



HAL
open science

Couplage magnétique et effets magnétostrictifs dans des films épitaxiaux et super-réseaux à base de terres rares

Karine Dumesnil

► **To cite this version:**

Karine Dumesnil. Couplage magnétique et effets magnétostrictifs dans des films épitaxiaux et super-réseaux à base de terres rares. Matière Condensée [cond-mat]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995. Français. NNT : 1995INPL009N . tel-01776440

HAL Id: tel-01776440

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01776440v1>

Submitted on 24 Apr 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

1360079730

95 INPL 009N

Institut National Polytechnique de Lorraine

Ecole des Mines de Nancy

[M] 1995 DUMESNIL, K.

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

Thèse présentée par **Karine DUMESNIL**

pour obtenir le grade de :

**Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
en Sciences et Génie des Matériaux**

*Couplage magnétique et Effets magnétostrictifs
dans des films épitaxiés et superréseaux
à base de Terres Rares*

Soutenue publiquement devant la commission d'examen

le 26 janvier 1995

Jury :	M. Gerl	(président)
	B. Coqblin	(rapporteur)
	M. Hennion	(rapporteur)
	D. Givord	
	Ph. Mangin	
	G. Marchal	

Rapporteur extérieur : **J.J. Rhyne**

Remerciements

L'ensemble de ce travail a été réalisé au laboratoire Métallurgie Physique et Science des Matériaux, dont je tiens à remercier le directeur A. George pour son accueil chaleureux. C'est plus particulièrement dans les locaux situés à l'Université Henri Poincaré - Nancy I sous la responsabilité de M. Gerl que s'est déroulé mon travail ; je le remercie vivement pour son accueil ainsi que pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse.

Ph. Mangin a encadré et suivi mon travail durant ces deux années avec toujours autant d'intérêt, de disponibilité et d'enthousiasme. J'ai bénéficié de son expérience, de ses compétences scientifiques et j'ai tout simplement eu beaucoup de plaisir à travailler à ses côtés. Je tiens à lui témoigner ma reconnaissance pour tout ce qu'il m'a apporté ainsi que ma sincère et vive sympathie.

Je dois beaucoup à G. Marchal qui a toujours su être disponible et attentif aux problèmes physiques que je pouvais lui soumettre. Les discussions fructueuses que nous avons partagées, notamment en matière d'épitaxie, ont été précieuses pour l'avancée des mes travaux. Ce fut un réel plaisir de bénéficier de son expérience scientifique et sylvicole ; je l'en remercie.

J'ai travaillé en étroite collaboration avec C. Dufour dont tant les compétences que la constante bonne humeur ont contribué au bon déroulement de mes travaux. Elle a également assumé la tâche délicate de m'épauler dans les moments plus difficiles ; ce fut avec beaucoup de gentillesse, de générosité, de spontanéité et je l'en remercie très chaleureusement.

Je tiens à remercier B. Coqblin de m'avoir fait l'honneur d'étudier ce mémoire et de l'évaluer. D. Givord a contribué à l'examen de ce travail en participant au jury ; je l'en remercie.

M. Hennion m'a toujours très gentiment accueillie au Laboratoire Léon Brillouin pour réaliser les expériences de diffraction de neutrons. Son aide fut oh combien déterminante étant donné l'importance de cette technique d'investigation pour mon

étude. Je la remercie vivement, ainsi que d'avoir accepté d'être rapporteur de ce travail de thèse.

Les expériences de diffraction de neutrons ont été également réalisées à Columbia (USA) au Missouri University Research Reactor, dont je tiens à remercier le directeur J.J. Rhyne ainsi que H. Kaiser pour leur accueil aux États-Unis et leur collaboration.

J.J. Rhyne a accepté d'examiner ce travail de thèse et d'en être rapporteur ; je lui en suis très reconnaissante.

L'élaboration des nombreux échantillons fut grandement facilitée grâce à l'aide technique précieuse de D. Pierre et de F. Mouginet. Je tiens à remercier F. Mouginet pour son enthousiasme lors de l'installation et la mise au point de l'enceinte d'épitaxie par jets moléculaires. La persévérance et l'ingéniosité de D. Pierre au cours du travail minutieux que constitue la préparation des échantillons épitaxiés ont été un facteur déterminant pour l'avancée de ce travail de thèse et j'ai toujours eu beaucoup de plaisir à travailler à ses côtés.

L'apport de J. Latriche et E. Rafidison à la mise en place de l'enceinte d'épitaxie et à son bon fonctionnement ultérieur est fondamental ; qu'ils trouvent ici l'expression de ma gratitude. Mes remerciements s'adressent également à J.M. Stein, F. Grandjean, M. Greco et J.G. Mussot.

La caractérisation des échantillons a été principalement réalisée par diffraction de rayons X aux grands angles, avec l'aide de P. Delcroix, A. Bruson et de L. Hennet que je remercie vivement. Je remercie J.P. Michel de m'avoir initiée à la méthode de diffraction de Laue avec toujours beaucoup de disponibilité.

Merci également J.M. Claude et J.P. Hoeussler pour les analyses microsonde, J. Ghanbaja pour la microanalyse X, Mme Peltier pour les expériences de spectrométrie à émission de flammes et J. Hubsch pour les mesures d'aimantation.

Je n'oublie pas l'aide toujours spontanée et irremplaçable de C. Senet, dont l'habileté à résoudre les problèmes informatiques m'émerveille chaque jour davantage ! Merci aussi à N. Nussmann.

V. Oderno m'a fort gentiment apporté son aide en fin de parcours ; je l'en remercie.

C'est enfin à l'ensemble des membres du laboratoire Métallurgie Physique et Sciences des Matériaux (et à ses ramifications...) que je souhaite dire combien ce fut agréable de partager leur bonne humeur et leur joie de vivre !

Sommaire

	page
INTRODUCTION.....	1
<hr/>	
Chapitre I : TERRES RARES ET SYSTEMES EPITAXIES A BASE DE TERRES RARES	5
<hr/>	
1. Présentation structurale des terres rares.....	6
1.1 Les terres rares dans le tableau périodique.....	6
1.2 Structure cristalline.....	7
2. Description de quelques structures magnétiques.....	9
2.1 Aperçu général.....	9
2.2 Structure magnétique du dysprosium.....	11
2.3 Structure magnétique de l'erbium.....	14
2.4 Structure magnétique des alliages Dy-Er.....	19
3. Les paramètres gouvernant le comportement magnétique.....	21
3.1 Moment magnétique des électrons 4f.....	21
3.2 Présentation des différentes interactions.....	22
3.3 Interaction indirecte d'échange.....	23
<i>Le principe.....</i>	<i>23</i>
<i>Ordre hélicoïdal et espace réciproque.....</i>	<i>25</i>
<i>Barrière d'énergie d'échange entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique.....</i>	<i>28</i>

3.4	Anisotropie de champ cristallin.....	31
	<i>Les coefficients d'anisotropie</i>	31
	<i>Dépendance thermique des coefficients d'anisotropie</i>	33
	<i>Paroi magnétique</i>	34
3.5	Effets élastique et magnétoélastique	35
	<i>Energie élastique</i>	35
	<i>Energie magnétoélastique</i>	37
	<i>Energie magnétostrictive dans le dysprosium</i>	37
3.6	Transition ferromagnétique	41
	<i>Dans le dysprosium</i>	41
	<i>Dans l'erbium</i>	45
4.	Superréseaux et films de terres rares	46
4.1	Présentation générale.....	46
4.2	Superréseaux Gd/Y	47
4.3	Superréseaux Dy/Y.....	50
	<i>Propagation de l'ordre hélicoïdal</i>	50
	<i>Stabilisation de la phase hélicoïdale</i>	53
4.4	Système Er/Y	54
4.5	Systèmes Dy/Lu et Dy/Er.....	56
4.6	Système Dy/Y _x Lu _{1-x}	59
5.	Intérêts de l'étude du système Dy/Er	61

Chapitre II : TECHNIQUES EXPERIMENTALES 63

1.	Fabrication des échantillons	63
1.1	Installation d'épitaxie par jet moléculaire.....	64
	<i>Système de pompage-mesure de pression</i>	67
	<i>Sources d'évaporation</i>	68
	<i>Mesure des flux d'évaporation</i>	69
	<i>Le substrat</i>	71
	<i>Automatisation</i>	71
1.2	Préparation de l'évaporation	72
	<i>Préparation de l'enceinte</i>	72
	<i>Préparation du substrat</i>	72

1.3	Conditions d'élaboration	73
	<i>Dépôt d'une couche tampon de niobium</i>	73
	<i>Dépôt des terres rares</i>	75
	<i>Dépôt d'une couche d'yttrium de couverture</i>	77
1.4	Confirmation des épaisseurs déposées	77
	<i>Analyse microsonde d'un superréseau</i>	77
	<i>Spectrométrie d'émission de flamme pour l'analyse d'un film</i>	79
2.	Diffraction de rayons X	80
2.1	Dispositif expérimental	80
2.2	Détermination des orientations et des textures	82
	<i>Le substrat</i>	82
	<i>Le niobium</i>	84
	<i>Les terres rares</i>	86
2.3	Diffraction par un superréseau	87
3.	Etude des propriétés magnétiques	92
3.1	Mesures d'aimantation	92
3.2	Diffraction de neutrons	94
a)	Quelques exemples types	94
	<i>Diffusion nucléaire cohérente</i>	94
	<i>Diffusion magnétique : composante ferromagnétique</i>	95
	<i>Diffusion magnétique : structure antiferromagnétique</i>	97
	<i>Diffusion magnétique : phase hélicoïdale cohérente</i>	98
	<i>Diffusion magnétique : phase hélicoïdale incohérente</i>	102
b)	Diffusion magnétique par le dysprosium et l'erbium massifs	103
	<i>Dysprosium massif</i>	103
	<i>Erbium massif</i>	105
c)	Diffraction de neutrons polarisés appliquée à l'étude de la phase antiferromagnétique	105
d)	Dispositifs expérimentaux	108

**Chapitre III : COMPORTEMENT MAGNETIQUE DE FILMS
EPITAXIES DE DYSPROSIUM**

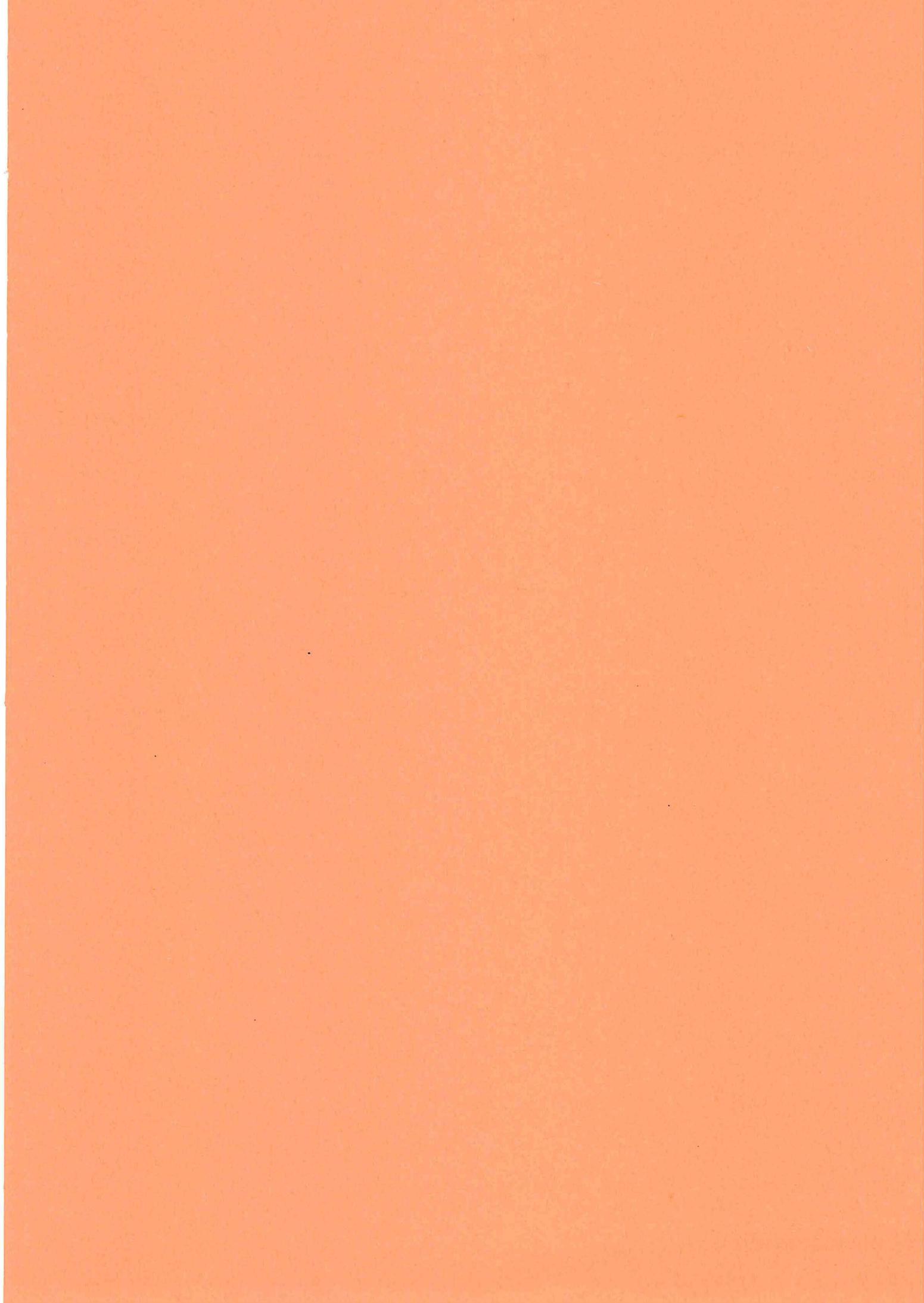
111

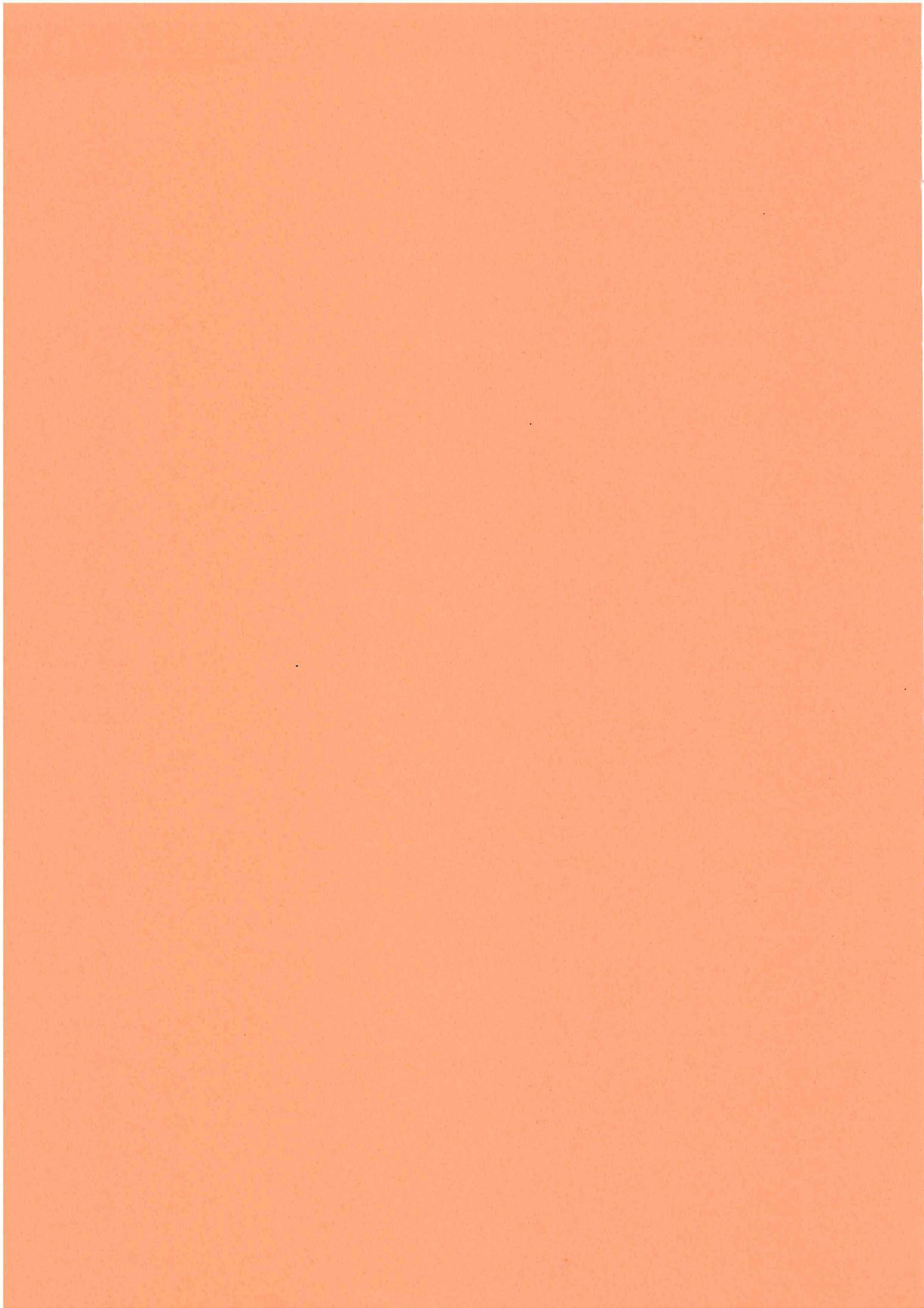
1.	Structure cristalline	112
-----------	------------------------------------	------------

1.1	Résultats expérimentaux	112
1.2	Etat de déformation des films épitaxiés.....	114
2.	Comportement magnétique de films de dysprosium épitaxiés entre deux films d'yttrium.....	118
2.1	Etude par diffraction neutronique	118
	<i>Comportement d'un film de dysprosium de 3200 Å épitaxié sur yttrium.</i>	118
	<i>Comparaison de l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y avec le comportement du dysprosium massif.....</i>	121
	<i>Comportement d'un film de dysprosium de 600 Å épitaxié sur yttrium...</i>	123
	<i>Comportement sous champ d'un film de 550 Å épitaxié sur yttrium</i>	125
2.2	Mesures d'aimantation	127
	<i>Evolution en température sous champ fixe (FC)</i>	127
	<i>Evolution sous champ (AFC): courbes de première aimantation.....</i>	132
	<i>Phénomènes d'hystérèse.....</i>	135
2.3	Récapitulatif	137
3.	Comportement magnétique de films de dysprosium épitaxiés entre deux films d'erbium	138
3.1	Mesures d'aimantation	138
	<i>Evolution en température sous champ fixe (FC)</i>	138
	<i>Evolution sous champ (AFC): courbes de première aimantation.....</i>	141
3.2	Etude par diffraction neutronique	144
	<i>Diffraction de neutrons le long de (0001) : angle de rotation dans la phase hélicoïdale et paramètre c</i>	144
	<i>Diffraction de neutrons le long de (10$\bar{1}$1) : paramètre b et distorsions magnétocristallines.....</i>	149
3.3	Récapitulatif	156
4.	Modélisation.....	157
4.1	Présentation du calcul	157
4.2	Diagrammes énergétiques.....	159
	<i>Influence de l'énergie magnétoélastique.....</i>	159
	<i>Influence de l'échange.....</i>	162
4.3	Evolutions des paramètres	164
5.	Conclusion.....	165

1. Structure cristalline	168
2. Comportement magnétique de superréseaux à forte épaisseur d'erbium	171
2.1 Diffraction de neutrons.....	171
<i>Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002)</i>	171
<i>Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^* autour des réflexions (10$\bar{1}$0) et (10$\bar{1}$1)</i>	175
2.2 Mesures d'aimantation	179
<i>Champ magnétique appliqué dans le plan des couches</i>	179
<i>Champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches</i> ..	181
2.3 Récapitulatif	184
3. Comportement magnétique de superréseaux à épaisseur d'erbium intermédiaire	186
3.1 Diffraction de neutrons	186
a) Description des spectres expérimentaux.....	186
<i>Diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002)</i>	186
<i>Diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour des réflexions (10$\bar{1}$0) et (10$\bar{1}$1)</i>	193
<i>Diffraction de neutrons le long de la direction a^* autour de la réflexion (10$\bar{1}$0)</i>	196
b) Analyse des spectres expérimentaux.....	198
<i>Phase hélicoïdale : angle de rotation entre moments et longueur de cohérence</i>	198
<i>Evolutions des paramètres perpendiculaire (c) et parallèle (b) au plan de base</i>	201
c) Diffraction de neutrons polarisés sous champ le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002).....	205
3.2 Mesures d'aimantation.....	208
<i>Champ magnétique appliqué dans le plan des couches</i>	208
<i>Champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches</i> ..	213
3.3 Récapitulatif.....	215

4. Comportement magnétique de superréseaux à faible épaisseur d'erbium	217
4.1 Diffraction de neutrons	217
<i>Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002)</i>	217
<i>Diffraction de neutrons sous champ le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002)</i>	220
4.2 Mesures d'aimantation	222
<i>Champ magnétique appliqué dans le plan des couches</i>	222
<i>Champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches</i> ..	224
4.3 Récapitulatif	226
5. Conclusion	228
CONCLUSION	231
ANNEXE A : Calcul des déformations épitaxiales	239
ANNEXE B : Calcul des déformations d'équilibre en phases ferromagnétique et hélicoïdale	243
REFERENCES	247
LISTE DES FIGURES	251





Introduction

Le magnétisme des terres rares dans leur état massif est un domaine où apparaît une multitude de phases et de structures magnétiques, qui, impliquées dans une structure particulière telle que celle des superréseaux, conduisent à des phénomènes physiques qui commencent seulement à être explorés.

Ce travail de thèse a pour objectif l'étude des superréseaux à base de dysprosium et d'erbium, et plus spécifiquement celle du couplage magnétique et des effets magnétostrictifs qui s'y développent. Une partie importante de ce mémoire est par ailleurs consacrée à une analyse préliminaire essentielle : celle des films de dysprosium épitaxiés sur yttrium ou sur erbium.

Dans l'histoire des terres rares, l'étude des superréseaux a naturellement débuté après celle des métaux purs, isolés dans les années cinquante, et celle des alliages, menée au cours des années suivantes. Si les métaux purs et les alliages sont des systèmes naturels, en ce sens qu'ils correspondent le plus souvent à des phases à l'équilibre thermodynamique, les superréseaux représentent un premier pas vers les systèmes artificiels, probablement supplantés demain par des structures unidimensionnelles ou des arrangements plus subtils, élaborés atome par atome.

Un travail important a d'ores et déjà été réalisé sur les superréseaux à base de terres rares par un groupe américain, s'articulant autour d'une équipe de recherche d'Argonne et du centre de diffraction neutronique NIST aux Etats Unis. Toutefois, vu la diversité des terres rares, ce sujet n'en est encore qu'à ses débuts. Ainsi, par exemple, les terres rares légères ont été très peu introduites dans des structures superréseaux et aucun travail théorique n'a, à notre connaissance, été développé.

Du point de vue cristallographique, les superréseaux de terres rares constituent un cas favorable, puisque les lanthanides présentent des structures très voisines et des paramètres cristallins proches. Les terres rares lourdes cristallisent pour leur part dans une structure hexagonale compacte et les différences de paramètre sont au maximum de 5%. La difficulté d'élaboration de superréseaux de terres rares réside dans la réactivité de ces éléments et les contraintes de températures élevées nécessaires à leur épitaxie.

S'il apporte sa propre originalité, le magnétisme des superréseaux s'appuie généralement sur les concepts développés dans les terres rares à l'état massif : la formation de moments localisés 4f, le couplage de type RKKY via les électrons de conduction, la forte anisotropie magnétocristalline et les effets magnétostrictifs importants.

Alors que la formation des moments a peu de chance d'être affectée par la structure superréseau (hormis dans le cas des terres rares à valence intermédiaire), il en va différemment des autres paramètres gouvernant le magnétisme.

Le couplage oscillant RKKY agit à grande distance, et l'ordre magnétique peut se propager à des distances supérieures à la périodicité d'un superréseau.

Dans les terres rares à l'état massif, *l'échange* stabilise la structure ferromagnétique ou modulée, selon que la susceptibilité généralisée des électrons de conduction, liée à la géométrie de la surface de Fermi, présente un maximum pour un vecteur d'onde nul ou non-nul. La périodicité artificielle du superréseau est de nature à modifier la distribution électronique qui résulte de la périodicité intracouche. La modification consécutive de la susceptibilité des électrons de conduction peut altérer la stabilité de la phase modulée par rapport à la phase ferromagnétique. Un phénomène similaire se produit d'ailleurs dans les éléments massifs, où le développement de l'ordre magnétique crée des superzones dans la surface de Fermi, ce qui a pour effet de réduire la stabilité de la phase modulée.

La transition ferromagnétique dans les terres rares massives s'accompagne d'effets magnétostrictifs importants, qui se traduisent par la déformation du réseau cristallin. L'épitaxie, indépendamment de la périodicité de la structure, conduit à des déformations dans les matériaux constitutifs du superréseau, afin d'assurer le raccordement des réseaux cristallins des deux éléments. Ces déformations modifient les énergies élastique et magnétoélastique qui interviennent dans le franchissement de la barrière énergétique entre les phases modulée et ferromagnétique. Elles sont donc susceptibles de précipiter ou de retarder la transition ferromagnétique.

L'effet du superréseau intervient donc à deux niveaux : il peut modifier la barrière énergétique entre les phases magnétiques, et constituer un apport d'énergie qui, selon l'état de contrainte, est favorable ou défavorable à la transition ferromagnétique.

Les superréseaux dysprosium/erbium sur lesquels nous nous sommes penchés s'insèrent dans cette problématique. Il s'agit de deux terres rares magnétiques dont les axes d'anisotropie sont perpendiculaires (selon l'axe c pour l'erbium et dans le plan (0001) pour le dysprosium), dont les températures d'ordre sont espacées d'environ 100 K, et qui présentent des phases modulées à haute température et une transition ferromagnétique, à basse température.

C'est pour isoler les effets dus aux contraintes épitaxiales de ceux dus à la périodicité, que l'étude des superréseaux fut précédée de celle du comportement magnétique de films minces de dysprosium épitaxiés. Ces films ont été épitaxiés entre des couches d'yttrium et d'erbium, car ces deux éléments induisent dans le dysprosium des déformations de signes opposés.

La première partie de ce mémoire expose les résultats antérieurs à notre étude. Nous y rappelons les points fondamentaux du magnétisme des terres rares lourdes, les caractéristiques du comportement magnétique du dysprosium et de l'erbium et finalement, les phénomènes majeurs observés jusqu'à maintenant sur les systèmes épitaxiés et les superréseaux à base de terres rares.

Le deuxième chapitre rend compte des différentes techniques utilisées lors de ce travail : l'élaboration des échantillons par épitaxie par jet moléculaire, leur caractérisation structurale par diffraction de rayons X, puis l'étude de leurs propriétés magnétiques par mesures d'aimantation et diffraction de neutrons. L'analyse de la texture et de l'orientation des échantillons par diffraction de rayons X étant commune aux films épitaxiés et aux superréseaux, elle est également présentée dans ce chapitre.

Nous abordons dans le troisième chapitre l'étude du magnétisme des films de dysprosium épitaxiés. Les expériences de diffraction de rayons X aux grands angles permettent dans un premier temps de déterminer l'état de déformation du film de dysprosium en fonction de son épaisseur, selon qu'il est déposé sur yttrium ou sur erbium.

L'objectif des mesures d'aimantation est d'analyser l'influence de cet état de déformation sur la température de transition ferromagnétique et sur la stabilité de la phase hélicoïdale du dysprosium.

Les expériences de diffraction neutronique rendent possible l'analyse extrêmement précise des variations thermiques des paramètres cristallins et donc de l'influence des contraintes épitaxiales sur les effets magnétostrictifs. L'évolution du paramètre c perpendiculaire au plan des couches traduit les déformations de type α ; celle du paramètre dans le plan, mesuré en réflexion transverse, renseigne sur la distorsion de type γ . Enfin, l'angle de rotation entre les moments du dysprosium dans la phase

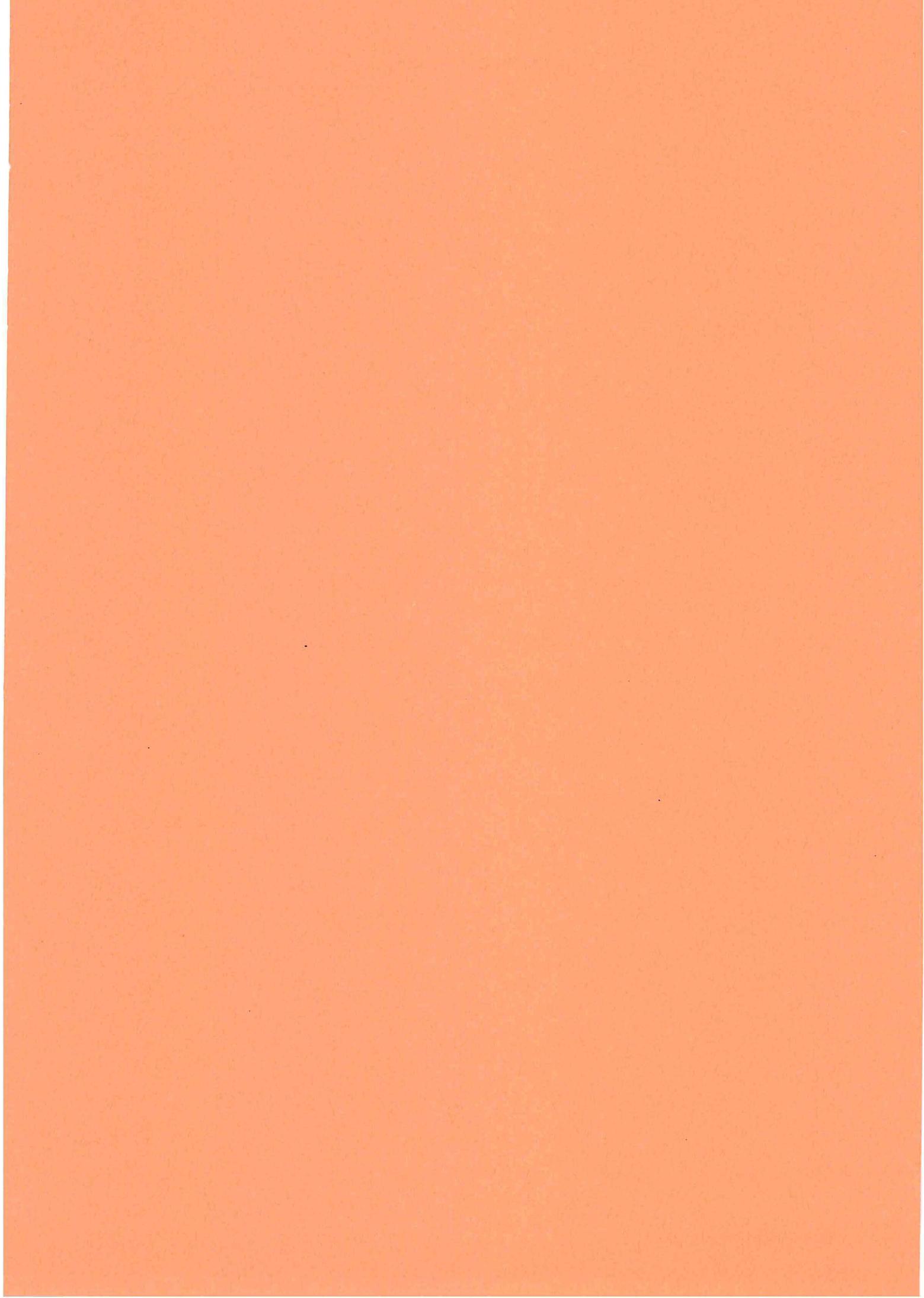
hélicoïdale permet de déceler une éventuelle modification de la barrière énergétique entre les phases ferromagnétique et hélicoïdale par rapport à l'élément massif.

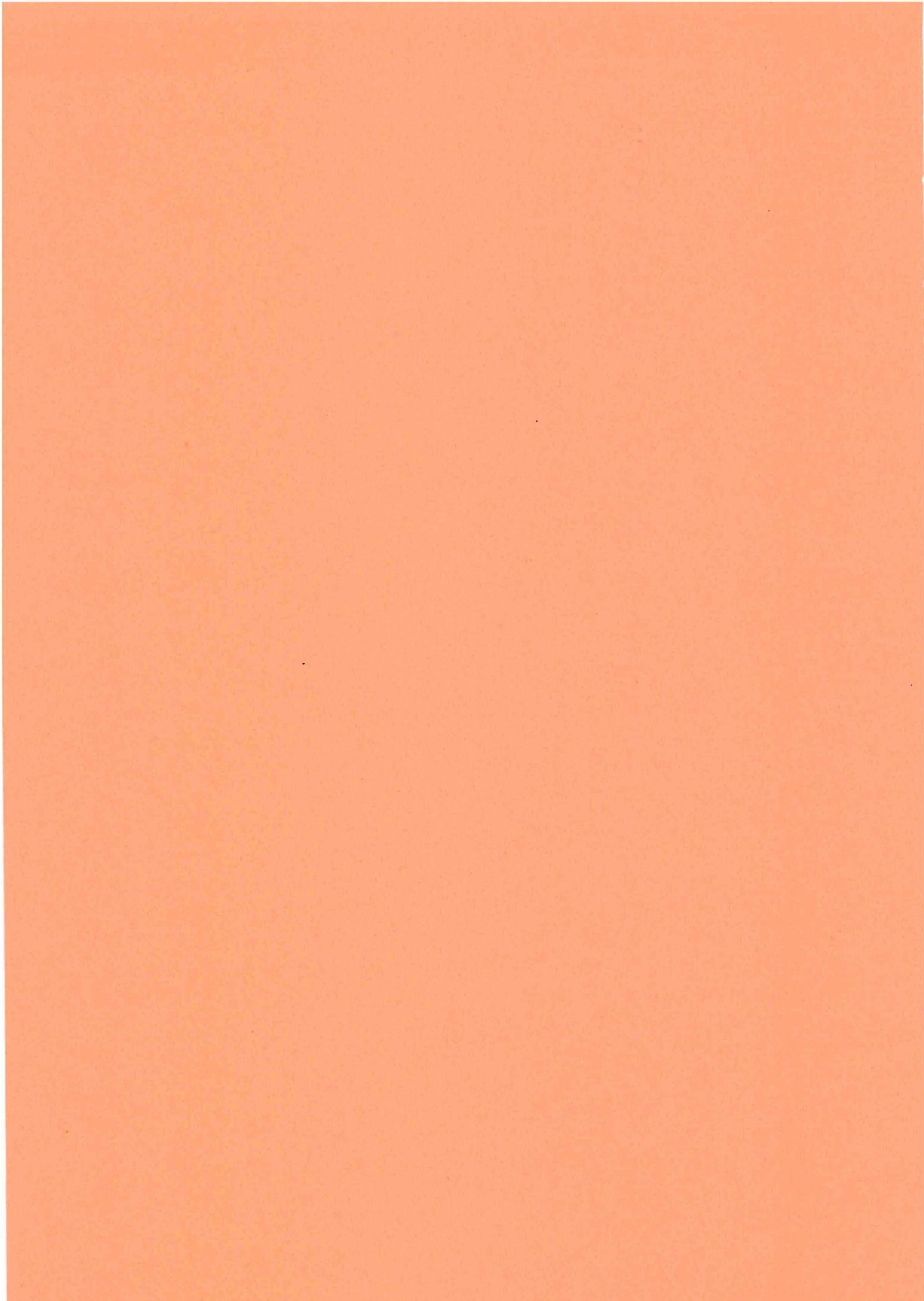
Pour déterminer le diagramme énergétique du dysprosium impliqué dans un système épitaxié, un modèle magnétoélastique est proposé en fin de chapitre.

Le chapitre IV traite du magnétisme des superréseaux Dy/Er et des effets magnétostrictifs qui lui sont associés.

L'objectif est d'examiner plus particulièrement le couplage magnétique entre couches d'un élément à travers l'autre matériau constitutif du superréseau, l'influence des déformations épitaxiales et de la structure en superréseau sur la barrière énergétique entre phases magnétiques, les températures de transition magnétique des deux éléments et les effets magnétostrictifs. Les expériences de diffraction neutronique réalisées explorent diverses zones du réseau réciproque, en champ nul et sous champ. Une étude de diffraction de neutrons polarisés est également présentée.

En conclusion, nous rappelons les résultats fondamentaux obtenus en ce qui concerne le couplage magnétique dans les superréseaux et la transition ferromagnétique du dysprosium dans les systèmes épitaxiés. Ce dernier point est discuté en termes de déplacement de la température de Curie, de modification de la barrière énergétique entre les phases magnétiques, et d'effets magnétostrictifs associés.





Chapitre I

Terres rares et systèmes épitaxiés à base de terres rares

L'objet de ce chapitre est de présenter et situer notre étude par rapport aux connaissances acquises voici une vingtaine d'années sur les terres rares, qui sont rassemblées pour l'essentiel dans des ouvrages désormais classiques [1-2-3-4], et par rapport aux résultats récemment publiés sur les systèmes épitaxiés à base de terres rares.

Après une présentation succincte de la structure cristalline des terres rares (paragraphe 1), nous exposons au paragraphe 2 le comportement magnétique des éléments constituant les superréseaux dont il sera question dans ce mémoire : le dysprosium et l'erbium. Nous mentionnons également leur alliage, dont peuvent être constituées les interfaces entre les différentes couches.

Le paragraphe 3 prolonge l'étude descriptive du paragraphe 2 par le rappel des différents effets qui gouvernent le magnétisme des terres rares : formation des moments magnétiques, échange, anisotropie, effets magnétocristallins. Nous terminons ce paragraphe par la présentation schématique des évolutions thermiques des différentes énergies qui induisent la transition ferromagnétique du dysprosium massif.

Le paragraphe 4 est consacré à la présentation des résultats récents obtenus sur plusieurs systèmes épitaxiés à base de terres rares : Gd/Y, Dy/Y, Er/Y, Dy/Lu..., à la lumière desquels nous exposons l'intérêt de notre étude au paragraphe 5.

1. Présentation structurale des terres rares

1.1 Les terres rares dans le tableau périodique

La série des terres rares (figure I-1) correspond au remplissage progressif de la couche électronique 4f.

H ₁																	He ²																																																																																																		
1s																	1s ²																																																																																																		
Li ³	Be ⁴											B ⁵	C ⁶	N ⁷	O ⁸	F ⁹	Ne ¹⁰																																																																																																		
2s	2s ²											2s ² 2p	2s ² 2p ²	2s ² 2p ³	2s ² 2p ⁴	2s ² 2p ⁵	2s ² 2p ⁶																																																																																																		
Na ¹¹	Mg ¹²											Al ¹³	Si ¹⁴	P ¹⁵	S ¹⁶	Cl ¹⁷	Ar ¹⁸																																																																																																		
3s	3s ²											3s ² 3p	3s ² 3p ²	3s ² 3p ³	3s ² 3p ⁴	3s ² 3p ⁵	3s ² 3p ⁶																																																																																																		
K ¹⁹	Ca ²⁰	Sc ²¹	Ti ²²	V ²³	Cr ²⁴	Mn ²⁵	Fe ²⁶	Co ²⁷	Ni ²⁸	Cu ²⁹	Zn ³⁰	Ga ³¹	Ge ³²	As ³³	Se ³⁴	Br ³⁵	Kr ³⁶																																																																																																		
4s	4s ²	3d	3d ²	3d ³	3d ⁴	3d ⁵	3d ⁶	3d ⁷	3d ⁸	3d ⁹	3d ¹⁰	4s ² 4p	4s ² 4p ²	4s ² 4p ³	4s ² 4p ⁴	4s ² 4p ⁵	4s ² 4p ⁶																																																																																																		
Rb ³⁷	Sr ³⁸	Y ³⁹	Zr ⁴⁰	Nb ⁴¹	Mo ⁴²	Tc ⁴³	Ru ⁴⁴	Rh ⁴⁵	Pd ⁴⁶	Ag ⁴⁷	Cd ⁴⁸	In ⁴⁹	Sn ⁵⁰	Sb ⁵¹	Te ⁵²	I ⁵³	Xe ⁵⁴																																																																																																		
5s	5s ²	4d	4d ²	4d ³	4d ⁴	4d ⁵	4d ⁶	4d ⁷	4d ⁸	4d ⁹	4d ¹⁰	5s ² 5p	5s ² 5p ²	5s ² 5p ³	5s ² 5p ⁴	5s ² 5p ⁵	5s ² 5p ⁶																																																																																																		
Cs ⁵⁵	Ba ⁵⁶	La ⁵⁷	Hf ⁷²	Ta ⁷³	W ⁷⁴	Re ⁷⁵	Os ⁷⁶	Ir ⁷⁷	Pt ⁷⁸	Au ⁷⁹	Hg ⁸⁰	Tl ⁸¹	Pb ⁸²	Bi ⁸³	Po ⁸⁴	At ⁸⁵	Rn ⁸⁶																																																																																																		
6s	6s ²	5d	5d ²	5d ³	5d ⁴	5d ⁵	5d ⁶	5d ⁷	5d ⁸	5d ⁹	5d ¹⁰	6s ² 6p	6s ² 6p ²	6s ² 6p ³	6s ² 6p ⁴	6s ² 6p ⁵	6s ² 6p ⁶																																																																																																		
Fr ⁸⁷	Ra ⁸⁸	Ac ⁸⁹	<table border="1"> <tr> <td>Ce⁵⁸</td> <td>Pr⁵⁹</td> <td>Nd⁶⁰</td> <td>Pm⁶¹</td> <td>Sm⁶²</td> <td>Eu⁶³</td> <td>Gd⁶⁴</td> <td>Tb⁶⁵</td> <td>Dy⁶⁶</td> <td>Ho⁶⁷</td> <td>Er⁶⁸</td> <td>Tm⁶⁹</td> <td>Yb⁷⁰</td> <td>Lu⁷¹</td> </tr> <tr> <td>4f²</td> <td>4f³</td> <td>4f⁴</td> <td>4f⁵</td> <td>4f⁶</td> <td>4f⁷</td> <td>4f⁷</td> <td>4f⁹</td> <td>4f¹⁰</td> <td>4f¹¹</td> <td>4f¹²</td> <td>4f¹³</td> <td>4f¹⁴</td> <td>4f¹⁴</td> </tr> <tr> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>5d</td> <td>5d</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>6s²</td> <td>5d</td> </tr> <tr> <td>Th⁹⁰</td> <td>Pa⁹¹</td> <td>U⁹²</td> <td>Np⁹³</td> <td>Pu⁹⁴</td> <td>Am⁹⁵</td> <td>Cm⁹⁶</td> <td>Bk⁹⁷</td> <td>Cf⁹⁸</td> <td>Es⁹⁹</td> <td>Fm¹⁰⁰</td> <td>Md¹⁰¹</td> <td>No¹⁰²</td> <td>Lw¹⁰³</td> </tr> <tr> <td>-</td> <td>5f²</td> <td>5f³</td> <td>5f⁴</td> <td>5f⁶</td> <td>5f⁷</td> <td>5f⁷</td> <td>5f⁷</td> <td>5f⁸</td> <td>5f⁹</td> <td>5f¹⁰</td> <td>5f¹⁰</td> <td>5f¹⁰</td> <td>5f¹⁰</td> </tr> <tr> <td>6d²</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>7s²</td> <td>7s²</td> <td>7s²</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>6d</td> <td>6d</td> </tr> <tr> <td>7s²</td> </tr> </table>															Ce ⁵⁸	Pr ⁵⁹	Nd ⁶⁰	Pm ⁶¹	Sm ⁶²	Eu ⁶³	Gd ⁶⁴	Tb ⁶⁵	Dy ⁶⁶	Ho ⁶⁷	Er ⁶⁸	Tm ⁶⁹	Yb ⁷⁰	Lu ⁷¹	4f ²	4f ³	4f ⁴	4f ⁵	4f ⁶	4f ⁷	4f ⁷	4f ⁹	4f ¹⁰	4f ¹¹	4f ¹²	4f ¹³	4f ¹⁴	4f ¹⁴	6s ²	5d	5d	6s ²	5d	Th ⁹⁰	Pa ⁹¹	U ⁹²	Np ⁹³	Pu ⁹⁴	Am ⁹⁵	Cm ⁹⁶	Bk ⁹⁷	Cf ⁹⁸	Es ⁹⁹	Fm ¹⁰⁰	Md ¹⁰¹	No ¹⁰²	Lw ¹⁰³	-	5f ²	5f ³	5f ⁴	5f ⁶	5f ⁷	5f ⁷	5f ⁷	5f ⁸	5f ⁹	5f ¹⁰	5f ¹⁰	5f ¹⁰	5f ¹⁰	6d ²	6d	6d	7s ²	7s ²	7s ²	6d	7s ²																													
Ce ⁵⁸	Pr ⁵⁹	Nd ⁶⁰	Pm ⁶¹	Sm ⁶²	Eu ⁶³	Gd ⁶⁴	Tb ⁶⁵	Dy ⁶⁶	Ho ⁶⁷	Er ⁶⁸	Tm ⁶⁹	Yb ⁷⁰	Lu ⁷¹																																																																																																						
4f ²	4f ³	4f ⁴	4f ⁵	4f ⁶	4f ⁷	4f ⁷	4f ⁹	4f ¹⁰	4f ¹¹	4f ¹²	4f ¹³	4f ¹⁴	4f ¹⁴																																																																																																						
6s ²	6s ²	6s ²	6s ²	6s ²	6s ²	5d	5d	6s ²	6s ²	6s ²	6s ²	6s ²	5d																																																																																																						
Th ⁹⁰	Pa ⁹¹	U ⁹²	Np ⁹³	Pu ⁹⁴	Am ⁹⁵	Cm ⁹⁶	Bk ⁹⁷	Cf ⁹⁸	Es ⁹⁹	Fm ¹⁰⁰	Md ¹⁰¹	No ¹⁰²	Lw ¹⁰³																																																																																																						
-	5f ²	5f ³	5f ⁴	5f ⁶	5f ⁷	5f ⁷	5f ⁷	5f ⁸	5f ⁹	5f ¹⁰	5f ¹⁰	5f ¹⁰	5f ¹⁰																																																																																																						
6d ²	6d	6d	7s ²	7s ²	7s ²	6d	6d	6d	6d	6d	6d	6d	6d																																																																																																						
7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²	7s ²																																																																																																						

Fig. I-1 : la série des métaux de terres rares dans la classification périodique des éléments.

