



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

**UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCCEN**

# THÈSE

Présentée à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

**DOCTORAT EN SCIENCES**

Spécialité: Physique

Par :

**Mme MADANI MALIKA**

Sur le thème

---

**Effet du champ magnétique oblique sur la dynamique de  
l'aimantation dans les nanoparticules magnétiques**

---

Soutenue le 11 Mai 2024 à Tlemcen devant le jury composé de :

M <sup>r</sup> BEKHECHI Smain	Professeur	Université de Tlemcen	Président
M <sup>r</sup> BENTALHA Zine-elabidine	Professeur	Université de Tlemcen	Directeur de thèse
M <sup>r</sup> LASRI Boumediene	Professeur	Université de SAIDA	Examineur
M <sup>r</sup> RACHED Djamel	Professeur	Université de Sidi Belabbes	Examineur
M <sup>r</sup> BENKHETOU Nour-Eddine	Professeur	Université de Sidi Belabbes	Examineur
Mr OUARI Bachir	Professeur	Université de Tlemcen	Invité

*Université de Tlemcen, Faculté des Sciences, Département de Physique  
BP 119, 13000 Tlemcen - Algérie*

## *Remerciement*

Je remercie Allah, le tout puissant de m'avoir accordé la patience et surtout le courage d'achever ce travail de thèse.

Ce travail n'aurait pu avoir le jour sans le soutien et la participation de plusieurs personnes, dont j'exprime toute ma reconnaissance pour leur contribution.

En premier lieu, je tiens à remercier et exprimer ma profonde reconnaissance à mon directeur de thèse, Pr **Bachir OUARI** qui a accepté de diriger cette thèse, pour son aide tout au long de la préparation de ce travail, avec sa bonne humeur, son encouragement, et sa modestie.

Mes vifs remerciements pour Mr. **Zine-elabidine BENTALHA**, Professeur à la faculté des sciences de l'Université A.B. de Tlemcen pour ses directives constructives et administratives.

J'adresse aussi mes sincères remerciements à Pr. **Smain BEKHECHI** pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse,

Mes plus vifs remerciements et ma reconnaissance également à monsieur, **Boumediene LASRI** Professeur à l'université de Saida ; ainsi que messieurs **RACHED Djamel** et **BENKHETOU Nour-Eddine** Professeurs à l'université de Sidi Bel abbes, qui m'ont fait l'honneur d'être membres de mon jury et ont accepté de consacrer du temps pour la lecture et le jugement de ce travail,

# *Dédicaces*

*A mon père et ma mère*

*A Mon mari et mes enfants*

*A ma sœur et mes frères*

*A tous ce qui me sont chères.*

# Sommaire

Introduction .....	1
Objectif, Contribution.....	2
Plan de La thèse.....	3
<b>Chapitre I : Rappels fondamentaux et équations de Base.....</b>	<b>5</b>
I.1 Énergie et anisotropie magnétique.....	6
I.1.1 Anisotropie magnétocristalline.....	7
I.1.1.1 Anisotropie uniaxiale.....	8
I.1.1.2 Anisotropie biaxiale.....	8
I.1.1.3 Anisotropie cubique.....	9
I.1.2 Anisotropie de forme.....	10
I.1.3 Anisotropie de surface.....	11
I.1.4 Anisotropie magnétoélastique.....	12
I.2 Modèles de retournement de l'aimantation.....	13
I.2.1 Modèle de Stoner-Wohlfarth.....	13
I.2.1.1 Description.....	13
I.2.1.2 Astroïde de Stoner-Wohlfarth.....	15
I.2.1.3 Cycle de Stoner-Wohlfarth.....	16
I.2.2 Superparamagnétisme de nanoparticules magnétiques.....	18
I.2.2.1 Modèle de Néel.....	19
I.2.2.2 Modèle de Brown.....	20
I.2.2.3 Résolution de l'équation de Fokker-Planck.....	21
I.2.2.4 Estimation du temps de retournement de l'aimantation.....	23
I.2.3 Quelques résultats de la réponse magnétique linéaire.....	25
I.2.3.1 Susceptibilité magnétique complexe.....	25
I.2.3.2 Relaxation longitudinale.....	27
I.2.3.3 Susceptibilité et temps de relaxation transversaux.....	29
I.2.4 Champ de retournement en régime dynamique.....	30
I.3 Dynamique de l'aimantation de nanoparticules magnétiques en présence d'un champ externe variable.....	33
I.3.1 Susceptibilité dynamique non-linéaire .....	34
I.3.2 Retournement de l'aimantation d'une nanoparticule individuelle en présence d'un champ alternatif.....	37
I.3.3 Résonance ferromagnétique non-linéaire .....	39
I.3.4 Hystérésis magnétique dynamique.....	41
I.4 Formulation du problème et organisation du manuscrit.....	45
I.5 Bibliographie.....	46

<b>Chapitre II : Dynamique de l'aimantation en présence d'un champ magnétique oblique.....</b>	<b>51</b>
II.1 Introduction.....	52
II.2 Méthode numérique.....	52
II.3 Résultats.....	61
II.3.1 Temps de relaxation.....	61
II.3.2 Evaluations des spectres de la susceptibilité.....	66
II.4 Conclusion.....	74
II.5 Bibliographie.....	77
<b>Chapitre III : Dynamique de la composante transversale de l'aimantation d'une nanoparticule superparamagnétique.....</b>	<b>79</b>
III.1 Introduction.....	80
III.2 Temps de corrélation et susceptibilités transversales.....	81
III.3 Méthode numérique .....	81
III.4 Résultats.....	86
III.4 Conclusion.....	90
III.5 Bibliographie.....	92
<b>IV. Chapitre IV : Dynamique non-linéaire de l'aimantation des nanoparticules Superparamagnétiques.....</b>	<b>94</b>
IV.1 Introduction.....	95
IV.2 Hyperthermie Magnétique (Traitement des cancers par nanoparticules).....	96
IV.3 Résultats et discussions .....	97
IV.4 Conclusion.....	106
IV.5 Bibliographie.....	108
Conclusions générales et perspectives.....	109
Publications au cours de la thèse.....	112

## Introduction

---

- **Contexte, Motivation et Problématique**

---

L'étude des nanoparticules magnétiques est un domaine pertinent et présente un grand intérêt compte tenu de leurs propriétés physiques extraordinaires et ses applications dans divers domaines allant du biomédical (hyperthermie magnétique) à l'enregistrement sur support magnétique (mémoires magnétiques) [1,2,3,4]. Ces domaines sont limités par un phénomène fondamental : l'agitation thermique. A titre d'exemple, la constante de l'aimantation doit être maintenue pour garantir le stockage de l'information. Cela demande l'utilisation de nanoparticules ayant une anisotropie importante. Écrire et/ou lire 'rapidement' sur un support magnétique demande à enregistrer l'information entre deux positions d'équilibre de l'aimantation «0» et «1». Cela peut se faire via l'application d'une impulsion de champ magnétique qui permet de renverser l'aimantation entre ces deux états. Tous ces aspects mentionnés ci-dessus nécessitent une compréhension du processus de retournement de l'aimantation des nanoparticules magnétiques. Dans ce contexte, sont définies les motivations de notre travail.

A l'échelle nanométrique, l'instabilité dans les nanoparticules magnétiques motive beaucoup de chercheurs. Thirion *et al.* [5] ont montré que la combinaison d'un champ magnétique statique et d'un champ micro-ondes très faible permet de réduire l'intensité nécessaire au retournement de l'aimantation d'un nano-aimant. Selon d'autres études expérimentales et théoriques [6], la diminution est plus marquée si la fréquence du champ micro-ondes correspond à la fréquence de résonance ferromagnétique (FMR) de la particule. Dans ce contexte, l'objectif axial de notre travail est d'étudier la dynamique de l'aimantation des nanoparticules magnétiques monodomaines en présence d'un champ magnétique oblique constant puis explorer le comportement de la relaxation dans le cadre de la réponse non linéaire, à savoir en présence d'un champ magnétique sinusoïdale. Ce problème peut se réduire à l'étude du mouvement aléatoire de l'aimantation d'une particule introduite dans un champ magnétique extérieur contrôlé par l'équation de Gilbert-Langevin. Les moments magnétiques des nanoparticules superparamagnétiques sont élevés ( $\sim 10^4 - 10^5 \mu_B$ ) de sorte que l'énergie Zeeman est relativement importante, même pour des champs faibles. Le processus de renversement de l'aimantation a donc une forte dépendance en champ amenant des effets non-linéaires dans la réponse magnétique des nanoparticules analogues aux susceptibilités non-linéaires et l'effet Kerr dynamique dans les liquides [7,8,9,10,11]. Le traitement théorique de

ces effets représente une tâche extrêmement difficile. Cette étude a donc un intérêt autant fondamental qu'appliqué.

- **Objectif, Contribution**

---

Ce travail de thèse a pour objectif d'étudier le renversement de l'aimantation d'une nanoparticule magnétique sous l'effet d'un champ magnétique DC oblique puis sous l'effet d'un champs AC. Nous traiterons l'évolution de l'aimantation comme un processus stochastique. Nous considérons que les nanoparticules sont immobiles, mais leurs aimantations sont munies d'un mouvement brownien que décrit l'équation dynamique de Langevin ou l'équation de Fokker-Planck. Il faut savoir que le processus stochastique est un phénomène d'évolution temporelle dont l'analyse peut être soumise au calcul des probabilités (dans notre cas la densité de probabilité de l'orientation de l'aimantation  $\mathbf{M}$ ).

Dans cette thèse, nous négligerons les effets quantiques dans la description de l'évolution de l'aimantation bien que nous soyons persuadés qu'un des grands intérêts des études de l'aimantation de petites particules à basse température est d'examiner l'existence d'un effet quantique macroscopique dans de tels systèmes magnétiques [4,7,8,9]. Dans ce type de systèmes, l'orientation de l'aimantation ne peut changer qu'en traversant une barrière d'anisotropie. A très basse température, lorsque l'activation thermique diminue, l'effet tunnel macroscopique sera l'effet prépondérant permettant la traversée de cette barrière. La hauteur de la barrière dépend de la structure du matériau, et un champ magnétique permet de modifier les énergies des différents puits des états stables du système. L'étude de cet effet peut se faire par des mesures du temps de relaxation de l'aimantation, dans un champ appliqué voisin du champ coercitif, en fonction de la température. Au-dessus d'une température caractéristique  $T_c$ , la relaxation suit une loi d'activation thermique. Aux températures inférieures, elle est dominée par l'effet tunnel et son taux devient constant [5,6,11].

## Plan de La thèse

---

Le manuscrit est organisé en quatre Chapitres, dans le chapitre I nous exposons un historique et les équations de bases. Dans le Chapitre II, nous calculerons la susceptibilité magnétique  $\chi(\omega)$  des particules superparamagnétiques et le temps de relaxation de l'aimantation. Nous utiliserons la méthode des fractions continues matricielles [6,33,12]. Nous discuterons l'évolution de ces grandeurs en fonction des différents paramètres comme la hauteur de la barrière  $\sigma$ , la constante de dissipation  $\alpha$ . Malgré l'importance pratique de cette étude, (qui peut apporter une contribution essentielle à la densité d'énergie libre des nanoparticules magnétiques), ce cas est dans une certaine mesure inachevée. Pourtant, il reste encore beaucoup de questions intéressantes sans réponse dans cette direction (comme le calcul du temps de relaxation de l'aimantation d'une particule superparamagnétique en présence d'un champ oblique, et l'évaluation des spectres de la susceptibilité magnétique ainsi que la discussion de leur comportement en fonction de la température, des coefficients de l'anisotropie et de la constante de dissipation)

Le Chapitre III est consacré à l'étude de la dynamique de la composante transversale de l'aimantation d'une nanoparticule Superparamagnétique. En utilisant la méthode de fractions continues matricielles, pour différentes valeurs de la dissipation  $\alpha$ , de la barrière  $\sigma$ .

Le chapitre IV illustre l'étude de la dynamique non linéaire de l'aimantation des nanoparticules Superparamagnétiques avec une anisotropie biaxiale en utilisant une approche non perturbatrice.

- 
- [1] Q. A. Pankhurst, N. T. K. Thanh, S. K. Jones and J. Dobson, J. Phys. D **42**, 224001 (2009).
- [2] W. T. Coffey, Y. P. Kalmykov, B. Ouari, S. Titov, "Damping dependence of the magnetization relaxation time of single domain ferromagnetic particles", J. Mag. Magn. Materials, **292**, 372 (2005). Yu. L. Raikher and V. I. Stepanov, Adv. Chem. Phys. **129**, 419 (2004).
- [3] R. Hergt, R. Hiergeista, M. Zeisbergera, G. Glockl, W. Weitschies, L. P. Ramirez, I. Hilger, and W. A. Kaiser, J. Magn. Magn. Mater. **280**, 358 (2004); S. Dutz, R. Hergt, J. Mürbe, R. Müller, M. Zeisberger, W. Andrä, J. Töpfer, and M. E. Bellemann, J. Magn. Magn. Mater. **308**, 305 (2007); Y. Xu, M. Mahmood, Z. Li, E. Dervishi, S. Trigwell, V.P. Zharov, N. Ali, V. Saini, A. R. Biris, D. Lupu, D. Boldor, and A.S. Biris, Nanotechnology **19**, 435 (2008);
- B. E. Kashevsky, V. E. Agabekov, S. B. Kashevsky, K. A. Kekalo, E. Yu. Manina, I. V. Prokhorov, and V. S. Ulashchik, Particuology **6**, 322 (2008); L. M. Lacroix, R. Bel Malaki,

- J. Carrey, S. Lachaize, M. Respaud, G. F. Goya, and B. Chaudret, *J. Appl. Phys.* **105**, 023911 (2009); J. Carrey, B. Mehdaoui, and M. Respaud, *J. Appl. Phys.* **109**, 083921 (2011).
- [4] Ouari and Y. P. Kalmykov, *Virtual journal in science and technology*, **Vol. 15, issue.2**, (2007) J. P. Fortin, C. Wilhelm, J. Servais, C. Menager, J. C. Bacri, and F. Gazeau, *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 2628 (2007) J. P. Fortin, F. Gazeau, and C. Wilhelm, *Eur. Biophys. J.*? **37**, 223 (2008).
- [5] Y. P. Kalmykov, B. Ouari, , *Phys Rev. B* **71**, 94410 (2005), C. Thirion, W. Wernsdorfer and D. Mailly, *Nature Mat.* **2**, 524 (2003)
- [6] G. Woltersdorf, C. H. Back, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 227207 (2007).
- [7] B. Ouari, Y. P. Kalmykov, *Physical Review B*, Vol. 83, 064406 (2011), J. L. Déjardin, Yu. P. Kalmykov, and P. M. Déjardin, *Adv. Chem. Phys.* **117**, 275 (2001).
- [8] A. Morita, *Phys. Rev. A* **34**, 1499 (1986).
- [9] A. Morita and H. Watanabe, *Phys. Rev. A* **35**, 2690 (1987).
- [10] H. Watanabe and A. Morita, *Adv. Chem. Phys.* **56**, 255 (1984).
- [11] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, and P. M. Déjardin, *Phys. Rev. E* **71**, 062102 (2005);  
W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, and Yu. P. Kalmykov, *J. Non-Cryst. Solids* **352**, 4710 (2006).

---

# **Chapitre I**

## **Rappels fondamentaux et équations de Base**

---

Ce premier chapitre est focalisé sur les rappels des éléments de base nécessaires à la compréhension théorique de la dynamique de l'aimantation de nanoparticules magnétiques soumises à un champ magnétique. Après avoir fait un rappel de différentes énergies d'anisotropie magnétique, nous décrivons ensuite le comportement de l'aimantation à l'échelle macroscopique à l'aide du modèle de Stoner-Wohlfarth [1], puis avec celui de Néel-Brown [2,3]. Nous exposons ensuite les résultats principaux des travaux précédents liés à la dynamique de renversement de l'aimantation mettant en évidence les grandeurs physiques mises en jeu (la susceptibilité dynamique, temps de relaxation de l'aimantation, etc.), ces grandeurs ayant une importance pour interpréter, par exemple, la résonance ferromagnétique, l'hystérésis magnétique dynamique, etc.

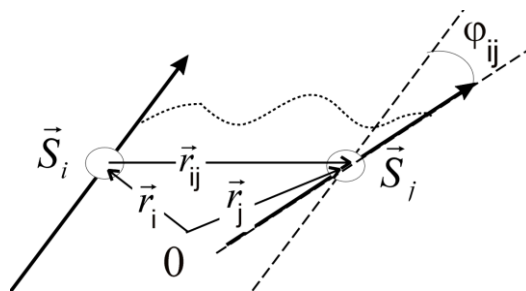
## I.1 Énergie et anisotropie magnétique

Nous souhaitons étudier la dynamique de l'aimantation des nanoparticules magnétiques en présence d'un champ magnétique, ce qui nécessite l'introduction de l'énergie magnétique comme l'énergie Zeeman, l'énergie d'anisotropie, et l'énergie d'échange.

Bien entendu, le comportement des matériaux magnétiques est régi par l'énergie d'échange qui est d'origine quantique. Selon Heisenberg cette énergie est donnée par [4] :

$$E_{Ech} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (\text{I.1})$$

où  $J_{ij}$  est l'intégrale d'échange ( $J_{ij} > 0$  pour une interaction ferromagnétique),  $\mathbf{S}_i$  et  $\mathbf{S}_j$  sont respectivement le spin de l'atome  $i$  et  $j$  (figure I.1). Cette énergie tend à aligner les moments de proches voisins. Dans les nanoparticules, cette énergie est tellement élevée que l'aimantation de ces dernières tend à être uniforme.



**Figure I.1** : Couplage d'échange entre deux spins. [4]

L'énergie volumique Zeeman traduit le couplage entre l'aimantation et le champ magnétique externe, elle s'exprime par :

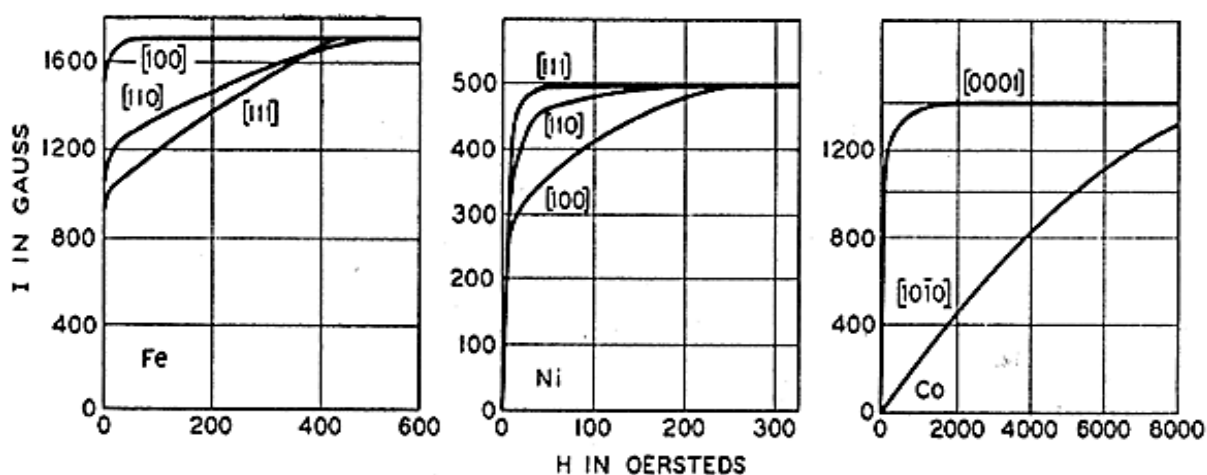
$$E_z = -\mathbf{M} \cdot \mathbf{H} . \quad (I.2)$$

Elle tend à aligner les moments magnétiques suivant la direction de  $\mathbf{H}$ .

L'énergie d'anisotropie magnétique est le résultat de la dépendance de l'énergie interne du système vis-à-vis de la direction de l'aimantation  $\mathbf{M}$  par rapport à certains axes cristallographiques particuliers dits axes de facile aimantation. Généralement, on réalise que l'aimantation est plus facilement saturée par application d'un champ suivant les directions de facile aimantation. L'existence de ces axes privilégiés par la structure cristallographique du matériau entraîne la brisure de la symétrie de l'Hamiltonien de Heisenberg [5]. Pour expliquer cela nous devons chercher des énergies autres que l'énergie d'échange qui tiennent compte cette perte de symétrie, par exemple, l'anisotropie magnétocristalline, l'anisotropie de forme, l'anisotropie de surface, l'anisotropie magnétoélastique, etc.

### I.1.1 Anisotropie magnétocristalline

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline dépend de la direction des moments magnétiques avec les directions cristallographiques du système (axes de facile aimantation). Elle est due au couplage spin-orbite. Par exemple, la figure I.2 montre les courbes d'aimantations du Fer, Nickel et Cobalt [6]. Le fer de structure cubique s'aimante facilement suivant les directions [100] que dans les directions [110] ou [111]. Pour le Nickel qui est un cubique à faces centrées, l'aimantation atteint plus rapidement sa saturation lorsque le champ appliqué est dans la direction [111]. Dans le cas du Cobalt qui est hexagonal, la direction facile est celle de l'axe [001].



**Figure I.2 :** Courbe d'aimantation en fonction du champ appliqué pour le Fe, Ni et Co, suivant différentes directions cristallographiques ( $T \sim 300^{\circ}K$ ). [6]

Selon la cristallographie du matériau, l'anisotropie magnétocristalline se trouve sous diverses formes. Elle peut être uniaxiale, biaxiale, cubique, etc.

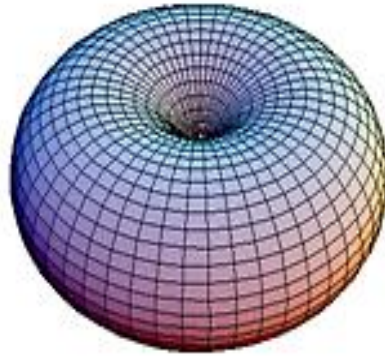
### I.1.1.1 Anisotropie uniaxiale

Ce type d'anisotropie est donné par la présence d'un axe de facile aimantation unique. Par exemple, le cobalt de symétrie hexagonale a un seul axe facile suivant [001] (Figure I.1). L'énergie d'anisotropie uniaxiale (figure I.3) peut s'exprimer par :

$$E_u = K_1 \sin^2 \vartheta + K_2 \sin^4 \vartheta, \quad (\text{I.3})$$

où  $\vartheta$  est l'angle entre le moment et l'axe de facile aimantation ;  $K_1$  et  $K_2$  sont les constantes d'anisotropie dépendantes de la température et déduites de l'expérience. Pour le cobalt

$K_1 = 41.2 \cdot 10^4 \text{ J/m}^3$  et  $K_2 = 14.3 \cdot 10^4 \text{ J/m}^3$  [7].



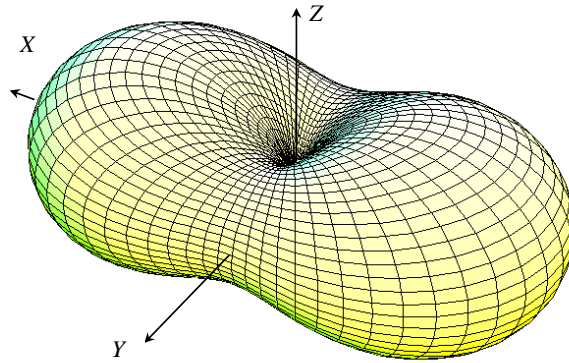
**Figure I.3 :** Potentiel d'anisotropie uniaxiale.

### I.1.1.2 Anisotropie biaxiale

Les particules magnétiques avec une anisotropie biaxiale (orthorhombique) ont trois axes différents : le premier axe est suivant la direction de facile aimantation, le second axe est dirigé suivant la direction de difficile aimantation, et le troisième est l'axe intermédiaire, associé à la direction du point selle. Son énergie (figure I.4) est donnée par :

$$\beta E_b = \sigma \sin^2 \vartheta + \Delta \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi \quad (\text{I.4})$$

où  $\Delta = \beta(K_2 - K_1)$  et  $\sigma = \beta(K_3 - K_2)$  sont le paramètre de biaxialité et la hauteur de la barrière d'énergie respectivement, où  $K_1 < K_2 < K_3$  sont des constantes d'anisotropie.



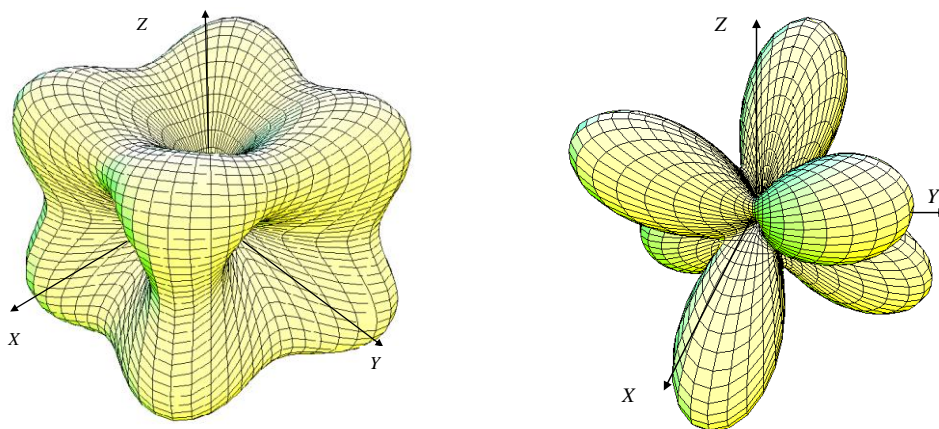
**Figure I.4 :** Potentiel d'anisotropie biaxiale en 3D.

### I.1.1.3 Anisotropie cubique

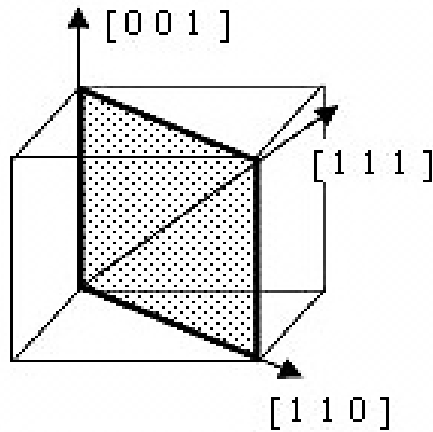
Dans le cas des matériaux cubiques (Fe, Ni), l'énergie d'anisotropie cubique (figure I.5) peut se mettre sous la forme :

$$E_c = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \dots, \quad (\text{I.5})$$

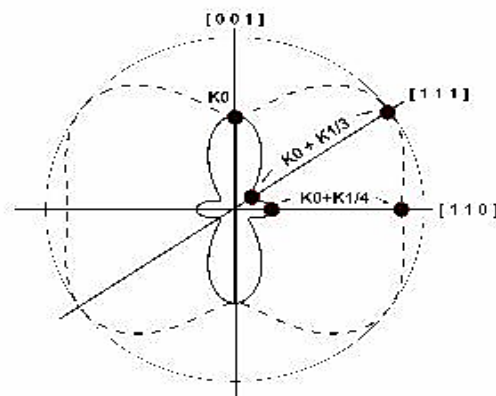
où  $\alpha_1, \alpha_2$ , et  $\alpha_3$  sont les cosinus directeurs du vecteur aimantation  $\mathbf{M}$  ;  $K_1$  et  $K_2$  sont les constantes d'anisotropie, par exemple à température ambiante [7]: pour le Fe ;  $K_1 = 4.810^4 \text{ J/m}^3$  et  $K_2 = 1.210^2 \text{ J/m}^3$  et pour le Ni;  $K_1 = -0.55 \cdot 10^4 \text{ J/m}^3$  et  $K_2 = -0.2410^3 \text{ J/m}^3$  . Si  $K_1$  est positif, alors les directions faciles sont les arêtes du cube (cas du Fe), alors que pour  $K_1$  négatif, les directions faciles sont les grandes diagonales du cube (cas du Ni) (figures I.5 et I.6).



**Figure I.5 :** Potentiel d'anisotropie cubique ; à gauche pour  $K_1 > 0$  et à droite pour  $K_1 < 0$  .



**Figure I.5 :** Orientation des axes faciles dans une structure cubique. [8]



**Figure I.6 :** Représentation polaire de la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline pour une symétrie cubique en prenant  $K_2 = 0$ , pour une direction d'aimantation contenue dans le plan contenant les trois directions principales. L'énergie  $K_0$  est attribuée à la direction [001] afin de faciliter la représentation. Trait Pointillé ( $K_1 > 0$ ) : les directions faciles sont les arêtes de la maille, les directions difficiles coïncidentes avec les grandes diagonales. Trait continu ( $K_1 < 0$ ) : les directions faciles sont les grandes diagonales, les directions difficiles coïncidentes avec les arêtes. [8]

### I.1.2 Anisotropie de forme

La forme d'un matériau magnétique peut être une source d'anisotropie. Par exemple, si la forme d'une particule initialement sphérique devient plus allongée (ellipsoïde) et possède une aimantation résultante  $\mathbf{M}$  non nulle, cette dernière tend à s'aligner le long de son grand axe. Cela peut induire une anisotropie magnétique de forme. C'est le cas aussi des couches minces dont l'aimantation préfère être dans le plan du film s'il n'y avait que ce type d'anisotropie. On peut associer à cette anisotropie un champ démagnétisant qui s'oppose à l'aimantation  $\mathbf{M}$ , et lui-même est associé à une énergie magnétostatique (ou dipolaire) de forme [9] :

$$E_{mag} = \sum N_{ij} \cdot M_i^2 \quad (i, j = x, y, z), \quad (I.6)$$

où  $N_{ij}$  sont les facteurs démagnétisants dépendant de la forme du matériau, et les  $M_i$  sont les composantes de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . Prenant par exemple le cas d'une particule de fer ayant la forme d'un ellipsoïde de grand axe  $2c$  et de petits axes  $2a$ , très allongée ( $c/a = 10$ ), on a alors  $N_z = 2 \cdot 10^{-2}$  et  $2a_c = 240 \text{ nm}$  comme dimension critique [10]. L'énergie volumique d'anisotropie de forme associée au champ démagnétisant s'écrit :

$$E_f = -\frac{1}{2} \mathbf{H}_d \cdot \mathbf{M}. \quad (I.7)$$

### I.1.3 Anisotropie de surface

La surface d'un matériau a une importance majeure sur les propriétés magnétiques en raison de la présence des atomes sur la surface [11]. La première interprétation de l'anisotropie de surface a été proposée par Néel [12] à l'aide d'un modèle phénoménologique où il a montré l'existence d'une anisotropie, due à l'environnement dissymétrique d'une paire d'atomes, différente de celle existant à l'intérieur. La forte anisotropie de surface peut avoir plusieurs sources. La principale est la brisure de symétrie dans l'environnement des atomes occupant la surface qui peuvent engendrer une aimantation rémanente provoquant ainsi une forte anisotropie de surface [12]. Selon Néel, l'énergie d'anisotropie magnétique est décrite comme une somme d'énergie de paires d'atomes et elle peut se développer en polynômes de Legendre [12,9] :

$$E_{an} = g_1(r) P_2(\cos \varphi) + g_2(r) P_4(\cos \varphi) + \dots, \quad (I.8)$$

où  $r$  est la distance entre deux atomes et  $\varphi$  est l'angle entre l'aimantation et la droite joignant le centre des deux atomes ;  $g_1(r)$  est associée aux énergies magnétostatiques et magnétoélastique, et  $g_2(r)$  à l'énergie magnétocristalline. Pour une symétrie cubique,  $g_1(r) P_2(\cos \varphi)$  n'est pas nulle dans un milieu fini et va faire apparaître un terme correspondant à l'énergie de forme et un autre terme qui peut être relié à l'énergie superficielle dont la densité d'énergie s'écrit :

$$E_s = K_s \cos^2 \vartheta, \quad (I.9)$$

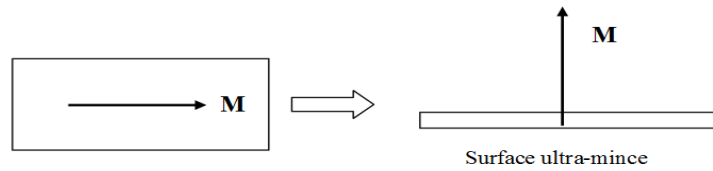
où  $K_s$  est la constante d'anisotropie de surface et  $\vartheta$  est l'angle entre la direction de l'aimantation et la normale à la surface.

Récemment, plusieurs chercheurs ont abordé l'effet de surface sur les propriétés magnétiques. En particulier, Kachkachi et Bonet [13] ont étudié l'effet de l'anisotropie de surface dans une nanoparticule magnétique sphérique de plusieurs spins (MSP). Ils ont montré que le comportement (MSP) dans le cas d'une anisotropie de surface pas trop forte, peut être modélisé par celui d'une particule avec un seul spin (OSP) avec une énergie potentielle contenant des termes d'anisotropie uniaxiale et cubique, i.e [13] :

$$\varepsilon_{eff} = -K_{uni}m_z^2 + K_{cub}(m_x^2 + m_y^2 + m_z^2) \quad (I.10)$$

De plus, l'anisotropie de surface a des conséquences sur le temps de relaxation et le champ de retournement [14]. Les résultats montrent que l'anisotropie de surface induit un aplatissement de l'astroïde de Stoner-Wohlfarth.

L'anisotropie de surface est également très importante dans les couches ultra-minces, par exemple, dans le cobalt et l'or, il existe une compétition entre l'anisotropie de forme qui tend à orienter l'aimantation dans la direction du plan du film de la particule et l'anisotropie due aux atomes de surface dans lesquelles l'aimantation a tendance à s'orienter perpendiculairement à la surface (figure I.7).



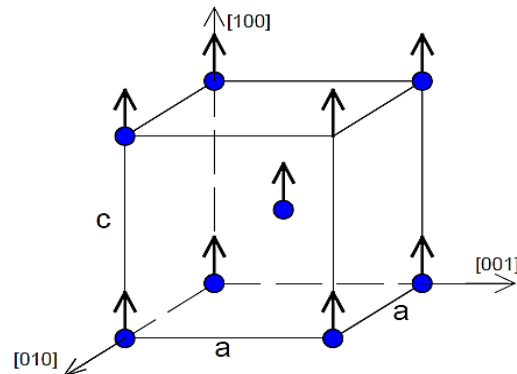
**Figure I.7** : Passage de l'aimantation de la tangente du plan à la perpendiculaire au plan.

#### I.1.4 Anisotropie magnétoélastique

Dans le cas des matériaux qui présentent une forte aimantation, ces matériaux peuvent se déformer, c'est le phénomène de magnétostriction locale. Par exemple, la maille du fer est légèrement allongée dans le sens de l'aimantation ( $c > a$ ) (Figure I.8). Elle est négative pour le nickel c'est à dire que la maille est légèrement aplatie ( $c < a$ ). En général, ces déformations sont très faibles et peuvent être négligées. Ces déformations entraînent des contraintes donnant naissance à un autre type d'énergie, c'est l'anisotropie magnétoélastique. Elle peut s'exprimer par unité de volume, dans le cas d'une symétrie cubique [9]:

$$E_e = -\frac{3}{2} \lambda_S \rho \cos^2 \vartheta, \quad (I.11)$$

où  $\lambda_s$  est une constante d'anisotropie qui dépend de la symétrie de la particule,  $\rho$  est la contrainte par unité de surface et  $\mathcal{G}$  est l'angle entre l'aimantation et la direction de la contrainte.



**Figure I.8 :** Distorsions de la maille cubique dans le fer ( $c > a$ ). [15]

## I.2 Modèles de retournement de l'aimantation

L'aimantation peut se retourner suivant plusieurs modes. Par la suite on ne considère que le mode uniforme pour lequel l'aimantation  $\mathbf{M}$  conserve son module (c'est le cas dans les monodomains).  $\mathbf{M}$  peut alors basculer sous l'effet d'un champ magnétique suffisant pour supprimer la barrière. Cela vaut si les effets thermiques sont négligeables. Si cela n'est plus le cas, alors  $\mathbf{M}$  peut se retourner spontanément sous l'effet de l'agitation thermique.

### I.2.1 Modèle de Stoner-Wohlfarth

Le modèle de Stoner-Wohlfarth [1] est le modèle le plus simple pour modéliser le comportement physique des nano-grains magnétiques monodomains, il permet de calculer par exemple le champ de retournement de l'aimantation pour des particules uniaxiales à température nulle.

#### I.2.1.1 Description

Le modèle de Stoner-Wohlfarth se repose sur deux hypothèses :

- Le retournement de l'aimantation a lieu par rotation cohérente des moments magnétiques.
- Les effets des interactions entre particules sont négligeables.

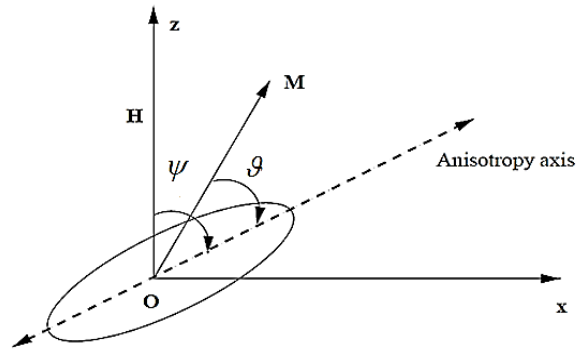
L'aimantation est uniforme, ce qui permet donc de la représenter par un vecteur  $\mathbf{M}$  de longueur constante  $|\mathbf{M}| = M_S$ , où  $M_S$  est l'aimantation à saturation. En présence d'un champ magnétique externe  $\mathbf{H}$  (figure I.9), l'énergie d'une particule uniaxiale s'écrit :

$$E = K \sin^2 \vartheta - \mu_0 M_S H \cos(\vartheta - \psi) \quad (\text{I.12})$$

ou bien en variables normalisées :

$$e = \frac{1}{2} \sin^2 \vartheta - h \cos(\vartheta - \psi), \quad (\text{I.13})$$

où  $e = E / 2K$  et  $h = \mu_0 M_S H / 2K$ .



**Figure I.9 :** Positions de l'aimantation  $\mathbf{M}$  et du champ magnétique extérieur  $\mathbf{H}$  par rapport à l'axe d'anisotropie. [16]

Étant donné que les moments s'orientent vers les directions où l'énergie totale du système est minimale, cela se traduit mathématiquement par la condition d'équilibre stable :

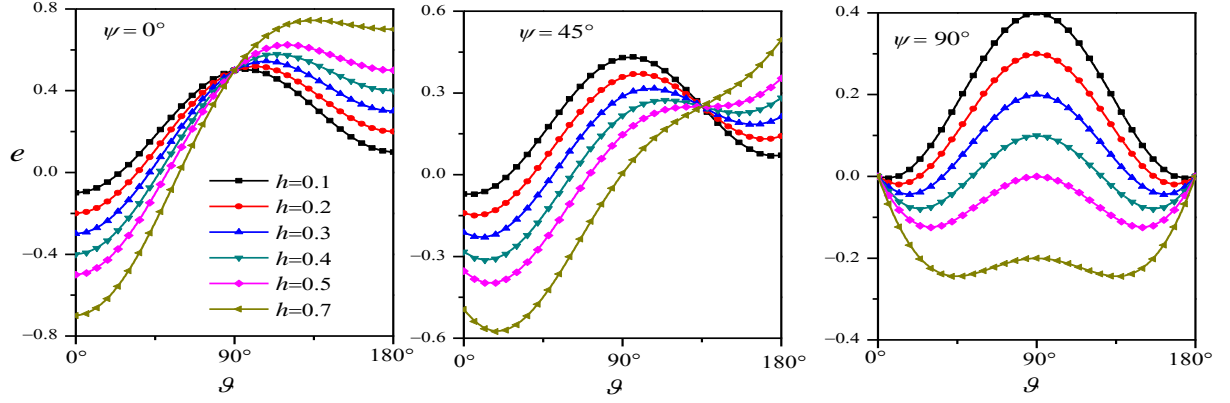
$$\begin{cases} \frac{de}{d\vartheta} = \sin \vartheta \cos \vartheta + h \sin(\vartheta - \psi) = 0 \\ \frac{d^2e}{d\vartheta^2} = (\cos^2 \vartheta - \sin^2 \vartheta) + h \cos(\vartheta - \psi) > 0 \end{cases} \quad (\text{I.14})$$

ou encore :

$$\begin{cases} -\frac{h_z}{\cos \vartheta} + \frac{h_x}{\sin \vartheta} = 1 \\ h_z \cos \vartheta + h_x \sin \vartheta > \sin^2 \vartheta - \cos^2 \vartheta \end{cases} \quad (\text{I.15})$$

où  $h_z = h \cos \psi$  et  $h_x = h \sin \psi$ .

La figure I.10 présente le comportement de l'énergie en fonction de l'angle  $\vartheta$  pour différentes valeurs du paramètre de champ externe  $h$ , pour  $\psi = 0^\circ, 45^\circ$  et  $90^\circ$ .



**Figure I.10** : Variation de l'énergie normalisée avec l'angle  $\mathcal{G}$  pour différentes valeurs du paramètre de champ  $h$ .

### I.2.1.2 Astroïde de Stoner-Wohlfarth

Lorsque le champ appliqué est suffisamment grand, l'un des deux minima disparaît, mathématiquement cela revient à chercher le point d'inflexion, c'est-à-dire à résoudre le système :

$$\begin{cases} -\frac{h_z}{\cos \mathcal{G}} + \frac{h_x}{\sin \mathcal{G}} = 1 \\ h_z \cos \mathcal{G} + h_x \sin \mathcal{G} = \sin^2 \mathcal{G} - \cos^2 \mathcal{G} \end{cases} \quad (\text{I.16})$$

pour  $h_x$  et  $h_z$ . Nous obtenons :

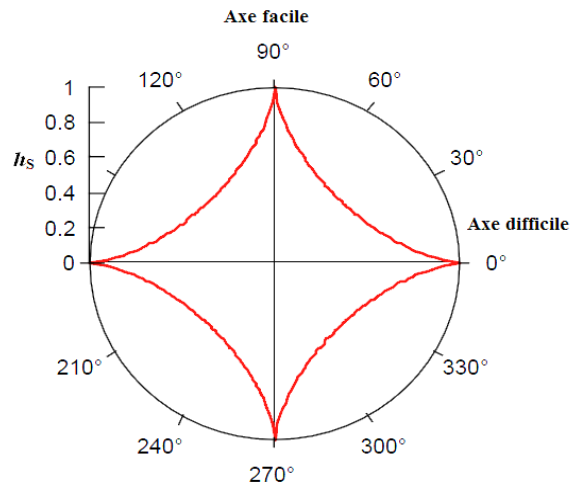
$$\begin{cases} h_x = \sin^3 \mathcal{G} \\ h_z = -\cos^3 \mathcal{G} \end{cases} \quad (\text{I.17})$$

ou bien :

$$h_x^{2/3} + h_z^{2/3} = 1. \quad (\text{I.18})$$

L'équation (I.18) est la représentation paramétrique de l'astroïde de Stoner-Wohlfarth dans le plan (OXZ) (figure I.11). Le point d'inflexion donne une valeur de  $h$  appelé champ critique, celui-ci donne la variation du champ de retournement en fonction de l'angle du champ externe avec l'axe d'anisotropie, et est explicitement donné par :

$$h_S = \left( \cos^{2/3} \psi + \sin^{2/3} \psi \right)^{-3/2}. \quad (\text{I.19})$$



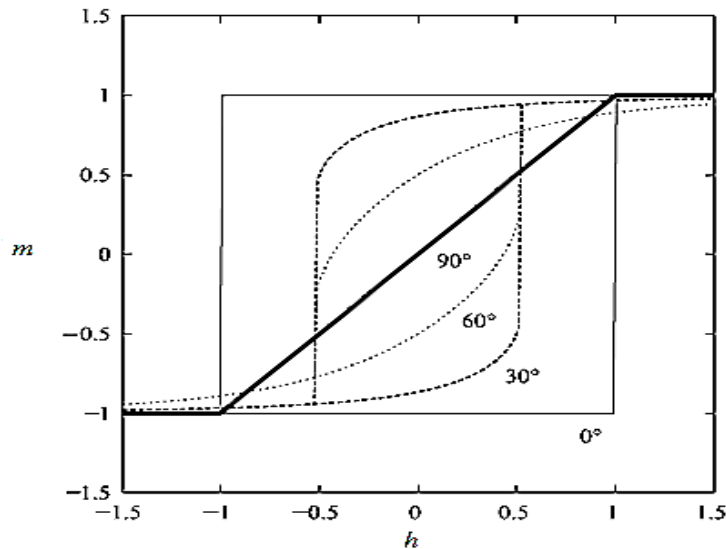
**Figure I.11** : Asteroïde de Stoner-Wohlfarth

### I.2.1.3 Cycle de Stoner-Wohlfarth

Afin de simplifier la compréhension du renversement cohérent de l'aimantation en présence d'un champ magnétique externe, nous pouvons tracer  $m(h)$ , la projection de l'aimantation  $\mathbf{M}$  le long de  $\mathbf{H}$ .

La figure I.12 présente les cycles d'aimantation selon le modèle de Stoner-Wohlfarth, pour une particule individuelle pour différentes directions du champ magnétique externe [16]. On voit que le cycle change de forme en partant de  $\vartheta = 0^\circ$  à  $\vartheta = 90^\circ$ .

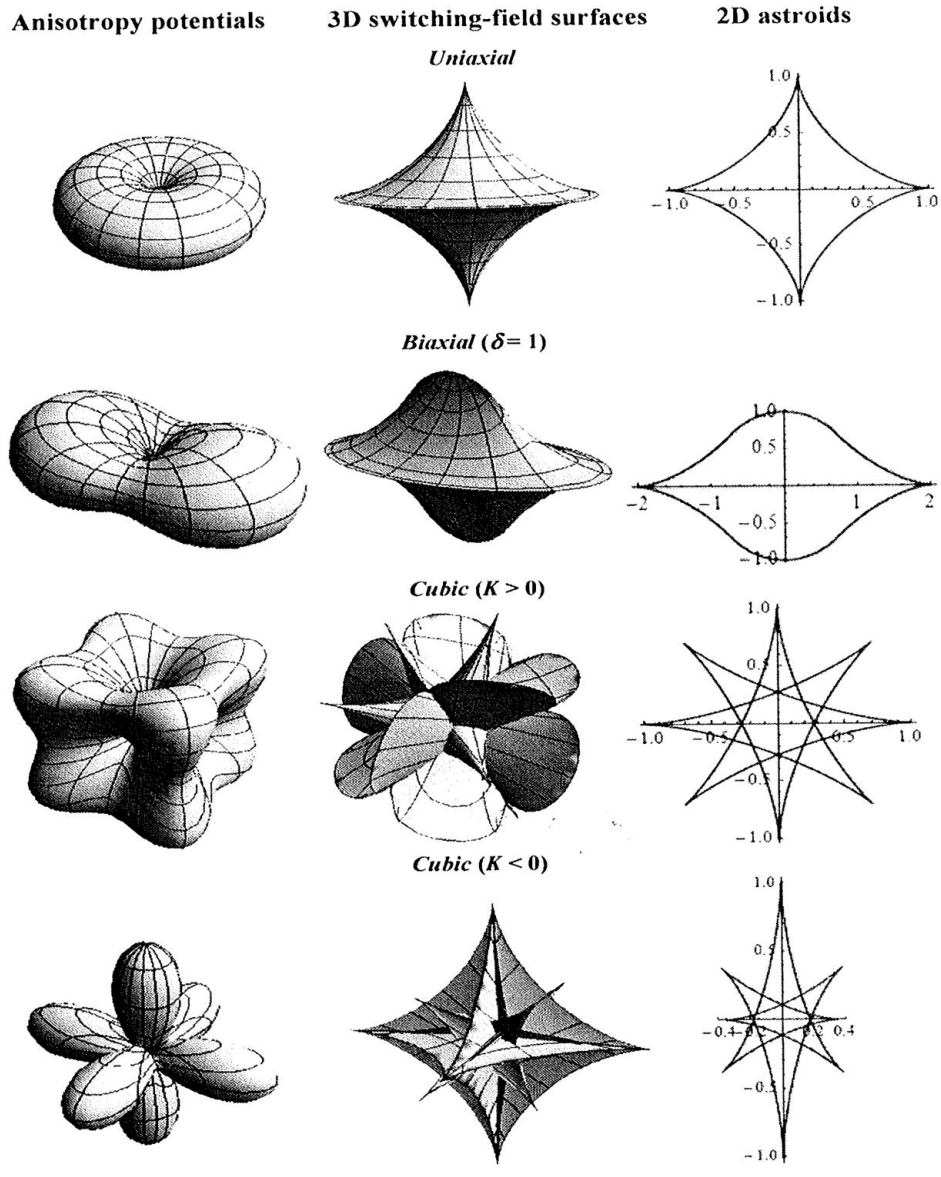
En général, le cycle d'hystérésis des matériaux ferromagnétiques, est caractérisé par trois points : l'aimantation à saturation  $M_S$  lorsque  $H > H_S$  ( $H_S$  est le champ de saturation correspondant à  $M_S$ ), l'aimantation rémanente  $M_r$  qui est l'aimantation en champ nul, et le champ coercitif  $H_c$  qui est le champ qu'il faut appliquer pour annuler l'aimantation.



