

Vincent Baltz
Chargé de recherche du CNRS
vincent.baltz@cea.fr
04 38 78 03 24

Grenoble, le 2 novembre 2016

Rapport sur le mémoire présenté par M. Jérôme Richy intitulé :

‘Étude des propriétés du couplage d’échange dans des nanostructures de type ferromagnétique/multiferroïque’

en vue d’obtenir le titre de Docteur de l’Université de Bretagne occidentale

La thèse de M. Jérôme Richy porte sur les propriétés des interactions d’échange entre un matériau ferromagnétique et un matériau antiferromagnétique. Ce travail a été réalisé au laboratoire de magnétisme de Bretagne et a bénéficié de la collaboration avec le département de physique de l’Université de Johannesburg où M. Jérôme Richy a obtenu une partie des résultats présentés dans ce mémoire.

Les travaux de M. Jérôme Richy traitent d’un problème complexe pour lequel un grand nombre de systèmes ont été étudiés et de très nombreux modèles ont été proposés. Il s’agit également d’un problème d’actualité dans un contexte de vive concurrence. Les interactions d’échange entre un matériau ferromagnétique et un matériau antiferromagnétique sont importantes pour un grand nombre de dispositifs d’électronique de spin puisqu’elles permettent de définir une direction de référence pour le spin des électrons. Une des particularités des travaux de M. Jérôme Richy est que le matériau antiferromagnétique utilisé (la ferrite de bismuth, BiFeO_3) possède un ordre ferroélectrique couplé à l’ordre antiferromagnétique. Cette propriété autorise le contrôle de l’ordre antiferromagnétique par un champ électrique. Dans ce mémoire, l’accent est mis sur la compréhension du renversement sous champ magnétique, en température, et en angle de l’aimantation de la couche ferromagnétique couplée par échange.

Au sein d’une introduction concise, M. Jérôme Richy rappelle les enjeux fondamentaux et applicatifs de l’électronique de spin, l’intérêt de la communauté scientifique pour la ferrite de bismuth et l’importance de la compréhension des mécanismes de couplage d’échange avec ce matériau et en particulier lorsque ce dernier est sous la forme polycristalline.

Dans le premier chapitre, M. Jérôme Richy présente les connaissances nécessaires à la bonne compréhension du manuscrit. Il rappelle en particulier les bases du renversement en température de l’aimantation ainsi que les bases du phénomène de couplage d’échange. Les principaux modèles théoriques et l’évolution de la compréhension de la communauté scientifique sont discutés. Des résultats expérimentaux types illustrent les points essentiels.

Dans le deuxième chapitre, M. Jérôme Richy décrit les matériaux utilisés. Il présente l’essentiel des propriétés structurelles, magnétiques et électriques de la ferrite de bismuth. Les techniques de synthèse et de caractérisation dont M. Jérôme Richy s’est servi sont ensuite expliquées et illustrées. M. Jérôme Richy présente la manière ingénieuse qu’il a employée pour la fabrication d’un cryostat à immersion nécessaire pour ses travaux. M. Jérôme Richy termine ce chapitre en détaillant la méthodologie expérimentale.

Au sein du troisième chapitre, M. Jérôme Richy regroupe ses résultats de modélisations de renversement d’aimantation en température pour un ensemble de particules magnétiques sphériques de taille finie. Il a d’abord étudié un système modèle ferromagnétique. Les comportements obtenus, notamment à la transition de phase superparamagnétique, et la comparaison avec des modèles existants ont permis à M. Jérôme Richy de valider son approche. Il présente ensuite l’influence de la distribution de taille des particules, de la température, et de l’angle pour un système plus complexe ferromagnétique-antiferromagnétique de type cœur-coquille. Les résultats d’accroissement de stabilité et de coercivité sont mis en perspectives avec les problématiques liées au chauffage par hyperthermie. L’évolution non-monotone de certaines propriétés d’échange produite par la distribution en taille des particules permet à M. Jérôme Richy de faire le lien avec les études expérimentales présentées dans les deux chapitres suivants.