Leur configuration électronique est de la forme : [Xe]4fⁿ 5d¹ 6s² où n = 0 pour le lanthane et n = 14 pour le lutécium. Dans l'état métallique, les niveaux 5d et 6s sont étendus et se mélangent pour former une bande de conduction contenant trois électrons. En revanche, l'extension spatiale des orbitales 4f est très faible, si bien que les électrons de cette couche interagissent fortement entre eux et demeurent relativement isolés des autres orbitales. L'extension spatiale des différentes couches électroniques du gadolinium est représentée à la figure I-2.

Quelques exceptions sont observées avec l'euporium (4f⁶) et l'ytterbium (4f¹³), qui se situent immédiatement avant le milieu et la fin de la série ; ils ont tendance à gagner un électron pour présenter une couche 4f à demi ou totalement remplie, ce qui leur confère des propriétés d'ions divalents.

On appelle terres rares légères, celles dont le nombre d'électrons 4f est inférieur à sept et terres rares lourdes, celles dont la couche 4f est au moins à moitié remplie ($n \geq 7$). Les terres rares lourdes vont du gadolinium ($n=7$) au lutécium ($n=14$). Dans ce mémoire, nous y adjoindrons l'yttrium qui se situe dans la ligne précédente de la classification périodique, ne possède pas d'électron 4f, mais présente une structure cristalline et des propriétés chimiques très proches de celles des terres rares. L'yttrium sera donc considéré comme une terre rare non magnétique et, étant donné sa structure électronique et ses paramètres de réseau, sera placé en tête du groupe des terres rares lourdes.

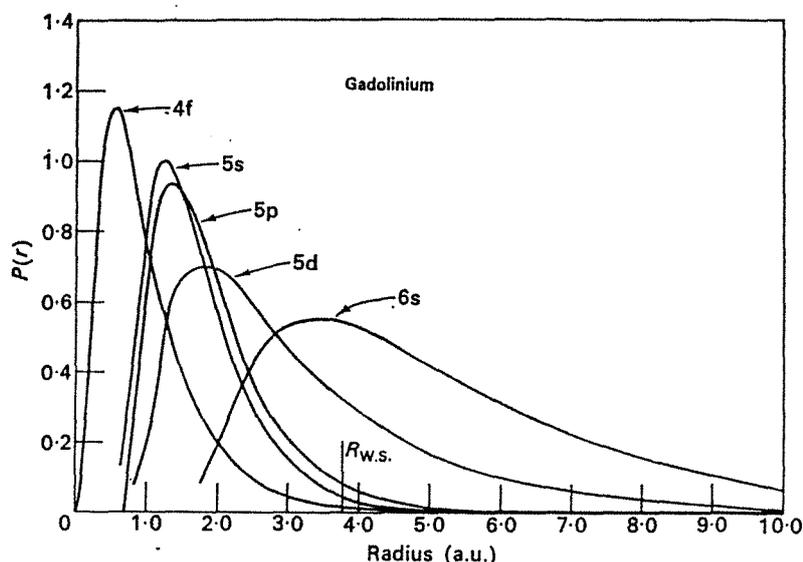


Fig. I-2 : extensions radiales relatives des orbitales électroniques du gadolinium.

1.2 Structure cristalline

Hormis l'ytterbium, les terres rares lourdes et l'yttrium cristallisent dans une structure hexagonale compacte. Le tableau suivant résume les principales caractéristiques cristallines des terres rares lourdes hexagonales.

Les paramètres a et c diminuent légèrement lors du remplissage de la couche 4f. Ce phénomène est dû aux corrélations électroniques et connu sous le vocable de "contraction des lanthanides". Les rapports c/a restent proches de 1.57 et sont donc inférieurs au rapport idéal de 1.633. Notons dès maintenant que les paramètres cristallographiques des terres rares varient très fortement avec la température et qu'ils présentent des variations anormales liées à leurs états magnétiques. Ce point sera détaillé par la suite dans le paragraphe 2.

Les différences relatives entre les paramètres du dysprosium, qui constitue l'élément central de notre étude, et ceux d'un élément X sont définies par $\Delta a = (a_{Dy} - a_X)/a_X$ et $\Delta c = (c_{Dy} - c_X)/c_X$. Ainsi, les paramètres du dysprosium sont de 1.07% (Δc) et de

0.90% (Δa) supérieurs à ceux de l'erbium alors qu'ils sont inférieurs à ceux de l'yttrium ($\Delta c = -1.50\%$ et $\Delta a = -1.56\%$). C'est grâce à l'identité de structure de ces éléments et à leurs faibles différences de paramètres que les superréseaux de terres rares peuvent être relativement facilement synthétisés.

Eléments	densité (g/cm ³)	rayon atom. (Å)	a (Å)	c (Å)	c/a
Y	4.469	1.801	3.648	5.732	1.571
Gd	7.901	1.801	3.634	5.781	1.591
Tb	8.230	1.783	3.605	5.697	1.580
Dy	8.551	1.774	3.591	5.650	1.573
Ho	8.785	1.766	3.578	5.618	1.570
Er	9.066	1.757	3.559	5.585	1.569
Tm	9.321	1.746	3.537	5.554	1.570
Lu	9.841	1.735	3.505	5.549	1.583

Le schéma présenté figure I-3 rappelle les conventions utilisées pour nommer les directions cristallographiques dans les études du comportement magnétique des terres rares. La base (a_1, a_2, a_3) est utilisée habituellement pour les études cristallographiques ; la base (a, b, c) est utilisée pour les études du comportement magnétique des terres rares. Notons que les directions cristallographiques sont ici indiquées entre parenthèses, contrairement à ce que préconisent les conventions cristallographiques (l'utilisation des crochets) ; la raison de ce choix est que les indices entre parenthèses ne correspondent pas à la notation rigoureuse à quatre indices de la direction mais désignent dans la base (a_1, a_2, a_3) le plan auquel la direction est perpendiculaire.

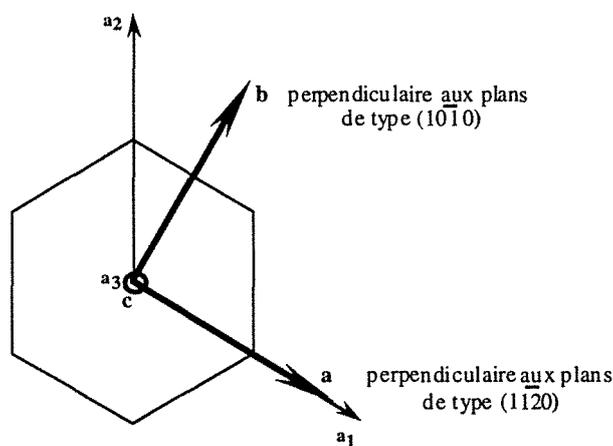


Fig. I-3 : schéma du plan (0001) du réseau hexagonal. La base (a_1, a_2, a_3) est utilisée pour les études cristallographiques ; la base (a, b, c) est utilisée pour les études du comportement magnétique des terres rares.

2. Description de quelques structures magnétiques

2.1 Aperçu général

Les différents types de structures magnétiques rencontrées dans les terres rares lourdes sont résumés figure I-4.

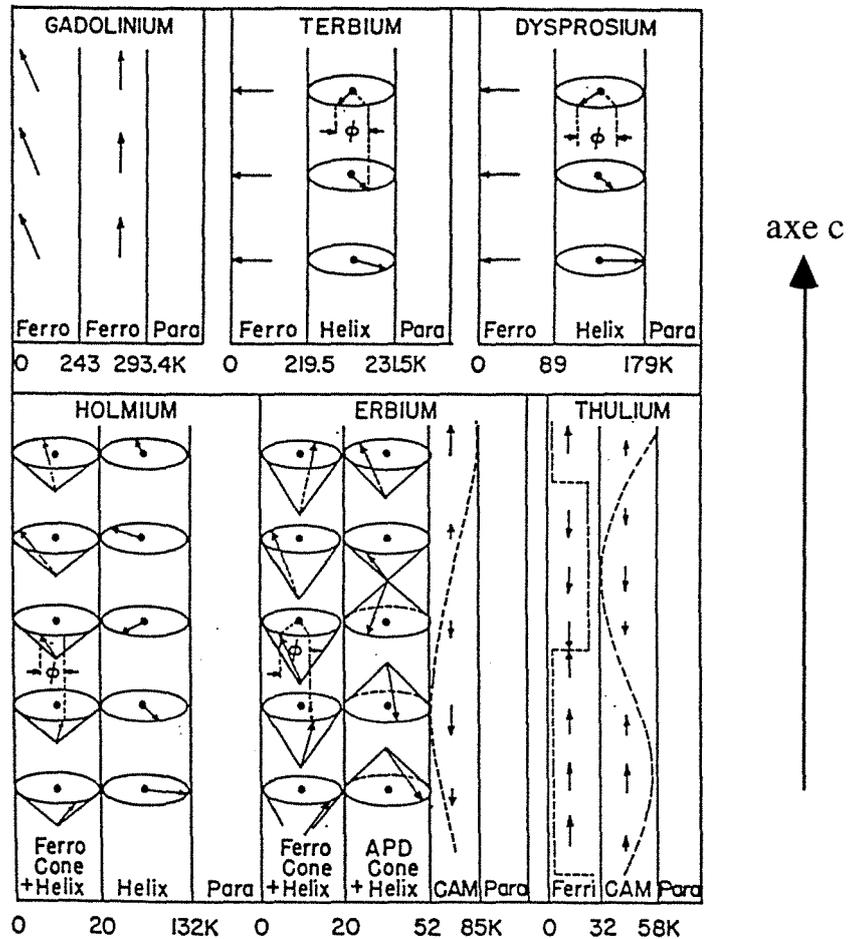


Fig. I-4 : ordre magnétique des terres rares lourdes, déterminé par diffraction de neutrons.

Mis à part le gadolinium qui subit une transition directe de la phase paramagnétique vers la phase ferromagnétique, les terres rares lourdes présentent, en dessous de leur température de Néel T_N , une phase, ou une succession de phases, modulée selon l'axe c , suivie généralement d'une transition ferromagnétique du premier ordre à une température de Curie T_C .

L'expression modulation magnétique suivant l'axe c signifie que tous les moments d'un même plan atomique (0001) sont parallèles entre eux mais qu'ils présentent des modulations d'orientation ou de norme selon l'axe c avec un vecteur d'onde Q (figure I-5).

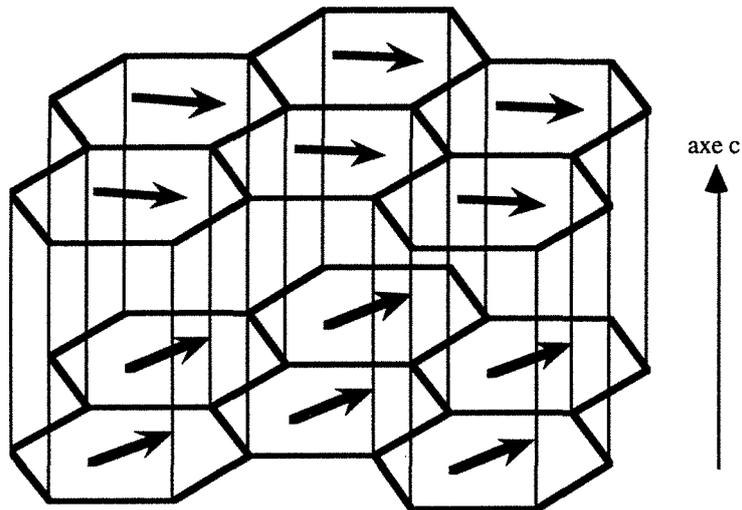


Fig. I-5 : réseau hexagonal dont la structure magnétique est modulée selon l'axe c.

La dépendance en température des vecteurs d'onde des structures magnétiques de Tm, Er, Ho, Dy et Tb est donnée sur la figure I-6.

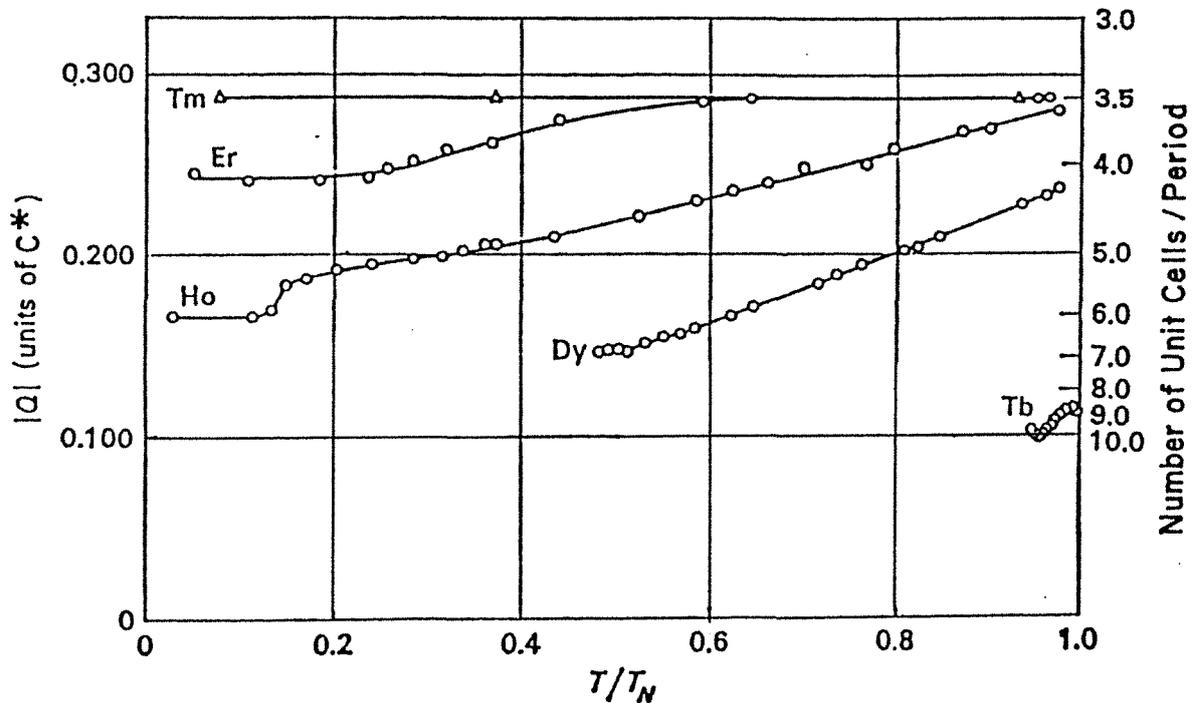


Fig. I-6 : vecteurs d'onde Q des terres rares lourdes, déterminés par diffraction de neutrons, en fonction de la température réduite T/T_N . L'amplitude du vecteur d'onde est donnée en unité du paramètre c^* du réseau réciproque et en nombre de cellules unités selon l'axe c par période.

Le vecteur d'onde Q à la température de Néel augmente avec le remplissage de la couche 4f et, pour un élément donné, le vecteur d'onde de la modulation diminue avec la température.

2.2 Structure magnétique du dysprosium

Le dysprosium présente deux transitions magnétiques : une transition de l'état paramagnétique à l'état hélicoïdal au voisinage de 180 K (178 K[5], 179 K[6]) et une transition vers un état ferromagnétique vers 90 K (89 K[6]).

Dans la phase hélicoïdale [5], tous les moments d'un même plan atomique sont orientés parallèlement entre eux dans le plan de base (0001). L'angle formé entre les moments de deux plans successifs séparés de $c/2$ est appelé $\omega = Q(c/2)$; ses variations thermiques sont présentées figure I-7. Cet angle est égal à 44° à la température de Néel puis décroît quand la température diminue pour atteindre 26° à la température de Curie. Cela représente une périodicité magnétique à 180 K de 23.7 \AA , soit approximativement huit plans atomiques.

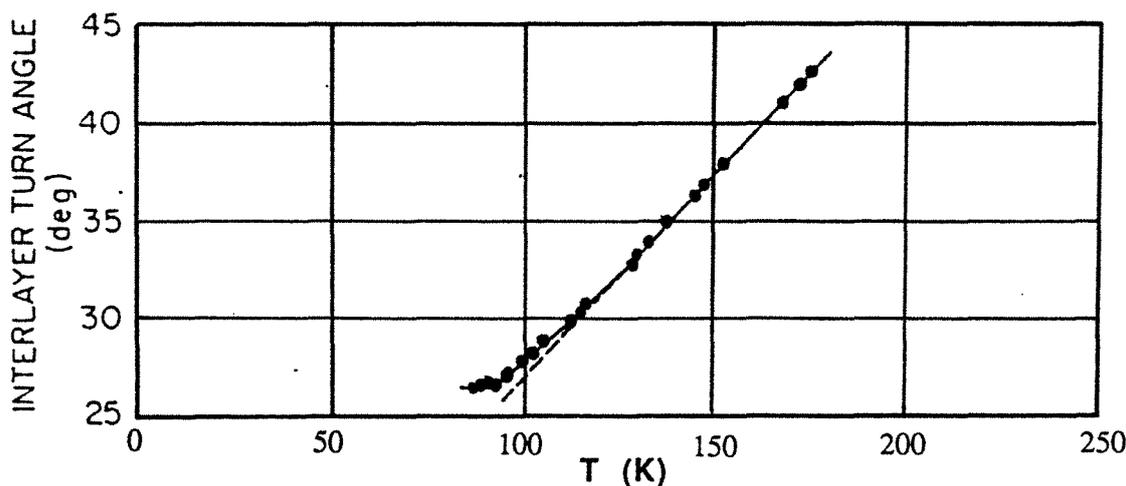


Fig. I-7 : évolution thermique de l'angle de rotation entre les moments de deux plans atomiques (0001) successifs dans la phase hélicoïdale du dysprosium massif [6].

À 85 K, les moments magnétiques, toujours maintenus dans le plan de base, s'alignent ferromagnétiquement selon la direction de facile aimantation ($11\bar{2}0$) (axe a sur le schéma I-3). La phase ferromagnétique peut être induite à haute température par l'application d'un champ magnétique. Des mesures d'aimantation, avec le champ magnétique appliqué selon la direction de facile aimantation, ont été réalisées sur des monocristaux de dysprosium [5]. Les variations de l'aimantation en fonction du champ magnétique, obtenues dans le domaine de température où apparaît la structure en hélice, sont reportées figure I-8. L'aimantation augmente tout d'abord linéairement avec le champ magnétique jusqu'à un champ critique H_c , au-delà duquel l'accroissement brutal de l'aimantation traduit l'apparition de l'ordre ferromagnétique. Le champ critique varie pratiquement linéairement de 0 kOe à la température de Curie à 11 kOe à 160 K. En revanche, l'application d'un champ magnétique perpendiculairement au plan de base est peu efficace.

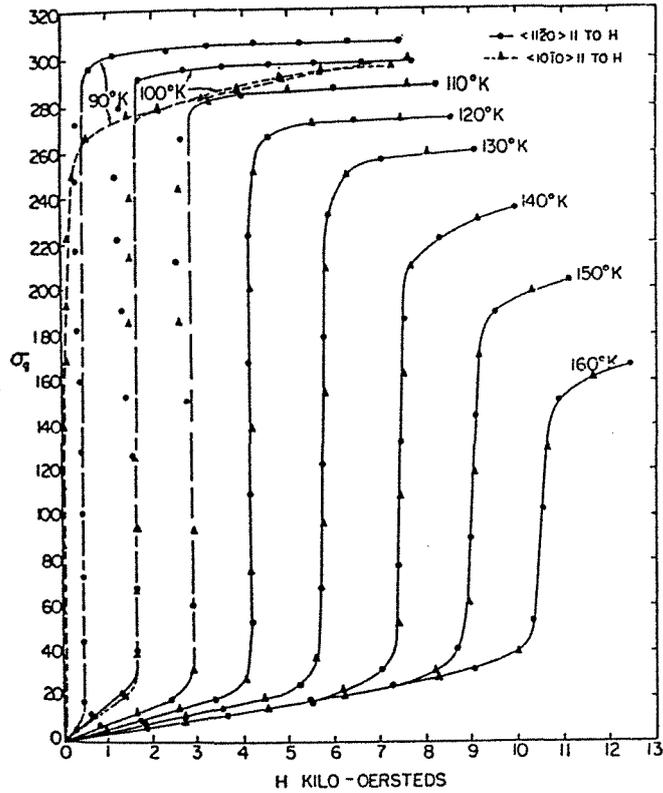


Fig. I-8 : courbes d'aimantation isothermes pour un monocristal de dysprosium. Le champ magnétique est appliqué selon deux directions perpendiculaires du plan de base [5].

Les résultats obtenus en refroidissant le monocristal de dysprosium sous un champ fixe appliqué selon la direction de facile aimantation sont présentés figure I-9.

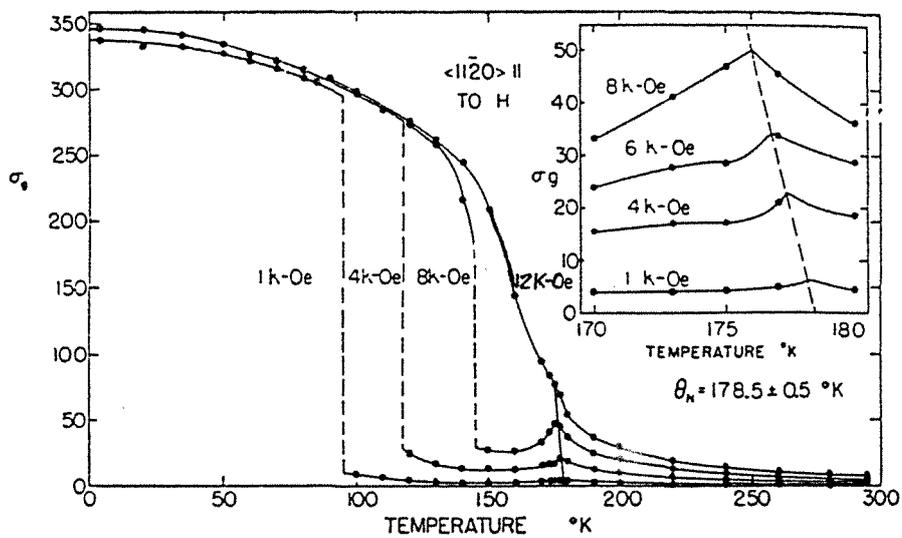


Fig. I-9 : évolutions thermiques de l'aimantation d'un monocristal de dysprosium. Le dysprosium est refroidi sous un champ magnétique constant, appliqué selon la direction de facile aimantation [7].

Quand le champ magnétique appliqué est inférieur à 10 kOe, l'évolution thermique des pics de susceptibilité présentés dans l'encadré indique que la température de Néel est voisine de 179 K. L'augmentation brutale de l'aimantation en dessous de 100 K pour un champ appliqué de 1 kOe traduit la transition de la phase hélicoïdale vers la phase ferromagnétique. L'application d'un champ magnétique supérieur à 12 kOe supprime la structure en hélice dès l'apparition de l'ordre magnétique.

Les évolutions thermiques des paramètres cristallins (voir schéma I-3) entre 300 K et 4.2 K, présentées figure I-10 [8], traduisent une corrélation structure-magnétisme.

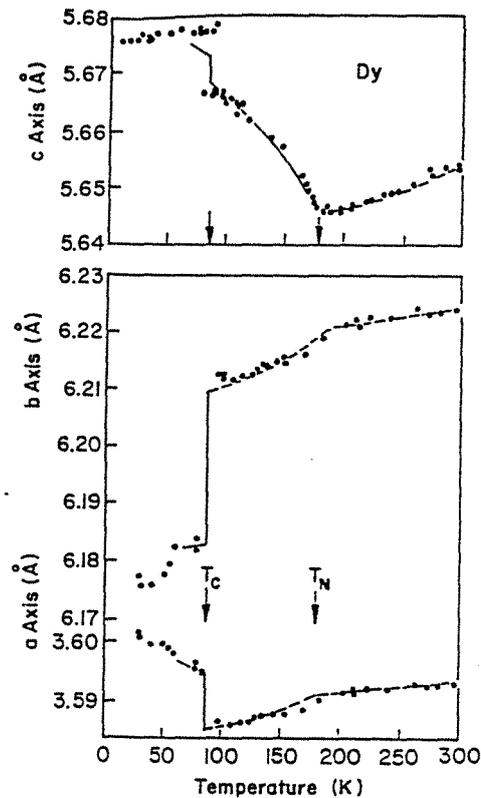


Fig. I-10 : variations thermiques des paramètres de réseau a , b et c du dysprosium, déterminées par diffraction de rayons X [8].

De la température ambiante à la température de Néel, les paramètres diminuent, ce qui représente un comportement classique de contraction thermique. En revanche, entre les températures de Néel et de Curie, le paramètre c croît et a et b décroissent plus rapidement que précédemment avec une rupture de pente à T_N . Enfin, les courbes présentent une discontinuité à la température de transition ferromagnétique : il se produit une expansion de +0.3% selon l'axe c , une expansion de +0.2% selon l'axe a et une contraction de -0.5% selon l'axe b . L'expansion selon c traduit une dilatation cylindrique, alors que la différence de comportement des paramètres a et b traduit la distorsion orthorhombique du plan de base, schématisée figure I-11.

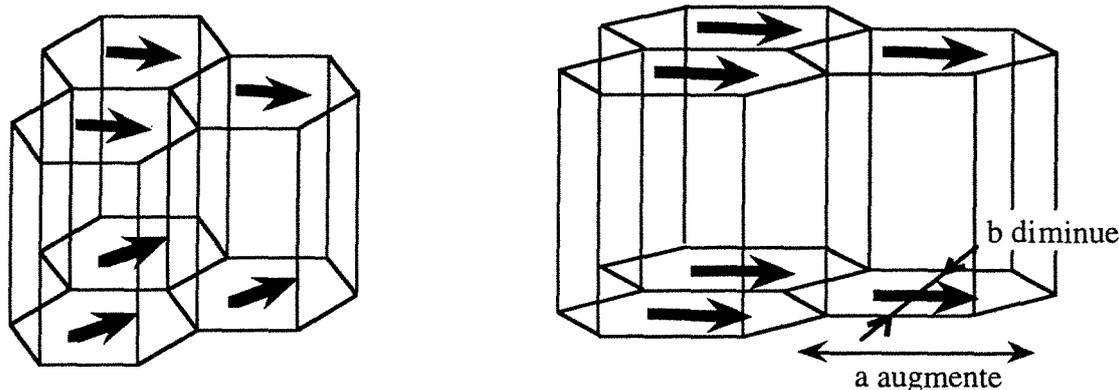


Fig. I-11 : schéma de la distorsion orthorhombique du réseau hexagonal qui accompagne la transition ferromagnétique du dysprosium.

2.3 Structure magnétique de l'erbium

Contrairement au dysprosium, l'axe de facile aimantation de l'erbium est l'axe c . Cet élément présente trois transitions magnétiques : à la température de Néel $T_N = 85$ K, à la température de Curie $T_C = 20$ K et à une température intermédiaire $T_H = 52$ K.

Entre 52 K et 85 K, les moments magnétiques sont orientés selon l'axe c et leur amplitude (moyenne thermique) varie sinusoidalement selon cet axe [9]. La période d'oscillation T est pratiquement constante dans cette gamme de température et correspond à sept plans magnétiques, c'est-à-dire $T = 3.5c$, soit 20.8 Å. Le vecteur d'onde de cette configuration est $Q = 2\pi/T$ et le déphasage entre deux plans successifs est égal à 51.4°. Cette structure est connue sous la dénomination CAM.

Entre 52 K et 20 K, la structure magnétique est plus complexe : outre la modulation selon c (CAM), il apparaît une composante du moment magnétique dans le plan de base μ_{\perp} , qui s'ordonne en formant une configuration hélicoïdale analogue à celle observée pour le dysprosium [5].

À une température immédiatement inférieure à 52 K, la composante selon l'axe c continue à varier sinusoidalement, mais, plus la température décroît, plus la modulation de cette composante devient "carrée". Juste avant la transition ferromagnétique, il apparaît une structure de type antiphase de période $4c$, c'est-à-dire huit plans atomiques : quatre plans successifs portent des moments magnétiques dont les composantes suivant c pointent "vers le haut", suivis de quatre plans dont les composantes suivant c des moments magnétiques pointent "vers le bas".

Les périodes de modulation des composantes selon c et dans le plan de base sont les mêmes et varient avec la température : entre 52 K et 20 K la période passe de $3.5c$ à $4c$, c'est-à-dire l'angle de rotation de 51.4° à 45° .

Des études synchrotron récentes de Gibbs *et al.* [10] laissent supposer que le vecteur d'onde de la modulation varie avec une succession d'états intermédiaires où la période magnétique est commensurable avec le réseau cristallin et le profil de composante selon l'axe c de plus en plus "carré" (figure I-12).

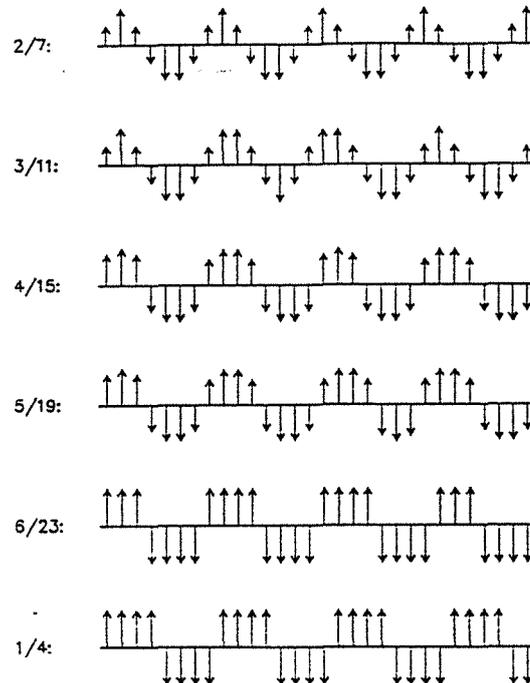


Fig. I-12 : dessin schématique des états de spin intermédiaires selon l'axe c pour l'erbium massif, identifiés par Gibbs *et al.* [10]. Pour faciliter la compréhension de la structure, les moments sont orientés perpendiculairement à l'axe c sur ce schéma.

Ces états intermédiaires sont notés sous la forme n/l , où l et n représentent respectivement le nombre de plans qui constituent la cellule magnétique et le nombre de rotations de π effectués dans une cellule élémentaire par la composante suivant c . Ainsi, la structure antiphase à basse température est notée $1/4$, puisque quatre plans atomiques constituent la cellule élémentaire dans laquelle se produit une seule rotation de π de la composante suivant c .

La figure I-13 présente la dépendance en température du vecteur d'onde de la modulation selon c et de l'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium. Le vecteur d'onde est exprimé en unité de réseau réciproque c^* , ce qui correspond à $2n/l$ si l'on se réfère à la notation précédente. Il est intéressant de noter que la commensurabilité de la période magnétique avec le réseau cristallin conduit certains des états à un moment à saturation non nul selon l'axe c .

Des mesures magnétiques réalisées par Gray et Spedding [11] avec le champ magnétique parallèle à l'axe c révèlent des anomalies de susceptibilité qui peuvent être liées aux états observés par Gibbs.

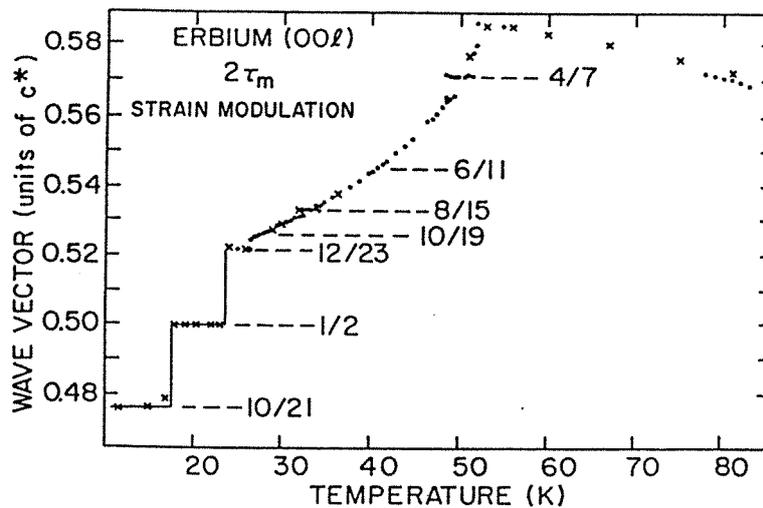


Fig. I-13 : dépendance en température du vecteur d'onde de la modulation selon c et de l'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium, obtenue par mesures synchrotron.

En dessous de 20 K, les moments magnétiques s'ordonnent en une configuration en cône, où la composante dans le plan de base μ_{\perp} conserve un arrangement hélicoïdal et où les composantes selon l'axe c ($\mu_{//}$) sont toutes parallèles entre elles. Il s'agit d'une composante ferromagnétique. La modulation de cette structure en cône varie peu avec la température et reste proche de $4.1c$; l'angle de rotation de la composante dans le plan de base entre deux plans atomiques successifs est donc $\omega = 43^{\circ}$. À 6 K, les valeurs de $\mu_{//}$ et μ_{\perp} sont respectivement $7.8 \mu_B$ et $4.44 \mu_B$, ce qui correspond à un cône de demi-angle 29.6° , et la norme du moment magnétique est proche de $9.6 \mu_B$.

Les évolutions thermiques des déformations mesurées selon les trois directions a , b et c sont représentées à la figure I-14 [12] ; elles font apparaître des discontinuités aux températures caractéristiques de la structure magnétique de l'élément, que l'on retrouve lors de la mesure des paramètres de réseau en fonction de la température [13].

Après une décroissance monotone des trois paramètres due au phénomène de contraction thermique, un comportement anormal apparaît à T_N : le paramètre c croît alors que les paramètres a et b diminuent du même pourcentage avec une rupture de pente à T_N ; ceci traduit une distorsion cylindrique qui s'amplifie quand la température décroît. À T_C , une discontinuité de paramètres qui va dans le sens d'une amplification de la distorsion cylindrique est de nouveau observée. Contrairement au cas du dysprosium, les paramètres a et b évoluent de façon similaire ; il n'y a pas de distorsion orthorhombique, ce qui s'explique par le fait que les structures magnétiques restent symétriques par rapport à l'axe c .

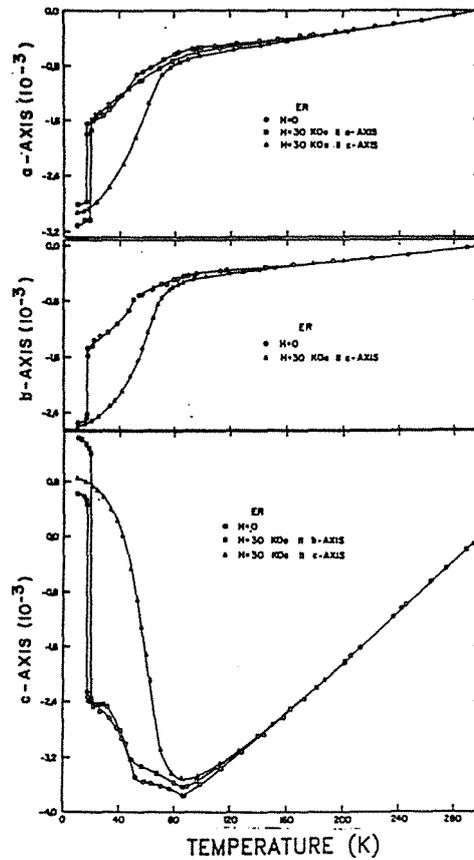


Fig. I-14: variations thermiques des déformations selon les directions de réseau a, b et c de l'erbium [12].

De nouveau, l'application d'un champ magnétique suivant l'axe c précipite la transition ferromagnétique, comme le montrent les résultats obtenus par Green [14] sur un monocristal d'erbium (figure I-15).

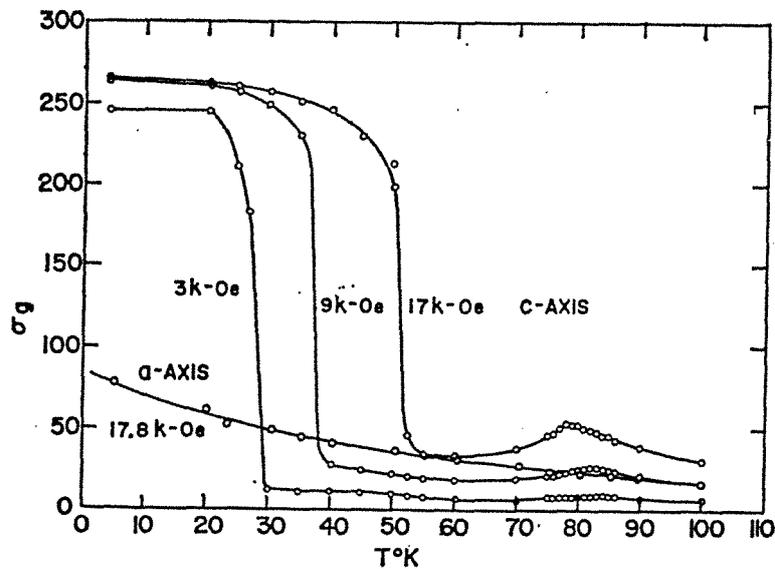


Fig. I-15 : évolutions thermiques de l'aimantation d'un monocristal d'erbium. L'erbium est refroidi sous un champ magnétique constant, appliqué selon la direction c de facile aimantation [14].

L'apparition de l'ordre magnétique est caractérisée par le pic de susceptibilité, situé à 85 K sur la courbe obtenue sous faible champ. La valeur de la température de Néel est décalée vers les basses températures quand le champ magnétique appliqué augmente.

L'application d'un champ magnétique dans le plan de base permet d'écarter les moments de leur direction de facile aimantation et conduit à une succession d'étapes intermédiaires (figure I-16) [15].

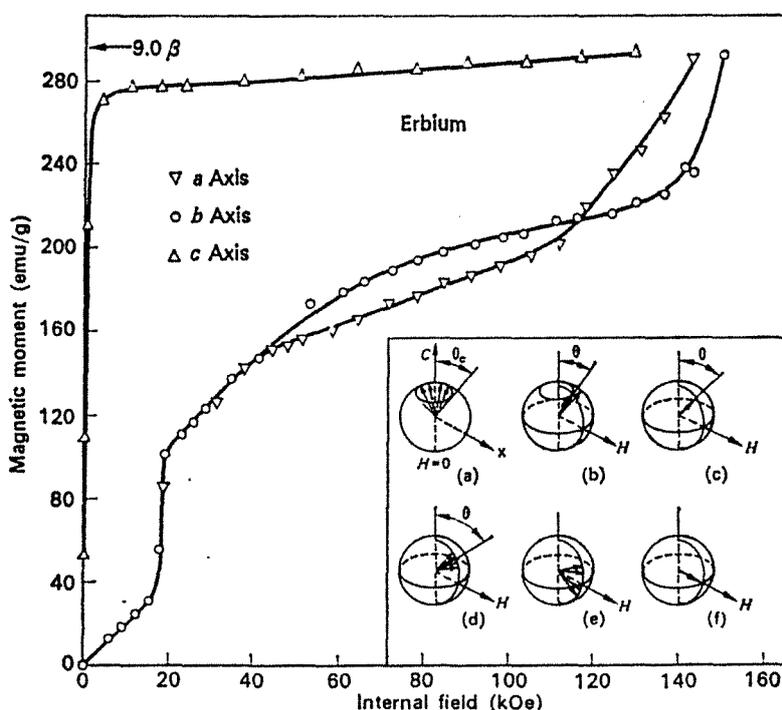


Fig. I-16 : variations de l'aimantation de l'erbium à 4.2 K en fonction du champ magnétique [15]. L'encadré présente les différentes étapes théoriques qui sont supposées se succéder lorsque le champ magnétique appliqué dans le plan de base est augmenté progressivement [16].

L'étroite relation entre le comportement magnétique et les effets magnétostrictifs dans le dysprosium et l'erbium étant un point fondamental pour notre étude, il est important d'en retenir les principales caractéristiques.

Afin de synthétiser de façon extrêmement simplifiée ce qui a été dit à ce propos, la figure I-17 schématise conjointement les variations thermiques des paramètres c et les phases magnétiques des deux éléments. Il apparaît que, dans le domaine paramagnétique, le paramètre c décroît avec la température selon le phénomène classique de contraction thermique. Le développement d'un ordre magnétique modulé de la composante du moment dans le plan de base s'accompagne de l'augmentation du paramètre c , atténuée par la contraction thermique dont l'effet se manifeste jusqu'à basse température.

La dilatation brutale et discontinue du réseau selon la direction (0001) est liée à la transition ferromagnétique, que les moments s'alignent alors selon une direction du plan de base, comme dans le cas du dysprosium, ou selon l'axe c, comme pour l'erbium.