**Figure I.12 :** Cycles d’hystérésis en fonction du paramètre de champ externe pour différentes valeurs de l’angle du champ appliqué. [16]

L’approche de Stoner-Wohlfarth [1] a été utilisée pour résoudre d’autres problèmes liés à la rotation cohérente de l’aimantation des nanoparticules magnétiques monodomaines uniaxiales. Thiaville [17] a généralisé cette méthode pour analyser la rotation cohérente en 3D pour différentes formes d’anisotropie, à l’aide d’une méthode géométrique (voir figure I.13). La méthode géométrique est une généralisation de la construction de l’astroïde (figure I.13). Comme application de cette méthode géométrique pour des problèmes réels en 3D, Thiaville [17] a montré comment les astroïdes mesurées expérimentalement peuvent être ajustées par des surfaces critiques déterminées par la méthode géométrique, afin d’extraire les constantes d’anisotropie qui sont indispensables à toute modélisation de nanoparticules individuelles. Hubert et Rave [18] ont abordé ce problème en utilisant une méthode numérique, appelée méthode d’extrapolation de la susceptibilité. Son principe est de trouver et de localiser le point de retournement en cherchant la divergence de la susceptibilité. Schmidt [19] a présenté un traitement exact basé sur une méthode numérique, il l’a appliquée ensuite pour analyser la rotation cohérente dans les nanoparticules possédant une anisotropie cubique.

Le modèle de Stoner-Wohlfarth [1] s’est avéré très utile du fait de sa simplicité. Toutefois, ce modèle reste limité au régime statique (ne décrit pas l’évolution temporelle de l’aimantation) et ignore l’effet de la température sur le retournement de l’aimantation. Cela peut se faire théoriquement à l’aide de l’équation différentielle stochastique de Landau-Lifshitz-Gilbert [20]. Nous nous proposons dans le cadre de ce travail, d’étudier la dynamique de l’aimantation en champ variable à l’aide de cette équation.



**Figure I.13** : Astroïdes du champ de retournement en 3D et 2D pour divers types d'anisotropie. [21]

## I.2.2 Superparamagnétisme de nanoparticules magnétiques

Pour des nanoparticules de taille comparable ou inférieure aux longueurs caractéristiques (largeur de paroi de Bloch et longueur d'échange), la structure du matériau magnétique est monodomaine et uniformément aimanté. Le retournement de l'aimantation dans ce cas se fait soit par précession de l'aimantation, soit par application d'un champ magnétique extérieur suffisamment fort (par rapport au champ de retournement), soit par activation thermique (le

champ appliqué dans ce cas est inférieur ou comparable au champ de retournement). Ce phénomène est décrit par le modèle de Néel-Brown.

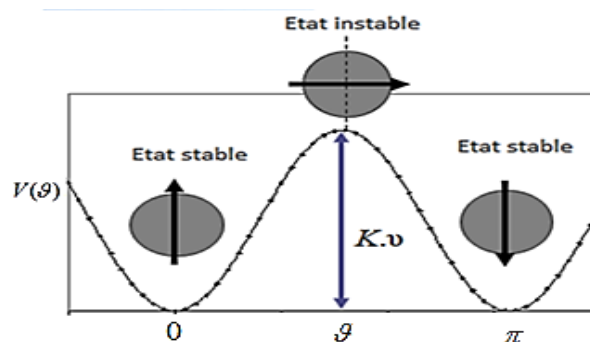
### I.2.2.1 Modèle de Néel

Néel [2] a traité la relaxation de l'aimantation d'une particule monodomaine possédant une anisotropie uniaxiale, cette particule est caractérisée par le potentiel  $KV$  qui présente une barrière d'énergie séparant deux états stables (figure I.14). La probabilité de rester dans l'un des deux puits est très élevée. Cette condition a permis à Néel de proposer une relation qui donne le temps de franchissement de la barrière par activation thermique, il est donné par la loi d'Arrhenius :

$$\tau = \tau_0 \exp(KV / k_B T), \quad (I.20)$$

où  $\tau_0 = 2\pi / \omega \approx 10^{-9} - 10^{-11}$  s est un préfacteur,  $K$  est la constante d'anisotropie,  $v$  est le volume de la particule,  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $T$  est la température absolue de la particule. Dans le modèle de Néel on se retrouve dans deux situations : lorsque la barrière d'énergie est grande devant l'énergie thermique, le franchissement est impossible, dans le second cas où la barrière devient comparable ou inférieure à  $k_B T$ , l'aimantation peut se retourner, on parle de superparamagnétisme.

Un paramètre très important est le temps de mesure de l'aimantation  $\tau_m$  ; si  $\tau_m \ll \tau$  l'aimantation ne se retourne pas pendant la mesure, dans ce cas les particules sont ferromagnétiques, et si  $\tau_m \gg \tau$  l'aimantation va se retourner pendant la mesure et les particules sont superparamagnétiques. La transition superparamagnétique / ferromagnétique est caractérisée par une température dite température de blocage, c'est la température pour laquelle la condition  $\tau_m = \tau$  est satisfaite.



**Figure I.14 :** Courbe de potentiel  $V(\vartheta)$  avec la barrière d'énergie séparant deux états stables dans l'absence d'un champ externe.

### I.2.2.2 Modèle de Brown

Afin de décrire la dynamique de l'aimantation d'une particule monodomaine en présence de l'agitation thermique, Brown [3] a adopté une approche différente de celle de Néel, basée sur la théorie du mouvement brownien ; il a décrit la dynamique de l'aimantation par l'équation de Gilbert [21,22] dans laquelle il a ajouté un terme décrivant les forces aléatoires agissant sur la particule :

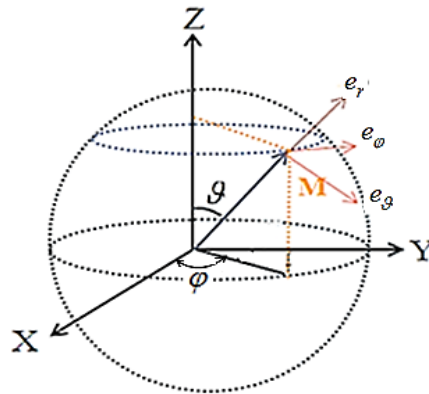
$$\dot{\mathbf{M}}(t) = \gamma \left[ \mathbf{M}(t) \times (\mathbf{H}_{\text{eff}}(t) - \eta \dot{\mathbf{M}}(t) + \mathbf{h}(t)) \right], \quad (\text{I.21})$$

où  $\gamma$  est le rapport gyromagnétique,  $\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\frac{\partial V}{\partial \mathbf{M}}$  est le champ effectif,  $\eta$  est le paramètre d'amortissement, et  $V(\mathbf{M}, t)$  est l'énergie libre par unité de volume exprimée comme une fonction des composantes de  $\mathbf{M} = M_x \mathbf{i} + M_y \mathbf{j} + M_z \mathbf{k}$  ( $|\mathbf{M}| = M_s$ , où  $M_s$  est l'aimantation à saturation) telles que :

$$M_x = M_s \sin \vartheta \cos \varphi, \quad M_y = M_s \sin \vartheta \sin \varphi \quad \text{et} \quad M_z = M_s \cos \vartheta, \quad (\text{I.22})$$

$\vartheta$  et  $\varphi$  sont les angles polaire et azimutal (Figure I.15).  $\mathbf{h}(t)$  est le champ aléatoire et a les propriétés du bruit blanc gaussien, i.e :

$$\overline{h_i(t)} = 0, \quad \overline{h_i(t_1)h_j(t_2)} = (2\eta / \beta) \delta_{ij} \delta(t_1 - t_2). \quad (\text{I.23})$$



**Figure I.15 :** Système de coordonnées sphériques.

L'équation stochastique (I.21) est appelée équation de Gilbert-Langevin. C'est une équation différentielle qui décrit le mouvement de précession de  $\mathbf{M}$  autour du champ effectif  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ . On

peut réécrire l'équation (I.21) sous une nouvelle forme appelée équation stochastique de Landau-Lifshitz-Gilbert [3] :

$$\dot{\mathbf{M}}(t) = \frac{\gamma}{1+\alpha^2} \mathbf{M}(t) \times [\mathbf{H}_{\text{eff}}(t) + \mathbf{h}(t)] - \frac{\alpha\gamma}{(1+\alpha^2)M_s} \mathbf{M}(t) \times (\mathbf{M}(t) \times [\mathbf{H}_{\text{eff}}(t) + \mathbf{h}(t)]) \quad (\text{I.24})$$

où  $\alpha = \gamma\eta M_s$  est le paramètre d'amortissement sans dimension. L'équation (I.21) est ensuite utilisée pour obtenir l'équation de Fokker-Planck (FPE) qui donne l'évolution temporelle de la fonction de densité de probabilité  $W(\mathbf{u}, t) = W(\vartheta, \varphi, t)$  des orientations de  $\mathbf{u} = \mathbf{M}/M_s$  sur une sphère de rayon unité :

$$\begin{aligned} \frac{\partial W}{\partial t} = \frac{1}{2\tau_N \sin \vartheta} \left\{ \left[ \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left( \sin \vartheta \frac{\partial}{\partial \vartheta} \right) + \frac{1}{\sin \vartheta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right] W \right. \\ \left. + \beta \left[ \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left( \sin \vartheta \frac{\partial V}{\partial \vartheta} - \alpha^{-1} \frac{\partial V}{\partial \varphi} \right) W + \frac{\partial}{\partial \varphi} \left( \alpha^{-1} \frac{\partial V}{\partial \vartheta} + \frac{1}{\sin \vartheta} \frac{\partial V}{\partial \varphi} \right) W \right] \right\}, \end{aligned} \quad (\text{I.25})$$

où  $\tau_N = \beta M_s (1+\alpha^2) / 2\gamma\alpha$  est le temps de diffusion de l'aimantation pour  $V=0$  et  $\beta = \nu / (k_B T)$  où  $\nu$  est le volume de la particule. L'approche de Brown est un outil efficace pour calculer, par exemple, la susceptibilité magnétique, le temps de relaxation de l'aimantation, etc.

### I.2.2.3 Résolution de l'équation de Fokker-Planck

Dans la littérature, de nombreuses techniques analytiques [23,24] et numériques [25,26,27,28,29,30,31] pour la résolution de l'équation de Fokker-Planck (I.25) ont été proposées. Ici on développe la fonction de densité de probabilité  $W(\vartheta, \varphi, t)$  dans l'espace des configurations à l'aide des harmoniques sphériques  $Y_{l,m}$  [32] :

$$W(\vartheta, \varphi, t) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l Y_{l,m}^*(\vartheta, \varphi) \langle Y_{l,m} \rangle(t), \quad (\text{I.26})$$

où  $Y_{l,m}^*(\vartheta, \varphi) = (-1)^m Y_{l,m}(\vartheta, \varphi)$ , avec  $0 \leq \vartheta \leq \pi$ ,  $0 \leq \varphi \leq 2\pi$ , le symbole (\*) désigne le complexe conjugué et  $\langle Y_{l,m} \rangle(t)$  est la valeur moyenne de l'harmonique sphérique d'ordre  $l$  et de rang  $m$  :

$$\langle Y_{l,m} \rangle(t) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} Y_{l,m}(\vartheta, \varphi) W(\vartheta, \varphi, t) \sin \vartheta d\vartheta d\varphi. \quad (\text{I.27})$$

En substituant les équations (I.26) et (I.27) dans (I.25), cette dernière peut être présentée sous la forme :

$$\tau_N \frac{d}{dt} \langle Y_{l,m} \rangle(t) = \sum_{l',m'} d_{l',m',l,m} \langle Y_{l',m'} \rangle(t), \quad (\text{I.28})$$

où

$$d_{l',m',l,m} = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi Y_{l,m} L_{FP} Y_{l',m'}^* \sin \vartheta d\vartheta d\varphi \quad (\text{I.29})$$

sont les éléments de matrice de l'opérateur de Fokker-Planck ( $\dot{W} = L_{FP} W$  où  $L_{FP}$  est l'opérateur de Fokker-Planck). L'équation (I.28) peut être arrangée sous la forme vectorielle :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{X}(t) = \mathbf{A} \mathbf{X}(t), \quad (\text{I.30})$$

où  $\mathbf{A}$  est une matrice qui contient tous les éléments  $d_{l',m',l,m}$ , et  $\mathbf{X}(t)$  est un vecteur colonne qui contient toutes les  $\langle Y_{l,m} \rangle(t)$ . Le système de moments stochastiques, Éq. (I.28), peut être transformé en une équation de récurrence vectorielle tridiagonale :

$$\tau_N \dot{\mathbf{C}}_n(t) = \mathbf{Q}_n^- \mathbf{C}_{n-1}(t) + \mathbf{Q}_n \mathbf{C}_n(t) + \mathbf{Q}_n^+ \mathbf{C}_{n+1}(t), \quad (\text{I.31})$$

où  $\mathbf{Q}_n^-$ ,  $\mathbf{Q}_n$  et  $\mathbf{Q}_n^+$  sont des matrices et  $\mathbf{C}_n(t)$  sont des vecteurs colonne arrangés contenant les  $\langle Y_{l,m} \rangle(t)$ . La solution exacte de l'équation (I.31) en termes de fractions continues matricielles pour la transformée de Laplace de  $\mathbf{C}_1(t)$  est donnée par :

$$\tilde{\mathbf{C}}_1(s) = \tau_N \mathbf{\Delta}_1(s) \left\{ \mathbf{C}_1(0) + \sum_{n=2}^{\infty} \left[ \prod_{k=2}^n \mathbf{Q}_{k-1}^+ \mathbf{\Delta}_k(s) \right] \mathbf{C}_n(0) \right\}, \quad (\text{I.32})$$

où  $\mathbf{\Delta}_n(s)$  sont les fractions continues matricielles :

$$\mathbf{\Delta}_n(s) = \left[ \tau_N s \mathbf{I} - \mathbf{Q}_n - \mathbf{Q}_n^+ \mathbf{\Delta}_{n+1}(s) \mathbf{Q}_n^- \right]^{-1} \quad (\text{I.33})$$

et  $\mathbf{I}$  est la matrice identité. La détermination de  $\tilde{\mathbf{C}}_1(s)$ , permet de calculer l'aimantation. De manière similaire, on peut aussi calculer la plus petite valeur propre  $\lambda_1$  à l'aide de l'équation caractéristique :

$$\det(\lambda_1 \tau_N \mathbf{I} - \mathbf{S}) = 0, \quad (\text{I.34})$$

où la matrice  $\mathbf{S}$  est définie comme :

$$\mathbf{S} = - \left[ \mathbf{Q}_1 + \mathbf{Q}_1^+ \mathbf{\Delta}_2(0) \mathbf{Q}_2^- \right] \left[ \mathbf{I} - \mathbf{Q}_1^+ \mathbf{\Delta}_2'(0) \mathbf{Q}_2^- \right]^{-1}. \quad (\text{I.35})$$

Ici  $\lambda_1$  est une valeur propre de  $\mathbf{S}$ , et caractérise aussi le temps de renversement de l'aimantation.

Du point de vue numérique, la méthode directe basée sur la représentation matricielle  $\dot{\mathbf{X}}(t) = \mathbf{A}\mathbf{X}(t)$ , reste difficile à résoudre à cause des grandes tailles des matrices. La méthode des fractions continues matricielles (MCF) est un outil pour des calculs plus stables. De plus, la mise en place du calcul numérique par cette méthode est simple et l'algorithme est court. Nous l'avons utilisée dans cette thèse pour résoudre des systèmes différentiels d'équations de récurrences tridiagonales déduites de l'équation de Fokker-Planck. Elle peut être utilisée pour déterminer les paramètres essentiels à l'interprétation de la dynamique de l'aimantation, par exemple, le temps de relaxation (ou de retournement), la susceptibilité dynamique, etc. Des exemples d'applications en superparamagnétisme sont donnés dans les références [33,34,35]. Cependant, pour très basses dissipations ( $\alpha < 0.005$ ), et / ou très hautes barrières d'énergie, la méthode MCF ne peut pas être appliquée parce que les matrices sont mal conditionnées, ce qui signifie que les inversions numériques ne sont plus possibles. Dans tels cas, les méthodes alternatives (par exemple, théorie de Kramers [21,36]) sont utiles.

#### 1.2.2.4 Estimation du temps de retournement de l'aimantation

Le temps de retournement de l'aimantation  $\tau$  peut être déterminé par la plus petite valeur propre  $\lambda_1$  de l'opérateur de Fokker-Planck. Coffey *et al.* [21,33,34,35,37,38,39] ont adapté la méthode de Mel'nikov et Meshkov [40,41] pour l'estimation du taux d'échappement pour toutes les valeurs de la dissipation au calcul du temps de retournement de l'aimantation de nanoparticules magnétiques. Cette équation est :

$$\tau = \lambda_1^{-1}(\sigma, \alpha, h, \psi) = \left( \Gamma_1^{IHD} + \Gamma_2^{IHD} \right)^{-1} \frac{A(\alpha S_1 + \alpha S_2)}{A(\alpha S_1)A(\alpha S_2)}, \quad (\text{I.36})$$

où  $\Gamma_i^{IHD} = \Gamma_0 e^{-\beta(V_0 - V_i)}$  sont les taux d'échappement dans le régime IHD ( $\alpha \geq 1$ ) avec  $\Gamma_0$  est un préfacteur qui a la dimension de la fréquence. Le facteur de population  $A$  et les actions  $S_i$  sont définies par [38,39,42]:

$$A(\delta) = \exp \left[ \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{\ln \left\{ 1 - \exp \left[ -\delta(x^2 + 1/4) \right] \right\}}{x^2 + 1/4} dx \right], \quad (\text{I.37})$$

et

$$S_i = \beta \oint_{v=V_0} (1 - z^2) \frac{\partial V}{\partial z} d\varphi - \frac{1}{1 - z^2} \frac{\partial V}{\partial \varphi} dz. \quad (\text{I.38})$$

L'équation (I.36) permet d'estimer précisément le temps de relaxation de l'aimantation en fonction de la constante de dissipation. Dans le cas de symétrie axiale ( $\psi = 0$ ), la plus petite valeur propre  $\lambda_1$  est approximée par la formule de Brown [43,44], i.e :

$$\lambda_1 = \tau_B^{-1} \sim \frac{\sigma^{3/2} (1-h^2) [1-h+(1+h)e^{-4\sigma h}]}{\tau_N \sqrt{\pi}} e^{-\sigma(1-h)^2}. \quad (\text{I.39})$$

où  $h = \xi_0 / 2\sigma$  est le paramètre du champ dc. Nous pouvons nous en servir des équations (I.36) et (I.39) pour déterminer les éléments caractéristiques de la réponse non-linéaire comme l'ont fait, par exemple, Kalmykov *et al.* [45,46]. Le tableau 1 représente quelques formules du temps de retournement de l'aimantation calculé pour différentes anisotropies.

**Tableau 1** : Temps de retournement de l'aimantation pour différentes anisotropies. [21]

Potentiel d'anisotropie	Temps de retournement de l'aimantation $\tau$	Champ de validité	Référence
$\beta V(\vartheta, \varphi)$			
Uniaxiale $-\sigma \cos^2 \vartheta$	$\pi \tau_N \sigma^{-1} e^\sigma$	$\sigma \gg 1$	Néel [2]
	$\frac{\tau_N \sqrt{\pi} e^\sigma}{2\sigma^{3/2}} (1 + \frac{1}{\sigma} + \frac{7}{4\sigma^2} + \dots)$ $\tau_N \left( 1 - \frac{2\sigma}{5} + \frac{48\sigma^2}{875} + \dots \right)^{-1}$	Pour tous $\sigma$	Coffey <i>et al.</i> [47]
	$\tau_N \left( \frac{2\sigma \sqrt{\sigma/\pi}}{(1+\sigma)} + 2^{-\sigma} \right)^{-1} \frac{e^\sigma - 1}{\sigma}$	$\sigma \ll 1$	Brown [3]
		pour tous $\sigma$	Cregg <i>et al.</i> [48]
Uniaxiale + champ dc $-\sigma (\cos^2 \vartheta + 2h \cos \vartheta)$	$\frac{\tau_N \sqrt{\pi} \sigma^{-3/2} e^{-\sigma(1-h)^2}}{(1-h^2) [(1-h) + (1+h)e^{-4\sigma h}]}$	$\sigma(1-h)^2 \gg 1,$ $0 \leq h < 1.$	Brown [3] et Aharoni [43]

<p>Cubique (<math>K &gt; 0</math>)</p> $-\sigma(\sin^4 \vartheta \sin^2 2\varphi + \sin^2 2\vartheta)$	$\frac{\pi\tau_N e^\sigma}{2\sqrt{2}\sigma(\sqrt{9+8/\alpha^2}+1)A(\alpha 8\sqrt{2}\sigma/9)}$	$\sigma \gg 1$	<p>Brown [3], Smith et De Rosario [49], Eisenstein et Aharoni [50], Kalmykov <i>et al.</i> [51]</p>
<p>Cubique (<math>K &lt; 0</math>)</p> $- \sigma (\sin^4 \vartheta \sin^2 2\varphi + \sin^2 2\vartheta)$	$\frac{3\pi\tau_N e^{ \sigma /3}}{2\sqrt{2} \sigma (\sqrt{9+8/\alpha^2}-1)A(\alpha 8\sqrt{2} \sigma /9)}$	$ \sigma /3 \gg 1$	<p>Brown [3], Smith et De Rosario [49], Eisenstein et Aharoni [50], Kalmykov <i>et al.</i> [51]</p>
<p>Anisotropie biaxiale</p> $\sigma \sin^2 \vartheta (1 + \delta \cos^2 \varphi)$	$\frac{\tau_N \pi e^\sigma A(8\alpha\sigma\sqrt{\delta})A^{-2}(4\alpha\sigma\sqrt{\delta})}{\sigma\sqrt{1+1/\delta}\left(1-\delta+\sqrt{(1+\delta)^2+4\delta/\alpha^2}\right)}$	$\sigma \gg 1,$ $\sigma\delta \geq 1$	<p>Ouari <i>et al.</i> [51]</p>
$A(\delta) = \exp \left[ \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{\ln \left\{ 1 - \exp \left[ -\delta(x^2 + 1/4) \right] \right\}}{x^2 + 1/4} dx \right]$			

### I.2.3 Quelques résultats de la réponse magnétique linéaire [21]

#### I.2.3.1 Susceptibilité magnétique complexe

Pour l'évaluation de la susceptibilité dynamique nous introduisons trois quantités importantes, à savoir, le temps de relaxation intégral  $\tau_{\text{int}}^\gamma$ , le temps de relaxation effectif  $\tau_{\text{eff}}^\gamma$  et le temps de renversement de l'aimantation  $\tau_\gamma$ .

Selon la théorie de la réponse linéaire ( $\xi = \frac{\nu M_S H}{k_B T} \ll 1$ ), la variation de la moyenne

de l'aimantation  $\langle \mathbf{M}_\gamma \rangle(t)$  en présence du champ alternatif  $\mathbf{H}(t) = \mathbf{H}e^{i\omega t}$ , est donnée par l'équation :

$$\langle M_\gamma \rangle(t) = \chi_\gamma(\omega) H_\gamma e^{i\omega t}, \quad (\gamma = \perp, \parallel) \quad (\text{I.40})$$

où  $M_\gamma$  sont les composantes de l'aimantation et  $\chi_\gamma(\omega)$  sont les composantes tensorielles de la susceptibilité complexe dynamique donnée par :

$$\chi_\gamma(\omega) = \chi'_\gamma(\omega) - i\chi''_\gamma(\omega) = \chi_\gamma \left[ 1 - i\omega \int_0^\infty e^{-i\omega t} C_\gamma(t) dt \right], \quad (\text{I.41})$$

où  $\chi_\gamma = \chi_\gamma(0) = \beta \left[ \langle M_\gamma^2(0) \rangle_0 - \langle M_\gamma(0) \rangle_0^2 \right]$  sont les composantes tensorielles de la susceptibilité magnétique statique et

$$C_\gamma(t) = \frac{\langle M_\gamma(0) M_\gamma(t) \rangle_0 - \langle M_\gamma \rangle_0^2}{\langle M_\gamma^2(0) \rangle_0 - \langle M_\gamma \rangle_0^2}, \quad (\text{I.42})$$

sont les fonctions de corrélations à l'équilibre où les crochets  $\langle \rangle_0$  désignent la moyenne à l'équilibre définie comme :

$$\langle A \rangle_0 = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi A(\mathcal{G}, \varphi) W_0(\mathcal{G}, \varphi) \sin \mathcal{G} d\mathcal{G} d\varphi, \quad (\text{I.43})$$

où  $W_0$  est la fonction de distribution de Boltzmann donnée par :

$$W_0(\mathcal{G}, \varphi) = Z^{-1} e^{-vV(\mathcal{G}, \varphi)/k_B T}, \quad (\text{I.44})$$

où  $Z$  est la fonction de partition. Les composantes cartésiennes de l'aimantation, Éq.(I.22), peuvent être exprimées à l'aide des harmoniques sphériques :

$$\begin{aligned} M_X(t) &= \sqrt{2\pi/3} M_S (Y_{1,-1}(t) - Y_{1,1}(t)), \\ M_Y(t) &= \sqrt{2\pi/3} i M_S (Y_{1,-1}(t) + Y_{1,1}(t)), \\ M_Z(t) &= \sqrt{4\pi/3} M_S (Y_{1,0}(t)). \end{aligned} \quad (\text{I.45})$$

Nous pouvons introduire les deux quantités caractérisant  $C_\gamma(t)$  : le temps de relaxation intégral défini comme l'aire sous la courbe de la fonction d'autocorrélation normalisée :

$$\tau_{\text{int}}^\gamma = \int_0^\infty C_\gamma(t) dt, \quad (\text{I.46})$$

et le temps de relaxation effectif, relié à la dérivée de  $C_\gamma(t)$  à  $t=0$ , par :

$$\tau_{\text{eff}}^{\gamma} = -1 / \dot{C}_{\gamma}(0). \quad (\text{I.47})$$

Les fonctions de corrélation  $C_{\gamma}(t)$  peuvent être également présentées sous la forme :

$$C_{\gamma}(t) = \sum_k c_k^{\gamma} e^{-\lambda_k t}, \quad (\text{I.48})$$

où  $\sum_k c_k^{\gamma} = 1$  et les  $\lambda_k$  sont les valeurs propres de l'opérateur de Fokker-Planck. Ainsi, on peut s'exprimer les temps de relaxation  $\tau_{\text{int}}^{\gamma}$  et  $\tau_{\text{eff}}^{\gamma}$  comme une combinaison linéaire des valeurs propres  $\lambda_k$  :

$$\tau_{\text{int}}^{\gamma} = \sum_k c_k^{\gamma} / \lambda_k \quad (\text{I.49})$$

et

$$\tau_{\text{eff}}^{\gamma} = 1 / \sum_k c_k^{\gamma} \lambda_k. \quad (\text{I.50})$$

En général, pour évaluer  $C_{\gamma}(t)$ ,  $\tau_{\text{int}}^{\gamma}$  et  $\tau_{\text{eff}}^{\gamma}$  numériquement, nous devons connaître toutes les valeurs propres  $\lambda_k$  et les coefficients  $c_k^{\gamma}$ . Les équations (I.41) et (I.48) peuvent être utilisées pour reformuler la susceptibilité dynamique comme une somme de lorentziennes :

$$\chi_{\gamma}(\omega) = \chi_{\gamma} \sum_k \frac{c_k^{\gamma}}{1 + i\omega / \lambda_k}, \quad (\text{I.51})$$

On peut également obtenir des formules approchées de la susceptibilité en utilisant la transformée de Fourier-Laplace de  $C_{\gamma}(t)$ ,  $\tilde{C}_{\gamma}(\omega) = \int_0^{\infty} C_{\gamma}(t) e^{-i\omega t} dt$ , et les équations (I.41), (I.49) et (I.50) :

$$\frac{\chi_{\gamma}(\omega)}{\chi_{\gamma}} \simeq \begin{cases} 1 - i\omega \int_0^{\infty} C_{\gamma}(t) dt + \dots = 1 - i\omega \tau_{\text{int}}^{\gamma} + \dots, & \omega \rightarrow 0, \\ \frac{\dot{C}_{\gamma}(0)}{i\omega} + \frac{\ddot{C}_{\gamma}(0)}{\omega^2} \dots = -\frac{i}{\omega \tau_{\text{eff}}^{\gamma}} + \dots, & \omega \rightarrow \infty. \end{cases} \quad (\text{I.52})$$

On déduit de l'équation (I.52) que le comportement en basse et haute fréquence de  $\chi_{\gamma}(\omega)$  est complètement déterminé par  $\tau_{\text{int}}^{\gamma}$  et  $\tau_{\text{eff}}^{\gamma}$ .

### I.2.3.2 Relaxation longitudinale

Dans la limite de basse température, nous avons une relation entre les constantes de temps donnée par :

$$\tau = \lambda_1^{-1} > \tau_{\text{int}}^{\parallel} \gg \tau_N \gg \tau_{\text{eff}}^{\parallel}, \quad (\text{I.53})$$

Sous cette condition, nous pouvons associer la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1$  avec le temps de relaxation le plus long  $\tau$  (correspond également au temps de relaxation activé thermiquement), qui caractérise le comportement de la fonction de corrélation longitudinale,  $C_{\parallel}(t) \sim e^{-t/\tau}$ , pour un temps long,  $t \gg \tau$ . Dans ce cas on peut utiliser l'approximation suivante :

$$C_{\parallel}(t) \approx \Delta_1 e^{-t/\tau} + (1 - \Delta_1) e^{-t/\tau_W}, \quad (\text{I.54})$$

où  $\Delta_1$  et  $\tau_W$  sont exprimés en terme de  $\tau_{\text{int}}^{\parallel}, \tau_{\text{eff}}^{\parallel}$  et  $\tau$  comme :

$$\Delta_1 = \frac{\tau_{\text{int}}^{\parallel} / \tau_{\text{eff}}^{\parallel} - 1}{\tau_{\text{int}}^{\parallel} / \tau - 2 + \tau / \tau_{\text{eff}}^{\parallel}}, \quad \tau_W = \frac{\tau_{\text{int}}^{\parallel} - \tau}{1 - \tau / \tau_{\text{eff}}^{\parallel}}, \quad (\text{I.55})$$

où  $\tau_{\text{eff}}^{\parallel}$  est le temps de relaxation effectif déterminé par :

$$\tau_{\text{eff}}^{\parallel} = 2\tau_N \frac{\langle z^2 \rangle_0 - \langle z \rangle_0^2}{1 - \langle z^2 \rangle_0}, \quad (\text{I.56})$$

$\tau_{\text{int}}^{\parallel} = \int_0^{\infty} C_{\parallel}(t) dt$  est le temps de relaxation intégral, et  $C_{\parallel}(t)$  est donnée par :

$$C_{\parallel}(t) = \frac{\langle M_Z(0)M_Z(t) \rangle_0 - \langle M_Z \rangle_0^2}{\langle M_Z^2(0) \rangle_0 - \langle M_Z \rangle_0^2}. \quad (\text{I.57})$$

Dans le cas où le potentiel d'anisotropie  $V$  est décrit par une seule variable  $\vartheta$ , le temps de relaxation intégral  $\tau_{\text{int}}^{\parallel}$  peut être exprimé par la formule :

$$\tau_{\text{int}}^{\parallel} = \frac{2\tau_N}{Z(\langle z^2 \rangle_0 - \langle z \rangle_0^2)} \int_{-1}^1 dz \frac{e^{\beta V_0(z)}}{1 - z^2} \left[ \int_{-1}^z (z' - \langle z \rangle_0) e^{-\beta V_0(z')} dz' \right]^2, \quad (\text{I.58})$$

où  $z = \cos \vartheta$ ,  $\beta V_0(z) = -\sigma(z^2 + 2hz)$ ,  $h = \xi_0 / (2\sigma)$  et  $Z = \int_{-1}^1 e^{-\beta V_0(z)} dz$ , la susceptibilité dynamique peut être alors représentée par une somme de deux lorentziennes :

$$\frac{\chi_{\parallel}(\omega)}{\chi_{\parallel}(0)} \approx \frac{\Delta_1}{1 + i\omega\tau} + \frac{1 - \Delta_1}{1 + i\omega\tau_W}, \quad (\text{I.59})$$

Nous remarquons que cette relation ne peut pas être utilisée si les modes précessionnels ne participent pas dans le processus de relaxation. Cependant, si nous sommes intéressés par le

comportement basse fréquence de  $\chi_{\parallel}(\omega)$ ,  $\omega\tau \ll 1$ , on peut utiliser l'approximation suivante [21] :

$$\frac{\chi_{\parallel}(\omega)}{\chi_{\parallel}(0)} \approx 1 - \frac{i\omega\tau_{\text{int}}^{\parallel}}{1+i\omega\tau} . \quad (\text{I.60})$$

Les temps de relaxation  $\tau_{\text{int}}^{\parallel}$ ,  $\tau_{\text{eff}}^{\parallel}$  et  $\tau$  peuvent être calculés par la méthode des fractions continues matricielles [21,24].

### I.2.3.3 Susceptibilité et temps de relaxation transversaux

Par application de la méthode de la valeur propre effective pour  $\xi = 0$  et  $\sigma \neq 0$ , Raikher et Shliomis [52] ont obtenu une expression pour la susceptibilité complexe transversal d'un système de nanoparticules superparamagnétiques uniaxiales, i.e :

$$\frac{\chi_{\perp}(\omega)}{\chi_{\perp}(0)} = \frac{1 + \Delta_2 + i\omega\tau_2}{(1 + i\omega\tau_2)(1 + i\omega\tau_{\perp}) + \Delta_2} , \quad (\text{I.61})$$

où  $\Delta_2 = \sigma\tau_2(1 - \tau_{\perp} / \tau_N) / \tau_N\alpha^2$ ,  $\tau_{\perp}$  et  $\tau_2$  sont les temps de relaxation effectifs, qui peuvent être exprimés à l'aide de la moyenne du deuxième polynôme de Legendre à l'équilibre,  $\langle P_2 \rangle_0$  [22], i.e :

$$\tau_{\perp} = \tau_D \frac{1 - \langle P_2 \rangle_0}{1 + \langle P_2 \rangle_0 / 2} , \quad \tau_2 = \tau_D \frac{3 \langle P_2 \rangle_0}{2\sigma + \langle P_2 \rangle_0 (\sigma - 6)} \quad (\text{I.62})$$

avec

$$\langle P_2 \rangle_0 = \frac{3e^{\sigma}}{2\sqrt{\pi\sigma} \operatorname{erf} i(\sqrt{\sigma})} - \frac{3}{4\sigma} - \frac{1}{2} . \quad (\text{I.63})$$

Pour des basses températures ( $\sigma \gg 1$ ), l'équation (I.61) se réduit à l'équation de Landau et Lifshitz [20] :

$$\frac{\chi_{\perp}(\omega)}{\chi_{\perp}} = \frac{(1 + \alpha^2)\omega_0^2 + i\alpha\omega\omega_0}{(1 + \alpha^2)\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\alpha\omega\omega_0} , \quad (\text{I.64})$$

où

$$\omega_0 = \sigma(\alpha\tau_N)^{-1} \approx \gamma H_{an} \quad (\text{I.65})$$

est la fréquence de précession de l'aimantation et  $H_{an} = 2K / M_S$  est le paramètre du champ d'anisotropie. Supposons que le système de nanoparticules magnétiques est soumis à un champ

uniforme  $\mathbf{H}$  ( $\beta M_S H \ll 1$ ), dans le plan  $(x, y)$ . Dans ce cas, les temps effectifs transversaux  $\tau_{\perp x}^{\text{eff}}$  et  $\tau_{\perp y}^{\text{eff}}$  sont donnés par [16] :

$$\tau_{\perp x}^{\text{eff}} = 2\tau_D \frac{\langle \cos^2 \varphi \sin^2 \theta \rangle_0}{1 - \langle \cos^2 \varphi \sin^2 \theta \rangle_0}, \quad (\text{I.66})$$

$$\tau_{\perp y}^{\text{eff}} = 2\tau_D \frac{\langle \sin^2 \varphi \sin^2 \theta \rangle_0}{1 - \langle \sin^2 \varphi \sin^2 \theta \rangle_0}. \quad (\text{I.67})$$

Pour calculer la susceptibilité magnétique transversale, Kalmykov et Coffey [53] ont utilisé la méthode des fractions continues matricielles appliquée à des particules ferromagnétiques uniaxiales superposées à un champ transverse uniforme. On trouve d'autres calculs pour d'autres anisotropies. Par exemple Stancu *et al.* [54], ont calculé la susceptibilité transversale pour une particule monodomaine avec une anisotropie cubique, les résultats sont comparés avec ceux des particules uniaxiales et l'approche géométrique [17].

#### I.2.4 Champ de retournement en régime dynamique

Nous rappelons que les premiers calculs pour modéliser le champ de retournement de l'aimantation des particules ferromagnétique monodomaine avec anisotropie uniaxiale ont été effectués par Stoner et Wohlfarth [1]. Nous avons vu dans le paragraphe précédent que ce modèle ne prend pas en compte ni l'effet de la température ni l'évolution au cours du temps. Pour surmonter ce problème (instabilité thermique), différentes approches expérimentales et théoriques à des températures finies ont été utilisées. Par exemple, la dépendance en température du champ de retournement de nanoparticules magnétiques a été mesurée expérimentalement en utilisant la technique du micro-SQUID [55,56]. Vouille *et al.* [30] ont calculé numériquement la dépendance en température du champ de retournement en utilisant l'équation stochastique de Landau-Lifshitz-Gilbert (Éq. I.24) (figure I.16 (b)). Ensuite, une comparaison a été faite entre leurs calculs numériques et les mesures expérimentales de Jamet *et al.* [56] obtenues sur des nanoparticules de Co de 3 nm en diamètre par la technique du micro-SQUID (voir figure I.16). En raison de la différence du temps de mesure entre les calculs et les expériences, les deux courbes ne peuvent pas être comparées directement. Cependant, la détermination de  $\Delta E_b$  à partir de la loi d'Arrhenius donnée par :  $\tau = \tau_0 \exp(\Delta E_b / k_B T)$ , en ajustant les astroïdes calculées avec les courbes *iso* -  $\Delta E_b$  pour différentes températures, Vouille *et al.* [30] ont pu calculer et comparer les temps  $\tau_0^{\text{calc}}$  et  $\tau_0^{\text{mes}}$  (figure I.17). D'autre part,

Vouille *et al.* [30] ont comparé leurs résultats numériques avec les calculs obtenus par les formules de Coffey *et al.* [57], pour deux valeurs de la constante d'amortissement ( $\alpha = 0.03$  et  $\alpha = 1$ ) à différentes valeurs de la température. Un accord parfait a été obtenu (voir figure I.18).

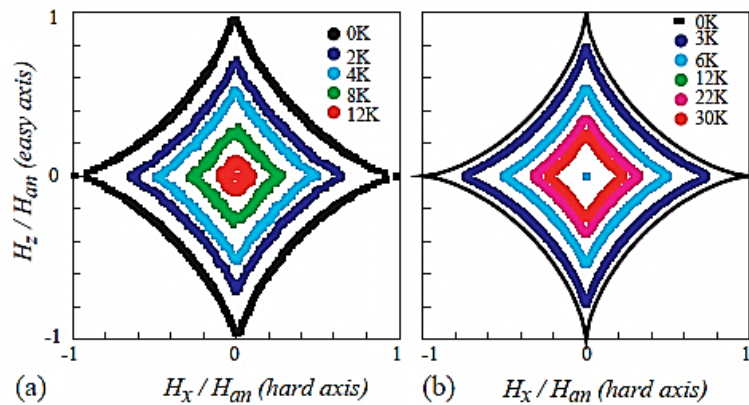
Comme nous l'avons déjà mentionné au paragraphe I.2.2.1 le temps de mesure  $\tau_m$  est important. En effet, expérimentalement l'observation du renversement de l'aimantation thermoactivé n'est possible que si le critère de Néel est vérifié, c'est à dire :

$$\tau_m = \tau(\psi, \zeta, h_S, \sigma, \alpha) , \quad (I.68)$$

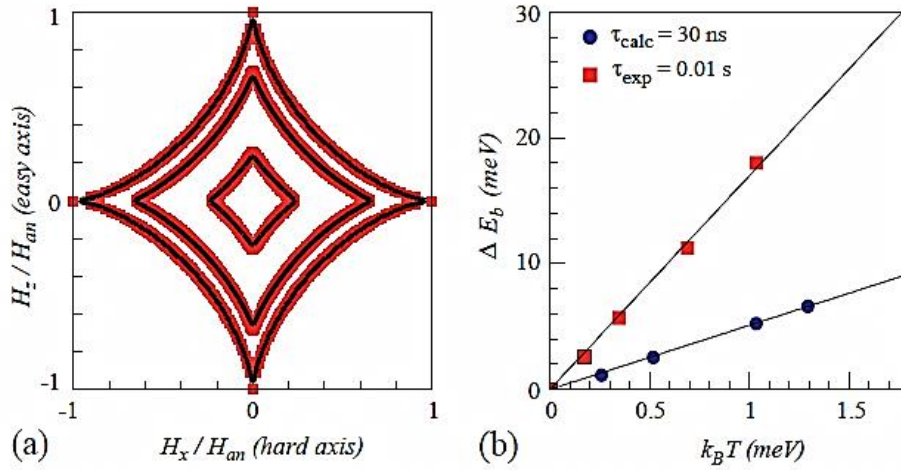
où  $\tau$  est le temps de relaxation de l'aimantation et  $h_S$  est le paramètre de champ critique. L'équation (I.68) peut être résolue numériquement pour  $h_S$  et  $\tau_m$  en fixant les autres paramètres. Déjardin *et al.* [14] ont démontré les effets de la température et de l'anisotropie de surface (SA) sur le champ de retournement de nanoparticules magnétiques avec une anisotropie mixte, i.e :

$$\beta V(\vartheta, \varphi) = \sigma \left[ \sin^2 \vartheta - \zeta \left( \sin^2 \vartheta \sin^2 2\varphi + \sin^2 2\vartheta \right) \right], \quad (I.69)$$

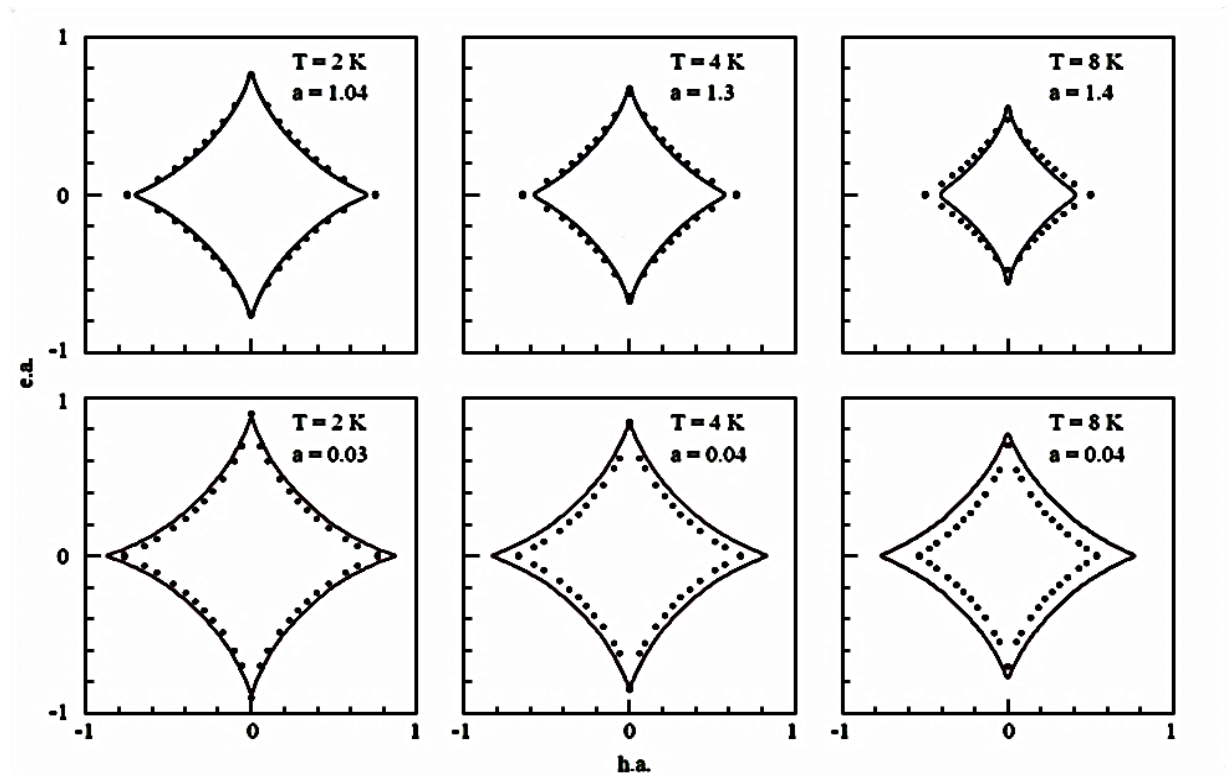
où  $\zeta$  est un paramètre lié à l'anisotropie de surface. La figure I.19 montre les courbes critiques calculées à l'aide de la méthode des fractions continues matricielles pour une fréquence de mesure  $f_m = 100\text{Hz}$ . Deux remarques peuvent être extraites. Premièrement, on observe des courbes homogènes qui se réduisent avec augmentation de la température et disparaissent complètement à la température de blocage. Deuxièmement, à une température donnée lorsque l'intensité du paramètre  $\zeta$  augmente de 0 à 0.25, on observe un aplatissement de la courbe avec une réduction dans la valeur du champ critique dans la direction horizontale ( $\psi = 0$ ) et augmentation dans la direction verticale.



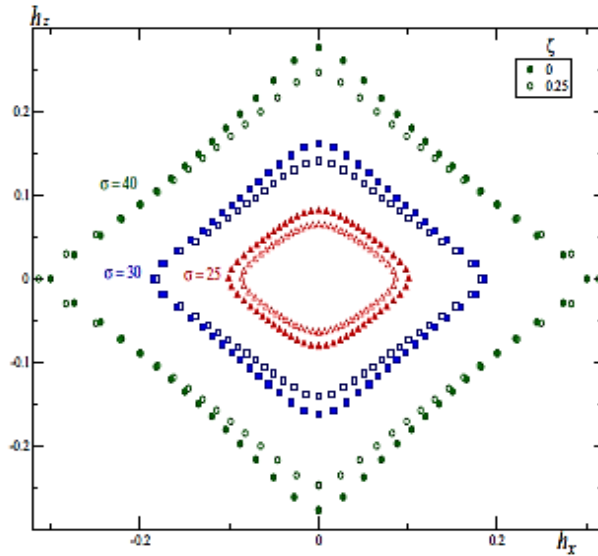
**Figure I.16 :** Dépendance en température du champ de retournement pour une particule de Co (3 nm) ; (a) mesuré avec  $\tau_{mes} = 0.01\text{ns}$  et (b) calculé avec  $\tau_{cal} = 30\text{ns}$ . [30]



**Figure I.17 :** Interprétation de  $\tau$  par la loi d'Arrhenius : (a) détermination de la moyenne  $\Delta E_b$  pour différentes températures ; (b) l'ajustement des résultats obtenus pour les astroïdes calculées et expérimentales avec la loi d'Arrhenius. [30]



**Figure I.18 :** Comparaison entre les astroïdes calculées (points) [30] et les courbes obtenues par les formules de Coffey *et al.* [57] (trait plein). [30]



**Figure I.19 :** Courbes critiques du champ de retournement en 2D pour différentes valeurs du paramètre d'anisotropie  $\sigma$  ( $\sim T^{-1}$ ) et  $\zeta$ . Le champ magnétique est appliqué dans le plan (OXZ). [14]

### I.3 Dynamique de l'aimantation de nanoparticules magnétiques en présence d'un champ externe variable

Si le champ externe est suffisamment faible, le système de nanoparticules réagit alors d'une façon linéaire, dans ce cas, la théorie de la réponse linéaire [21] est applicable. Cette théorie est largement utilisée pour l'interprétation des phénomènes des systèmes hors-équilibre comme la relaxation magnétique et diélectrique et les problèmes de conductivité. Son but est de décrire explicitement les fonctions de réponse, les susceptibilités et les fonctions de relaxation à l'aide de fonctions de corrélation à l'équilibre. Dans ce contexte, la réponse stationnaire linéaire des superparamagnétiques uniaxiaux soumises à un champ statique fort a été traitée dans les références [45], [46] et [58]. Cependant, si l'intensité du champ appliqué augmente, les perturbations créées par cette force extérieure rendent le système moins stable et changent notablement la réponse magnétique. La complexité mathématique et physique de la théorie de la réponse non-linéaire rend le traitement théorique de ces effets très compliqué même pour les systèmes sans interaction, et les résultats jusqu'à présent ne sont obtenus que par des simulations numériques ou via la théorie des perturbations [59,60] en supposant que l'énergie potentielle d'une particule dans un champ externe est inférieure à l'énergie thermique. Pour un champ d'amplitude arbitraire, un algorithme numérique efficace pour le calcul de la réponse stationnaire non-linéaire des nanoparticules superparamagnétiques uniaxiales a été

proposé par Raikher *et al.* [59] et Déjardin *et al.* [61]. Cependant, on trouve peu de solutions analytiques et numériques pour des problèmes particuliers [62-68].