Le quatrième chapitre est consacré à l’étude en épaisseur, en température et en angle des propriétés du couplage d’échange entre la ferrite de bismuth sous la forme polycristalline et le Permalloy. M. Jérôme Richy confirme les comportements non-monotones des propriétés du couplage d’échange (décalage en champ du cycle d’hystérèse et énergies d’activation thermique de la ferrite de bismuth couplée). Il montre que ces comportements sont qualitativement indépendants de différents paramètres extrinsèques tels que la nature cristalline (épitaxiale ou polycristalline) ou l’épaisseur de la ferrite de bismuth. M. Jérôme Richy attribue ses résultats au désaxage des moments magnétiques. Il s’agit d’une propriété intrinsèque de la ferrite de bismuth qui peut conduire à une contribution biquadratique au couplage d’échange ; la véracité d’un lien causal entre contribution biquadratique et comportement non-monotone étant établie dans un modèle de la littérature. Afin de valider son hypothèse, M. Jérôme Richy a mené des études combinant mesures angulaires et en température. Elles révèlent la présence d’une contribution biquadratique dans les bicouches polycristallines de ferrite de bismuth - Permalloy.

Dans le cinquième chapitre, M. Jérôme Richy regroupe des études expérimentales en angle de la relaxation temporelle des propriétés du couplage d’échange des bicouches polycristallines de ferrite de bismuth - Permalloy. Après avoir rappelé la littérature sur le trainage magnétique, M. Jérôme Richy présente ses résultats et montre pour la première fois une dépendance angulaire de relaxation temporelle des propriétés du couplage d’échange. Ces résultats sont attribués au fort degré de frustration magnétique dans le système ferrite de bismuth - Permalloy.

Au sein d’une conclusion concise, M. Jérôme Richy rappelle l’essentiel des enjeux de son travail, ses principaux résultats, et les perspectives.

Le mémoire de M. Jérôme Richy est parfaitement structuré, malgré la complexité des phénomènes présentés et observés qui dépendent de nombreux paramètres. Les problématiques sont bien posées et documentées. Les réponses aux problèmes posés sont claires et précises.

Sur une thématique où la compétition internationale est forte, M. Jérôme Richy a su mener des études originales, aussi bien de modélisation qu'expérimentales. J'ai particulièrement apprécié la rigueur dont M. Jérôme Richy a fait preuve dans l'analyse et l'interprétation de ses résultats. Sa démarche, axée sur l'étude systématique (influence de l'épaisseur, de la température, de l'angle, de la relaxation temporelle, et également des effets de taille) d'un système donné, lui a permis d'obtenir des résultats fiables et de proposer des interprétations convaincantes et alternatives aux explications existantes qui font encore débat.

M. Jérôme Richy a su utiliser les moyens et les compétences du laboratoire de magnétisme de Bretagne. Il a par ailleurs su participer à la fabrication d'un nouveau dispositif de mesure lorsque ces moyens faisaient défaut pour ses recherches. Sa collaboration avec des chercheurs du département de physique de l'Université de Johannesburg est un gage des capacités de M. Jérôme Richy à tisser des liens forts au-delà de son laboratoire d'affectation.

Les résultats des études présentées par M. Jérôme Richy dans son mémoire ont d'ores et déjà donné lieu à deux publications dont il est le premier auteur (une parue et une en cours d'examen, toutes deux dans une revue internationale). M. Jérôme Richy est par ailleurs co-auteur de deux autres publications parues dans des revues internationales. Finalement, M. Jérôme Richy a su valoriser ses travaux par plusieurs présentations orales et par affiche dans des conférences nationales et internationales.

A la lecture de ce mémoire, je recommande très vivement que M. Jérôme Richy puisse présenter ses travaux de recherche en vue d'obtenir le titre de Docteur de l'Université de Bretagne occidentale.

Vincent Baltz



UNIVERSITE DE BRETAGNE OCCIDENTALE

Ecole Doctorale
Santé, Information, Communication, Mathématiques, Matière

FICHE EVALUATION DU MEMOIRE

(à joindre impérativement au rapport de recevabilité)

Nom et prénom du candidat :

RICHY JEROME

Titre de la thèse :

"Etude des propriétés du couplage d'échange dans des nanostructures de type ferromagnétique/multi-ferroïque"

Nom et prénom du directeur de thèse : (éventuellement co-directeur de thèse)

Monsieur SPENATO DAVID

Le rapporteur,

Nom et prénom, Qualité et Fonctions :

M. BALTZ VINCENT, Chargé de Recherche

Adresse :

CEA SPINTEC Grenoble
Univ. Grenoble Alpes/CNRS/CEA
Bât. 10-05 - 7 rue des Martyrs
38054 GRENOBLE

EXCEPTIONNEL	<input type="checkbox"/>	TRES BON	<input type="checkbox"/>	BON	<input type="checkbox"/>	MOYEN	<input type="checkbox"/>	INSUFFISANT
EXCELLENT	<input checked="" type="checkbox"/>		<input type="checkbox"/>					

Art. 20 -- Arrêté du 7 août 2006

Le président signe le rapport de soutenance qui est contresigné par l'ensemble des membres du jury. Ce rapport peut indiquer l'une des mentions suivantes : honorable, très honorable, très honorable avec félicitations. La plus haute mention, qui est réservée à des candidats aux qualités exceptionnelles démontrées par les travaux et la soutenance, ne peut être décernée qu'après un vote à bulletin secret et unanime des membres du jury. Dans ce cas, le président du jury établit un rapport complémentaire justifiant cette distinction.