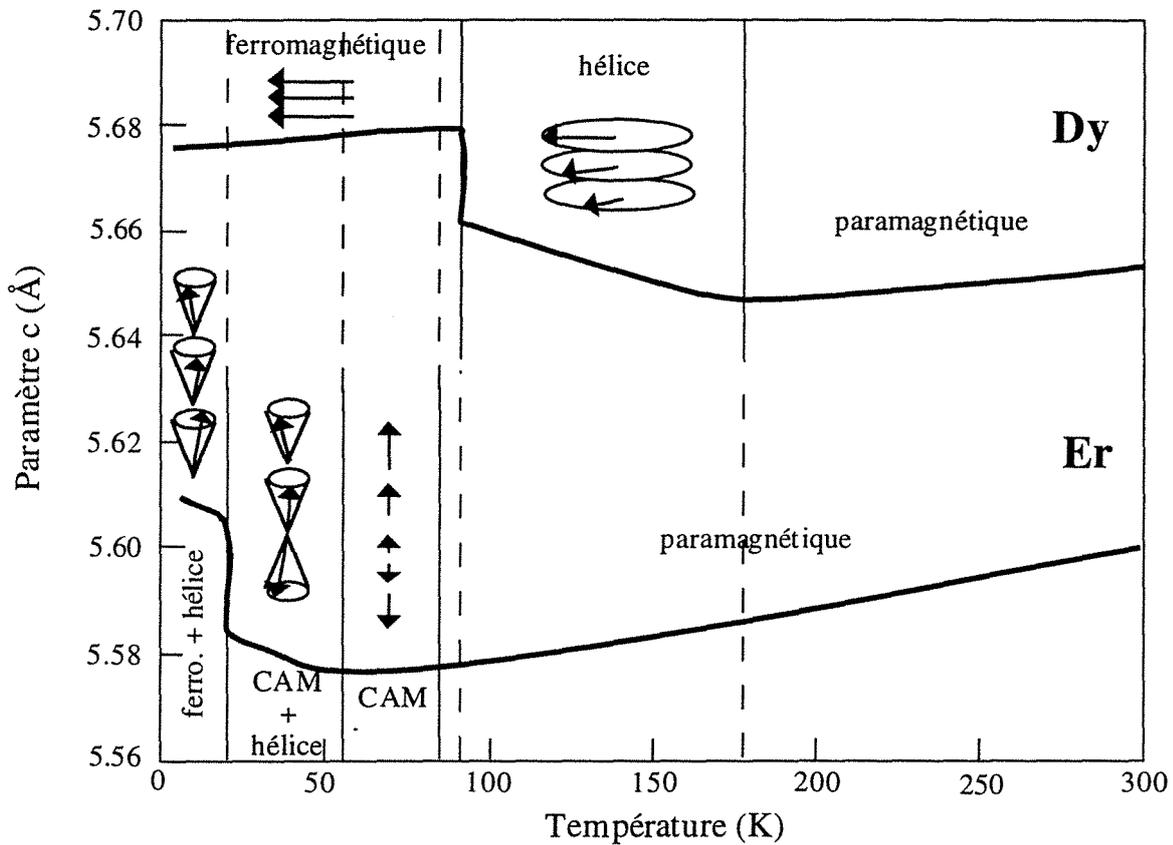


Fig. I-17 : schéma des évolutions thermiques des paramètres c et des phases magnétiques dans le dysprosium et l'erbium massifs.

2.4 Structure magnétique des alliages Dy-Er

Les terres rares lourdes, hormis l'ytterbium, forment entre elles des solutions solides sur l'ensemble de la gamme de composition.

Les alliages Dy-Er ont été principalement étudiés par Millhouse *et al.* [17], dont les résultats de diffraction neutronique sont résumés dans le diagramme de phases magnétiques présenté figure I-18.

Il apparaît que les structures magnétiques observées évoluent progressivement de celles rencontrées dans l'erbium massif, où les moments sont principalement dirigés selon l'axe c, à celles observées dans le dysprosium massif, où les moments sont maintenus

dans le plan (0001). Quand la concentration en dysprosium diminue, la température de Néel décroît de 180 K à 80 K ; la température de Curie chute brutalement pour une concentration de 75%, si bien qu'il existe une région entre 40% et 75% de dysprosium où l'alliage n'est pas ferromagnétique sous champ nul mais développe une structure hélicoïdale contenue dans le plan de base à toute température inférieure à la température de Néel.

La proportion d'erbium contenue dans l'alliage influe alors sur l'angle de rotation entre moments magnétiques, puisque cet angle, de 43° à la température de Néel dans le dysprosium massif, est de 47° pour 10% d'erbium et de 49° pour 60% d'erbium. La barrière énergétique entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique croît donc avec la proportion d'erbium.

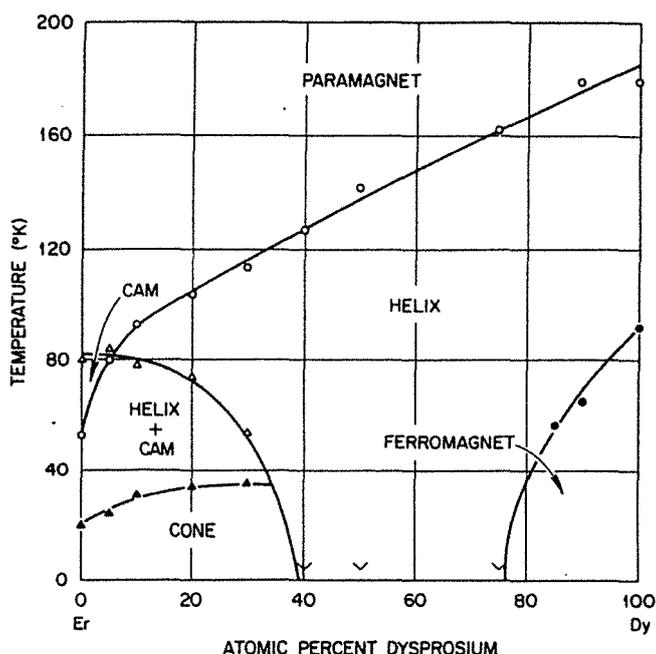


Fig. I-18 : diagramme de phases magnétiques du système Dy-Er [17].

Dans la région riche en erbium se produit une inversion des deux températures d'ordre les plus élevées. L'alliage ne contenant que 5% de dysprosium s'ordonne à 85 K selon une structure modulée suivant c et la composante dans le plan apparaît à 80 K, c'est-à-dire 30 K au-dessus de la température mesurée dans l'erbium massif. En revanche, l'alliage à 10% de dysprosium développe tout d'abord une structure hélicoïdale contenue dans le plan (0001) à 93 K, la composante parallèle à c n'apparaissant qu'en dessous de 78 K.

Les structures modulées suivant c et en cône sont quelques peu modifiées par rapport à celles observées dans l'élément massif : quand la concentration en dysprosium augmente, l'évolution de la modulation sinusoïdale vers la modulation "carrée" disparaît et l'angle du cône ferromagnétique croît linéairement pour atteindre brutalement 90° au-delà de 40% de dysprosium.

3. Les paramètres gouvernant le comportement magnétique des métaux de terres rares

3.1 Moment magnétique des électrons 4f

Les électrons de la couche 4f sont à l'origine du magnétisme des terres rares. Dans cette couche, l'interaction de Coulomb est plus forte que le couplage spin-orbite, lui-même plus important que l'énergie d'échange et que l'énergie de champ cristallin.

Il s'ensuit que la formation des moments magnétiques peut être décrite en deux étapes :

(i) couplage indépendant des moments cinétiques orbitaux \mathbf{l}_i et des spins \mathbf{s}_i des électrons 4f (i varie de 1 à n) pour former un moment cinétique orbital total \mathbf{L} et de spin

total \mathbf{S} :

$$\mathbf{L} = \sum_{i=1}^n \mathbf{l}_i \text{ et } \mathbf{S} = \sum_{i=1}^n \mathbf{s}_i.$$

(ii) couplage spin-orbite entre \mathbf{L} et \mathbf{S} pour former le moment angulaire total $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ auquel est lié le moment magnétique.

Les termes d'échange et de champ cristallin interviennent par la suite, sans modifier le moment magnétique ainsi formé.

Les valeurs de S , L et J sont données très classiquement par les règles de Hund [18], dont on rappelle l'énoncé :

(i) La valeur de S doit être maximale, pour imposer aux électrons d'appartenir à des orbitales différentes et d'être donc éloignés autant que possible les uns des autres ; cette contrainte correspond à la minimisation de l'énergie de Coulomb. $S = n/2$ pour les terres rares légères et $S = (14-n)/2$ pour les terres rares lourdes dont la couche 4f est plus qu'à demi pleine.

(ii) La valeur de L doit être maximale en tenant compte des restrictions imposées par la première règle.

(iii) La valeur de J est : $J = L - S$ pour les terres rares légères où le couplage spin-orbite favorise \mathbf{L} et \mathbf{S} antiparallèles,

$J = L + S$ pour les terres rares lourdes où le couplage spin-orbite favorise \mathbf{L} et \mathbf{S} parallèles.

Compte tenu des lois de composition de moments cinétiques et des facteurs de Landé des moments cinétiques orbitaux et de spin, la valeur théorique du moment magnétique à saturation est donnée par la relation : $\mu_{th} = g_J \mu_B J$, où μ_B est le magnéton de Bohr et g_J est le facteur de Landé global:

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$$

Les valeurs théoriques et expérimentales des moments à saturation des terres rares lourdes sont reportées dans le tableau ci-dessous :

Eléments	4f ⁿ	S	L	J	gJ	μ _{th} (μ _B)	μ _{exp} (μ _B)	T _N (K)	θ (K)
Gd	7	7/2	0	7/2	2	7.94	7.95	---	317
Tb	8	3	3	6	3/2	9.7	9.7	229	239
Dy	9	5/2	5	15/2	4/3	10.6	10.64	178	169
Ho	10	2	6	8	5/4	10.6	10.89	132	88
Er	11	3/2	6	15/2	6/5	9.6	9.5	85	62
Tm	12	1	5	6	7/6	7.6	7.62	58	41
Lu	14	0	0	0	---	0	0	---	---

Pour la plupart des terres rares, le moment magnétique expérimental du métal est très proche de la valeur théorique de l'ion trivalent. En première approximation, le métal de terre rare peut donc être considéré comme un ensemble d'ions trivalents porteurs de moments magnétiques 4f localisés et bien déterminés.

3.2 Présentation des différentes interactions

Si le problème de la formation des moments magnétiques localisés des terres rares est finalement relativement simple, la diversité des interactions entre moments magnétiques et entre les moments magnétiques et le réseau cristallin rend la situation complexe.

La composante magnétique de l'hamiltonien s'écrit de façon générale :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{éch}} + \mathcal{H}_{\text{an}} + \mathcal{H}_{\text{ms}} + \mathcal{H}_Z$$

$\mathcal{H}_{\text{éch}}$ représente l'échange indirect (interaction RKKY) entre les moments 4f d'atomes différents.

\mathcal{H}_{an} est le terme de champ cristallin, dû aux interactions coulombiennes entre le nuage électronique associé au moment localisé et les ions voisins situés aux sites du réseau hexagonal non déformé.

\mathcal{H}_{ms} traduit les effets de magnétostriction qui se décomposent en deux termes : un terme d'énergie élastique et un terme d'énergie magnétoélastique.

\mathcal{H}_Z est l'énergie Zeeman résultant de l'interaction entre le moment magnétique et le champ magnétique extérieur appliqué.

À une température donnée, la structure magnétique d'un élément de terre rare est celle pour laquelle l'énergie libre associée à l'hamiltonien total est minimale. Elle dépend donc des importances relatives des différents termes qui interviennent et la succession des phases magnétiques est régie par les variations thermiques relatives de chacun de ces termes. Nous rappelons dans les paragraphes suivants les principales caractéristiques des différents termes.

3.3 Interaction indirecte d'échange

Le principe

Les orbitales 4f sont très localisées (leur rayon est dix fois plus petit que la distance interatomique) et écrantées par les couches 5s et 5p (figure I-2). Aussi, le recouvrement entre les fonctions d'onde 4f centrées sur deux sites voisins est trop faible pour conduire à une énergie d'échange direct significative. En revanche, le recouvrement entre fonctions d'onde 4f et 5d est suffisant pour permettre un échange direct entre le moment local et les électrons de conduction ; cette interaction entre électrons 4f et électrons de conduction conduit à un échange indirect important entre les moments magnétiques d'atomes voisins. Le couplage entre électrons 4f d'atomes voisins se réalise en trois étapes (figure I-19) :

- (i) le spin S_i de l'atome i interagit localement avec les électrons de conduction et les polarise,
- (ii) les électrons de conduction transmettent la polarisation à grande distance,
- (iii) les électrons polarisés à grande distance interagissent localement avec le spin S_j de l'atome j .

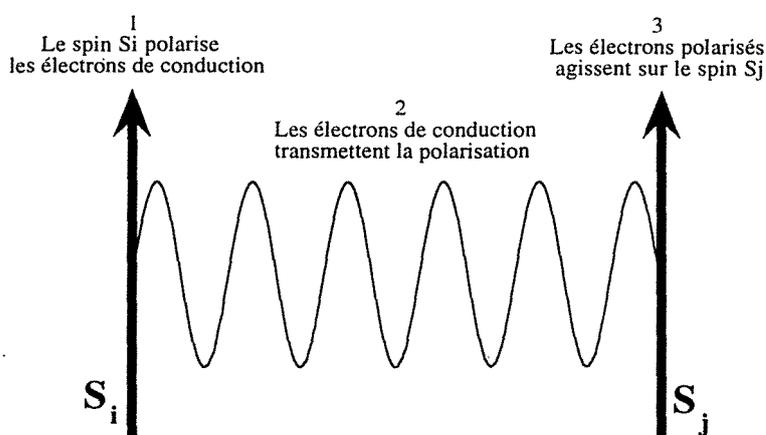


Fig. I-19: schéma de principe de l'interaction d'échange indirecte RKKY entre les spins S_i et S_j de deux atomes voisins.

On est ainsi en présence d'une interaction indirecte entre les spins S_i et S_j de deux atomes voisins, via les électrons de conduction. L'échange dépend donc de la polarisabilité du gaz d'électrons de conduction.

Ce modèle d'échange indirect dans le gaz d'électrons libres fut proposé par Ruderman et Kittel [19] pour expliquer le couplage à longue distance entre moments nucléaires dans un gaz d'électrons libres, puis étendu par Kasuya [20] et Yosida [21] pour traiter des interactions s-d ou s-f entre moment local et électrons de conduction dans les matériaux magnétiques. Ils établirent le formalisme qui décrit ce type de couplage effectif 4f-4f, connu maintenant sous le nom de RKKY. L'hamiltonien d'échange s'écrit :

$$\mathcal{H}_{f-f} = - 2 \sum_{\mathbf{R}_{ij}} \tilde{J}(\mathbf{R}_{ij}) \mathbf{J}_i \cdot \mathbf{J}_j$$

où $\mathbf{J}_{i,j}$ est le moment angulaire total et $\tilde{J}(\mathbf{R}_{ij})$ est l'intégrale d'échange effectif entre moments 4f. La transformée de Fourier $\tilde{J}(\mathbf{q})$, telle que :

$$\tilde{J}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_{l'}) = \sum_{\mathbf{q}} \tilde{J}(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_{l'})}$$

s'exprime comme le produit de l'échange $j_{sf}(\mathbf{q})$ entre électrons de conduction et électrons 4f et de la susceptibilité généralisée $\chi(\mathbf{q})$, qui représente la réponse des électrons de conduction à un champ de vecteur d'onde \mathbf{q} .

Pour N spins :

$$\tilde{J}(\mathbf{q}) = 2N^{-1}(g_j - 1)^2 \left| \tilde{j}_{sf}(\mathbf{q}) \right|^2 \chi(\mathbf{q})$$

où $\tilde{j}_{sf}(\mathbf{q})$ apparaît au carré car l'interaction électrons de conduction-électrons 4f intervient deux fois.

Dans la pratique, on suppose généralement que $\tilde{j}_{sf}(\mathbf{q})$ est une constante égale à j (ce qui correspond à une fonction d'interaction de type delta).

Pour un gaz d'électrons libres à trois dimensions, la surface de Fermi est une sphère et $\chi(\mathbf{q})$ est proportionnelle à :

$$f(q) = 1 + \frac{4k_F^2 - q^2}{4k_F q} \ln \left| \frac{2k_F + q}{2k_F - q} \right|$$

où k_F est le rayon de la surface de Fermi. Ceci conduit dans l'espace direct à l'expression :

$$\tilde{J}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_l') = 9\pi(j^2 / \varepsilon_F) F(2k_F|\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_l'|)$$

où :

$$F(x) = \frac{x \cos x - \sin x}{x^4}$$

L'interaction est donc une interaction à longue distance qui oscille avec une période $(2k_F)^{-1}$ et décroît en R^{-3} . L'échange entre sites peut être positif ou négatif et dépend de la distance qui les sépare.

Ordre hélicoïdal et espace réciproque

Dans l'espace réciproque, l'ordre hélicoïdal résulte de la présence d'un maximum de $\tilde{J}(\mathbf{q})$ en un vecteur d'onde $\mathbf{Q} \neq \mathbf{0}$, qui se trouve être le vecteur d'onde de la phase magnétique. En fait, les surfaces de Fermi des terres rares sont très complexes et la fonction $f(\mathbf{q})$ est anisotrope et dépend fortement de leurs détails.

Keeton et Loucks [22] sont les premiers à avoir suggéré que de subtiles différences entre les surfaces de Fermi du gadolinium et du dysprosium, obtenues par des calculs relativistes, modifiaient la susceptibilité généralisée des éléments de façon suffisante pour expliquer l'apparition d'un ordre ferromagnétique dans le gadolinium et hélicoïdal dans le dysprosium. La surface de Fermi des terres rares peut être décrite comme un "tronc" central sur lequel sont greffés des "bras" perpendiculaires, comme on le voit sur la figure I-20, où est représentée la surface de Fermi du gadolinium [23].

Le "tronc" représente la contribution des bandes s et p, les bras celle des bandes d. La surface de Fermi du gadolinium présente des "bras" disjoints, alors que, dans le cas du dysprosium, ou du terbium [24] (figure I-21), ces "bras" sont reliés et forment ainsi deux portions de la surface de Fermi plates et parallèles, distantes d'un vecteur d'onde \mathbf{Q} .

Pour cette portion de surface de Fermi, la susceptibilité généralisée $\chi(\mathbf{q})$ est proportionnelle, comme dans le cas du gaz d'électrons libres à une dimension où la surface de Fermi est également constituée de deux plans parallèles, à :

$$f(\mathbf{q}) = \frac{m}{2\pi N \hbar^2} \frac{1}{q} \ln \left| \frac{Q - q}{Q + q} \right|$$

La jonction entre les "bras" de la surface de Fermi est donc à l'origine du maximum de susceptibilité généralisée pour un vecteur d'onde \mathbf{Q} non nul. En fait, le parallélisme entre deux portions de surface de Fermi fait qu'un vecteur de transfert \mathbf{Q} est très privilégié et contribue de façon prépondérante à la susceptibilité généralisée.

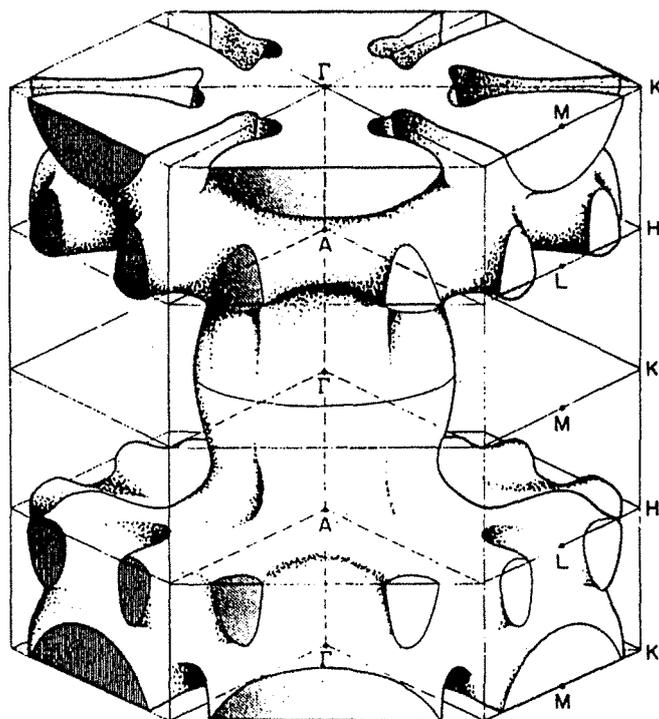


Fig. I-20 : surface de Fermi du gadolinium. Les états situés à l'intérieur de la surface sont libres ; ceux situés à l'extérieur sont occupés.

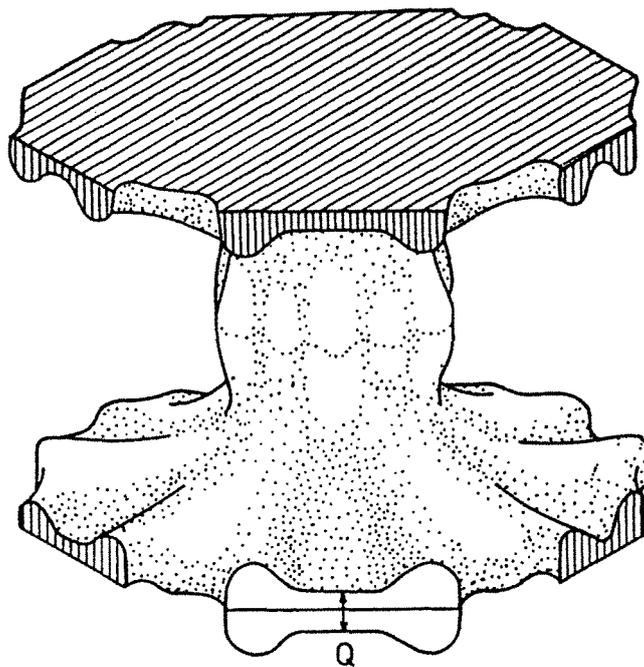
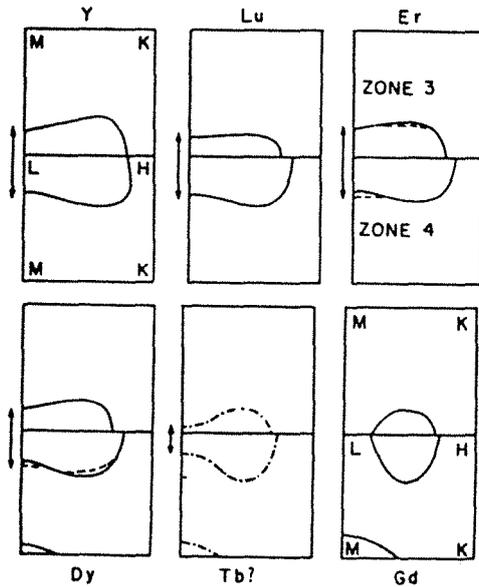


Fig. I-21 : surface de Fermi du terbium [24]. La présence de deux portions de surface plates et parallèles conduit à un maximum de susceptibilité généralisée en un vecteur d'onde Q , caractéristique de la structure hélicoïdale.

Les coupes des surfaces de Fermi de différentes terres rares lourdes [22] sont reportées figure I-22. Le tableau regroupe les vecteurs d'onde Q reliant les portions de surface de Fermi et les angles ω entre moments correspondants.

Il est intéressant de noter que l'yttrium, non magnétique parce qu'il ne possède pas d'électron 4f, possède également une surface de Fermi pour laquelle les "bras" sont reliés, et donc un maximum de susceptibilité généralisée des électrons de conduction pour un vecteur d'onde non nul. Ceci est d'une importance fondamentale pour comprendre certains phénomènes observés dans des superréseaux ou des alliages à base d'yttrium.



	Q (π/c)	ω ($^\circ$)
Y	0.54	48.6
Gd	0	0
Tb	0.224	20.2
Dy	0.49	44.1
Er	0.57	51.3
Lu	0.53	47.7

Fig. I-22 : sections des surfaces de Fermi des terres rares lourdes et de l'yttrium [22]. Le tableau indique les vecteurs d'ondes Q et les angles ω correspondant à l'espacement entre les portions de surface de Fermi.

Les courbes $\tilde{J}(q)$ des différentes terres rares lourdes [25] sont présentées à la figure I-23. Le gadolinium, dont le maximum de $\tilde{J}(q)$ se présente en $Q = 0$, s'ordonne directement en une phase ferromagnétique, alors que les autres terres rares, telles que le dysprosium, l'erbium ou le terbium s'ordonnent en une phase modulée de vecteur d'onde Q , tel que $\tilde{J}(Q)$ soit maximum. Q croît avec le remplissage de la bande 4f.

Pour certaines terres rares, telles que le terbium, la différence ($\tilde{J}(Q) - \tilde{J}(0)$) est faible alors qu'elle est nettement plus importante pour le dysprosium ou l'holmium. Cette différence est liée à la stabilité de la phase hélicoïdale par rapport à la phase ferromagnétique, comme cela apparaît à l'issue d'un calcul en théorie de champ moyen, exposé au paragraphe suivant.

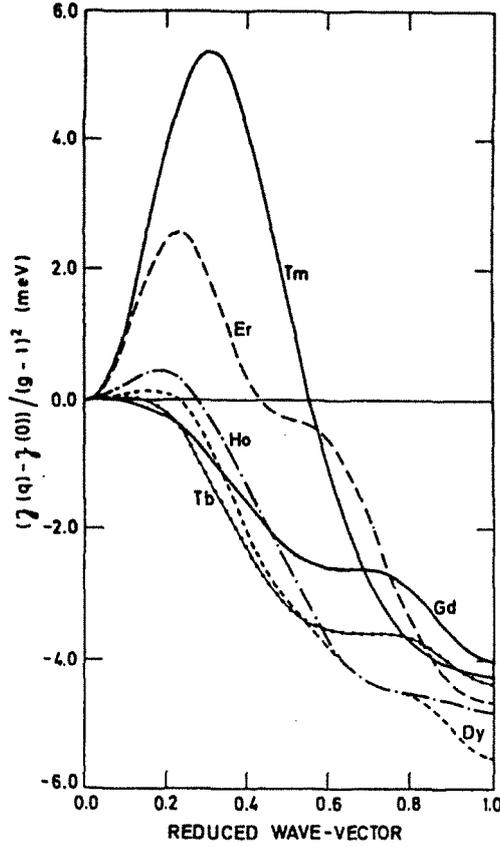


Fig. I-23 : interactions d'échange déterminées expérimentalement pour les terres rares lourdes [25]. L'amplitude du pic augmente avec le numéro atomique.

Barrière d'énergie d'échange entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique.

Partant de l'expression de l'énergie d'échange entre deux spins : $E = -2J_{ij} \langle \mathbf{J}_i \rangle \langle \mathbf{J}_j \rangle$, on définit un champ effectif $\mathbf{H}_{\text{eff}}^i$ s'appliquant sur le spin i :

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}^i = \sum_j 2 \frac{J_{ij} \langle \mathbf{J}_j \rangle}{g_j \mu_B}$$

où les grandeurs entre crochets représentent les moyennes thermiques des spins, reliées aux moyennes thermiques des moments magnétiques $\langle \mu_{i(j)} \rangle$ par $\langle \mu_{i(j)} \rangle = g_j \mu_B \langle \mathbf{J}_{i(j)} \rangle$.

Cela conduit à une énergie d'échange moyenne par atome i :

$$E_{\text{éch.}}^i = -\frac{1}{2} \langle \mu_i \rangle \mathbf{H}_{\text{eff}}^i = -\sum_{j \neq i} J_{ij} \langle \mathbf{J}_i \rangle \langle \mathbf{J}_j \rangle$$

Puisque tous les spins $\langle \mathbf{J}_i \rangle$ (en moyenne thermique) d'un même plan de base i d'un élément de terre rare sont égaux et parallèles, on peut écrire :

$$\sum_j J_{ij} \langle \mathbf{J}_j \rangle = J_0 \langle \mathbf{J}_i \rangle + J_1 (\langle \mathbf{J}_{i+1} \rangle + \langle \mathbf{J}_{i-1} \rangle) + J_2 (\langle \mathbf{J}_{i+2} \rangle + \langle \mathbf{J}_{i-2} \rangle)$$

où $\langle \mathbf{J}_{i+1} \rangle$ et $\langle \mathbf{J}_{i-1} \rangle$ sont les spins des plans atomiques $i-1$ et $i+1$ parallèles au plan de base i et situés de part et d'autre, $\langle \mathbf{J}_{i+2} \rangle$ et $\langle \mathbf{J}_{i-2} \rangle$ ceux des plans seconds voisins. J_0 , J_1 et J_2 sont les intégrales d'échange entre le spin $\langle \mathbf{J}_i \rangle$ et l'ensemble des spins du même plan (J_0) et des plans voisins (J_1 et J_2).

Si l'on se place dans le cas d'une structure modulée selon l'axe c , où les moments magnétiques sont confinés dans le plan (0001), les moyennes thermiques des spins de plans successifs sont égales ($\langle J \rangle$) et forment entre elles un angle ω .

Il s'ensuit que :

$$\begin{aligned} \sum_j J_{ij} \langle \mathbf{J}_j \rangle &= \langle J \rangle (J_0 + 2J_1 \cos \omega + 2J_2 \cos 2\omega) \\ &= \langle J \rangle \tilde{J}(Q) \end{aligned}$$

L'angle ω (en radians) est lié au vecteur d'onde Q de la modulation le long de l'axe c par : $\omega = Q c/2$, où $c/2$ est la distance entre plans.

L'énergie d'échange hélicoïdale par atome est donc :

$$\begin{aligned} (E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}} &= - \langle J \rangle^2 \tilde{J}(Q) \\ &= - \langle J \rangle^2 (J_0 + 2J_1 \cos \omega + 2J_2 \cos 2\omega) \end{aligned}$$

dont la minimisation conduit à : $\cos \omega = \frac{J_1}{4|J_2|}$

Cela signifie que la phase hélicoïdale n'apparaît que si $4|J_2| > J_1$.

L'énergie d'échange ferromagnétique correspond à $\omega = 0$, soit :

$$(E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}} = - \langle J \rangle^2 \tilde{J}(0) = - \langle J \rangle^2 (J_0 + 2J_1 + 2J_2)$$

Compte tenu de la relation liant ω , J_1 et J_2 , la barrière d'énergie d'échange entre les deux phases magnétiques s'écrit :

$$\begin{aligned}
\Delta E_{\text{éch.}} &= (E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}} - (E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}} \\
&= - \langle J \rangle^2 \left(\tilde{J}(Q) - \tilde{J}(0) \right) \\
&= - J_1 \langle J \rangle^2 \frac{(1 - \cos\omega)^2}{\cos\omega}
\end{aligned}$$

La moyenne thermique $\langle J \rangle$ est liée à l'aimantation réduite σ , donnée par la fonction de Brillouin :

$$\sigma(T) = \frac{\langle \mu \rangle}{\mu_{\text{sat.}}} = \frac{\langle J \rangle}{J} = \mathfrak{B}_J \left(\frac{\langle \mu \rangle \cdot \mathbf{H}^{\text{eff}}}{k_B T} \right) = \mathfrak{B}_J \left(\frac{\langle J \rangle}{J+1} \frac{3T_N}{T} \right)$$

où les températures de Néel T_N et de Curie paramagnétique θ sont données par :

$$\begin{aligned}
T_N &= 2\tilde{J}(Q) \frac{J(J+1)}{3k_B} \\
\theta &= 2\tilde{J}(0) \frac{J(J+1)}{3k_B}
\end{aligned}$$

En fait, les valeurs J_1 et J_2 dépendent de façon très sensible de la surface de Fermi, qui elle-même est liée à la structure cristalline et à l'ordre magnétique. Au-dessus de la température de Néel, J_1 et J_2 sont constantes et l'angle de rotation ω_i de la structure hélicoïdale qui apparaît à T_N est fixé par ces valeurs. Cependant, lorsque l'ordre magnétique se développe, la périodicité magnétique induit la formation de superzones dans la surface de Fermi, ce qui a pour conséquence de modifier J_1 et J_2 et donc la barrière énergétique [26].

La modification de ces grandeurs entraîne le remplacement de T_N par une température caractéristique du nouvel échange dans le calcul de σ . Nous supposons ici que les températures de Néel et de Curie paramagnétique sont suffisamment proches pour négliger cette correction et calculer σ à partir de la température T_N déterminée expérimentalement.

La barrière d'énergie s'exprime alors à l'aide de T_N et θ :

$$\begin{aligned}
\Delta E_{\text{éch.}} &= (E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}} - (E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}} \\
&\approx - \langle J \rangle^2 \left(\frac{3k_B(T_N - \theta)}{2J(J+1)} \right) \\
&\approx - J_1 \langle J \rangle^2 \frac{(1 - \cos\omega)^2}{\cos\omega}
\end{aligned}$$

La valeur de J_1 peut être arbitrairement choisie constante, si l'on suppose que la modification de $\tilde{J}(Q)$ porte sur J_2 . On obtient alors :

$$\Delta E_{\text{éch.}} \approx 3k_B(T_N - \theta) \frac{J^2}{2J(J+1)} \sigma^2 \frac{(1 - \cos\omega)^2}{\cos\omega} \frac{\cos\omega_i}{(1 - \cos\omega_i)^2}$$

Nous verrons par la suite (paragraphe 3.5 et 3.6) que les transitions vers l'état ferromagnétique, telles que nous les avons présentées au paragraphe 2.1, trouvent leur origine dans des effets magnétostrictifs qui compensent la barrière énergétique liée à l'échange.

3.4 Anisotropie de champ cristallin

Les coefficients d'anisotropie

L'origine de l'anisotropie réside dans le couplage entre le nuage électronique 4f porteur du moment magnétique et la distribution de charges extérieures, de symétrie hexagonale. Le positionnement de la couche 4f s'effectue de façon à minimiser l'énergie en rapprochant au maximum ses électrons des ions positifs du réseau. Cela induit une orientation privilégiée du moment magnétique, rigidement lié au nuage électronique 4f.

Pour décrire le phénomène, le potentiel de champ cristallin $V_{\text{cf}}(\mathbf{r})$ ressenti par les électrons 4f peut être décomposé en un nombre limité d'harmoniques sphériques, compatible avec la symétrie hexagonale. Ce potentiel, petit devant le couplage spin-orbite, peut être traité en perturbation dans la base des fonctions propres 4f.

En fait, cette méthode directe est très difficile à mettre en oeuvre et il est beaucoup plus simple d'utiliser la méthode des opérateurs équivalents, introduite par Stevens [27], en application du théorème de Wigner-Eckart : elle consiste à introduire un opérateur de moment angulaire équivalent à $V_{\text{cf}}(\mathbf{r})$, qui agit sur la partie angulaire de la fonction d'onde des électrons 4f.

L'opérateur de potentiel équivalent se construit simplement en prenant l'expression du potentiel électrique $V_{\text{cf}}(\mathbf{r})$ développé en harmoniques sphériques et en remplaçant les variables x , y et z par les opérateurs J_x , J_y et J_z .

Etant donné la symétrie hexagonale, l'opérateur équivalent à $V_{\text{cf}}(\mathbf{r})$ se réduit à :

$$\mathcal{H} = A_2^0 Y_2^0(\mathbf{J}) + A_4^0 Y_4^0(\mathbf{J}) + A_6^0 Y_6^0(\mathbf{J}) + A_6^6 [Y_6^6(\mathbf{J}) + Y_6^{-6}(\mathbf{J})]$$

où les $Y_1^m(\mathbf{J})$ sont les opérateurs équivalant aux harmoniques sphériques $Y_1^m(\mathbf{r})$ et \mathbf{J} les valeurs moyennes thermiques du moment total. Les coefficients A_1^m sont des constantes qui tiennent compte de la distribution de charges extérieures et de coefficients, dits de Stevens, dus à la relation entre le moment total \mathbf{J} et la forme du nuage 4f.

Si le potentiel de champ cristallin change peu d'une terre rare à l'autre, les coefficients de Stevens, qui proviennent du remplissage des couches, changent en signe et en intensité de façon considérable et imposent l'anisotropie.

En écrivant les composantes de \mathbf{J} de façon classique, on peut exprimer l'hamiltonien d'anisotropie en fonction des angles θ et ϕ qui définissent la direction de l'aimantation, respectivement par rapport aux axes c et a du réseau hexagonal.

Cela conduit à :

$$\mathcal{H} = K_2^0 Y_2^0(\theta) + K_4^0 Y_4^0(\theta) + K_6^0 Y_6^0(\theta) + K_6^6 \sin^6 \theta \cos^6 \phi$$

où les coefficients K_1^m , liés aux coefficients A_1^m par de simples relations de proportionnalité, sont appelés coefficients d'anisotropie.

Si l'on développe les harmoniques sphériques $Y_1^m(\theta)$ en fonction de $\sin\theta$ et que les termes sont regroupés selon la puissance de $\sin\theta$, l'énergie d'anisotropie s'écrit :

$$\mathcal{H} = K'_2 \sin^2 \theta + K'_4 \sin^4 \theta + K'_6 \sin^6 \theta + K'_{66} \sin^6 \theta \cos^6 \phi$$

De nouveaux coefficients d'anisotropie apparaissent ; ils s'expriment simplement en fonction des K_1^m :

$$\begin{aligned} K'_2 &= -3/2 K_2^0 - 5 K_4^0 - 21/2 K_6^0 \\ K'_4 &= 35/8 K_4^0 + 189/8 K_6^0 \\ K'_6 &= -231/16 K_6^0 \\ K'_{66} &= K_6^6 \end{aligned}$$

Les valeurs théoriques des coefficients d'anisotropie à 0 K pour les terres rares qui nous concernent sont reportées dans le tableau ci-dessous (en meV/ion) [1].

Le coefficient dominant, lié au coefficient de Stevens α , est K_2^0 . De son signe dépend l'anisotropie suivant la direction c : l'erbium, de coefficient K_2^0 négatif, présente une direction de facile aimantation parallèle à l'axe c ; le dysprosium et le terbium, de coefficient K_2^0 positif, possèdent une direction de facile aimantation perpendiculaire à

l'axe c, c'est-à-dire dans le plan de base. Les coefficients K_4^0 et K_6^0 viennent apporter des corrections en renforçant l'anisotropie axiale ou planaire s'ils sont de même signe que K_2^0 . Le coefficient K_6^6 , lié au coefficient de Stevens γ , détermine, dans le cas d'une anisotropie planaire, la direction de facile aimantation dans le plan de base : lorsque ce coefficient est négatif, comme pour le dysprosium, les six directions cristallographiques équivalentes $(11\bar{2}0)$ (axe a) constituent des directions de facile aimantation ; lorsqu'il est positif, comme pour le terbium, les directions $(10\bar{1}0)$ (axe b) sont alors les directions de facile aimantation. Il est important de noter que les coefficients K_6^6 sont de plusieurs ordres de grandeur inférieurs aux coefficients K_2^0 .

Eléments	K_2^0 (meV/at.)	K_4^0 (meV/at.)	K_6^0 (meV/at.)	K_6^6 (meV/at.)
Tb	6.11	-0.511	-0.063	0.035
Dy	6.64	0.596	0.290	-0.159
Ho	2.66	0.414	-0.539	0.294
Er	-2.62	-0.386	0.484	-0.264
Tm	-6.40	-0.491	-0.248	0.135

Dépendance thermique des coefficients d'anisotropie

À température non nulle, les opérateurs équivalents Y_l^m sont fonctions des valeurs moyennes thermiques $\langle J \rangle$ du moment total \mathbf{J} , et s'écrivent $Y_l^m(\langle \mathbf{J} \rangle)$. Il en résulte que les coefficients d'anisotropie augmentent lorsque la moyenne thermique du moment magnétique croît, c'est-à-dire quand la température décroît.

La dépendance en température des coefficients d'anisotropie K_l [28] est donnée par :

$$\frac{K_l(T)}{K_l(0)} = \hat{I}_{l+1/2}[\mathcal{L}^{-1}\left(\frac{M(T)}{M(0)}\right)]$$

où $\hat{I}_{l+1/2}$ est la fonction de Bessel modifiée réduite : $\hat{I}_{l+1/2} = \frac{I_{l+1/2}(X)}{I_{1/2}(X)}$

\mathcal{L}^{-1} est l'inverse de la fonction de Langevin : $\mathcal{L}(X) = \coth X - \frac{1}{X}$

$\sigma(T) = \frac{M(T)}{M(0)}$ est l'aimantation réduite.

En fait, dans la limite des basses températures, cette expression est très bien approchée par la relation :

$$\frac{K_1(T)}{K_1(0)} = \left[\frac{M(T)}{M(0)} \right]^{\frac{l(l+1)}{2}}$$

Les constantes d'anisotropie suivent donc une loi en puissance $l(l+1)/2$ de l'aimantation réduite σ à basse température et, en fait, sur un très grand domaine de températures, sauf au voisinage immédiat de la température d'ordre, où elles suivent alors une loi en puissance l de l'aimantation réduite. Ainsi, dans la limite de validité de l'expression ci-dessus, K_2 varie comme σ^3 , K_4 comme σ^{10} et K_6 comme σ^{21} .

Paroi magnétique

Puisque les superréseaux Dy/Er qui constituent notre étude sont composés de deux matériaux magnétiques présentant des constantes d'anisotropie K_2^0 de signes opposés, il va se poser le problème de l'orientation des spins à l'interface : ils doivent passer d'une orientation parallèle au plan de base dans le dysprosium à une orientation perpendiculaire au plan de base dans l'erbium, formant une sorte de paroi à 90° . Cette paroi peut être localisée dans l'un des éléments ou partagée entre les deux.

Dans l'hypothèse de parois épaisses, et en première approximation, les relations donnant l'énergie E_p et la largeur de paroi L_p perpendiculaire à l'axe c s'écrivent :

$$L_p \approx \pi \sqrt{\frac{J_I J^2}{|K_2^0|}} \quad \text{et} \quad E_p \approx \sqrt{J_I J^2 |K_2^0|}$$

Soit :

		Dysprosium	Erbium
Paroi selon c (à 180° pour $T = 0$ K)	L_p (nbr. plans)	3.7	6.6
	E_p (meV/at.)	7.8	5.5

L'énergie de paroi est donc plus faible dans l'erbium que dans le dysprosium et la largeur de paroi plus élevée. Bien que la validité du calcul soit discutable, vu la faible largeur de paroi et la complexité des interactions dans les éléments, il apparaît que les moments d'erbium sont beaucoup plus enclins à quitter la direction c que les moments de dysprosium le plan de base, et que la transition entre l'orientation des moments dans le plan et perpendiculairement au plan s'effectue sur quelques plans atomiques du côté de l'erbium.

3.5 Effets élastiques et magnétoélastiques

Dans le paragraphe précédent, nous avons considéré que les charges extérieures étaient distribuées sur les sites d'un réseau hexagonal rigide.

En fait, étant donné la force de l'interaction entre les électrons 4f et le réseau cristallin, tout rapprochement des électrons 4f et des charges extérieures positives conduit à un abaissement supplémentaire de l'énergie. Une distorsion du réseau allant dans le sens d'un tel rapprochement peut donc être énergétiquement favorable si elle n'est pas contrebalancée par un coût trop important en énergie élastique ; c'est ce qui se produit lors de la transition ferromagnétique du dysprosium.

Lors de la distorsion, deux énergies sont mises en jeu :

- (i) une énergie purement élastique de déformation du cristal, évidemment toujours défavorable à la distorsion et qui varie peu avec la température,
- (ii) une énergie magnétoélastique qui est favorable à certaines déformations et qui varie fortement avec la température.

La distorsion, et donc la transition ferromagnétique, ne se produisent que si la somme de ces deux énergies, appelée énergie magnétostrictive, est supérieure à la barrière d'énergie d'échange, déterminée au paragraphe 3.3. Ce sont les variations thermiques de ces contributions concurrentes à l'énergie totale qui vont déterminer la température de transition. Les termes d'énergies élastique et magnétoélastique ont été étudiés en détail par Callen et Callen [29]. C'est de leur importance que découle une partie importante de nos résultats expérimentaux ; aussi commençons-nous par rappeler les travaux de ces auteurs.

Energie élastique

Abandonnant le repère cartésien, Callen et Callen opèrent dans la base faisant apparaître les modes de déformation orthogonaux, liés aux représentations irréductibles du groupe ponctuel du système hexagonal D_{3h} . Ils se sont donc placés dans une base formée par les trois représentations irréductibles α , γ et ϵ du groupe D_{3h} .

Dans cette base, six déformations indépendantes apparaissent ; elles s'expriment en fonction des déformations habituellement définies par rapport aux axes cartésiens Ox , Oy , qui correspondent aux directions a et b (schéma I-3), et Oz :

$$\begin{aligned}\epsilon^{\alpha,1} &= \epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz} \\ \epsilon^{\alpha,2} &= \frac{1}{2\sqrt{3}}[2\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}] \\ \epsilon_1^\gamma &= \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy})\end{aligned}$$

$$\varepsilon_2^\gamma = \varepsilon_{xy}$$

$$\varepsilon_1^\varepsilon = \varepsilon_{yz}$$

$$\varepsilon_2^\varepsilon = \varepsilon_{xz}$$

$\varepsilon^{\alpha,1}$ est un mode de dilatation (augmentations simultanées de a, b et c), $\varepsilon^{\alpha,2}$ est un mode de distorsion cylindrique (augmentation de c et diminution de a) et ε_1^γ est un mode de distorsion orthorhombique (augmentation de a et diminution de b) (figure I-24). Les trois autres modes correspondent à des cisaillements que nous ne rencontrerons pas dans la suite de notre étude.