### I.3.1 Susceptibilité dynamique non-linéaire

La réponse magnétique non-linéaire stationnaire à un champ magnétique externe  $H(t) = H_0 + H \cos(\omega t)$ , où l'amplitude  $H$  est très faible ( $\beta M_S H \ll 1$ ), est obtenue à l'aide de la théorie des perturbations [59,60]. Dans ce cas l'aimantation  $M_H(t)$  peut être présentée sous la forme :

$$M_H(t) = \langle M_H \rangle_0 + \sum_{k=1}^{\infty} \text{Re} \left[ \chi^{(k)} H^k e^{ik\omega t} \right] \quad (\text{I.70})$$

où  $\langle M_H \rangle_0$  est l'aimantation stationnaire et  $\chi^{(k)}$  est la susceptibilité magnétique d'ordre  $k$  ; pour  $k=1$ , c'est la susceptibilité linéaire pour  $k=3$ , c'est la susceptibilité non-linéaire ou cubique, etc. Dans ce contexte plusieurs approches ont été discutées pour traiter la susceptibilité non-linéaire. Bitoh *et al.* [69] ont mesuré et analysé la susceptibilité non-linéaire ( $\chi^{(3)}$ ) dans des échantillons de  $\text{Cu}_{97}\text{Co}_3$  et  $\text{Au}_{96}\text{Fe}_4$  en utilisant une analyse quantitative basée sur le modèle de blocage superparamagnétique de Wohlfarth [70]. La dépendance de  $\chi^{(3)}$  en température dans  $\text{Cu}_{97}\text{Co}_3$  peut être expliquée par ce modèle, tandis que la divergence de  $\chi^{(3)}$  dans  $\text{Au}_{96}\text{Fe}_4$  ne le permet pas. Cependant la susceptibilité non-linéaire  $\chi^{(3)}$  montre clairement la différence entre les "spin-glass" et les nanoparticules. Une approche analytique pour étudier la réponse dynamique non-linéaire à basse fréquence dans un système superparamagnétique sans interaction dipôle-dipôle, a été présentée par Garcia-Palacios et Garanin [71]. Ils ont obtenu une expression de  $\chi^{(3)}$  qui est en accord parfait avec la solution exacte de l'équation de Fokker-Planck. La formule obtenue est très simple et peut être utilisée pour modéliser les données expérimentales de la réponse non-linéaire. García-Palacios et Svedlindh [72] ont montré une large dépendance de  $\chi^{(3)}$  à  $\alpha$  qui peut être exploitée pour déterminer  $\alpha$  expérimentalement.

On se place en particulier dans l'approche théorique introduite par Raikher et Stepanov [73], qui ont résolu numériquement l'équation de Fokker-Planck pour obtenir des solutions exactes de la susceptibilité dynamique linéaire et cubique, et qui ont également proposé des expressions analytiques pour ces quantités. Leur étude a pour but d'expliquer le comportement magnétique linéaire et non-linéaire d'une assemblée de particules magnétiques monodomaines orientées aléatoirement et sans interactions dipôle-dipôle, en calculant théoriquement les

susceptibilités statique et dynamique linéaire,  $\chi^{(1)}$ , et non-linéaire,  $\chi^{(3)}$ . Pour les susceptibilités statiques linéaire et cubique d'un système monodisperse, ils ont proposé les équations suivantes [73,74] :

$$\chi_{eq}^{(1)}(T) = \frac{\mu_0 M_S^2 V}{3k_B T}, \quad \chi_{eq}^{(3)}(T) = -\frac{\mu_0 M_S^4 V}{(k_B T)^3} \frac{(1+2S_2^2)}{45}, \quad (\text{I.71})$$

où  $V$  est le volume de la particule, et

$$S_2(\sigma) = Z^{-1} \int_{-1}^1 P_2(z) \exp(\sigma z^2) dz. \quad (\text{I.72})$$

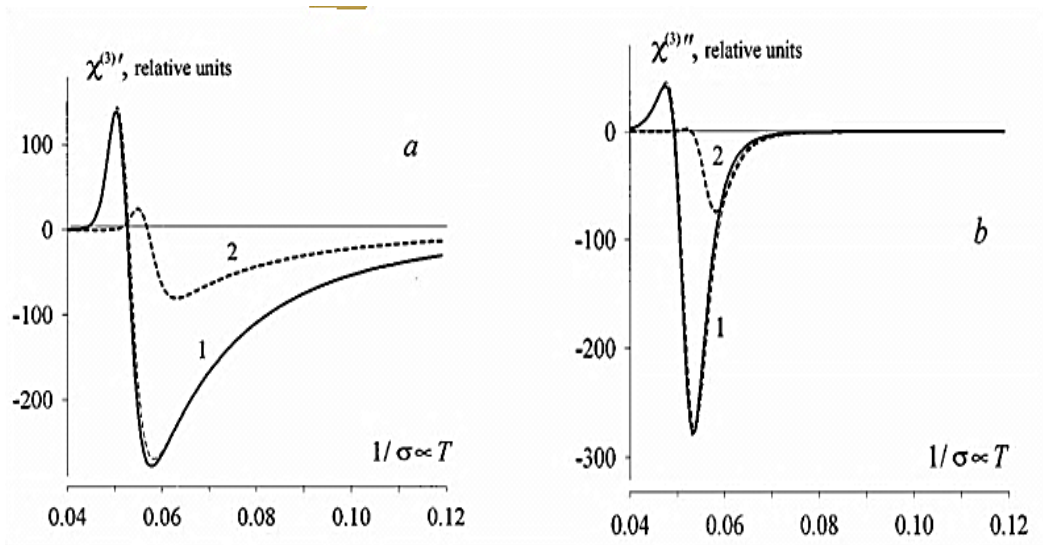
Les équations dans (I.71) peuvent être généralisées pour une anisotropie arbitraire [75]. Ensuite, ces auteurs ont aussi proposé des expressions analytiques pour les susceptibilités dynamiques linéaire  $\tilde{\chi}^{(1)}$  et cubique  $\tilde{\chi}^{(3)}$  pour un système monodisperse pour  $\alpha \gg 1$ , i.e

[73,74] :

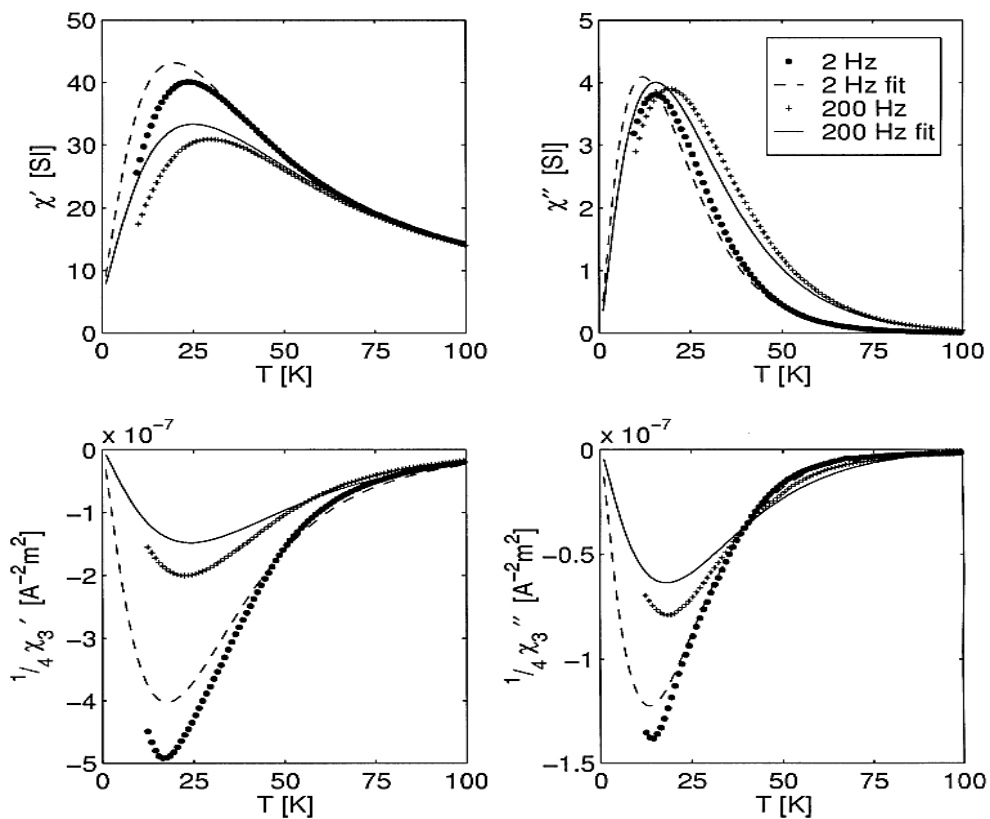
$$\tilde{\chi}^{(1)}(T, \omega) = \frac{\chi_{eq}^{(1)}}{3} \left[ \frac{1+2S_2}{1+i\omega\tau} + 2(1-S_2) \right], \quad \tilde{\chi}^{(3)}(T, \omega) = \chi_{eq}^{(3)} \frac{(1+2S_2^2)(1-i\omega\tau)}{(1+i\omega\tau)(1+3i\omega\tau)}, \quad (\text{I.73})$$

où  $\tau$  est un temps de relaxation donné par  $\tau = \tau_0 \sigma \frac{e^\sigma - 1}{2\sigma} \left[ \frac{1}{1+1/\sigma} \sqrt{\frac{\sigma}{\pi}} + 2^{-\sigma-1} \right]$ , où  $\tau_0$  est

supposé être indépendant de la température. L'expression de  $\tilde{\chi}^{(1)}$  de l'équation (I.73) est une bonne approximation pour des fréquences inférieures à la fréquence de la résonance ferromagnétique (voir, par exemple, les références [76] et [77]). Les calculs numériques de la susceptibilité dynamique non-linéaire (cubique) pour une assemblée de particules monodisperses, l'expression approximative  $\tilde{\chi}^{(3)}$  de l'équation (I.73), et les résultats de l'approche théorique proposée dans la référence [69], sont présentés sur la figure I.20, dans laquelle les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité cubique sont tracées en fonction du paramètre de température  $\sigma \propto 1/T$ , en prenant  $\omega\tau_0 = 10^{-8}$ . Nous remarquons une coïncidence entre les résultats approximatifs donnés par  $\tilde{\chi}^{(3)}$ , et les solutions numériques exactes. D'autre part, Jonsson *et al.* [74] ont comparé les expressions théoriques des susceptibilités dynamiques linéaires et cubiques proposées par Raikher et Stepanov [73], aux susceptibilités mesurées pour un système polydisperse de nanoparticules de maghemite  $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$  avec une concentration en volume de 0.3%, et sans interactions entre particules, en utilisant la distribution en volume de type Gamma [74], et en ajustant les courbes théoriques aux données expérimentales (figure I.21). Un bon accord a été obtenu.



**Figure I.20** : Partie imaginaire (a) et réelle (b) de la susceptibilité cubique  $\chi^{(3)}$  pour  $\omega\tau_0 = 10^{-8}$ . Ligne 1 indique la solution numérique exacte, le trait pointillé correspond à l'équation (I.73) et la ligne 2 est le calcul théorique [69]. [73]



**Figure I.21** : Parties réels et imaginaires des susceptibilités linéaires et cubiques vs. de la température de l'échantillon de concentration en volume de 0,3 % vol, pour deux fréquences différentes du champ ac. Traits continus et pointillés sont les susceptibilités calculées à l'aide

de la distribution en volume de type Gamma ; les symboles sont les résultats expérimentaux correspondants. [74]

Lorsque le champ appliqué est fort ( $\beta M_S H \geq 1$ ), la dynamique de l'aimantation change substantiellement menant à des effets non-linéaires qui ne peuvent être traités par la théorie des perturbations, dans ce cas l'aimantation  $M_H(t)$  des particules magnétiques contient des composantes avec différentes fréquences :

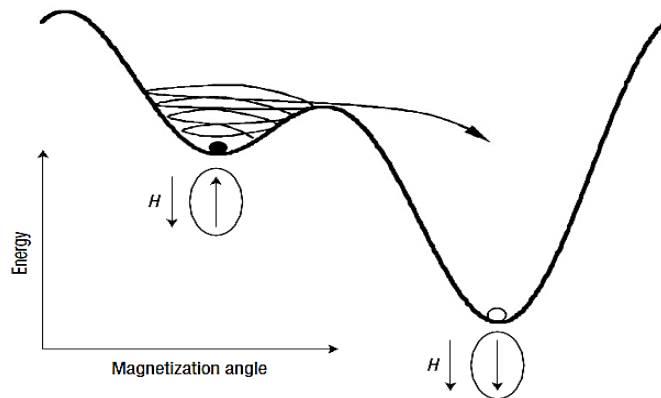
$$M_H(t) = M_S \sum_{k=-\infty}^{\infty} m_1^k(\omega) e^{ik\omega t}, \quad (\text{I.74})$$

où  $M_S$  est l'aimantation à saturation. Dans ce cas, pour calculer la réponse non-linéaire à un champ magnétique fort dans les systèmes dynamiques, les méthodes numériques sont les solutions les plus adaptées [78,79]. Par exemple, Poperechny *et al.* [78] ont élaboré une méthode numérique pour le calcul de la réponse stationnaire non-linéaire dans les nanoparticules uniaxiales en négligeant le terme gyromagnétique dans l'équation de Fokker-Planck, mais ces résultats ne s'appliquent qu'aux basses fréquences ou pour des grandes dissipations ( $\alpha \geq 1$ ). Cependant, une étude complémentaire de ce problème non-linéaire, en calculant numériquement cette fois-ci la réponse stationnaire non-linéaire dans les nanoparticules superparamagnétique avec une anisotropie arbitraire en incluant le terme gyromagnétique dans l'équation de Fokker-Planck, a été donnée par Titov *et al.* [79].

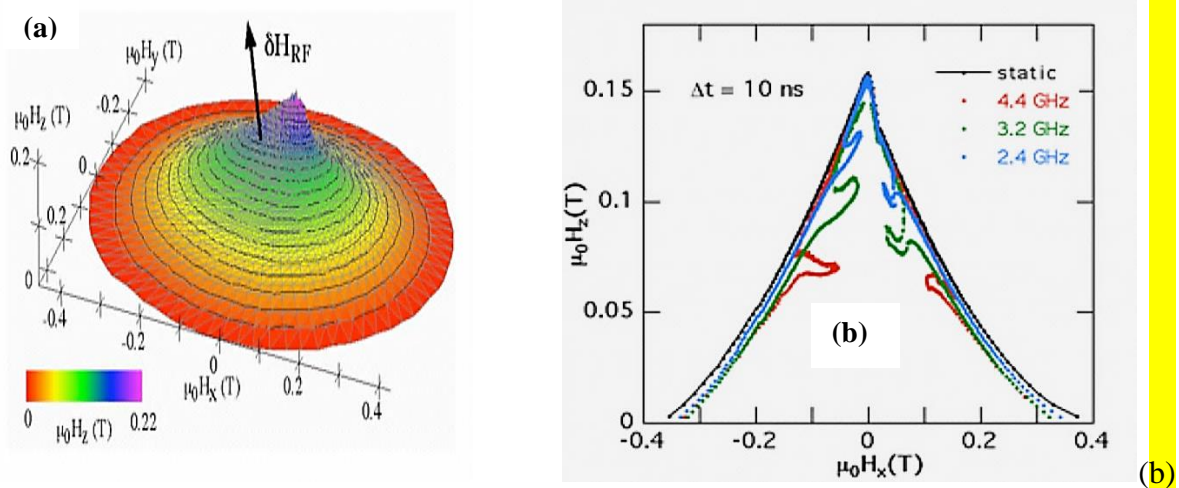
### **I.3.2 Retournement de l'aimantation d'une nanoparticule individuelle en présence d'un champ alternatif [80]**

Maintenir une information le plus possible ou/et augmenter la capacité de stockage, etc, tous ces applications reviennent à limiter l'influence de la température. La maîtrise de leurs effets est importante pour améliorer les propriétés des matériaux utilisés. L'une des stratégies pour réaliser cela, est le retournement de l'aimantation en présence d'un champ alternatif. Thirion *et al.* [80] ont montré que la combinaison d'un champ magnétique statique et un champ alternatif très faible, permet de réduire significativement le champ de retournement nécessaire pour renverser l'aimantation d'une nanoparticule. Selon une autre étude, cet effet est plus marqué à la fréquence de la résonance ferromagnétique de la particule [81]. Le principe de renversement est simple, pour une particule avec une anisotropie uniaxiale, l'énergie potentielle du système à deux puits correspondant à deux orientations stables de l'aimantation. Pour un faible champ appliqué, l'un des deux puits devient métastable (voir figure I.22). Un champ

supplémentaire alternatif  $\delta H_{RF}$  induit des oscillations de l'aimantation dans les puits. Lorsque la fréquence de  $\delta H_{RF}$  correspond à la fréquence de précession de l'aimantation, la barrière d'énergie entre les deux puits disparaît. Cela peut entraîner le renversement de l'aimantation du puit métastable vers le puit stable lorsque l'amortissement n'est pas trop élevé. Thirion *et al.* [80] ont présenté un travail, où ils ont effectué des mesures expérimentales sur une particule de cobalt de 20 nm de diamètre, à l'aide de la technique du micro-SQUID. L'expérience se repose sur des mesures de champ de retournement de l'aimantation par application des impulsions RF à une vitesse d'environ 0.1 T/s, dans toutes les directions (figure I.23 (a)), et en projection dans le plan (OXZ) (figure I.23 (b)).



**Figure I.22 :** Représentation graphique du retournement de l'aimantation via la résonance non-linéaire : potentiel d'énergie de l'aimantation en fonction de l'angle. [80]



**Figure I.23 :** Champ de retournement mesuré, pour une particule de cobalt de 20 nm de diamètre, en plusieurs fréquences. (a) En trois dimensions, (b) dans le plan (OXZ). [80]

### I.3.3 Résonance ferromagnétique non-linéaire

La résonance ferromagnétique (FMR) est un phénomène d'absorption de l'énergie électromagnétique par un corps ferromagnétique soumis à une excitation magnétique. Autrement dit, la fréquence d'un champ radiofréquence  $h(\omega)$  coïncide avec la fréquence qui correspond au mode produit par le mouvement précessionnel de l'aimantation autour du champ effectif. Ceci est particulièrement évident dans le cas de nanoparticules magnétiques monodomaines uniaxiales placées dans un champ uniforme. Le phénomène de FMR a été découvert en 1911 par V. K. Arkad'yev [82], lorsqu'il a observé l'absorption de radiation UHF (ultra hautes fréquences) par des matériaux ferromagnétiques. La théorie de la FMR linéaire a été bien développée dans les références [83,84,85]. Le principal résultat dans le cas d'un système magnétique est donné, en tenant compte de la condition d'équilibre ( $V_{g\vartheta} = V_{\varphi\varphi} = 0$  avec  $V_{ij} = \partial_{ij}V$ ,  $i, j = (\vartheta, \varphi)$ ), et en négligeant le terme dissipatif dans l'équation de Landau-Lifshitz, par l'expression générale de la fréquence de résonance  $\omega_{pr}$  dite formule de Smit-Suhl [84] :

$$\omega_{pr} = \gamma H_{eff} = \frac{\gamma}{M_S \sin \vartheta_0} \sqrt{V_{g\vartheta} V_{\varphi\varphi} - V_{\vartheta\varphi}^2} \quad (I.75)$$

où  $\gamma$  est le rapport gyromagnétique. Comme nous pouvons déterminer facilement l'orientation de l'aimantation à l'équilibre  $(\vartheta_0, \varphi_0)$  par résolution de l'équation de la condition d'équilibre, alors pour déterminer la fréquence de résonance  $\omega_{pr}$ , il suffit de calculer l'expression de l'énergie libre à l'équilibre. La fréquence  $\omega_{pr}$  dans l'équation (I.75) est définie dans le contexte de la théorie de la réponse linéaire où les excitations magnétiques appliquées sont très faible. Pour des excitations suffisamment élevées, des effets non-linéaires qui découlent la non-linéarité de l'équation de Landau-Lifshitz, apparaissent sous diverses formes, par exemple, repliement de la raie de résonance (figure I.24), saturation prématurée de la résonance principale et absorption secondaire (figure I.25), etc. Plusieurs études sont consacrées à ce phénomène de FMR non-linéaire [86]. Dans ce contexte, des approches théoriques pour décrire la FMR non-linéaire dans les systèmes dynamiques ont été proposé dans les références [85,87,88,89]. Nous proposons ici un résumé de la théorie développée par Suhl [87] basée sur la résolution de l'équation de Landau-Lifshitz. En fait, cette théorie entre dans le cadre où les modes (les magnons thermiques avec le mode de précession uniforme excite par le champ alternatif) du système sont couplés ce qui provoque une instabilité des ondes de spin et également un transfert d'énergie du mode uniforme vers les magnons thermiques.

La théorie de Suhl [87] commence en cherchant les solutions de l'équation de Landau-Lifshitz sous la forme de série de Fourier, i.e [87] :

$$M(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} m_{\mathbf{k}}(t) e^{-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_{\mathbf{k}} t)} \quad (\text{I.76})$$

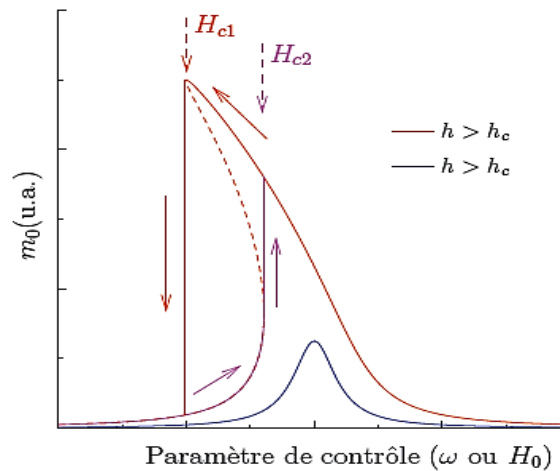
$m_{\mathbf{k}}(t)$  sont les composantes de Fourier pour les ondes de spin de vecteur d'onde  $\mathbf{k} = k u_x + k u_y$  et de fréquence  $\omega_{\mathbf{k}}$ . De plus, le champ statique est pris dans la direction (OZ), et le champ alternatif est appliqué suivant la direction (OX). On obtient une condition d'instabilité lorsque  $h > h_c$ , où  $h_c$  est le champ du seuil de l'instabilité, avec [87] :

$$h_{s\text{crit}} = \frac{2\omega_k \omega_p \sqrt{[\omega_k^2 + (\omega_p - \omega_0)^2][(\omega_p - \omega_0)^2]}}{\rho_k \rho_k^*}, \quad (\text{I.77})$$

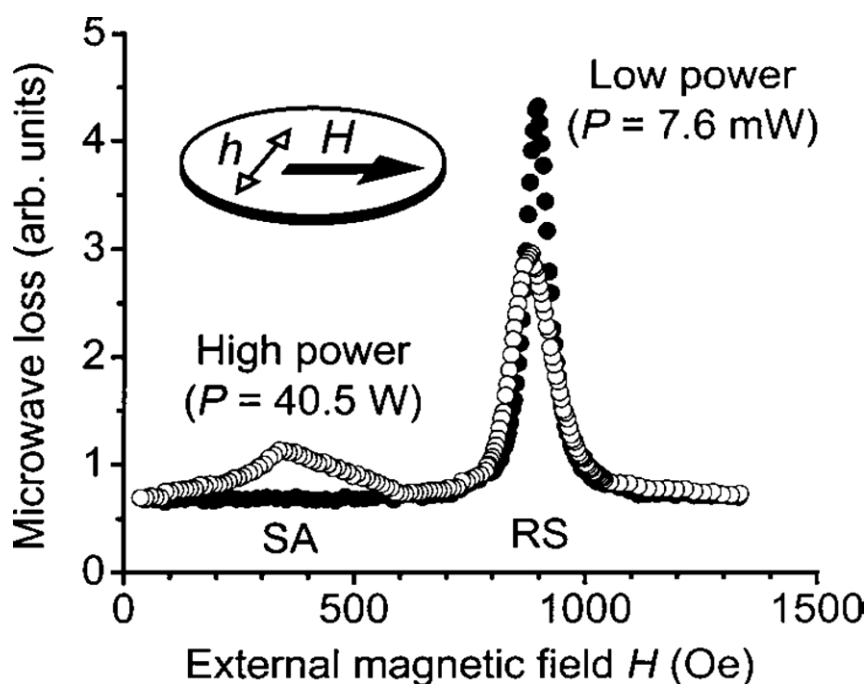
où  $\rho_k$  est un coefficient indépendant du temps donné par :

$$\rho_k = -\frac{\omega_M}{4\omega_k} (\omega_k + \omega_H + \eta k^2) \sin(2\theta_k) \exp(i\varphi_k). \quad (\text{I.78})$$

Pour une fréquence de pompage  $\omega_p$  donnée, et pour que le processus responsable de l'instabilité puisse avoir lieu, il faut que la condition  $\omega_0 = \omega_p / 2$  soit satisfaite. Autrement dit, l'instabilité se traduira par l'apparition pour  $h > h_c$ , d'une absorption secondaire localisée en  $\omega_0 = \omega_p / 2$ .



**Figure I.24 :** Repliement de la raie de résonance dans le cas d'un disque infini pour une excitation micro-onde supérieure au seuil  $h_c$ . La courbe de résonance est multi-évaluée de sorte que la partie en pointillés est inaccessible expérimentalement, et que la raie de résonance possède un caractère hystérétique représentée par les flèches qui indiquent le sens du balayage en champ. [86]

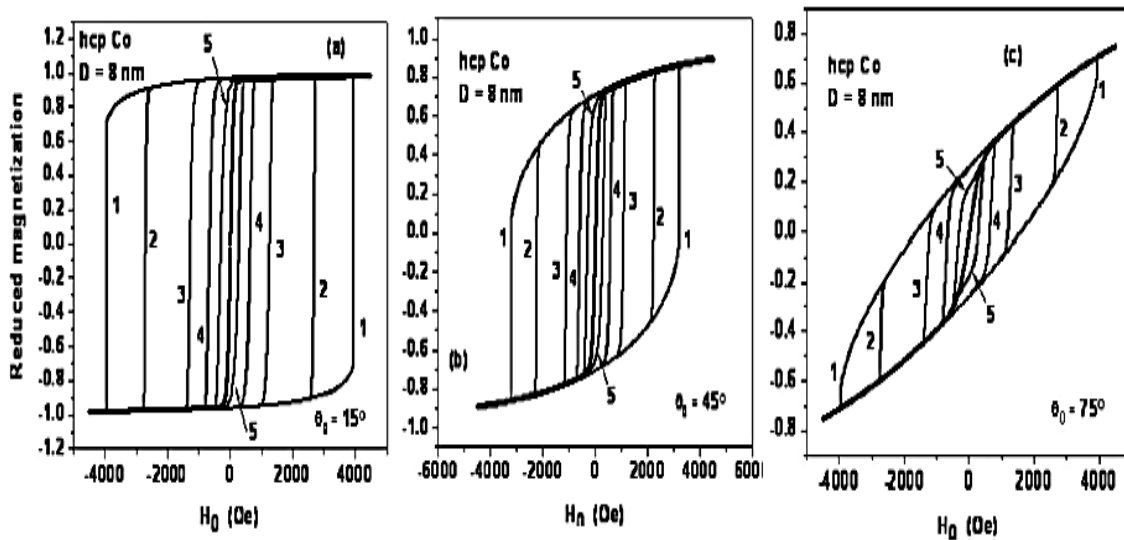


**Figure I.25** : Observation expérimentale de la FMR non-linéaire : (SA) absorption secondaire ; (RS) résonance principale à la saturation. Les cercles solides et ouvertes indiquent les puissances  $P$  appliquées dans la cavité. [87]

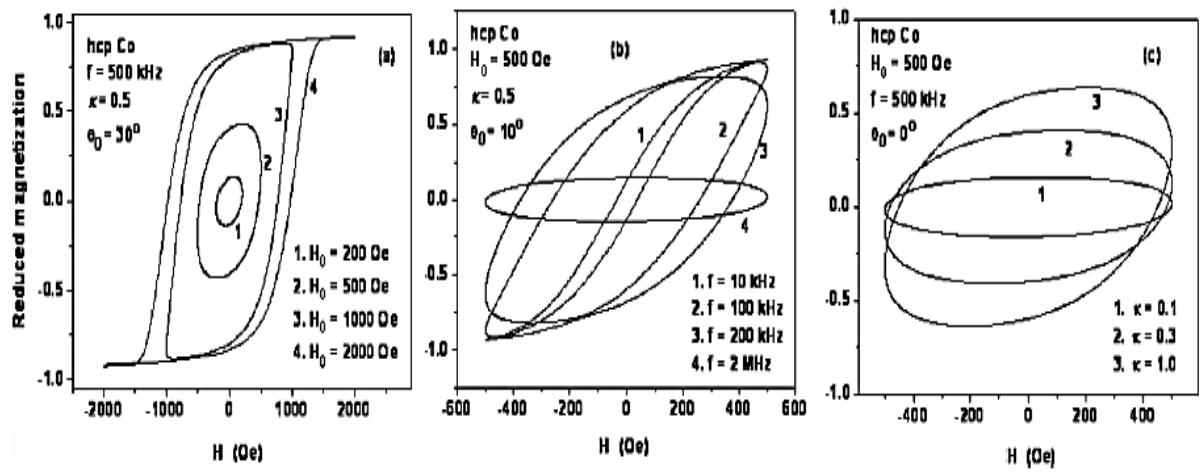
### I.3.4 Hystérésis magnétique dynamique

L'hystérésis magnétique dynamique (DMH) induite dans les nanoparticules magnétiques est un effet important d'un point de vue fondamental, mais aussi pour très grand nombre d'application allant du stockage de l'information au domaine biomédical [90,91,92]. Les pionniers de ce phénomène DMH sont Ignachenko et Gekht [93] qui ont proposé une théorie pour des nanoparticules magnétiques isotropes. Cette théorie a été tendue relativement récemment aux particules uniaxiales [94,95,96,97,98,99]. Lu *et al.* [94] ont étudié le comportement de la DMH de nanoparticules monodomaines avec une anisotropie uniaxiale en présence d'un champ magnétique alternatif. Les cycles d'hystérésis ont été calculés en fonction du champ appliqué à différentes fréquences avec différentes directions du champ externe. La variation de la force coercitive par rapport au taux du balayage (fréquence de mesure), l'angle du champ, l'anisotropie, le volume de la particule a été donné. Une comparaison entre les courbes d'hystérésis en équilibre thermique et celles de Stoner-Wohlfarth a été donnée.

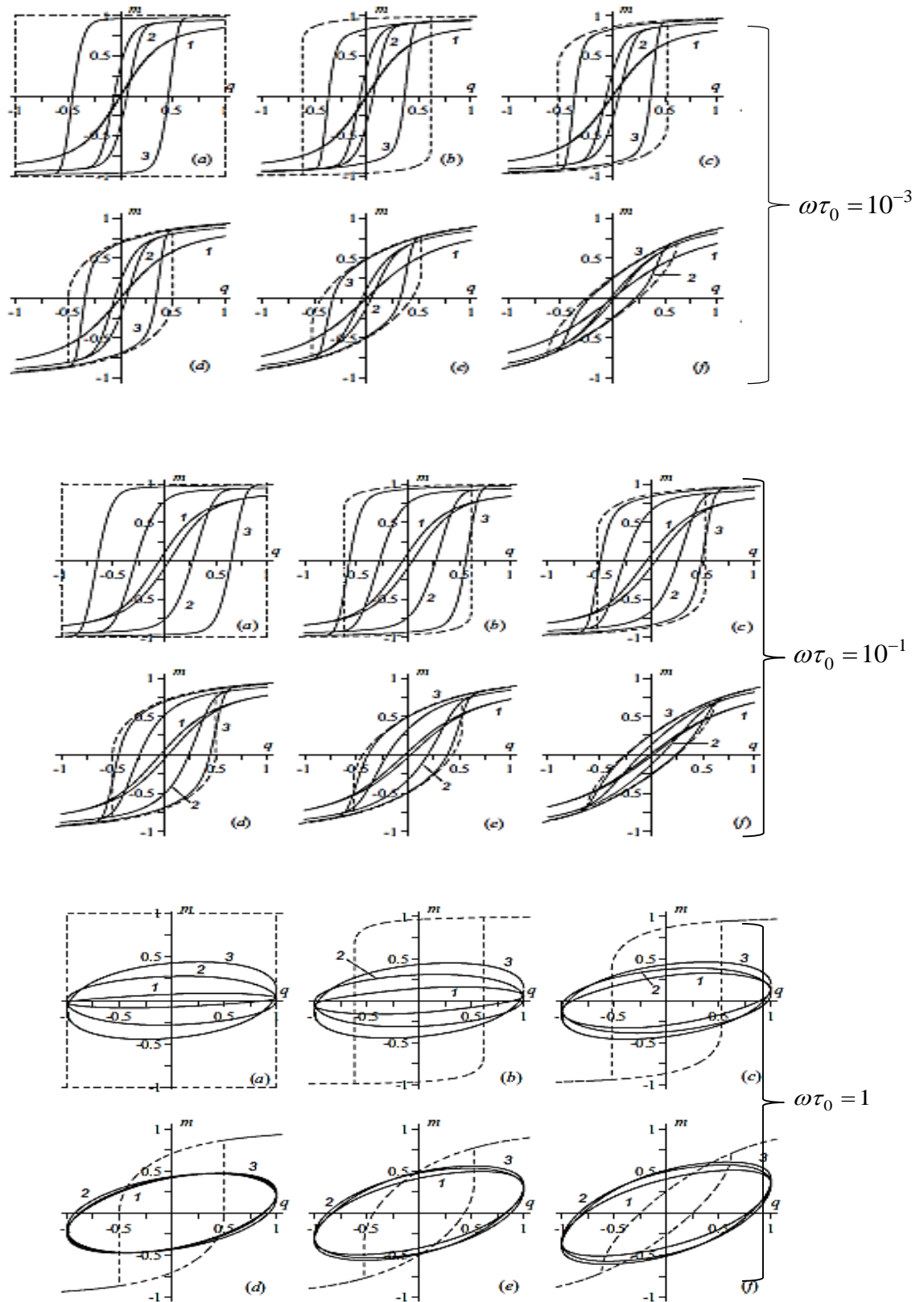
Dans la référence [95], la DMH a été calculée en fonction de la température à différents angles du champ appliqué, pour des assemblées ordonnées et aussi orientées aléatoirement (figure I.26). Des estimations analytiques de la force coercitive et la température de blocage sont également discutées. Des récentes études [96] traitent aussi ce problème de DMH, afin d'optimiser les paramètres des nanoparticules magnétiques en hyperthermie. Ainsi la DMH a été calculée en basse fréquence pour des nanoparticules superparamagnétiques uniaxiales en fonction des paramètres du système (diamètre de la particule, amplitude et fréquence du champ alternatif, et constante de dissipation, etc.) (figure I.27). Ces approches théoriques sont investies par Poperechny *et al.* [98,99] pour développer des méthodes numériques basées sur la théorie de Brown. Comme exemple, dans la référence [98], la DMH a été calculée pour différentes fréquences en fonction de l'angle du champ appliqué et la température (figure I.28).



**Figure I.26 :** Cycles d'hystérésis d'une assemblée de nanoparticules de Co à différents angles  $\vartheta_0$  : (a)  $\vartheta_0 = 15^\circ$  ; (b)  $\vartheta_0 = 45^\circ$  ; et (c)  $\vartheta_0 = 75^\circ$  , et à plusieurs températures  $T$  : (1) cycle de SW ; (2)  $T = 50^\circ K$  ; (3)  $T = 150^\circ K$  ; (4)  $T = 200^\circ K$  ; et (5)  $T = 230^\circ K$  . [95]



**Figure I.27 :** Cycles d'hystérésis d'une assemblée de nanoparticules de Co de 6 nm en diamètre en fonction de diverse paramètres physiques :(a) amplitude du champ ac ; (b) fréquence du champ ; et (c) constante de dissipation. [96]



**Figure I.28 :** Courbes DMH pour différents angles  $\psi$  : (a)  $0^\circ$  ; (b)  $15^\circ$  ; (c)  $30^\circ$  ; (d)  $45^\circ$  ; (e)  $60^\circ$  ; et (f)  $75^\circ$ , et différentes constantes d'anisotropie  $\sigma$  ( $\approx T^{-1}$ ): (1) 2 ; (2) 5 ; et (3) 15. [98]

#### I.4 Formulation du problème et organisation du manuscrit

Nous rappelons que le but principal de notre travail est d'étudier théoriquement la dynamique de l'aimantation de nanoparticules magnétiques sous l'effet d'un champ DC oblique puis un champ AC. Nous souhaitons étudier en particulier, les effets non-linéaires et thermiques d'un champ d'amplitude et d'orientation arbitraire sur la dynamique de l'aimantation de nanoparticules magnétiques. Pour réaliser cette étude nous utilisons le modèle de Brown. Dans ce travail, nous présenterons les quantités physiques pertinentes à cette étude comme la susceptibilité magnétique dynamique, le temps de renversement de l'aimantation, la DMH, etc. Ces grandeurs seront calculées et analysées en fonction de différents grandeurs physiques à savoir la constante de dissipation, la température, l'angle et l'amplitude du champ (ac) et statique (dc), etc. Dans un premier temps, lorsque le champ ac est faible, la dynamique de l'aimantation est décrite par la théorie de la réponse linéaire [21]. Le cas où le champ ac est fort, les solutions obtenues en réponse linéaire ne sont plus valables, et nous proposerons une nouvelle approche.

Le manuscrit est constitué de quatre chapitres: après un rappel des éléments de base dans le premier chapitre, nous présenterons et nous discuterons dans le chapitre II les résultats de calculs de la susceptibilité linéaire pour une particule superparamagnétique en présence d'un champ magnétique oblique, pour différentes fréquences. Nous discuterons l'effet de l'angle Azimutale sur la relaxation magnétique.

Pour élargir l'espace de l'analyse, le chapitre III est consacré pour le calcul des temps de relaxations transversales  $\tau_{\perp x}$  et  $\tau_{\perp y}$ , les susceptibilités magnétiques transversales  $\chi_{\perp x}(\omega)$  et  $\chi_{\perp y}(\omega)$ , discuter l'effet de la constante de dissipation  $\alpha$ , de la barrière  $\sigma$ , et du paramètre de biaxialité  $\Delta$  sur les spectres des susceptibilités magnétiques transversales. En fin un dernier chapitre est consacré à l'étude de la dynamique de l'aimantation des particules superparamagnétiques biaxiales en présence d'un champ ac fort. Une importante particulière sera donnée à la contribution de la constante de biaxialité et l'angle azimutal du champ ac avec l'axe d'anisotropie. Pour cela, nous calculerons la susceptibilité non-linéaire  $\chi_1^l(\omega)$ , la DMH en fonction du paramètre d'anisotropie biaxiale, la température, la constante de dissipation, et la fréquence, ainsi que l'aire d'hystérésis normalisée  $A_n$  en fonction des différents paramètres physiques.

## I.5 Bibliographie

- [1] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. London, Ser. A* **240**, 599 (1948).
- [2] L. Néel, *C. R. Acad. Sci. Paris*, **228**, 664 (1949); L. Néel, *C. R. Ann. Géophys.* **5**, 99 (1949).
- [3] W. F. Brown, Jr. *Phys. Rev.* **130**, 1677 (1963); W. F. Brown, *J. IEEE Trans. Magn.* **15**, 1196 (1979). T. L. Gilbert, *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1956).
- [4] L. D. Buda, Thèse, Université Louis Pasteur de Strasbourg (2001).
- [5] H. Alloul, *Physique des électrons dans les solides*, les éditions de l'école polytechnique (2007).
- [6] K. Honda and S. Kaya, *Sci. Report, Sendai, series 1*, **15**, 721 (1926).
- [7] <http://amgme.free.fr/coursM1/Anisotropie%20magnetique.pdf>
- [8] [http://www.g2elab.grenoble-inp.fr/recherche/madea-l-anisotropie-magnetocristalline-338281.kjsp?RH=G2EALB\\_R-MADEA-MFONC](http://www.g2elab.grenoble-inp.fr/recherche/madea-l-anisotropie-magnetocristalline-338281.kjsp?RH=G2EALB_R-MADEA-MFONC)
- [9] Y. P. Kalmykov, B. Ouari, , *Phys Rev. B* **71**, 94410 (2005), J. L. Dormann, *Revue Phys. Appl.* **16**, 275 (1981).
- [10] E. Trémolat du Lacheisserie, EDP Science (2000).
- [11] B. Ouari, Y. P. Kalmykov, *Physical Review B*, Vol. 83, 064406 (2011), J. Legrand, Thèse, Université Pierre et Marie Curie de Paris VI (2001).
- [12] L. Néel, L., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **237**, 1468 (1953); L. Néel, *J. Phys. Radium* **12**, 255 (1954).
- [13] H. Kachkachi and E. Bonet, *Phys. Rev. B* **73**, 224402 (2006).
- [14] P. M. Déjardin, H. Kachkachi, and Yu. P. Kalmykov, *J. Phys. D* **41**, 134004 (2008).
- [15] M. Soltan, Thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon (2002).
- [16] C. Tannous and J. Gieraltowski, *Eur. J. Phys.* **29**, 475 (2008).
- [17] A. Thiaville, *Phys. Rev. B* **61**, 12221 (2000).
- [18] A. Hubert and W. Rave, *Phys. Status Solidi B* **211**, 815 (1999).
- [19] H. Schmidt, *J. Appl. Phys.* **93**, 2107 (2003).
- [20] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Phys. Z. Sowjetunion* **8**, 153 (1935).
- [21] W. T. Coffey and Yu. P. Kalmykov, *The Langevin Equation*, 3d Ed. (World Scientific, Singapore, 2012).
- [22] T. L. Gilbert, *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1955).
- [23] N. G. van Kampen, *Stochastic processes in physics and chemistry*, 3d Ed. (Personal Library, North-Holland, 1981).

- [24] H. Risken, *The Fokker-Planck equation*, 2nd Ed. (Springer, Berlin, 1989); H. Risken, *The Fokker-Planck Equation: Methods of Solution and Applications*, 2nd Ed. (Spring, New York, 1996).
- [25] D. Hinzke and U. Nowak, Phys. Rev. B **58**, 265 (1998); D. Hinzke and U. Nowak, Phys. Rev. B **61**, 6734 (2000).
- [26] U. Nowak, R. W. Chantrell, and E. C. Kennedy, Phys. Rev. Lett. **84**, 163 (2000).
- [27] J. L. Garcia-Palacios, Thèse, Université de Zaragoza (1998).
- [28] C. Vouille, A. Thiaville, and J. Miltat, J. Mag. Magn. Mater. **272**, 238 (2004).
- [29] A. Perez, P. Melinon, V. Dupuis, and L. Bardotti, *Synthèse et étude nanostructures fonctionnelles à partir d'agrégat préformés en phases gazeuse*, Lab. de physique de la matière condensée et nanostructure (LPMCN, UMR, 5586), Lyon.
- [30] C. Vouille, A. Thiaville, and J. Miltat, *Simulation de l'effet de l'agitation thermique sur la dynamique de renversement d'aimantation d'une nanoparticule*, Congrè (2004).
- [31] X. Z. Cheng, M. B. A. Jalil, H. K. Lee, and Y. Okabe, Phys. Rev. B **72**, 094420 (2005).
- [32] D. A. Varshalovich, A.N. Moskalev, and V.K. khersonoskii, *Quantom theory of angular Momentum*, (World Scientific, Singapor, 1998).
- [33] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, and J. T. Waldron, Phys. Rev. B **51**, 15947 (1995).
- [34] Y. P. Kalmykov, Phys. Rev. B **61**, 6205 (2000); Yu. P. Kalmykov, and S. V. Titov, J. Magn. Magn. Mater. **210**, 233 (2000).
- [35] Yu. P. Kalmykov, Phys. Rev. E **61**, 6320 (2000).
- [36] J. S. Langer, Ann. Phys. **54**, 258 (1969); Phys. Rev. Lett. **21**, 973 (1968).
- [37] B. Ouari, Thèse, Université de Perpignan Via Domitia (2006).
- [38] W. T. Coffey, D. A. Garanin, and D. McCarthy, Adv. Chem. Phys. **117**, 528 (2001).
- [39] P. M. Déjardin, D. S. F. Crothers, W. T. Coffey, and D. J. McCarthy, Phys. Rev. E **63**, 021102 (2001).
- [40] V. I. Mel'nikov and S. V. Meshkov, J. Chem. Phys. **85**, 1018 (1986); V. I. Mel'nikov, Physica A **130**, 606 (1985); Phys. Rep. **209**, 1 (1991).
- [41] Yu. P. Kalmykov, J. Appl. Phys. **96**, 1138 (2004).
- [42] Yu. P. Kalmykov and S. V. Titov, Phys. Rev. Lett. **82**, 2967 (1999); J. Magn. Magn. Mater. **210**, 233 (2000).
- [43] A. Aharoni, Phys. Rev. **177**, 793 (1969).

- [44] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, and P. M. Déjardin, *Phys. Rev. E* **71**, 062102 (2005); W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, and Yu. P. Kalmykov, *J. Non-Crystall. Solids* **352**, 4710 (2006).
- [45] J. L. Déjardin, Yu. P. Kalmykov, and P. M. Déjardin, *Adv. Chem. Phys.* **117**, 275 (2001); J. L. Déjardin and Yu. P. Kalmykov, *Phys. Rev. E* **61**, 1211 (2000); *J. Chem. Phys.* **112**, 2916 (2000).
- [46] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, J. L. Dormann, L. J. Geoghegan, Yu. P. Kalmykov, J. T. Waldron, and A. W. Wickstead, *Phys. Rev. B* **52**, 15951 (1995); W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, J. L. Dormann, L. J. Geoghegan, and E. C. Kennedy, *Phys. Rev. B* **58**, 3249 (1998); L. J. Geoghegan, W. T. Coffey, and B. Mulligan, *Adv. Chem. Phys.* **100**, 475 (1997); Yu. P. Kalmykov and S. V. Titov, *Fiz. Tverd. Tela (St. Petersburg)* **40**, 1642 (1998) [*Phys. Sol. State* **40**, 1492 (1998)]; W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, and S. V. Titov, *Phys. Rev. B* **64**, 012411 (2001).
- [47] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, Yu. P. Kalmykov, E. S. Massawe, and J. T. Waldron, *Phys. Rev. E* **49**, 1869 (1994).
- [48] P. J. Cregg, D. S. F. Crothers, and A. W. Wickstead, *J. Appl. Phys.* **76**, 4900 (1994).
- [49] D. A. Smith and F. A. De Rosario, *J. Magn. Magn. Mater.* **3**, 219 (1976).
- [50] I. Eisenstein and A. Aharoni, *Phys. Rev. B* **16**, 1278 (1977); *ibid.* **16**, 1285 (1977).
- [51] Yu. P. Kalmykov, W. T. Coffey, B. Ouari, S. V. Titov, *J. Magn. Magn. Mater.* **292**, 372 (2005).
- [52] Yu. L. Raikher and M. I. Shliomis, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **67**, 1060 (1974); Yu. L. Raikher and M. I. Shliomis, *Adv. Chem. Phys.* **87**, 595 (1994).
- [53] Yu. P. Kalmykov and W. T. Coffey, *Phys. Rev. B* **56**, 3325 (1997).
- [54] A. Stancu and L. Spinu, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 206 (2003).
- [55] E. Bonet, W. Wernsdorfer, B. Barbara, A. Benoit, D. Mailly, and A. Thiaville, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4188 (1999); W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, B. Barbara, A. Benoît and D. Mailly, *Physica B: Condensed Matter.* **280**, 264 (2000).
- [56] M. Jamet, W. Wernsdorfer, C. Thirion, D. Mailly, V. Dupuis, P. Mélinon, and A. Pérez, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4676 (2001); *Phys. Rev. B* **69**, 024401 (2004).
- [57] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, J. L. Dormann, Yu. P. Kalmykov, E. C. Kennedy, and W. Wernsdorfer, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5655 (1998).
- [58] H. Fukushima, Y. Uesaka, Y. Nakatani, and N. Hayashi, *J. Appl. Phys.* **101**, 013901 (2007); *J. Magn. Magn. Mater.* **323**, 195 (2010).
- [59] Yu. L. Raikher and V. I. Stepanov, *Adv. Chem. Phys.* **129**, 419 (2004).

