillon par rapport au champ appliqué. Pour tous les échantillons, les axes de symétrie azimutale sont indépendants de la température malgré un changement de forme visible, révélant une modification des configurations d'anisotropies du fait des différents rapports et/ou désalignement des axes d'anisotropie. De telles modifications ne conduisent pourtant pas à un comportement non-monotone de H_e dans la plupart des systèmes F/AF. Une étude théorique sera présentée pour comprendre ce comportement non monotone.

Également, un protocole de variation de température contrôlé a été réalisé, donnant accès à la distribution de température de blocage et interprétée pour des polycristaux à une distribution de domaine AF. Nous montrons que cette distribution est similaire aux systèmes épitaxiés, en dépit des différences structurales. Nous discuterons cela en matière de frustration interfaciales ou des structures en domaine au sein du BFO.

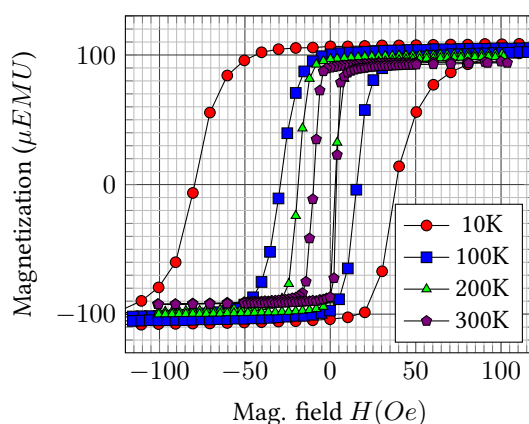


Figure 1. Cycles d'hystérésis pour $t_{\text{BFO}} = 29 \text{ nm}$.

- [1] T. Alquist, J. Pinkman, S. Goodman, G. Fring and W. White, *J. Chem. Physics* **524**, 12 (2013).
- [1] Y.-H. Chu, L. W. Martin, M. B. Holcomb, et al. *Nat. Mater.* **7**, 478 (2008).
- [2] M. Bibes and A. Barthélémy. *Nat. Mater.* **7**, 425 (2008).
- [3] W. Eerenstein, N. D. Mathur, and J. F. Scott. *Nature*, **442**, 759 (2006).
- [4] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean. *Phys. Rev.* **102**, 1413 (1956).
- [5] D. Sando, A. Agbelele, D. Rahmedov, et al. *Nat. Mater.* **12**, 641 (2013).
- [6] F. Tsui, M. C. Smoak, T. K. Nath, and C. B. Eom. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2421 (2000).
- [7] T. Hauguel, S. P. Pogossian, D. T. Dekadjevi, et al. *J. Appl. Phys.* **110**, 073906 (2011).
- [8] T. Hauguel, S. P. Pogossian, D. T. Dekadjevi, et al. *J. Appl. Phys.* **112**, 093904 (2012).
- [9] J. Dho and M. G. Blamire. *J. Appl. Phys.* **106**, 3914 (2009).
- [10] X. Qi, H. Kim, and M. G. Blamire. *Philos. Mag. Lett.* **87**, 175 (2007).
- [11] C. K. Safeer, M. Chamfrault, J. Allibe, et al. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 2402 (2012).
- [12] H. Naganuma, M. Oogane, and Y. Ando. *J. Appl. Phys.* **109**, (2011).
- [13] X. Xue, X. Yuan, W. Rui, et al. *Eur. Phys. J. B*, **86**, 121 (2013).