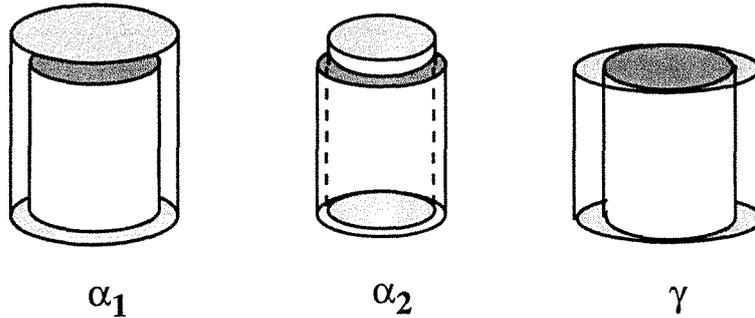


Fig. I-24: schéma des trois modes de déformation irréductibles α_1 , α_2 et γ .

La forme la plus générale de l'énergie élastique du réseau hexagonal dans cette représentation est donnée par :

$$E_e = \frac{1}{2}C_{11}^\alpha(\varepsilon^{\alpha,1})^2 + C_{12}^\alpha\varepsilon^{\alpha,1}\varepsilon^{\alpha,2} + \frac{1}{2}C_{22}^\alpha(\varepsilon^{\alpha,2})^2 \\ + \frac{1}{2}C^\gamma[(\varepsilon_1^\gamma)^2 + (\varepsilon_2^\gamma)^2] + \frac{1}{2}C^\varepsilon[(\varepsilon_1^\varepsilon)^2 + (\varepsilon_2^\varepsilon)^2]$$

où les constantes élastiques dans cette nouvelle base sont liées aux constantes élastiques définies dans un repère cartésien par les relations :

$$C_{11}^\alpha = \frac{1}{9}(2C_{11} + 2C_{12} + 4C_{13} + C_{33})$$

$$C_{22}^\alpha = \frac{2}{3}(C_{11} + C_{12} - 4C_{13} + 2C_{33})$$

$$C_{12}^\alpha = \frac{2}{3\sqrt{3}}(-C_{11} - C_{12} + C_{13} + C_{33})$$

$$C^\gamma = 2(C_{11} - C_{12}) = 4C_{66}$$

$$C^\varepsilon = 4C_{44}$$

Retenons que l'énergie élastique dépend du carré des déformations et est toujours positive.

Energie magnétoélastique

L'intérêt du changement de base proposé par Callen et Callen apparaît surtout dans l'écriture de l'énergie magnétoélastique. Elle s'exprime comme la somme de termes qui sont les produits d'une composante de déformation, d'une fonction simple des cosinus directeurs de la direction du moment total et d'un coefficient, dit de magnétostriction. Chaque mode de déformation apporte sa propre énergie magnétoélastique.

$$\begin{aligned} -E_{me} = & B_1^{\alpha,0} \varepsilon^{\alpha,1} + B_1^{\alpha,2} \varepsilon^{\alpha,1} (\alpha_z^2 - \frac{1}{3}) \\ & + B_2^{\alpha,0} \varepsilon^{\alpha,2} + B_2^{\alpha,2} \varepsilon^{\alpha,2} (\alpha_z^2 - \frac{1}{3}) \\ & + \frac{1}{2} B^{\gamma,2} \varepsilon_1^{\gamma} (\alpha_x^2 - \alpha_y^2) + B^{\gamma,2} \varepsilon_2^{\gamma} \alpha_x \alpha_y \\ & + B^{\varepsilon,2} \varepsilon_1^{\varepsilon} \alpha_y \alpha_z + B^{\varepsilon,2} \varepsilon_2^{\varepsilon} \alpha_x \alpha_z \end{aligned}$$

où les coefficients α_i sont les cosinus directeurs de la direction d'aimantation. Les coefficients de magnétostriction $B_1^{\mu,j}$ se décomposent eux-mêmes en la somme de deux termes : l'un est dû aux interactions entre un ion et le champ cristallin, l'autre aux interactions entre deux ions voisins ; ils sont respectivement appelés terme à un ion et terme à deux ions.

Cette formule s'obtient essentiellement par des considérations de symétrie, en introduisant les opérateurs de spin invariants dans les représentations irréductibles du groupe D_{3h} et en les associant aux modes de déformation invariants dans les mêmes représentations.

Retenons que l'énergie magnétoélastique dépend linéairement des déformations et peut être positive ou négative.

Energie magnétostrictive dans le dysprosium

L'étude des distorsions d'origine magnétocristalline du dysprosium massif et de leur rôle moteur dans la transition ferromagnétique fut d'abord menée par Cooper [30]. Cet auteur aborda le problème de façon très simplifiée, en ne tenant compte que de la déformation de type γ (déformation orthorhombique).

L'étude fut poursuivie de manière plus complète par Evenson et Liu [31] qui, outre la déformation de type γ , prirent en compte dans leurs calculs les déformations α_1 (expansion volumique) et α_2 (déformation cylindrique).

Quatre hypothèses sont formulées dans le développement de Evenson et Liu :

(i) Les termes de cisaillement non-observés expérimentalement ne sont pas pris en compte.

(ii) À la suite des mesures des constantes élastiques par Fisher et Dever [32], le coefficient C_{12}^α est considéré comme négligeable, ce qui supprime le terme croisé qui apparaît dans l'expression générale de l'énergie purement élastique. Elle se réduit donc à :

$$E_e = \frac{1}{2}C_{11}^\alpha(\varepsilon^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2}C_{22}^\alpha(\varepsilon^{\alpha,2})^2 + \frac{1}{2}C^\gamma(\varepsilon^\gamma)^2$$

(iii) D'après les travaux de Clark [33], seul le terme à un ion \tilde{B}^γ est conservé comme contribution au coefficient de magnétostriction B^γ , alors que les termes à deux ions \tilde{D}_{ij}^α sont seuls retenus dans l'expression des coefficients de type $B_1^{\alpha,j}$.

(iv) Des déformations locales \mathcal{E}^γ , $\mathcal{E}^{\alpha,1}$ et $\mathcal{E}^{\alpha,2}$ qui s'assimilent aux déformations ε en phase ferromagnétique mais sont différentes en phase hélicoïdale sont introduites.

Compte tenu des hypothèses mentionnées précédemment, les différents termes qui interviennent dans l'énergie magnétoélastique s'écrivent :

$$\begin{aligned} E_{me}^\gamma &= - \mathcal{E}^\gamma \tilde{B}^\gamma \langle S_f^{x^2} - S_f^{y^2} \rangle \\ E_{me}^{\alpha,1} &= - \mathcal{E}^{\alpha,1} \left(\tilde{D}_{11}^\alpha \langle S_f \cdot S_g \rangle + \frac{\sqrt{3}}{2} \tilde{D}_{12}^\alpha \langle S_f^z S_g^z - \frac{1}{3} S_f \cdot S_g \rangle \right) \\ E_{me}^{\alpha,2} &= - \mathcal{E}^{\alpha,2} \left(\tilde{D}_{21}^\alpha \langle S_f \cdot S_g \rangle + \frac{\sqrt{3}}{2} \tilde{D}_{22}^\alpha \langle S_f^z S_g^z - \frac{1}{3} S_f \cdot S_g \rangle \right) \end{aligned}$$

où les termes entre $\langle \rangle$ sont les moyennes thermiques de fonctions de corrélations.

Elles ne font apparaître que des composantes du même spin S_f dans E_{me}^γ où seul intervient le terme à un ion ; dans $E_{me}^{\alpha,1}$ et $E_{me}^{\alpha,2}$, où interviennent les termes à deux ions, elles font apparaître les spins S_f et S_g de plans successifs.

Les coefficients \tilde{B}^γ et \tilde{D}_{ij}^α sont des constantes et les effets thermiques sont uniquement inclus dans les fonctions de corrélation.

Phase ferromagnétique

Dans la phase ferromagnétique, les distorsions sont homogènes et les déformations locales se confondent avec les déformations globales :

$$\mathcal{E}^\gamma = \varepsilon^\gamma, \mathcal{E}^{\alpha,1} = \varepsilon^{\alpha,1} \text{ et } \mathcal{E}^{\alpha,2} = \varepsilon^{\alpha,2}$$

Etant donné que les spins sont tous alignés selon la direction de facile aimantation que l'on suppose être la direction x, les seules composantes de \mathbf{S}_f et \mathbf{S}_g sont $S_f^x = S_g^x$ et :

$$\langle \mathbf{S}_f \cdot \mathbf{S}_f \rangle = \langle S_f^x{}^2 \rangle = \langle S^2 \rangle = \mathcal{L}(T)$$

L'énergie magnétoélastique s'écrit alors simplement :

$$E_{me} = -B^\gamma \varepsilon^\gamma - B^{\alpha,1} \varepsilon^{\alpha,1} - B^{\alpha,2} \varepsilon^{\alpha,2}$$

où les B sont fonctions des \tilde{B} et \tilde{D} et contiennent les évolutions thermiques.

La minimisation de l'énergie magnétostrictive $E_{ms} = E_e + E_{me}$ par rapport aux variables indépendantes que constituent les déformations ε conduit à :

$$\bar{E}_{ms} = -\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\bar{\varepsilon}^{\alpha,1})^2 - \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\bar{\varepsilon}^{\alpha,2})^2 - \frac{1}{2} C^\gamma (\bar{\varepsilon}^\gamma)^2$$

où $\bar{\varepsilon}^{\alpha,1}$, $\bar{\varepsilon}^{\alpha,2}$ et $\bar{\varepsilon}^\gamma$ sont les valeurs des déformations à l'équilibre :

$$\bar{\varepsilon}^{\alpha,1} = \frac{B^{\alpha,1}}{C_{11}^\alpha}, \quad \bar{\varepsilon}^{\alpha,2} = \frac{B^{\alpha,2}}{C_{22}^\alpha} \quad \text{et} \quad \bar{\varepsilon}^\gamma = \frac{B^\gamma}{C^\gamma}$$

Les coefficients de magnétostriction λ_1 , λ_2 et λ^γ sont définis par :

$$\lambda_1 = \frac{B^{\alpha,1}}{C_{11}^\alpha}, \quad \lambda_2 = \frac{B^{\alpha,2}}{C_{22}^\alpha} \quad \text{et} \quad \lambda^\gamma = 2 \frac{B^\gamma}{C^\gamma},$$

L'énergie magnétostrictive totale en phase ferromagnétique s'écrit donc :

$$\begin{aligned} (\bar{E}_{ms})_{fer.} &= (\bar{E}_{ms}^\alpha)_{fer.} + (\bar{E}_{ms}^\gamma)_{fer.} \\ &= -\frac{1}{2} C_{11}^\alpha \lambda_1^2 - \frac{1}{2} C_{22}^\alpha \lambda_2^2 - \frac{1}{8} C^\gamma \lambda^\gamma{}^2 \end{aligned}$$

Phase hélicoïdale

Dans la phase hélicoïdale, l'énergie magnétoélastique associée au mode γ s'écrit :

$$E_{me}^\gamma = -\mathcal{G}^\gamma \bar{B}^\gamma \langle S_f^x{}^2 - S_f^y{}^2 \rangle$$

Le spin S_f étant contenu dans le plan (0001), ses composantes s'expriment :

$$S_f^x = S \cos(n\omega) \text{ et } S_f^y = S \sin(n\omega) \text{ où } n \text{ est un entier.}$$

Donc
$$\langle S_f^{x^2} - S_f^{y^2} \rangle = \langle S^2 \rangle \cos(2n\omega)$$

La moyenne sur l'ensemble de l'échantillon de l'énergie magnétoélastique associée au mode γ est nulle puisque les spins pointent globalement dans toutes les directions et donc $\langle \langle \cos(2n\omega) \rangle \rangle = 0$. Ceci se comprend aisément puisque les distorsions favorables dans deux plans atomiques successifs ne se produiraient pas selon la même direction. La distorsion orthorhombique globale du réseau hexagonal n'entraînerait qu'une augmentation d'énergie élastique pure ; elle se trouve donc totalement bloquée. Il n'y a pas de distorsion γ .

La différence entre les énergies magnétoélastiques associées au mode γ dans les phases ferromagnétique et hélicoïdale est :

$$(E_{me}^\gamma)_{fer.} - (E_{me}^\gamma)_{hél.} = \frac{1}{8} C^\gamma \lambda \gamma^2$$

Pour Cooper, qui ne prend en compte que cette contribution, la transition hélicoïdale-ferromagnétique s'opère avec une distorsion orthorhombique abrupte lorsque, par suite de l'augmentation de λ_γ quand la température diminue, $-\frac{1}{8} C^\gamma \lambda \gamma^2$ devient supérieur à la barrière d'énergie d'échange entre les phases ferromagnétique et hélicoïdale.

Toutefois, l'énergie magnétoélastique associée au mode α n'est pas nulle dans la phase hélicoïdale et l'énergie magnétostrictive totale s'écrit :

$$\begin{aligned} (\bar{E}_{ms})_{hél.} &= (\bar{E}_{ms}^\alpha)_{hél.} \\ &= -\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\bar{\epsilon}^{\alpha,1})^2 - \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\bar{\epsilon}^{\alpha,2})^2 \end{aligned}$$

où les déformations à l'équilibre ne sont plus les coefficients de magnétostriction mais y sont reliées par :

$$\bar{\epsilon}^{\alpha,1} = (\lambda_1)_{hél.} \quad \text{et} \quad \bar{\epsilon}^{\alpha,2} = (\lambda_2)_{hél.}$$

où :

$$(\lambda_1)_{hél.} = \frac{1}{2} \lambda_1 (1 + \cos\omega) - \left(\frac{1}{4\sqrt{3}}\right) \left(\frac{C_{22}^\alpha}{C_{11}^\alpha}\right) \lambda_2 (1 - \cos\omega)$$

$$(\lambda_2)_{hél.} = \frac{1}{4} \lambda_2 (1 + 3\cos\omega) - \left(\frac{\sqrt{3}}{2}\right) \left(\frac{C_{11}^\alpha}{C_{22}^\alpha}\right) \lambda_1 (1 - \cos\omega)$$

Si l'angle ω est nul, ce qui correspond à l'arrangement ferromagnétique, les coefficients $(\lambda_1)_{\text{hél.}}$ et $(\lambda_2)_{\text{hél.}}$ sont égaux aux coefficients de magnétostriction λ_1 et λ_2 , et les déformations de type α sont totales.

Si l'angle ω est non-nul, les déformations sont moindres car $|(\lambda_1)_{\text{hél.}}| < |\lambda_1|$ et $|(\lambda_2)_{\text{hél.}}| < |\lambda_2|$. La déformation de type α n'est que partielle.

3.6 Transition ferromagnétique

Dans le dysprosium

La transition ferromagnétique dans le dysprosium peut être comprise à partir du diagramme ci-dessous (figure I-25), obtenu en introduisant l'angle de rotation entre spins de plans successifs déterminé expérimentalement et avec les valeurs des coefficients magnétostrictifs et des constantes élastiques suivantes :

$$\left. \begin{array}{l} C_{11}^{\alpha} = 8.10^3 \text{ meV / at.} \\ C_{22}^{\alpha} = 26.10^3 \text{ meV / at.} \\ C^{\gamma} = 23.10^3 \text{ meV / at.} \\ C_{13} = 4.10^3 \text{ meV / at.} \\ C_{33} = 16.7 \cdot 10^3 \text{ meV / at.} \end{array} \right\} \begin{array}{l} \lambda_1(0 \text{ K}) = -5.10^{-3} \\ \lambda_2(0 \text{ K}) = 7.10^{-3} \\ \lambda^{\gamma}(0 \text{ K}) = 1.10^{-2} \end{array}$$

Dans notre calcul, les variations thermiques des constantes élastiques n'ont pas été prises en compte et les coefficients magnétostrictifs sont supposés suivre une loi en puissance de l'aimantation réduite $\lambda_i(0 \text{ K})\sigma^m$, où $m = 2$ pour λ_1 et λ_2 et $m = 3$ pour λ_{γ} [29-31]. L'aimantation réduite est donnée par la fonction de Brillouin, calculée à partir de la valeur expérimentale de la température de Néel.

- L'énergie d'échange dans la phase hélicoïdale $(E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}}$ est choisie comme référence à toute température et elle apparaît donc à $E = 0$, symbolisée par des ronds blancs.
- L'énergie d'échange dans le phase ferromagnétique $(E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}}$, égale à la somme de l'énergie d'échange hélicoïdale et de la barrière d'énergie d'échange calculée au paragraphe 3.3, est représentée par des ronds noirs. Par l'effet combiné de $\langle J \rangle^2$ et de ω , elle varie peu avec la température, sauf au voisinage immédiat de T_N , et est voisine de 0.2 meV/at..
- La courbe indiquée par les carrés noirs correspond à la somme de l'énergie d'échange ferromagnétique et de l'énergie magnétostrictive de type γ : $(E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}} + (E_{\text{ms}}^{\gamma})_{\text{fer.}}$.

- La courbe en triangles noirs est la somme de l'énergie d'échange ferromagnétique, de l'énergie magnétostrictive de type γ et des énergies magnétostrictives de type α en phase ferromagnétique : $(E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}} + (E_{\text{ms}}^{\alpha})_{\text{fer.}} + (E_{\text{ms}}^{\gamma})_{\text{fer.}}$. Elle correspond donc à l'énergie totale de la phase ferromagnétique.
- La courbe en triangles blancs est la somme de l'énergie d'échange hélicoïdale et de l'énergie magnétostrictive due à la déformation partielle de type α en phase hélicoïdale : $(E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}} + (E_{\text{ms}}^{\alpha})_{\text{hél.}}$. Il s'agit donc de l'énergie totale de la phase hélicoïdale.

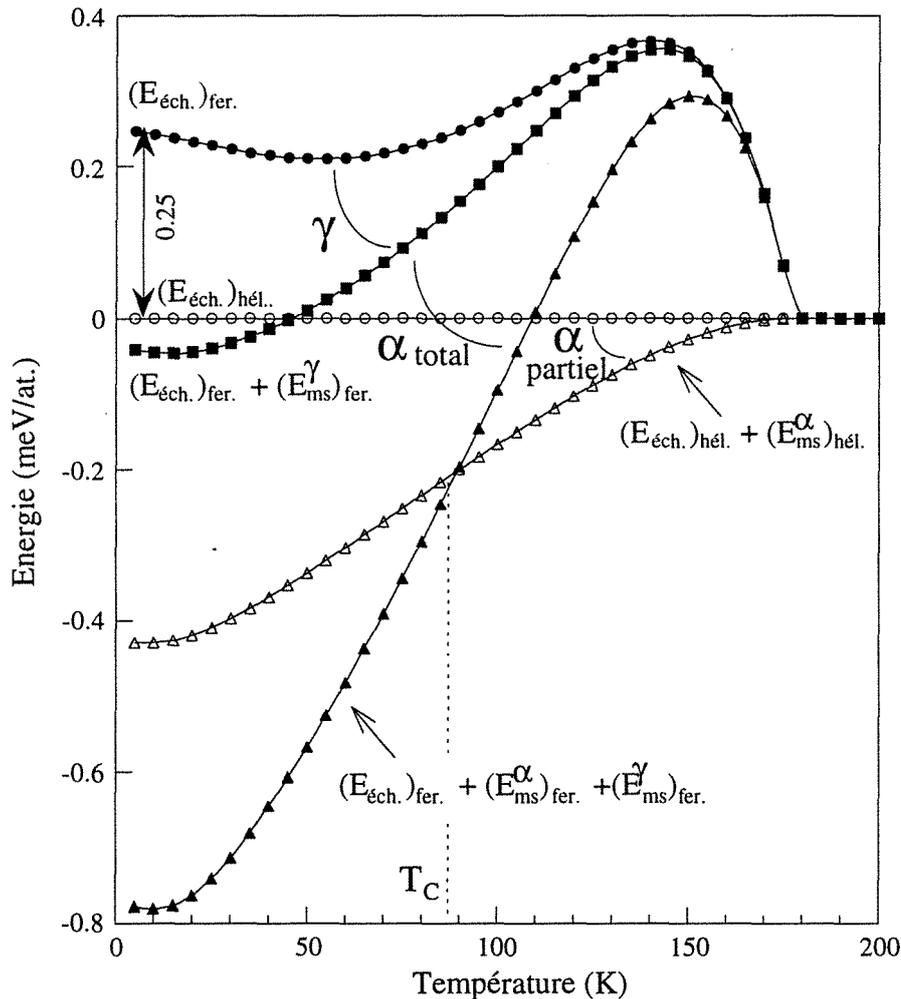


Fig. I-25 : dépendance en température des termes d'énergie d'échange et magnétostrictive pour un monocristal de dysprosium massif.

Il apparaît sur cette courbe que, si du point de vue de l'échange la phase ferromagnétique est défavorable, l'énergie totale favorise cette phase en dessous de T_C . Cela est dû à la distorsion γ qui n'a lieu que dans la phase ferromagnétique et, dans une moindre mesure, à la déformation α qui est totale dans cette structure, alors qu'elle n'est que partielle dans l'arrangement hélicoïdal. Notons que la transition ferromagnétique se produirait tout de même, aux environs de 50 K, si l'on négligeait les déformations de type α .

Les variations thermiques des paramètres, calculées à l'aide des mêmes relations, sont représentées à la figure I-26.

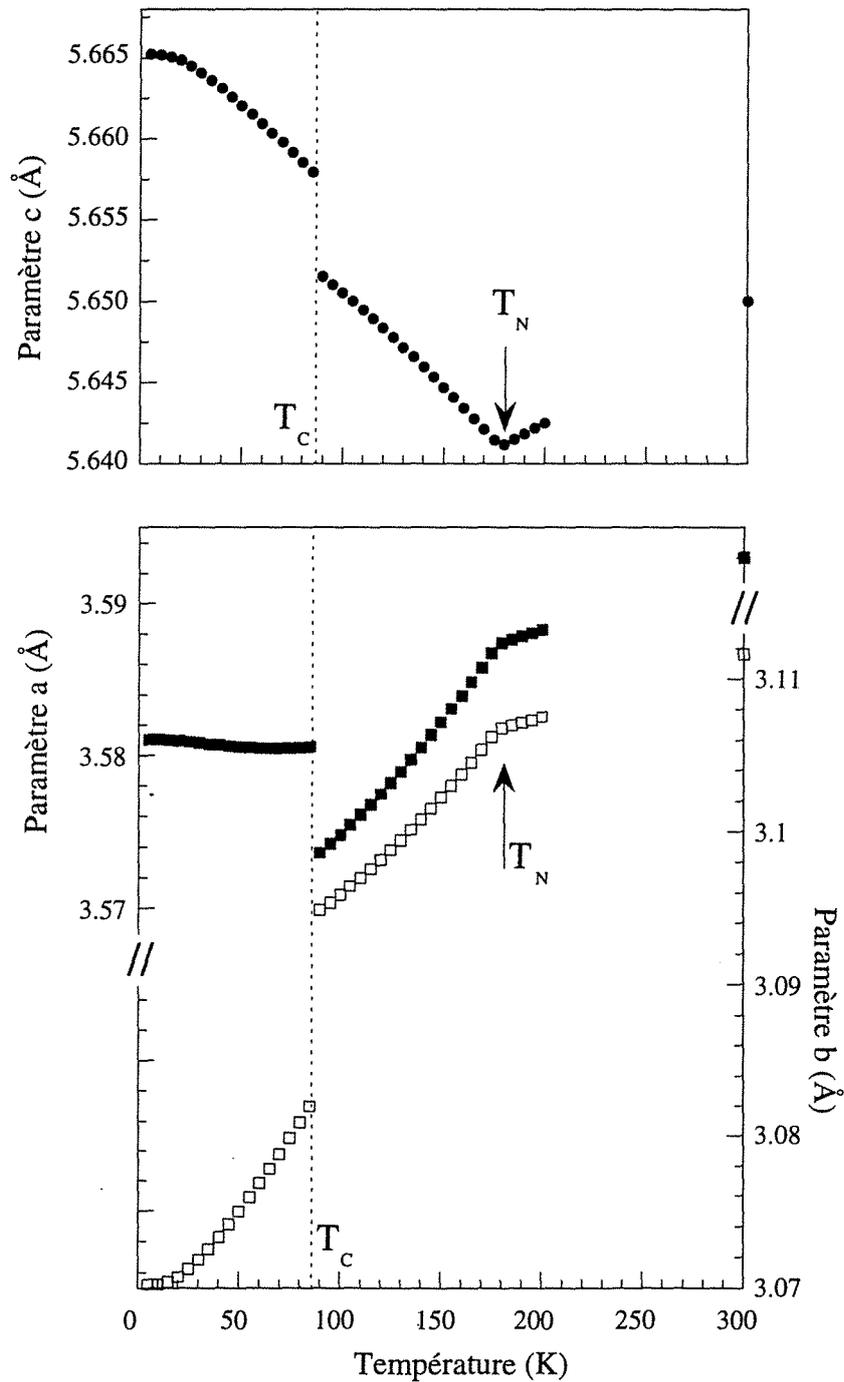


Fig. I-26 : dépendance en température des paramètres cristallins d'un monocrystal de dysprosium massif, déterminée par la minimisation du terme d'énergie magnétostrictive dans les phases hélicoïdale et ferromagnétique.

La diminution des paramètres a et b et l'augmentation de c entre T_N et T_C sont dues à la déformation partielle α en phase hélicoïdale. L'expansion discontinue de c à la transition

ferromagnétique est due au passage d'une déformation α partielle à une déformation α totale. Les sauts positif de a et négatif de b à T_C sont essentiellement le fait de la distorsion γ .

Ces évolutions correspondent aux résultats expérimentaux présentés sur la figure I-10.

Il est clair à ce stade de l'analyse que l'épitaxie d'un film de dysprosium sur un élément de paramètres différents, en introduisant de nouvelles déformations, va venir modifier les équilibres énergétiques et déplacer la température de transition ferromagnétique.

Le diagramme énergétique présenté figure I-25 est à rapprocher des résultats de Evenson et Liu [31] qui, à partir des mesures de paramètre de Clark [33], des constantes élastiques mesurées par Fischer et Dever [32] et des corrections en fonction de la température trouvées par Rosen [34], ont calculé les énergies magnétoélastiques dans les phases ferromagnétique et hélicoïdale, de part et d'autre de la température de Curie :

$$\begin{aligned}(E_{me})_{fer.} &= - 1.66 \text{ J / cm}^3 = - 0.327 \text{ meV / at.} \\(E_{me})_{hél.} &= - 0.72 \text{ J / cm}^3 = - 0.142 \text{ meV / at.} \\ \Delta E_{me} &= 0.94 \text{ J / cm}^3 = 0.185 \text{ meV / at.}\end{aligned}$$

Rosen et Klimker [34], d'après l'expression théorique de Evenson et Liu, ont calculé l'énergie magnétoélastique totale sur l'ensemble du domaine de température (entre 180 K et 0 K), représentée figure I-27.

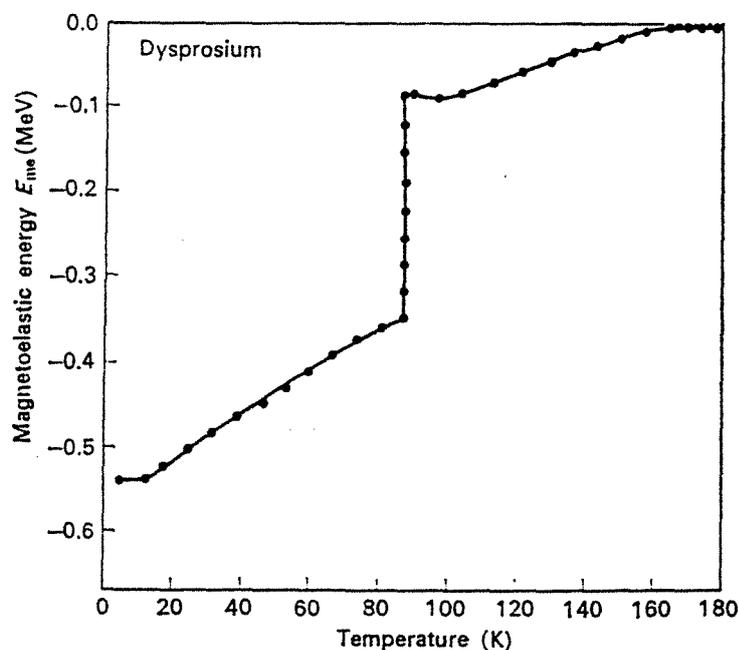


Fig. I-27 : dépendance en température de l'énergie magnétoélastique totale d'un monocristal de dysprosium [34].

Quand la température diminue, l'énergie décroît de zéro (à la température de Néel $T_N = 178$ K) à $-0.42 \text{ J/cm}^3 = -0.083 \text{ meV/at.}$ (pour une température immédiatement supérieure à la température de Curie). Cette valeur est supérieure à celle déterminée par Evenson et Liu.

À une température immédiatement inférieure à la température de Curie, c'est-à-dire dans la phase ferromagnétique, l'énergie est égale à $-1.78 \text{ J/cm}^3 = 0.351 \text{ meV/at.}$; le saut d'énergie à la température de transition est donc de $1.36 \text{ J/cm}^3 = 0.268 \text{ meV/at.}$

Dans l'erbium

La transition ferromagnétique de l'erbium a été abordée avec le même formalisme (proposé par Evenson et Liu pour le dysprosium) par Rosen et al. [35], en éliminant toutefois la déformation γ qui ne se produit jamais dans l'erbium.

Les déformations α sont totales dans la phase ferromagnétique, alors qu'elles ne sont que partielles pour les températures supérieures à la température de transition. La transition a lieu lorsque la différence d'énergie entre les déformations α partielles et totales devient supérieure à la barrière d'échange.

La difficulté provient du fait que les termes à deux ions sont différents dans la phase ferromagnétique et dans la phase à composante hélicoïdale dans le plan de base, et s'expriment de façon complexe en fonction de l'angle θ de la structure en cône et de l'angle ω de la structure en hélice dans le plan de base.

À partir des mesures de paramètres de l'erbium par Rhyne [12] et des constantes élastiques qu'ils ont réalisées lors de la même étude, Rosen et al. ont calculé les énergies magnétoélastiques dans les phases ferromagnétique et antiferromagnétique :

$$\begin{aligned} (E_{me})_F &= - 1.33 \text{ J / cm}^3 = - 0.25 \text{ meV / at.} \\ (E_{me})_{AF} &= - 0.32 \text{ J / cm}^3 = - 0.06 \text{ meV / at.} \\ \Delta E_{me} &= - 1.01 \text{ J / cm}^3 = - 0.19 \text{ meV / at.} \end{aligned}$$

Les énergies sont donc du même ordre de grandeur dans le dysprosium et dans l'erbium.

4. Superréseaux et films épitaxiés de terres rares

4.1 Présentation générale

L'étude des systèmes modulés artificiellement s'est développée intensément au cours de ces dix dernières années, motivée aussi bien par la curiosité des chercheurs que par l'émergence de phénomènes d'intérêt technologique tels que la réflectométrie des rayons X et des neutrons [36-37-38], le stockage magnétique ou, plus récemment, la magnétorésistance géante [39]. Les progrès effectués dans les techniques d'élaboration, en particulier l'épitaxie par jet moléculaire, ont contribué au développement de ces recherches et ont permis d'étudier des systèmes plus difficiles à synthétiser.

Comme nous le verrons par la suite, avec cette méthode, il fut en particulier possible d'apporter des solutions aux problèmes posés par la réactivité des terres rares. Sur le plan cristallographique, les superréseaux de terres rares se présentent comme un cas favorable puisque les terres rares lourdes cristallisent toutes dans une structure hexagonale compacte et que les différences entre leurs paramètres sont bien inférieures aux valeurs généralement requises pour obtenir des superréseaux de qualité.

Pour les systèmes considérés dans cette partie, sauf mention contraire, la direction de croissance est l'axe c du réseau hexagonal et l'épitaxie s'effectue entre les plans de base. Aussi, les deux éléments qui constituent le superréseau adoptent un même paramètre a moyen, pondéré par les épaisseurs relatives et les coefficients élastiques des matériaux. Le paramètre c de chacun des constituants se trouve modifié par rapport au matériau massif, afin de satisfaire aux lois d'élasticité (allant dans le sens d'une conservation du volume). Ainsi, l'élément dont les paramètres dans sa structure massive sont les plus petits voit son paramètre a augmenter et son paramètre c diminuer, alors que le matériau de paramètres massifs plus élevés voit son paramètre a diminuer et son paramètre c augmenter.

Au cours des différentes études menées sur les superréseaux de terres rares, trois problématiques se sont essentiellement dégagées :

- (i) l'influence de la structure sur l'échange, avec la modification éventuelle de la barrière énergétique entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique,
- (ii) l'influence des contraintes et des déformations épitaxiales sur les transitions magnétiques gouvernées par une compétition entre le terme d'échange et les termes magnétostrictifs, qui se trouvent profondément modifiés,
- (iii) le couplage magnétique entre films de terres rares, porteurs de moments magnétiques localisés et ordonnés suivant des structures modulées, au travers d'un

élément non magnétique, mais dont les électrons de conduction sont polarisables selon un mécanisme de type RKKY.

Nous rapportons dans ce paragraphe, de façon pratiquement chronologique, les principaux résultats obtenus sur des systèmes proches de ceux de notre étude. Deux articles de revue, présentant l'ensemble des systèmes étudiés, ont été écrits par Majkrzak *et al.* [40] en 1991 et Rhyne *et al.* [41] en 1993.

4.2 Superréseaux Gd/Y

Ce sont les premiers superréseaux à base de terres rares élaborés par épitaxie par jet moléculaire en suivant la méthode proposée par Kwo *et al.* [42], sur laquelle nous reviendrons en détail dans le chapitre consacré à la méthode de préparation.

Majkrzak *et al.* [43] ont montré que, comme dans le gadolinium massif, les couches de gadolinium sont individuellement ferromagnétiques avec les moments contenus dans le plan de l'échantillon, mais qu'elles s'ordonnent soit parallèlement soit antiparallèlement à travers l'yttrium pour former un ferromagnétique ou un antiferromagnétique géant. La structure antiferromagnétique a été mise en évidence par diffraction de neutrons aux grands angles (figure I-28).

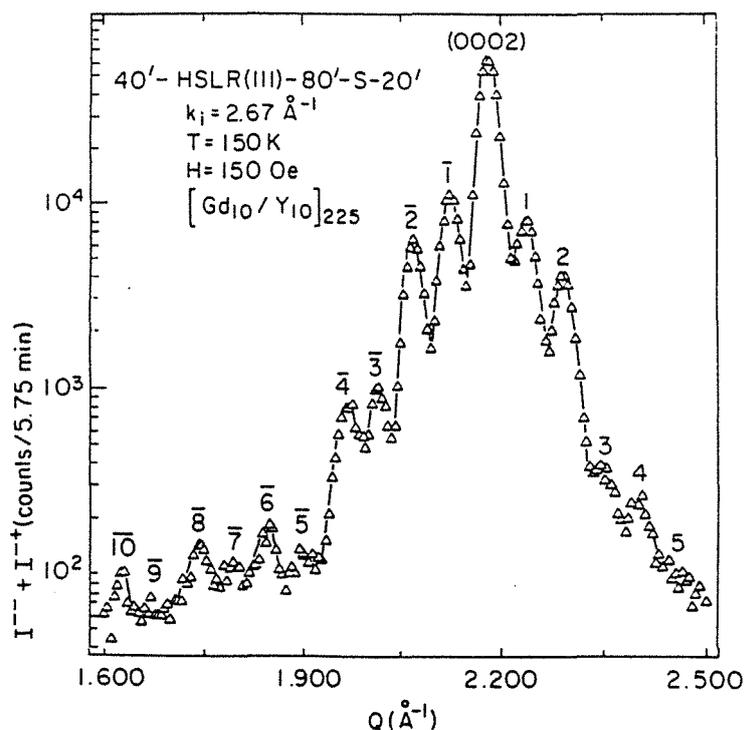


Fig. I-28 : spectre de diffraction de neutrons obtenu pour un superréseau [Gd/Y], mettant en évidence le couplage antiferromagnétique [43].

Outre le pic de Bragg moyen du superréseau (noté (0002)) et les satellites de surstructure correspondant à la modulation chimique (notés par des nombres pairs), les auteurs ont observé la présence de pics d'origine magnétique à des positions intermédiaires (notés par des nombres impairs) correspondant à une période double de la modulation chimique du superréseau.

L'arrangement parallèle ou antiparallèle est oscillant avec l'épaisseur des couches d'yttrium ; il a été montré que si l'échantillon $[Gd_{10}/Y_{10}]$ est antiferromagnétique, les échantillons $[Gd_{10}/Y_6]$ et $[Gd_{10}/Y_{20}]$ sont ferromagnétiques (les indices correspondent aux nombres de plans atomiques).

Cette oscillation est tout à fait manifeste d'après les mesures d'aimantation réalisées par Kwo [44] (figure I-29).

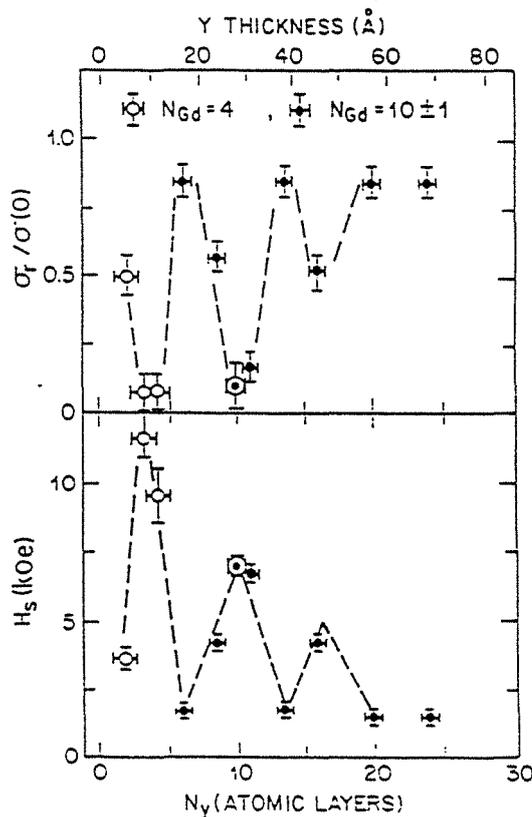


Fig. I-29 : variations du moment rémanent normalisé par rapport au moment en champ nul, et du champ à saturation en fonction du nombre de plans atomiques d'yttrium pour deux séries de superréseaux avec 4 ou 10 plans atomiques de gadolinium [44].

L'aimantation rémanente et le champ à saturation, déterminés à partir des cycles d'aimantation d'une série de superréseaux, présentent un comportement oscillant en fonction du nombre de plans atomiques d'yttrium mais ne dépendent pas du nombre de plans atomiques de gadolinium. La période d'oscillation est de sept plans atomiques et la nature oscillante du couplage s'étend sur environ vingt plans atomiques.

Ce comportement a été attribué à un couplage de type RKKY entre les moments du gadolinium, par l'intermédiaire des électrons de conduction des couches d'yttrium non magnétiques.

Un calcul de Yafet [45] rend compte de cet effet en considérant un système composé de deux plans monoatomiques de gadolinium séparés par une couche d'yttrium d'épaisseur variable. Yafet montre que l'intégrale d'échange entre les deux plans de gadolinium s'écrit :

$$\tilde{J}(\mathbf{q}) = \left| \tilde{j}_{sf}(\mathbf{q})_{Gd} \right|^2 \chi_Y(\mathbf{q})$$

Il s'ensuit que l'échange entre plans est principalement gouverné par la susceptibilité généralisée de l'yttrium $\chi_Y(\mathbf{q})$, qui présente un maximum pour un vecteur d'onde $Q \neq 0$, et non par celle du gadolinium, qui présente un maximum en $Q = 0$ (figure I-23). L'interaction d'échange calculée entre les plans de gadolinium dépend de façon oscillante de l'épaisseur d'yttrium et cette dépendance est cohérente avec l'observation des états parallèle ou antiparallèle entre moments des couches de gadolinium.

Les expériences de diffraction de neutrons polarisés réalisées par Majkrzak *et al.* [43] ont permis de compléter cette étude sur les superréseaux à arrangement antiparallèle ; les auteurs ont montré que, sous l'application d'un faible champ magnétique dans le plan des couches, les pics antiferromagnétiques apparaissent dans les spectres d'intensité diffractée avec retournement de spin, ce qui révèle une structure antiferromagnétique spin-flop telle que celle rencontrée dans les matériaux antiferromagnétiques isotropes classiques [46] (figure I-30).

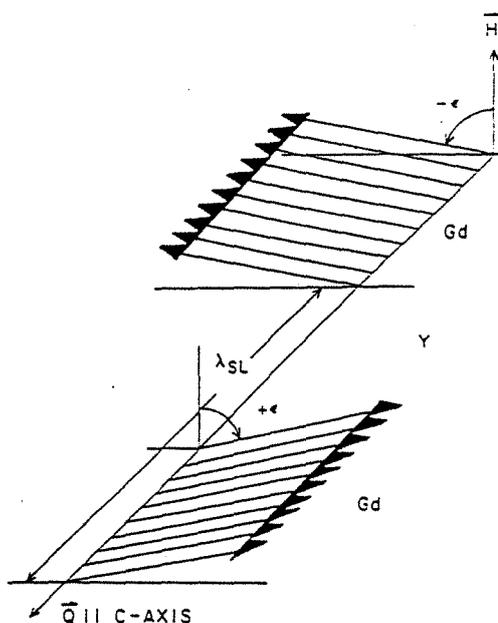


Fig. I-30 : représentation schématique de la configuration des moments magnétiques de gadolinium sous faible champ dans le superréseau $[Gd_{10}Y_{10}]_{x225}$ [43].

Les moments magnétiques antiparallèles se placent perpendiculairement au champ magnétique extérieur, en formant avec celui-ci alternativement des angles $+\varepsilon$ et $-\varepsilon$. Sous l'effet du champ magnétique croissant, une diminution des intensités des pics antiferromagnétiques ainsi qu'un accroissement de l'intensité du pic de Bragg principal et des satellites de surstructure ont été simultanément observés. Ces évolutions résultent de la diminution de l'angle ε qui conduit à une diminution de la composante antiferromagnétique spin-flip.

4.3 Superréseaux Dy/Y

Les mesures d'aimantation et les expériences de diffraction de neutrons [47-48-49] ont mis en évidence un comportement original des superréseaux Dy/Y, étroitement lié à l'épaisseur des couches d'yttrium qui séparent les couches de dysprosium. Deux effets spectaculaires ont été mis pour la première fois en évidence sur ce système :

- (i) la propagation cohérente de l'ordre hélicoïdal du dysprosium à travers l'yttrium
- (ii) la suppression, en champ nul, de la transition ferromagnétique du dysprosium.

Propagation de l'ordre hélicoïdal

Les expériences de diffraction de neutrons ont montré que, en dessous d'une température proche de la température de Néel du dysprosium massif, une phase hélicoïdale se développe dans le dysprosium et se propage à travers les couches d'yttrium en induisant un ordre hélicoïdal à longue distance (figure I-31).

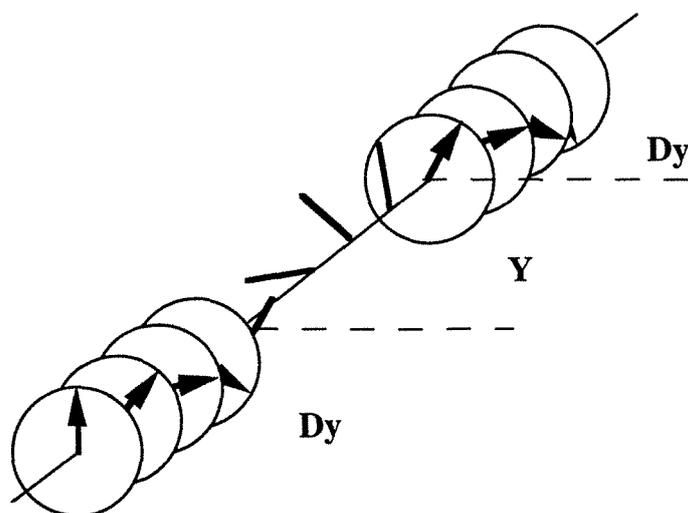


Fig. I-31 : représentation schématique de la propagation cohérente et à grande distance de l'ordre hélicoïdal du dysprosium à travers l'yttrium.