- [60] J. L. García-Palacios and P. Svedlindh, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3724 (2000).
- [61] P. M. Déjardin and Yu. P. Kalmykov, *J. Appl. Phys.* **106**, 123908 (2009); *J. Magn. Magn. Mater.* **322**, 3112 (2010).
- [62] L. D. Eskin, *Optik. Spektrosk.* **45**, 1185 (1978).
- [63] I. B. Aiznberg and L. D. Eskin, *Optik. Spektrosk.* **48**, 399 (1980).
- [64] A. Morita, *J. Phys. D* **11**, 1357 (1978).
- [65] Yu. P. Kalmykov, J. L. Déjardin, and W. T. Coffey, *Phys. Rev. E* **55**, 2509 (1997).
- [66] Yu. P. Kalmykov, *Optik. Spektrosk.* **84**, 1000 (1998).
- [67] H. J. Breymayer, H. Risken, H. D. Vollmer, and W. Wonneberger, *Appl. Phys. B : Photophys. Laser Chem.* **28**, 335 (1982).
- [68] Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, and S. V. Burylov, *J. Coll. Interface Sci.* **144**, 308 (1991).
- [69] T. Bitoh, K. Ohba, M. Takamatsu, T. Shirane, and S. Chikazawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 1311 (1995); *J. Magn. Magn. Mater.* **154**, 59 (1996).
- [70] E. P. Wohlfarth, *Phys. Lett. A* **70**, 489 (1979).
- [71] J. L. Garcia-Palacios and D. Garanin, *Phys. Rev. B* **70**, 064415 (2004).
- [72] J. L. García-Palacios and P. Svedlindh, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3724 (2000).
- [73] Yu. L. Raikher and V. I. Stepanov, *Adv. Chem. Phys.* **129**, 419 (2004).
- [74] P. Jönsson, T. Jonsson, J. L. Garcia-Palacios, and P. Svedlindh, *J. Mag. Magn. Mater.* **222**, 219 (2003).
- [75] J. L. Garcia-Palacios, P. Jonsson, P. Svedlindh, *Phys. Rev. B* **61**, 6726 (2000).
- [76] Yu. L. Raikher, V.I. Stepanov, A.N. Grigorenko, P.I. Nikitin, *Phys. Rev. E* **56**, 6400 (1997).
- [77] J. L. Garcia-Palacios, F. J. Laizaro, *Phys. Rev. B* **58**, 14937 (1998).
- [78] I. S. Poperechny, Yu. L. Raikher, and V. I. Stepanov, *Phys. Rev. B* **82**, 174423 (2010).
- [79] S. V. Titov, P. M. Déjardin, H. El Mrabti, and Yu. P. Kalmykov, *Phys. Rev. B* **82**, 100413(R) (2010).
- [80] C. Thirion, W. Wersdorefer, and D. Maily, *Nature Mater.* **2**, 524 (2003).
- [81] G. Woltersdorf and C. H. Back, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 227207 (2007).
- [82] [http://fr.wikipedia.org/wiki/Résonance\\_ferromagnétique](http://fr.wikipedia.org/wiki/Résonance_ferromagnétique).
- [83] C. Kittel, *Phys. Rev.* **73**, 2 (1948).
- [84] J. Smit and H.G. Beljers, *Phillips Res. Rept.* **10**, 113 (1955); G. V. Skrotskii and L. V. Kurbatov, in : S. V. Vonsovskii (Editor), *Ferromagnetic Resonance*, (Pergamon Press, Oxford, 1966).

- [85] L. D. Landau and E. M. Lifshitz (1969), *Mechanics*, 3d Ed. (Pergamon Press, Oxford, (1969).
- [86] V. Charbois, Thèse, Université Denis Diderot, Paris VII (2003).
- [87] H. Suhl, *Phys. Chem. Solids.* **1**, 209 (1957).
- [88] V. S. L'vov and S. S. Starobinets, *Soviet Phys. Solid State* **13** (1971); Y. S. Gui, A. Wirthmann and C. M. Hu, *Phys. Rev. B* **80**, 184422 (2009).
- [89] S. Yong An, P. Krivosik, M. A. Kraemer, H. M. Olson, Alexey V. Nazarov, and C. E. Patton, *J. Appl. Phys.* **96** (2004).
- [90] Q. A. Pankhurst, N. T. K. Thanh, S. K. Jones and J. Dobson, *J. Phys. D* **42**, 224001 (2009).
- [91] R. Hergt and S. Dutz, *J. Magn. Magn. Mater.* **311**, 187 (2007); R. Hergt, R. Hiergeist, M. Zeisberger, G. Glockl, W. Weitschies, L. P. Ramirez, I. Hilger, and W. A. Kaiser, *J. Magn. Magn. Mater.* **280**, 358 (2004); Y. Xu, M. Mahmood, Z. Li, E. Dervishi, S. Trigwell, V.P. Zharov, N. Ali, V. Saini, A.R. Biris, D. Lupu, D. Boldor, and A.S. Biris, *Nanotechnology* **19**, 435 (2008); B. E. Kashevsky, V. E. Agabekov, S. B. Kashevsky, K. A. Kekalo, E. Yu. Manina, I. V. Prokhorov, and V. S. Ulashchik, *Particuology* **6**, 322 (2008); L. M. Lacroix, R. Bel Malaki, J. Carrey, S. Lachaize, M. Respaud, G. F. Goya, and B. Chaudret, *J. Appl. Phys.* **105**, 023911 (2009); J. Carrey, B. Mehdaoui, and M. Respaud, *J. Appl. Phys.* **109**, 083921 (2011).
- [92] J. P. Fortin, C. Wilhelm, J. Servais, C. Menager, J. C. Bacri, and F. Gazeau, *JACS* **129**, 2628 (2007); J.P. Fortin, F. Gazeau, and C. Wilhelm, *Eur. Biophys. J.* **37**, 223 (2008).
- [93] V. A. Ignatchenko and R. S. Gekht, *Sov. Phys. JETP* **40**, 750 (1975).
- [94] J. J. Lu, J. H. Huang, and I. Klik, *J. Appl. Phys.* **76**, 1726 (1994); V. Franco and A. Conde, *J. Magn. Magn. Mater.* **278**, 28 (2004); C. Tannous and J. Gieraltowski, *Physica B* **403**, 3578 (2008); N. A. Usov and Yu. B. Grebenshchikov, *J. Appl. Phys.* **105**, 043904 (2009).
- [95] N. A. Usov, *J. Appl. Phys.* **106**, 0239117 (2009).
- [96] N. A. Usov and Yu. B. Grebenshchikov, *J. Appl. Phys.* **106**, 023917 (2009).
- [97] Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, and R. Perzynski, *Physica B* **343**, 262 (2004); Yu. L. Raikher and V. I. Stepanov, *J. Magn. Magn. Mater.* **300**, e311 (2006).
- [98] I. S. Poperechny, Yu. L. Raikher, and V. I. Stepanov, *Phys. Rev. B* **82**, 174423 (2010).
- [99] I. S. Poperechny, Yu. L. Raikher, and V. I. Stepanov, *Bull. Russian Acad. Sci.: Physics* **74**, 1443 (2010).

---

## **Chapitre II**

# **Dynamique de l'aimantation en présence d'un champ magnétique oblique**

---

## II.1. Introduction

Dans ce chapitre on va investiguer le comportement du temps de relaxation et la susceptibilité magnétique lorsque les particules sont soumises à un champ magnétique DC oblique  $\mathbf{H}_0$ , en fonction des grandeurs importantes telles que la hauteur de la barrière  $\sigma$ , le paramètre de la biaxialité  $\Delta$  et la constante de dissipation  $\alpha$ . [1-3]

Dans ce chapitre nous étudions l'effet de champ  $\mathbf{H}_0$  sur le temps de relaxation de l'aimantation, et les spectres de la susceptibilité  $\chi(\omega)$ , nous emploierons la méthode des fractions continues. [4,5] pour calculer le temps de renversement de l'aimantation  $\tau$  pour toutes les constantes de dissipation  $\alpha$  en présence de champ. Nous discutons la résonance ferromagnétique FMR et le phénomène de la déplétion [5,6].

## II.2. Méthode numérique

L'anisotropie biaxiale en présence d'un champ  $\mathbf{H}_0$  à la forme suivante [7,8] :

$$\begin{aligned} \beta V = & (\sigma + \Delta) \sin^2 \vartheta - \Delta \sin^2 \vartheta \sin^2 \varphi \\ & - 2h\sigma (\gamma_1 \cos \varphi \sin \vartheta + \gamma_2 \sin \varphi \sin \vartheta + \gamma_3 \cos \vartheta) \end{aligned} \quad (\text{II.1})$$

où  $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$  sont les coefficients directeurs du vecteur champ  $\mathbf{H}_0$ ,  $\xi = \beta M_s H_0$  est le paramètre de champ et  $h = \xi / 2\sigma$ , avec  $\gamma_1 = \sin \psi \cos \phi$ ,  $\gamma_2 = \sin \psi \sin \phi$ ,  $\gamma_3 = \cos \psi$  sont les cosinus directeurs du vecteur  $\mathbf{H}_0$ .

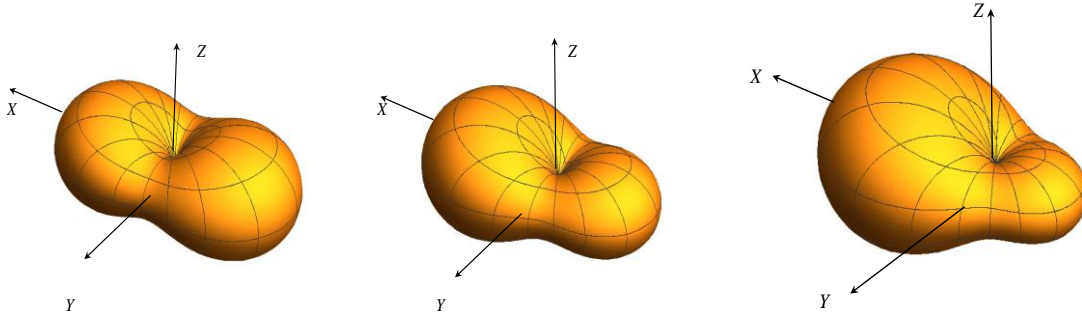


Figure II.1. Effect of the oblique field on the Potential (Eq.5) ( $\Delta = \sigma$   $\psi = \pi / 4$   $\xi = 10^{-6}$  (gauche),  $\xi = 5$  (moyen),  $\xi = 10$  (droite).

On peut calculer numériquement la susceptibilité, le temps de relaxation intégral  $\tau / \tau_N$  et la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1 \tau_N$  [9-11] en se servant de l'équation de Fokker Planck. Pour cela, on effectue la transformation de l'énergie en termes d'harmoniques sphériques :

$$\begin{aligned} \beta V(\vartheta, \varphi) = & -\frac{2}{3} \sqrt{\frac{\pi}{5}} (2\sigma + \Delta) Y_{2,0}(\vartheta, \varphi) + \Delta \sqrt{\frac{2\pi}{15}} [Y_{2,-2}(\vartheta, \varphi) + Y_{2,+2}(\vartheta, \varphi)] \\ & - 2h\sigma \sqrt{\frac{2\pi}{3}} [(\gamma_1 + i\gamma_2) Y_{1,-1}(\vartheta, \varphi) - (\gamma_1 - i\gamma_2) Y_{1,+1}(\vartheta, \varphi) + \sqrt{2} \gamma_3 Y_{1,0}(\vartheta, \varphi)] + \text{Cte.} \end{aligned} \quad (\text{II.2})$$

Dans ce chapitre, tous les calculs numériques ont été effectués pour le cas le plus général, c'est-à-dire quand  $\gamma_1 \neq \gamma_2 \neq \gamma_3$ , toutefois en ce qui concerne le calcul approximatif, nous considérons que le cas où le champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  est dans la direction  $z$ , où  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$  et  $\gamma_3 = 1$ . Compte tenu de l'équation de Fokker Planck, nous obtenons donc une équation différentielle de récurrence [13-15] à vingt et un termes, pour les fonctions de relaxation  $c_{l,m}(t) = \langle Y_{l,m} \rangle(t) - \langle Y_{l,m} \rangle_0$ :

$$\begin{aligned} \tau_N \frac{d}{dt} c_{n,m}(t) = & v_{n,m} c_{n-2,m}(t) + w_{n,m} c_{n-1,m}(t) + x_{n,m} c_{n,m}(t) + y_{n,m} c_{n+1,m}(t) + z_{n,m} c_{n+2,m}(t) \\ & + v_{n,m}^{++} c_{n-2,m+2}(t) + w_{n,m}^{++} c_{n-1,m+2}(t) + x_{n,m}^{++} c_{n,m+2}(t) + y_{n,m}^{++} c_{n+1,m+2}(t) + z_{n,m}^{++} c_{n+2,m+2}(t) \\ & + v_{n,m}^{--} c_{n-2,m-2}(t) + w_{n,m}^{--} c_{n-1,m-2}(t) + x_{n,m}^{--} c_{n,m-2}(t) + y_{n,m}^{--} c_{n+1,m-2} + z_{n,m}^{--} c_{n+2,m-2}(t) \\ & x_{n,m}^- c_{n,m-1}(t) + x_{n,m}^+ c_{n,m+1}(t) + y_{n,m}^- c_{n+1,m-1}(t) \\ & + y_{n,m}^+ c_{n+1,m+1}(t) + w_{n,m}^- c_{n-1,m-1}(t) + w_{n,m}^+ c_{n-1,m+1}(t), \end{aligned} \quad (\text{II.3})$$

où les coefficients  $v_{n,m}^{++}, v_{n,m}^{--}, w_{n,m}^{++}, w_{n,m}^{--}, x_{n,m}^{++}, x_{n,m}^{--}, y_{n,m}^{++}, y_{n,m}^{--}, z_{n,m}^{++}, z_{n,m}^{--}, x_{n,m}^-, x_{n,m}^+, y_{n,m}^-, y_{n,m}^+, w_{n,m}^-, w_{n,m}^+$  sont définis par les équations dans la référence [13,16] et  $x_{n,m}^-, x_{n,m}^+, y_{n,m}^-, y_{n,m}^+, w_{n,m}^-, w_{n,m}^+$  sont donnés par les relations suivantes:

$$x_{n,m} = -\frac{1}{2} \left[ n(n+1) + i \frac{\xi m \gamma_3}{\alpha} \right] + \left( \frac{\Delta}{2} + \sigma \right) \frac{n(n+1) - 3m^2}{(2n-1)(2n+3)},$$

$$x_{n,m}^- = -\left(x_{n,-m}^+\right)^* = -\frac{(i\gamma_1 - \gamma_2)\xi}{4\alpha} \sqrt{(1+n-m)(n+m)},$$

$$y_{n,m} = -\left[ \gamma_3 \xi \frac{n}{2} + i \left( \frac{\Delta}{2} + \sigma \right) \frac{m}{\alpha} \right] \sqrt{\frac{(n+1)^2 - m^2}{(2n+1)(2n+3)}},$$

$$y_{n,m}^- = -\left(y_{n,-m}^+\right)^* = -\frac{n}{4} \xi (\gamma_1 + i\gamma_2) \sqrt{\frac{(1+n-m)(2+n-m)}{(1+2n)(3+2n)}},$$

$$w_{n,m} = \left[ \frac{\gamma_3 \xi (n+1)}{2} - i \left( \frac{\Delta}{2} + \sigma \right) \frac{m}{\alpha} \right] \sqrt{\frac{n^2 - m^2}{4n^2 - 1}},$$

$$w_{n,m}^- = -\left(w_{n,-m}^+\right)^* = -(\gamma_1 + i\gamma_2) \xi \frac{(n+1)}{4} \sqrt{\frac{(n+1)(n+m-1)}{4n^2-1}}.$$

En résolvant l'équation (II.3), on suppose qu'un système de particules superparamagnétiques en présence d'un champ magnétique uniforme  $\mathbf{H}_0$  est soumis à un champ magnétique uniforme faible  $\mathbf{H}_1$  [ $(\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_1) / kT \ll 1$ ] parallèle à  $\mathbf{H}_0$ . Le champ extérieur,  $\mathbf{H}_1$ , doit être suffisamment faible pour que l'effet de la perturbation n'altère pas la nature du système. Ce champ est brusquement supprimé à l'instant  $t = 0$ . Selon la théorie de la réponse linéaire, l'évolution de la moyenne de l'aimantation  $\langle M \rangle(t)$  est donnée par [15]

$$\langle M \rangle(t) - \langle M \rangle_0 = \chi H_1 C(t),$$

où  $C(t)$  est la fonction de relaxation normalisée de la composante de l'aimantation,  $\langle M \rangle_0$  est la valeur de l'aimantation en équilibre en absence de champ  $\mathbf{H}_1$  et  $\chi$  est la susceptibilité statique. La fonction de relaxation normalisée de la composante de l'aimantation est définie comme [16-17] :

$$C(t) = \frac{\gamma_3 c_{1,0}(t) - \sqrt{2} \operatorname{Re}(\gamma_1 - i\gamma_2) c_{1,1}(t)}{\gamma_3 c_{1,0}(0) - \sqrt{2} \operatorname{Re}(\gamma_1 - i\gamma_2) c_{1,1}(0)} \quad (\text{II.4})$$

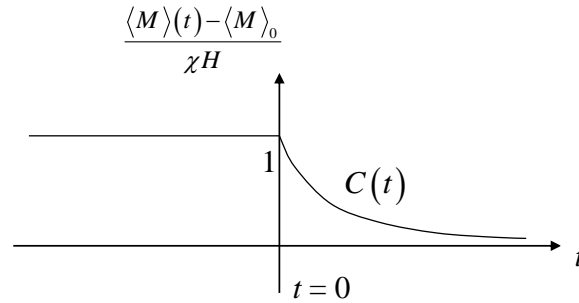


Figure II.2 La relaxation de l'aimantation lorsqu'un faible champ  $\mathbf{H}_1$  est coupé à  $t=0$ .

Le temps de relaxation intégral de l'aimantation a été défini auparavant dans le chapitre I, mais en présence d'un champ oblique, il devient [6]:

$$\tau_{\parallel} = \int_0^{\infty} C_{\parallel}(t) dt = \frac{\sqrt{2} \gamma_3 \tilde{c}_{1,0}(0) - (\gamma_1 - i\gamma_2) \tilde{c}_{1,1}(0) + (\gamma_1 + i\gamma_2) \tilde{c}_{1,-1}(0)}{\sqrt{2} \gamma_3 c_{1,0}(0) - (\gamma_1 - i\gamma_2) c_{1,1}(0) + (\gamma_1 + i\gamma_2) c_{1,-1}(0)} \quad (\text{II.5})$$

On ne peut calculer ce temps de relaxation que si on connaît la transformée de Fourier de  $c_{1,0}(t)$  et  $c_{1,\pm 1}(t)$ . La susceptibilité magnétique est alors [18] :

$$\frac{\chi(\omega)}{\chi} = 1 - i\omega \int_0^{\infty} e^{-i\omega t} C(t) dt = 1 - i\omega C(i\omega) \quad (\text{II.6})$$

où

$$C(i\omega) = \frac{\sqrt{2}\gamma_3 \tilde{c}_{1,0}(i\omega) - (\gamma_1 - i\gamma_2) \tilde{c}_{1,1}(i\omega) + (\gamma_1 + i\gamma_2) \tilde{c}_{1,-1}(i\omega)}{\sqrt{2}\gamma_3 c_{1,0}(0) - (\gamma_1 - i\gamma_2) c_{1,1}(0) + (\gamma_1 + i\gamma_2) c_{1,-1}(0)},$$

et la susceptibilité magnétique statique  $\chi$  est

$$\chi = \frac{M_S}{H_1} \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \left( \gamma_3 c_{1,0}(0) - \sqrt{2} \operatorname{Re}[(\gamma_1 - i\gamma_2) c_{1,1}(0)] \right).$$

Pour caractériser quantitativement le comportement de  $C_{\gamma\gamma'}(t)$ , on introduit formellement deux temps qui sont le temps de *relaxation intégral* (corrélation)  $\tau_\gamma$  et le *temps effectif*  $\tau_\gamma^{ef}$  par les équations suivantes [18]

$$\tau_\gamma = \int_0^{\infty} C_\gamma(t) dt, \quad \tau_\gamma^{ef} = -1/\dot{C}_\gamma(0) \quad (\text{II.7})$$

Ces quantités peuvent être obtenues expérimentalement et jouent un rôle prépondérant dans l'évaluation de la susceptibilité et l'interprétation des spectres. En utilisant les propriétés générales de la transformée de Fourier et les équations, on obtient les expressions des susceptibilités dans les limites des hautes et basses fréquences. Ces limites, qui vont jouer un rôle important dans l'évaluation du spectre de la susceptibilité, sont [18]

$$\frac{\chi_\gamma(\omega)}{\chi_\gamma} \sim \begin{cases} 1 - i\omega \int_0^{\infty} C_\gamma(t) dt + \dots = 1 - i\omega\tau_\gamma + \dots, & \omega \rightarrow 0, \\ \frac{\dot{C}_\gamma(0)}{i\omega} + \dots = -\frac{i}{\omega\tau_\gamma^{ef}} + \dots, & \omega \rightarrow \infty. \end{cases} \quad (\text{II.8})$$

Selon l'équation (II.9), le comportement de la partie imaginaire de la susceptibilité est complètement décrit par le temps de corrélation  $\tau_\gamma$  et le temps effectif  $\tau_\gamma^{ef}$ . Dans ce qui suit, nous allons bien entendu vérifier la validité de ces asymptotes par un calcul exact.

Le temps de relaxation effectif  $\tau^{eff}$  est donné par [18]

$$\tau^{eff} = 2\tau_N \frac{\langle U_1^2 \rangle_0 - \langle U_1 \rangle_0^2}{1 - \langle U_1^2 \rangle_0} \quad (\text{II.9})$$

où  $U_1 = \gamma_1 \cos \varphi \sin \vartheta + \gamma_2 \sin \varphi \sin \vartheta + \gamma_3 \cos \vartheta$ .

L'équation II.3 peut être réduite à une équation différentielle vectorielle de récurrence [19]:

$$\tau_N \frac{d}{dt} \mathbf{C}_n(t) = \mathbf{Q}_n^- \mathbf{C}_{n-1}(t) + \mathbf{Q}_n \mathbf{C}_n(t) + \mathbf{Q}_n^+ \mathbf{C}_{n+1}(t) \quad (\text{II.10})$$

où  $\mathbf{Q}_n^-$ ,  $\mathbf{Q}_n$ ,  $\mathbf{Q}_n^+$  sont les super matrices non commutatives données par :

$$\mathbf{Q}_n = \begin{pmatrix} \mathbf{X}_{2n} & \mathbf{W}_{2n} \\ \mathbf{Y}_{2n-1} & \mathbf{X}_{2n-1} \end{pmatrix}, \mathbf{Q}_n^+ = \begin{pmatrix} \mathbf{Z}_{2n} & \mathbf{Y}_{2n} \\ \mathbf{0} & \mathbf{Z}_{2n-1} \end{pmatrix}, \mathbf{Q}_n^- = \begin{pmatrix} \mathbf{V}_{2n} & \mathbf{0} \\ \mathbf{W}_{2n-1} & \mathbf{V}_{2n-1} \end{pmatrix}, \quad (\text{II.11})$$

et les vecteurs  $\mathbf{C}_n(t)$  sont déterminés comme :

$$\mathbf{C}_0(t) = \mathbf{0}, \quad \mathbf{C}_1(t) = \begin{pmatrix} c_{2,-2}(t) \\ c_{2,-1}(t) \\ c_{2,0}(t) \\ c_{2,1}(t) \\ c_{2,2}(t) \\ c_{1,-1}(t) \\ c_{1,0}(t) \\ c_{1,1}(t) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C}_n(t) = \begin{pmatrix} c_{2n,-2n}(t) \\ \vdots \\ c_{2n,2n}(t) \\ c_{2n-1,-2n+1}(t) \\ \vdots \\ c_{2n-1,2n-1}(t) \end{pmatrix}, \quad (n \geq 2) \quad (\text{II.12})$$

Les matrices  $\mathbf{V}_l$ ,  $\mathbf{W}_l$ ,  $\mathbf{X}_l$ ,  $\mathbf{Y}_l$  et  $\mathbf{Z}_l$  de dimension  $(2l+1) \times (2l-3)$ ,  $(2l+1) \times (2l-1)$ ,  $(2l+1) \times (2l+1)$ ,  $(2l+1) \times (2l+3)$  et  $(2l+1) \times (2l+5)$ , respectivement, sont :

$$\mathbf{V}_l = \begin{pmatrix} v_{l,l}^{++} & 0 & \dots & 0 & 0 \\ 0 & v_{l,l+1}^{++} & 0 & \dots & \cdot \\ v_{l,l+2}^- & 0 & \cdot & \cdot & \cdot \\ 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ v_{l,l+4}^{--} & 0 & \cdot & \cdot & v_{l,l-4}^{++} \\ \cdot & v_{l,l+4}^{--} & \cdot & \cdot & 0 \\ 0 & \cdot & \cdot & \cdot & v_{l,l-2}^- \\ \cdot & 0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 0 & \dots & 0 & v_{l,l}^{--} \end{pmatrix}_{(2l+1) \times (2l-3)},$$

$$\mathbf{W}_l = \begin{pmatrix} w_{l,-l}^+ & w_{l,-l}^{++} & 0 & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ w_{l,-l+1}^- & w_{l,-l}^+ & w_{l,-l+1}^{++} & 0 & 0 & 0 & \cdot \\ w_{l,-l+2}^- & w_{l,-l+2}^- & & \cdot & \cdot & 0 & \cdot \\ w_{l,-l+3}^{--} & w_{l,-l+3}^- & w_{l,-l+3}^- & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ \cdot & w_{l,-l+4}^{--} & w_{l,-l+4}^- & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ \cdot & \cdot & w_{l,-l+5}^{--} & \cdot & \cdot & \cdot & w_{l,l-3}^{++} \\ \cdot & 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & w_{l,l-2}^+ \\ 0 & 0 & \cdot & 0 & \cdot & w_{l,-l}^- & w_{l,l-1} \\ 0 & \cdot & \cdot & 0 & 0 & w_{l,l}^{--} & w_{l,l}^{--} \end{pmatrix}_{(2l+1) \times (2l-1)},$$

$$\mathbf{X}_l = \begin{pmatrix} x_{l,-l} & x_{l,-l}^+ & x_{l,-l}^{++} & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ x_{l,-l+1}^- & x_{l,-l+1} & x_{l,-l+1}^+ & x_{l,-l+1}^{++} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ x_{l,-l+2}^{--} & x_{l,-l+2}^- & x_{l,-l+2}^- & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ 0 & x_{l,-l+3}^{--} & x_{l,-l+3}^- & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ \cdot & \cdot & x_{l,-l+4}^{--} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & x_{l,l+1}^{++} \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & x_{l,l-1} & x_{l,l+1}^+ \\ 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & x_{l,l}^{--} & x_{l,l}^- & x_{l,l} \end{pmatrix}_{(2l+1) \times (2l+1)},$$

$$\mathbf{Y}_l = \begin{pmatrix} y_{l,-l}^- & y_{l,-l} & y_{l,-l}^+ & y_{l,-l}^{++} & 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ y_{l,-l+1}^{--} & y_{l,-l+1}^- & y_{l,-l} & y_{l,-l+1}^+ & y_{l,-l+1}^{++} & \cdot & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ 0 & y_{l,-l+2}^{--} & y_{l,-l+2}^- & x_{l,-l} & y_{l,-l+2}^+ & y_{l,-l+2}^{++} & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ 0 & 0 & y_{l,-l+3}^{--} & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot \\ 0 & 0 & 0 & y_{l,-l+4}^{--} & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & y_{l,l-2}^{++} & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \cdot & \cdot & y_{l,l-1}^- & \cdot & y_{l,l-1}^+ & y_{l,l-1}^{++} \\ 0 & 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & y_{l,l}^{--} & y_{l,l}^- & y_{l,l} & y_{l,l}^+ \end{pmatrix}_{(2l+1) \times (2l+3)}$$

,

$$\mathbf{Z}_l = \begin{pmatrix} z_{l,-l}^{--} & 0 & z_{l,-l} & 0 & z_{l,-l}^{++} & 0 & 0 & 0 & 0 & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ 0 & z_{l,-l+1}^{--} & 0 & z_{l,-l+1} & 0 & z_{l,-l+1}^{++} & 0 & 0 & 0 & 0 & \cdot & \cdot & 0 \\ 0 & 0 & z_{l,-l+2}^{--} & 0 & z_{l,-l+2} & 0 & z_{l,-l+2}^{++} & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \cdot \\ 0 & 0 & 0 & \cdot & 0 & z_{l,-l+3} & 0 & \cdot & 0 & \cdot & \cdot & 0 & \cdot \\ \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 \\ 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \cdot & 0 & 0 \\ \cdot & \cdot & 0 & 0 & \cdot & 0 & 0 & z_{l,l-1}^{--} & \cdot & \cdot & 0 & z_{l,l-1}^{++} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \cdot & 0 & \cdot & 0 & 0 & z_{l,l}^{--} & 0 & z_{l,l} & 0 & z_{l,l}^{++} \end{pmatrix}_{(2l+1) \times (2l+5)}$$

Nous avons vu que la solution exacte de l'équation Matricielle pour la transformée de

Fourier-Laplace suivante :

$$\tilde{\mathbf{C}}_1(i\omega) = \int_0^{\infty} \mathbf{C}_1(t) e^{-i\omega t} dt = \begin{pmatrix} \tilde{c}_{2,-2}(i\omega) \\ \tilde{c}_{2,-1}(i\omega) \\ \tilde{c}_{2,0}(i\omega) \\ \tilde{c}_{2,1}(i\omega) \\ \tilde{c}_{2,2}(i\omega) \\ \tilde{c}_{1,-1}(i\omega) \\ \tilde{c}_{1,0}(i\omega) \\ \tilde{c}_{1,1}(i\omega) \end{pmatrix}$$

est de la forme de l'équation :

$$\tilde{\mathbf{C}}_1(i\omega) = \tau_N \mathbf{\Delta}_1(i\omega) \left\{ \mathbf{C}_1(0) + \sum_{n=2}^{\infty} \left[ \prod_{k=2}^n \mathbf{Q}_{k-1}^+ \mathbf{\Delta}_k(i\omega) \right] \mathbf{C}_n(0) \right\}, \quad (\text{II.13})$$

où les fractions continues de matrices  $\mathbf{\Delta}_n(s)$  sont présentée dans la référence [10].

Les vecteurs initiaux  $\mathbf{C}_n(0)$  peuvent être aussi évalués en termes de fractions continues  $\mathbf{\Delta}_n(s)$ . Les valeurs initiales  $c_{n,m}(0)$  dans les  $\mathbf{C}_n(0)$  sont

$$\begin{aligned} c_{n,m}(0) &= \frac{\int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} Y_{l,m}(\vartheta, \varphi) W_0(\vartheta, \varphi) e^{\xi_1(\gamma_1 \cos \varphi \sin \vartheta + \gamma_2 \sin \varphi \sin \vartheta + \gamma_3 \cos \vartheta)} \sin \vartheta d\vartheta d\varphi}{\int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} W_0(\vartheta, \varphi) e^{\xi_1(\gamma_1 \cos \varphi \sin \vartheta + \gamma_2 \sin \varphi \sin \vartheta + \gamma_3 \cos \vartheta)} \sin \vartheta d\vartheta d\varphi} - \langle Y_{l,m} \rangle_0 \\ &\approx \xi \left\{ \frac{\gamma_1 + i\gamma_2}{2} \left[ \sqrt{\frac{(n-m+2)(n-m+1)}{(2n+1)(2n+3)}} \langle Y_{n+1,m-1} \rangle_0 - \sqrt{\frac{(n+m)(n+m-1)}{(2n-1)(2n+1)}} \langle Y_{n-1,m-1} \rangle_0 \right] \right. \\ &+ \frac{\gamma_1 - i\gamma_2}{2} \left[ \sqrt{\frac{(n-m)(n-m-1)}{(2n+1)(2n-1)}} \langle Y_{n-1,m+1} \rangle_0 - \sqrt{\frac{(n+m+2)(n+m+1)}{(2n+3)(2n+1)}} \langle Y_{n+1,m+1} \rangle_0 \right] \\ &+ \gamma_3 \left[ \sqrt{\frac{(n-m+1)(n+m+1)}{(2n+3)(2n+1)}} \langle Y_{n+1,m} \rangle_0 + \sqrt{\frac{n^2 - m^2}{(2n-1)(2n+1)}} \langle Y_{n-1,m} \rangle_0 \right] \\ &\left. - \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \langle Y_{n,m} \rangle_0 \left[ \gamma_3 \langle Y_{1,0} \rangle_0 - \sqrt{2} \operatorname{Re} \left\{ (\gamma_1 - i\gamma_2) \langle Y_{1,1} \rangle_0 \right\} \right] \right\} \end{aligned} \quad (\text{II.14})$$

avec  $\xi_1 = vM_s H_1 / kT$  et  $W_0(\vartheta, \varphi) = Z^{-1} e^{-\beta V}$  est la distribution de Maxwell-Boltzmann. Pour l'anisotropie biaxiale, les moyennes des harmoniques à l'équilibre  $\langle Y_{n,m} \rangle_0$  vérifient l'équation de récurrence suivante:

$$\begin{aligned} &v_{n,m} \langle Y_{n-2,m} \rangle_0 + w_{n,m} \langle Y_{n-1,m} \rangle_0 + x_{n,m} \langle Y_{n,m} \rangle_0 + y_{n,m} \langle Y_{n+1,m} \rangle_0 + z_{n,m} \langle Y_{n+2,m} \rangle_0 \\ &+ v_{n,m}^{++} \langle Y_{n-2,m+2} \rangle_0 + w_{n,m}^{++} \langle Y_{n-1,m+2} \rangle_0 + x_{n,m}^{++} \langle Y_{n,m+2} \rangle_0 + y_{n,m}^{++} \langle Y_{n+1,m+2} \rangle_0 + z_{n,m}^{++} \langle Y_{n+2,m+2} \rangle_0 \\ &+ v_{n,m}^{--} \langle Y_{n-2,m-2} \rangle_0 + w_{n,m}^{--} \langle Y_{n-1,m-2} \rangle_0 + x_{n,m}^{--} \langle Y_{n,m-2} \rangle_0 + y_{n,m}^{--} \langle Y_{n+1,m-2} \rangle_0 + z_{n,m}^{--} \langle Y_{n+2,m-2} \rangle_0 \\ &+ x_{n,m}^- \langle Y_{n,m-1} \rangle_0 + x_{n,m}^+ \langle Y_{n,m+1} \rangle_0 + y_{n,m}^- \langle Y_{n+1,m-1} \rangle_0 + y_{n,m}^+ \langle Y_{n+1,m+1} \rangle_0 \\ &+ w_{n,m}^- \langle Y_{n-1,m-1} \rangle_0 + w_{n,m}^+ \langle Y_{n-1,m+1} \rangle_0 = 0. \end{aligned} \quad (\text{II.15})$$

L'équation (II.16) peut être transformée en une équation tridiagonale vectorielle

$$\mathbf{Q}_n^- \mathbf{R}_{n-1} + \mathbf{Q}_n \mathbf{R}_n + \mathbf{Q}_n^+ \mathbf{R}_{n+1} = \mathbf{0}, \quad (n \geq 1), \quad (\text{II.16})$$

avec

$$\mathbf{R}_0 = 1/\sqrt{4\pi} \quad \text{et} \quad \mathbf{R}_n = \begin{pmatrix} \langle Y_{2n,-2n} \rangle_0 \\ \vdots \\ \langle Y_{2n,2n} \rangle_0 \\ \langle Y_{2n-1,-2n+1} \rangle_0 \\ \vdots \\ \langle Y_{2n-1,2n-1} \rangle_0 \end{pmatrix}, \quad n \geq 1.$$

Comme l'avons expliqué dans le chapitre I, l'équation (II.16) admet comme solution [6]

$$\mathbf{R}_n = \mathbf{S}_n \mathbf{R}_{n-1} = \mathbf{S}_n \mathbf{S}_{n-1} \dots \mathbf{S}_2 \mathbf{S}_1 / \sqrt{4\pi} \quad (\text{II.17})$$

où  $\mathbf{S}_n = \Delta_n(0) \mathbf{Q}_n^-$  sont les fractions continues matricielles définies par l'équation de récurrence

$$\mathbf{S}_n = \left[ -\mathbf{Q}_n - \mathbf{Q}_n^+ \mathbf{S}_{n+1} \right]^{-1} \mathbf{Q}_n^- \quad (\text{II.18})$$

Selon l'équation (II.16) et l'équation(II.17), les vecteurs initiaux  $\mathbf{C}_n(0)$  sont

$$\mathbf{C}_n(0) = \frac{\xi_1}{\sqrt{4\pi}} \left[ \mathbf{K}_n + \left[ \mathbf{K}_n + \mathbf{K}_{n+1}^H \mathbf{S}_{n+1} \right] \mathbf{S}_n \right] \mathbf{S}_{n-1} \dots \mathbf{S}_1 \quad (\text{II.19})$$

avec

$$\mathbf{C}_1(0) = \frac{\xi_1}{\sqrt{4\pi}} \left\{ \mathbf{K}_1 + \left[ \mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2^H \mathbf{S}_2 \right] \mathbf{S}_1 \right\} \quad (\text{II.20})$$

où

$$\mathbf{K}_n = \begin{bmatrix} \mathbf{F}_{2n} & \mathbf{D}_{2n} \\ \mathbf{D}_{2n}^H & \mathbf{F}_{2n-1} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{K}_n = \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{D}_{2n-1} & \mathbf{0} \end{bmatrix}.$$

$H$  désigne la matrice hermitique conjuguée, c'est-à-dire, transposée et complexe conjuguée. On note que la matrice  $\mathbf{K}_1$  est réduite à :

$$\mathbf{K}_1 = \begin{pmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{D}_1 \end{pmatrix}.$$

Les matrices  $\mathbf{K}_n$  et  $\mathbf{K}_n$  sont constituées de deux types de sous matrices :

$$\mathbf{F}_l = -\sqrt{\frac{4\pi}{3}} \operatorname{Re} \left[ \gamma_3 \langle Y_{1,0} \rangle_0 - \sqrt{2}(\gamma_1 - i\gamma_2) \langle Y_{1,1} \rangle_0 \right] \mathbf{I},$$

$$\mathbf{D}_l = \begin{bmatrix} d_{l,-l}^+ & 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ d_{l,-l+1} & d_{l,-l+1}^+ & \cdot & 0 & \cdot & 0 & 0 \\ d_{l,-l+2}^- & d_{l,-l+2} & d_{l,-l+2}^+ & \cdot & & & \\ 0 & d_{l,-l+3}^- & d_{l,-l+3} & \cdot & \cdot & & \\ 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \\ 0 & 0 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ \cdot & 0 & 0 & \cdot & \cdot & d_{l,l-2} & d_{l,l-2}^+ \\ \cdot & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{l,l-1}^- & d_{l,l-1} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{l,l}^- \end{bmatrix}_{(2l+1) \times (2l-1)}, \quad (\text{II.21})$$

avec

$$d_{n,m} = \gamma_3 \sqrt{\frac{n^2 - m^2}{4n^2 - 1}},$$

$$d_{n,-m}^- = -(d_{n,m}^+)^* = -\frac{1}{2}(\gamma_1 + i\gamma_2) \sqrt{\frac{(n+m-1)(n+m)}{4n^2 - 1}}.$$

La dimension de la matrice  $\mathbf{D}_l$  est  $(2l+1) \times (2l-1)$ . L'équation (II.20) qui donne la solution exacte sous forme de fractions continues matricielles, est très importante dans la programmation. Toutes les fractions continues et les séries convergent rapidement : dans la majorité des cas, 10 à 20 itérations sont suffisantes dans les calculs pour obtenir une bonne convergence et donc une stabilisation des calculs.

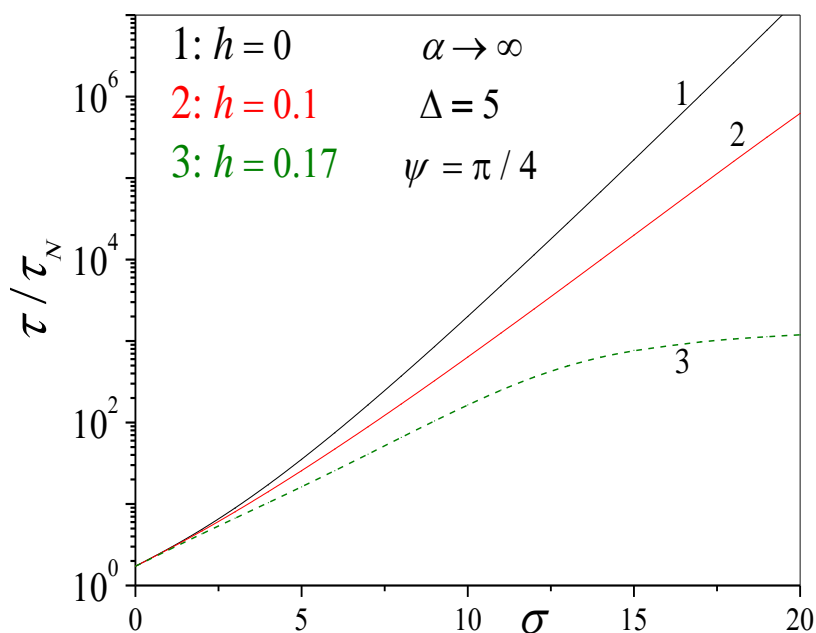
## II. 3 Résultats

### II.3.1 Temps de relaxation

Dans les figures II.3, II.4 sont représentées les évolutions de  $\lambda_1 \tau_N$  en fonction de la barrière  $\sigma$  et du champs respectivement pour différentes valeurs de,  $\Delta$  et  $\alpha$ . Dans les deux cas,  $\lambda_1 \tau_N$  dépend fortement de ces deux paramètres et la dépendance devient nettement évidente à haute barrière. En revanche, dans l'intervalle  $0 \leq \sigma \leq 2$  les résultats obtenus sont très proche et les courbes se superposent. Dans la figure II.6, et pour la comparaison, nous avons tracé  $\lambda_1 \tau_N$  en fonction de l'angle d'orientation de champ magnétique oblique calculé pour différente valeur

du champs , notons que les pointillé indique ( $h = 0$ ), Il est important d'affirmer que l'effet de champ a une influence directe sur  $\lambda_1\tau_N$ , l'augmentation du paramètre du champ  $h$  fait diminuer le temps de renversement de l'aimantation (voir figure II.4, 5). Un résultat important de ces calculs est que le champ extérieur joue un rôle important et influence fortement la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1\tau_N$ .

Dans les figure II.3, II.4 le temps de relaxation intégral  $\tau / \tau_N$  et le temps  $(\lambda_1\tau_N)^{-1}$ . En l'absence de champ,  $h = 0$  et pour un champ très faible,  $h = 0,1$ , il y a un très bon accord entre  $\tau / \tau_N$  et  $(\lambda_1\tau_N)^{-1}$ . En augmentant la valeur du champ, une divergence surgit entre ces deux grandeurs. On peut l'expliquer ainsi: en absence de champ  $\mathbf{H}_0$ , l'évolution de  $\tau / \tau_N$  en fonction de la barrière est de type Arrhenius. Seulement, une fois les particules superparamagnétiques soumises à un champ magnétique, on remarque qu'il existe une valeur critique de  $h = h_c$  pour laquelle l'évolution de  $\tau / \tau_N$  n'est plus exponentielle. Un nouvel effet est donc entré en jeu pour une valeur critique de  $h_c$ .



**Figure II.3.**  $\tau / \tau_N$  en fonction  $\sigma$  pour  $h = 0, 0,1, 0,17$  pour  $\alpha = \infty, \Delta = 5$ .

L'explication est la suivante : dans la limite des basses températures le processus de relaxation n'est plus dominé par les modes lents associés à la barrière aux valeurs de  $h_c$ . Ce phénomène a été découvert (numériquement) pour les particules uniaxiales par Coffey *et al.* [21] et expliqué par Garanin [21]. Ce dernier a montré que cet effet est la conséquence naturelle de la déplétion de population du puits le moins profond. Ainsi aux basses températures, les modes rapides commencent à être dominants dans le processus de relaxation.

Selon l'équation, le temps de relaxation  $\tau / \tau_N$

$$\tau \approx (1 - \Delta_1)\tau_W + \Delta_1 \lambda_1^{-1} \quad (\text{II.22})$$

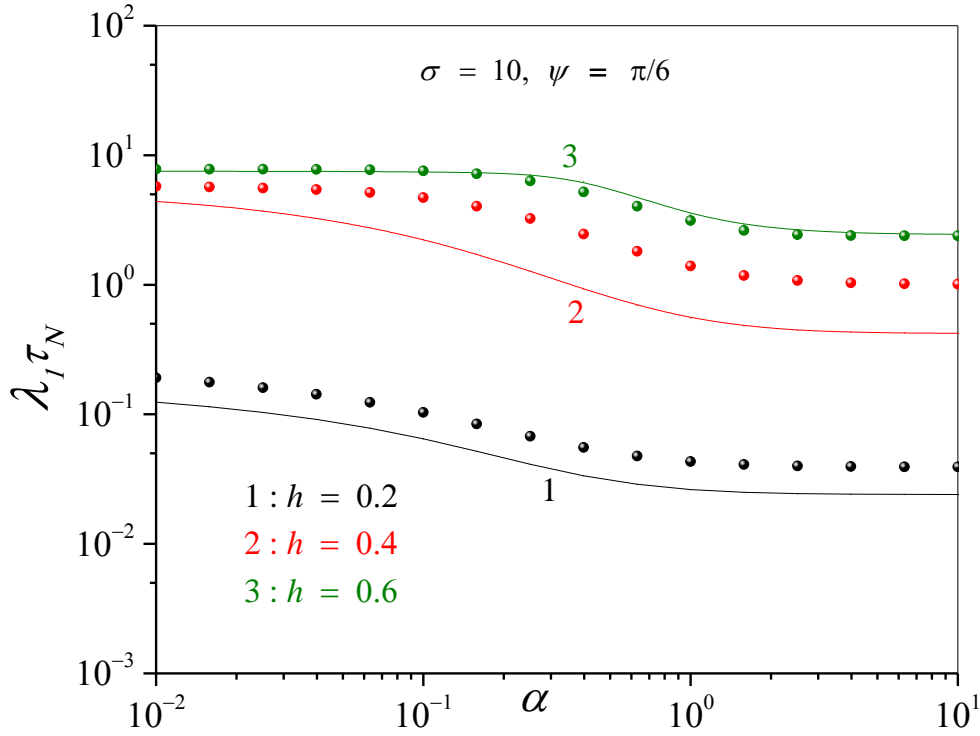
où le temps de relaxation au fond du puits le plus profond  $\tau_W$  s'écrit comme

$$\tau_W \sim \omega_{well}^{-1} = \tau_N / 2\sigma \left( h + \sqrt{1 + \delta} \right), \quad (\text{II.23})$$

avec  $\omega_{well} = \frac{\gamma}{M_S} \sqrt{\frac{\partial^2 V}{\partial u_1^2} \frac{\partial^2 V}{\partial u_2^2}}$ . Le temps  $\tau_W$  a une faible dépendance avec la température. La plus petite valeur propre de l'équation de Fokker-Planck  $\lambda_1$  a une dépendance de type Arrhenius (exponentielle) en fonction de la température tel que  $\lambda_1^{-1} \sim e^{\beta(V_0 - V_2)}$ . On estime  $\Delta_1$  comme suit  $\Delta_1 \sim e^{\beta(V_1 - V_2)} \ll 1$  [49]. Ainsi

$$\Delta_1 \lambda_1^{-1} \sim e^{\beta(V_0 + V_1 - 2V_2)} = e^{\sigma(1 - 6h + h^2)}. \quad (\text{II.24})$$

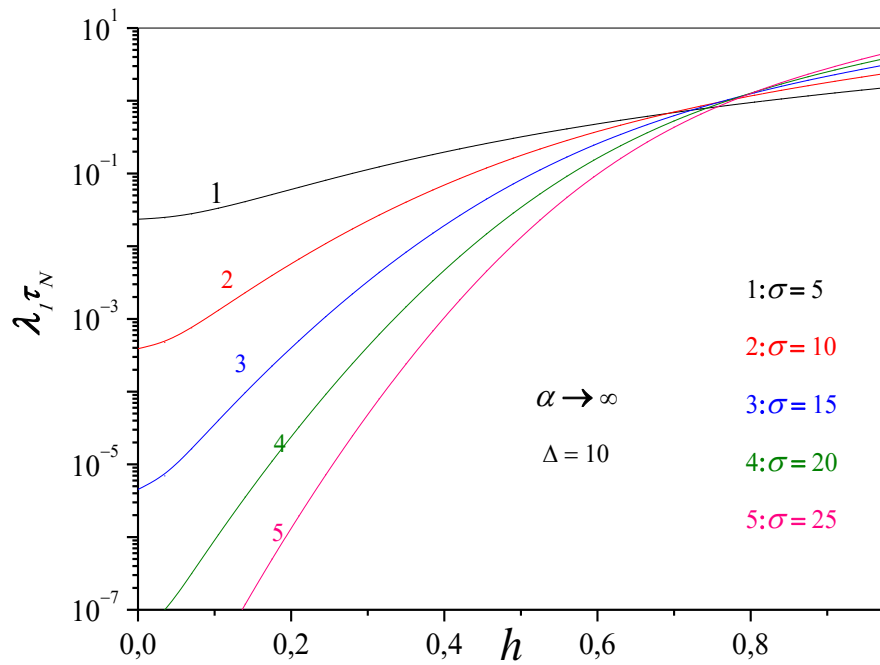
On peut constater que l'argument de l'exponentielle  $\sigma(1 - 6h + h^2)$  est susceptible de changer de signe pour une valeur critique de  $h = h_c \approx 0,17$ . Ainsi si  $h < h_c$  la quantité  $\Delta_1 \lambda_1^{-1}$  augmente exponentiellement quand la température diminue et elle détermine complètement la dépendance, envers la température, du temps de relaxation ; d'autre part, si  $h > h_c$ , la quantité  $\Delta_1 \lambda_1^{-1}$  diminue exponentiellement avec la diminution de la température et le comportement de  $\tau / \tau_N$  est déterminé par le temps  $\tau_W$ . Ce qui mène à dire que le temps de relaxation intégral  $\tau$  n'a pas une allure exponentielle. On remarque que la valeur critique de  $h_c \approx 0,17$  coïncide avec celle trouvée par Garanin dans le cas uniaxe. L'explication de cette coïncidence est simple : l'énergie d'anisotropie biaxiale pour  $\varphi = \pi/2$  (où se trouvent les points de selle) coïncide avec l'anisotropie uniaxiale.