Le rapport de soutenance précise, le cas échéant, que l'établissement ne délivre pas de mention.

Le rapport de soutenance est communiqué au candidat.

Les formations doctorales Géosciences Marines, Océanographie Physique, Météorologie et Environnement, Océanologie Biologique, Chimie Marine de l'Ecole Doctorale des Sciences de la Mer, ont décidé unanimement (le 25-06-2003 pour les Géosciences, le 1-07-2004 pour la Physique, le 14-12-2005 pour la Biologie) de ne plus accorder de félicitations lors des soutenances de doctorat. Le jury a par ailleurs toute latitude pour distinguer un travail remarquable dans le rapport de soutenance dans lequel il peut circonstancer son appréciation.

Fait à, *Grenoble* le *02/11/2016*

Signature : 

Denis LEDUE
Professeur
Groupe de Physique des Matériaux, Université de Rouen
76801 Saint-Etienne-du-Rouvray

Rapport sur le mémoire de thèse de J. RICHY intitulé :
« ETUDE DES PROPRIÉTÉS DU COUPLAGE D'ECHANGE DANS DES NANOSTRUCTURES DE
TYPE FERROMAGNETIQUE/MULTIFERROÏQUE »

Le mémoire de thèse comporte 5 chapitres. Le chapitre I est consacré à des rappels théoriques de magnétisme et le chapitre II est consacré à la présentation des matériaux étudiés et des techniques expérimentales. Le chapitre III porte sur la modélisation du renversement d'aimantation thermiquement activé dans des nanoparticules de type « cœur - coquille ». Les chapitres IV et V présentent des résultats expérimentaux obtenus sur des bicouches $\text{BiFeO}_3/\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ polycristallines. Il est à noter que cette thèse comporte une étude réalisée par modélisation (nanoparticules) et une étude expérimentale (bicouches).

Le chapitre I est bien rédigé et très complet. En particulier, il inclut en plus des notions de base (ferromagnétisme, antiferromagnétisme ...) une description détaillée des différents modèles concernant l'anisotropie d'échange. La qualité de certaines figures tirées de la bibliographie serait à améliorer.

Le chapitre II présente dans un premier temps les propriétés physiques des matériaux BiFeO_3 (BFO) et $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ (Permalloy). Ensuite, il décrit les techniques de croissance (pulvérisation cathodique radiofréquence) puis les techniques d'analyse, soit structurale, soit magnétique, utilisées au cours de la thèse.

Le chapitre III porte sur la modélisation du renversement d'aimantation dans des nanoparticules de type « cœur - coquille ». Le modèle bidimensionnel utilisé considère un « macrospin » pour modéliser l'aimantation du cœur qui est ferromagnétique (F) et un « macrospin » dont la direction représente la direction des moments atomiques de la coquille qui est antiferromagnétique (AF). L'anisotropie magnétique est prise uniaxiale et dirigée suivant la même direction dans le cœur et dans la coquille. Un couplage interfacial J_{F-AF} entre le cœur et la coquille est également pris en compte, ce couplage donne lieu à de l'anisotropie d'échange. Il est à noter que les constantes d'anisotropie K_F , K_{AF} et l'aimantation du cœur sont supposées indépendantes de la température ce qui suppose que le modèle n'est applicable qu'à des températures nettement inférieures à la valeur minimale des températures d'ordre du cœur et de la coquille. L'agitation thermique est prise en compte en comparant la valeur du temps de relaxation à la température considérée au temps de mesure, le retournement d'aimantation ayant lieu si le temps de relaxation est inférieure au temps de mesure. Dans un premier temps, le modèle est testé sur des nanoparticules F de taille unique. Dans un second temps, l'étude porte sur des nanoparticules F présentant une distribution de taille. Cette étude montre que la température d'annulation du champ coercitif (température de blocage effective de l'assemblée) est supérieure à la température de blocage correspondant au volume moyen de la distribution en accord avec des études antérieures. L'étude porte ensuite sur la variation thermique du champ coercitif et du champ d'échange d'assemblées de nanoparticules « cœur – coquille » présentant une distribution de taille. Les résultats montrent que la variation thermique du champ d'échange et du champ d'anisotropie dépend fortement du choix des valeurs des paramètres K_F et J_{F-AF} . L'étude porte ensuite sur la dépendance angulaire du champ d'échange et du champ coercitif. Ces résultats sont très intéressants car ils pourraient être utilisés pour estimer les valeurs de K_F et J_{F-AF} dans les nanoparticules « cœur – coquille » réelles distribuées en taille. Compte tenu de l'importance de l'anisotropie de surface dans les nanoparticules, il serait intéressant de voir si celle-ci peut être incluse dans le modèle.