Selon ces expériences, les "morceaux d'hélice" contenus dans les couches successives de dysprosium sont de même chiralité et présentent une relation de phase qui peut être interprétée en terme de prolongement virtuel de l'hélice dans l'yttrium. Cette hélice virtuelle se développe dans l'yttrium avec un angle de rotation effectif constant en température de 51°-52° (figure I-32), correspondant au maximum de susceptibilité généralisée des électrons de conduction dans cet élément et au vecteur d'onde reliant les portions plates et parallèles de sa surface de Fermi (figure I-23).

L'angle de rotation de l'hélice dans les couches de dysprosium (figure I-32) est légèrement supérieur à celui du dysprosium massif, en particulier quand la température diminue et, comme dans ce dernier, décroît avec la température.

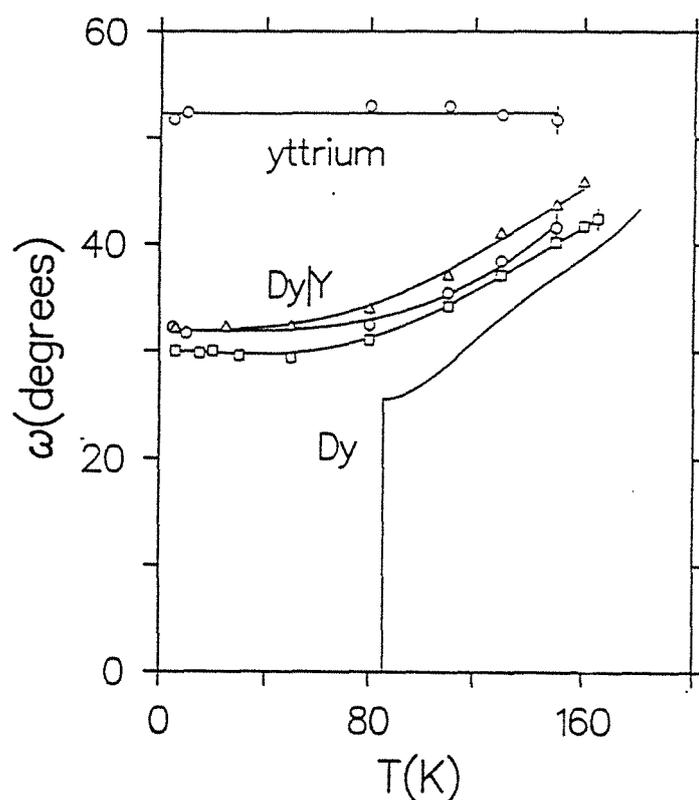


Fig. I-32 : évolution thermique de l'angle de rotation des moments dans la structure en hélice à grande distance des superréseaux Dy/Y et du dysprosium massif.

Ainsi, la structure magnétique est dictée par la susceptibilité des électrons de conduction dans chacun des éléments ; le mécanisme de ce couplage à grande distance repose sur la stabilisation d'une onde de densité de spin des électrons de conduction du dysprosium et de l'yttrium.

La longueur sur laquelle les électrons de conduction de l'yttrium sont polarisés est particulièrement grande, puisque cet effet de couplage a été observé pour des épaisseurs d'yttrium dépassant 100 Å ; la longueur de cohérence de l'arrangement hélicoïdal est alors sensiblement constante en température. L'ordre magnétique est en revanche limité à une

unique couche de dysprosium pour les superréseaux dont l'épaisseur des couches d'yttrium est supérieure à 140 Å.

La structure hélicoïdale à grande distance est détruite par l'application d'un champ magnétique. La transition ferromagnétique sous champ n'est toutefois pas aussi abrupte que dans le dysprosium massif et est précédée à haute température d'une diminution de la cohérence de l'ordre à grande distance [49]. Cette perte de cohérence est interprétée comme le résultat de l'interaction Zeeman entre le champ appliqué et la somme des moments non compensés d'une couche de dysprosium, dont l'épaisseur n'est pas forcément compatible avec la période magnétique.

L'effet de polarisation à grande distance est en fait très anisotrope et se produit seulement suivant l'axe c ; les superréseaux Dy/Y épitaxiés selon d'autres plans cristallographiques [50-51] ne présentent pas un tel comportement. En effet, la polarisation géante selon c des électrons de conduction de l'yttrium est due à l'existence de deux portions de surface de Fermi, planes et parallèles entre elles, perpendiculaires à l'axe c (voir paragraphe 3.3). Or, comme on le voit sur la figure I-33, l'enveloppe de l'intégrale d'échange décroît très vite selon l'axe b alors qu'elle présente une sorte d'arête suivant l'axe c s'étendant au-delà de 100 Å.

Notons que ce phénomène de polarisation importante de l'yttrium était déjà connu à la suite de l'étude des alliages de terres rares, puisqu'il a été observé que les alliages très dilués Y-Gd présentaient un ordre hélicoïdal à grande distance [52].

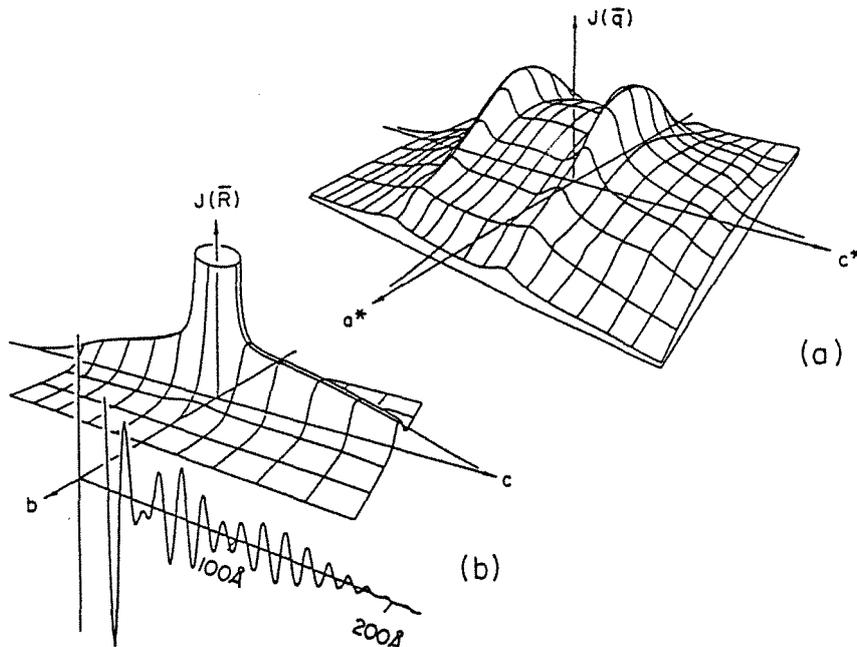


Fig. I-33 : (a) représentation schématique de $J(\vec{q})$; (b) enveloppe de l'intégrale d'échange $J(\vec{R})$.

Deux autres différences essentielles ont été observées par rapport aux superréseaux dont la direction de croissance est parallèle à l'axe c : l'angle de rotation entre spins varie de façon moins marquée avec la température et la cohérence magnétique selon c est considérablement réduite et diminue lorsque la température décroît.

Selon Tsui *et al.* [51], ces deux phénomènes ont pour origine des fluctuations de déformation à l'interface entre couches. Pour les superréseaux dont la direction de croissance est parallèle à une direction du plan de base, l'axe c est contenu dans le plan des couches et donc l'interface entre couches donne lieu à des inhomogénéités de déformation selon la direction de propagation de l'ordre hélicoïdal ; ces fluctuations, provenant de la rugosité, de l'apparition de dislocations ou de l'interdiffusion, modifient localement l'échange et donc l'angle de rotation entre spins, qui se trouve être différent d'une position à l'autre dans une même couche. Les domaines résultants seraient à l'origine de la réduction de cohérence magnétique selon c et de la faible dépendance thermique de l'angle de rotation entre spins.

Stabilisation de la phase hélicoïdale

Le second phénomène spectaculaire est déjà visible sur la figure I-32 : si dans le dysprosium massif la transition ferromagnétique, et donc la chute de l'angle de rotation ω à 0° , se produisent vers 85 K, les couches de dysprosium des superréseaux conservent jusqu'à basse température l'ordre hélicoïdal dont l'angle de rotation se stabilise vers 30° . La phase ferromagnétique n'est induite que sous l'application d'un champ magnétique de l'ordre de 20 kOe.

La suppression de la transition ferromagnétique s'explique par la modification des énergies élastique et magnétoélastique sous l'effet des contraintes épitaxiales. Si la déformation de type γ du dysprosium, qui se produit dans l'élément massif à la transition ferromagnétique, se produisait dans les superréseaux Dy/Y, elle impliquerait une déformation identique de l'yttrium voisin et donc un coût supplémentaire d'énergie purement élastique, défavorable à la transition ferromagnétique dans les superréseaux. Selon ces auteurs, la transition ferromagnétique est bloquée par inhibition du mode de déformation γ ; les modes de déformation α restent peu affectés par l'épitaxie, mais ils ne mettent pas en jeu une énergie suffisante pour compenser la différence entre les énergies d'échange des phases ferromagnétique et hélicoïdale et donc induire la transition ferromagnétique. Cela est d'autant plus vrai que les contraintes épitaxiales induites par l'yttrium tendent à augmenter le paramètre a du dysprosium, à diminuer son paramètre c et provoquer ainsi une déformation cylindrique négative, de sens opposé à celle qui se développe dans le matériau massif lors de la transition ferromagnétique.

Erwin *et al.* [53] ont calculé pour un superréseau Dy/Y le gain en énergie magnétoélastique que représente une déformation de type α à 10 K : en considérant que l'angle de rotation de l'arrangement en hélice est de 30° , la différence entre les énergies magnétoélastiques des phases ferromagnétique et hélicoïdale est de 0.6 K/atome, ce qui est insuffisant pour compenser la barrière d'énergie d'échange de -1 K/atome. L'anisotropie dans le plan de base atteint -2 K/at. à basse température mais n'est pas efficace pour induire la transition, en raison de son caractère à un ion : bien que les moments préfèrent s'aligner parallèlement à une direction facile, le choix d'une des six orientations possibles n'est pas cohérent d'un site à l'autre.

4.4 Système Er/Y

L'étude systématique suivante fut menée sur le système Er/Y [54-55-56-57]. Du point de vue cristallographique, la situation est assez semblable à celle du système Dy/Y, puisque l'yttrium impose à l'erbium une distorsion cylindrique α_2 négative, c'est-à-dire une dilatation selon a et une contraction selon c . De nouveau, cette déformation induite par l'épitaxie est opposée à la déformation α_2 qui se produit à la transition ferromagnétique dans l'élément massif. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2, l'erbium massif ne présente pas de distorsion orthorhombique (γ).

L'étude fut menée sur des films d'erbium d'épaisseur allant jusqu'à 14500 Å épitaxiés entre deux couches épaisses d'yttrium et sur des superréseaux Er/Y. Les résultats essentiels sont les suivants :

(i) Il apparaît dans l'erbium une phase modulée selon l'axe c à une température proche de la température de Néel de l'élément massif et, comme dans ce dernier, la modulation devient "carrée" à basse température en passant par une série d'états intermédiaires commensurables avec le réseau cristallin.

Les états intermédiaires sont toutefois modifiés, puisque l'angle de rotation entre spins associé à la modulation est supérieur à celui rencontré dans l'erbium massif et varie très peu avec la température. Selon les auteurs [56], cette faible dépendance thermique peut être expliquée en minimisant l'énergie totale (élastique dans les deux éléments, magnétoélastique dans l'erbium et l'énergie d'échange) par rapport à l'angle de rotation ω . L'angle de rotation déterminé à l'équilibre est effectivement très supérieur à celui de l'erbium massif.

(ii) Comme dans le matériau massif, une composante magnétique hélicoïdale dans le plan de base apparaît vers 50 K et, comme dans les superréseaux Dy/Y, cette hélice se transmet à grande distance à travers l'yttrium, avec un vecteur d'onde qui correspond au

maximum de susceptibilité généralisée des électrons de conduction de l'yttrium ; la longueur de cohérence magnétique à travers des couches d'yttrium constituées d'une vingtaine de plans atomiques est de l'ordre de 150 Å. De même, la modulation selon l'axe c (CAM) se transmet à travers l'yttrium et cela sur une longueur supérieure à 200 Å [57].

Un élément surprenant observé à basse température dans les superréseaux Er/Y est la différence entre les périodes magnétiques de la composante hélicoïdale dans le plan de base et de la composante CAM le long de l'axe c : l'angle de l'hélice dans le plan de base est supérieur de 2° à l'angle associé à la modulation selon c.

(iii) La transition ferromagnétique vers une phase en cône qui se produit au voisinage de 20 K dans l'erbium massif est supprimée, aussi bien dans les superréseaux que dans les films minces d'épaisseur atteignant 14500 Å [57]. À toute température, la transition ferromagnétique peut être induite par l'application d'un champ magnétique selon c, mais celui-ci est supérieur au champ critique rencontré dans l'élément massif, comme on le voit sur la figure I-34.

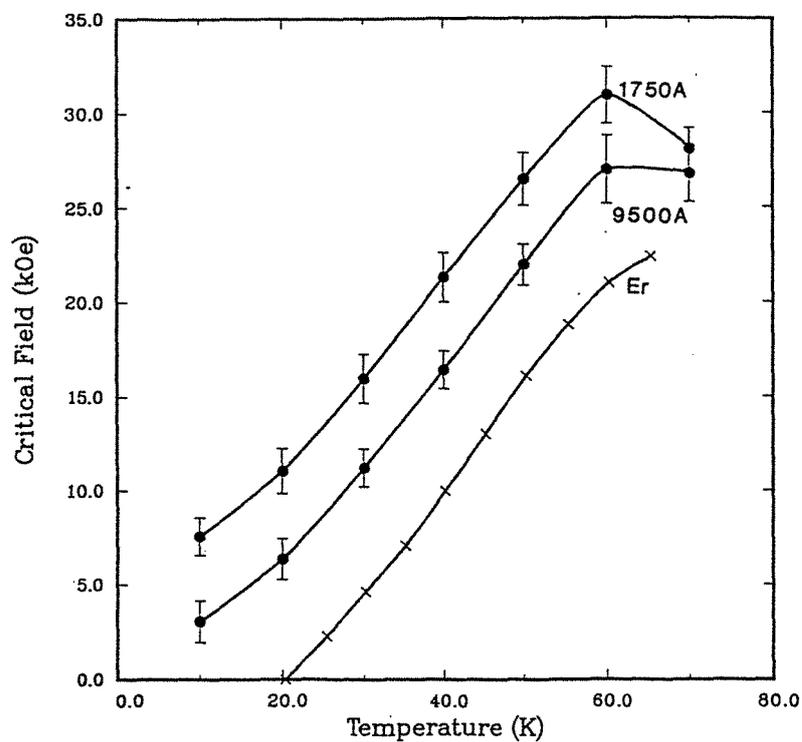


Fig. I-34 : champ critique en fonction de la température pour des films d'erbium de 1750 Å et 9500 Å épitaxiés sur yttrium, ainsi que pour l'erbium massif [58].

La propagation cohérente de l'ordre magnétique à travers l'yttrium ainsi que la suppression de la phase ferromagnétique à basse température ont été également observées dans les superréseaux Ho/Y [59-60].

4.5 Systèmes Dy/Lu et Dy/Er

Le lutécium est un élément non magnétique, placé en fin de série 4f. Il subit la contraction des lanthanides et présente, à l'état massif, un paramètre a inférieur de 2.4% à celui du dysprosium. Il s'ensuit que l'épitaxie du dysprosium sur le lutécium a pour effet d'imposer une forte compression du plan de base du dysprosium et, par conséquent, une dilatation selon l'axe c . Cette déformation va dans le sens d'un abaissement de l'énergie magnétostrictive et a donc pour effet de stabiliser la phase ferromagnétique au détriment de la phase hélicoïdale. Du point de vue de la déformation α , la situation est tout à fait opposée à celle rencontrée dans les superréseaux Dy/Y. Du point de vue de la déformation γ , la situation reste similaire à celle de Dy/Y puisqu'une distorsion orthorhombique γ du dysprosium doit s'accompagner d'une même distorsion coûteuse en énergie purement élastique dans le lutécium.

En fait, Beach *et al.* [61-62] ont constaté que, si la transition ferromagnétique était supprimée dans les superréseaux Dy/Y, la température de Curie pouvait être au contraire augmentée de 100% dans les superréseaux Dy/Lu et les films de dysprosium épitaxiés sur lutécium [63] (figure I-35).

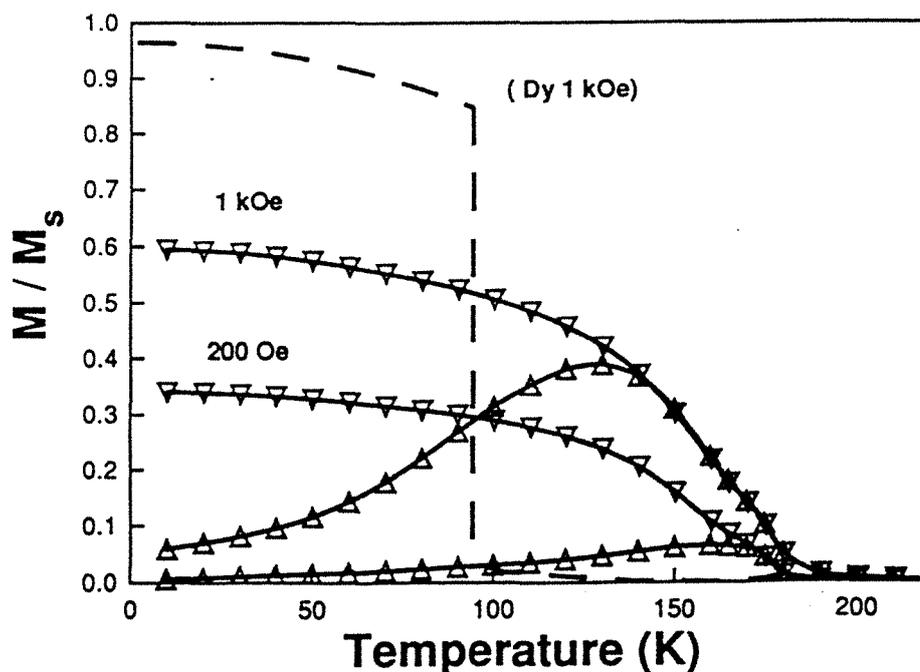


Fig. I-35 : variations de l'aimantation en fonction de la température pour le superréseau $[Dy_{16}/Lu_{20}]_{x60}$ sous des champs magnétiques de 200 Oe et 1 kOe, ainsi que celle du dysprosium massif sous 1 kOe. Les mesures présentées sont obtenues en refroidissant l'échantillon sous champ (triangles retournés) et en réchauffant l'échantillon sous champ après l'avoir refroidi en champ nul (triangles). Les valeurs sont normalisées par rapport à l'aimantation à saturation.

Selon ces auteurs, ceci confirme que si l'épithaxie induit une déformation α de même signe que celle observée à la transition ferromagnétique, celle-ci est favorisée, alors que si la déformation initiale induite est opposée, la transition ferromagnétique est retardée, voire supprimée.

Beach *et al.* s'appuient sur une étude de diffraction de rayons X au synchrotron pour affirmer la présence d'une distorsion orthorhombique γ à basse température. Cette distorsion, plus faible que dans le dysprosium massif, ne peut à elle seule élever la température de Curie ; les modes α jouent donc un rôle important. Les auteurs suggèrent toutefois qu'une telle augmentation de la température de transition doit être en partie due à la réduction de la barrière d'énergie d'échange entre les phases ferromagnétique et hélicoïdale.

Outre cette élévation de la température de Curie, Beach *et al.* ont observé un nouvel ordre magnétique à basse température, correspondant à un ordre antiparallèle entre les aimantations portées par les couches de dysprosium successives. Les expériences ont montré que, si, pour les couches de lutécium de faible épaisseur (20 Å), les aimantations portées par les couches de dysprosium successives sont parallèles, elles deviennent antiparallèles dès que l'épaisseur des couches de lutécium est supérieure.

Les auteurs insistent sur le fait que la nature de cet arrangement entre couches de dysprosium n'est pas oscillante avec l'épaisseur des couches de lutécium, comme dans le système Gd/Y, et que, pour expliquer ce couplage, il faut donc invoquer un mécanisme autre que le couplage RKKY.

Selon Beach *et al.*, le superréseau se présente sous forme de colonnes magnétiquement cohérentes (arrangement antiferromagnétique à grande distance), parallèles à la direction c , et d'extension latérale inférieure à 300 Å. Dans le plan de base, le système apparaît comme constitué de microdomaines dont les orientations d'aimantation et les distorsions orthorhombiques associées varient d'un domaine à l'autre, de façon à minimiser les déformations à grande distance.

La distorsion orthorhombique d'une couche de dysprosium entraîne une distorsion identique dans la couche de lutécium voisine, qui elle-même transmet cette distorsion dans la couche de dysprosium suivante. Il s'ensuit une cohérence à longue distance de la distorsion orthorhombique, qui impose une même direction d'aimantation le long de la colonne. Orientées selon cette direction et ferromagnétiquement ordonnées dans chacune des couches, les aimantations de dysprosium peuvent s'arranger parallèlement ou antiparallèlement à travers le lutécium.

Le couplage antiparallèle le long d'une colonne serait alors dû aux champs de fuite (interaction dipolaire) qui apparaissent aux interfaces entre microdomaines et entrent en compétition avec un éventuel couplage de type RKKY entre couches de dysprosium.

Notons enfin que dans ce système, comme dans les précédents, l'ordre hélicoïdal du dysprosium qui subsiste à haute température dans les superréseaux à faible épaisseur relative de lutécium, se propage de manière cohérente à travers le lutécium non magnétique avec un vecteur d'onde de 45° , très proche de celui correspondant au maximum de susceptibilité généralisée du lutécium massif (figure I-22). L'angle de rotation dans le dysprosium est nettement inférieur à celui du dysprosium massif, puisque, à 160 K il est égal à 28° au lieu de 43° dans le dysprosium pur.

Ce décalage est opposé à celui observé dans les superréseaux Dy/Y, où l'angle de rotation était supérieur de 5° à celui du massif. Selon ces auteurs, la diminution de l'angle de rotation confirme la réduction de la barrière énergétique entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique, proportionnelle à $(1-\cos\omega)^2/\cos\omega$.

L'épitaxie a donc pour effet de réduire à la fois l'énergie magnétoélastique et la barrière d'échange, ce qui peut expliquer la transition ferromagnétique à une température proche de la température de Néel.

L'étude du système Dy/Er, relativement voisin du système Dy/Lu du point de vue du type de déformation induite dans le dysprosium, a été très succinctement abordée par Farrow [64]. Un seul film de dysprosium de 500 \AA épitaxié entre deux couches d'erbium a fait l'objet d'une analyse structurale et magnétique, par mesures d'aimantation (figure I-36). Il apparaît que le film de dysprosium, déformé de $+0.27\%$ selon l'axe c, subit une transition ferromagnétique à une température supérieure à la température de Curie de l'élément massif.

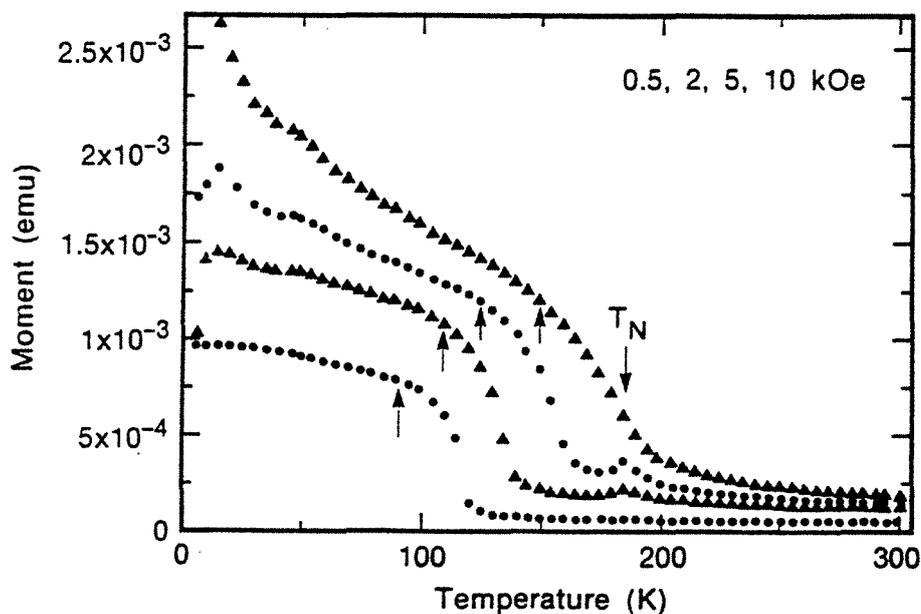


Fig. I-36 : variations thermiques de l'aimantation sous champ pour une structure : GaAs/50 Å LaF₃/2000 Å Er/500 Å Dy/1000 Å Er/1000 Å LaF₃.

4.6 Système Dy/(Y_xLu_{1-x})

Pour mieux comprendre et tenter de séparer l'incidence de la déformation épitaxiale (déformation α induite) de l'effet du blocage de la déformation γ par le substrat, Tsui et Flynn [65] ont étudié une série de films de dysprosium épitaxiés sur des couches d'alliage Y_xLu_{1-x}. Ce sont des alliages homogènes dont le paramètre a varie continûment de celui de l'yttrium, supérieur de 1.6% à celui du dysprosium, à celui du lutécium, inférieur de 2.4% à celui du dysprosium.

Des films de dysprosium de 50 Å d'épaisseur ont été épitaxiés sur des couches d'alliage de 1500 Å d'épaisseur et recouverts de 100 Å du même alliage, afin d'imposer au dysprosium le paramètre a de l'alliage. La variation du champ critique d'apparition de la phase ferromagnétique en fonction de la température et de la déformation ϵ (ϵ_{11}) imposée au plan de base du film de dysprosium est présentée à la figure I-37.

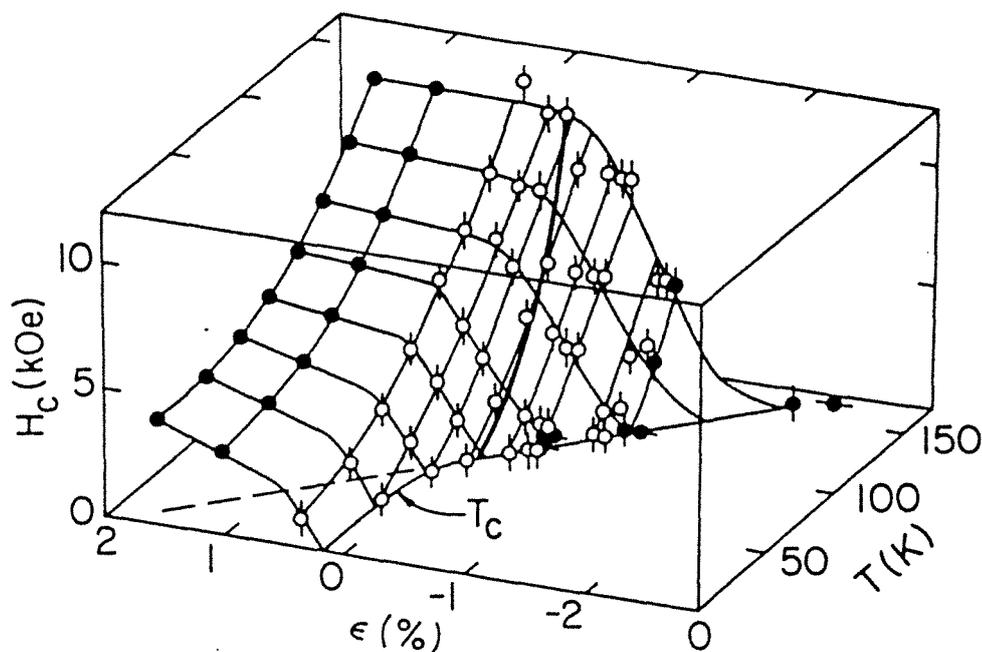


Fig. I-37: diagramme de phase magnétique de films minces de dysprosium épitaxiés selon la direction c . La courbe en gras correspond à l'évolution du champ critique du dysprosium massif [65].

À basse température, le champ critique est nul pour les déformations ϵ inférieures à 0.1%, ce qui signifie que la phase ferromagnétique est spontanément stable. Il croît ensuite rapidement lorsque la déformation croît de 0.1% à 0.8% et se stabilise vers 4 kOe. La température de Curie croît très vite lorsque ϵ varie de 0.1% à 0% et augmente linéairement au-delà de cette valeur.

Le fait le plus remarquable noté par Tsui et Flynn concerne le film de dysprosium épitaxié sur un alliage de même paramètre a que le dysprosium massif. La déformation α induite par épitaxie dans ce film est nulle mais il est en principe soumis au même phénomène de

blocage du mode de déformation γ que tous les autres échantillons ; or, sa température de Curie ainsi que l'évolution thermique du champ critique sont très proches de celles du dysprosium massif, ce qui signifierait que le mode de déformation γ n'est pas bloqué.

Les auteurs expliquent cela par un morcellement de la phase ferromagnétique dans le plan de la couche : le film de dysprosium serait constitué de petits domaines distordus orthorhombiquement désorientés de 60° les uns par rapport aux autres, de sorte que la distorsion moyenne s'estomperait très vite dans la couche d'alliage. La partie d'alliage située à une distance du dysprosium supérieure à la taille des domaines serait à égale distance des autres domaines distordus à 60° et ne subirait donc pas de distorsion.

C'est la déformation α induite par l'épitaxie qui jouerait par conséquent un rôle majeur dans l'évolution de la température de Curie, par effet magnétoélastique direct ou par effet indirect en modifiant la barrière d'énergie d'échange entre les phases magnétiques.

5. Intérêts de l'étude du système Dy/Er

Le système dysprosium/erbium, très peu étudié jusqu'à présent, entre dans la problématique des systèmes précédents et présente un certain nombre d'aspects originaux spécifiques, liés à la succession des phases magnétiques dans les éléments massifs (figure I-17).

Couplage à travers l'erbium paramagnétique

Dans le domaine de température compris entre 180 K et 85 K, où le dysprosium massif présente un ordre hélicoïdal et l'erbium massif est paramagnétique, la situation est voisine de celle rencontrée dans les systèmes Dy/Y, Dy/Lu ou Er/Y : les couches de dysprosium sont séparées par un élément de terre rare magnétiquement non ordonné, dont la susceptibilité généralisée présente un maximum à un vecteur d'onde non nul (figure I-23). Il paraît donc intéressant d'examiner le couplage de l'hélice du dysprosium à travers cette couche, et d'étudier l'effet éventuel de la polarisation des électrons de conduction de l'erbium (par les moments du dysprosium) sur ses propres moments 4f.

Couplage à travers l'erbium magnétiquement ordonné

Pour les températures inférieures à 85 K, on peut s'interroger sur l'arrangement entre couches de dysprosium devenues ferromagnétiques au travers des couches d'erbium : s'ordonnent-elles parallèlement, antiparallèlement ou aléatoirement ? La question est d'autant plus pertinente que l'erbium est alors magnétiquement ordonné, avec vraisemblablement une composante hélicoïdale dans le plan de base. Cette composante est-elle suffisamment forte pour imposer la rotation des aimantations d'une couche de dysprosium à l'autre ?

Modifications des phases magnétiques du dysprosium

Comme cela a été mentionné précédemment, l'épitaxie peut modifier la température de Curie du dysprosium. L'erbium induit a priori une déformation de type α positive, susceptible d'élever la température de Curie du dysprosium, et contribue en principe au blocage de la distorsion orthorhombique de type γ . L'étude des températures de Curie et des champs critiques en fonction des épaisseurs relatives des éléments devrait permettre d'approfondir la compréhension de ce double effet.

Modifications des phases magnétiques de l'erbium

Du point de vue des déformations épitaxiales, la situation de l'erbium est symétrique de celle du dysprosium. Il se trouve épitaxié sur un élément de paramètre a plus grand et subit donc une déformation induite α négative, défavorable à la transition ferromagnétique (phase conique à basse température). Observera-t-on cette phase basse

température ou sera-t-elle bloquée par le dysprosium ? Quelle sera enfin la conséquence de l'éventuelle distorsion orthorhombique dans le dysprosium devenu ferromagnétique sur l'ordre magnétique de l'erbium (sachant qu'une telle distorsion ne se produit jamais dans l'erbium massif) ?

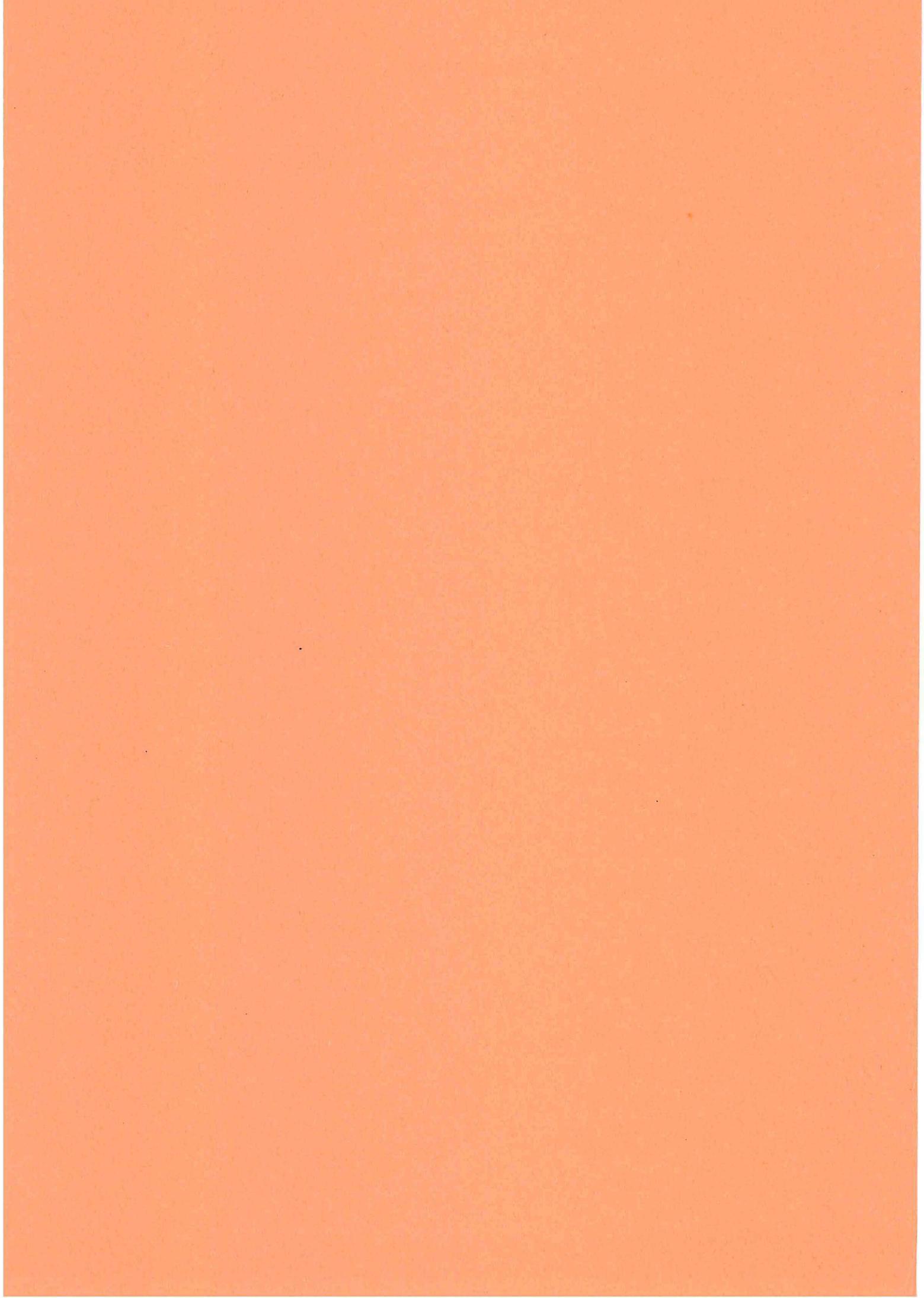
Anisotropies, interfaces

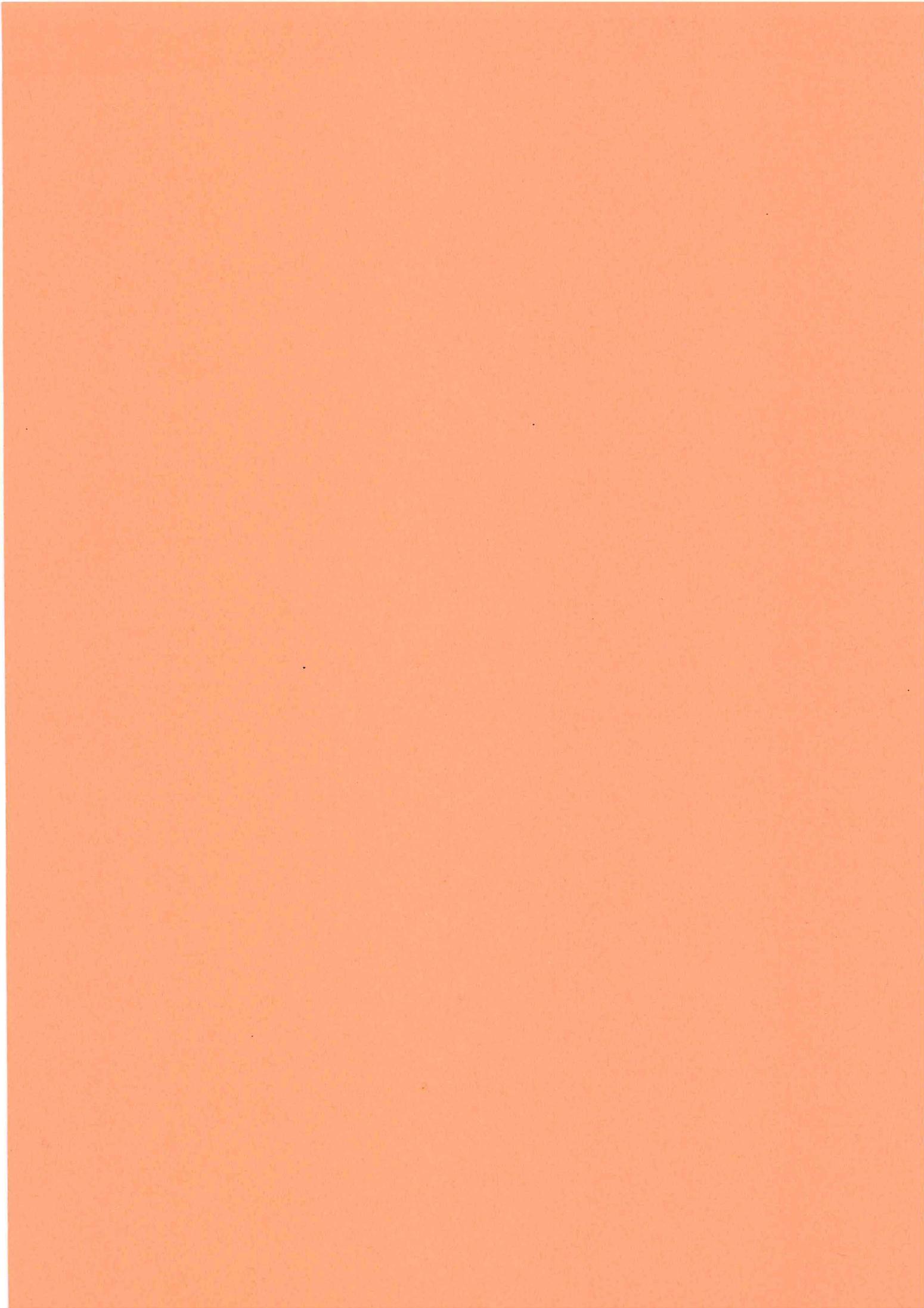
Il faut enfin considérer la compétition entre les anisotropies magnétiques du dysprosium et de l'erbium, dont un aperçu a été donné aux paragraphes 2. et 3.4. Les deux éléments présentent de fortes anisotropies, selon l'axe c pour l'erbium mais perpendiculairement à celui-ci pour le dysprosium, ce qui impose une zone de transition à l'interface entre les deux éléments magnétiquement ordonnés. L'étendue de cette interface magnétique, assimilable à une paroi, peut notablement modifier l'ordre magnétique, en particulier dans la limite de faibles épaisseurs.

La situation paraît donc complexe, sachant par ailleurs qu'on ne peut occulter d'éventuelles imperfections cristallines des échantillons.

Pour cette raison, nous avons procédé en deux étapes :

- L'étude comparée de films de dysprosium épais (100 Å - 4000 Å) épitaxiés entre des couches d'yttrium et d'erbium, dont l'objectif principal est l'analyse de l'influence des déformations épitaxiales sur les phases magnétiques du dysprosium. Notons que, paradoxalement, les films de dysprosium épitaxiés entre yttrium n'avaient jusqu'à présent jamais vraiment été étudiés.
- L'étude des superréseaux Dy/Er, qui permet d'aborder les effets de couplage magnétique, d'interface magnétique entre couches, et d'approfondir le phénomène de déplacement de la transition ferromagnétique, que ce soit dans le dysprosium ou dans l'erbium.





Chapitre II

Techniques expérimentales

Ce chapitre est consacré à la présentation des différentes techniques utilisées pour cette étude. Les films épitaxiés et superréseaux ont été fabriqués au Laboratoire Métallurgie Physique et Science des Matériaux dans une enceinte d'épitaxie par jet moléculaire, dont les principales caractéristiques sont exposées au paragraphe 1. Le paragraphe 2 présente le dispositif de diffraction de rayons X aux grands angles et la méthode utilisés pour caractériser les échantillons ; le principe de diffraction par un superréseau est traité en fin de ce paragraphe. Les techniques spécifiques à l'étude des propriétés magnétiques sont exposées au paragraphe 3 : mesures d'aimantation au magnétomètre SQUID et diffraction de neutrons et de neutrons polarisés.

1. Fabrication des échantillons

Une condition nécessaire à l'étude des propriétés magnétiques de structures modulées artificielles telles que les superréseaux est la qualité cristallographique des échantillons. Chaque couche doit présenter une cohérence cristalline optimale, que ce soit dans la direction de croissance ou dans le plan perpendiculaire à cette direction. Les interfaces entre couches doivent être aussi abruptes que possible, ce qui sous-entend une interdiffusion minimale à la température de dépôt entre les éléments constituant le superréseau. Il s'agit de réaliser un compromis entre une température de dépôt suffisamment élevée pour permettre un réarrangement des atomes et une température

suffisamment basse pour limiter l'interdiffusion entre couches. Enfin, les propriétés magnétiques liées à la structure modulée des superréseaux ne seront correctement observables que si l'empilement est parfaitement périodique. Ceci implique l'utilisation d'une technique permettant de déposer des couches nanométriques avec une précision de l'ordre de l'angström.