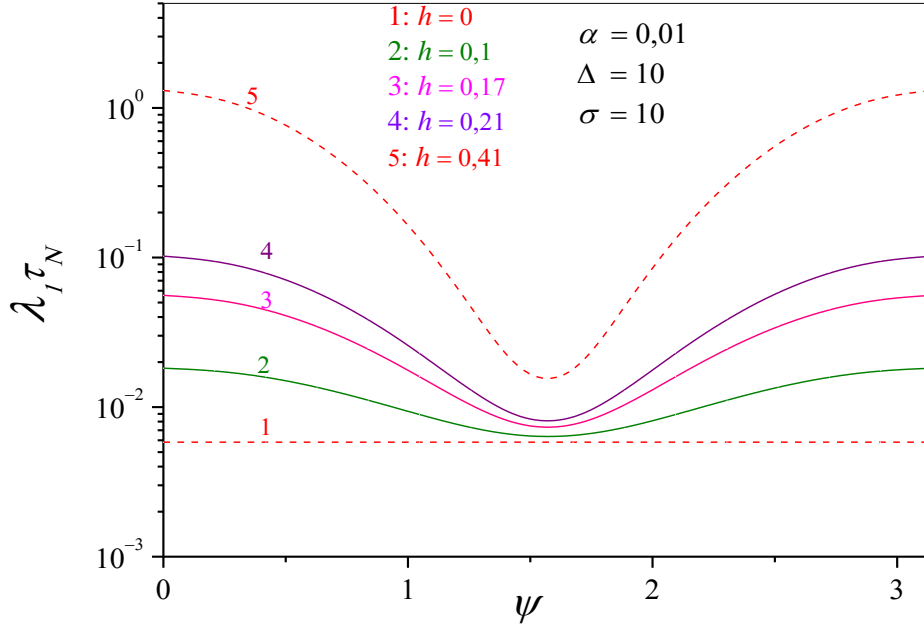
**Figure II.4.**  $\lambda_1\tau_N$  en fonction de  $\alpha$  pour  $h = 0.2, 0.4, 0.6$ , et pour,  $\Delta = 10, \sigma = 10$

Les figures II.4 montrent le comportement de la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1\tau_N$  normalisé en fonction de la constante de dissipation  $\alpha$  pour différentes valeurs du paramètre du champ  $h = 0.2, 0.4, 0.6$  pour  $\Delta = 10$ . Il existe un accord convenable entre le calcul numérique et l'équation, ce qui valide l'approche de ouari *et al.* [21] et sa capacité à calculer le temps de relaxation et la plus petite valeur propre de l'opérateur propre de Fokker-Planck pour toutes les valeurs de  $\alpha$ . Dans le régime intermédiaire high damping IHD ( $\alpha \geq 1$ ), nous avons testé l'équation avec nos calculs numériques. Nous avons pu démontrer que l'équation décrit bien le temps de renversement de l'aimantation dans le régime IHD ( $\alpha \geq 1$ ). Nous avons tracé la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck en fonction du paramètre du champ  $h$  (figures II.5) pour cinq valeurs de la barrière  $\sigma = 5, 10, 15, 20, 25$  et en fonction de l'angle d'orientation du champ (figures II.6). Le calcul numérique est en accord

avec l'équation de ouari et  $al$  [21] pour  $\sigma \geq 2$ . Il est important de noter que l'équation estime le temps de relaxation uniquement pour  $\alpha \geq 1$ .



**Figure II.5.**  $\lambda_1 \tau_N$  en fonction de  $h$  pour  $\sigma = 5, 10, 15, 20$  et  $25$  et pour  $\alpha = \infty, \Delta = 10$ .



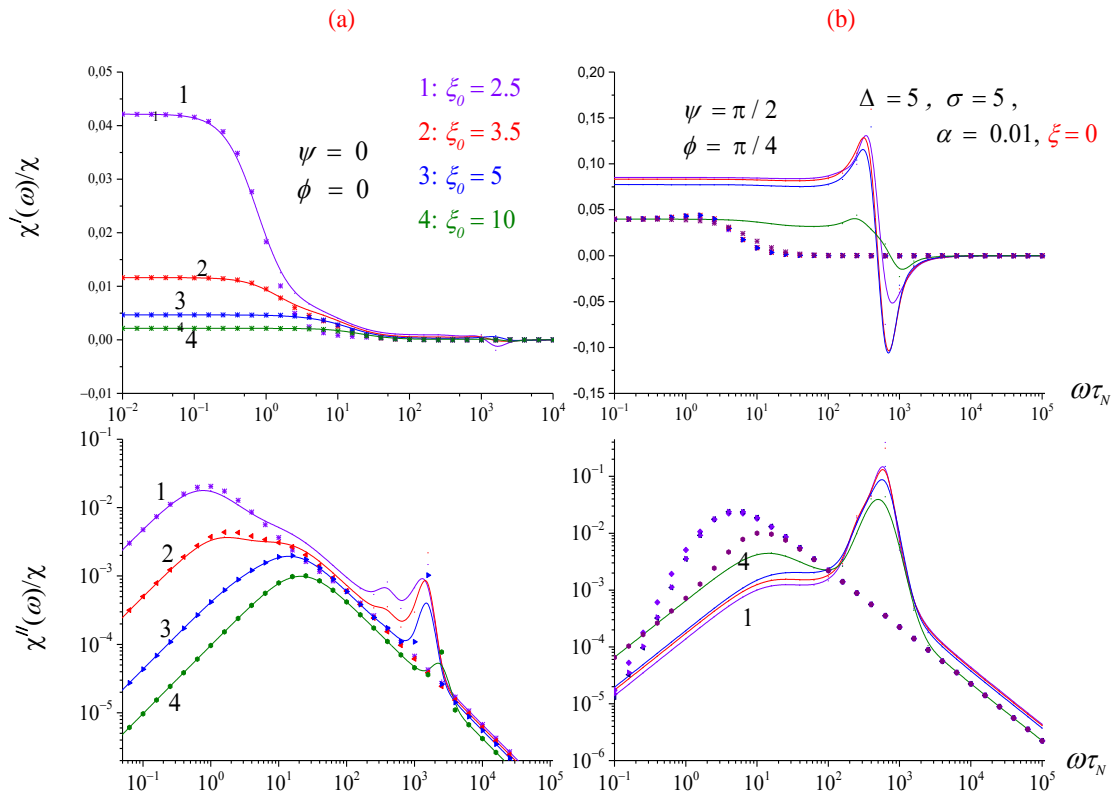
**Figure II.6.**  $\lambda_1\tau_N$  en fonction de l'angle d'orientation  $\psi$  du champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  pour  $h = 0, 0,1, 0,17, 0,21$  et  $0,41$  ;  $\alpha = 0,01$ ,  $\Delta = 10$  et  $\sigma = 10$ .

La figure II.6 décrit le comportement de la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck normalisé  $\lambda_1\tau_N$  en fonction de l'angle d'orientation  $\psi$  du champ magnétique  $\mathbf{H}_0 = (H_0 \sin \psi, 0, H_0 \cos \psi)$  par rapport à l'axe des  $z$ . Nous avons fait varier ce champ tel que  $h = 0,1, 0,17, 0,41$  pour une constante de dissipation  $\alpha = 0,01$  et  $\Delta = \sigma = 10$ . Vu la figure II.6 et compte tenu de la symétrie du problème, il est judicieux de discuter  $\lambda_1\tau_N$  dans l'intervalle de  $0^\circ$  à  $90^\circ$ .  $\lambda_1\tau_N$  est minimum à  $\psi = \pi/2$  et maximum à  $\psi = 0$  et  $\pi$ .

### II.3.2 Evaluations des spectres de la susceptibilité

Nous avons calculé cette susceptibilité magnétique pour toutes les directions du champ magnétique et nous avons tracé les spectres de la susceptibilité pour différentes de grandeurs comme le paramètre de champ  $h$ , la barrière  $\sigma$ , et la dissipation  $\alpha$ . Dans la figure II.7, nous avons tracé la partie imaginaire et la partie réelle de la susceptibilité magnétique, l'équation II.6, en fonction de la pulsation  $\omega\tau_N$  pour  $\zeta = 2,5, 3,5, 5$  et  $10$  et pour  $\Delta = 5, \sigma = 5$  et  $\alpha = 0,01$ .

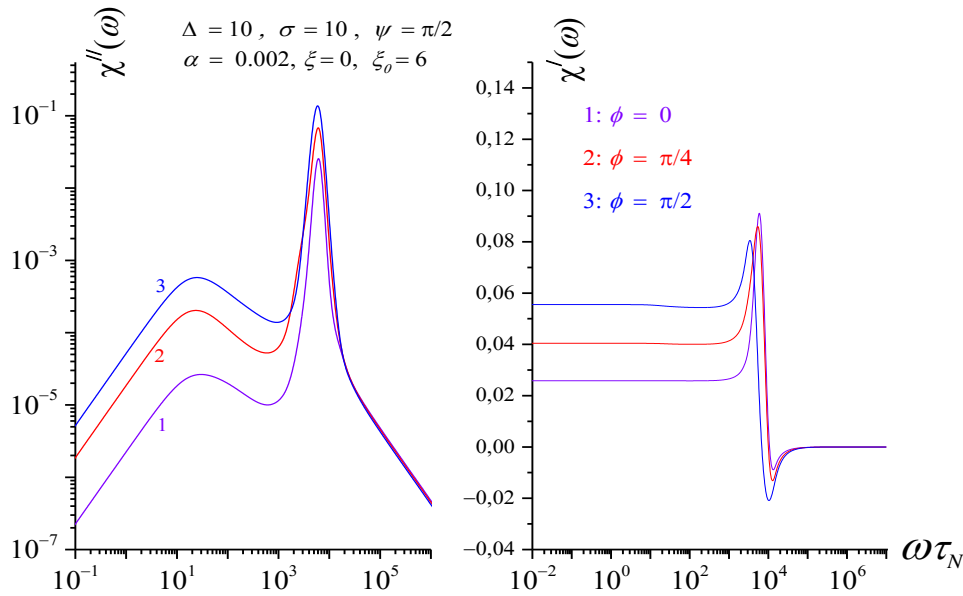
Pour la valeur du paramètre de champ  $\xi = 10$ , le spectre a deux pics. Le pic dans le domaine des basses fréquences se manifeste à cause du renversement de l'aimantation. Ce pic est gouverné par la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1$ . La fréquence fondamentale  $\omega_1$  de ce pic et sa demi-largeur  $\Delta\omega_1$  sont évaluée par  $\lambda_1 \approx \tau^{-1}$ , où  $\tau$  est le temps de relaxation de l'aimantation donné par l'équation II.22. Le deuxième pic dans les hautes fréquences est la manifestation de la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ .



**Figure II.7.** La partie imaginaire et Réelle de la susceptibilité linéaire  $\chi(\omega)/\chi$  en fonction de la fréquence  $\omega\tau_N$  pour différentes valeurs du champ Dc  $\xi_0 = 2.5, 3.5, 5, 10$ , et (a)  $\psi = 0, \phi = 0$ , (b)  $\psi = \pi/2, \phi = \pi/4$ , avec les paramètres  $\sigma = \Delta = 5$ , le champ ac  $\xi \sim 0$ . Les lignes: calcul numérique. asterisks: solution analytique [14].

Nous avons donc constaté un bon accord entre les calculs numériques et analytiques basés sur l'équation analytique de Ouari et al., cette équation décrit convenablement bien les spectres dans les basses et moyennes fréquences.

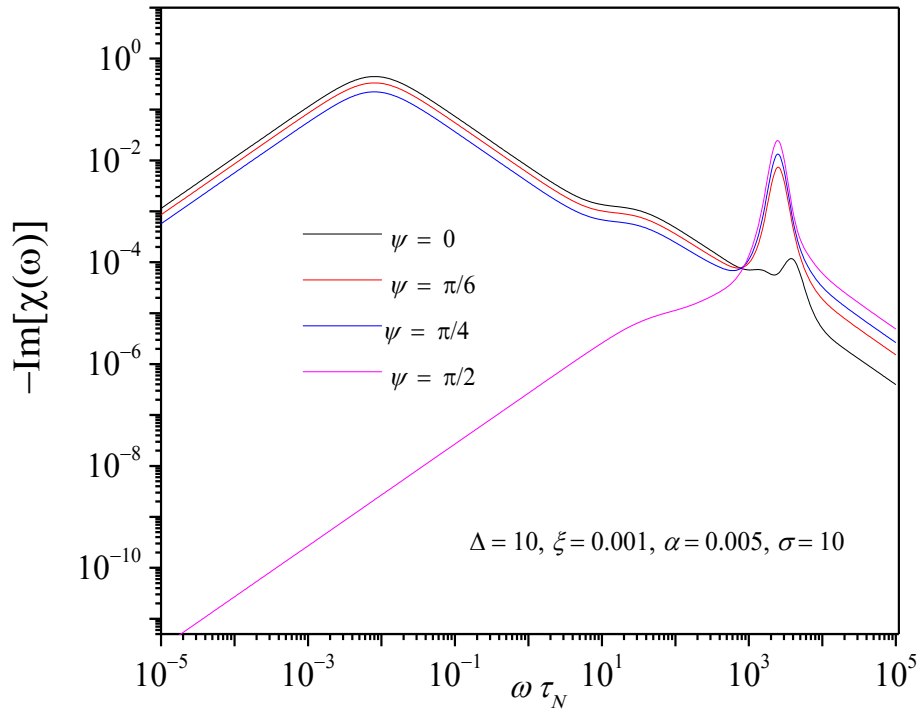
Dans la figure II.8, nous avons tracé la partie imaginaire et la partie réelle de la susceptibilité magnétique, l'équation II.6, en fonction de la pulsation  $\omega\tau_N$  pour  $\phi = 0, \pi/4, \pi/2$   $\xi_0 = 6$ , et  $\psi = \pi/2$  pour  $\Delta = 10, \sigma = 10$  et  $\alpha = 0.002$ . Le pic dans le domaine des basses fréquences se manifeste à cause du renversement de l'aimantation. Ce pic est gouverné par la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1$ . Le deuxième pic dans les hautes fréquences est beaucoup plus important que celui de la figure II.7 à cause de la manifestation de la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . La taille du pic est inversement proportionnelle à la dissipation  $\alpha$ .



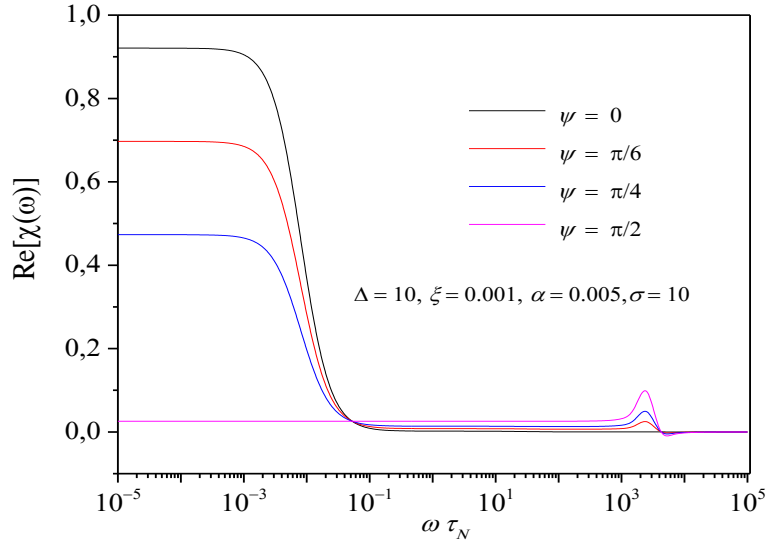
**Figure II.8.** La partie imaginaire et Réelle de la susceptibilité linéaire  $\chi(\omega)/\chi$  en fonction de la fréquence normalisée  $\omega\tau_N$  for various pour différentes valeur de l'orientation du champs  $\phi = 0, \pi/4, \pi/2$  champ Dc  $\xi_0 = 6$ ,  $\sigma = \Delta = 10$  champ ac  $\xi \sim 0$ . lines: le calcul numérique

Dans les figures II.9 et II.10, nous avons pris pour la constante de dissipation  $\alpha = 0,005$  et nous avons tracé les spectres pour  $\xi = 0,001$  et  $\sigma = 10, \Delta = 10$ . Pour différentes valeur de l'angle d'orientation du champ magnétique. Il existe trois pics de taille différente. Les deux pics caractérisés par la fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$  apparaissent à cause du renversement de l'aimantation

$\mathbf{M}$  et des oscillations de  $\mathbf{M}$  au fond des puits. Le troisième pic est dû la résonance ferromagnétique, FMR. Ce pic résulte du couplage entre les modes transversaux et les modes longitudinaux. La FMR se manifeste aux hautes fréquences et elle est due à la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ .



**Figure II.9.**  $-\text{Im}[\chi(\omega)]$  en fonction de  $\omega \tau_N$  pour  $\psi = 0, \pi/6, \pi/4, \pi/2$  pour  $\Delta = 10$ , et et pour  $\xi = 0.001$ ,  $\sigma = 10$  et  $\alpha = 0.005$ .

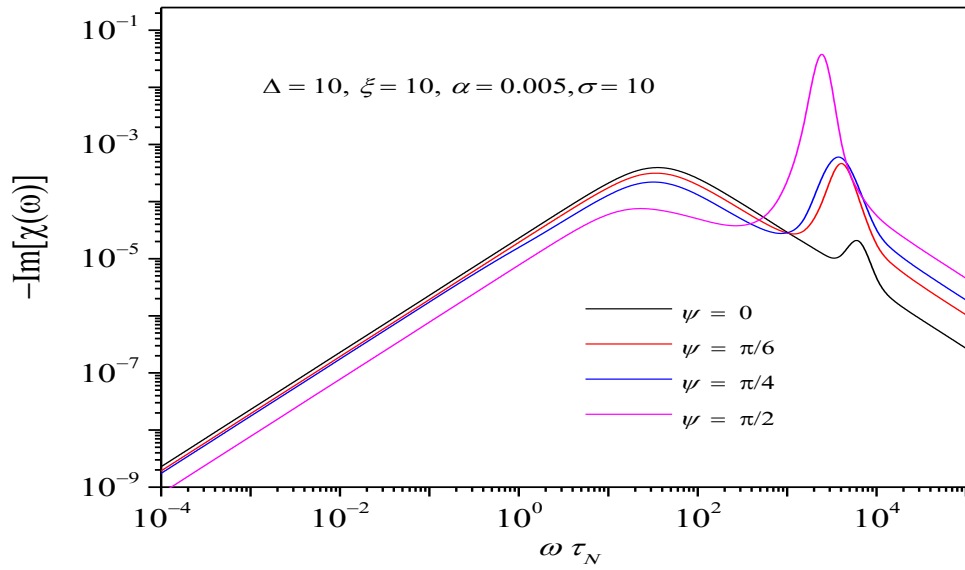


**Figure II.10.**  $\text{Re}[\chi(\omega)]$  en fonction de  $\omega\tau_N$  pour  $\psi = 0, \pi/6, \pi/4, \pi/2$  pour  $\Delta = 10$ , et pour  $\xi = 0.001, \sigma = 10$  et  $\alpha = 0.005$ .

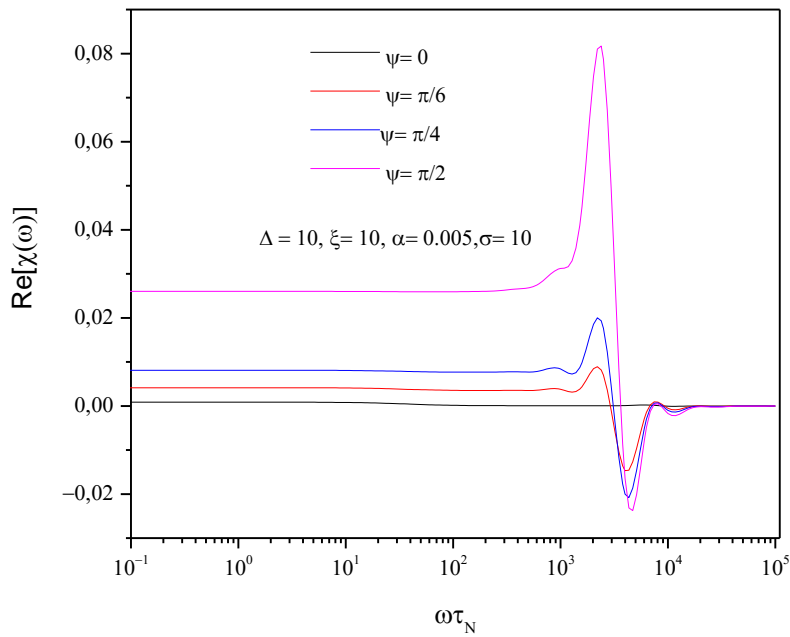
Dans les figures II.11 et II.12, nous avons pris pour la constante de dissipation  $\alpha = 0,005$  et nous avons tracé les spectres pour un champ oblique fort d'amplitude  $\xi = 10$  et  $\sigma = 10$ ,  $\Delta = 10$ . Pour  $\alpha = 0,005$ , il existe deux pics. Le premier est décrits par la fréquence  $\omega_1$  apparaissent à cause du renversement de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . Le deuxième est dû la résonance ferromagnétique, FMR. Ce pic se manifeste à cause du couplage entre les modes transversaux et les modes longitudinaux. La FMR se manifeste aux hautes fréquences et elle est due à la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . La fréquence de précession  $\omega_{pr}^{\mathbf{H}_0}$  est donnée par

$$\omega_{pr}^{\mathbf{H}_0} = \gamma\mathbf{H}_0 + \omega_{pr}^{\mathbf{H}_0=0}, \quad (\text{II.25})$$

où  $\omega_{pr}^{\mathbf{H}_0=0}$  est la fréquence de précession en absence de champ  $\mathbf{H}_0$ . L'amplitude du champ magnétique a un effet déterminant sur le pic de la FMR : la fréquence caractéristique et la taille du pic FMR sont proportionnelles à l'amplitude du champ magnétique  $\xi$  et inversement proportionnelles à la constante de dissipation  $\alpha$ .



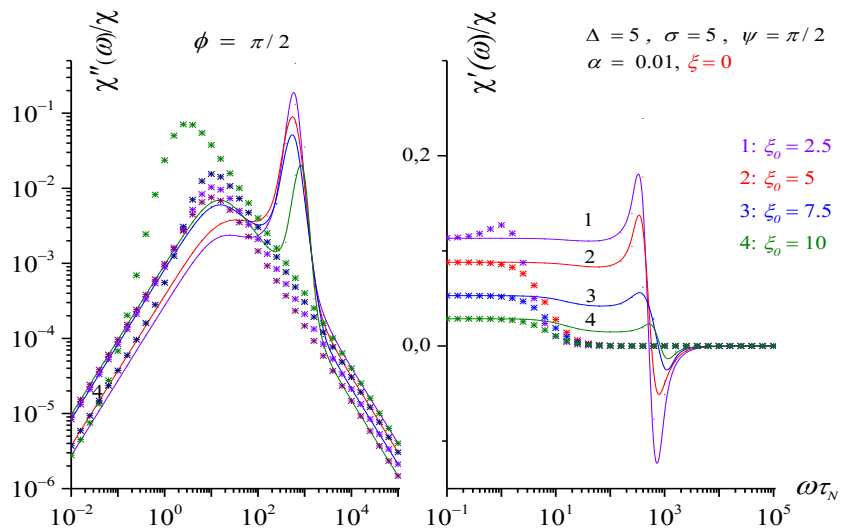
**Figure II.11.**  $-\text{Im}[\chi(\omega)]$  en fonction de  $\omega\tau_N$  pour  $\psi = 0, \pi/6, \pi/4, \pi/2$  pour  $\Delta = 10$ , et pour  $\xi = 10, \sigma = 10$  et  $\alpha = 0.005$ .



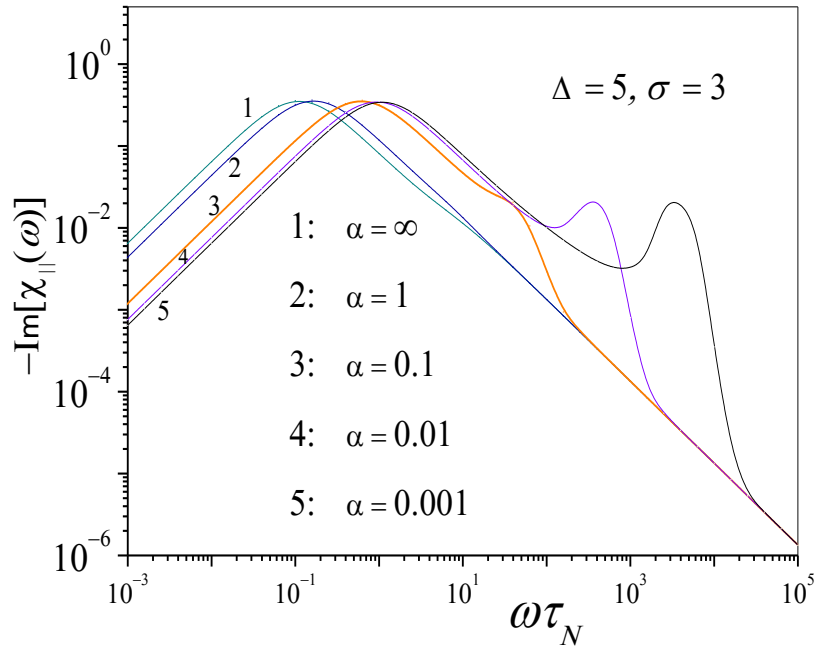
**Figure II.12.**  $\text{Re}[\chi(\omega)]$  en fonction de  $\omega\tau_N$  pour  $\psi = 0, \pi/6, \pi/4, \pi/2$  pour  $\Delta = 10$ , et pour  $\xi = 10, \sigma = 10$  et  $\alpha = 0.005$ .

. Dans les figures (II.13) nous avons tracé les spectres pour  $\xi_0 = 2.5, 5, 7.5, 10$ , le premier, la partie imaginaire et le deuxième, la partie réel

Dans la figure II.13, nous avons montré l'effet de champ DC d'orientation oblique sur la susceptibilité magnétique. Le champ change les amplitudes des spectres et fait basculer la fréquence caractéristique  $\omega_1$  vers les hautes fréquences. Les courbes 3 et 4 de la figure II.13 sont très rapprochées car nous avoisinons le champ magnétique de saturation.

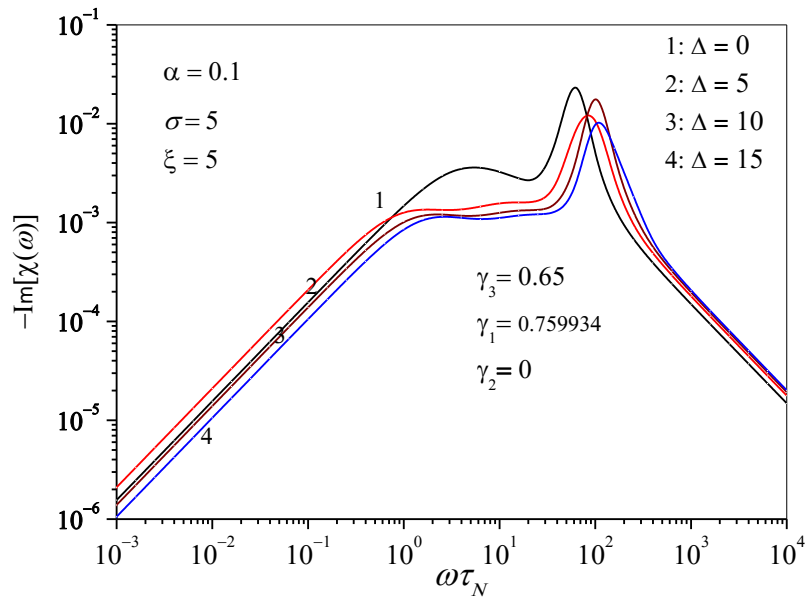


**Figure II.13.**  $-\text{Im}[\chi(\omega)]$  et  $\text{Re}[\chi(\omega)]$  en fonction de  $\omega\tau_N$  pour  $\xi = 2.5, 5, 7.5, 10$  et pour  $\sigma = 5, \Delta = 5, \alpha = 0.01, \psi = \pi/2$ . Trait plein équation (I.41), symbole équation (I.59).



**Figure II.14.**  $-\text{Im}[\chi(\omega)]$  en fonction de  $\omega\tau_N$  pour  $\alpha=0.001,0.01,0.1,1$  et  $\infty$ ,  $\sigma = 3$ ,  $\zeta = 5$ ,  $\Delta = 5$ ,  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0,6$  et  $\gamma_3 \approx 0,53$ .

La figure II.14 montre que à cause de la valeur élevée de la dissipation (e.g.,  $\alpha = \infty$ ), le potentiel possède un puit unique et donc on assiste à une absence de renversement d'aimantation. C'est pour cela que le calcul nous livre un spectre à un pic, il traduit l'oscillation du macrospin au fond du puit.



**Figure II.15.**  $-\text{Im}[\chi_{\parallel}(\omega)]$  en fonction de  $\omega\tau_N$  pour  $\Delta = 0, 5, 10$  et  $15$  et pour  $\xi = 5, \sigma = 5$  et  $\alpha = 0.1$ .

La figure II.15 représente l'évolution de la partie imaginaire de la susceptibilité en fonction de la pulsation pour la constante de dissipation  $\alpha = 0,1$ . Dans cette figure, nous avons fixé les paramètres de champ  $\xi = 5$  et  $\sigma = 5$  et nous avons varié  $\Delta = 0, 5, 10, 15$ , on note que pour  $\alpha \ll 1$ , il existe trois pics. Nous avons détaillé l'origine de l'apparition des trois pics dans les basses et hautes fréquences dans précédentes figures.

#### II.4. Conclusion

Nous avons étudié l'effet de champ magnétique oblique sur la susceptibilité magnétique  $\chi(\omega)$  et le temps de relaxation intégral  $\tau$ , des particules superparamagnétiques. Nous avons réalisé des algorithmes et des programmes numériques qui calculent ces grandeurs quel que soit la direction du champ magnétique. On sait bien que la présence de champ extérieur oblique  $\mathbf{H}_0$  modifie le potentiel  $V$  et la réorientation de l'aimantation, ce qui fait apparaître de nouveaux phénomènes.

1) Nous avons démontré qu'en augmentant la magnitude du champ magnétique  $\mathbf{H}_0$ , le temps de renversement de l'aimantation  $\tau$  caractérisé par la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker Planck  $\lambda_1 \tau_N$  diminue car le champ extérieur tend toujours à accélérer le processus de relaxation. Grâce à l'approche de Ouari-Coffey *et al.* [8], nous avons testé l'équation analytique pour le temps  $\tau$  en présence d'un champ magnétique dirigé suivant l'axe  $z$  quelque soit la valeur de la constante de dissipation  $\alpha$ . A partir de cette équation, on peut calculer le temps de renversement de l'aimantation  $\tau \approx \lambda_1^{-1}$ . Nous avons discuté le comportement de  $\tau$  en fonction de la barrière  $\sigma$  pour différentes valeurs du champ  $h$  et du paramètre de biaxialité  $\Delta$ . Nous avons pu démontrer que l'équation que nous avons proposé estime correctement  $\tau$  pour toutes les valeurs des paramètres  $\sigma$ ,  $\Delta$ ,  $h$  et  $\alpha$ . On a comparé ces résultats avec le calcul exact et la correspondance est assez bonne.

2) L'effet du champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  sur le temps de relaxation intégral  $\tau$  est qualitativement similaire à celui-ci pour les particules uniaxiales en présence de champ [6,17]. En l'absence de champ  $\mathbf{H}_0$ ,  $h = 0$ , le potentiel a une symétrie axiale et a deux minimums, et deux points de selle équivalents. Les deux puits sont séparés et ont les mêmes barrières. Dans la limite des basses températures, l'évolution de  $\tau / \tau_N$  en fonction de la barrière est de type Arrhenius. Pour  $h \neq 0$ , le potentiel devient asymétrique, les barrières non équivalentes et le deuxième puits disparaît pour  $h = h_s = 1$ . Seulement une fois que les particules superparamagnétiques soumises à un champ magnétique, on remarque qu'il existe une valeur critique de  $h_c = 0.17$  pour laquelle l'évolution de  $\tau / \tau_N$  n'est plus exponentielle ; c'est-à-dire, que le processus de relaxation n'est plus dominé par le mode lent associé au passage des barrières et les modes rapides commencent à dominer dans le processus de relaxation. Cet effet est la conséquence naturelle de la déplétion de population du puits le moins profond.

3) L'effet de champ oblique se manifeste aussi dans les spectres de la susceptibilité magnétique  $\chi(\omega)$ . Nous avons montré que pour les valeurs faibles du paramètre de champ  $h$ , le spectre de la partie imaginaire  $-\text{Im}[\chi(\omega)]$  possède trois pics en général et ressemble largement à celui sans champ. Le pic dans le domaine des basses fréquences se manifeste à cause du renversement de l'aimantation. La fréquence caractéristique  $\omega_1$  de ce pic et sa demi largeur  $\Delta\omega_1$  sont déterminées par le temps de relaxation de l'aimantation  $\tau$ , (équation II.22). Le deuxième pic aux fréquences intermédiaires est la manifestation des oscillations de l'aimantation  $\mathbf{M}$  au fond des puits du potentiel. La fréquence caractéristique  $\omega_2$  de ce pic et sa demi-largeur sont déterminées par  $\tau_W$ . Le troisième pic rend compte de la résonance ferromagnétique, FMR. La FMR se manifeste aux hautes fréquences et elle est due à la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . Le champ magnétique à un effet déterminant sur les trois pics. L'effet du champ sur le premier pic avec fréquence caractéristique  $\omega_1$  est plus fort. Nous avons démontré que l'équation analytique (I.59), estime correctement les spectres équation, de la susceptibilité magnétiques pour  $\alpha \geq 1$ . Il suffit donc d'avoir des informations précises sur la première valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1$ , le temps effectif  $\tau^{eff}$ , et le temps de relaxation intégral  $\tau^{int}$  pour estimer le spectre et donc décrire les phénomènes de la relaxation magnétique.

## II.5 Bibliographies

- [1] G.D Rancourt, **2001**. Magnetism of Earth, *Nanoparticles and the Environment*, (44) pp.217.
- [2] J. Carrey, B. Mehdaoui, and M. Respaud, **2011**. Simple models for dynamic hysteresis loop calculations of magnetic single-domain nanoparticles: Application to magnetic hyperthermia optimization, *Journal of Applied Physics* (109), pp.083921, B. Mehdaoui, A. Meffre, J. Carrey, S. Lachaize, L.-M. Lacroix, M. Gougeon, B. Chaudret, and M. Respaud, **2011**. *Advanced Functional Materials* (21), pp 4573-4581
- [3] C. P. Bean and J. D. Livingston, **1949**. Superparamagnetism, *Journal of Applied Physics*.(30), pp. 120-125
- [4] L. Néel, **1949**. *Ann. Geophysics CNRS* (5), pp.99-105
- [5] W. F. Brown, Thermal Fluctuations of a Single-Domain Particle, **1963**. *Physical. Review*. 130, pp. 1677-1685
- [6] W. F. Brown, Thermal fluctuation of fine ferro-particles, **1979**. , Jr, *IEEE Trans. Mag.* 15, 1196 .
- [7] T. L. Gilbert, **1956**. A Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization field, *Physical. Review*. (100), pp.1243-1253
- [8] S. V. Titov, P. M. Déjardin, H. El Mrabti, Yu. P. Kalmykov, **2010**. Nonlinear magnetization relaxation of superparamagnetic nanoparticles in superimposed ac and dc magnetic bias fields, *Phys. Rev. B* 82, pp.100413-100419
- [9] Y. L. Raikher and V. I. Stepanov, **2004**. Nonlinear dynamic susceptibilities and field-induced birefringence in magnetic particle assemblies, *Advance Chemical. Physics*. (129), pp.419-425.
- [10] Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, and P. C. Fannin, **2003**. Stochastic resonance in a superparamagnetic particle, *Journal of Magnetism and Magnetic. Materials*, (369) 258-269, Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, and R. Perzynski, **2004**. Dynamic hysteresis of a superparamagnetic nanoparticle, *Physica B* (343), pp.262-269
- [11] Y. P. Kalmykov, W. T. Coffey, S. V. Titov, J. E. Wegrowe, and D. Byrne, **2013**. *Physical. Review.B* (88), pp-144406-14415
- [12] D. Byrne, W. T. Coffey, Y. P. Kalmykov, S. V. Titov and J. E. Wegrowe, **2015**. Spin-transfer torque effects in the dynamic forced response of the magnetization of nanoscale ferromagnets in superimposed ac and dc bias fields in the presence of thermal agitation, *Physical.Review. B* (91), pp.174406-174418

- [13] Yu. P. Kalmykov and B. Ouari, **2005**. Longitudinal complex magnetic susceptibility and relaxation times of superparamagnetic particles with triaxial anisotropy, *Physical Review. B* (71), pp. 094410-094421 , M. Madani and B. Ouari, **2020**. Effect of a Dc Oblique Magnetic Field on the Magnetic Susceptibility of the Super-Paramagnetics Nanoparticles in Very Low Damping, *Journal of physics and optics sciences* (2), pp. 001-003
- [14] B.Ouari and Y. P. Kalmykov, **2006**. *Journal of Applied Physics*, Dynamics of the magnetization of single domain particles having triaxial anisotropy subjected to a uniform dc magnetic field, (100), p.123912-123919
- [15] B. Ouari, S. V. Titov, Halim El Mrabi, Y. P. Kalmykov, **2013**. Nonlinear susceptibility and dynamic hysteresis loops of magnetic nanoparticles with biaxial anisotropy, *Journal of Applied Physics* (113), pp-053903-053915
- [16] W. T. Coffey and Yu. P. Kalmykov, **2012**. *Book, The Langevin Equation*, Chapter 9, 3<sup>rd</sup> Ed. (World Scientific Singapore)
- [17] P. J. Gregg, D. S. F. Crothers, and A. W. Wickstead, **1994**. An approximate formula for the relaxation time of a single domain ferromagnetic particle with uniaxial anisotropy and collinear field, *Journal of Applied Physics*, (76), pp-4900-4911
- [18] A. Aharoni, **1969**. Effect of a Magnetic Field on the Superparamagnetic Relaxation Time, *Physical. Review.* (177), pp-793-802
- [19] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, Y. P. Kalmykov and J. T. Waldron, **2001**. Effect of an oblique magnetic field on the superparamagnetic relaxation time, *Physical Review. B* (51), pp-15947-15953
- [20] I. Klik and Y. D. Yao, **1998**. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, (182), pp-335-341
- [21] V. A. Ignatchenko and R. S. Gekht, Zh. Eksp **1975**. *Teorithical. Fizica.* (67), 1506 19, Dynamic hysteresis of a superparamagnet , Sov. Phys. JETP (40), pp-750-761,
- [22] Y.P. Kalmykov, Bachir Ouari, and S.V. Titov, **2016**. Dynamic magnetic hysteresis and nonlinear susceptibility of antiferromagnetic nanoparticles, *Journal of Applied Physics*, (120 ), pp-053901-053917,
- [23] M. Madani and B. Ouari, **2020** Super-Antiferromagnetics Nanoparticles for Magnetic Hyperthermia Applications: Effect of the Dc and Ac Magnetic Field, *Journal of Biotechnology & Bioinformatics Research*, (2) pp.2-5.

---

**Chapitre III :**

**Dynamique de la composante transversale  
de l'aimantation d'une nanoparticule  
superparamagnétique**

---

### III.1. Introduction

La résonance ferromagnétique (FMR) conventionnelle est une technique puissante pour étudier la relaxation magnétique dans les matériaux magnétiques. Le principe de la FMR repose sur le fait que lorsqu'un moment magnétique situé dans un champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  est soumis à une excitation magnétique périodique  $\mathbf{H}_1(t)$  ( $\mathbf{H}_1(t) \perp \mathbf{H}_0$ ), son comportement n'est influencé par l'excitation que si celle-ci a une fréquence bien déterminée. Cette perturbation affecte le comportement électromagnétique de l'échantillon étudié et peut être mesurée. Considérons la variation du moment magnétique  $\mathbf{m}$  et donc de l'aimantation  $\mathbf{M}$  d'une particule uniaxiale. En négligeant la dissipation, l'équation dynamique s'écrit

$$\dot{\mathbf{M}}(t) = \gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}. \quad (\text{III.1})$$

L'équation (III.1) indique que le vecteur  $\mathbf{M}$  (et avec lui le moment magnétique  $\mathbf{m}$ ) tourne avec la vitesse angulaire  $\omega_0 = \gamma H$  autour de la direction du champ d'anisotropie  $\mathbf{H}$ . Dans la limite des basses températures, l'équation (III.1) est équivalente à trois équations scalaires [1]

$$\dot{M}_z = 0, \quad \dot{M}_x = \omega_0 M_y, \quad \dot{M}_y = -\omega_0 M_x. \quad (\text{III.2})$$

Donc les composantes transversales  $M_x$  et  $M_y$  satisfont l'équation classique d'un oscillateur harmonique

$$\ddot{M}_{x,y} + \omega_0^2 M_{x,y} = 0, \quad (\text{III.3})$$

$\omega_0 = \gamma H$  étant la fréquence caractéristique. La solution est une sinusoïde, ce qui explique l'apparition des pics FMR [2].

Dans le chapitre précédent, nous avons calculé le temps de relaxation de l'aimantation et la susceptibilité magnétique en présence de champs oblique d'une particule superparamagnétique en utilisant les méthodes des fractions continues et celle de Kramers [3] et Coffey *et al.* [4]. Dans ce chapitre, nous calculons les temps de relaxations transversales  $\tau_{\perp x}$  et  $\tau_{\perp y}$ , les susceptibilités magnétiques transversales  $\chi_{\perp x}(\omega)$  et  $\chi_{\perp y}(\omega)$ , en suivant la même procédure, à savoir calculer ces grandeurs numériquement à l'aide de la méthode des fractions continues, estimer ces temps et les susceptibilités analytiquement, discuter l'effet de la constante de dissipation  $\alpha$ , de la barrière  $\sigma$ , et du paramètre de biaxialité  $\Delta$  sur les spectres des susceptibilités magnétiques transversales.

### III.2. Temps de corrélation et susceptibilités transversales

Afin de considérer la réponse transversale, on suppose qu'un système de particules superparamagnétiques est soumis à un champ magnétique uniforme faible  $\mathbf{H}_1$  suivant le plan  $(x, y)$ , [ $(\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_1) / kT \ll 1$ ]. Le champ  $\mathbf{H}_1$  est coupé brusquement à l'instant  $t = 0$ . Selon la théorie

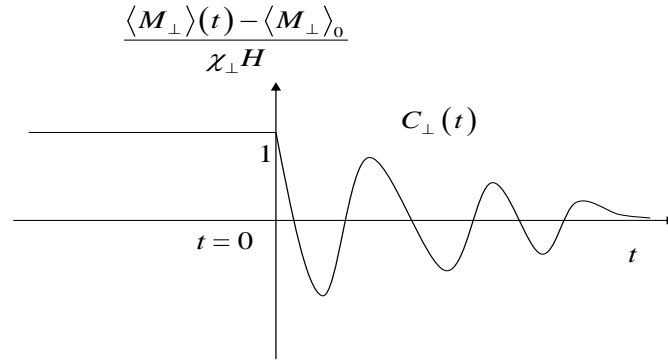
de la réponse linéaire, l'évolution de la moyenne de l'aimantation transversale  $\langle M_{\perp\gamma} \rangle(t)$  est donnée par [5]

$$\langle M_{\perp\gamma}(t) \rangle = \chi_{\perp\gamma} H_1 C_{\perp\gamma}(t),$$

où

$$\chi_{\perp x} = \beta \langle M_x^2(0) \rangle_0 \text{ et } \chi_{\perp y} = \beta \langle M_y^2(0) \rangle_0, \quad (\text{III.4})$$

sont les composantes du tenseur de la susceptibilité magnétique statique.



**Figure III.1.** Relaxation de la composante transversale de l'aimantation lorsqu'un faible champ  $\mathbf{H}_1$  est coupé à  $t=0$ .