Le chapitre IV porte sur l'étude expérimentale du comportement en température de bicouches $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{BiFeO}_3$ polycristallines. La première partie est consacrée à la variation thermique du champ coercitif et du champ d'échange puis à la dépendance de ces deux champs vis-à-vis de la température de recuit via le protocole de Soeya. La seconde partie porte sur la variation thermique de la dépendance angulaire du champ

coercitif et du champ d'échange. Ces résultats sont en accord avec la présence d'une contribution biquADRATIQUE induite par le cantage des moments du BFO au couplage d'échange.

Le chapitre V contient une étude expérimentale du traînage magnétique dans les bicouches Ni₈₁Fe₁₉/BiFeO₃ polycristallines. Les résultats obtenus mettent en évidence pour la première fois un traînage angulaire, c'est-à-dire une rotation de l'axe d'anisotropie au cours du temps. Des travaux complémentaires (expérimentaux ou théoriques) seraient toutefois nécessaires pour proposer une interprétation de ce traînage angulaire.

En conclusion, compte tenu de la qualité scientifique des résultats présentés dans le mémoire de thèse, j'émets un avis très favorable à la soutenance dans le but d'obtenir le titre de docteur de l'Université de Bretagne Occidentale.

Saint-Etienne-du-Rouvray, le 3 novembre 2016



D. LEDUE

UNIVERSITE DE BRETAGNE OCCIDENTALE

Ecole Doctorale
Santé, Information, Communication, Mathématiques, Matière

FICHE EVALUATION DU MEMOIRE

(à joindre impérativement au rapport de recevabilité)

Nom et prénom du candidat :

RICHY JEROME

Titre de la thèse :

" Etude des propriétés du couplage d'échange dans des nanostructures de type ferromagnétique/ multi-ferroïque "

Nom et prénom du directeur de thèse : (éventuellement co-directeur de thèse)

Monsieur SPENATO DAVID

Le rapporteur,

Nom et prénom , Qualité et Fonctions :

M. LEDUE DENIS, Professeur des Universités

Adresse :

Université de Rouen
UFR Sciences&Tech. - UMR 6634
Avenue de l'Université - B.P. 12
76801 SAINT-ETIENNE-DU-ROUVRAY

EXCEPTIONNEL	<input type="checkbox"/>	TRES BON	<input checked="" type="checkbox"/>	BON	<input type="checkbox"/>	MOYEN	<input type="checkbox"/>	INSUFFISANT	<input type="checkbox"/>
EXCELLENT	<input type="checkbox"/>								

Art. 20 -- Arrêté du 7 août 2006

Le président signe le rapport de soutenance qui est contresigné par l'ensemble des membres du jury. Ce rapport peut indiquer l'une des mentions suivantes : honorable, très honorable, très honorable avec félicitations. La plus haute mention, qui est réservée à des candidats aux qualités exceptionnelles démontrées par les travaux et la soutenance, ne peut être décernée qu'après un vote à bulletin secret et unanime des membres du jury. Dans ce cas, le président du jury établit un rapport complémentaire justifiant cette distinction.

Le rapport de soutenance précise, le cas échéant, que l'établissement ne délivre pas de mention.

Le rapport de soutenance est communiqué au candidat.

Les formations doctorales Géosciences Marines, Océanographie Physique, Météorologie et Environnement, Océanologie Biologique, Chimie Marine de l'Ecole Doctorale des Sciences de la Mer, ont décidé unanimement (le 25-06-2003 pour les Géosciences, le 1-07-2004 pour la Physique, le 14-12-2005 pour la Biologie) de ne plus accorder de félicitations lors des soutenances de doctorat. Le jury a par ailleurs toute latitude pour distinguer un travail remarquable dans le rapport de soutenance dans lequel il peut circonstancer son appréciation.

Fait à, *Rouen* le *3/11/2016*

Signature :