Certaines contraintes sont, en outre, propres à l'élaboration des superréseaux de terres rares tels que nous les étudions :

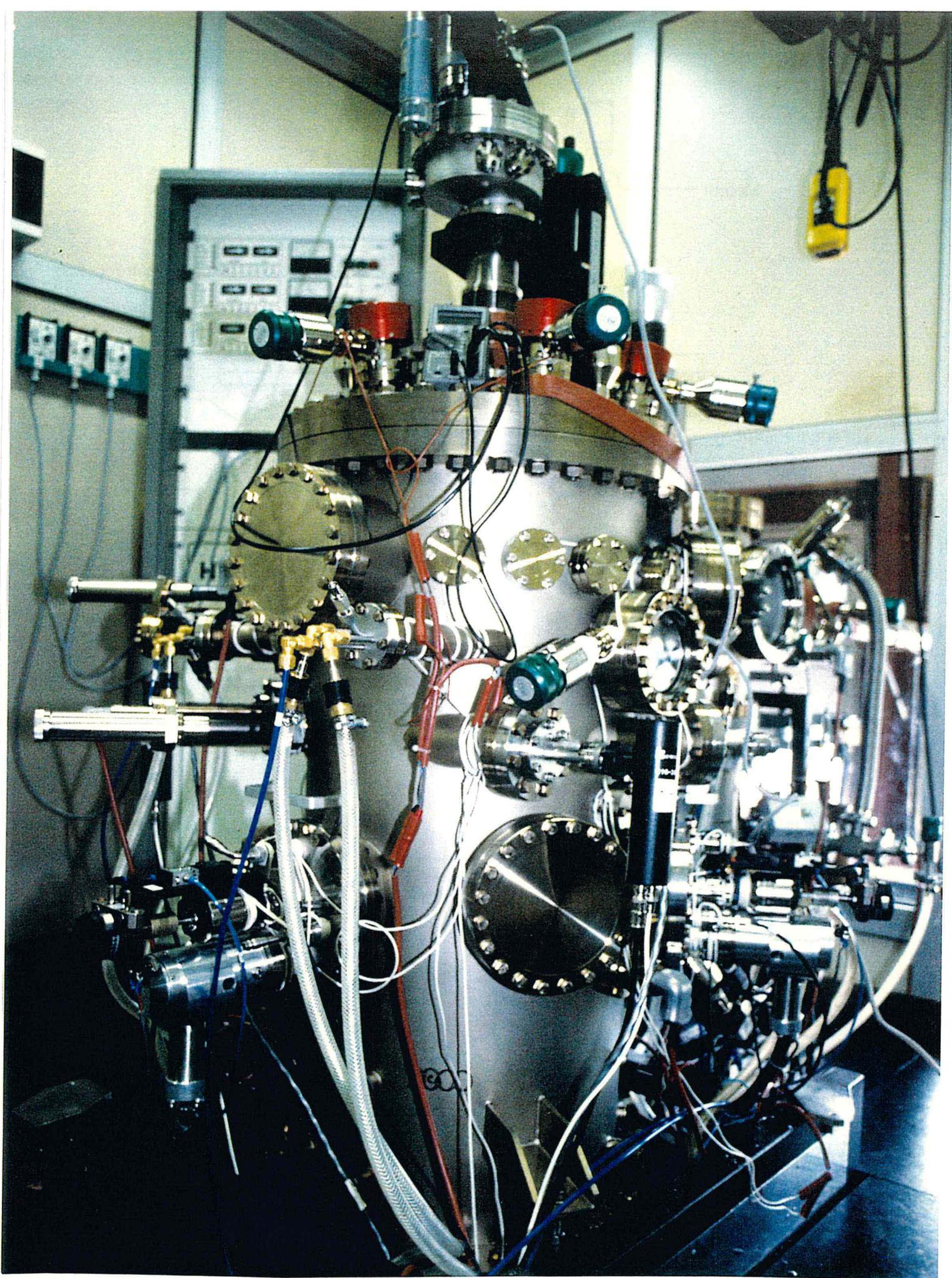
- (i) les structures magnétiques de ces éléments étant modulées selon l'axe c du réseau hexagonal, nous avons choisi cette direction comme direction de croissance. La modulation chimique coïncide ainsi avec la direction de modulation magnétique ;
- (ii) les terres rares telles que le terbium ou le dysprosium possédant une direction de facile aimantation dans le plan de base du réseau hexagonal, les échantillons doivent être parfaitement ordonnés dans ce plan, perpendiculaire à la direction de croissance ;
- (iii) les terres rares présentent une grande réactivité à l'oxygène, l'hydrogène et la vapeur d'eau, si bien que le dépôt de terres rares directement sur un substrat de saphir conduit à la formation d'oxydes. Par conséquent, les films de terres rares ne pourront pas croître directement sur un substrat de saphir et devront être élaborés sous un vide poussé.

Pour remplir ces différentes conditions et résoudre ces difficultés, il faut choisir le mode d'élaboration, le substrat sur lequel doit être élaboré le superréseau et les conditions de préparation les mieux adaptés.

La technique utilisée au laboratoire est celle de l'épithaxie par jet moléculaire, développée à l'origine pour la fabrication de semi-conducteurs : dans une enceinte sous ultravide, le matériau dont on veut réaliser un dépôt est chauffé à partir de sa phase liquide ou solide jusqu'à évaporation ou sublimation. Les atomes vont se déposer sur un substrat monocristallin maintenu à température fixée. La vitesse de dépôt est rigoureusement contrôlée et maintenue constante à l'aide de régulateurs. Si l'élément à évaporer présente un réseau cristallographique qui permette une coïncidence avec la surface libre du substrat, il peut croître de façon cohérente selon un réseau cristallin proche du réseau massif, éventuellement déformé pour s'adapter au mieux à celui du substrat. Il est alors possible d'obtenir des films monocristallins ou des superréseaux de grande qualité cristallographique.

1.1 Installation d'épithaxie par jet moléculaire

Le bâti d'épithaxie par jet moléculaire (photo et figure II-1) comprend l'enceinte d'évaporation proprement dite et un sas d'introduction qui peut être isolé de l'enceinte à l'aide d'une vanne à commande manuelle.



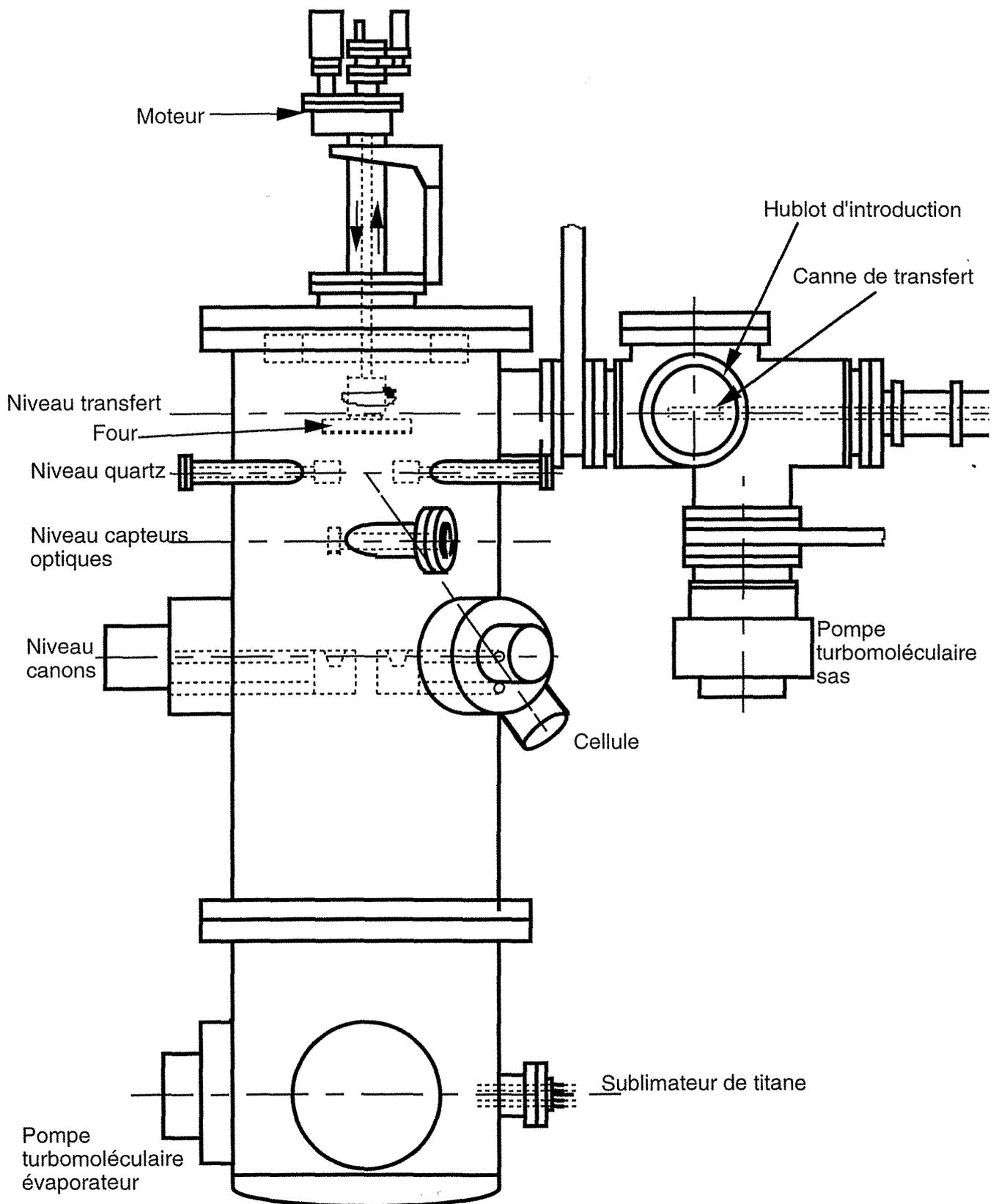


Fig. II-1 : schéma de l'installation d'épitaxie par jet moléculaire utilisée pour cette étude au Laboratoire de Métallurgie Physique et Science des Matériaux (Nancy)

Ces deux parties disposent chacune de leur propre système de pompage, ce qui permet l'entrée et la sortie d'échantillons sans détériorer le vide établi dans la chambre d'évaporation : l'échantillon est introduit dans le sas isolé de l'enceinte ; le sas est pompé et étuvé jusqu'à atteindre une pression proche de celle régnant dans l'enceinte ; on peut alors ouvrir la vanne entre le sas et l'enceinte et placer l'échantillon dans l'enceinte d'évaporation à l'aide d'une canne de transfert. En principe, la remise à l'air de l'enceinte ne s'effectue que pour changer les matériaux dans les sources d'évaporation. Les caractéristiques principales de cette installation sont les différents dispositifs de pompage, les sources d'évaporation, les capteurs de flux ainsi que les systèmes de fixation, de chauffage ou de refroidissement du substrat. Nous en présentons les caractéristiques dans les paragraphes suivants.

Système de pompage - mesure de pression

L'épithaxie par jet moléculaire nécessite un vide très poussé, à cause de l'utilisation de canons à électrons, comme on le verra par la suite, mais surtout pour assurer la propreté du substrat à l'échelle atomique, des matériaux évaporés et la qualité du dépôt réalisé. Ceci est particulièrement justifié dans le cas de l'évaporation d'éléments de terres rares, très sensibles à l'oxydation.

L'enceinte d'évaporation est évacuée par une pompe rotative à palettes (pompe primaire) en série avec une pompe turbomoléculaire (pompe secondaire). Un piège à catalyseur (charbon actif) assure la décomposition thermique des molécules d'hydrocarbures rétrodiffusées à partir de la pompe à palettes. La pompe turbomoléculaire est constituée d'un rotor formé d'une multitude d'ailettes, qui, de par sa vitesse de rotation élevée (36000 tours/minute), fournit une composante de vitesse en direction de la pompe primaire lors du choc d'une molécule gazeuse avec le rotor. La vitesse de pompage de la pompe turbomoléculaire est de 2200 l/s.

Avec ce type de pompes et après un étuvage de tous les éléments de l'enceinte, y compris la pompe turbomoléculaire, on obtient un vide limite de l'ordre de quelques 10^{-10} Torr. De par son principe même, la pompe turbomoléculaire pompe mal les gaz légers tels que l'hydrogène en raison de son faible taux de compression ; aussi utilise-t-on une pompe complémentaire, grâce à laquelle le vide limite atteint quelques 10^{-11} Torr. Cette pompe, dite pompe à sublimation de titane, assure un pompage de type getter par réaction du titane évaporé avec les molécules chimiquement actives telles que l'hydrogène, l'oxygène et l'azote. Le principe de cette pompe est le suivant : un filament de titane est chauffé jusqu'à sa température de sublimation ; le titane se condense sur les parois en films minces qui ont la propriété de chimisorber les molécules frappant la paroi. Les composés

ainsi formés se fixent sur une double paroi refroidie à l'azote liquide afin d'améliorer la vitesse de pompage.

De plus, pour éviter une remontée de pression lors de l'évaporation due au dégazage des surfaces en vue directe des sources d'évaporation, une double paroi située au sommet de l'enceinte (toit froid) est remplie d'azote liquide. C'est une cryopompe à forte vitesse de pompage pour la vapeur d'eau, issue des surfaces métalliques internes étuvées à température moyenne (200°C).

Le système de pompage du sas d'introduction comprend également une pompe rotative à palettes et une pompe turbomoléculaire mais dont les capacités de pompage sont moindres (500 l/s), étant donné la différence de volume entre la chambre d'évaporation et le sas. La pression limite atteinte par l'unique fonctionnement de ces deux pompes après huit heures d'étuvage du sas à 150°C est de l'ordre de quelques 10^{-9} Torr.

Les jauges de pression utilisées sont de deux types : jauge Pirani pour le domaine de vide primaire (1 à 10^{-3} Torr) et jauge à ionisation pour les pressions inférieures.

Le bâti d'épitaxie est équipé de quatre jauges Pirani (en sortie des deux pompes turbomoléculaires, dans l'enceinte d'évaporation et dans le sas d'introduction) et de deux jauges à ionisation (dans l'enceinte d'évaporation et dans le sas d'introduction).

Sources d'évaporation

Les sources d'évaporation disponibles dans l'enceinte sont au nombre de cinq : trois canons à électrons et deux cellules d'effusion. L'utilisation combinée de ces deux moyens nous permet de choisir le type de source le mieux adapté au matériau à évaporer, selon sa température d'évaporation ou de sublimation, sa réactivité éventuelle avec les matériaux constituant les creusets et la vitesse d'évaporation désirée.

Les canons à électrons sont choisis soit, lorsque les éléments à évaporer ont une température d'évaporation supérieure à 1300°C, soit lorsque les éléments réagissent avec les creusets d'évaporation thermique. Les éléments sont placés dans un réceptacle en cuivre refroidi à l'eau ; le faisceau électronique est dirigé par un champ magnétique dont on peut modifier les composantes, afin de choisir le point d'impact du faisceau d'électrons ou de le défocaliser pour assurer une meilleure homogénéité et donc un flux d'évaporation plus stable. Le filament est situé à l'écart de la direction du flux atomique, si bien qu'il ne peut recevoir aucune particule susceptible de générer un claquage. Au-dessus de chaque canon est disposé un toit (un demi cylindre) dont le rôle est de piéger le rayonnement thermique afin de limiter le dégazage des parois. Les canons et les toits sont

refroidis par circulation d'eau. Les capteurs de mesure de la vitesse de dépôt et l'alimentation électronique du canon sont en liaison permanente afin de réguler le flux d'évaporation et de le maintenir constant durant tout le dépôt.

Les cellules d'effusion sont des creusets en nitrure de bore pyrolitique chauffés par effet Joule. Elles sont directement orientées en direction du substrat et font un angle de 30° avec la normale au substrat. Elles conviennent particulièrement aux éléments qui se subliment, qui ont de faibles températures de fusion et qui ne réagissent pas avec le creuset. La configuration d'une cellule d'effusion lui confère une homogénéité thermique plus satisfaisante que celle du canon à électrons et permet d'obtenir des vitesses d'évaporation plus stables et plus faibles. Dans notre cas, la stabilité du flux est assurée par l'utilisation d'une alimentation électrique stabilisée en courant.

Chaque source, canon à électron ou cellule d'effusion, dispose d'un cache commandé électropneumatiquement, ce qui permet de déposer alternativement différents matériaux sans avoir à interrompre et reprendre l'évaporation depuis la source. Ceci assure une meilleure stabilité des dépôts et évite tout temps mort entre chaque dépôt. Il est à noter que ce cache obstrue ou découvre la source dans la direction du substrat sans jamais occulter le capteur de vitesse.

Mesure des flux d'évaporation

Le bâti d'épitaxie par jet moléculaire est équipé de deux types de capteurs : des oscillateurs à quartz sensibles à la masse de matériau déposé et des capteurs optiques, appelés "sentinelles" par le constructeur, sensibles au flux d'évaporation.

Le principe de mesure à l'aide d'un oscillateur à quartz repose sur le caractère piézoélectrique du quartz [66]. Une lame de quartz vibre avec une grande régularité et à une fréquence très élevée si on la soumet à un champ électrique. De plus, pour une faible masse déposée sur le cristal de quartz, la fréquence de vibration dépend linéairement de la masse de matériau dont il est recouvert et est indépendante de la nature du matériau. Cependant, pour des dépôts de masse plus importante, il faut considérer le système quartz/film comme un résonateur acoustique composite et tenir compte des modules de cisaillement, des densités et des épaisseurs des deux éléments du système composite. La précision obtenue par une telle méthode sur l'épaisseur déposée est de l'ordre de l'angström mais la durée de vie d'un oscillateur à quartz est relativement limitée puisqu'il perd en précision lorsque le dépôt dont il est recouvert est trop important.

Un oscillateur à quartz est disposé au-dessus de chaque canon à électrons, au niveau du substrat. La distance quartz-substrat a été choisie par essais successifs : c'est un compromis entre la sensibilité et la perturbation thermique due au rayonnement des sources. Il faut également tenir compte du fait que, d'une part, les quartz ne sont pas exactement à la même distance de la source que le substrat et ne voient pas la source sous le même angle et, d'autre part, que le dépôt sur le quartz a lieu à température ambiante alors que le dépôt sur le substrat se passe à température élevée (le coefficient de collage est donc différent).

Les épaisseurs et les vitesses mesurées doivent par conséquent être multipliées par un facteur correctif, déterminé par un étalonnage réalisé au moment de l'installation du bâti d'épitaxie : un film de 2000 Å environ est déposé sur un galet poli optique, positionné à l'emplacement du substrat ; l'épaisseur du film est alors mesurée par la méthode interférométrique de Tolansky [67]. Pour notre évaporateur, les facteurs correctifs de position des quartz sont de l'ordre de 0.8.

Un quatrième oscillateur à quartz insérable peut être introduit dans l'enceinte et positionné à l'emplacement exact du substrat. Il permet de mesurer la vitesse de dépôt depuis les cellules d'effusion en fonction de leur température. Chaque quartz peut être protégé par un cache commandé électropneumatiquement.

Les capteurs optiques (sentinelles) [68] fonctionnent sur le principe suivant : le flux atomique qui s'évapore de la source est bombardé par un flux d'électrons ; les atomes excités émettent, lors de leur retour à l'état fondamental, des photons de longueur d'onde caractéristique de l'élément évaporé ; ils traversent un filtre interférentiel correspondant à l'émission radiative de l'élément et sont détectés à l'aide d'un photomultiplicateur. Le nombre de photons émis est proportionnel au nombre d'atomes ionisés et donc au nombre d'atomes qui ont traversé le capteur en un temps donné. Ce type de capteur a l'avantage de détecter le flux réel, d'être sensible à un élément donné (il suffit de changer le filtre monochromatique pour qu'il soit sensible à un autre élément) et d'avoir une durée de vie théoriquement illimitée. De plus, la précision est de l'ordre du dixième d'angström. Notons cependant qu'il est nécessaire d'étalonner préalablement ces capteurs à l'aide d'un oscillateur à quartz. Un capteur optique est situé au-dessus de chaque canon à électrons.

Retenons ici que la méthode de mesure des vitesses d'évaporation est différente selon que l'on utilise un canon à électrons ou une cellule d'effusion :

(i) lorsque le matériau est évaporé à partir d'un canon à électrons, le flux est mesuré à l'aide d'un capteur optique, préalablement calibré par rapport à un oscillateur à quartz. Cette mesure se répète à chaque instant et permet, par un système de régulation électronique complètement automatisé, d'ajuster la puissance du canon pour ne pas s'écarter d'une consigne choisie en début de dépôt ;

(ii) lorsque le matériau est évaporé à partir d'une cellule d'effusion, il n'existe pas de mesure de flux en cours de dépôt. L'épaisseur déposée est uniquement déterminée d'après la durée du dépôt. Ceci est possible grâce à la grande stabilité des alimentations des cellules, à la grande capacité des creusets mais nécessite, comme on l'a mentionné précédemment, un étalonnage préalable. Cet étalonnage consiste à mesurer, à l'aide de l'oscillateur à quartz insérable, l'épaisseur déposée en un temps donné en fonction de la puissance d'alimentation de la cellule, c'est-à-dire en fait en fonction de sa température.

Le substrat

Le substrat est maintenu en contact avec un disque en molybdène (l'assiette) par une fine plaque, de molybdène également, percée d'une ouverture. Cette plaque, fixée à l'assiette par un ensemble de pinces, exerce une légère pression sur les bords du substrat et laisse libre la surface sur laquelle va être réalisé le dépôt. L'assiette, et donc le substrat, peut être refroidie à la température de l'azote liquide ou chauffée par rayonnement avec un four jusqu'à 1000°C. Ceci permet une grande souplesse dans le choix des conditions de préparation. Le support de l'assiette est de plus relié à un moteur, afin de pouvoir faire tourner continûment le substrat en cours d'évaporation et assurer ainsi une meilleure homogénéité du dépôt. La taille du substrat peut atteindre quatre pouces de diamètre.

Automatisation

La plupart des dispositifs présentés précédemment peuvent être actionnés séquentiellement ou simultanément par ordinateur et il est donc possible de commander l'élaboration d'un superréseau formé d'éléments purs ou d'alliages grâce à un programme de pilotage sophistiqué, conçu au laboratoire. Ceci permet de réduire considérablement les temps morts entre chaque étape de fabrication et de limiter les risques d'erreurs dues à l'expérimentateur, dont la présence n'en est pas moins nécessaire et primordiale. De plus, les mesures de flux, les températures de substrat, les puissances d'alimentation sont enregistrées en permanence et l'on peut s'y référer en cas d'anomalie ou pour un simple contrôle.

Lors de la fabrication d'un superréseau, ou d'un film simple, le programme de pilotage actionne les caches situés au-dessus des sources d'évaporation : dans le cas des cellules d'effusion, ils sont actionnés au bout du laps de temps prévu pour le dépôt de l'épaisseur désirée ; dans le cas des canons à électrons, ils sont régis par l'épaisseur réelle déposée, lue en permanence par les capteurs optiques.

1.2 Préparation de l'évaporation

L'élaboration d'un système épitaxié à base de terre rare requiert des conditions de propreté extrêmes et en particulier un vide très poussé à l'intérieur de l'enceinte d'évaporation. Préalablement à *chaque* évaporation, il faut donc réaliser un certain nombre d'opérations pour préparer l'enceinte d'évaporation, le substrat et son système de fixation.

Préparation de l'enceinte

Pour éliminer les molécules adsorbées sur les surfaces internes, l'ensemble de l'installation est porté à une température de 200°C : c'est l'*étuvage*. Celui-ci se fait au moyen de lampes infrarouges insérables (situées dans l'enceinte et dans le sas d'introduction) et de rubans de résistances électriques souples (enroulés à l'extérieur autour des piquages de l'enceinte). L'étuvage du sas dure une douzaine d'heures en fonctionnement courant ; celui de l'enceinte doit se poursuivre pendant plusieurs jours.

Les éléments qui seront portés à plus haute température sont *dégazés* avant chaque évaporation : le four et l'assiette sur laquelle sera fixé le substrat sont chauffés à 1000°C pendant quatre heures environ ; les sources d'évaporation sont dégazées au moins huit heures, en augmentant graduellement la puissance.

Ainsi en début d'évaporation, lorsque le piège à azote liquide est opératoire, le vide limite de l'enceinte est d'environ $2.5 \cdot 10^{-11}$ Torr.

Préparation du substrat

Il faut également assurer la propreté des éléments qui proviennent de l'extérieur de l'enceinte (le substrat) ou qui sont systématiquement sortis et réintroduits avant chaque évaporation (l'assiette porte-substrat et les tôles de fixation).

L'assiette et les tôles de fixation se recouvrent en cours d'évaporation d'une quantité de matière analogue à celle reçue par le substrat. Ce dépôt peut être la source d'une contamination lors de l'évaporation suivante et doit donc être totalement éliminé. Pour cela, assiette et tôles sont tout d'abord frottées au papier abrasif puis nettoyées au trichloroéthylène, à l'acétone et à l'alcool et enfin plongées dans une solution dégraissante dans la cuve à ultrasons. Par la suite, elles sont dégazées dans l'enceinte en même temps que le four.

Le substrat est également nettoyé au trichloroéthylène, à l'acétone et à l'alcool, plongé quinze minutes dans la cuve à ultrasons contenant une solution d'acide sulfurique et d'eau, puis rincé quinze minutes dans l'eau distillée dans la cuve à ultrasons. Il est ensuite dégazé une heure dans l'enceinte à 1000°C.

1.3 Conditions d'élaboration

Le premier problème pour la fabrication des dépôts de terres rares est de trouver un substrat adapté. Préparer des substrats de terres rares avec une surface polie-optique et sans contamination est difficile. Il faut trouver un substrat adapté, disponible dans le commerce : un monocristal de saphir d'orientation choisie est un bon candidat pour obtenir un dépôt de terre rare épitaxié ; malheureusement, si l'on effectue un dépôt de terre rare sur un saphir à relativement basse température, c'est-à-dire inférieure à 300°C, on obtient un film texturé mais non monocristallin ; si l'on effectue le dépôt à plus haute température, il y a une forte réaction chimique entre la terre rare et l'oxygène du substrat. Cette difficulté a été contournée en déposant préalablement une couche tampon chimiquement inerte avec le substrat et les terres rares [42]. Nous exposons cette procédure dans le paragraphe suivant puis présentons en détail les différentes étapes d'élaboration d'un superréseau Dy/Er et d'un film de dysprosium épitaxié.

Dépôt d'une couche tampon de niobium

Le niobium a été choisi pour réaliser cette isolation entre le saphir et terres rares, car des études [69] ont montré qu'il poussait en épitaxie sur un substrat monocristallin de saphir d'orientation (11 $\bar{2}$ 0). Aussi, quel que soit le type d'échantillon réalisé (superréseau ou film), la fabrication débute toujours par le dépôt d'une couche de 1000 Å de niobium (figure II-2).

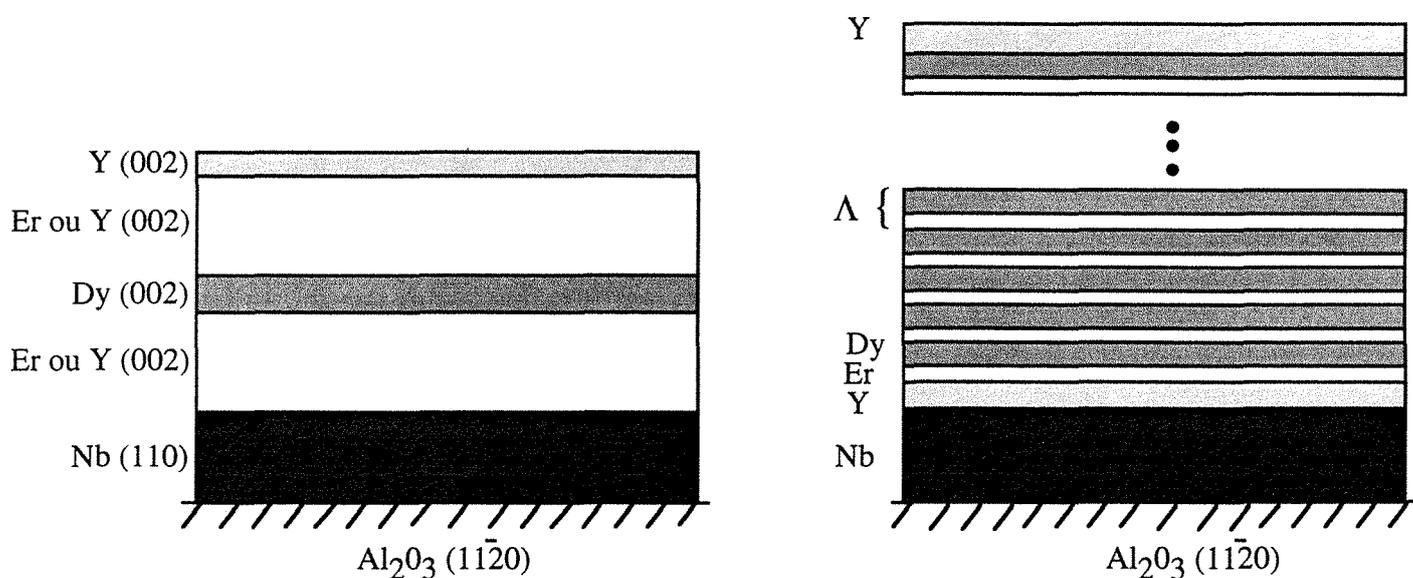


Fig. II-2 : schémas des différents types d'échantillons réalisés au cours de ce travail : film de dysprosium épitaxié sur yttrium ou sur erbium (à gauche) et superréseau Dy/Er (à droite).

La direction de croissance du niobium cubique centré sur le saphir est parallèle à sa direction $[110]$, c'est-à-dire que le plan (110) du niobium est parallèle au plan $(11\bar{2}0)$ du saphir ;

les relations d'épitaxie dans ces plans sont les suivantes (figure II-3) :

$$[\bar{1}\bar{1}1] \text{ Nb} // [0001] \text{ Al}_2\text{O}_3 \text{ et } [1\bar{1}2] \text{ Nb} // [10\bar{1}0] \text{ Al}_2\text{O}_3.$$

Les indices indiquant les directions du substrat correspondent en fait à la notation des plans auxquels ces directions sont perpendiculaires. La différence de paramètres entre les deux matériaux est de 0.97% le long de la direction $[1\bar{1}1]$ du niobium et de 1.9% le long de la direction perpendiculaire.

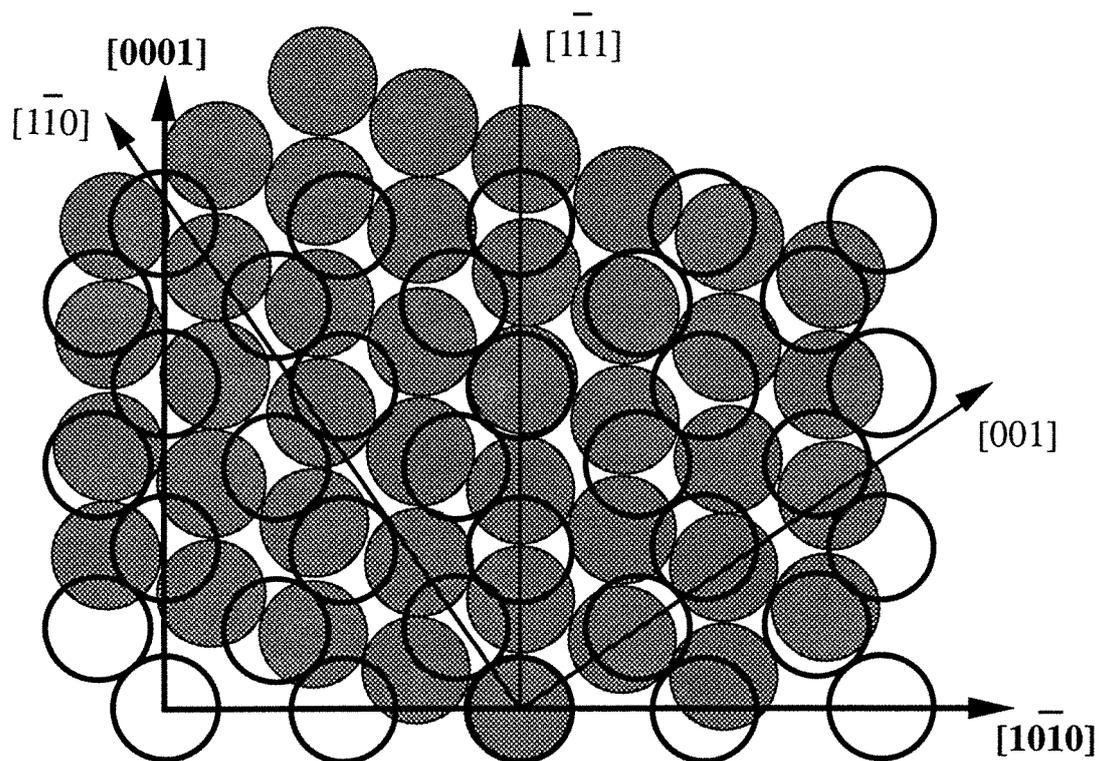


Fig. II-3 : relations d'épitaxie entre les plans $(11\bar{2}0)$ du substrat et (110) du niobium. Les atomes du substrat sont figurés par les cercles et les directions cristallographiques sont tracées en gras. Les atomes de niobium sont figurés par les ronds grisés.

Le niobium ayant une température d'évaporation de 2740°C , il est évaporé à partir d'un canon à électrons et le substrat est maintenu à une température de $900 \pm 50^\circ\text{C}$.

Ce film est réalisé en deux étapes : dépôt de 100 \AA à la vitesse de 0.05 \AA/s puis dépôt de 900 \AA à la vitesse de 0.4 \AA/s . La première étape à faible vitesse permet de mieux initier l'épitaxie.

Dépôt des terres rares

Les terres rares ou l'yttrium peuvent ensuite croître sur le niobium, le plan (0001) se déposant sur le plan (110) du niobium.

Dans le plan de croissance, les relations d'épitaxie sont de type Nishiyama-Wasserman [70] : la rangée la plus dense $[1\bar{1}\bar{2}0]$ du réseau hexagonal de la terre rare est parallèle à la rangée dense $[001]$ du niobium et, selon la direction perpendiculaire, la direction $[\bar{1}100]$ de la terre rare est parallèle à la direction $[1\bar{1}0]$ du niobium (figure II-4).

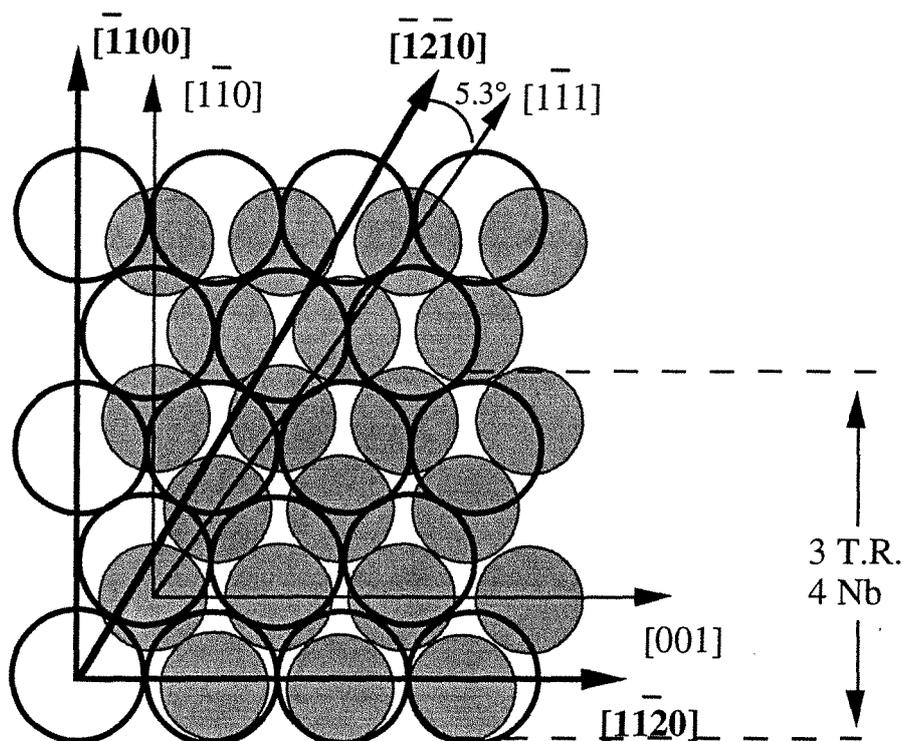


Fig. II-4 : relations d'épitaxie entre le plan (0001) de la terre rare et le plan (110) du niobium. Les atomes de terre rare sont représentés par les cercles et les directions cristallographiques sont tracées en gras. Les atomes de niobium sont représentés par les ronds grisés.

Dans l'image du réseau rigide simple, l'épitaxie est possible quand les distances interatomiques des deux rangées les plus denses des deux réseaux coïncident, ainsi que les distances interatomiques des deux rangées perpendiculaires.

Ces conditions ne sont pas réalisées dans les cas des réseaux de niobium et de terres rares lourdes (ou d'yttrium). En fait, trois rangées $[1\bar{1}\bar{2}0]$ de terre rare se superposent à quatre rangées $[002]$ de niobium ; on dit qu'il y a un accord de paramètre 3:4 au lieu de l'accord

1:1 habituel. La différence de paramètres le long de la direction $[1\bar{1}0]$ du niobium est alors de -1.3% dans les cas de l'épitaxie de l'yttrium.

Les températures optimales de dépôt pour les métaux ont été récemment déterminées par Flynn [71]. Elles doivent tenir compte de deux contraintes :

- (i) être suffisamment basses pour éviter l'interdiffusion ;
 - (ii) être suffisamment élevées pour permettre une bonne croissance couche par couche.
- Pour les métaux, la marge de manoeuvre est relativement faible, puisque la température de dépôt T_d doit être comprise entre $0.35T_f(K)$ et $0.4T_f$ où $T_f(K)$ est la température de fusion (soit environ 400°C pour l'yttrium, 390°C pour l'erbium, 360°C pour le dysprosium).

Avant de déposer l'échantillon proprement dit (un film de dysprosium ou un superréseau Dy/Er) à cette température T_d , nous déposons une deuxième couche tampon de terre rare d'une épaisseur comprise entre 500 Å et 1000 Å.

Suivant les études envisagées, il s'agit d'une couche d'yttrium ou d'erbium, dont le dépôt se déroule de la manière suivante :

- (i) une fois le dépôt de niobium terminé, la température du substrat est abaissée de 900°C à 700°C, température à laquelle on peut commencer à déposer la terre rare ;
- (ii) la moitié de la couche d'yttrium ou d'erbium est déposée en maintenant la température du substrat à 700°C ; cette température, supérieure à T_d , permet de bien initier la croissance monocristalline de la terre rare. On ne tient pas compte ici des problèmes d'interdiffusion, qui obligent à choisir une faible température de dépôt, puisque le niobium et les terres rares ne sont pas miscibles ;
- (iii) la température de substrat est ensuite abaissée continûment au cours du dépôt de la seconde moitié de la couche et atteint la température T_d en fin de dépôt.

Après le dépôt de cette seconde couche tampon, on peut dire que le substrat est maintenant constitué de l'empilement d'une couche de niobium et d'une couche d'yttrium ou d'erbium sur le saphir de départ ; il a donc les caractéristiques suivantes :

- (i) il présente en surface la structure cristallographique d'un plan (0002) d'un réseau hexagonal dont les paramètres sont très proches de ceux des terres rares à épitaxier ;
- (ii) il est à la température idéale pour l'épitaxie des terres rares.

Les conditions optimales sont donc réunies pour obtenir une épitaxie de grande qualité.

Le dysprosium et l'erbium sont alors sublimés à partir des cellules d'effusion et se déposent sur le substrat à une vitesse de 0.4 Å/s.

Dépôt d'une couche d'yttrium de couverture

De même qu'il est nécessaire d'éviter l'oxydation des terres rares par l'oxygène du substrat, il faut protéger l'échantillon élaboré de l'environnement extérieur. Pour cela, une couche de 300 Å à 500 Å d'yttrium est finalement déposée à la surface des superréseaux ou des films.

1.4 Confirmation des épaisseurs déposées

Nous avons vu précédemment que les terres rares sont évaporées à partir de cellules d'effusion et que l'épaisseur déposée est déterminée par la durée de l'évaporation, conformément à une calibration préalable des alimentations des cellules. Bien que cette méthode soit a priori reproductible, il est préférable d'avoir recours à une technique de caractérisation pour vérifier a posteriori la composition des échantillons.

La diffraction de rayons X aux grands angles permet, dans le cas des superréseaux, de déterminer la modulation chimique, c'est-à-dire la somme des épaisseurs d'une couche de dysprosium et d'une couche d'erbium (nous le verrons en détail dans le paragraphe 2.3 de ce chapitre). Une technique déterminant les concentrations atomiques relatives des deux éléments est donc dans ce cas suffisante : nous avons utilisé l'analyse par sonde électronique de Castaing, ou microsonde. La situation des films épitaxiés est plus délicate car il faut obtenir une information quantitative et donc explorer de façon certaine l'ensemble de l'échantillon : nous avons utilisé la spectrométrie d'émission de flamme.

Analyse microsonde des superréseaux

La microsonde permet de mesurer la composition chimique d'un alliage dans un très petit volume, de l'ordre de quelques microns cubes. Un faisceau d'électrons focalisé sur l'échantillon en un point dont le diamètre n'excède pas un micron excite la matière dont le spectre d'émission de rayons X est analysé à l'aide d'un spectromètre. Pour un élément donné, les intensités émises respectivement par l'échantillon et par un témoin connu, représentatif de cet élément, sont mesurées dans les mêmes conditions. Le rapport de ces intensités donne, en première approximation, le titre massique de l'élément, c'est-à-dire le rapport de sa masse sur la masse totale de tous les éléments contenus dans l'échantillon.

En règle générale, les intensités X émergentes du témoin et de l'échantillon ne peuvent être directement comparées car différents phénomènes, fonctions des éléments constitutifs de l'échantillon, interviennent différemment pour le témoin de référence et la matière analysée : diffusion et de rétrodiffusion des électrons, probabilité d'ionisation, absorption

des rayons X émis. Une correction doit être alors effectuée et peut être dans certains cas tout à fait considérable.

En revanche, la situation qui nous intéresse est favorable car les éléments constitutifs des échantillons ont des numéros atomiques très voisins, ce qui permet une détermination pratiquement immédiate des quantités relatives des deux éléments.

L'analyse de composition d'un superréseau Dy/Er s'effectue de la manière suivante :

(i) Mesure de l'ensemble des spectres d'émission des deux témoins constitués de dysprosium et d'erbium purs. Cela permet de choisir et localiser les raies d'émission qui seront utilisées par la suite. Elles doivent être suffisamment intenses et surtout ne pas se recouvrir. Les raies $L_{\alpha 1}$ remplissent parfaitement ces conditions : celle de l'erbium se situe à 1.78 Å et celle du dysprosium à 1.91 Å, ce qui correspond à un écart de 3.10^{-2} en $\sin\theta$ sur l'analyseur dont la résolution est de 10^{-5} .

(ii) Mesures des intensités des raies choisies sur les témoins. Le faisceau est focalisé en différentes positions de la surface du témoin A, où l'on effectue un comptage en réglant l'analyseur au maximum de la raie d'émission de l'élément A ($I_{\text{tém.-A}}$), suivi d'un comptage de bruit de fond en réglant l'analyseur sur une zone sans raie ($I_{\text{tém.-BF}}$). Le signal ($I_{\text{tém.-A}} - I_{\text{tém.-BF}}$) est caractéristique de l'élément A pur et rend compte de la probabilité d'excitation, du volume excité, de l'absorption des photons émis.

(iii) L'analyse du superréseau proprement dit. Elle se déroule de la même façon que celle des témoins : en un point donné de la surface, sont mesurées simultanément les intensités aux maxima des raies d'émission des deux éléments ($I_{\text{éch.-A}}$), puis les valeurs des bruits de fond ($I_{\text{éch.-BF}}$). Les rapports $x_A = (I_{\text{éch.-A}} - I_{\text{éch.-BF}}) / (I_{\text{tém.-A}} - I_{\text{tém.-BF}})$ et $x_B = (I_{\text{éch.-B}} - I_{\text{éch.-BF}}) / (I_{\text{tém.-B}} - I_{\text{tém.-BF}})$ sont caractéristiques de la composition du superréseau. Ils permettent d'estimer en première approximation les pourcentages atomiques relatifs des éléments puis, d'après la valeur de la modulation chimique déterminée par diffraction de rayons X, les épaisseurs des couches de dysprosium et d'erbium.

(iv) Un calcul de correction permet enfin de prendre en compte l'absorption des photons émis par les couches de terres rares et la couche d'yttrium de couverture. Néanmoins, les coefficients d'absorption des éléments pour les deux longueurs d'onde considérées sont suffisamment proches pour que la différence entre les rapports d'intensités émises et mesurées des deux terres rares n'excède pas 2%.

Les analyses microsonde ont été réalisées en partie au service commun de l'Université Henri Poincaré, Nancy I, et en partie sur l'installation du Laboratoire de Science et Génie des Surfaces à l'École des Mines de Nancy.

Spectrométrie d'émission de flamme pour l'analyse des films

La spectrométrie d'émission de flamme est une méthode de dosage d'éléments chimiques fondée sur la mesure de l'intensité de l'émission de radiations spécifiques des atomes dans une flamme.

L'échantillon d'analyse est introduit dans la flamme sous forme de solution nébulisée par le gaz comburant. La flamme a pour but d'exciter les atomes, dont une radiation sélectionnée est mesurée. La flamme utilisée dans notre cas est en fait un plasma, qui n'est autre qu'une flamme haute température (5000 à 15000°C) dont l'intérêt est de provoquer une excitation très intense.