Pour l'anisotropie biaxiale, les fonctions de corrélations et donc les composantes de la susceptibilité magnétique suivant la direction  $x$  et la direction  $y$  ne sont pas équivalentes, les fonctions de corrélations prennent la forme suivante [6]:

$$C_{\perp x}(t) = \langle \cos\varphi(0) \sin\theta(0) \cos\varphi(t) \sin\theta(t) \rangle_0 \left[ \langle \cos^2\varphi(t) \sin^2\theta(t) \rangle_0 \right]^{-1},$$

$$C_{\perp y}(t) = \langle \sin\varphi(0) \sin\theta(0) \sin\varphi(t) \sin\theta(t) \rangle_0 \left[ \langle \sin^2\varphi(t) \sin^2\theta(t) \rangle_0 \right]^{-1}.$$

Puisqu'il existe deux fonctions de corrélation caractérisant la relaxation transversale [7], ceci implique deux temps de relaxations intégraux transversaux. Ces temps de relaxations sont :

$$\tau_{\perp x} = \int_0^{\infty} C_{\perp x}(t) dt, \quad \tau_{\perp y} = \int_0^{\infty} C_{\perp y}(t) dt \quad (\text{III.5})$$

Nous calculons aussi les temps effectifs  $\tau_{\perp x}^{eff}$  et  $\tau_{\perp y}^{eff}$  pour l'évaluation des spectres des susceptibilités magnétiques transversales. Les expressions pour les temps des relaxations effectifs  $\tau_{\perp x}^{eff}$  et  $\tau_{\perp y}^{eff}$  sont données par les équations (I.66) , (I.67)

### III.3. Méthode numérique

On peut calculer numériquement les temps de relaxations transversales  $\tau_{\perp x}$  et  $\tau_{\perp y}$  et les susceptibilités magnétiques transversales  $\chi_{\perp x}(\omega)$  et  $\chi_{\perp y}(\omega)$  en utilisant la méthode de fractions continues développée dans le chapitre II. Rappelons que selon cette méthode, une hiérarchie infinie des équations différentielles de récurrence pour les moments statistiques a déjà été obtenue dans le chapitre II. Il s'agit de l'équation II.3. Les fonctions de corrélation transversales suivantes :

$$c_{l,m}^{\perp x}(t) = \langle \cos \varphi(0) \sin \vartheta(0) Y_{l,m}(\vartheta(t), \varphi(t)) \rangle_0 \quad \text{et} \quad c_{l,m}^{\perp y}(t) = \langle \sin \varphi(0) \sin \vartheta(0) Y_{l,m}(\vartheta(t), \varphi(t)) \rangle_0$$

Cette équation peut être transformée en une équation différentielle vectorielle de forme tridiagonale:

$$\tau_N \frac{d}{dt} \mathbf{C}_n^\perp(t) = \mathbf{Q}_n^- \mathbf{C}_{n-1}^\perp(t) + \mathbf{Q}_n \mathbf{C}_n^\perp(t) + \mathbf{Q}_n^+ \mathbf{C}_{n+1}^\perp(t), \quad (n \geq 1), \quad (\text{III.6})$$

où les matrices  $\mathbf{Q}_n, \mathbf{Q}_n^\pm$  sont définies dans l'équation (II.11) et les vecteurs  $\mathbf{C}_n^\perp(t)$  ont la forme suivante [8,9]

$$\mathbf{C}_0^\perp(t) = \mathbf{0}, \quad \mathbf{C}_1^\perp(t) = \begin{pmatrix} c_{2,-2}^{\perp x,y}(t) \\ c_{2,-1}^{\perp x,y}(t) \\ c_{2,0}^{\perp x,y}(t) \\ c_{2,1}^{\perp x,y}(t) \\ c_{2,2}^{\perp x,y}(t) \\ c_{1,-1}^{\perp x,y}(t) \\ c_{1,0}^{\perp x,y}(t) \\ c_{1,1}^{\perp x,y}(t) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C}_n^\perp(t) = \begin{pmatrix} c_{2n,-2n}^{\perp x,y}(t) \\ \vdots \\ c_{2n,2n}^{\perp x,y}(t) \\ c_{2n-1,-2n+1}^{\perp x,y}(t) \\ \vdots \\ c_{2n-1,2n-1}^{\perp x,y}(t) \end{pmatrix}, \quad (n \geq 2).$$

A l'aide de la transformée de Laplace de l'équation (III.6), on obtient une solution exacte de la forme [9] :

$$\tilde{\mathbf{C}}_1^\perp(s) = \tau_N \Delta_1(s) \left\{ \mathbf{C}_1^\perp(0) + \sum_{n=2}^{\infty} \left[ \prod_{k=2}^n \mathbf{Q}_{k-1}^+ \Delta_k(s) \right] \mathbf{C}_n^\perp(0) \right\}, \quad (\text{III.7})$$

où les fractions continues matricielles  $\Delta_n(s)$  sont données par l'équation (I.33). Dans le traitement des composantes transversales de l'aimantation, les matrices  $\mathbf{Q}_n, \mathbf{Q}_n^\pm$  et  $\Delta_n(s)$  restent invariantes. Seuls les vecteurs de conditions initiales  $\mathbf{C}_n^\perp(0)$  changent. Les vecteurs initiaux  $\mathbf{C}_n^\perp(0)$  de l'équation (III.7), peuvent être évalués à partir des valeurs moyennes à l'équilibre  $\langle Y_{l,m} \rangle_0$  (voir Chapitre II). Les valeurs moyennes  $\langle Y_{l,m} \rangle_0$  sont déterminées par l'équation (II.16)

en termes des fractions continues matricielles  $\Delta_k(0)$ . En utilisant les relations de récurrence [10]

$$\begin{aligned}\sin \mathcal{G}Y_{n,m}(\mathcal{G}, \varphi)e^{-i\varphi} &= \sqrt{\frac{(n-m+1)(n-m+2)}{(2n+1)(2n+3)}}Y_{n+1,m-1}(\mathcal{G}, \varphi) - \sqrt{\frac{(n+m)(n+m-1)}{(2n+1)(2n-1)}}Y_{n-1,m-1}(\mathcal{G}, \varphi), \\ \sin \mathcal{G}Y_{n,m}(\mathcal{G}, \varphi)e^{i\varphi} &= -\sqrt{\frac{(n+m+1)(n+m+2)}{(2n+1)(2n+3)}}Y_{n+1,m+1}(\mathcal{G}, \varphi) - \sqrt{\frac{(n-m)(n-m-1)}{(2n+1)(2n-1)}}Y_{n-1,m-1}(\mathcal{G}, \varphi),\end{aligned}$$

on en déduit les identités

$$\begin{aligned}c_{l,m}^{\perp x}(0) &= \frac{1}{2} \left[ \begin{aligned} &\sqrt{\frac{(n-m+1)(n-m+2)}{(2n+1)(2n+3)}} \langle Y_{n+1,m-1} \rangle_0 - \sqrt{\frac{(n+m)(n+m-1)}{(2n-1)(2n+1)}} \langle Y_{n-1,m-1} \rangle_0 \\ &+ \sqrt{\frac{(n-m)(n-m-1)}{(2n+1)(2n-1)}} \langle Y_{n-1,m+1} \rangle_0 - \sqrt{\frac{(n+m+1)(n+m+2)}{(2n+3)(2n+1)}} \langle Y_{n+1,m+1} \rangle_0 \end{aligned} \right], \\ c_{l,m}^{\perp y}(0) &= \frac{1}{2i} \left[ \begin{aligned} &-\sqrt{\frac{(n-m)(n-m-1)}{(2n+1)(2n-1)}} \langle Y_{n-1,m-1} \rangle_0 - \sqrt{\frac{(n+m+1)(n+m+2)}{(2n+1)(2n+3)}} \langle Y_{n+1,m+1} \rangle_0 \\ &+ \sqrt{\frac{(n+m)(n+m-1)}{(2n+1)(2n-1)}} \langle Y_{n-1,m-1} \rangle_0 - \sqrt{\frac{(n-m+1)(n-m+2)}{(2n+3)(2n+1)}} \langle Y_{n+1,m-1} \rangle_0 \end{aligned} \right].\end{aligned}$$

En suivant la même procédure décrite dans le chapitre II, Sect. II.2, on obtient les vecteurs initiaux

$$\mathbf{C}_n^{\perp x}(0) = \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{D}_{2n-1}^x & \mathbf{0} \end{bmatrix} \mathbf{R}_{n-1} + \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{D}_{2n}^x \\ \mathbf{D}_{2n}^{xT} & \mathbf{0} \end{bmatrix} \mathbf{R}_n + \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{D}_{2n}^x & \mathbf{0} \end{bmatrix}^T \mathbf{R}_{n+1},$$

$$\mathbf{C}_n^{\perp y}(0) = \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{D}_{2n-1}^y & \mathbf{0} \end{bmatrix} \mathbf{R}_{n-1} + \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{D}_{2n}^y \\ \mathbf{D}_{2n}^{yT} & \mathbf{0} \end{bmatrix} \mathbf{R}_n + \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ -\mathbf{D}_{2n}^y & \mathbf{0} \end{bmatrix}^T \mathbf{R}_{n+1},$$

où

$$\mathbf{D}_l^x = \begin{bmatrix} d_{l,-l}^{x-} & 0 & d_{l,-l}^{x+} & 0 & .. & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & d_{l,-l+1}^{x-} & 0 & d_{l,-l+1}^{x+} & 0 & .. & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & . & 0 & d_{l,-l+2}^{x+} & 0 & & & . \\ 0 & 0 & 0 & . & . & . & 0 & & . \\ . & 0 & . & 0 & . & 0 & . & 0 & . \\ . & 0 & . & . & . & . & 0 & d_{l,l-1}^{x+} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & . & 0 & d_{l,-l}^{x-} & 0 & d_{l,l}^{x+} \end{bmatrix}_{(2l-1) \times (2l+1)}$$

$$\mathbf{D}_l^y = \begin{bmatrix} d_{l,-l}^{y+} & 0 & 0 & . & . & . & 0 \\ 0 & d_{l,-l+1}^{y+} & . & 0 & . & 0 & 0 \\ d_{l,-l+2}^{y-} & 0 & d_{l,-l+2}^{y+} & . & & & \\ 0 & . & 0 & . & . & & \\ 0 & 0 & . & . & . & 0 & \\ 0 & 0 & . & . & . & . & 0 \\ . & 0 & 0 & . & . & 0 & d_{l,l+2}^{y+} \\ . & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{l,l-1}^{y-} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{l,l}^{y-} \end{bmatrix}_{(2l+1) \times (2l-1)},$$

avec

$$d_{n,m}^{x\pm} = \mp \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n \pm m + 2)(n \pm m + 1)}{(2n + 3)(2n + 1)}}, \quad d_{n,m}^{y\pm} = -\frac{1}{2i} \sqrt{\frac{(n \pm m + 2)(n \pm m + 1)}{(2n + 3)(2n + 1)}}.$$

Ayant déterminé les termes  $\tilde{c}_{1,1}(i\omega)$  et  $\tilde{c}_{1,-1}(i\omega)$  de  $\tilde{\mathbf{C}}_1^\perp(i\omega)$ , [l'équation (III.6)], on peut calculer toutes les grandeurs physiques qui caractérisent la relaxation transversale de l'aimantation. En effet, sachant qu'on a [11]

$$Y_{1,1}(\vartheta, \varphi) = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{3}{2\pi}} \sin \vartheta e^{i\varphi} \quad \text{et} \quad Y_{1,-1}(\vartheta, \varphi) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{3}{2\pi}} \sin \vartheta e^{-i\varphi}, \quad (\text{III.8})$$

on en déduit

$$\begin{aligned} \sin \vartheta \sin \varphi &= -2i \sqrt{\frac{\pi}{6}} [Y_{1,1}(\vartheta, \varphi) + Y_{1,-1}(\vartheta, \varphi)], \\ \cos \vartheta \sin \varphi &= 2 \sqrt{\frac{\pi}{6}} [Y_{1,-1}(\vartheta, \varphi) - Y_{1,1}(\vartheta, \varphi)], \end{aligned} \quad (\text{III.9})$$

Les transformées de Fourier-Laplace des fonctions de corrélation transversales  $C_{\perp x}(i\omega)$  et  $C_{\perp y}(i\omega)$  sont données par [11,12,13] :

$$\begin{pmatrix} \tilde{C}_{\perp x}(\omega) \\ \tilde{C}_{\perp y}(\omega) \end{pmatrix} = \frac{\tilde{c}_{1,1}^{\perp}(i\omega) \mp \tilde{c}_{1,-1}^{\perp}(i\omega)}{c_{1,1}^{\perp}(0) \mp c_{1,-1}^{\perp}(0)}.$$

Les susceptibilités magnétiques  $\chi_{\perp x}(\omega) = \chi'_{\perp x}(\omega) - i\chi''_{\perp x}(\omega)$  et  $\chi_{\perp y}(\omega) = \chi'_{\perp y}(\omega) - i\chi''_{\perp y}(\omega)$  prennent les formes :

$$\frac{\chi_{\perp x,y}(\omega)}{\chi_{\perp x,y}} = 1 - i\omega \frac{\tilde{c}_{1,1}^{\perp}(i\omega) \mp \tilde{c}_{1,-1}^{\perp}(i\omega)}{c_{1,1}^{\perp}(0) \mp c_{1,-1}^{\perp}(0)}, \quad (\text{III.10})$$

où  $\chi_{\perp x} = \beta M_S^2 \langle \cos^2 \varphi(0) \sin^2 \vartheta(0) \rangle_0$  et  $\chi_{\perp y} = \beta M_S^2 \langle \sin^2 \varphi(0) \sin^2 \vartheta(0) \rangle_0$  sont les susceptibilités magnétiques statiques. Les temps de relaxation transversaux s'écrivent

$$\tau_{\perp x,y} = \frac{\tilde{c}_{1,1}^{\perp}(0) \mp \tilde{c}_{1,-1}^{\perp}(0)}{c_{1,0}^{\perp}(0) \mp c_{1,-1}^{\perp}(0)}. \quad (\text{III.11})$$

On peut évaluer aussi la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1$  à partir de l'équation (I.34). Les temps de relaxation effectifs sont donnés par les équations (I.66) et (I.67) et les asymptotes dans les hautes et basses fréquences s'écrivent comme suit [13,14] :

$$\frac{\chi_{\perp x,\gamma}(\omega)}{\chi_{\perp x,\gamma}} \sim \begin{cases} 1 - i\omega \int_0^{\infty} C_{\perp x,\gamma}(t) dt + \dots = 1 - i\omega \tau_{\perp x,\gamma} + \dots, & \omega \rightarrow 0, \\ \frac{\dot{C}_{\perp x,\gamma}(0)}{i\omega} + \dots = -\frac{i}{\omega \tau_{\perp x,\gamma}^{ef}} + \dots, & \omega \rightarrow \infty. \end{cases}, \quad (\text{III.12})$$

Utilisons à présent l'équation (III.12) afin de comprendre le comportement spectral de la susceptibilité. Dans la limite de basses températures et hautes fréquences, on peut estimer la susceptibilité transversale à partir de l'équation de Landau-Lifchitz [15,16,17] :

$$\frac{\chi_{\perp}(\omega)}{\chi_{\perp}} = \frac{(1 + \alpha^2)\omega_0^2 + i\alpha\omega\omega_0}{(1 + \alpha^2)\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\alpha\omega\omega_0}, \quad (\text{III.13})$$

où

$$\omega_0 = \gamma \langle H \rangle \quad (\text{III.14})$$

est la vitesse angulaire de précession de l'aimantation moyenne (cette moyenne prise dans un seul puits de potentiel). La vitesse de précession peut être estimée à partir du potentiel de l'équation (II.1). En effet, le champ d'anisotropie est donné par la relation suivante [17]:

$$\mathbf{H} = -\frac{\partial V}{\partial \mathbf{M}}, \quad (\text{III.15})$$

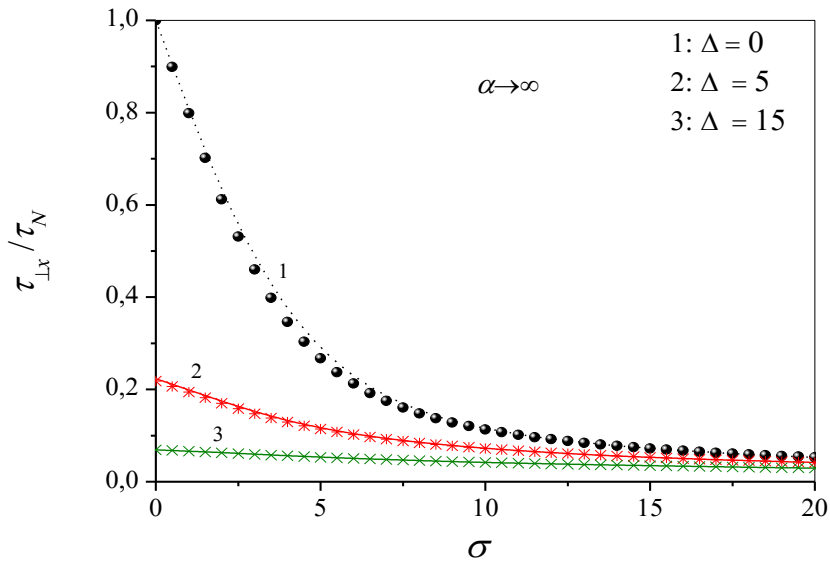
où l'énergie libre  $V$  peut être présentée sous la forme  $V = \beta^{-1}(\sigma + \Delta \cos^2 \varphi)(1 - \cos^2 \vartheta) + \text{const}$ . On peut estimer la vitesse de précession  $\omega_0$  en tenant compte de la composante  $z$  de la pulsation de précession de l'aimantation :

$$\omega_0 \approx \gamma \langle H_z \rangle = \frac{2\gamma}{\beta M_S} \langle (\sigma + \Delta \cos^2 \varphi) \cos \vartheta \rangle \approx \frac{\sigma}{\tau_N \alpha} \left( 1 + \frac{\delta}{2} \right). \quad (\text{III.16})$$

Le pic de résonance est plus prononcé pour une faible constante de dissipation  $\alpha$ . Le caractère de résonance dépend fortement de cette constante [18,19].

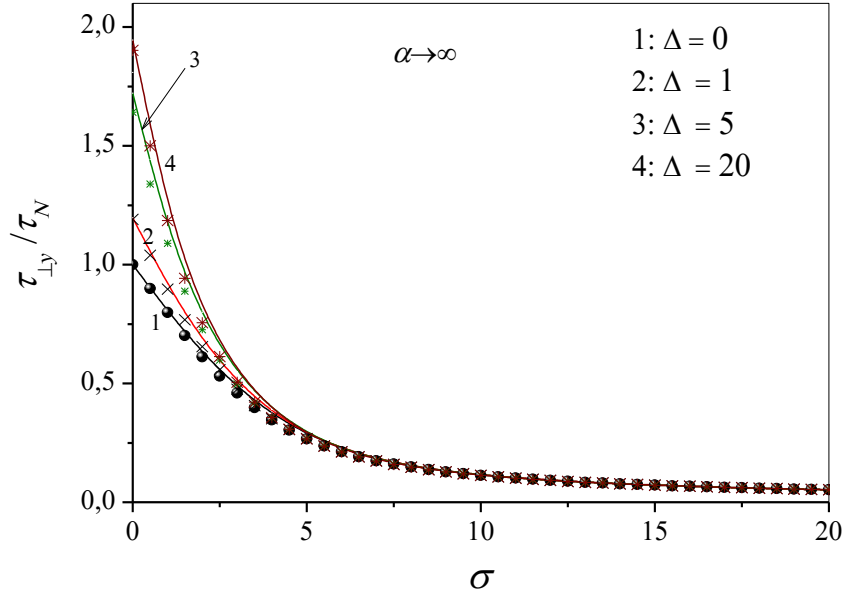
### III.4. Résultats

Nous traçons différents types de courbes: le temps de relaxations transversales et les spectres des susceptibilités magnétiques transversales en faisant varier les différentes grandeurs physiques (les paramètres d'anisotropie  $\sigma$ ,  $\Delta$  et la constante de dissipation  $\alpha$ ).



**Figure III.2.** Temps de relaxation transversal  $\tau_{\perp x} / \tau_N$  pour  $\Delta = 0, 5, 15$  et  $\alpha = \infty$ .

Trait plein : calcul numérique. Symboles:  $\tau_{\perp x}^{eff}$ , équation (I.67).

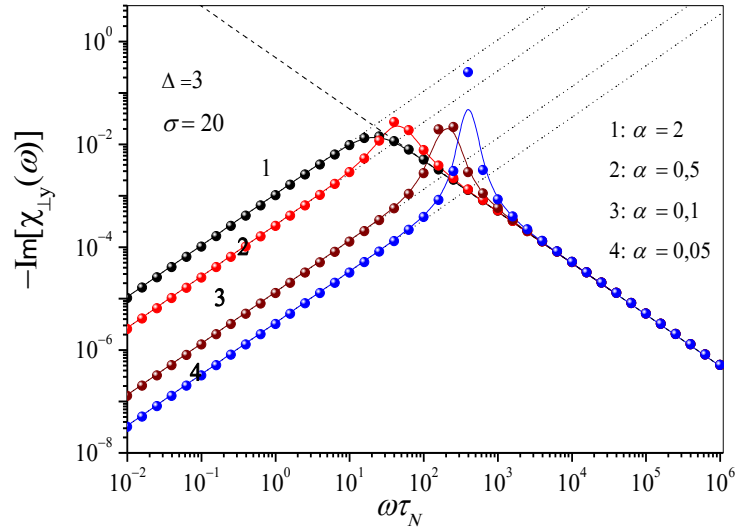


**Figure III.3.** Temps de relaxation transversal  $\tau_{\perp y} / \tau_N$  pour  $\Delta = 0, 1, 5, 20$  et  $\alpha = \infty$ .

Trait plein : calcul numérique. Symboles:  $\tau_{\perp y}^{eff}$ , équation (I.67).

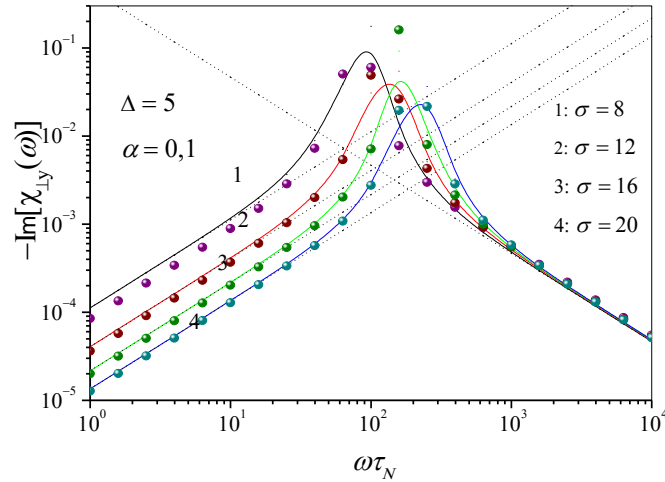
Les figures III.2 et III.3 représentent le comportement des temps de relaxation transversaux normalisés  $\tau_{\perp x} / \tau_N$  et  $\tau_{\perp y} / \tau_N$  en fonction de la barrière  $\sigma$  pour une dissipation  $\alpha \rightarrow \infty$  et  $\Delta = 0, 1, 5, 15, 20$ . Selon ces figures, il existe un accord parfait entre les temps de relaxations intégraux  $\tau_{\perp x, y} / \tau_N$  et les temps de relaxation effectifs  $\tau_{\perp x, y}^{eff}$ . Les équations (I.66) et (I.67) estiment parfaitement  $\tau_{\perp x} / \tau_N$  et  $\tau_{\perp y} / \tau_N$ . Ainsi nous pouvons estimer les temps de relaxations intégraux transversaux par les temps effectifs donnés par les équations (I.66) et (I.67) dans le régime IHD,  $\alpha \geq 1$ . Pour  $\alpha \ll 1$ , cette approximation  $\tau_{\perp x, y} / \tau_N \approx \tau_{\perp x, y}^{eff}$  est aussi appliquée mais l'écart entre  $\tau_{\perp y, x}$  et  $\tau_{\perp x, y}^{eff}$  peut être de 40%.

La figure III.4, présente l'évolution de la partie imaginaire de la susceptibilité transversale  $-\text{Im}[\chi_{y\perp}(\omega)]$  en fonction de la pulsation  $\omega\tau_N$  pour  $\Delta = 3$ ,  $\sigma = 20$  et  $\alpha = 2, 0.5, 0.1, 0.05$ . On remarque qu'il existe un bon accord entre le calcul numérique et l'équation (III.13). Le pic dans les spectres est dû à la résonance ferromagnétique (FMR). L'origine du pic de La FMR est expliquée dans la page 39. La fréquence de précession  $\omega_0$  est donnée par  $\omega_0 \approx \sigma(1 + \delta/2)(\tau_N\alpha)^{-1}$ . La demi-largeur et la taille du pic FMR sont respectivement proportionnelle et inversement proportionnelle à la valeur de la constante de dissipation  $\alpha$ . Le pic le plus haut et le plus étroit correspond à la valeur  $\alpha$  la plus petite. Les asymptotes données par l'équation (III.12) fonctionnent convenablement. Pour les faibles constantes de dissipation, les pics sont très prononcés.



**Figure III.4.**  $-\text{Im}[\chi_{\perp y}(\omega)]$  pour  $\alpha = 2, 0.5, 0.1, 0.05, \Delta = 3$  et  $\sigma = 20$ .

Trait plein : calcul numérique. Symboles: équation (III.13). Pointillés et tirets: asymptotes, équation (III.12).

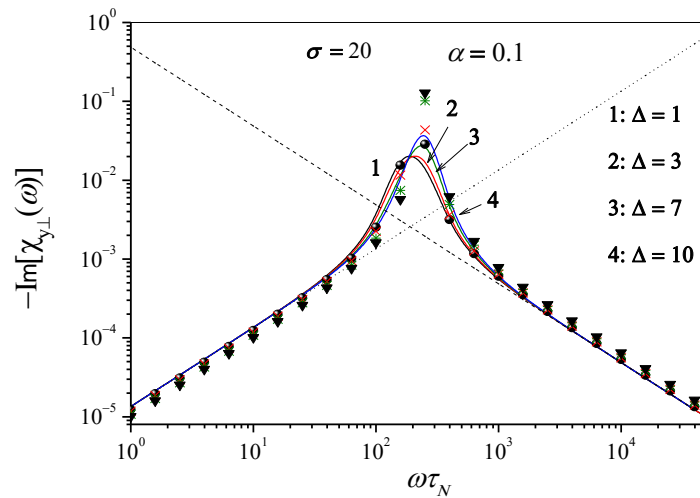


**Figure III.5.**  $-\text{Im}[\chi_{\perp y}(\omega)]$  pour  $\sigma = 8, 12, 16, 20, \Delta = 5$  et pour  $\alpha = 0.1$ .

Trait plein : calcul numérique. Symboles: équation (III.13). Pointillés et tirets: asymptotes, équation (III.12).

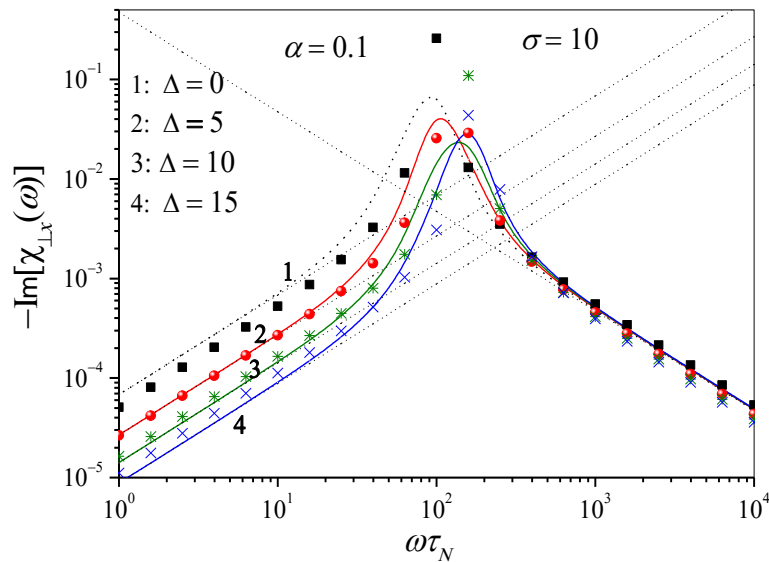
Les figures III.5 et III.6 représentent l'évolution de la partie imaginaire de la susceptibilité  $-\text{Im}[\chi_{y\perp}(\omega)]$  en fonction de la pulsation incluant les résultats numériques et les calculs approximatifs pour une constante de dissipation  $\alpha = 0.1$ . Dans la figure III.5 nous avons fixé  $\Delta = 5$ , et avons fait varier la barrière  $\sigma = 8, 12, 16, 20$ . Dans la figure III.6 nous avons fixé la barrière à  $\sigma = 20$  et nous avons fait varier le paramètre de biaxialité  $\Delta = 1, 3, 7, 10$ ; on

constate que les courbes sont très rapprochées dans cette figure III.6. Les asymptotes données par l'équation (III.12) fonctionnent très bien dans les deux bandes de fréquences.



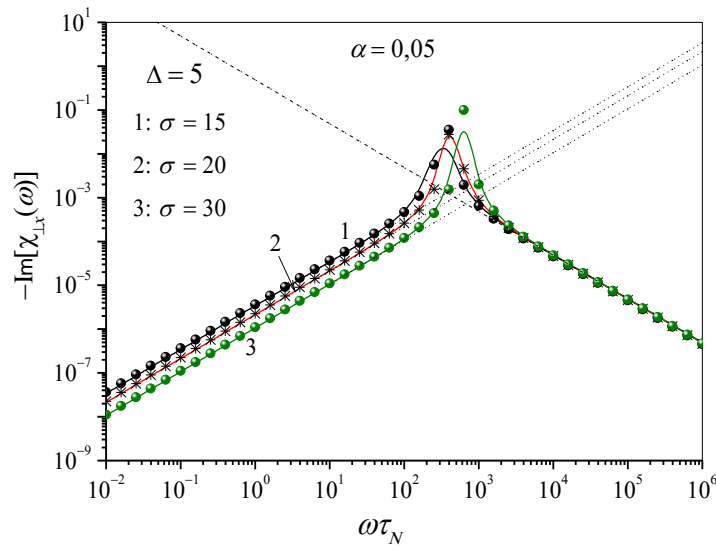
**Figure III.6.**  $-\text{Im}[\chi_{y\perp}(\omega)]$  pour  $\Delta = 1, 3, 7, 10$ ,  $\sigma = 20$  et  $\alpha = 0,1$ .

Trait plein : calcul numérique équation (I.41) . Symboles : équation (III.13). Pointillés et tirets: asymptotes, équation (III.12).



**Figure III.7.**  $-\text{Im}[\chi_{x\perp}(\omega)]$  pour  $\Delta = 0, 5, 10, 15$ ,  $\sigma = 10$  et  $\alpha = 0,1$ .

Trait plein : calcul numérique. Symboles : équation (III.13). Pointillés et tirets: asymptotes, équation (III.12).



**Figure III.8.**  $-\text{Im}[\chi_{x\perp}(\omega)]$  pour  $\sigma = 15, 20, 30$  et pour  $\alpha = 0,05$ .

Trait plein : calcul numérique. Symboles : équation (III.13). Pointillés et tirets: asymptotes, équation (III.12).

Les figures III.7 et III.8 représentent l'évolution de la partie imaginaire de la susceptibilité  $-\text{Im}[\chi_{x\perp}(\omega)]$  en fonction de la pulsation, en incluant le calcul numérique et le calcul approximatif pour la constante de dissipation  $\alpha = 0.1$  et  $\alpha = 0.05$ . Dans la figure III.7, nous avons fixé  $\sigma = 10$  et nous avons fait varier le paramètre  $\Delta = 0, 5, 10, 15$ . Sur la figure III.8, on a choisi  $\Delta = 5$  et on a fait varier les barrières  $\sigma = 15, 20, 30$ . Encore une fois le pic FMR apparaît. L'accord entre le calcul numérique et les résultats approximatifs est nettement satisfaisant à haute barrière. Les asymptotes données par l'équation (III.12) coïncident parfaitement avec le calcul numérique. La hauteur de la barrière influe largement cette bonne correspondance.

### III.5. Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons estimé les temps de relaxation de l'aimantation et les susceptibilités magnétiques transversales d'une particule superparamagnétique avec une anisotropie biaxiale (II.1).

1) Nous avons donné une solution numérique du problème de relaxation transversale de l'aimantation. Cette solution est basée sur la méthode des fractions continues matricielles [6]. Nous avons calculé les temps de relaxation intégraux transversaux  $\tau_{x\perp}$  et  $\tau_{y\perp}$ , les temps de relaxation effectifs  $\tau_{\perp y}^{eff}$  et  $\tau_{\perp x}^{eff}$  et les susceptibilités magnétiques transversales  $\chi_{x\perp}(\omega)$  et  $\chi_{y\perp}(\omega)$ . Les programmes conçus calculent ces grandeurs physiques avec une précision suffisante, et avec peu d'itérations sauf dans le cas où la constante de dissipation est très faible dans le régime VLD ( $\alpha \ll 1$ ). Nous avons résumé tous nos résultats de calcul numérique

concernant les susceptibilités magnétiques transversales dans un grand nombre de figures en prenant des valeurs typiques de la constante de dissipation et en discutant l'intérêt physique de ces calculs.

2) Nous avons montré que les temps de relaxation effectifs  $\tau_{\perp x}^{eff}$  et  $\tau_{\perp y}^{eff}$  et intégraux  $\tau_{\perp x}$  et  $\tau_{\perp y}$ , sont très proches. On peut donc approcher pour  $\alpha \geq 1$  ces temps intégraux (ces temps sont difficiles à calculer) par les temps  $\tau_{\perp x}^{eff}$  et  $\tau_{\perp y}^{eff}$ .

3) Nous avons également calculé les susceptibilités magnétiques transversales  $\chi_{x\perp}(\omega)$  et  $\chi_{y\perp}(\omega)$  pour toutes les valeurs de la constante de dissipation  $\alpha$ , et de la barrière  $\sigma$  et le paramètre de biaxialité en utilisant l'équation de Landau-Lifchitz [18,19,20]. L'approche de Landau-Lifchitz, adaptée à l'anisotropie biaxiale semble être une méthode pertinente pour effectuer ces estimations. En effet, les calculs approximatifs que nous avons effectués estiment correctement nos résultats numériques, basés sur les fractions continues matricielles. Grâce au calcul exact, nous avons pu établir un domaine d'applicabilité de l'équation (III.13). Les asymptotes données par (III.12) fonctionnent très bien aux hautes et aux basses fréquences,  $\omega \rightarrow 0$  et  $\omega \rightarrow \infty$ . Nous avons fait une étude détaillée dans laquelle, nous avons montré qu'il existe des pics de résonance ferromagnétique FMR [21,22]. L'origine de ces pics est la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . Nous avons constaté que la taille et la demi-largeur du pic ferromagnétique FMR sont respectivement inversement proportionnelle est proportionnelle avec la constante de dissipation  $\alpha$ .

### III.5. Bibliographie :

- [1] N. A. Usov and B. Ya. Liubimov, “*Dynamics of magnetic nanoparticle in a viscous liquid: Application to magnetic nanoparticle hyperthermia*”, J. Appl. Phys. **112**, 023901 (2012), L. M. Lacroix, R. Bel Malaki, J. Carrey, S. Lachaize, M. Respaud, G. F. Goya, and B. Chaudret, J. Appl. Phys. **105**, 023911 (2009) ; J. Carrey, B. Mehdaoui, and M. Respaud, J. Appl. Phys. **109**, 083921 (2011)
- [2] C. P. Bean, J. D. Livingston, “*Superparamagnetism*”, J. Appl. Phys. Suppl. **30**, S120 (1959).
- [3] W. F. Brown, Jr., “*Thermal fluctuations of a single-domain particle*”, Phys. Rev. **130**, 1677 (1963). W. F. Brown, Jr., “*Thermal fluctuations of fine ferromagnetic particles*”, IEEE Trans. Magn. **15**, 1196 (1979).
- [4] T. L. Gilbert, “*A Lagrangian formulation of gyromagnetic equation of magnetization*”, Phys. Rev. **100**, 1243 (1956).
- [5] L.D.Landau, E. M. Lifshitz, “*On the theory of the dispersion of the magnetic permeability in ferromagnetic bodies*”, Phys. Z. Sowjetunion **8**, 153 (1935).
- [6] W. T. Coffey, Yu. P. Kalmykov, *The Langevin Equation*, 3<sup>rd</sup> Ed. (World Scientific, Singapore, 2012).
- [7] H. El Mrabti, S. V. Titov, P. M. Déjardin, and Yu. P. Kalmykov, “*Nonlinear stationary ac response of the magnetization of uniaxial superparamagnetic nanoparticles*”, J. Appl. Phys. **110**, 023901 (2011). H. El Mrabti, P. M. Déjardin, S. V. Titov, and Yu. P. Kalmykov, “*Damping dependence in dynamic magnetic hysteresis of single-domain ferromagnetic particles*”, Phys. Rev. B **85**, 094425 (2012).
- [8] N. A. Usov and Yu. B. Grebenshchikov, “*Hysteresis loops of an assembly of superparamagnetic nanoparticles with uniaxial anisotropy*”, J. Appl. Phys. **105**, 043904 (2009).
- [9] D.H. Kim, K.N. Kim, K.M. Kim, I.B Shim, and Y-K. Lee, “*Surface-modified magnetite nanoparticles for hyperthermia: Preparation, characterization, and cytotoxicity studies*”, Current Applied Physics, **246** p242, (2006).
- [10] R.K.Gilchrist, R.Medal, W.D.Shorey, R.C. Hanselman, J.C.Parrott, C.B.Taylor. Selective inductive heating of lymph nodes. Ann Surg. 1957;146:596–606.
- [11] Blanco-Andujar, F.J.Teran, D.Ortega, M.Mahmoudi, S. Laurent “*Iron Oxide Nanoparticles for Biomedical Applications*”, (2018) Chapter 8-Current outlook and perspectives on nanoparticle-mediated magnetic hyperthermia. p. 197

- [12] Kumar C, Mohammad F. *Magnetic nanomaterials for hyperthermia-based therapy and controlled drug delivery*. Adv Drug Deliv Rev. 2011;63 (9): 789
- [13] Xiaoli Liu, Yifan Zhang et al Theranostics v.10(8); PMC7069093
- [14] B.Ouari and Y. P. Kalmykov, *Dynamics of the magnetization of single domain particles having triaxial anisotropy subjected to a uniform dc magnetic field* ,J. Appl. Phys, Vol 100, p.123912 (2007). M.Madani and B.Ouari,, *“Effect of a Dc Oblique Magnetic Field on the Magnetic Susceptibility of the Super-Paramagnetics Nanoparticles in Very Low Damping”*, journal of Physics and optics sciences , 2(3), 1-3 (2020)
- [15] B.Ouari, S. V. Titov , Halim El Mrabi, Y. P. Kalmykov, *“Nonlinear susceptibility and dynamic hysteresis loops of magnetic nanoparticles with biaxial anisotropy”*, J. Appl. Phys **113**, 053903 (2013), M.Madani, A.Missoum, B.Ouari, and S.Titov, *“Influence of the Azimuthal Angle on the Dynamic Forced Response of the Magnetization of Nanoparticles in Superimposed Ac and Dc Bias Field ”* J. Comput. Theor. Nanosci. 18, 1153–1161 (2021)
- [16] W.T. Coffey, Y. P Kalmykov, S.V. Titov *“Thermal Fluctuations And Relaxation Processes In Nanomagnets”*( World Scientific Publishing, Co, Pte, Ltd) (2020)
- [17] S. V. Titov, P. M. Déjardin, H. El Mrabti, and Yu. P. Kalmykov, *“Nonlinear magnetization relaxation of superparamagnetic nanoparticles in superimposed ac and dc magnetic bias fields”*, Phys. Rev. B **82**, 100413(R) (2010).
- [18] Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, and R. Perzynski, *“Dynamic hysteresis of a superparamagnetic nanoparticle”* Physica B **343**, 262 (2004).
- [19] I. S. Poperechny, Yu. L. Raikher, and V. I. Stepanov, *“Dynamic magnetic hysteresis in single-domain particles with uniaxial anisotropy”* Phys. Rev. B **82**, 174423 (2012).
- [20] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *“A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys”*, Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A **240**, 599 (1948).
- [21] G. T. Landi and A. F. Bakuzis, *“On the energy conversion efficiency in magnetic hyperthermia applications: A new perspective to analyze the departure from the linear regime”*, J. Appl. Phys **111**, 083915 (2013).
- [22] E.Garaio, O.Sandre, J.M.Collantes and J.A.Garcia *“Specific absorption rate dependence on temperature in magnetic field hyperthermia measured by dynamic hysteresis losses”*, Nanotechnology, Institute of Physics **26**, pp.015704, (2015).

---

# **Chapitre IV**

## **Dynamique non-linéaire de l'aimantation des nanoparticules Superparamagnétiques**

---

## IV.1 Introduction

Dans le cadre de l'anisotropie biaxiale, nous exposons dans ce chapitre les résultats obtenus sur la relaxation de l'aimantation dans les nanoparticules magnétiques en présence d'un champ ac fort, en utilisant la théorie de rotation cohérente de l'aimantation de Brown. Les solutions sont obtenues par la résolution numérique de l'équation de Gilbert-Langevin en termes de fractions continues matricielles déjà expliqué dans le chapitre I et II. Nous calculons la susceptibilité non-linéaire et la Dynamique d'Hystérésis Magnétique (DMH), en fonction du paramètre d'anisotropie biaxiale  $\Delta$ , de l'amplitude des champs dc et ac, et de l'anisotropie, etc. Nous démontrons que, pour une orientation oblique du champ magnétique ac, la dynamique de l'aimantation change considérablement conduisant à des effets non-linéaires qui dépendent fortement de la température, à basse, intermédiaire et haute fréquence. Nous montrons aussi que la réponse stationnaire non-linéaire et les cycles DMH dépendent de l'angle azimutal du champ ac et pas seulement de l'angle polaire entre le champ externe et la direction de facile aimantation, nous exposerons par la suite une partie importante du chapitre qui est l'hyperthermie magnétique.

Nous avons traité jusqu'à maintenant la dynamique de l'aimantation pour des nanoparticules à anisotropie uniaxiale. Bien que l'utilisation d'un potentiel ayant une symétrie axiale simplifie considérablement l'analyse du problème, l'anisotropie des nanoparticules est rarement uniaxiale. Une première déviation à cette anisotropie est bien décrite par une anisotropie biaxiale,  $\beta V_{biax}(\mathcal{G}, \varphi)$ . Le traitement de la dynamique de l'aimantation des particules magnétique ayant une anisotropie biaxiale apporte une importance pratique et fondamentale. En particulier, l'équation (IV.1) décrit l'énergie d'anisotropie magnétique d'une particule sphérique monodomaine dont l'axe facile est incliné à un certain angle de l'axe de symétrie [1] de la particule. Le potentiel génère des distributions d'énergie azimutale non uniforme avec des points de selle qui mènent à de nouveaux effets, à savoir, la forte dépendance intrinsèque des caractéristiques magnétiques avec le paramètre d'amortissement [2,3,4]. Ici contrairement aux particules uniaxiales, la réponse stationnaire ac non-linéaire est fortement dépendante de la direction azimutale du champ alternatif. En utilisant une méthode basée sur une approche employée par Titov *et al.* [5], nous souhaitons étudier dans ce chapitre la relaxation de l'aimantation dans les nanoparticules avec une anisotropie biaxiale en présence d'un champ ac fort et du champ dc.

En présence des champs magnétiques externes dc et ac (  $\mathbf{H}_0 + \mathbf{H} \cos \omega t$  ) d'amplitudes et d'orientations arbitraires, l'énergie libre du système s'écrit :

$$\beta V = (\sigma + \Delta \cos^2 \varphi) \sin^2 \vartheta - \xi_0 (\gamma_1 \sin \vartheta \cos \varphi + \gamma_2 \sin \vartheta \sin \varphi + \gamma_3 \cos \vartheta) - \xi \cos \omega t (\gamma'_1 \sin \vartheta \cos \varphi + \gamma'_2 \sin \vartheta \sin \varphi + \gamma'_3 \cos \vartheta), \quad (\text{IV.1})$$

où  $\xi_0 = \beta H_0 M_S$  et  $\xi = \beta H M_S$  sont les amplitudes adimensionnées des champs magnétiques externes dc et ac respectivement,  $(\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3)$  et  $(\gamma'_1, \gamma'_2, \gamma'_3)$  sont les cosinus directeurs de  $\mathbf{H}_0$  et  $\mathbf{H}$  respectivement.

## IV.2 Hyperthermie Magnétique (Traitement des cancers par nanoparticules)

Dans le cadre de la lutte contre le cancer, il existe une nouvelle méthode basée sur «l'hyperthermie par fluide magnétique ». Cette technique prometteuse utilise les propriétés particulières des nanoparticules de ferrite de manganèse-zinc qui, sous l'effet d'un champ magnétique, vont chauffer, brûler les cellules cancéreuses mais tout en épargnant presque totalement les tissus sains. Cette nouvelle technique thérapeutique permet d'atteindre l'un des objectifs majeurs de la lutte contre le cancer : cibler toujours mieux les cellules tumorales en limitant toujours plus les effets secondaires. Actuellement, il existe en effet de nombreux types de traitements des cancers avec différents niveaux d'efficacité mais aussi différents niveaux d'effets secondaires et indésirables. Dans la majorité des cas, le traitement a bien l'impact voulu sur les cellules cancéreuses, mais s'avère également nocif pour les tissus sains adjacents ou pour le corps dans son ensemble. La technique consiste à introduire un gel à base de nanoparticules magnétiques dans une tumeur puis de l'exposer à un champ magnétique variable. Cela provoque le réchauffement des nanoparticules et conduit à la désactivation des cellules cancéreuses. Cependant, la majorité des matériaux pouvant être utilisés sont toxiques pour l'organisme : les particules continuent de chauffer à des températures relativement élevées, ce qui entraîne de graves dommages aux tissus sains. Mais ces nouvelles nanoparticules sont spéciales : leur température peut être modifiée en fonction du champ magnétique. C'est la température de Curie ou « point de Curie », la température à laquelle une forte diminution de l'aimantation est observée : « lorsque la température de Curie est atteinte, les particules cessent d'être aussi sensibles au champ magnétique et leur échauffement s'arrête et lorsque la température redescend, les particules se remettent à se réchauffer. Ces nanoparticules permettent, par leur composition, de contrôler de façon fine la température nécessaire pour tuer les cellules

cancéreuses, sans brûler les cellules saines environnantes. Les scientifiques ont de plus opté pour des ferrites dans lesquels le zinc et le manganèse interviennent dans une certaine proportion, de manière à n'avoir aucun effet toxique sur le corps. Ce bon rapport manganèse/zinc permet d'atteindre la température de Curie dans la plage de 40 à 60 degrés Celsius. Grâce à ce contrôle fin de la température, il devient possible de détruire les cellules cancéreuses avec un contact thermique à court terme qui épargne largement les tissus sains. L'hyperthermie, avec d'autres outils thérapeutiques, augmente sensiblement les chances de guérison pour les malades. Dans des études cliniques de phase III associant l'hyperthermie à la radiothérapie.

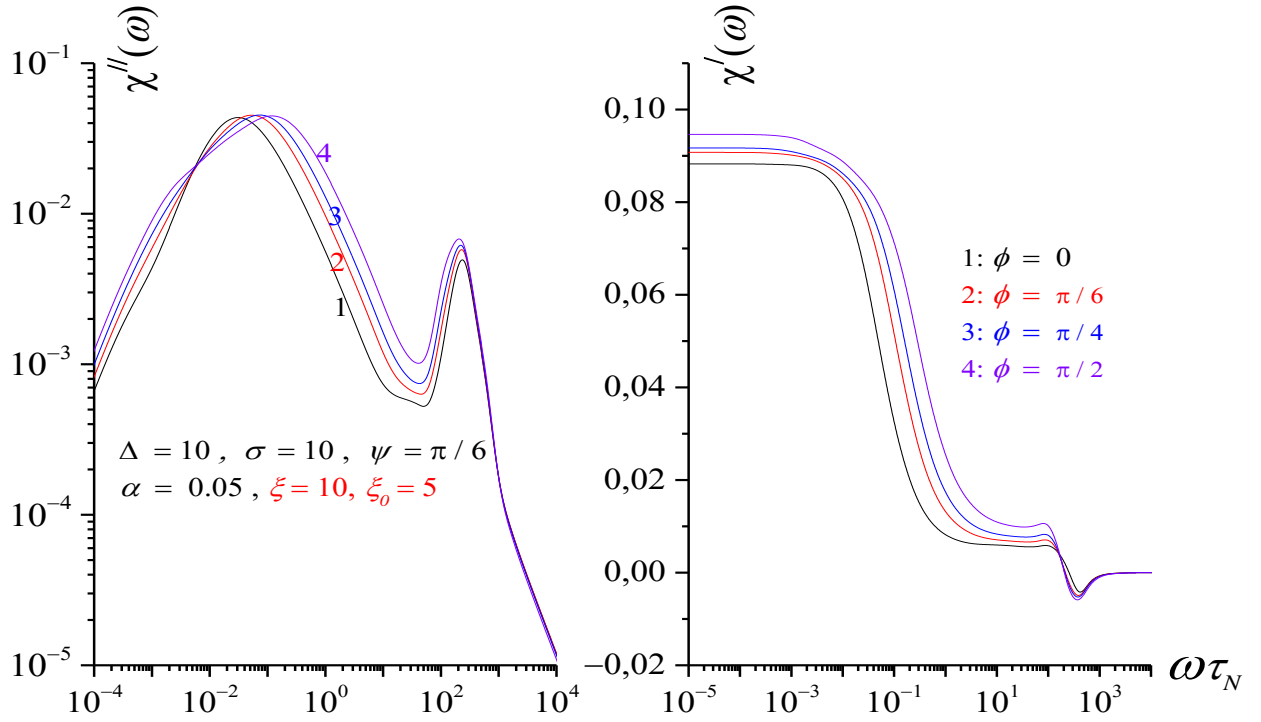
### IV.3.Résultats et discussions

Avec le même formalisme, les mêmes équations et les mêmes conditions utilisées dans le cas de l'anisotropie uniaxiale (chapitre I), nous pouvons évaluer numériquement à l'aide de la méthode MCF (voir chapitre 1), la susceptibilité non-linéaire  $\chi_1^1(\omega) = 6m_1^1(\omega) / \xi$  et tracer les cycles d'hystérésis, c'est-à-dire calculer  $M_H(t)$  en fonction de  $H(t) = H \cos \omega t$ .