Les étapes d'analyse sont alors les suivantes :

- (i) On mesure précisément la surface du dépôt et la masse de l'échantillon.
- (ii) L'échantillon est dilué par une attaque chimique. La solution obtenue contient du dysprosium, de l'yttrium et éventuellement de l'erbium dans le cas de films de dysprosium épitaxiés sur erbium.
- (iii) Cette solution, excitée par le plasma, émet un spectre dont les intensités des raies sont fonctions de la quantité d'élément dosé. La comparaison du résultat obtenu à celui donné par une solution étalon de concentration connue permet de déterminer la concentration de chacun des éléments et son pourcentage massique par rapport à la masse totale mesurée en début de procédure.

Les analyses de composition réalisées par spectrométrie de flamme ont été effectuées à l'Institut National de la Recherche sur la Sécurité à Vandoeuvre lès Nancy. Les épaisseurs effectives des films déposés ont été déterminées à partir de ces analyses.

2. Diffraction de rayons X

Les expériences de diffraction de rayons X ont été réalisées au laboratoire Métallurgie Physique et Science des Matériaux à l'aide de deux dispositifs présentés au paragraphe 2.1. L'étude de la structure cristalline concerne l'analyse des orientations relatives des différents matériaux dans le plan d'épitaxie, de la déformation induite par épitaxie perpendiculairement au plan des couches et, dans le cas des superréseaux, la détermination de la modulation chimique. Les résultats concernant les orientations dans le plan des couches étant similaires pour les films épitaxiés et les superréseaux, ils sont présentés au paragraphe 2.2. Les mesures des déformations des films et des superréseaux sont respectivement reportées au début des chapitres III et IV.

Le paragraphe 2.3 est consacré à l'approche théorique de la diffraction par un superréseau.

2.1 Dispositif expérimental

Les expériences de diffraction de rayons X aux grands angles ont été réalisées sur deux montages expérimentaux différents :

Le premier montage utilisé est un montage relativement ancien de type CGR théta-60 permettant de réaliser des acquisitions en configuration $\theta/2\theta$. Sa résolution est assez moyenne mais il permet d'obtenir des intensités importantes. Il a été choisi pour caractériser les superréseaux de manière systématique et en déterminer la modulation chimique. Il est équipé d'une anticathode de cobalt ($\lambda = 1.7889 \text{ \AA}$) et d'un monochromateur courbe.

Nous avons pu ensuite avoir accès à un dispositif haute résolution très sophistiqué : le diffractomètre Philips HRD (figure II-5).

Comme précédemment, la source est une anticathode de cobalt. Le diffractomètre possède un monochromateur à quatre cristaux de germanium (220) fournissant une divergence horizontale de faisceau de 12.5 secondes d'arc. Des fentes F1 et F2 de largeur 0.25 mm et de hauteur 1 cm sont situées respectivement à la sortie du monochromateur et devant le détecteur.

Dans de telles conditions, l'intensité du faisceau direct est de 60000 cps/seconde. En configuration $\theta/2\theta$, le pic du saphir apparaît avec une largeur à mi-hauteur de 30 secondes d'arc. Nous verrons que cette largeur est très faible devant celle des pics de Bragg des terres rares, ce qui signifie que la résolution expérimentale intervient très peu.

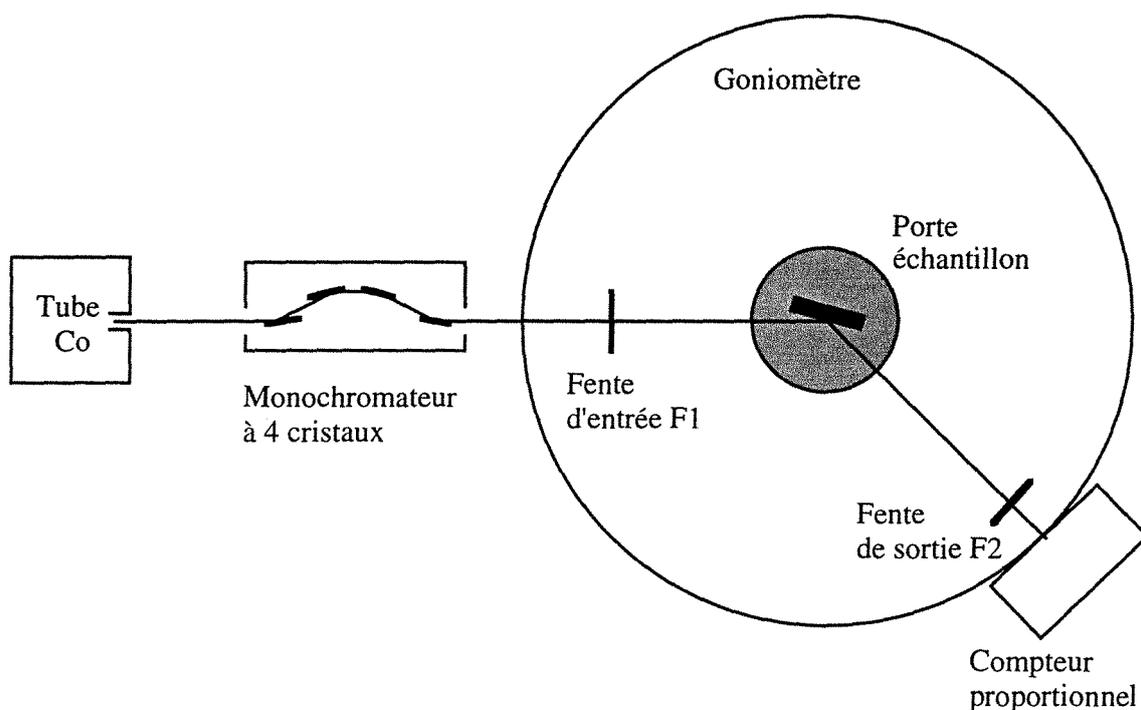


Fig. II-5 : schéma du diffractomètre haute résolution Philips HRD

Le diffractomètre HRD possède plusieurs degrés de liberté (figure II-6) que nous avons mis à profit pour déterminer les orientations relatives des éléments constituant les échantillons. Il est possible de translater l'échantillon suivant un axe perpendiculaire à son plan (T) et de le tourner dans son plan autour de l'axe de translation cité ci-dessus (R). Enfin, il est possible de positionner indépendamment le détecteur (2θ) et l'échantillon en rotation autour de l'axe du goniomètre (ω). En réflexion sur les plans parallèles à la surface, $\omega = 2\theta$.

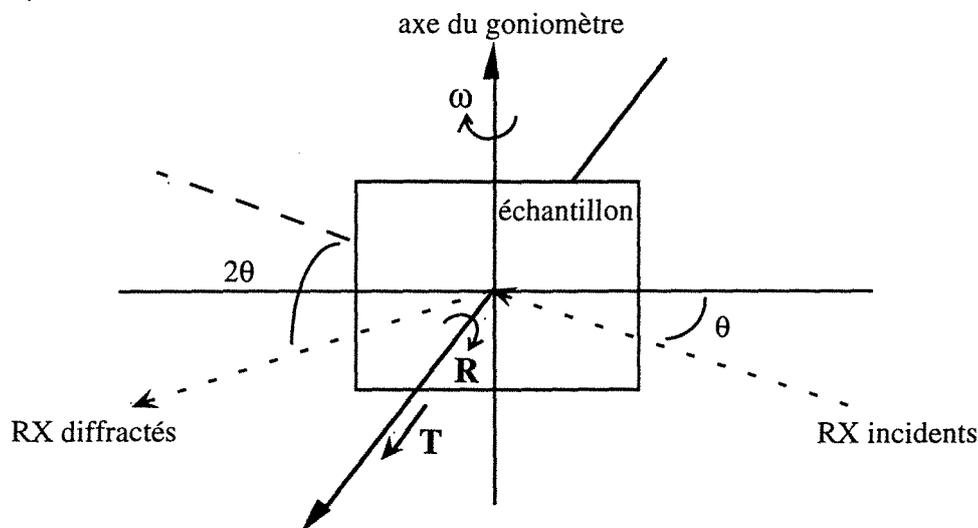


Fig. II-6 : schéma des différents degrés de liberté possibles (ω , R et T) avec le dispositif de diffraction utilisé. La configuration représentée correspond à la réflexion sur les plans parallèles à la surface de l'échantillon.

2.2 Détermination des orientations et des textures

Les études d'orientation et de texture concernent aussi bien les films épitaxiés que les superréseaux. Il s'agit tout d'abord de vérifier la conformité de l'orientation des différentes couches les unes par rapport aux autres puis de déterminer leur texture dans le plan et perpendiculairement au plan du substrat. Nous avons pour cela examiné successivement le substrat, la couche de niobium puis les couches de terres rares.

Le substrat

Les substrats de saphir ont été fournis par la société Union Carbide. Ils nous ont été livrés taillés de sorte que le plan $(11\bar{2}0)$ soit parallèle à la surface extérieure et donc que l'axe c soit contenu dans le plan du substrat. Le fournisseur certifie que l'angle entre le plan de coupe et le plan $(11\bar{2}0)$ ne doit pas excéder 1° . Notre première préoccupation fut donc de contrôler la qualité du substrat et de déterminer l'angle entre le plan de surface et son plan $(11\bar{2}0)$.

Angle de coupe

Pour cela, nous avons utilisé le montage Philips haute résolution. Nous avons déterminé l'orientation de l'échantillon en le plaçant en réflexion totale, qui est une réflexion spéculaire sur le plan de la surface de l'échantillon. Ceci nous a permis de déterminer la référence $\omega = 0$, lorsque la surface externe du substrat est parallèle au faisceau incident. Le détecteur est ensuite placé à la position 2θ correspondant à la raie $(11\bar{2}0)$ du saphir, l'échantillon subissant simultanément une rotation de $\omega = \theta$. Cette configuration devrait, si ces plans sont parfaitement parallèles à la surface externe, fournir le maximum d'intensité de la réflexion $(11\bar{2}0)$ du saphir. En fait, il a fallu en général modifier l'angle ω et se placer en ω_M pour trouver le maximum d'intensité de cette raie, ce qui indique un écart d'angle ε entre le plan de coupe et les plans $(11\bar{2}0)$.

Afin de déterminer ε , nous avons tracé l'angle ω_M en fonction de R , c'est-à-dire en fonction de l'angle entre le faisceau incident et une direction contenue dans le plan. Une courbe typique est présentée figure II-7.

Il s'agit d'une sinusoïde dont l'amplitude est précisément égale à l'angle ε entre le plan de l'échantillon et le plan $(11\bar{2}0)$, soit environ 1° . Les valeurs extrêmes et médianes de ω_M s'interprètent de la façon suivante (figure II-8) :

(i) si la direction d'intersection entre le plan de l'échantillon et les plans $(11\bar{2}0)$ est horizontale, la rotation ω autour de la verticale a même effet sur le plan de l'échantillon et les plans $(11\bar{2}0)$. L'angle ω_M apparaît donc à θ , bien que la position des plans $(11\bar{2}0)$ ne

soit pas optimale. Il faudrait les incliner autour d'une direction horizontale pour obtenir un maximum d'intensité, mais cette correction serait peu importante étant donné la divergence verticale ;

(ii) si la direction d'intersection entre le plan de l'échantillon et les plans (11 $\bar{2}$ 0) est verticale, la rotation ω de $\pm \epsilon$ autour de la verticale permet d'amener les plans atomiques en position de réflexion.

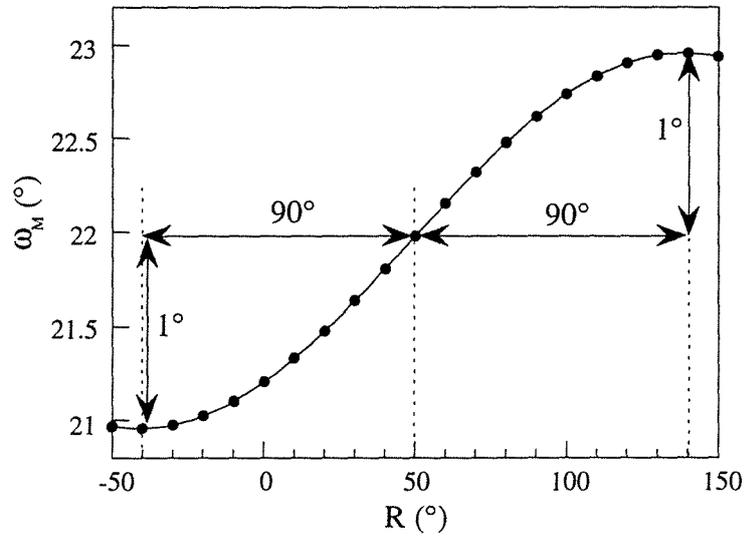


Fig. II-7 : variation de l'angle ω où apparaît le maximum d'intensité pour la réflexion (11 $\bar{2}$ 0) du substrat en fonction de l'angle R de rotation du substrat dans son plan.

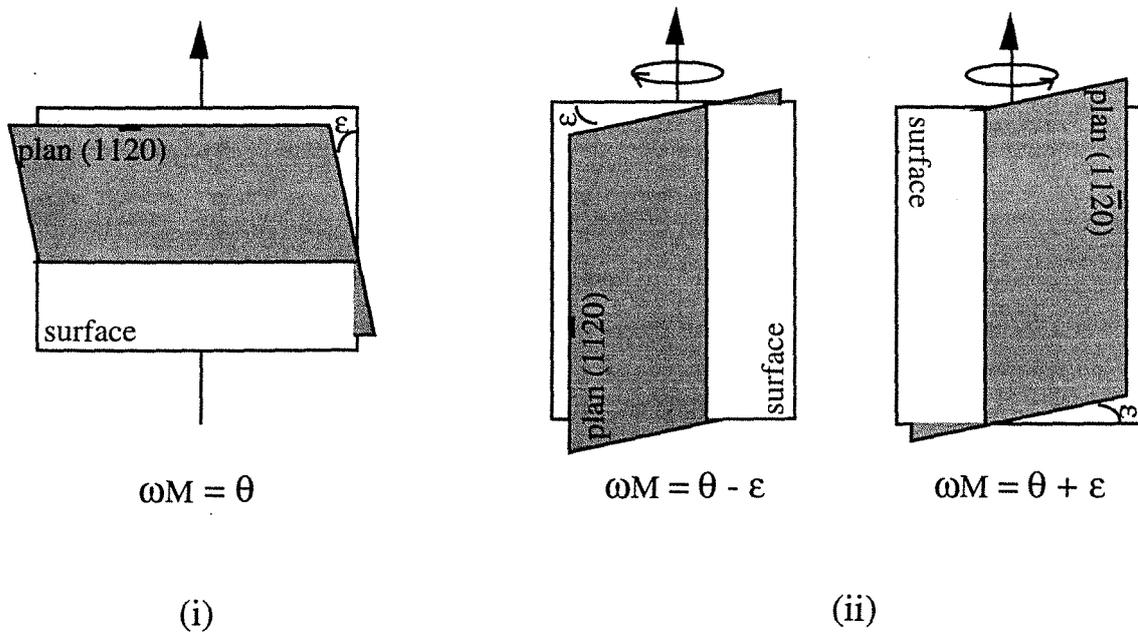


Fig. II-8 : schéma explicatif de la courbe $\omega_M(R)$ mesurée pour déterminer l'angle de coupe du substrat de saphir.

Orientation

La détermination de la direction (0001) du substrat (l'axe c) a été effectuée en recherchant la réflexion de Bragg d'un plan autre que $(11\bar{2}0)$ contenant cet axe c. Nous avons choisi pour cela le plan $(10\bar{1}0)$ qui forme avec le plan $(11\bar{2}0)$ un angle $\alpha = 30^\circ$. Aussi, partant de la position de l'échantillon correspondant à la réflexion $(11\bar{2}0)$, nous effectuons une rotation ω de 30° et plaçons le détecteur en $2\theta(10\bar{1}0)$. Il ne reste plus qu'à tourner l'échantillon dans son plan (R) pour positionner l'axe c vertical et trouver l'intensité de la réflexion $(10\bar{1}0)$.

La figure II-9 présente la variation de l'intensité en fonction de la rotation R.

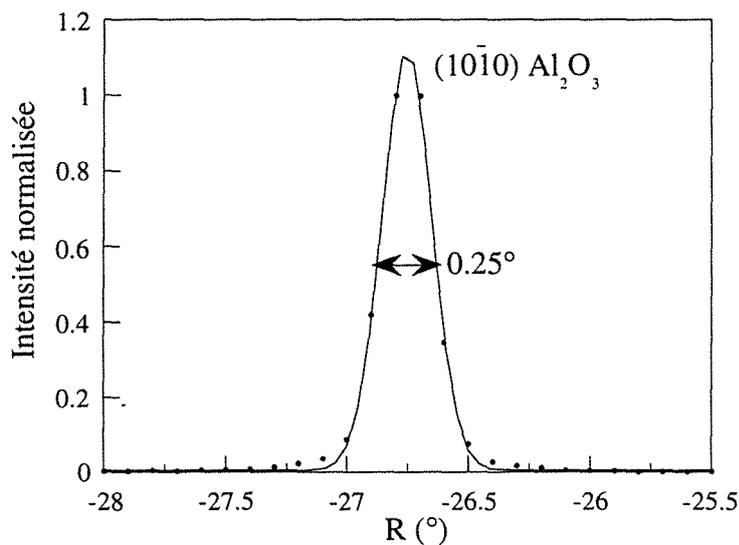


Fig. II-9 : variation de l'intensité en fonction de R pour déterminer l'orientation du substrat.
 $\omega = \theta(11\bar{2}0) - 30^\circ$ et le détecteur est placé en $2\theta(10\bar{1}0)$.

Le pic obtenu à une valeur que l'on notera $R_{Al_2O_3}$ présente une largeur à mi-hauteur de 0.25° certainement due davantage à la divergence verticale du faisceau qu'au substrat monocristallin. Cette largeur est en tout état de cause la limite supérieure de la précision des orientations déterminées par la suite pour le niobium et les terres rares.

Le niobium

Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.3, les relations d'épitaxie entre le niobium et le substrat doivent être $(110)Nb // (11\bar{2}0)Al_2O_3$ et $[1\bar{1}1]Nb // [0001]Al_2O_3$. L'orientation $(110)Nb // (11\bar{2}0)Al_2O_3$ est vérifiée par le fait que ces deux réflexions apparaissent lors du même balayage en configuration $\theta/2\theta$. Par ailleurs, le niobium est

monocristallin, puisque aucune autre raie associée au niobium n'est visible sur le spectre de diffraction.

De même que pour le substrat, il est possible de repérer la direction $[1\bar{1}1]$ en recherchant la réflexion de Bragg provenant d'un plan non parallèle au plan (110) contenant cette direction. Nous avons choisi pour cela le plan $(12\bar{1})$ situé à 30° du plan (110).

Après avoir placé le détecteur en $\theta(12\bar{1})$ et tourné ω de 30° , nous avons effectué une rotation en R. La variation de l'intensité en fonction de R est reportée sur la figure II-10, superposée à celle du substrat décrite au paragraphe précédent et à celle de la terre rare décrite par la suite.

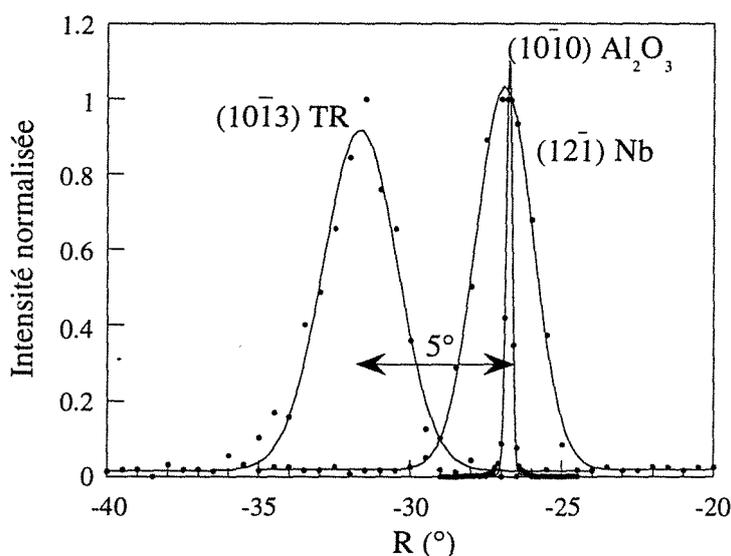


Fig. II-10 : superposition des courbes $I(R)$ mesurées pour les réflexions $(10\bar{1}0)$ du substrat, $(12\bar{1})$ du niobium et $(10\bar{1}3)$ de la terre rare.

Elle est maximale pour R_{Nb} , pratiquement égal à $R_{Al_2O_3}$, mais la largeur à mi-hauteur du pic est nettement supérieure à celle obtenue pour le saphir. Elle est de 2.2° et est caractéristique de la texture dans le plan $(1\bar{1}1)Nb // (0001)Al_2O_3$.

La texture dans le plan (110) est estimée en effectuant un balayage en ω autour de $\theta(110)Nb$ (rocking curve) ; la largeur à mi-hauteur du pic est alors typiquement de 0.25° , celle du pic équivalent obtenu autour de $\theta(11\bar{2}0)Al_2O_3$ étant de l'ordre de 0.01° .

On peut donc en conclure que, conformément aux relations d'épitaxie, la direction $[1\bar{1}1]$ du niobium est parallèle à la direction $[0001]$ du substrat avec toutefois une dispersion de 0.25° .

Les terres rares

Les relations d'orientation entre la terre rare et le niobium sont, d'après Kwo *et al.* [42], $(110)\text{Nb} // (0001)\text{TR}$ et $[001]\text{Nb} // [11\bar{2}0]\text{TR}$. La relation $(110)\text{Nb} // (0001)\text{TR}$ a été vérifiée en réalisant le spectre en configuration $\theta/2\theta$ où apparaissent les réflexions $(11\bar{2}0)\text{Al}_2\text{O}_3$, $(110)\text{Nb}$ et $(0001)\text{TR}$. De même que dans les cas précédents, le balayage en ω conduit à un pic centré en $\theta(0001)\text{TR}$ dont la largeur à mi-hauteur est voisine de 0.25° .

L'orientation de la terre rare dans le plan a été déterminée en recherchant la réflexion sur le plan $(10\bar{1}3)$ qui contient une direction de type a et forme un angle de 31.2° avec le plan (0001) . L'intensité mesurée en fonction de R (figure II-10) est maximale pour RTR situé à environ 5° de RNB et RAl_2O_3 .

Cela indique que la direction a de la terre rare est tournée de 5° par rapport aux directions $[1\bar{1}1]$ du niobium et c du saphir, ce qui est en accord avec la figure II-3 du paragraphe 1.3. D'après cette figure, l'angle devrait être de 5.27° .

La largeur à mi-hauteur de la courbe décrivant l'intensité en fonction de R est de 3° , ce qui traduit une dispersion d'orientation dans le plan plus importante que pour le dépôt de niobium.

Les mesures présentées ci-dessus ont été réalisées sur six échantillons. Si la moitié d'entre eux se comportent comme nous l'avons décrit, nous avons observé quelques anomalies : dissymétrie de la rocking curve autour de la réflexion (110) du niobium et largeur à mi-hauteur plus élevée de la courbe $I(R)$ correspondant à la terre rare. Une étude systématique s'imposerait maintenant, afin d'examiner une corrélation éventuelle entre ces anomalies et l'angle de coupe du substrat, et de déterminer si elles sont liées à des anomalies de déformations épitaxiales, telles que celles observées par la suite (voir chapitre III - paragraphe 1).

Les expériences de diffraction de rayons X ont également permis, en réflexion classique $\theta/2\theta$ sur les plans parallèles à la surface, de mesurer le paramètre c des films de dysprosium épitaxiés et d'en déduire l'état de déformation épitaxiale induit par les couches d'yttrium ou d'erbium. Ces résultats sont présentés au paragraphe 1 du chapitre III, consacré à l'étude des films épitaxiés.

Dans le cas des superréseaux, le spectre obtenu révèle en outre des pics satellites dus à la modulation chimique de la structure, comme cela sera montré dans l'approche théorique suivante. Les résultats expérimentaux sont présentés au paragraphe 1 du chapitre IV, consacré à l'étude des superréseaux.

2.3 Diffraction par un superréseau

La périodicité additionnelle des structures modulées artificiellement donne lieu à des effets de diffraction particuliers, qui peuvent être traités en considérant le superréseau comme un système stratifié [72-73-74].

Un superréseau idéal est constitué d'une succession de n_A plans d'atomes A espacés d'une distance d_A et de n_B plans d'atomes B espacés d'une distance d_B (figure II-11).

Les épaisseurs des couches individuelles sont $l_A = n_A d_A$ et $l_B = n_B d_B$. La période Λ du superréseau est $\Lambda = l_A + l_B$ et son épaisseur totale est $L = N\Lambda$, où N est le nombre de bicouches constituant le superréseau.

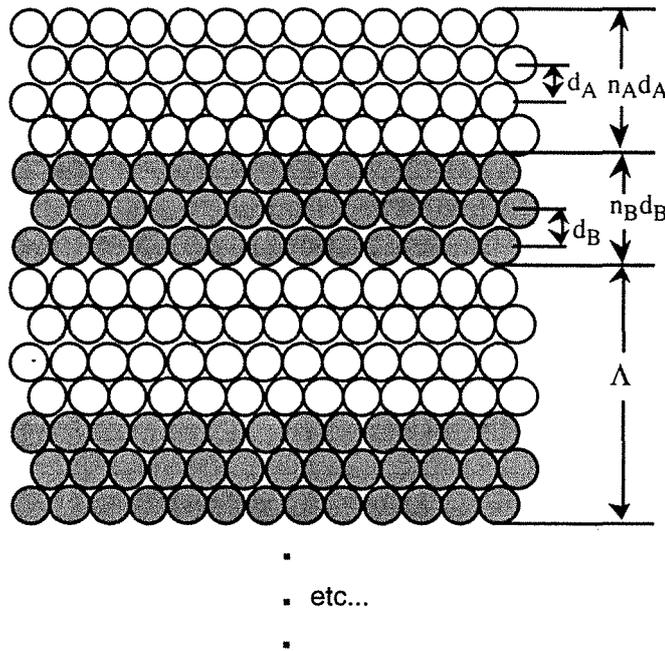


Fig. II-11 : schéma de deux bicouches d'un superréseau idéal.

Soient \mathbf{k}_0 le vecteur d'onde incident, \mathbf{k} le vecteur de l'onde diffractée et $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$ le vecteur de diffusion. Dans l'approximation de Born de la théorie de la diffusion, l'onde diffractée s'exprime par $f(\mathbf{q}) \exp(-i \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})$ où $f(\mathbf{q})$ est l'amplitude de diffusion donnée par l'expression:

$$f(\mathbf{q}) = \sum_i f_i(\mathbf{q}) \exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$$

où $f_i(\mathbf{q})$ et \mathbf{r}_i représentent respectivement le facteur de diffusion et la position du $i^{\text{ème}}$ atome. $f_i(\mathbf{q})$ décrit l'interaction du photon avec le nuage électronique de l'atome et est égal à la transformée de Fourier de la distribution de densité électronique ρ_i centrée sur l'atome i :

$$f_i(\mathbf{q}) = \int \rho_i(\mathbf{r}) \exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d^3 \mathbf{r}$$

$f(\mathbf{q})$ est le résultat de l'addition d'amplitudes individuelles, produits d'un pouvoir diffusant $f_i(\mathbf{q})$ par un facteur de phase $\exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$ dû au chemin parcouru par les ondes diffractées.

Examinons la diffraction par un superréseau selon un vecteur de diffusion \mathbf{q} perpendiculaire au plan des couches, c'est-à-dire la réflexion sur les plans atomiques parallèles à la surface de l'échantillon (figure II-6).

Dans cette situation géométrique, le facteur de structure total s'écrit :

$$f(\mathbf{q}) = \frac{\sin(N\Lambda q / 2)}{\sin(q\Lambda / 2)} \left(f_A \frac{\sin(n_A q d_A / 2)}{\sin(q d_A / 2)} + \exp(iq\Lambda / 2) f_B \frac{\sin(n_B q d_B / 2)}{\sin(q d_B / 2)} \right)$$

où les amplitudes de diffusion atomique, variant lentement avec q , sont simplement écrites $f_{A(B)}$ et non $f_{A(B)}(\mathbf{q})$.

Il apparaît comme le produit de la fonction d'interférence de Laüé $S(\mathbf{q})$, caractéristique de la périodicité du superréseau, et du facteur de structure $F(\mathbf{q})$ de la bicouche.

$$S(\mathbf{q}) = \frac{\sin(N\Lambda q / 2)}{\sin(q\Lambda / 2)}$$

$$F(\mathbf{q}) = f_A \frac{\sin(n_A q d_A / 2)}{\sin(q d_A / 2)} + \exp(iq\Lambda / 2) f_B \frac{\sin(n_B q d_B / 2)}{\sin(q d_B / 2)}$$

L'intensité diffractée s'écrit donc sous la forme :

$$I(\mathbf{q}) \propto |f(\mathbf{q})|^2 = |S(\mathbf{q})|^2 |F(\mathbf{q})|^2$$

Ces deux facteurs font apparaître des fonctions du type :

$$L_v(q) = \frac{\sin(n_v q d_v / 2)^2}{\sin(q d_v / 2)^2}$$

où $L_v(q)$ présente des maxima principaux pour les valeurs de q multiples de $2\pi/d_v$ et dont la largeur à mi-hauteur est $\Gamma_v = 2\pi/n_v d_v$.

Ainsi :

- $|S(\mathbf{q})|^2 = \frac{\sin(Nq\Lambda / 2)^2}{\sin(q\Lambda / 2)^2}$ est une fonction qui présente des pics pour des valeurs de q multiples de $2\pi/\Lambda$, dont la largeur à mi-hauteur est $\Gamma_N = 2\pi/\Lambda$ (figure II-12 (c)).

$N\Lambda$ étant l'épaisseur totale du superréseau, il s'agit, si N est grand, de pics extrêmement fins espacés d'une grandeur qui est reliée à l'inverse de la modulation chimique du superréseau. Il est à noter que l'un des pics se situe en $\bar{q} = (n_A + n_B)2\pi/\Lambda = 2\pi/\bar{d}$, où $\bar{d} = (n_A d_A + n_B d_B)/(n_A + n_B)$ est l'espacement moyen entre plans atomiques du superréseau.

$$\bullet \quad |F(\mathbf{q})|^2 = f_A^2 L_A(\mathbf{q}) + f_B^2 L_B(\mathbf{q}) + 2f_A f_B \sqrt{L_A(\mathbf{q})L_B(\mathbf{q})} \cos(\mathbf{q}\Lambda / 2)$$

est la somme de trois termes. Les deux premiers termes (figure II-12 (a) et (b)) présentent des maxima aux positions $m\mathbf{q}_A = m2\pi/d_A$ et $m\mathbf{q}_B = m2\pi/d_B$ correspondant aux pics de Bragg des matériaux A et B massifs ; m est l'ordre de la réflexion. Les largeurs à mi-hauteur sont de l'ordre de $2\pi/n_A d_A$ et $2\pi/n_B d_B$, ce qui signifie que ces fonctions sont beaucoup plus larges que les pics de $|S(\mathbf{q})|^2$ puisque $N\Lambda \gg n_v d_v$. Le troisième terme est un terme croisé qui présente des maxima situés entre $m\mathbf{q}_A$ et $m\mathbf{q}_B$.

Si n_A et n_B sont tous deux assez importants et d_A et d_B assez différents, les fonctions L_A et L_B présentent des pics fins qui se recouvrent peu ; le terme croisé est peu important et $|F(\mathbf{q})|^2$ se manifeste par des groupes de doubles pics situés en $m\mathbf{q}_A$ et $m\mathbf{q}_B$.

En revanche, si n_A et n_B sont petits et d_A et d_B assez proches, L_A et L_B se recouvrent fortement et $|F(\mathbf{q})|^2$ présente des pics larges dont les maxima se situent entre $m\mathbf{q}_A$ et $m\mathbf{q}_B$.

Il résulte dans ce cas que le spectre total correspond au produit d'enveloppes larges ($|F(\mathbf{q})|^2$) par une fonction de type "peigne" ($|S(\mathbf{q})|^2$), dont certaines composantes sont situées en $m\bar{q}$, c'est-à-dire au voisinage des maxima des enveloppes : on observe alors (figure II-12 (d)) des pics dits "principaux" centrés en $m\bar{q} = m2\pi/\bar{d}$, entourés de satellites dits de surstructure espacés de $2\pi/\Lambda$ qui s'étendent d'autant plus loin que les épaisseurs des couches sont faibles. Les positions exactes des maxima des enveloppes dépendent des épaisseurs relatives des couches et des amplitudes de diffusion atomique de leurs constituants.

En fait, les superréseaux de terres rares ne se résument pas à un simple empilement de plans atomiques comme nous l'avons supposé précédemment, mais il faut prendre en compte la structure cristalline sous-jacente.

Dans les superréseaux de terres rares, le réseau cristallographique est hexagonal compact, ce qui correspond à la succession de plans A/B/A/B... selon l'axe c . Les distances entre plans d_A et d_B évoquées dans le paragraphe précédent sont donc moitiés des valeurs des paramètres c_A et c_B . En raison de l'épitaxie, les paramètres a sont supposés identiques dans chacune des couches.

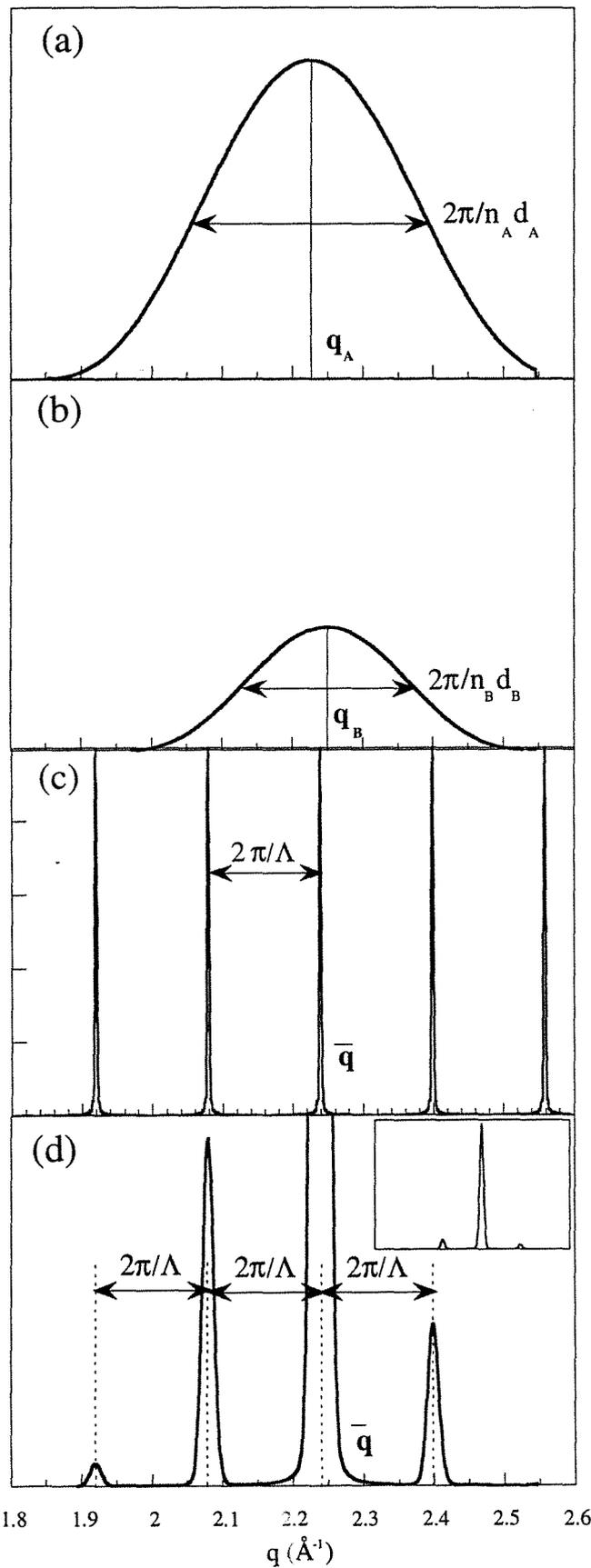


Fig. II-12 : principe de l'obtention du spectre de diffraction de rayons X pour un superréseau Dy/Er. (a) : $L_A(q)$; (b) : $L_B(q)$; (c) : $(S(q))^2$; (d) : spectre total.

Dans ce cas, le résultat trouvé précédemment se généralise en chaque noeud du réseau réciproque de facteur de structure non nul (figure II-13).

Ainsi, aux noeuds $(000t)$, avec t pair, apparaissent des pics principaux en $q_z = 2t\pi/\bar{d}$, entourés de satellites séparés de $2\pi/\Lambda$ le long de la direction de modulation ; les satellites d'ordre p sont indiqués $(000t)^{p+}$ ou $(000t)^{p-}$ selon qu'ils sont situés en un vecteur d'onde q supérieur ou inférieur à celui du pic principal. Les réflexions $(000t)$ avec t impair n'apparaissent pas car il s'agit de raies interdites du réseau hexagonal compact.

En revanche, il apparaît de nouveaux groupes de pics principaux et de satellites le long de c^* aux noeuds $(10\bar{1}0)$, $(10\bar{1}1)$ et $(10\bar{1}2)$ du réseau réciproque.

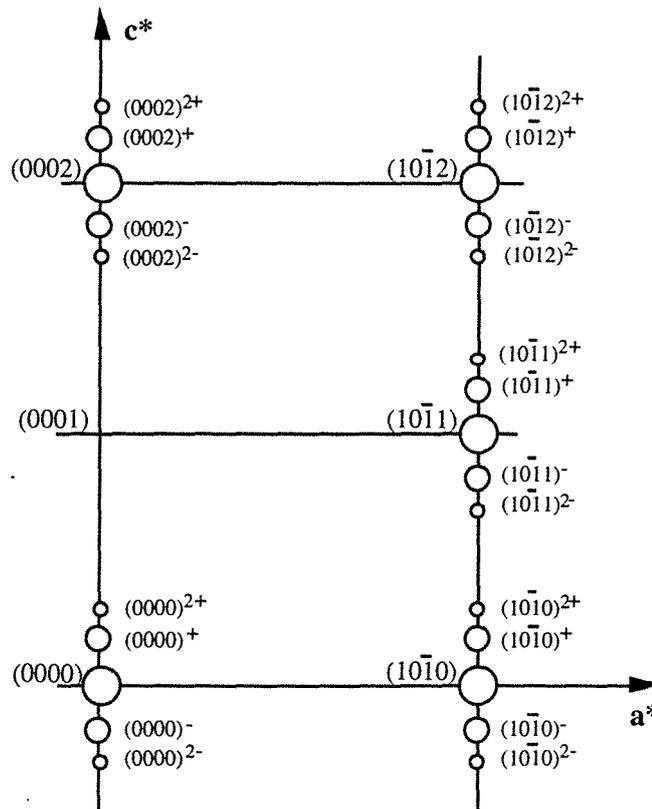


Fig. II-13 : distribution aux noeuds du réseau réciproque des intensités RX diffractées par un superréseau .

L'intensité aux différents noeuds s'écrit : $I(\mathbf{q}) \propto |f(\mathbf{q} - \mathbf{q}_0)|^2 |G_{hkl}|^2$

où G_{hkl} est le facteur de structure géométrique et $f(\mathbf{q} - \mathbf{q}_0)$ est calculé avec les amplitudes de diffusion $f_A(\mathbf{q})$ et $f_B(\mathbf{q})$.

Peu de noeuds du réseau réciproque sont toutefois accessibles car il serait pour cela nécessaire que le faisceau incident ou réfléchi traverse le substrat, ce qui est impossible en raison de l'absorption. L'exploration autour de noeuds du réseau réciproque autres que $(0002t)$ est beaucoup plus aisée en diffraction neutronique où les neutrons sont peu absorbés par la matière.

3. Etudes des propriétés magnétiques

Les propriétés magnétiques des films et superréseaux de terres rares ont été étudiées à l'aide de deux techniques complémentaires : les mesures d'aimantation et les expériences de diffraction de neutrons.

Les mesures d'aimantation (paragraphe 3.1) constituent des mesures *macroscopiques* du magnétisme. Elles permettent d'étudier son évolution sous champ magnétique de façon simple et sur des instruments facilement accessibles. Elles sont riches d'enseignement mais présentent l'inconvénient de nécessiter l'application d'un champ magnétique et d'intégrer tous les phénomènes présents, ce qui n'est pas sans difficulté d'interprétation lorsque le système est inhomogène et qu'il donne lieu à des phénomènes complexes.

Les expériences de diffraction de neutrons (paragraphe 3.2) fournissent des renseignements *microscopiques* et différenciés puisque chaque phase magnétique présente son propre spectre, caractéristique des corrélations entre spins dans la phase. Ce sont des expériences réalisées le plus souvent sous champ nul, ce qui permet de caractériser les phases magnétiques sans perturbation extérieure. Des renseignements complémentaires peuvent être obtenus sous champ et avec la technique de diffraction de neutrons polarisés avec analyse de polarisation. Les expériences de diffraction de neutrons sont plus difficiles à mettre en oeuvre mais se sont avérées indispensables pour la compréhension du magnétisme des films et superréseaux de terres rares.

3.1 Mesures d'aimantation

Les mesures d'aimantation ont été réalisées à l'aide du magnétomètre à SQUID Quantum Design MPMS du service commun de magnétisme de l'Université Henri Poincaré, Nancy I.

Il s'agit d'un magnétomètre équipé d'une bobine supraconductrice pouvant développer un champ magnétique vertical de 7 teslas, ce qui s'avère être suffisant pour l'étude des terres rares. Les mesures peuvent être effectuées en température variable entre 1.5 K et 400 K, mais les données obtenues en dessous de 10 K, perturbées par le niobium supraconducteur, se sont avérées inexploitable. Le magnétomètre que nous avons utilisé est un appareil récent, piloté par un ordinateur de type PC.

Pour situer les transitions magnétiques, nous avons effectué des mesures en refroidissant l'échantillon sous champ constant (FC) ou en augmentant sa température sous champ constant, après refroidissement en champ nul (ZFC). Les études plus précises des cycles ont été effectuées, le plus souvent en régénérant l'échantillon entre chaque cycle, c'est-à-

dire en le portant au-dessus des températures d'ordre magnétique des éléments massifs et en le refroidissant en champ nul.

Les mesures ont été réalisées sur des échantillons orientés. Le champ magnétique a été appliqué dans le plan de l'échantillon, suivant les directions $(11\bar{2}0)$ ou $(10\bar{1}0)$ du réseau hexagonal des terres rares, ou perpendiculairement au plan, suivant la direction (0001) . Les échantillons étaient placés dans une paille peu diamagnétique, dont la contribution était minimisée par la géométrie des deux bobines SQUID du magnétomètre.

Les corrections de diamagnétisme du substrat ont été effectuées. Nous n'avons procédé à aucune correction de champ démagnétisant sur les résultats obtenus lorsque le champ magnétique était appliqué dans le plan de l'échantillon, mais nous avons effectué une correction importante sur les résultats obtenus lorsque le champ magnétique était appliqué perpendiculairement au plan de l'échantillon. Dans cette géométrie, le champ démagnétisant est en principe $-4\pi NM$, où N doit être égal à un pour les films minces. Toutefois, cette valeur s'est avérée trop importante, puisque les cycles d'aimantation présentaient alors une pente négative. Un tel problème fut également rencontré par Borchers *et al.* [57] dans l'étude du système Er/Y. Nous nous sommes donc limités à une correction qui permettait d'obtenir une pente verticale à basse température et nous avons effectué cette même correction à toutes températures.

Notons que la valeur du champ critique qui peut apparaître sur les courbes de première aimantation n'est pas affectée par cette correction.

La détermination de la valeur absolue de l'aimantation s'est avérée assez complexe, puisqu'il fallait connaître exactement la quantité d'échantillon. Or cela est très difficile pour plusieurs raisons :

- (i) il existe une incertitude non négligeable sur les épaisseurs déposées ;
- (ii) l'échantillon analysé par mesures d'aimantation est en fait un morceau découpé de l'échantillon initial. Ses contours ne sont donc souvent pas réguliers et il est difficile d'en déterminer la surface ;
- (iii) la pesée de l'échantillon n'est pas une solution satisfaisante, car le poids du substrat n'est pas directement corrélé à la surface du dépôt. Si le morceau utilisé provient du bord de l'échantillon, une partie de la surface du substrat peut en effet ne pas être recouverte de dépôt. De plus, la découpe peut être en biseaux et la masse mesurée serait alors trop importante ou trop faible par rapport à la surface réelle de dépôt.