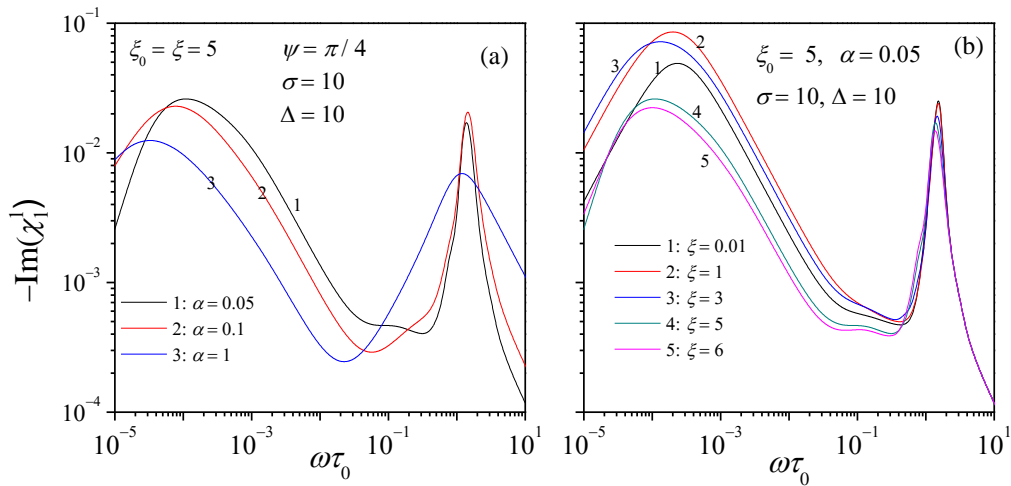
Pour un champ ac faible,  $\xi \ll 1$ , nos résultats sont en bon accord avec la théorie de la réponse linéaire [4]. Les figures IV.2 et IV.3 montrent l'évolution de  $-\text{Im}(\chi_1^1)$  en fonction de la fréquence  $\omega\tau_0$ , pour différentes valeurs de  $\Delta$ ,  $\sigma$ ,  $\xi_0$ ,  $\xi$  et  $\alpha$ . Les spectres de  $-\text{Im}(\chi_1^1)$  indiquent l'existence de trois bandes différentes pour des faibles dissipations ( $\alpha \ll 1$ ). Le comportement de la bande basse fréquence (BF) est dominé par le mode de passage de la barrière dû au retournement thermoactivé de l'aimantation. La seconde bande qui se manifeste à fréquence intermédiaire est due aux modes intrapuits qui sont pratiquement impossibles à distinguer dans les spectres de  $\chi_1^1(\omega)$  puisqu'ils apparaissent comme une seule bande. Pour un champ dc faible, l'amplitude de cette bande est beaucoup plus faible que celle de la bande BF. Cependant, pour un champ magnétique dc fort,  $\xi_0 \gg 1$ , cette bande peut dominer dans les spectres de  $\chi_1^1(\omega)$ . Lorsque  $\alpha$  est inférieur à 1, le pic FMR apparaît dans les spectres de  $\chi_1^1(\omega)$ , il est dû à l'excitation des modes transversaux avec des fréquences caractéristiques proches de la fréquence de précession de l'aimantation, et se manifeste uniquement à haute fréquence. Pour  $\psi = 0$  (figure IV.4 (a)) et contrairement à ce qui a été observé dans les nanoparticules magnétiques uniaxiales, le pic FMR est toujours présent dans les spectres de la susceptibilité

non-linéaire, parce que les modes transversaux participent toujours au processus de relaxation longitudinale. Pour  $\omega \gg \omega_{pr}$  le comportement de  $\chi_1^l(\omega)$  est indépendant de l'amplitude du champ ac. Pour  $\xi > 1$ , et  $\alpha \ll 1$  un second pic "résonant" apparaît à des fréquences  $\sim \omega_{pr}/2$ , en raison des effets non-linéaires causés par le fort champ ac. Ce phénomène est similaire à celui qui existe déjà dans des systèmes non-linéaires forcés par un champ alternatif [6] comme l'effet Josephson [7], etc.

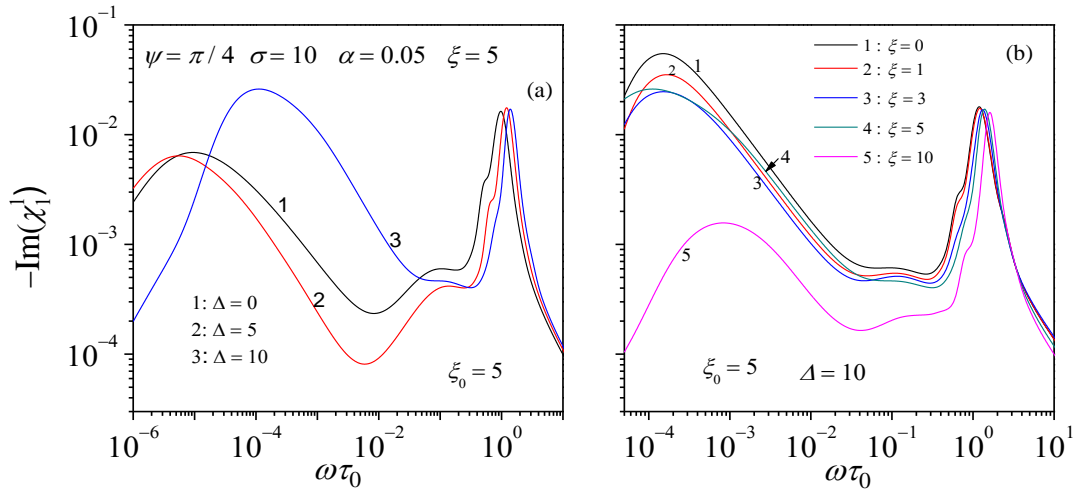
La forte dépendance de la susceptibilité non-linéaire en  $\alpha$  (figure IV.2 (a)) est une signature du couplage entre les modes longitudinaux et la précession de l'aimantation. De plus, le pic BF est très sensible à l'amplitude du champ dc : pour  $\xi_0 > 1$ , le pic BF se déplace vers les basses fréquences jusqu'à  $\xi_0 = \xi$ , puis repart vers les hautes fréquences quand  $\xi$  augmente (figure IV.1). D'une autre coté, on observe une forte diminution de l'intensité du pic BF par augmentation de  $\xi_0$  (figure IV.3 (b)) dû à l'effet de déplétion [8,9]. Un déplacement du pic BF est également observé par augmentation de  $\sigma$  (figure IV.4 (b)). En outre, la bande BF ne peut pas être décrite par une simple lorentzienne. Cependant, la fréquence caractéristique  $\omega_{\max}$  du maximum de la susceptibilité peut être utilisé pour estimer le temps "effectif" de relaxation de l'aimantation  $\tau$ , c'est-à-dire  $\tau \approx \omega_{\max}^{-1}$ .



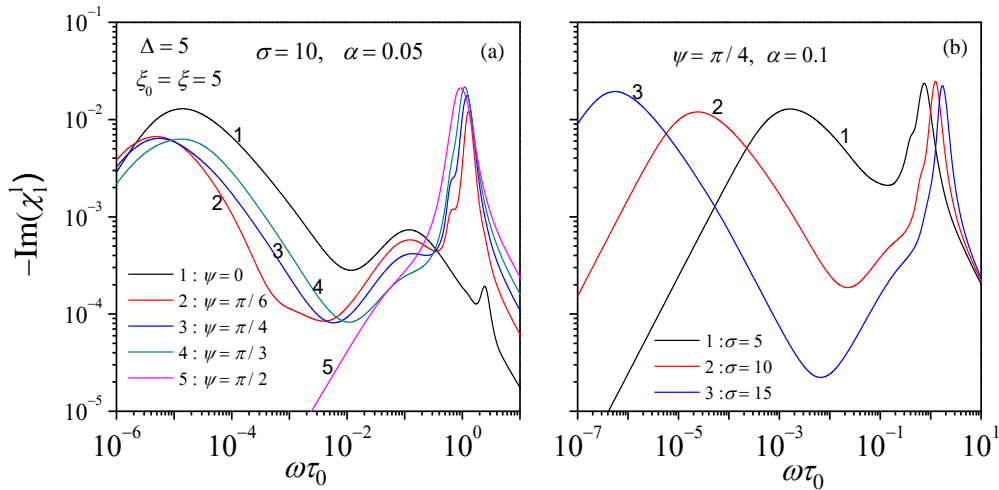
**Figure.IV.1** Susceptibilité non-linéaire  $-\text{Im}(\chi_1^l)$  et  $\text{Re}[\chi(\omega)]$  vs.  $\omega\tau_0$ ; pour  $\Delta=\sigma=10$ ;  $\alpha = 0,05; \phi = 0, \pi/6, \pi/4, \pi/2,$ ;



**Figure IV.2 :** Susceptibilité non-linéaire  $-\text{Im}(\chi_1^l)$  vs.  $\omega\tau_0$ ; (a) : pour  $\alpha = 0,05, 0,1$  et  $1$ ; (b) : pour  $\xi = 0,01, 1, 3, 5$  et  $6$ .



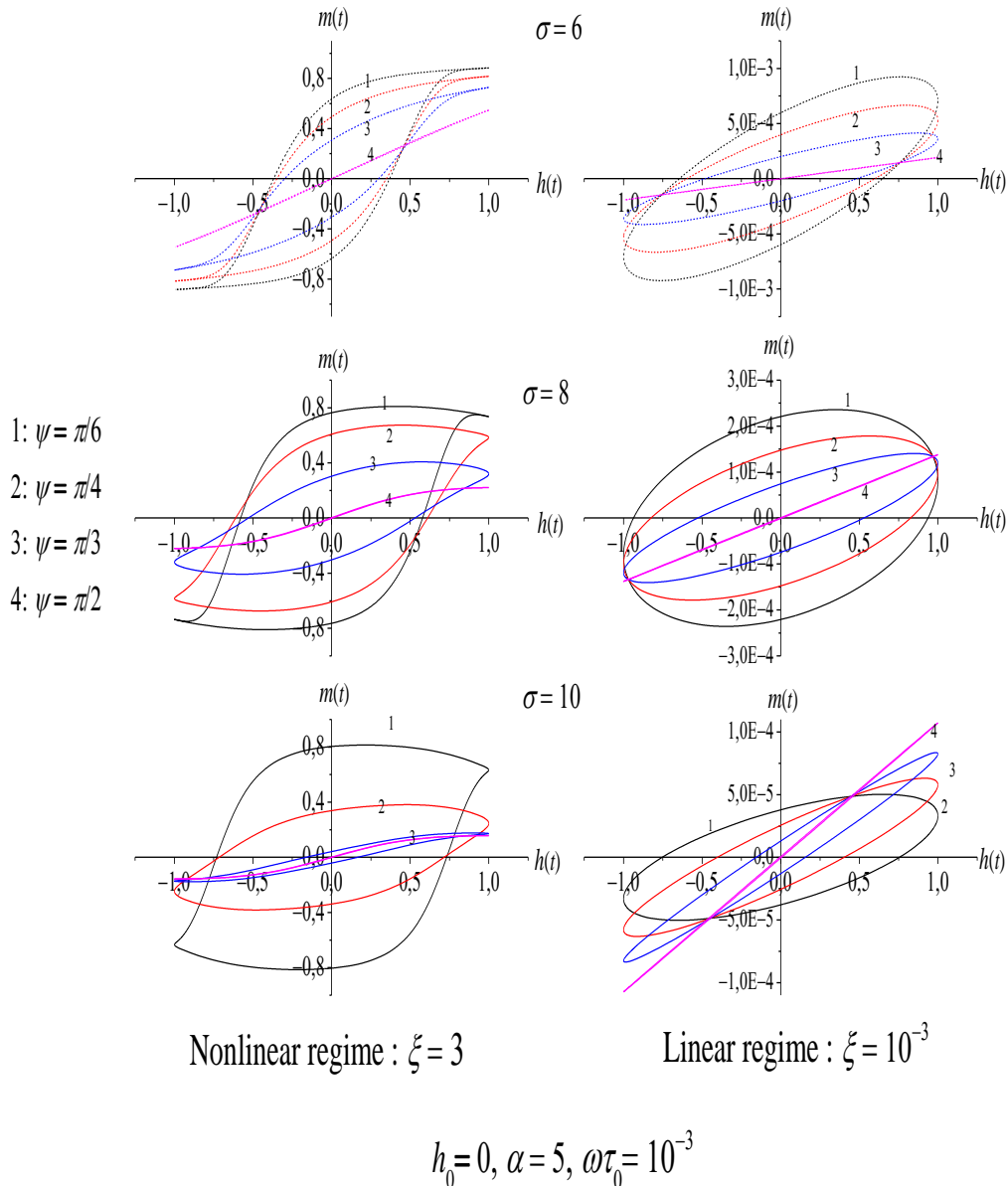
**Figure IV.3 :** Susceptibilité non-linéaire  $-\text{Im}(\chi_1^1)$  vs. de  $\omega\tau_0$ ; (a) : pour  $\Delta = 0,5$  et  $10$ ; (b) : pour  $\xi = 0, 1, 3, 5$  et  $10$



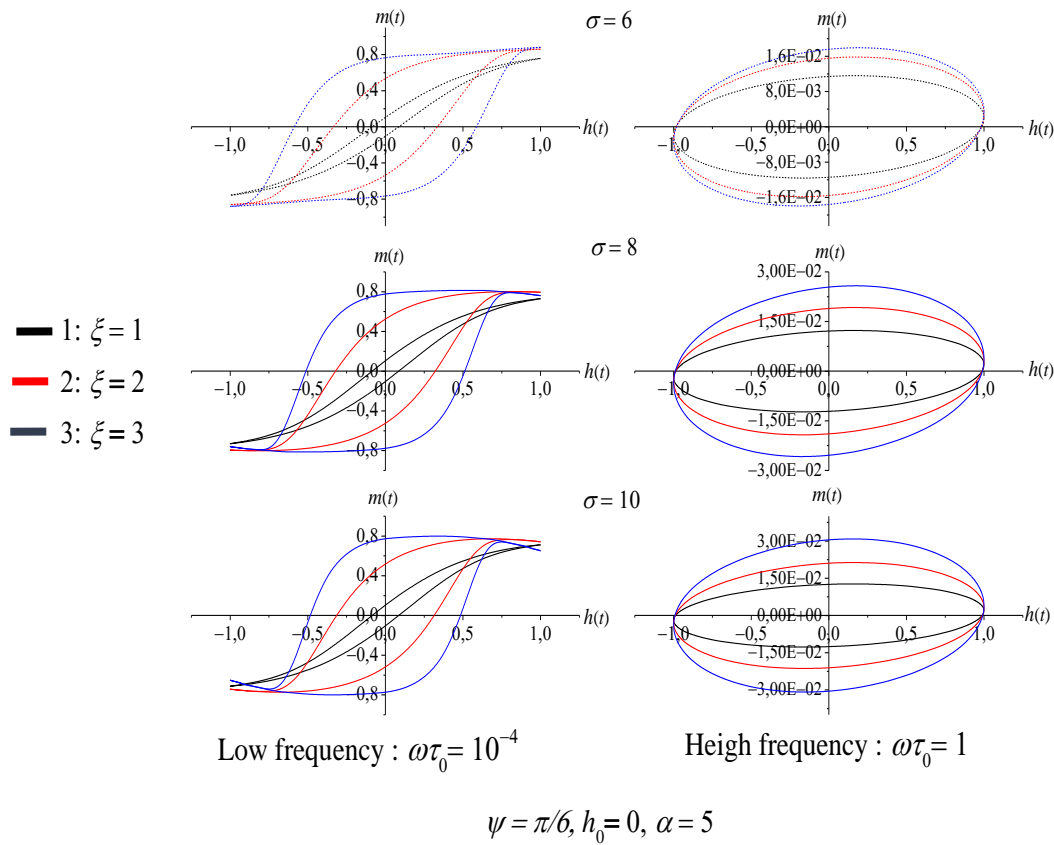
**Figure IV.4 :** Susceptibilité non-linéaire  $-\text{Im}(\chi_1^1)$  vs.  $\omega\tau_0$ ; (a) : pour différents angles  $\psi$ ; (b) : pour différentes valeurs de  $\sigma$

Maintenant, nous présentons les cycles d'hystérésis magnétiques dynamiques (DMH) dans la figure IV.5, nous avons tracé le Cycle DMH pour différentes valeurs de l'orientation du champs magnétique  $\psi$  pour une constante de biaxialité  $\Delta = 10$  et pour différents valeurs de la barrière  $\sigma$ , dans deux régimes distinct, linéaire et non linéaire champ ac, uniquement dans les basse fréquences. A travers cette figure on montre que la taille du cycle est inversement proportionnelle avec la valeur de l'orientation du champs magnetique, la taille du cycle est maxiamel pour une valeur de  $\psi = \pi / 6$ . Dans le régime linéaire les cycles prennent la forme

ellipsoidal. La dépendance de la DMH avec  $\xi$ ,  $\sigma$  et la fréquence du champ ac,  $\omega\tau_0$ , est illustrée dans les figures IV.6-IV.7. Notons que les résultats sont interprétés par rapport au champ coercitif et/ou rémanent.



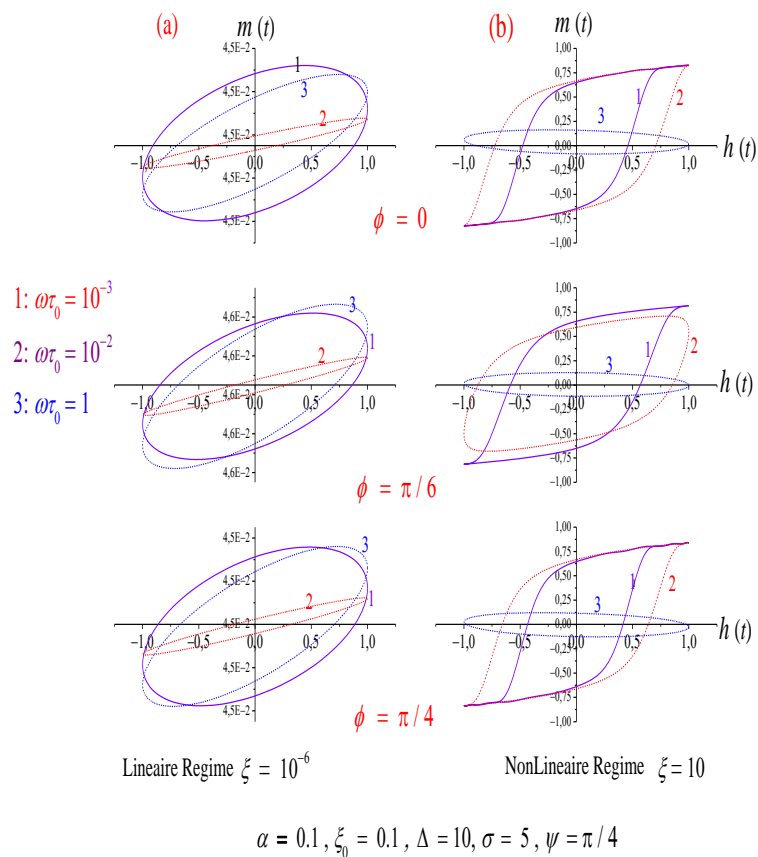
**Figure IV.5** : DMH pour plusieurs valeurs de la barrière et l'angle d'orientation du champ.



**Figure IV.6 :** DMH pour différents valeur de l'amplitude du champs.

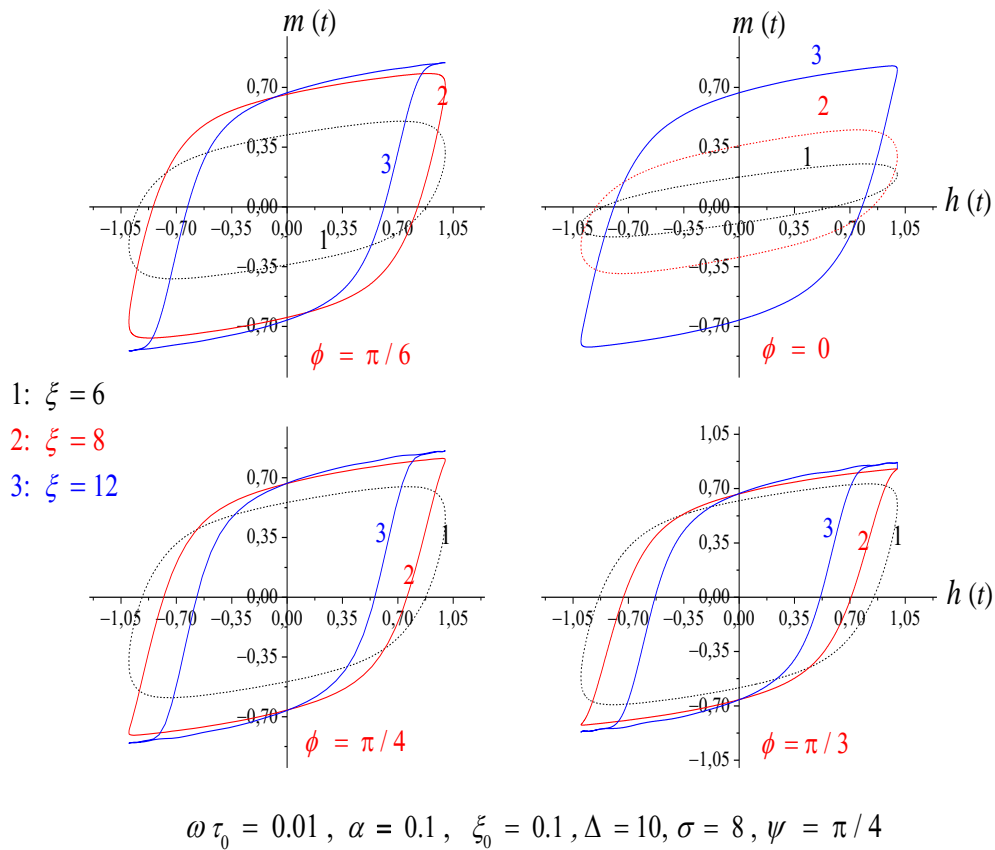
Dans la figure IV.6, nous avons tracé  $m(h)$ , pour différents valeur de champ  $A_c$ , la dépendance est très importante pour les grandes amplitudes, dans les basses fréquences, les cycles prennent leurs formes classique habituelles, et leurs taille augmentent avec la croissance de la valeur du champs  $A_c$ , dans les hautes fréquences, la forme des cycles change complètement et deviennent ellipsoïdales, la taille des ellipsoïdes est proportionnelle avec la valeur du champ  $A_c$ .

Dans la Figure IV.7, nous avons tracé les cycles DMH en fonction de la fréquence  $\omega\tau_0$  pour  $\sigma = 5$  et  $\alpha = 0.1$ ,  $\psi = \pi/4$  et  $\xi = 10$ . Nous observons que les cycles correspondants deviennent de plus en plus courtes et larges en augmentant  $\omega\tau_0$  pour devenir finalement quasi-elliptiques vers  $\omega\tau_0 = 1$ . Ce comportement à haute fréquence est due à l'apparition de la bande FMR. Ainsi, la DMH de telles particules résultant d'un signal périodique haute fréquence peut être évaluée en fonction de l'amortissement, l'orientation du champ  $ac$ , etc. permettant une analyse quantitative du retournement ultra-rapide de l'aimantation.



**Figure IV.7** DMH en fonction de fréquence  $\omega\tau_0$

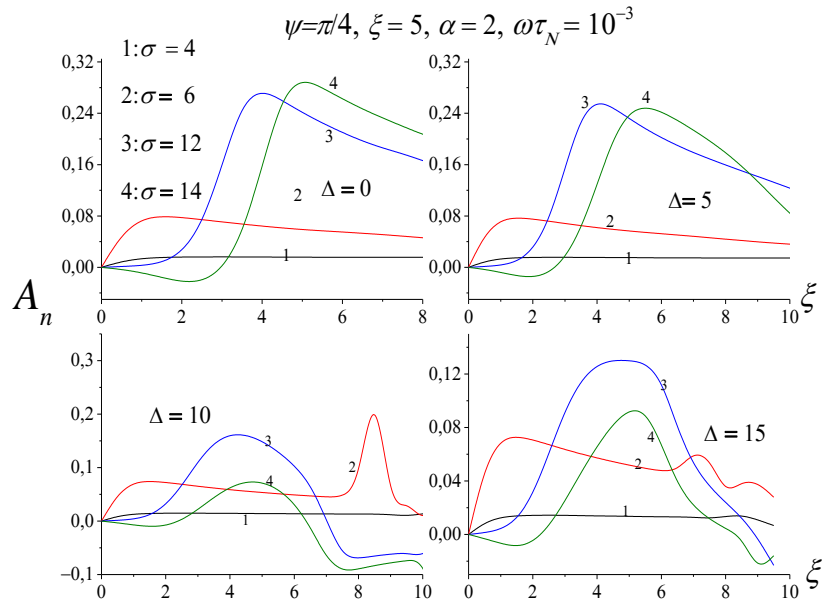
Dans la figure IV.8 nous avons tracé les cycles DMH pour différents valeurs de l'amplitude du champ et, pour différentes valeur d'angle azimutal ; dans les basses fréquences, On remarque que la taille des cycles et proportionnelles a la variations du champ , est les cycles ont une forme classique



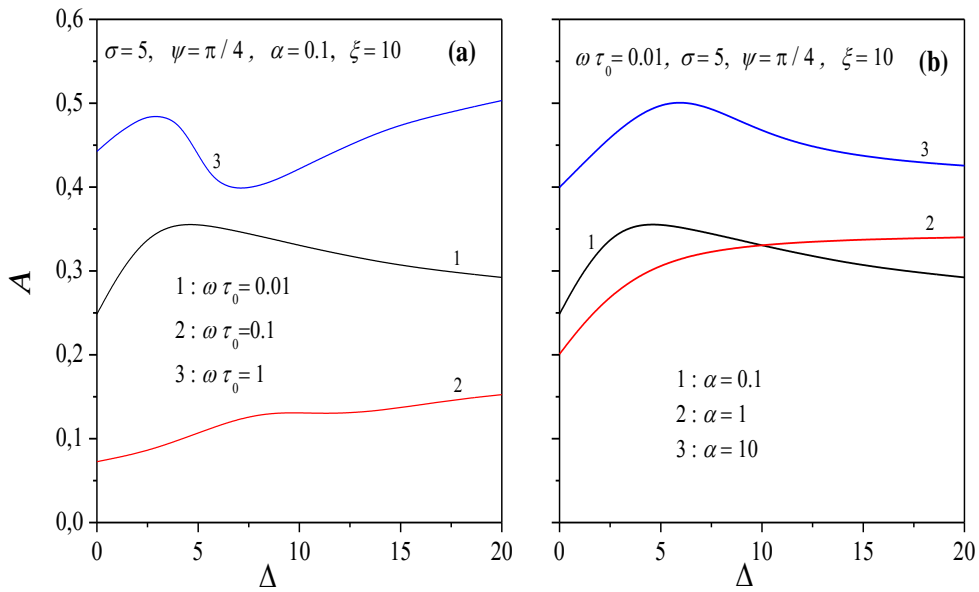
**Figure IV.8** DMH pour différents valeurs de l'amplitude du champ.

L'effet de ces divers paramètres physiques (constante de biaxialité  $\Delta$ , hauteur de la barrière, angle oblique et fréquence du champ ac, et l'amortissement, etc.) sur la DMH, est illustré sur les figures IV.9 et IV.10 dans lesquelles nous avons calculé l'aire d'hystérésis normalisée  $A_n$  défini par :  $A_n = -\frac{\pi}{4} \text{Im}(m_1^1)$  qui donne la perte d'énergie par particule et par cycle du champ ac.

Ensuite  $A_n$  est tracé en fonction de la constante de biaxialité  $\Delta$  pour différentes valeurs de  $\sigma$ ,  $\psi$ ,  $\omega \tau_0$  et  $\alpha$ . Sur la figure IV.9, la dépendance de  $A_n$  en  $\sigma$  et  $\Delta$  est bien claire. Sur la figure IV.10,  $A_n$  augmente quand  $\alpha$  augmente, à cause des effets non-linéaires produit par le champ ac. La figure IV.10 montre que  $A_n$  dépend fortement de la fréquence et de l'amortissement, et le contrôle de ces paramètres est décisif pour obtenir une bonne valeur de  $A_n$ .

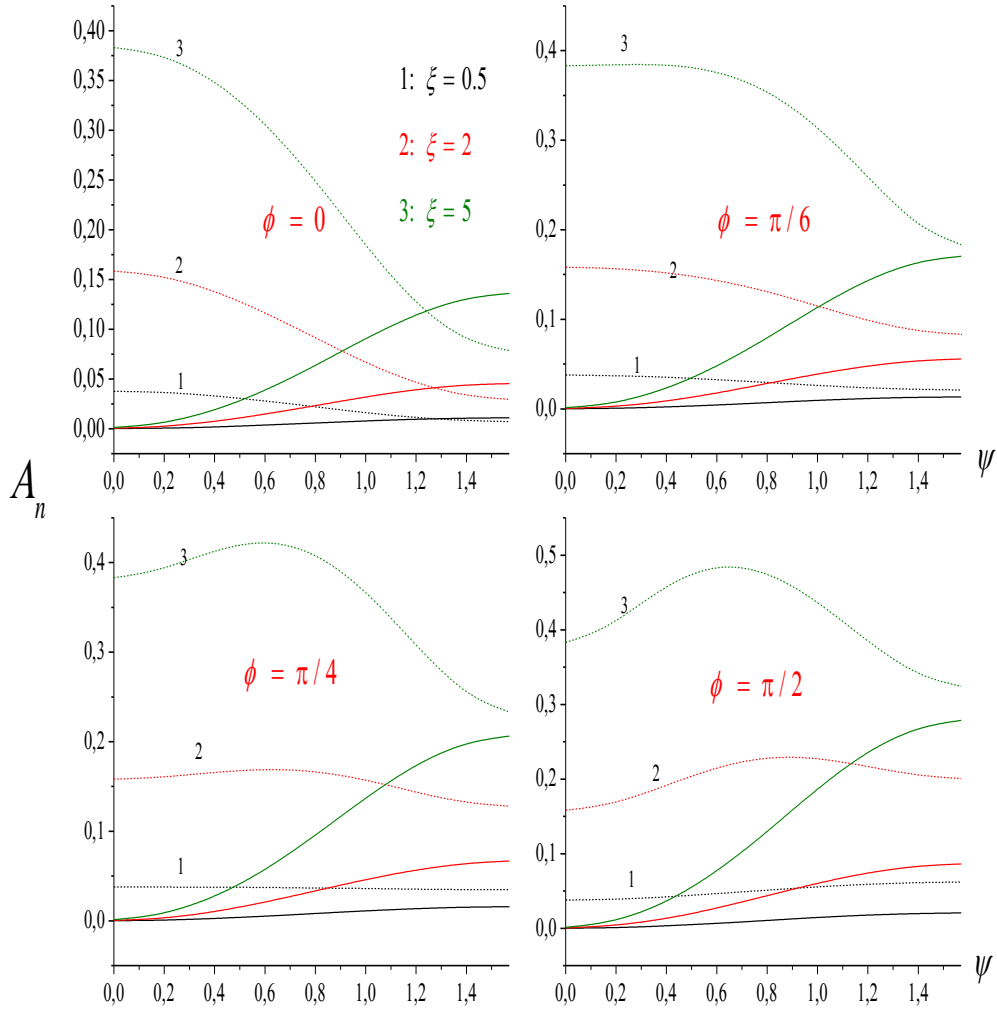


**Figure IV.9 :** Aire DMH en fonction de  $\xi$  :  $\sigma = 4, 6, 12, 14$  :  $\psi = \pi / 4$  .pour  $\Delta=0,5,10$  et 15.



**Figure.IV.10** Aire DMH en fonction de  $\Delta$  ; (a) :  $\omega\tau_0 = 0.01, 0.1$  et 1 ; (b) :  $\alpha = 0.1, 1$  et 10 .

$$\alpha = 0.2, \Delta = 10, \omega \tau_0 = 1$$



**Figure.IV.11** Aire DMH en fonction de  $\psi$  pour different valeur de  $\phi$ ;  $\phi = 0, \frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{6}$

Dans la figure IV.11 nous avons calculé l'aire d'hystérésis normalisée  $A_n$  en en fonction de  $\psi$  pour different valeur de  $\phi$ ; la dépendance de  $A_n$  en  $\xi$  et  $\phi$  est bien claire.

### IV.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons discuté l'effet d'un champ dc et ac sur la dynamique de l'aimantation des nanoparticules magnétiques avec une anisotropie biaxiale, en utilisant une approche non-perturbatrice. Dans la première partie, nous avons calculé numériquement la

susceptibilité non-linéaire  $\chi_1^1(\omega)$  en fonction de  $\Delta$ ,  $\sigma$ ,  $\alpha$ ,  $\xi_0$  et  $\xi$ . Nous avons remarqué que la réponse stationnaire non-linéaire est très sensible à la fois à l'amplitude et à l'orientation du champ ac, en raison du couplage entre la précession de l'aimantation et sa relaxation activée thermiquement. Nous tenons à souligner que pour un champ ac faible, les résultats de nos calculs sont en accord parfait avec la solution de la réponse linéaire [4]. De plus, pour  $\Delta = 0$ , les résultats de la réponse non-linéaire sont ceux trouvés dans le chapitre précédent. En général, les spectres de  $-\text{Im}(\chi_1^1)$  sont distingués par trois bandes de fréquences différentes dans lesquelles la bande de basse fréquence ne présente plus une caractéristique lorentzienne. Le couplage du mode précessionnel avec le longitudinal de l'aimantation entraîne une forte dépendance de la réponse dynamique non-linéaire avec l'amortissement  $\alpha$ . Cette dépendance intrinsèque de  $\alpha$  peut être utilisé pour déterminer le coefficient  $\alpha$  comme il est proposé par Garcia-Palacios et Svedlindh [10]. Il sera aussi possible de déterminer expérimentalement  $\alpha$  en ajustant la théorie aux données expérimentales de  $\chi_1^1(\omega)$  en fonction de l'orientation des champs dc et ac. La réponse non-linéaire de l'aimantation de nanoparticules biaxiales dépend dramatiquement de l'amplitude du champ ac. En particulier, par augmentation du champ ac, le pic de basse fréquence de  $\chi_1^1(\omega)$  s'oriente vers les fréquences les plus basses atteignant une valeur maximale qui vaut la même valeur du champ dc. Cela se traduit comme une augmentation du temps de relaxation de l'aimantation par augmentation du champ ac jusqu'à la même valeur du champ dc, puis diminue à nouveau. La participation des modes transversaux au processus de relaxation de l'aimantation des particules biaxiales ( $\psi = 0$ ) entraîne la présence du pic FMR en haute fréquence, contrairement aux particules uniaxiales où le pic FMR est complètement absent. L'apparition d'une absorption ferromagnétique secondaire à côté de l'absorption principale (FMR) est due aux effets non-linéaires du champ ac.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous avons calculé la DMH dans les nanoparticules biaxiales. Nous nous sommes focalisés spécialement sur l'influence de  $\Delta$ , et l'orientation du champ ac dans l'espace (angle polaire et azimutal). Nous avons remarqué que les cycles DMH sont fortement sensibles à  $\Delta$  et  $\alpha$  dans tous les domaines de fréquences. En particulier, aux basses fréquences, nous remarquons une forte dépendance de la DMH en  $\alpha$ , en raison du couplage du mode de renversement de l'aimantation activé thermiquement et le mode de précession de l'aimantation via le champ ac. Pour bien comprendre l'influence de la hauteur de la barrière  $\sigma$ , l'angle  $\psi$ , le paramètre d'amortissement  $\alpha$  et la fréquence du

champ ac,  $\omega\tau_0$ , sur la DMH des nanoparticules biaxiales nous avons calculé également l'aire normalisée  $A_n$  en fonction des différents paramètres physiques. Nous avons remarqué que  $A_n$  augmente avec  $\alpha$  (figure IV.10), provoquant l'apparition d'effets non-linéaires. Contrairement aux particules uniaxiales, nous avons montré que la DMH dépend fortement de la direction azimutale du champ ac, et pas seulement de l'angle polaire entre le champ ac et l'axe de facile aimantation.

#### IV.4 Bibliographie

- [1] C. D. Mee, *The Physics of Magnetic Recording* (North Holland, Amsterdam, 1986).
- [2] Y. Liu, D.J. Sellmyer, and D. Shindo, Eds. *Handbook of Advanced Magnetic Materials, Volumes I and II* (Springer, New York, 2006).
- [3] S.P. Gubin, Ed., *Magnetic Nanoparticles* (Wiley, New York, 2009).
- [4] A. Pankhurst, N. K. T. Thanh, S. K. Jones, and J. Dobson, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 42, 224001 (2009).
- [5] J. Carrey, B. Mehdaoui, and M. Respaud, *J. Appl. Phys.* 109, 083921 (2011); N. A. Usov and B. Y. Liubimov, *J. Appl. Phys.* 112, 023901 (2012).
- [6] E.A. Rérigó, G. Hemery, O. Sandre, and F.J. Teran, *Appl. Phys. Rev.* 2, 041302 (2015).
- [7] L. Néel, *Ann. Géophys.* 5, 99 (1949); *C. R. Acad. Sci. Paris* 228, 664 (1949).
- [8] C. P. Bean and J. D. Livingston, *J. Appl. Phys. Suppl.* 30, 120S (1959).
- [9] Yu. L. Raikher and V. I. Stepanov, *J. Exp. Theor. Phys.* 107, 435 (2008) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 134, 514 (2008)]; *J. Phys. Cond. Matter* 20, 204120 (2008).
- [10] L. Néel, *C. R. Acad. Sci. Paris* 252, 4075 (1961); *ibid.*253, 9 (1961); *ibid.*253, 203 (1961); *ibid.*253, 1286 (1961).

t

## Conclusion générale et perspective

Au cours de ce travail, nous avons traité la dynamique de relaxation de l'aimantation des nanoparticules superparamagnétiques avec une anisotropie Biaxiale via le modèle de Brown. Nous avons trouvé une solution de l'équation de Fokker-Planck qui décrit la dynamique de l'aimantation de ce système. Cette solution est basée sur une résolution exacte des équations de récurrence pour les moments stochastiques obtenus à l'aide de la méthode matricielles. Le processus de relaxation magnétique est donné par le temps de relaxation de l'aimantation.

Nous avons construit des programmes numériques avec lesquels on peut évaluer ces grandeurs pertinentes pour toutes les valeurs de la constante de dissipation  $\alpha$ , de la température  $T$ , des constantes d'anisotropie et des pulsations  $\omega$  et cela en présence d'un champ magnétique oblique. Nous avons donc conçu des outils numériques de calcul des paramètres physiques pertinent qui décrivent la relaxation de l'aimantation dans une particule superparamagnétique.

Nous avons démontré que l'influence d'un champ magnétique extérieur oblique sur le temps de relaxation de l'aimantation et la susceptibilité, initié par Coffey *et al.* et Garanin pour les particules superparamagnétiques uniaxiales, apparaît dans le processus de relaxation de l'aimantation des particules avec anisotropie Biaxiale. Cet effet se manifeste pour un écart entre le temps de relaxation et l'inverse de la plus petite valeur propre de l'équation de Fokker-Planck et qui s'explique par la déplétion de population dans le puits de potentiel le plus élevé. Le processus de relaxation n'est plus dominé par le mode lent associé au franchissement des barrières et les modes rapides ("intrawells") commencent à dominer dans le processus de relaxation.

Nous avons étudié l'effet de champ magnétique sur le temps de relaxation intégral  $\tau^{\text{int}}$ , la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker Planck  $\lambda_1 \tau_N$  et la susceptibilité magnétique  $\chi(\omega)$  des particules superparamagnétiques en présence d'un champ magnétique oblique  $\mathbf{H}_0$ . Nous avons conçu des programmes numériques qui nous ont permis de calculer ces grandeurs quelques soit la direction du champ magnétique. On sait bien que la présence de champ extérieur  $\mathbf{H}_0$  modifie le potentiel  $V$  et la réorientation de l'aimantation, ce qui fait apparaître de nouveaux phénomènes.

Nous avons démontré qu'en augmentant l'amplitude du champ magnétique oblique  $\mathbf{H}_0$ , le temps de renversement de l'aimantation  $\tau$  caractérisé par la plus petite valeur propre de l'opérateur de Fokker Planck  $\lambda_1 \tau_N$  diminue car le champ extérieur tend toujours à accélérer le processus de relaxation. Grâce à l'approche de Coffey *et al.*, nous avons vérifié nos calculs numérique avec l'équation analytique de Ouari-Kalmykov pour le temps  $\tau$  en présence d'un champ magnétique oblique quelque soit la valeur de la constante de dissipation  $\alpha$ . Nous avons discuté le comportement de  $\tau$  en fonction de la barrière  $\sigma$  pour différentes valeurs du champ  $h$  et du paramètre de biaxialité  $\Delta$ . Nous avons pu démontrer que l'équation que nous avons proposée estime correctement  $\tau$  pour toutes les valeurs des paramètres  $\sigma$ ,  $\Delta$ ,  $h$  et  $\alpha$ . On a comparé ces résultats avec le calcul exact et la correspondance est assez bonne. L'effet du champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  sur le temps de relaxation intégral  $\tau^{\text{int}}$  est qualitativement similaire à celui-ci

pour les particules uniaxiales en présence de champ. En l'absence de champ  $\mathbf{H}_0$ ,  $h = 0$ , le potentiel a une symétrie axiale et a deux minimums, et deux points de selle équivalents. Les deux puits sont séparés et ont les mêmes barrières. Dans la limite des basses températures, l'évolution de  $\tau/\tau_N$  en fonction de la barrière est de type Arrhenius. Pour  $h \neq 0$ , le potentiel devient asymétrique, les barrières non équivalentes et le deuxième puits disparaît pour  $h = h_s = 1$ . Seulement une fois que les particules superparamagnétiques soumises à un champ magnétique, on remarque qu'il existe une valeur critique de  $h_c = 0.17$  pour laquelle l'évolution de  $\tau/\tau_N$  n'est plus exponentielle ; c'est-à-dire, que le processus de relaxation n'est plus dominé par le mode lent associé au passage des barrières et les modes rapides commencent à dominer dans le processus de relaxation. Cet effet est la conséquence naturelle de la déplétion de population du puits le moins profond.

L'effet de champ apparaît aussi dans les spectres de la susceptibilité magnétique  $\chi(\omega)$ . Nous avons montré que pour les valeurs faibles du paramètre de champ  $h$ , le spectre de la partie imaginaire  $-\text{Im}[\chi(\omega)]$  possède trois pics en général et ressemble largement à celui sans champ. Le pic dans le domaine des basses fréquences se manifeste à cause du renversement de l'aimantation. La fréquence caractéristique  $\omega_1$  de ce pic et sa demi largeur  $\Delta\omega_1$  sont déterminées par le temps de relaxation de l'aimantation  $\tau$ . Le deuxième pic aux fréquences intermédiaires est la manifestation des oscillations de l'aimantation  $\mathbf{M}$  au fond des puits du potentiel. La fréquence caractéristique  $\omega_2$  de ce pic et sa demi-largeur sont déterminées par  $\tau_W$ . Le troisième pic rend compte de la résonance ferromagnétique, FMR. La FMR se manifeste aux hautes fréquences et elle est due à la précession de l'aimantation  $\mathbf{M}$ . Le champ magnétique a un effet déterminant sur les trois pics. L'effet du champ sur le premier pic avec fréquence caractéristique  $\omega_1$  est plus fort. Pour les valeurs élevées du paramètre de champ, ce pic n'apparaît plus dans le spectre. Nous avons démontré que l'équation analytique estime correctement les spectres de la susceptibilité magnétiques pour  $\alpha \geq 1$ . Il suffit donc d'avoir des informations précises sur la première valeur propre de l'opérateur de Fokker-Planck  $\lambda_1$ , le temps effectif  $\tau^{eff}$ , et le temps de relaxation intégral  $\tau^{int}$  pour estimer le spectre et donc décrire les phénomènes de la relaxation magnétique.

La réponse non-linéaire de l'aimantation de nanoparticules biaxiales dépend dramatiquement de l'amplitude du champ dc. En particulier, par augmentation du champ ac, le pic de basse fréquence de  $\chi_1^l(\omega)$  s'oriente vers les fréquences les plus basses atteignant une valeur maximale qui vaut la même valeur du champ dc. Cela se traduit comme une augmentation du temps de relaxation de l'aimantation par augmentation du champ ac jusqu'à la même valeur du champ dc, puis diminue à nouveau. La participation des modes transversaux au processus de relaxation de l'aimantation des particules biaxiales ( $\psi = 0$ ) entraîne la présence du pic FMR en haute fréquence, contrairement aux particules uniaxiales où le pic FMR est complètement absent. L'apparition d'une absorption ferromagnétique secondaire à côté de l'absorption principale (FMR) est due aux effets non-linéaires du champ ac.

Bien que le travail présenté ici puisse être considéré comme l'achèvement d'une étape définie dans la résolution du problème de la dynamique de l'aimantation des particules superparamagnétiques avec une anisotropie biaxiale, il y va de soi qu'il ouvre en même temps des voies vers de futurs développements. Ainsi, il est intéressant de réfléchir aux questions suivantes :

(i) *Le phénomène de la Relaxation magnétique* : Il nous semble intéressant d'appliquer les techniques développées dans la thèse pour explorer les divers phénomènes physiques liés à la relaxation de l'aimantation des particules superparamagnétiques avec l'anisotropie biaxiale. Ces problèmes ont fait l'objet d'une brève discussion dans le chapitre introductif. A titre d'exemple, on peut citer les problèmes de la résonance stochastique, de la température de blocage et de la réponse non linéaire. Il est évident qu'on peut traiter ces problèmes en exploitant les résultats pour le temps de relaxation de l'aimantation obtenue dans la thèse. D'autre part, on souhaite améliorer les calculs analytiques concernant le temps d'inversement de l'aimantation pour un champ magnétique uniforme  $\mathbf{H}_0$  orienté arbitrairement par rapport à l'axe facile de l'aimantation de la particule. Un calcul préliminaire effectué par Kebraoui [84] a montré qu'il est possible de calculer le temps de renversement de l'aimantation quelque soit l'orientation de  $\mathbf{H}_0$ .

(ii) *le phénomène de la Relaxation diélectrique* : Les résultats obtenus dans ce travail de thèse dans le domaine du superparamagnétisme peut être une application intéressante à d'autres phénomènes physiques : par exemple, dans le cas de la relaxation d'orientation des molécules dans les cristaux liquides biaxiaux. Le processus de la relaxation d'orientation dans ce système est décrit par l'équation de Fokker-Planck similaire à celle de Brown. Nous savons qu'il existe une grande analogie entre les effets magnétique et diélectrique. D'ailleurs, la ressemblance des équations cinétiques qui décrivent la dynamique de l'aimantation des nanoparticules et la polarisation diélectrique est étonnante.

## Publications au cours de la thèse

### Journaux Internationaux

1. **Malika Madani, Najeh Rekik, Bachir Ouari**, “*Elucidating the transverse magnetic susceptibility of superparamagnetic nanoparticles: a representative case of biaxial anisotropy nanoparticles*”, *Journal of European Physical Journal Plus* , September 2022,137(9).

2. **Malika Madani**, Adda Missoum, **Bachir Ouari** and Serguey.Titov “*Influence of the Azimuthal Angle on the Dynamic Forced Response of the Magnetization of Nanoparticles in Superimposed Ac and Dc Bias Field*”, *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience*. 18, 1153–1161 (2021).

3. **Bachir Ouari, Malika Madani** and Mohamed Lagraa “*Effect of the Damping on the Magnetization of Antiferromagnetic Nanoparticles in a Presence of an Oblique Magnetic Field*”, *Journal of Physics & Optics Sciences* Volume 3(1): 7-7 (2021).

4. **Malika Madani** and **Bachir Ouari**, “*Effect of a Dc Oblique Magnetic Field on the Magnetic Susceptibility of the Super-Paramagnetics Nanoparticles in Very Low Damping*”, *Journal of Physics & Optics Sciences* , J Phy Opt Sci, Volume 2(3): 3-3, (2020)

5. **Malika Madani** and **Bachir Ouari** and Yu. P. Kalmykov, “*Super-Antiferromagnetics Nanoparticles for Magnetic Hyperthermia Applications: Effect of the Dc and Ac Magnetic Field*”, *Journal of Biotechnology & Bioinformatics Research* Volume 2(3): 5-5 (2020):

6. **B. Ouari**, Sid Ahmed Difi, “*Superparamagnetic nanoparticles, effect of the DC oblique field*”, Book, ISBN-13: 978-3639811827 (2017)

### Congrès Internationaux

1. M. Madani<sup>1</sup>, B. Ouari ,A. Benkaddour, A. Difi, A. Chaalane and Y.P. Kalmykov. **Dynamic of magnetization in the Super-Paramagnetic Nanoparticles: Effect of a DC Oblique field**; 3rd CONFERENCE ON ADVANCES IN MECHANICAL ENGINEERING ISTANBUL 2017-ICAME2017-21, December 2017, Yildiz Technical University, Istanbul, Turkey

2. M. Madani , B. Ouari , F. Benkhenafou , A. Difi, Y.P. Kalmykov , A Chaalane ; **Complex magnetic Susceptibility of the Biaxial SuperParamagnetics Nanoparticles: Effect of a DC Oblique field**; 3rd CONFERENCE ON ADVANCES IN MECHANICAL ENGINEERING ISTANBUL, ICAME2017, December17-21 2017, Yildiz Technical University, Istanbul, Turkey

3. Bachir Ouari , Malika Madani, Sid Ahmed Difi, Fethi Benkhenafou, Yuri P.Kalmykov et Serguey V. Titov; *Effect of a dc bias field on the nonlinear complex susceptibility and dynamic magnetic hysteresis of antiferromagnetic nanoparticles* ; 7<sup>ème</sup> Journées Dynamiques du Sud-Ouest » (<https://jds02017.sciencesconf.org>), Montpellier le 1er et le 2 juin 2017.

4. Bachir Ouari , Malika Madani, Fethi Benkhenafou, Yuri P. Kalmykov and Serguey V. Titov; *Effect of the temperature and the field amplitude on the longitudinal Dynamic Hysteresis in a single domain nanoparticles*. 4<sup>TH</sup> CONFERENCE ON ADVANCES IN MECHANICAL ENGINEERING ISTANBUL, ICAME2018, December19-21 2018, Yildiz Technical University, Istanbul, Turkey.

5. Malika Madani, Amel Bensenane, B. Ouari, F. Benkhenafou, A. Chaalane, Y.P.Kalmykov; *Relaxation time of the magnetization of antiferromagnetic nanoparticles Effet of the DC magnetic Field ic Hysteresis in a single domain nanoparticles*. 5<sup>TH</sup> CONFERENCE ON ADVANCES IN MECHANICAL ENGINEERING ISTANBUL, ICAME2019, December 17-19, 2019, Yildiz Technical University, Istanbul, Turkey.



# Elucidating the transverse magnetic susceptibility of superparamagnetic nanoparticles: a representative case of biaxial anisotropy nanoparticles

Malika Madani<sup>1</sup>, Najeh Rejik<sup>2,3,a</sup> , Bachir Ouari<sup>1,4,b</sup>, Ahmed A. Alotaibi<sup>5</sup>, Umer Farooq<sup>2</sup>, A. Wahab M. A. Hussein<sup>2</sup>, Hira Affan<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Physic Department, University of Tlemcen, Rocade II, 13000 Tlemcen, Algeria

<sup>2</sup> Physics Department, College of Science, University of Ha'il, Ha'il, Saudi Arabia

<sup>3</sup> Department of Chemistry, University of Alberta, Edmonton, AB T6G 2G2, Canada

<sup>4</sup> Laboratoire de Mathématiques et Physique, Université de Perpignan Via Domitia, 66860 Perpignan, France

<sup>5</sup> Department of Chemistry, College of Science, University of Ha'il, Ha'il, Saudi Arabia

Received: 6 May 2022 / Accepted: 2 September 2022

© The Author(s), under exclusive licence to Società Italiana di Fisica and Springer-Verlag GmbH Germany, part of Springer Nature 2022

**Abstract** The Gilbert fascinating nonlinear equation provides a fundamental evolution of the magnetization dynamics, but its evaluation for the determination of the magnetic relaxation of superparamagnetic nanoparticles systems with a biaxial anisotropy still presents a formidable computational challenge. Herein, we report using Gilbert's equation an infinite hierarchy of differential recurrence relations to determine the equilibrium transverse correlation functions susceptible to evaluate the magnetic relaxation of superparamagnetic nanoparticles with a biaxial anisotropy. By solving the so-called infinite hierarchy, within the framework of the linear response theory, an ensemble of exact expressions of the transverse magnetic susceptibility is obtained. This framework yields exact expressions in terms of matrix continued fractions. To demonstrate the utility of the present approach, our results are compared and contrasted with those obtained using the numerically exact solutions. Despite some quantitative differences, a decent agreement between the approximated results and the exact solutions is elucidated. The candidacy and the accuracy of the analytical equations determined on the basis of the effective eigenvalue method, for a variety of applications, are established. The findings reported herein show that the analytical results perform quite well and are capable of capturing the expected trends of the exact solutions. These results hold promise for realistic nanoscale systems and pave the way for an accurate simulation of the magnetic relaxation of superparamagnetic nanoparticles having biaxial anisotropy.

## 1 Introduction

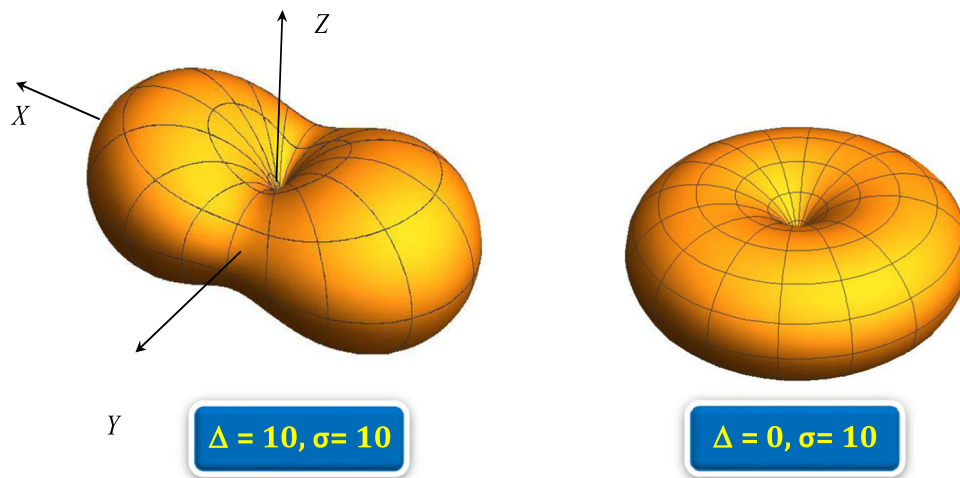
The magnetization distribution of ferromagnetic nanoparticles is usually evaluated using the joint solution of magnetostatic and Landau–Lifshitz equations which are nonlinear equations by nature; and hence, in most cases the determination of the magnetization field is difficult to be solved analytically. Simplified approaches of magnetic configurations have been devoted to estimate the properties of heterogeneous magnetic configurations in ferromagnetic systems with biaxial anisotropy. These approaches, which are systematically used to analyze ferromagnetic systems with transverse uniaxial anisotropy, are more or less comprehensively.

In case of a single domain ferromagnetic particle, characterized by a biaxial anisotropy, the magnetization distribution is usually determined by considering an internal double well potential. This potential is characterized by two stable stationary points and presenting a valued potential barrier between these two points. In case we consider a sufficiently fine particle, corresponding to the special situation of low potential barrier, the magnetization vector  $M$  may experience a rotation because of the thermal agitation, and thereby may overcoming the barrier, as rationalized by the pioneering work conducted by Néel [1].

Herein, we should emphasize that the instability of the magnetization due the thermal agitation ascends mainly from the pretended superparamagnetism mechanism [2]. This mechanism systematically is generated by the enormous paramagnet of magnetic moment of each fine particle, susceptible to reach an important value of  $10^4 - 10^5$  Bohr magnetons. Furthermore, it is important to notice that the thermal fluctuations as well as the magnetization relaxation of a single domain particle have attract nowadays attention in view of its advantageous application in thermal-assisted magnetic recording media and Magnetism-related technology. Due to their interesting applications and their exceptionally high thermal stability, the magnetization comportment/activities of single domain ferromagnetic particle have been the focus of many studies. In an important paper, Landau and Lifshitz established an equation of motion that describes the magnetization average behavior [3]. In a subsequent interesting work, Gilbert managed to modify

<sup>a</sup> e-mail: [rekik@ualberta.ca](mailto:rekik@ualberta.ca) (corresponding author)

<sup>b</sup> e-mail: [Bachir.Ouari@ac-montpellier.fr](mailto:Bachir.Ouari@ac-montpellier.fr) (corresponding author)



**Fig. 1** Biaxial anisotropy (left  $\Delta = 0; \sigma = 10$ ), Uniaxial anisotropy (Right  $\Delta = 0; \sigma = 10$ ) (Eq. 1)

the original equation of Landau and Lifshitz and provided a similar equation susceptible to describe the precessional motion of magnetization  $M$  in a solid [4]. Later, Brown proposed an innovative theory by presenting an extension of the equations of motion established by Landau and Lifshitz and Gilbert [5–7]. In his model, Brown achieved to reliably describe the full dynamic behavior of the magnetization of an individual single domain ferromagnetic particle in contrast to previous equations restricted only for the determination of the average behavior. Brown's theory is conjunctly based on the theory of Brownian motion and Langevin equation approach [6]. He realized that the Gilbert's equation transformed to Landau-Lifshitz form [7], can serve as the Langevin equation. By doing so he was able to concept the fundamental equation of the probability density diffusion, namely the Fokker-Planck equation [8].

In order to achieve his theory, Brown developed the equation of motion in spherical polar coordinates and using the congregated methods of Wang and Uhlenbeck [9] along with the Stratonovich [10] definition of the derivative of a stochastic variable, Brown was able to provide an analytical equation susceptible to designate the distribution function describing the orientations of the magnetization vector  $M$  in spherical coordinates. One of the leading advantages of the established equation, known as Fokker-Planck equation, is that can be solved using the method of separation of the variables in the special situations dealing with axial symmetry. In such circumstances, the used approach gives rise to an equation of Sturm-Liouville type [11]. An alternative method to the problem, especially when the axial symmetry is not confined, consists to expand  $W$  as a series of spherical harmonics. This set of spherical harmonics is apt to yield an infinite hierarchy of linear differential-recurrence equations for averaged spherical harmonics. Furthermore, the obtained infinite hierarchy afford be then determined by calculating the eigenvalues and eigenvectors of the system matrix. A much more efficiently approach consists to use instead the matrix continued fraction method [10, 11]. Additionally, the aforementioned hierarchy may be obtained by averaging Gilbert's equation without the resort to the Fokker-Planck equation [12]. In such conditions, the free energy density  $V$  of a single domain particle, characterized by a biaxial anisotropy, is given [12]:

$$\beta V = (\sigma + \Delta) \sin^2 \theta - \Delta \sin^2 \theta \sin^2 \phi \quad (1)$$

In last equation,  $\sigma$  and  $\Delta$  are the barrier and biaxiality parameters corresponding to biaxial anisotrope particle expressed in spherical coordinate system, where  $\theta$  and  $\phi$  are the polar and the azimuthal angles. We should emphasize herein that the focus on this particular representative case is mainly due to the fact that the biaxial anisotropy may yield a substantial contribution to the free energy density of magnetic nanoparticles. Interestingly, in the case spheroidal single-domain particle with easy anisotropy axis inclined at a certain angle to the particle axis of symmetry, the magnetic anisotropy energy can be described by Eq. (1), where an easy- and hard-axis anisotropy terms can be distinguished. However, we should stress that biaxial anisotropy produces azimuthally nonuniform energy distributions with two saddle points giving rise thereby to the apparition of new effects (see Fig. 1) [12].

The ultimate purpose of the present paper is to calculate the transverse magnetic susceptibility  $\chi_{\perp x}(\omega)$  and  $\chi_{\perp y}(\omega)$  of a non-interacting single domain superparamagnetic nanoparticles. The exact solutions for  $\chi_{\perp x}(\omega)$  and  $\chi_{\perp y}(\omega)$  are obtained in terms of matrix continued fractions [12, 13] by considering the methodology provided by Coffey et al.' approach [12, 13]. This approach, which is susceptible to provide an appropriate solution of the infinite hierarchy of differential-recurrence relations, allows for the determination of exact solution for the longitudinal relaxation [12]. The method is founded on the concept of matrix continued fractions and fundamentally institutes a supplementary development of Risken's method [11]. The Gilbert's equation in the presence of thermal agitation is given by [6]:

$$\frac{d}{dt} M(t) = \gamma M(t) \times (\langle H_{eff}(\theta, \phi) \rangle) - \eta \frac{d}{dt} M(t) \quad (2)$$

Where  $\eta$  is the damping parameter,  $\gamma$  is the gyromagnetic ratio, and  $\langle H_{eff}(\theta, \phi) \rangle$  is the effective magnetic field, which can be expressed by the following equation, where  $\mu$  is the magnetic moment:

$$H_{eff}(\theta, \phi) = -\frac{\partial V}{\partial \mu}$$

It is presumed throughout the present analysis that the magnetization is uniform inside the particle and only the orientation is subject to modifications. The saturation magnetization  $M_s$  and the damping constant  $\alpha$  are connected to each other as can be depicted by the following equation:

$$\alpha = \gamma \eta M_s \tag{3}$$

Referring to magnetic relaxation in uniaxial particles, Brown [5] estimated the reversal time of the magnetization  $\tau$  for the case when  $\mathbf{H}_0$  is applied along the easy axis of the magnetization as (in our notation)

$$\tau \sim \tau_N \pi^{\frac{1}{2}} \sigma^{-\frac{3}{2}} \left\{ (1 - h^2) \left[ (1 + h) e^{-\sigma(1+h)^2} + (1 - h) e^{-\sigma(1-h)^2} \right] \right\} \tag{4}$$

where  $\sigma = \beta K$  and  $h = \zeta / 2\sigma$  are the dimensionless barrier and field parameters, respectively;  $\zeta = \beta M_s H_0$ ,  $\beta = v / kT$ ,  $v$  is the volume of the particle,  $T$  is the temperature,  $k$  is the Boltzmann constant,  $M_s$ , is the saturation magnetization.

$$\tau_N = \beta M_s \frac{(1 + \alpha^2)}{2\gamma\alpha}$$

is the free diffusion time of the magnetization.

The paper is organized as follows: Sect. 2 contains an overview of the basic equations of the transverse magnetic susceptibility and relaxation time. In Sect. 3, we present and discuss the obtained results and concluding remarks are made in Sect. 4.

### 2 Transverse magnetic susceptibility and relaxation time

The magnetization decay  $M(t)$  of a non-interacting single domain superparamagnetic nanoparticles may be determined within the framework of linear response theory [11–13]. Using the principal results of this theory, the expression of the average value of the magnetization of the particle in the perpendicular direction, namely  $M_{\perp}(t)$ , when a small constant external field  $H_1 (\mu(\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_1) / kT \ll 1)$  is applied and having been switched off at time  $t = 0$ , may be written as following [13]:

$$\langle M_{\perp}(t) \rangle = \chi_{\perp} H_1 C_{\perp}(t) \tag{5}$$

In case we consider the transverse relaxation,  $(H_0 \perp H_1)$ , the components of the static magnetic susceptibility,  $\chi_{\perp x}$  and  $\chi_{\perp y}$ , may be written by the following expressions [12]:

$$\chi_{x\perp} = \frac{v^2 N_0}{kT} [\langle M_x^2(0) \rangle_0] \tag{6}$$

$$\chi_{y\perp} = \frac{v^2 N_0}{kT} [\langle M_y^2(0) \rangle_0] \tag{7}$$

where  $v$  is the volume of the particle, and  $N_0$  is the number of particles per volume unit. In case we treat the special case of biaxial anisotropy, we should notice that the static magnetic susceptibilities are not equal in the two considered directions, namely the (x) and (y) directions [12]. To quantitatively characterize the behavior of the correlation function  $C_{\gamma\gamma'}(t)$ , we formally introduce two times which are the integral relaxation time (correlation)  $\tau_{\perp}$  and the effective time  $\tau_{\perp}^{ef}$  by the following equations

$$\tau_{\perp} = \int_0^{\infty} C_{\perp}(t) dt \text{ and } \tau_{\perp}^{ef} = -\frac{1}{C_{\perp}(0)}$$

where  $C_{\perp}(t)$  is the autocorrelation function of the transverse components of the magnetization of the nanoparticle.

Furthermore, the normalized autocorrelation functions of the transverse components of the magnetization of the nanoparticles having biaxial anisotropy are given by [13]:

$$C_{\perp x}(t) = \frac{\langle \cos \phi(0) \sin \theta(0) \cos \phi(t) \sin \theta(t) \rangle_0}{\langle \cos^2 \phi(t) \sin^2 \theta(t) \rangle_0}$$

$$C_{\perp y}(t) = \frac{\langle \sin \phi(0) \sin \theta(0) \sin \phi(t) \sin \theta(t) \rangle_0}{\langle \sin^2 \phi(t) \sin^2 \theta(t) \rangle_0} \tag{8}$$

Here  $M_x, M_y$ , are the cartesian components of  $M$ , and the brackets  $\langle \rangle_0$  designate the equilibrium ensemble average. Working within the framework of the linear response theory [13], the components of the complex magnetic susceptibility tensor  $\chi_{\perp x}(\omega)$  and  $\chi_{\perp y}(\omega)$  may be given by the following general equation [12, 13]:

$$\chi_{\gamma}(\omega) = \chi'_{\gamma}(\omega) - i \chi''_{\gamma}(\omega) = \chi_{\gamma} [1 - i\omega \int_0^{\infty} \exp^{-i\omega t} C_{\gamma}(t) dt] \tag{9}$$

Here  $\gamma = \perp, \parallel$ .

Let us now consider the expressions of susceptibilities within the limit cases of high and low frequencies domains. These two special regions/domains, play an important role in the evaluation of the susceptibility spectrum. The expressions of their corresponding susceptibilities may be written as follows [12, 13]:

$$\frac{\chi_\gamma(\omega)}{\chi_\gamma} = \begin{cases} 1 - i\omega \int_0^\infty C_\gamma(t)dt + \dots = 1 - i\omega\tau_\gamma + \dots, & \omega \rightarrow 0. \\ \frac{C_\gamma(0)}{i\omega} + \dots = -\frac{i}{\omega\tau_\gamma^{eff}} + \dots, & \omega \rightarrow \infty. \end{cases} \quad (10)$$

As shown in Eq. (10), the behavior of the imaginary part of the susceptibility is completely described by the correlation time  $\tau_\gamma$  and the effective time  $\tau_\gamma^{eff}$ . In what follows, we will be focusing on the validity of these asymptotes by an exact calculation. Note that the effective times  $\tau_\gamma^{eff}$  is calculated for an arbitrary anisotropy. The effective transverse  $\tau_{\perp x}^{eff}$  and  $\tau_{\perp y}^{eff}$  times and are given by

$$\tau_{\perp x}^{eff} = 2\tau_N \frac{\langle \cos^2 \phi \sin^2 \theta \rangle_0}{1 - \langle \cos^2 \phi \sin^2 \theta \rangle_0} \quad (11)$$

$$\tau_{\perp y}^{eff} = 2\tau_N \frac{\langle \sin^2 \phi \sin^2 \theta \rangle_0}{1 - \langle \sin^2 \phi \sin^2 \theta \rangle_0} \quad (12)$$

We should underline that the evaluation of the transverse susceptibility requires the calculation of the equilibrium correlation function  $C_\perp(t)$ . To do so, we shall use for this correlation function the convenient expression directly derived from Gilbert's equation [11]. Once the exact solution of the transverse susceptibility has been determined, we shall proceed for the plots of the dispersion and absorption functions. The focus will be paid on the evaluation of the accurateness of the different approximated solutions having been already presented for  $\chi_\perp(\omega)$ . Finally, it is important to note that in light of the above Eq. (9) reduces to the ferromagnetic resonance equation of Landau and Lifshitz which is given by the following equations [7]:

$$\frac{\chi_{\perp y}(\omega)}{\chi_{\perp y}} = \frac{(1 + a^2)\omega_0^2 + i a \omega \omega_0}{(1 + a^2)\omega_0^2 + \omega^2 + 2i a \omega \omega_0} \quad (13)$$

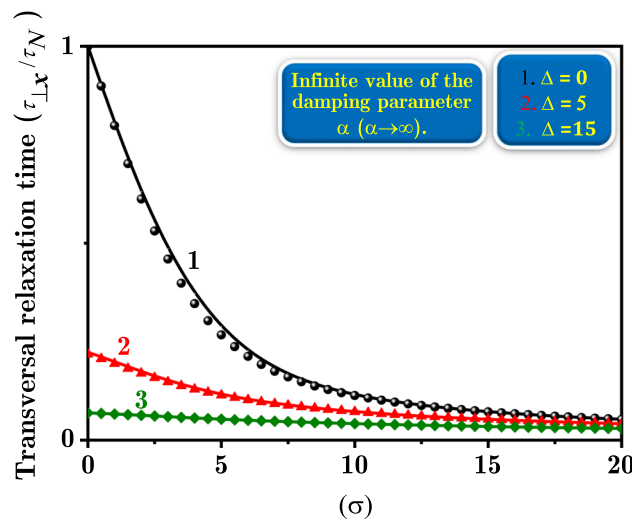
where  $\gamma = x, y$ ,  $\omega_0 = \sigma(\delta + 1)(a\tau_N)^{-1} \approx \gamma H_{an}$  and  $\delta = \frac{\Delta}{\sigma}$  is the strength of the anisotropy field.

### 3 Results and discussion

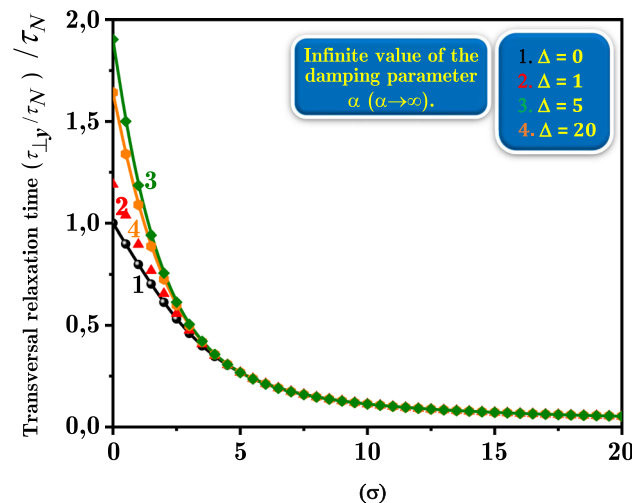
We have applied out the theoretical formulation described above for simulating the the normalized transverse relaxation times for an infinite value of the damping parameter ( $a$ ) and for different values of the biaxiality parameter ( $\Delta$ ). As shown in Figs. 2 and 3, the behavior of the normalized transverse relaxation times  $\tau_{\perp x}/\tau_N$  and  $\tau_{\perp y}/\tau_N$  depending on the barrier for  $a \rightarrow \infty$  and  $\Delta = 0, 1, 5, 15, 20$  is elucidated. The inspection of these figures leads to argue a splendid agreement between the integral relaxation times  $\tau_{\perp x,y}/\tau_N$  and the effective transverse  $\tau_{\perp x}^{eff}$  and  $\tau_{\perp y}^{eff}$  times ( $\tau_{\perp x,y}^{eff}$ ), suggesting thereby that Eqs. (11) and (12) provide an excellent estimation of  $\tau_{\perp x}/\tau_N$  and  $\tau_{\perp y}/\tau_N$ , and hence one can assess the transverse integral relaxation times by the effective times using these two equations during the particular regime corresponding to  $\alpha \leq 1$ . For,  $\alpha \gg 1$ , the approximation  $\tau_{\perp x,y}/\tau_N \simeq \tau_{\perp x,y}^{eff}$  is also applied but the gap between  $\tau_{\perp x,y}$  and  $\tau_{\perp x,y}^{eff}$  is about 40. The emersion of this gap can be explained simply by the fact that the relaxation is independent of the azimuthal angle. Furthermore, due to the axial symmetry, there is no dynamical coupling between the longitudinal and the transverse modes of motion so that a certain gap between  $\tau_{\perp x,y}$  and  $\tau_{\perp x,y}^{eff}$  arises.

Typical graphs dealing with the imaginary parts of  $\chi_{\perp x}(\omega)$  and  $\chi_{\perp y}(\omega)$  are also provided in Figs. 4, 5, 6, 7 and 8 for which the calculations were realized for the particular value of  $\frac{vM_s^2 N_0}{kT} = 1$ . Let us look now to the relational behavior spectra describing the  $\tau_{\perp x}$  and  $\tau_{\perp y}$  interaction. We should emphasize herein that the spectra are obtained for large damping and for different values of the anisotropy ( $\Delta$ ) and biaxial ( $\sigma$ ) parameters. As expected at small damping the spectra have pronounced resonance character and strongly depend on the damping parameter  $a$  (Figs. 4 and 5). We have to disentangle that in the case of low damping  $\alpha \ll 1$ , an inherent geometric dependence of spectrum on the value of  $\alpha$  arises from the coupling of the longitudinal and transverse relaxation modes. This coupling, which appears in the dynamical equation of motion, results in the release of the third ferromagnetic resonance peak in the spectrum that is generated by the excitation of the transverse modes (precessional modes) with typical frequencies very near to the magnetization precession frequency. We should emphasize herein that the value of ( $a$ ) remains unrecognized.

Fig. 4 illustrates the evolution of the imaginary part of the transverse susceptibility as a function of the frequency. The evolution is elucidated for the particular values of the anisotropy ( $\Delta = 3$ ) and the biaxial parameter ( $\sigma = 20$ ). The coupling parameter  $\alpha$  is taken to be 2, 0.5, 0.10 and 0.005. As can be observed from this figure a good agreement between the numerical calculations and the results provided by Eq. (12) is obtained. The observed peak in the spectra is predominately due to the ferromagnetic resonance (FMR) [14], the origin of which is effectively outstanding from the coupling between the longitudinal and the transverse modes of the magnetization. Herein, we should stress out that the precession frequency  $\omega_0$  is given by  $\omega_0 \simeq \sigma(1 + \delta/2)(\tau_N \alpha)^{-1}$  where  $\delta = \Delta/\sigma$ . Furthermore, we should emphasize that several experimental and theoretical methods/approaches has been proposed



**Fig. 2** Effect of increasing the value of the anisotropy parameter ( $\Delta$ ). The values of  $\Delta$  are taken to be 0, 5 and 15. The calculations were carried with infinite value of the damping parameter  $\alpha$ . The numerical results are given by solid lines, whereas symbols represent the value of  $\tau_{\perp x}^{eff}$  calculated from Eq. 11 for different values of  $\Delta$

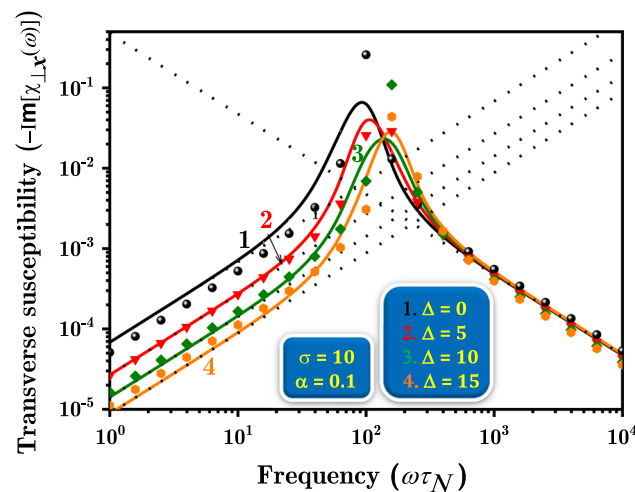


**Fig. 3** Effect of increasing the value of the anisotropy parameter ( $\Delta$ ). The values of  $\Delta$  are taken to be 0, 1, 5 and 20. The calculations were carried with infinite value of the damping parameter  $\alpha$ . The numerical results are given by solid lines, whereas symbols represent the value of  $\tau_{\perp x}^{eff}$  calculated from Eq. 12 for different values of  $\Delta$

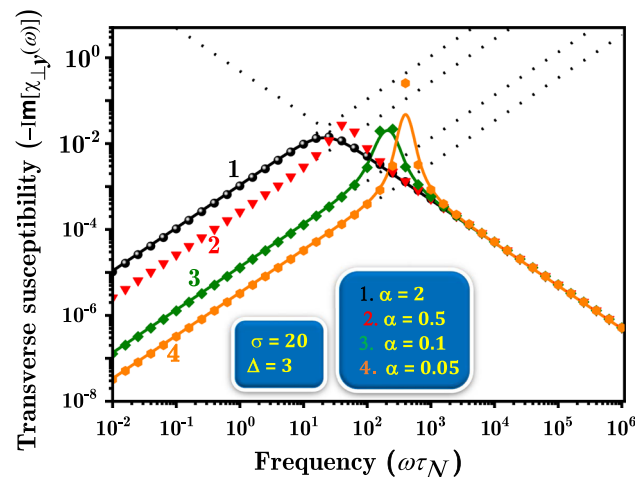
for the estimation of  $\alpha$  (For instance refer to Ref. [14]). Nevertheless, to our best knowledge no experimental data are available for the values of  $\alpha$ . In contrast some theoretical estimations of  $\alpha$  yield values of order of 0.01–0.1 [12]. Within such circumstances it is necessary to proceed for determining the rate of similarities between the effective eigenvalue solutions with the exact results in order to estimate the accuracy degree of the former [12, 14].

The task of fitting the theoretical results with the experimental findings is challenging due to both the complexity and number of physical effects that must to be taken into account. However, it is necessary to proceed for determining the similarities rate between the effective eigenvalue solutions with the exact results in order to assess the accuracy degree of the former [12, 14]. In doing so, we present in Figs. 5 and 6 a rigorous comparison between the results of the exact calculations and those obtained with the overdamped solution given by Eqs. (10) and (11), whereas we compare in Figs. 4, 5, 6, 7 and 8 the exact calculations with the Landau solution [7]. The inspection of these figures allows us to conclude that both solutions are in agreement only for the two limit cases corresponding to very small and very large values of  $\sigma$  ( $\sigma \gg 1$ ). Furthermore, it can be easily remarked from the aforementioned figures that the effective eigenvalue approach fails to describe the transverse response particularly in the most interesting region where the corresponding barrier height parameter is ranging from  $\sigma=1$  to  $\sigma=5$ .

As seen in these figures, the half-width of the FMR peak is, respectively, proportional to the value of the dissipation constant, whereas the size of this peak is inversely proportional to the value of the dissipation constant. Herein, we should mention that the highest and narrowest peak ties in to the lowest values of  $I_{\pm}$ . Moreover, the asymptotes resulting from Eq. (11) are in a good



**Fig. 4** Effect of increasing the value of the anisotropy parameter ( $\Delta$ ). The values of  $\Delta$  are taken to be 0, 5, 10 and 15. The calculations were carried with finite value of the damping parameter  $\alpha=0.1$  and biaxial parameter  $\sigma=10$ . The numerical results are given by solid lines, dotted lines represent asymptote, whereas symbols represent the value of  $\frac{\chi_{\perp x}(\omega)}{\chi_{\perp y}(\omega)}$  calculated from Eq. 15 for different values of  $\Delta$



**Fig. 5** Effect of increasing the value of the damping parameter ( $\alpha$ ). The values of  $\alpha$  are taken to be 2, 0.5, 0.1 and 0.05. The calculations were carried with finite value of the biaxial parameter  $\sigma=20$  and anisotropy parameter  $\Delta=3$ . The numerical results are given by solid lines (Eq. 10), dotted lines represent asymptote (Eq. 11), whereas symbols represent the value of  $\frac{\chi_{\perp y}(\omega)}{\chi_{\perp x}(\omega)}$  calculated from Eq. 13 for different values of  $\alpha$

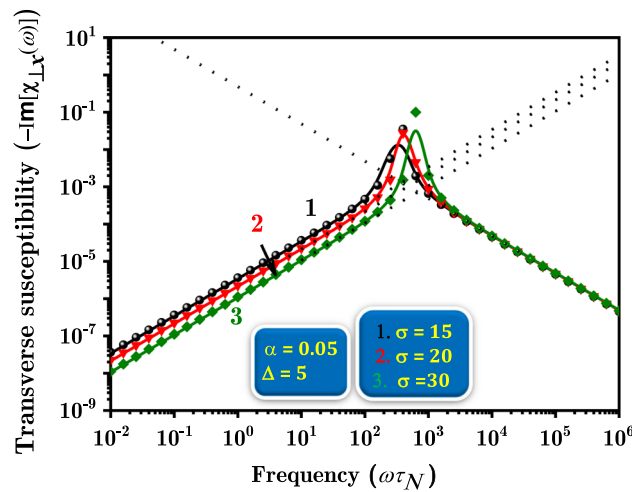
agreement with their corresponding parameters. On the other hand, detailed inspection of the figures allows to elucidate that the pronounced peaks are observed only when low dissipation constants are employed.

We now discuss the response function dealing with the evolution of the imaginary part of the susceptibility as a function of the frequency/pulsation. The illustration of this response function is shown in Figs. 7 and 8, which include also the numerical calculations as well as the approximate results for the dissipation constant. More particularly, Fig. 7 illustrates the situation where the biaxial parameter is fixed and taken to be  $\sigma=10$ , whereas we vary the anisotropy parameter  $\Delta$  from 0 to 15 by step of 5 i.e.,  $\Delta = 0, 5, 10, 15$ . Figure 7 illustrates the situation where the anisotropy parameter  $\Delta$  is fixed and taken to be  $\Delta = 5$ , whereas we vary the biaxial parameter  $\sigma$ . Three cases are taken into consideration which correspond to the barriers  $\sigma=15, 20, 30$ . Inspection of these figures leads to the following observations and explanations:

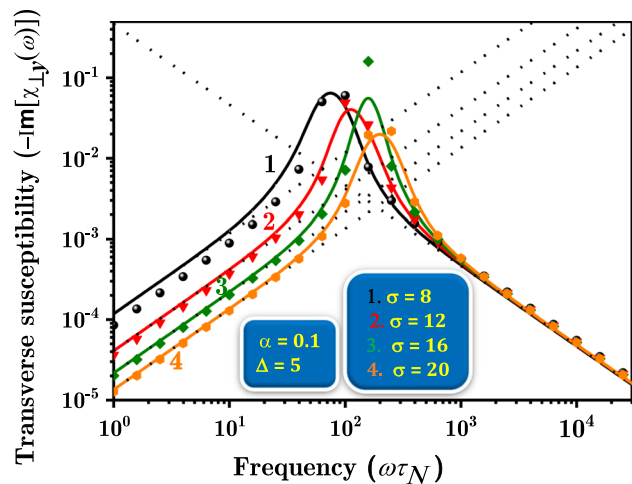
- The FMR peak appears once again in the two figures
- At high barriers, the concordance between the numerical results and approximate calculations is largely satisfactory.
- The numerical calculation is in perfect coincidence with the asymptotes resulting from Eq. (11).
- The height of the barrier is the key parameter that largely influence the different aforementioned correspondences.

All above observations may give rise to the following explanations:

- (i) An essential spread of the magnetization precession frequencies in the anisotropy field does exist at small to moderate barrier heights.



**Fig. 6** Effect of increasing the value of the biaxial parameter ( $\sigma$ ). The values of  $\sigma$  are taken to be 15, 20 and 30. The calculations were carried with finite value of the damping parameter  $\alpha=0.05$  and anisotropy parameter  $\Delta=5$ . The numerical results are given by solid lines (Eq. 10), dotted lines represent asymptote (Eq. 11), whereas symbols represent the value of  $\frac{\chi_y(\omega)}{\chi_y}$  calculated from Eq. 13 for different values of  $\sigma$

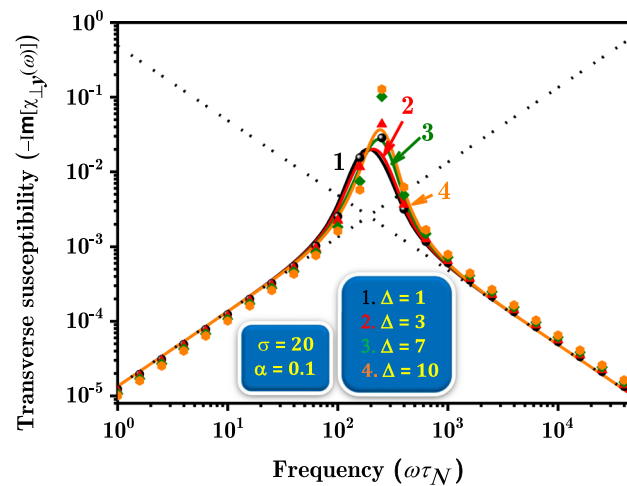


**Fig. 7** Effect of increasing the value of the biaxial parameter ( $\sigma$ ). The values of  $\sigma$  are taken to be 8, 12, 16 and 20. The calculations were carried with finite value of the damping parameter  $\alpha=0.1$  and anisotropy parameter  $\Delta=5$ . The numerical results are given by solid lines (Eq. 10), dotted lines represent asymptote (Eq. 11), whereas symbols represent the value of  $\frac{\chi_y(\omega)}{\chi_y}$  calculated from Eq. 13 for different values of  $\sigma$

- (ii) This effect, which is similar to the inhomogeneous broadening to a certain extent, is exceeding largely the true damping [15].
- (iii) This is consistent with the picture that the transverse response of a set of superparamagnetic nanoparticles may be estimated from the exact expression given by Eq. (3).

Likewise, we managed to show that the effective eigenvalue approach that leads to simple analytical expressions [15], allows in the majority of cases to explain the essential features of the transverse complex susceptibility, except in the range of intermediate barriers  $\sigma \sim 1$  to 5 and for the situation corresponding to  $\alpha \leq 1$ , where this approach is invalid due to the fact that an essential spread of the magnetization precession frequencies in the anisotropy potential field arises.

Finally, it is interesting to underline that in order to derive all these numerical experimentations we have undertaken into consideration that all nanoparticles studied herein are identical. In addition, we believe that this new case can be also treated as representative of the dipolar coupling effects between the nanoparticles since experimentally in a set of nanoparticles the distances between nanoparticles are random, resulting in a distribution of the effective field



**Fig. 8** Effect of increasing the value of the anisotropy parameter ( $\Delta$ ). The values of  $\Delta$  are taken to be 1, 3, 7 and 10. The calculations were carried with finite value of the damping parameter  $\alpha=0.1$  and biaxial parameter  $\sigma =20$ . The numerical results are given by solid lines, dotted lines represent asymptote, whereas symbols represent the value of  $\frac{\chi_y(\omega)}{\chi_x}$  calculated from Eq. 15 for different values of  $\Delta$

#### 4 Conclusion

In this paper, we estimated the relaxation times of the magnetization and transverse magnetic susceptibilities of a superparamagnetic particle with biaxial anisotropy. We have given a numerical solution to the transverse problem. This solution is based on the matrix continuous fraction method, we calculated the transverse integral relaxation times  $\tau_{x\perp}$  and  $\tau_{y\perp}$  et , the effective relaxation time  $\tau_{x\perp}^{eff}$  and  $\tau_{y\perp}^{eff}$  , and the transverse magnetic susceptibility  $\chi_{x\perp}(\omega)$  and  $\chi_{y\perp}(\omega)$ . We demonstrate that  $\tau_{x\perp}^{eff}$  and  $\tau_{y\perp}^{eff}$  and  $\tau_{x\perp}$  and  $\tau_{y\perp}$  et , are very close. We can therefore approach for  $\alpha \geq 1$ . We did a detailed study in which we showed that there are peaks of FMR ferromagnetic resonance. The origin of these peaks is the precession of the magnetization  $M$ . We have found that the size and the half-width of the ferromagnetic peak FMR are, respectively, inversely proportional and proportional with the dissipation constant. We also calculated the transverse magnetic susceptibilities  $\chi_{x\perp}(\omega)$  and  $\chi_{y\perp}(\omega)$  for all values of the dissipation constant  $\alpha$ , and of the barrier and biaxiality parameter using the Landau-Lifchitz equation. The Landau-Lifchitz approach, adapted to biaxial anisotropy, seems to be a relevant method for making these estimates. This is because the approximate calculations we made correctly estimate our numerical results, based on the matrix continued fraction, precession of the magnetization in the well.

The results of the present investigation therefore shed light on the importance of studying the transverse magnetic susceptibility of superparamagnetic nanoparticles. Altogether, our findings highlight the importance of the studying *the transverse dynamics of the magnetization in the biaxial nanoparticles anisotropy* to pave the way for extending the current study to nanoparticles with different anisotropies [16–24]. This will be the subject of future work.

**Acknowledgements** This research has been funded by Scientific Research Deanship at University of Ha'il - Saudi Arabia through project number **RG-20 086**.

#### Declarations

**Competing interest** This work is original and not submitted elsewhere. And the authors declare no conflict of interest.

#### References

1. L. Néel, Theorie du trainage magnetique des ferromagnetiques en grains fins avec applications aux terres cuites. *Ann.Géophys* **5**, 99 (1949)
2. C.P. Bean, J.D. Livingston, Superparamagnetism. *Suppl. J. Appl. Phys* **30**, 1205 (1959)
3. D.G. Rancourt, Magnetism of Earth, planetary and environmental nanomaterials. *Nanopart. Environ.* **44**, 217 (2001)
4. T.L. Gilbert, A Lagrangian Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization field. *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1956)
5. W.F. Brown, Thermal fluctuation of fine ferromagnetic particles. *Jr, IEEE Trans. Mag.* **15**, 1196 (1979)
6. U. Nowak, R.W. Chantrell, E.C. Kennedy, Monte Carlo simulation with time step quantification in terms of Langevin dynamics. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 163 (2000)
7. L.D. Landau, E.M. Lifshitz, On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. *Phys. Z. Sowjetunion* **8**, 153 (1935)
8. W.T. Coffey, Y.P. Kalmykov, J.T. Waldron, *The Langevin Equation*, 3rd edn. (World Scientific, Singapore, 2012), Chapter 9

9. M.C. Wang, G.E. Uhlenbeck, On the theory of the Brownian motion II. *Rev. Mod. Phys.* **17**, 323 (1945)
10. R.L. Stratonovich, *Conditional Markov Processes and Their Application to the Theory of Optimal Control* (Elsevier, New York, 1968)
11. H. Risken, *The Fokker-Planck Equation*, 2nd edn. (Springer, Berlin, 1989)
12. Yu.P. Kalmykov, B. Ouari, Longitudinal complex magnetic susceptibility and relaxation times of superparamagnetic particles with triaxial anisotropy. *Phys. Rev. B* **71**, 094410 (2005)
13. Yu.P. Kalmykov, W.T. Coffey, B. Ouari, S.V. Titov, Damping dependence of the magnetization relaxation time of single-domain ferromagnetic particles. *J. Mag. Magn. Mater.* **292**, 372 (2005)
14. Yu.L. Raikher, V.I. Stepanov, Linear and nonlinear superparamagnetic relaxation at high anisotropy barriers. *Phys. Rev. B* **66**, 214406 (2002)
15. M.A. Missoum, B. Ouari, S. Titov, Influence of the azimuthal angle on the dynamic forced response of the magnetization of nanoparticles in superimposed Ac and Dc bias field. *J. Comput. Theor. Nanosci.* **18**, 1153–1161 (2021)
16. S. Pokharel, O. Akiyoa, N.H. Alqhtany, C. Dickens, W. Morgan, M. Wuttig, A. Lisfi, Irreversible magnetic processes under biaxial and uniaxial magnetic anisotropies. *AIP Adv.* **6**, 056110 (2016)
17. Y. Zhou, C. Guo, C. Wan, X. Chen, X. Zhou, R. Zhang, Y. Gu, R. Chen, H. Wu, X. Han, F. Pan, C. Song, Current-induced in-plane magnetization switching in a biaxial ferrimagnetic insulator. *Phys. Rev. Appl.* **13**, 064051 (2020)
18. A.S. Bolyachkin, D.S. Neznakhin, M.I. Bartashevich, The effect of magnetization anisotropy and paramagnetic susceptibility on the magnetization process. *J. Appl. Phys.* **118**, 213902 (2015)
19. J. Ye, W. He, Q. Wu, H.L. Liu, X.Q. Zhang, Z.Y. Chen, Z.H. Cheng, Determination of magnetic anisotropy constants in Fe ultrathin film on vicinal Si(111) by anisotropic magnetoresistance. *Sci. Rep.* **3**, Article number: 2148 (2013)
20. M. Briganti, E. Lucaccini, L. Chelazzi, S. Ciattini, L. Sorace, R. Sessoli, F. Totti, M. Perfetti, Magnetic anisotropy trends along a full 4f-series: the  $f^{n+7}$  effect. *Am. Chem. Soc.* **143**(21), 8108–8115 (2021)
21. A. Koriki, M. Míšek, J. Pospíšil, M. Kratochvílová, K. Carva, J. Prokleška, P., J. Doležal, S. S. Kaštil, J. G. Park, V. Sechovský, Magnetic anisotropy in the van der Waals ferromagnet  $\text{VI}_3$ . *Phys. Rev. B* **103**, 174401 (2021)
22. C. Tang, L. Zhang, A. Du, Tunable magnetic anisotropy in 2D magnets via molecular adsorption. *J. Mater. Chem. C* **8**, 14948–14953 (2020)
23. W.T. Coffey, Yu.P. Kalmykov, Thermal fluctuations of magnetic nanoparticles: Fifty years after Brown. *J. Appl. Phys.* **112**, 121301 (2012)
24. Y.P. Kalmykov, W.T. Coffey, U. Atxitia, O. CFesenko, P.M. Dejardin, R.W. Chantrell, Damping dependence of the reversal time of the magnetization of single-domain ferromagnetic particles for the Néel-Brown model: Langevin dynamics simulations versus analytic results. *Phys. Rev. B* **82**, 024412 (2010)

Springer Nature or its licensor holds exclusive rights to this article under a publishing agreement with the author(s) or other rightsholder(s); author self-archiving of the accepted manuscript version of this article is solely governed by the terms of such publishing agreement and applicable law.

## Abstract

The Néel-Brown model was used to conduct a theoretical analysis of the dynamics of magnetization of superparamagnetic nanoparticles in this thesis. To help with this, numerical solutions to Brown's Fokker-Planck equation, which explains the relaxation of magnetization in nanoparticles, have been obtained. We calculated the magnetic susceptibility and the relaxation time for different values of the temperature, the amplitude of the magnetic fields, we have discussed the effect of the azimuthal angle. These analytical equations proposed by ouari *et al* are in complete agreement with the results of our numerical calculations. Moreover we can use our numerical calculation to calculate the magnetic susceptibility in wide ranges of variation of the frequency and the anisotropy parameters. The results obtained may be considered as a complete solution of the problem of relaxation of the magnetization in Superparamagnetic nanoparticles.

KEY WORDS: Brown's model – Super-paramagnetic nanoparticles-magnetization relaxation - Fokker-Planck equation - magnetic susceptibility.

## Resumé

Le modèle Néel-Brown a été utilisé pour mener une analyse théorique de la dynamique de l'aimantation des nanoparticules superparamagnétiques dans cette thèse. Pour y parvenir, des solutions numériques ont été obtenues à l'équation de Fokker-Planck de Brown, qui explique la relaxation de l'aimantation dans les nanoparticules. Nous avons calculé la susceptibilité magnétique et le temps de relaxation pour différentes valeurs de la température, l'amplitude des champs magnétiques, nous avons discuté l'effet de l'angle azimutal. Ces équations analytiques proposées par Ouari et al sont en parfait accord avec les résultats de nos calculs numériques. De plus nous pouvons utiliser notre calcul numérique pour calculer la susceptibilité magnétique dans de larges plages de variation de la fréquence et des paramètres d'anisotropie. Les résultats obtenus peuvent être considérés comme une solution complète du problème de relaxation de l'aimantation dans les nanoparticules superparamagnétiques.

MOTS CLÉS: Modèle de Brown - Relaxation par magnétisation des nanoparticules super-paramagnétiques - Équation de Fokker-Planck - susceptibilité magnétique.

## الملخص

تم استخدام نموذج Néel-Brown لإجراء تحليل نظري لديناميكيات مغنطة الجسيمات النانوية الفائقة المغناطيسية في هذه الأطروحة. للمساعدة في ذلك، تم الحصول على حلول عددية لمعادلة فوكر بلانك، والتي تشرح استرخاء المغنطة في الجسيمات النانوية. حسبنا القابلية المغناطيسية ووقت الاسترخاء لقيم مختلفة لدرجة الحرارة، وسعة المجالات المغناطيسية، وناقشنا تأثير زاوية السميت. تتوافق هذه المعادلات التحليلية التي اقترحها ouari et al تمامًا مع نتائج حساباتنا العددية. علاوة على ذلك، يمكننا استخدام حسابنا العددي لحساب القابلية المغناطيسية في نطاقات واسعة من اختلاف التردد ومعلمت تباین الخواص. يمكن اعتبار النتائج التي تم الحصول عليها كحل كامل لمشكلة استرخاء المغنطة في الجسيمات النانوية الفائقة المغناطيسية.

الكلمات الرئيسية: نموذج براون - الجسيمات النانوية الفائقة المغناطيسية - استرخاء المغنطة - معادلة فوكر بلانك - القابلية المغناطيسية.