Nous avons résolu ce problème en photographiant l'échantillon au microscope. On visualise ainsi parfaitement la surface du dépôt sur un tirage photographique, que l'on peut découper et déterminer par pesée. Il suffit alors de connaître le rapport d'agrandissement entre l'échantillon et la prise de vue pour en déduire la surface réelle du dépôt.

3.2 Diffraction de neutrons

La diffraction de neutrons est une technique exceptionnelle pour l'étude des structures magnétiques, complémentaire aux mesures magnétiques et à la diffraction des rayons X [75-76].

Les neutrons subissent une double diffusion : nucléaire et magnétique. La diffusion nucléaire est le résultat de l'interaction entre le neutron et le noyau atomique. La diffusion magnétique est due à l'interaction entre le spin du neutron et la distribution d'aimantation atomique. Les deux contributions s'ajoutent simplement en intensité lorsque les neutrons incidents sont non polarisés mais présentent des relations de phase lors de mesures en diffraction de neutrons polarisés sur des échantillons monodomains.

Nous rappelons dans la suite de ce paragraphe les phénomènes de diffusion nucléaire, magnétique et de neutrons polarisés. Plutôt que de présenter les formules générales, nous nous limiterons à des rappels simples et utiles pour l'interprétation de la suite de notre travail. Nous décrirons à la fin de cette partie les dispositifs expérimentaux utilisés.

a) Quelques exemples types

Diffusion nucléaire cohérente

La diffusion nucléaire cohérente s'exprime de manière tout à fait similaire à la diffusion de rayons X, puisque le facteur de structure nucléaire s'écrit :

$$f_N(\mathbf{q}) = \sum_i b_i \exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$$

où b_i est l'amplitude de diffusion nucléaire cohérente du $i^{\text{ème}}$ atome situé en \mathbf{r}_i . Contrairement au facteur de diffusion atomique $f_A(\mathbf{q})$ des rayons X, b_i est indépendante de \mathbf{q} , car elle décrit l'interaction entre le neutron et le noyau atomique qui peut être considéré comme ponctuel face à la longueur d'onde du neutron.

L'intensité nucléaire diffusée par un superréseau est tout à fait semblable à l'intensité des rayons X :

$$I_N(\mathbf{q}) = |f_N(\mathbf{q})|^2 |G_{hkl}|^2$$

Il suffit de remplacer dans les formules de diffraction de rayons X les facteurs de diffusion atomique f_A et f_B par les longueurs de diffusions nucléaires cohérentes b_A et b_B . Il apparaît ainsi aux noeuds du réseau réciproque de facteur de structure non nul des

pics de Bragg du réseau moyen, entourés de satellites dus à la modulation chimique le long de (Oz) (figure II-13). En diffusion neutronique, on parlera de pics et de satellites nucléaires.

Diffusion magnétique : composante ferromagnétique

Lorsque les neutrons sont non polarisés et que les moments magnétiques à l'intérieur de chaque couche et d'une couche à l'autre sont parallèles, l'amplitude de diffusion magnétique s'écrit :

$$f_M(\mathbf{q}) = \sum_i p_i^\perp(\mathbf{q}) \exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$$

où l'amplitude de diffusion magnétique $p_i^\perp(\mathbf{q})$ vient remplacer le facteur $f_i(\mathbf{q})$ de la diffusion de rayons X ou le facteur b_i de la diffusion nucléaire. Elle décrit l'interaction du neutron avec le moment de l'atome et est donnée par :

$$p_i^\perp(\mathbf{q}) = \frac{e^2 \gamma}{2mc^2} m^\perp \tilde{f}_i(\mathbf{q}) = (0.27 \cdot 10^{-12} \text{ cm}) g_J J_i \tilde{f}_i(\mathbf{q})$$

où e , m et c sont respectivement la charge de l'électron, la masse de l'électron et la vitesse de la lumière, $\gamma = 1.9$ magnétons nucléaires.

m^\perp est la projection de la composante ferromagnétique sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion.

$\tilde{f}_i(\mathbf{q})$ est un facteur de forme magnétique dû à l'extension spatiale de la densité d'aimantation (c'est-à-dire de la densité d'électrons non appariés) autour de chaque atome. C'est l'équivalent du facteur de forme électronique pour les rayons X.

Notons bien que la relation écrite ci-dessus n'est valable que si tous les moments magnétiques sont parallèles entre eux : dans les couches et d'une couche à l'autre. Le terme "ferromagnétique" est consacré à cette configuration.

De nouveau, l'intensité diffusée par la composante ferromagnétique d'un superréseau s'écrit :

$$I_M(\mathbf{q}) = |f_M(\mathbf{q})|^2 |G_{hkl}|^2$$

Elle est donnée par la formule d'intensité des rayons X ; il suffit de remplacer f_A et f_B par les amplitudes de diffusion magnétiques p_A et p_B , supposées indépendantes de \mathbf{q} . L'apparition d'une composante ferromagnétique se traduit par une augmentation de

l'intensité des pics nucléaires (principaux et satellites), tels qu'ils sont présentés sur le réseau réciproque figure II-13.

Cependant, en raison de la présence dans les formules du terme m^\perp , projection de l'aimantation sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion, la diffusion ferromagnétique n'est pas attendue de façon uniforme sur l'ensemble des réflexions permises du réseau réciproque et l'intensité dépendra considérablement de l'angle entre le vecteur de diffusion et l'orientation de la composante ferromagnétique.

Examinons les situations particulières où le dysprosium et l'erbium seraient ferromagnétiques selon leur direction de facile aimantation :

Intensité diffusée le long de (000t) par le dysprosium ferromagnétique

Les moments magnétiques orientés suivant une direction a du plan de base sont perpendiculaires au vecteur de diffusion. L'intensité ferromagnétique est maximale puisque $m^\perp = m$.

$$I_M(\mathbf{q}) = |f_M(\mathbf{q})|^2 |G_{hkl}|^2$$

Intensité diffusée le long de (10 $\bar{1}$ t) par le dysprosium ferromagnétique

La présence de domaines magnétiques dans le plan de base fait en sorte que le vecteur de diffusion s'écarte en moyenne de la direction perpendiculaire aux moments magnétiques et l'intensité ferromagnétique est réduite. Elle est minimale en (10 $\bar{1}$ 0) (sans être nulle car, pour certains domaines, le vecteur de diffusion n'est pas parallèle à l'aimantation) et s'écrit :

$$I_M(\mathbf{q}) = 1/2 (1 + \cos^2\theta) |f_M(\mathbf{q})|^2 |G_{hkl}|^2$$

où θ est l'angle entre le vecteur de diffusion et la direction (0001). $1/2(1+\cos^2\theta)$ est un facteur à introduire chaque fois que les moments magnétiques sont répartis de façon isotrope (en moyenne) dans le plan de base, la diffusion le long de (000t) constituant le cas particulier où $\theta=0$.

Intensité diffusée le long de (000t) par la composante ferromagnétique de l'erbium

La composante ferromagnétique, orientée suivant l'axe c, est parallèle au vecteur de diffusion. L'intensité ferromagnétique est nulle, indépendamment de la valeur du facteur de structure géométrique.

Intensité diffusée le long de (10 $\bar{1}$ t) par la composante ferromagnétique de l'erbium

La contribution ferromagnétique apparaît avec une intensité d'autant plus grande que l'on se rapproche de (10 $\bar{1}$ 0) : $I_M(\mathbf{q}) = \sin^2\theta |f_M(\mathbf{q})|^2 |G_{hkl}|^2$

$\sin^2\theta$ est le facteur géométrique à introduire chaque fois que les moments magnétiques sont orientés suivant l'axe c.

Ces deux cas particuliers sont schématisés sur les réseaux réciproques de la figure II-14 suivante, où ne sont représentées que les contributions *magnétiques*.

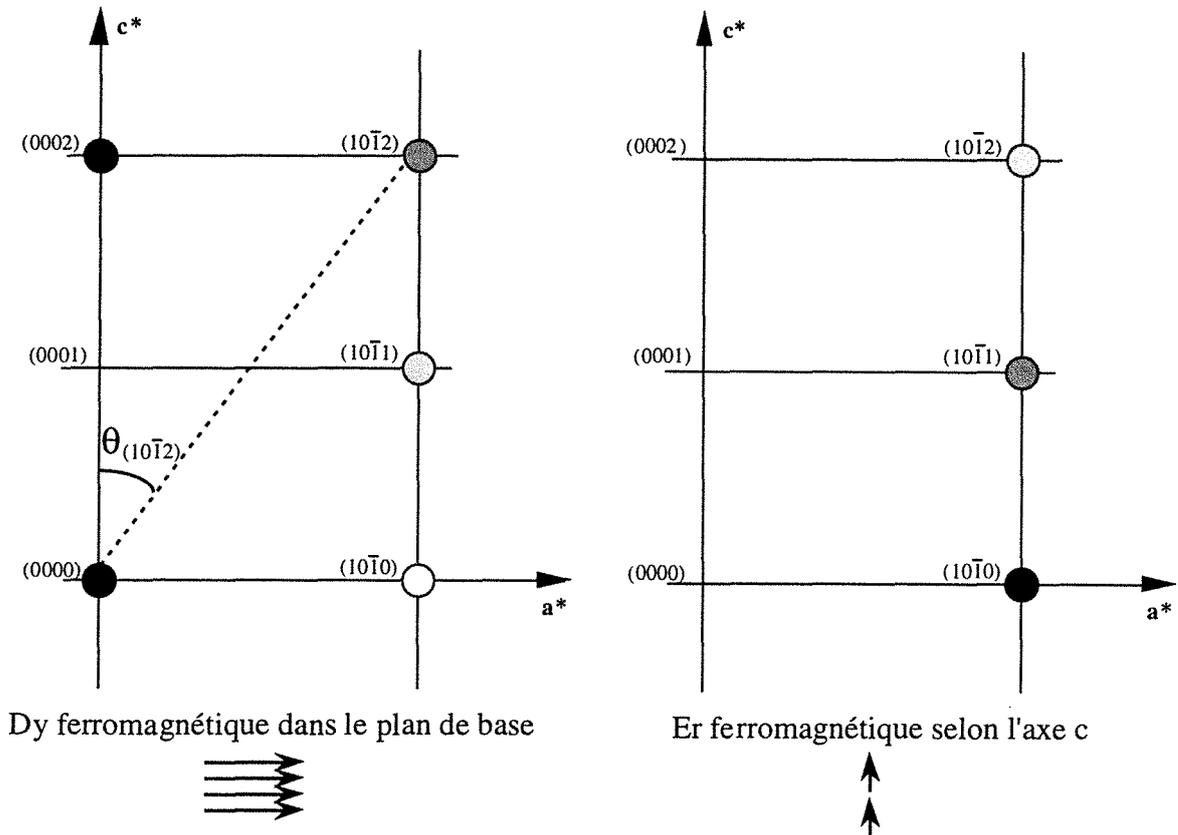


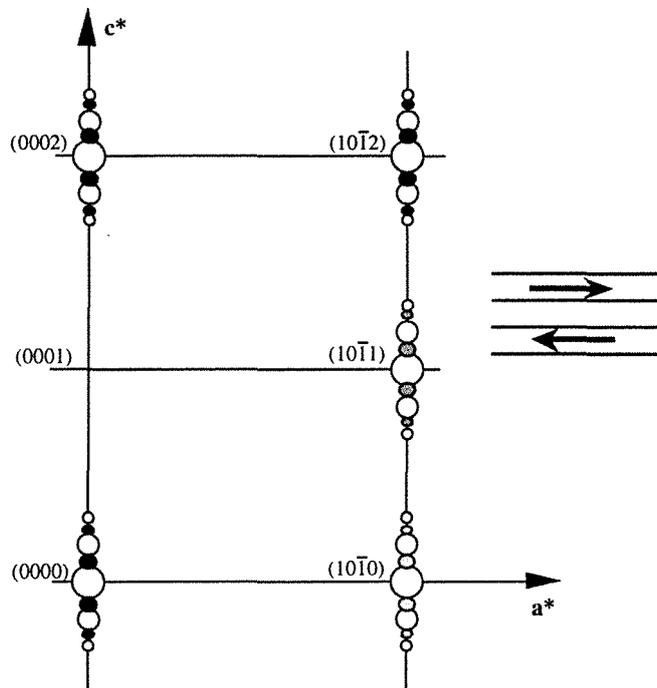
Fig. II-14: distributions des intensités aux noeuds des réseaux réciproques du dysprosium et de l'erbium massifs, dans le cas particulier de l'ordre ferromagnétique selon leur direction de facile aimantation. Seules les contributions magnétiques sont représentées. Les niveaux de gris correspondent aux différences d'intensité dues au facteur géométrique, le noir indiquant l'intensité maximale.

Diffusion magnétique : structure antiferromagnétique

Dans ce mémoire, nous appellerons structure antiferromagnétique dans un superréseau, celle où l'un des éléments est ferromagnétique dans chaque couche, mais où les moments portés par les couches successives sont couplés antiferromagnétiquement à travers l'autre élément (sans préjuger de la structure magnétique de ce dernier).

Le calcul s'effectue en reprenant la formule de l'amplitude de diffusion totale mais en ajoutant un déphasage $\exp(i\pi)$ entre les moments orientés dans le sens opposé à un sens de référence. Le développement est alors tout à fait similaire à celui de

l'antiferromagnétisme classique : l'intensité magnétique apparaît entre le pic nucléaire principal et le premier satellite nucléaire et entre les satellites nucléaires, sans donner aucune contribution aux pics d'origine nucléaire (figure II-15). Comme précédemment, l'intensité des contributions à chaque noeud du réseau réciproque dépend du facteur de structure géométrique G_{hkl} et de l'angle θ suivant les règles énoncées ci-dessus.



Superréseau avec ordre antiferromagnétique dans le plan de base

Fig. II-15 : distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque d'un superréseau, dans le cas particulier d'un couplage antiferromagnétique entre couches ferromagnétiques dans le plan. Les contributions nucléaires sont indiquées par les ronds blancs, les contributions magnétiques sont représentées par les niveaux de gris traduisant les différences d'intensité dues au facteur géométrique. Le noir correspond à l'intensité maximale.

Diffusion magnétique : phase hélicoïdale cohérente

Nous avons vu que l'amplitude totale diffusée par un superréseau est égale à la somme des amplitudes diffusées par chaque plan, multipliées par des facteurs de phase. Ce facteur de phase tout à fait classique est dû à la différence de marche entre les ondes réfléchies sur des plans successifs.

Pour la structure antiferromagnétique, le terme de déphasage supplémentaire entre les moments orientés dans des sens opposés est $\exp(i\pi)$. L'introduction d'un déphasage

supplémentaire entre moments successifs tournés d'un angle α se généralise aux structures hélicoïdales : si deux plans sont séparés de d_A et que les moments forment entre eux un angle α , la différence de phase entre les ondes réfléchies par ces plans est $qd_A + \alpha$, soit aussi $(q+\kappa_A)d_A$ si κ_A est le vecteur d'onde de l'hélice.

Considérons un superréseau constitué de deux matériaux magnétiques A et B dont les moments sont parallèles entre eux dans un même plan atomique et qui développent une structure hélicoïdale de vecteurs d'onde κ_A et κ_B , orientés le long de l'axe c et différents dans les deux éléments. Plaçons-nous dans l'hypothèse où les hélices se propagent de façon cohérente à travers l'ensemble de l'échantillon, c'est-à-dire en relation de phase. Un tel calcul a été développé en détail par Erwin *et al.* [53].

L'amplitude de diffusion magnétique se calque simplement sur celle obtenue en diffraction de rayons X, en effectuant les substitutions qui tiennent compte des amplitudes de diffusion et des nouveaux déphasages entre plans :

Les amplitudes de diffusion f_A et f_B sont remplacés par p_A et p_B .

Les déphasages entre plans successifs qd_A et qd_B sont remplacés par $(q+\kappa_A)d_A$ et $(q+\kappa_B)d_B$.

Le déphasage entre deux bicouches successives $q\Lambda = q(n_A d_A + n_B d_B)$ est remplacé par $(q+\kappa_A)n_A d_A + (q+\kappa_B)n_B d_B = q\Lambda + (\kappa_A n_A + \kappa_B n_B) = q\Lambda + \Phi$.

$$f^+(\mathbf{q}) = \frac{\sin(N(q\Lambda + \Phi)/2)}{\sin((q\Lambda + \Phi)/2)} \left[p_A \frac{\sin((q + \kappa_A)n_A d_A / 2)}{\sin((q + \kappa_A)d_A / 2)} + \exp(i(q\Lambda + \Phi)/2) p_B \frac{\sin((q + \kappa_B)n_B d_B / 2)}{\sin((q + \kappa_B)d_B / 2)} \right]$$

que l'on peut écrire sous la forme :

$$f^+(\mathbf{q}) = S^+(\mathbf{q}) F^+(\mathbf{q})$$

Le signe + provient du fait que la substitution de q par $q+\kappa$ n'est valable que si le spin du neutron est polarisé selon le vecteur d'onde de l'hélice. Dans le cas de neutrons non polarisés et (ou) de structures où la chiralité de l'hélice change d'un domaine à l'autre, la probabilité de trouver le spin polarisé selon κ ou dans la direction opposée est 1/2 ; il faut donc tenir compte d'une deuxième composante $f^-(\mathbf{q})$, où $q-\kappa$ se substitue à q :

$$f^-(\mathbf{q}) = \frac{\sin(N(q\Lambda - \Phi)/2)}{\sin((q\Lambda - \Phi)/2)} \left[p_A \frac{\sin((q - \kappa_A)n_A d_A / 2)}{\sin((q - \kappa_A)d_A / 2)} + \exp(i(q\Lambda - \Phi)/2) p_B \frac{\sin((q - \kappa_B)n_B d_B / 2)}{\sin((q - \kappa_B)d_B / 2)} \right]$$

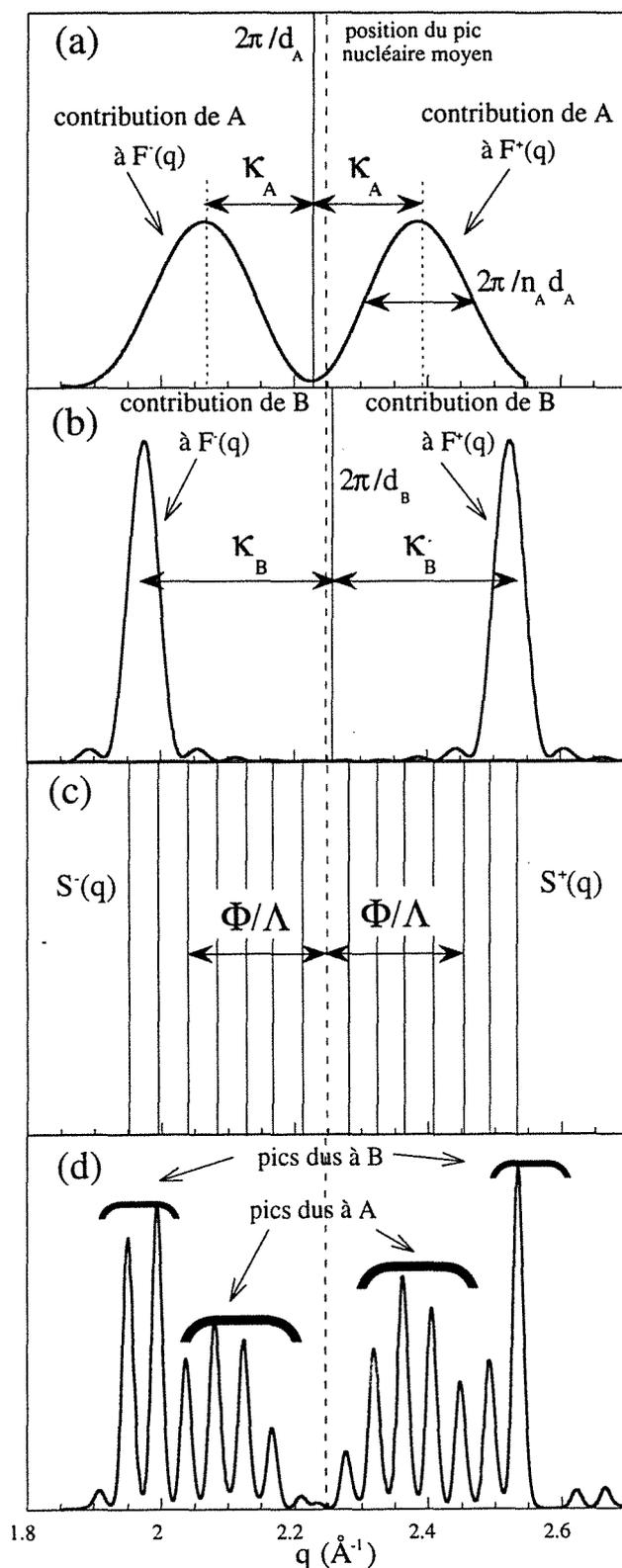


Fig. II-16 : contribution magnétique au spectre de diffraction neutronique pour un superréseau Dy/Er. Les deux éléments sont supposés développer un ordre magnétique hélicoïdal dans le plan de base, de vecteurs d'onde différents. (a) : contribution magnétique d'une couche de Dy ; (b) : contribution magnétique d'une couche d'Er ; (c) : $(S^+(q))^2 + (S^-(q))^2$; (d) : spectre magnétique total. La ligne en trait pointillé indique la position du pic de Bragg nucléaire moyen.

L'intensité magnétique totale est la somme des intensités magnétiques partielles, soit :

$$I_M(\mathbf{q}) \propto \frac{1}{2} \left[|S^+(\mathbf{q})|^2 |F^+(\mathbf{q})|^2 + |S^-(\mathbf{q})|^2 |F^-(\mathbf{q})|^2 \right]$$

La figure de diffraction provenant de la contribution magnétique (figure II-16 (d)) est donc obtenue en suivant la même méthode que pour la diffraction de rayons X et pour la diffraction nucléaire, par convolution des fonctions $F^\pm(\mathbf{q})$ et $S^\pm(\mathbf{q})$:

Les fonctions $F^\pm(\mathbf{q})$ sont chacune la somme de deux termes centrés en $q_A \pm \kappa_A$ et $q_B \pm \kappa_B$ et d'un terme croisé peu important (figure II-16 (a) et (b)). Les deux premiers termes mentionnés se recouvrent peu en raison de la différence significative entre κ_A et κ_B . Il faut noter que $F^+(\mathbf{q})$ et $F^-(\mathbf{q})$ ne sont pas symétriques l'une de l'autre par rapport au pic principal (indiqué en pointillé), puisque les pics situés en $q_A + \kappa_A$ et $q_A - \kappa_A$ sont symétriques par rapport à q_A , de même que les pics en $q_B + \kappa_B$ et $q_B - \kappa_B$ sont symétriques par rapport à q_B .

Les fonctions peignes $S^\pm(\mathbf{q})$ (figure II-16 (c)) sont décalées du peigne initial de $\pm \Phi/\Lambda$, et sont par conséquent symétriques l'une de l'autre par rapport au pic nucléaire principal. La distance entre les dents du peigne est toujours de $2\pi/\Lambda$.

La situation examinée par Erwin *et al.* [53] est celle des superréseaux Dy/Y, où le dysprosium présente un ordre hélicoïdal de vecteur d'onde κ_A dans le plan (0002) et où l'yttrium non magnétique ($p_B = 0$) transmet l'hélice et donc contribue au déphasage total avec son propre vecteur d'onde κ_B .

Dans ces conditions, l'expression de l'amplitude de diffusion magnétique devient :

$$f^\pm(\mathbf{q}) = p_A \left(\frac{\sin(N(q\Lambda \pm \Phi)/2)}{\sin((q\Lambda \pm \Phi)/2)} \right) \left(\frac{\sin((q \pm \kappa_A)n_A d_A / 2)}{\sin((q \pm \kappa_A)d_A / 2)} \right)$$

Le spectre de diffraction présente des pics d'origine magnétique décalés de $\pm \kappa_A$ par rapport à $2\pi/d_A$ et accompagnés de satellites espacés de $2\pi/\Lambda$, dus à la cohérence de l'ordre hélicoïdal.

Notons que la fonction peigne étant décalée par rapport au pic principal, la position du pic d'intensité maximale ne correspond pas exactement au maximum de $F^\pm(\mathbf{q})$ en $q_A \pm \kappa_A$; il serait erroné de déterminer le vecteur d'onde κ_A directement à partir des positions relatives des pics magnétiques d'intensités maximales.

La largeur à mi-hauteur Δq des pics magnétiques permet en revanche de déterminer la longueur L sur laquelle se transmet l'ordre hélicoïdal de façon cohérente :

$$L = \frac{2\pi}{\sqrt{\Delta q^2 - \Delta q_0^2}} \quad \text{où } \Delta q_0 \text{ est la résolution expérimentale.}$$

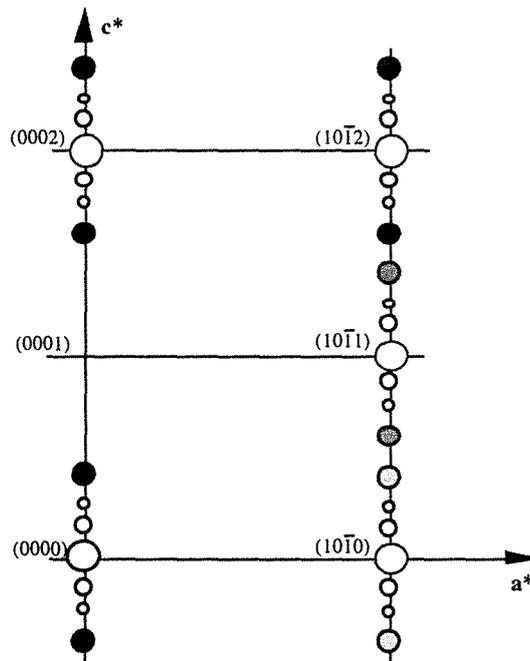
Diffusion magnétique : phase hélicoïdale incohérente

S'il n'y a pas d'interférence entre les diffusions par deux bicouches successives, la fonction peigne disparaît de l'expression de l'amplitude de diffusion magnétique qui devient simplement :

$$f^{\pm}(\mathbf{q}) = P_A \left(\frac{\sin((q \pm \kappa_A)n_A d_A / 2)}{\sin((q \pm \kappa_A)d_A / 2)} \right)$$

On observe dans ce cas un unique pic magnétique de part et d'autre du pic principal. Ces pics sont situés en $q_A \pm \kappa_A$ et il est alors possible de déterminer le vecteur d'onde de l'hélice d'après leurs positions relatives.

Que l'ordre hélicoïdal soit cohérent ou non, la distribution des intensités magnétiques aux noeuds du réseau réciproque suit les mêmes règles que celles évoquées précédemment : les satellites magnétiques apparaissent autour des noeuds de facteur de structure non nul et leur intensité est fonction du facteur de structure géométrique et de l'angle formé par les moments magnétiques et le vecteur de diffusion. Le schéma II-17 suivant représente le cas de l'ordre hélicoïdal incohérent contenu dans le plan de base d'un superréseau.



Ordre hélicoïdal incohérent dans le plan de base d'un superréseau

Fig. II-17 : distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque d'un superréseau dans le cas d'un ordre magnétique incohérent hélicoïdal dans le plan de base. Les contributions nucléaires sont indiquées par les ronds blancs, les contributions magnétiques sont représentées par les niveaux de gris traduisant les différences d'intensité dues au facteur géométrique. Le noir correspond à l'intensité maximale.

b) Diffusion magnétique par le dysprosium et l'erbium massif

Dysprosium massif

Le cas du dysprosium massif (figure II-18) est relativement simple car, quelle que soit la configuration magnétique, les moments sont contenus dans le plan de base. Dans l'état paramagnétique, seules sont présentes les contributions nucléaires (indiquées par les ronds blancs sur la figure II-18).

Quand la température diminue en dessous de T_N se succèdent :

- (ii) l'ordre hélicoïdal dans le plan de base, accompagné de satellites magnétiques le long de la direction de modulation magnétique,
- (iii) la phase ferromagnétique qui se traduit par une composante magnétique superposée aux pics nucléaires.

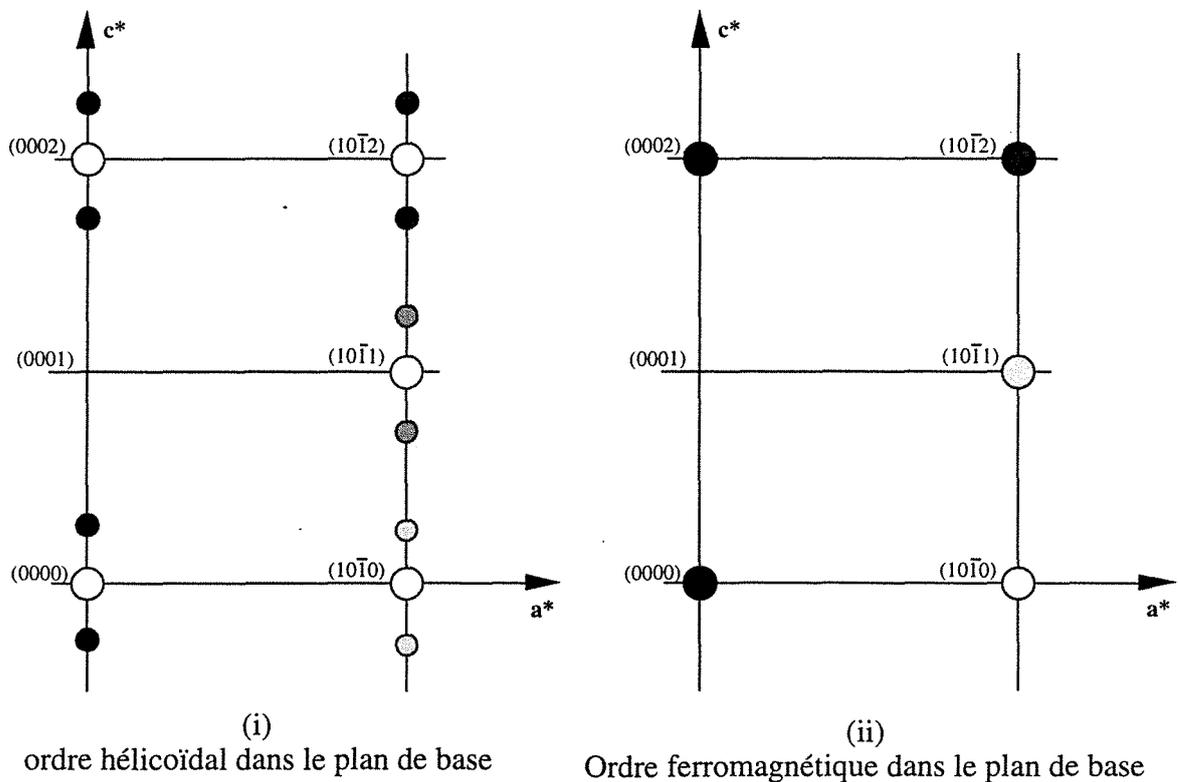


Fig. II-18 : distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque du dysprosium massif lorsqu'il développe (i) un ordre hélicoïdal dans le plan de base (ii) une composante ferromagnétique dans le plan de base. Les contributions nucléaires sont indiquées par les ronds blancs.

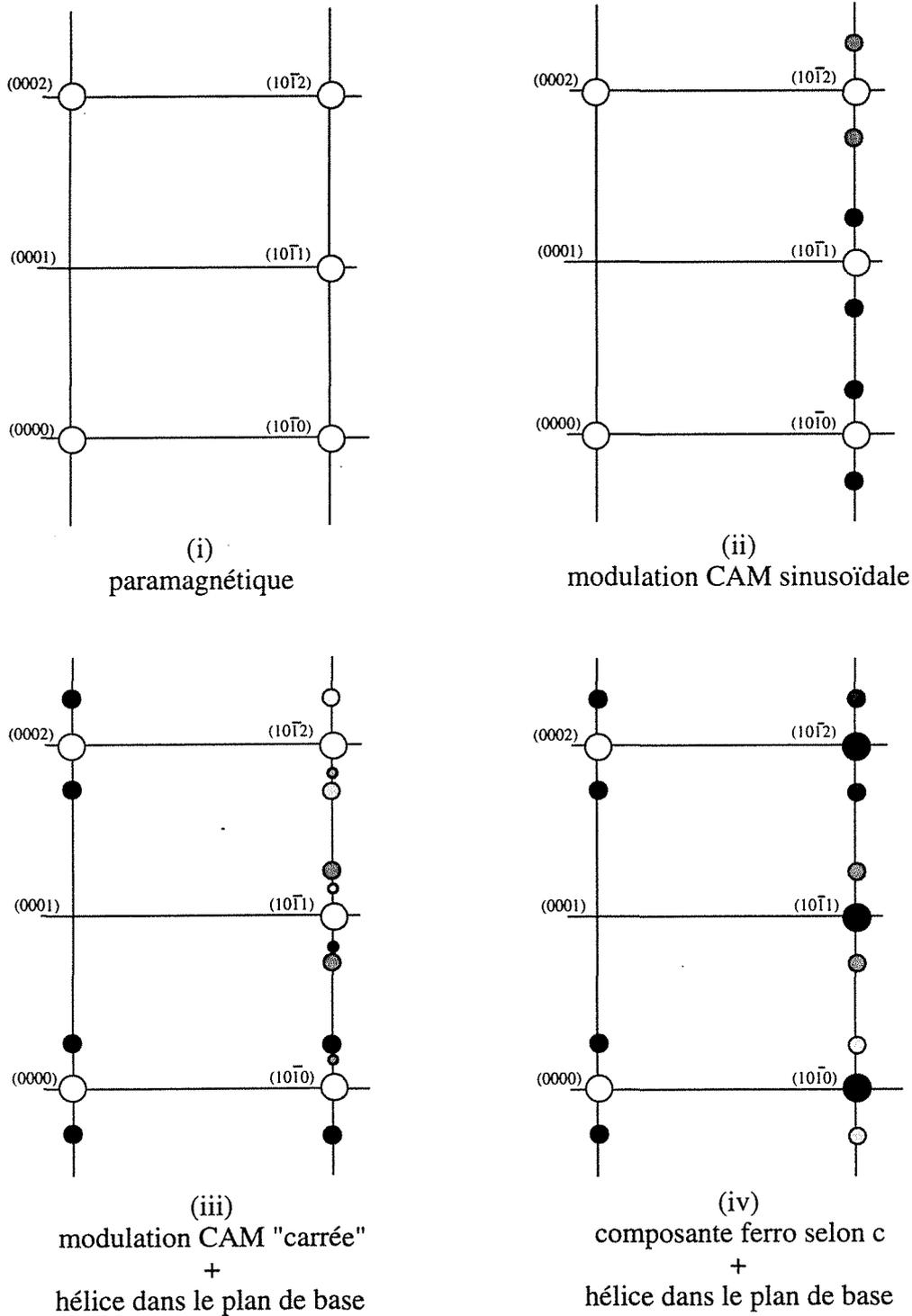


Fig. II-19 : distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque de l'erbium massif (i) paramagnétique, lorsqu'il développe (ii) une modulation sinusoïdale suivant c , (iii) un ordre hélicoïdal dans le plan de base et une modulation carrée suivant c , (iv) un ordre hélicoïdal dans le plan de base et une composante ferromagnétique suivant c . Les contributions nucléaires sont indiquées par les ronds blancs.

Diffusion magnétique : erbium massif

La situation de l'erbium est nettement plus complexe que celle du dysprosium en raison de la superposition d'une composante magnétique dans le plan de base et d'une composante parallèle à l'axe c .

Aussi nous limiterons-nous à présenter et discuter les différentes distributions d'intensités magnétiques qui apparaissent aux noeuds du réseau réciproque lorsque la température est abaissée (figure II-19) :

- (i) La situation paramagnétique se résume aux contributions nucléaires indiquées par les ronds blancs.
- (ii) Le développement de la modulation sinusoïdale selon c se traduit par l'apparition de pics magnétiques le long de $(10\bar{1}1)$ dont les positions relatives correspondent au vecteur d'onde de la modulation. Aucune contribution n'est visible le long de c^* , parallèle au moment magnétique.
- (iii) L'ordre hélicoïdal dans le plan de base donne naissance, comme dans le cas de dysprosium, à des pics magnétiques le long de (0001) et $(10\bar{1}1)$, qui, le long de cette dernière direction, se superposent aux premiers satellites de la modulation selon c . Cette modulation devenant simultanément "carrée", des satellites d'ordre trois émergent également.
- (iv) À basse température, la composante ferromagnétique selon c se superpose aux pics nucléaires le long de la direction $(10\bar{1}1)$. L'ordre hélicoïdal dans le plan de base est inchangé.

Les figures II-18 et II-19 montrent finalement que l'étude du comportement magnétique du dysprosium peut être entièrement menée en explorant le réseau réciproque le long de la direction (0001) alors que la compréhension du magnétisme de l'erbium nécessite une exploration plus complète : le long de (0001) pour collecter des informations sur l'ordre dans le plan de base et le long de $(10\bar{1}1)$ pour déterminer l'ordre selon c .

c) Diffraction de neutrons polarisés appliquée à l'étude de la phase antiferromagnétique

Comme nous le verrons au chapitre IV, une structure antiferromagnétique entre couches de dysprosium apparaît à basse température dans certains superréseaux Dy/Er. Cette phase a donné lieu à une étude de diffraction de neutrons polarisés dont nous rappelons les principes dans ce paragraphe.

Lors d'expériences de diffraction de neutrons polarisés avec analyse de polarisation, quatre intensités peuvent être distinguées : I^{++} , I^{+-} , I^{-+} et I^{--} où le premier des deux signes indique la polarisation du faisceau incident et le second celle du faisceau diffracté. À chacune des ces intensités correspond une amplitude de diffusion ; les quatre amplitudes de diffusion totales peuvent s'écrire sous la forme d'une matrice 2x2 :

$$[f] = \begin{pmatrix} f^{++} & f^{+-} \\ f^{-+} & f^{--} \end{pmatrix}$$

qui, par généralisation, s'écrit : $[f] = \sum_i [U]_i \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$

où $[U]_i$ est l'amplitude de diffusion due à chaque atome et $\exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}_i)$ le déphasage additionnel dû au chemin effectué par chaque onde.

Lorsque la diffusion est purement nucléaire, le facteur de structure atomique s'écrit :

$$[U_N]_i = \begin{pmatrix} U_N^{++} & U_N^{+-} \\ U_N^{-+} & U_N^{--} \end{pmatrix}_i = \begin{pmatrix} b_i & 0 \\ 0 & b_i \end{pmatrix}$$

Cela signifie que la diffusion nucléaire s'effectue sans retournement de spin. Pour cette raison, les pics de Bragg nucléaires et les satellites de surstructure dus à la modulation chimique apparaissent uniquement sur les spectres de diffraction sans retournement de spin.

Lorsque les atomes portent un moment magnétique, l'amplitude de diffusion atomique totale s'écrit : $[U]_i = [U_N]_i + [U_M]_i$

avec :

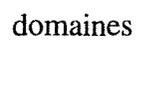
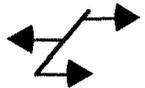
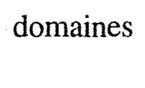
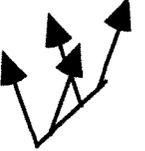
$$[U_M]_i = \begin{pmatrix} U_M^{++} & U_M^{+-} \\ U_M^{-+} & U_M^{--} \end{pmatrix}_i = p_i(q) \begin{pmatrix} m_{iz}^\perp & m_{ix}^\perp + im_{iy}^\perp \\ m_{ix}^\perp - im_{iy}^\perp & -m_{iz}^\perp \end{pmatrix}$$

où m_{ix}^\perp , m_{iy}^\perp et m_{iz}^\perp sont les composantes du vecteur \mathbf{m}_i^\perp , lui-même étant la projection sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion du vecteur unitaire \mathbf{m}_i porté par le moment magnétique. La direction (Oz) est choisie le long de l'axe de quantification.

Lorsque, comme ce sera notre cas, le vecteur de diffusion est perpendiculaire au plan de l'échantillon (plan (xOz)) et que les moments magnétiques sont contenus dans le plan de l'échantillon, $\mathbf{m}_i^\perp = \mathbf{m}_i$ et $m_{iy} = 0$.

D'où :

$$[U]_i = \begin{pmatrix} U^{++} & U^{+-} \\ U^{-+} & U^{--} \end{pmatrix}_i = \begin{pmatrix} b_i + p_i(q)m_{iz} & p_i(q)m_{ix} \\ p_i(q)m_{ix} & b_i - p_i(q)m_{iz} \end{pmatrix}$$

Configurations	I ⁺⁺		I ⁻⁻		I ⁺⁻		I ⁻⁺	
	nucl.	interm.	nucl.	interm.	nucl.	interm.	nucl.	interm.
ferromagnétique selon (Oz) 	$(b+p)^2$	0	$(b-p)^2$	0	0	0	0	0
ferromagnétique selon (Ox) 	b^2	0	b^2	0	p^2	0	p^2	0
ferromagnétique aléatoire domaines 	$b^2+1/2p^2$	0	$b^2+1/2p^2$	0	$1/2p^2$	0	$1/2p^2$	0
antiferromagné. selon (Ox) 	b^2	0	b^2	0	0	p^2	0	p^2
antiferromagné. aléatoire domaines 	b^2	0	b^2	0	$1/2p^2$	$1/2p^2$	$1/2p^2$	$1/2p^2$
ferromagnétique selon (Oz) antiferromagné. selon (Ox) 	$(b+p\cos\theta)^2$	0	$(b-p\cos\theta)^2$	0	0	$(p\sin\theta)^2$	0	$(p\sin\theta)^2$

*valeurs des intensités mesurées aux positions des pics nucléaires et intermédiaires
par diffraction de neutrons polarisés dans le cas de différentes configurations magnétiques*

Les amplitudes de diffusion sans retournement de spin sont donc reliées à l'interaction nucléaire et à la composante de l'aimantation le long de l'axe de quantification, alors que les amplitudes de diffusion avec retournement de spin sont reliées à la composante de l'aimantation perpendiculaire à l'axe de quantification.

Le tableau présenté page précédente résume les résultats de diffraction de neutrons polarisés obtenus dans quelques cas particuliers que nous rencontrerons. Pour chaque configuration sont indiqués les facteurs auxquels sont proportionnelles les différentes intensités et les positions où elles apparaissent : nucléaires, c'est-à-dire sur les pics de Bragg et les pics de surstructure, où intermédiaires, c'est-à-dire entre les pics de Bragg et les premiers satellites et entre les satellites.

d) Dispositifs expérimentaux

L'ensemble des expériences de diffraction de neutrons a été réalisé sur des spectromètres trois axes. Pour les études ne nécessitant pas de neutrons polarisés, nous avons utilisé le spectromètre G4.3 au Laboratoire Léon Brillouin (L.L.B.) du Centre d'Etudes Nucléaires à Saclay et le diffractomètre 3XE du "Missouri Research Reactor" (M.U.R.R.) à Columbia (USA). Les expériences de diffraction de neutrons polarisés avec analyse de polarisation ont été menées à l'aide du spectromètre 4F1 du L.L.B..

Sur G4.3 (figure II-20), la longueur d'onde incidente est de 4.245 Å. Monochromateur et analyseur sont en graphite pyrolytique. Les collimations après le monochromateur, avant l'analyseur et à l'entrée du détecteur sont respectivement de 30', 30' et 60'. La résolution instrumentale est voisine de 0.0073 Å.

Sur 4F1, la longueur d'onde incidente est de 4.488 Å. Les neutrons sont polarisés et analysés par des supermiroirs Co-Ti ou "benders". Un flipper de type Mezei est placé avant l'échantillon et un cryoflipper supraconducteur est placé après. Les rapports de flipping sont de l'ordre de 17.

Pour ces deux instruments, les échantillons peuvent être refroidis jusqu'à 5 K dans un cryogénérateur. Un champ magnétique vertical d'intensité maximale 5.5 kOe peut être appliqué grâce à un électroaimant.

Les caractéristiques et la configuration du spectromètre 3XE du M.U.R.R. sont très voisines de celles de G4.3. La longueur d'onde utilisée est de 2.357 Å et la résolution expérimentale est de 0.014 Å⁻¹.

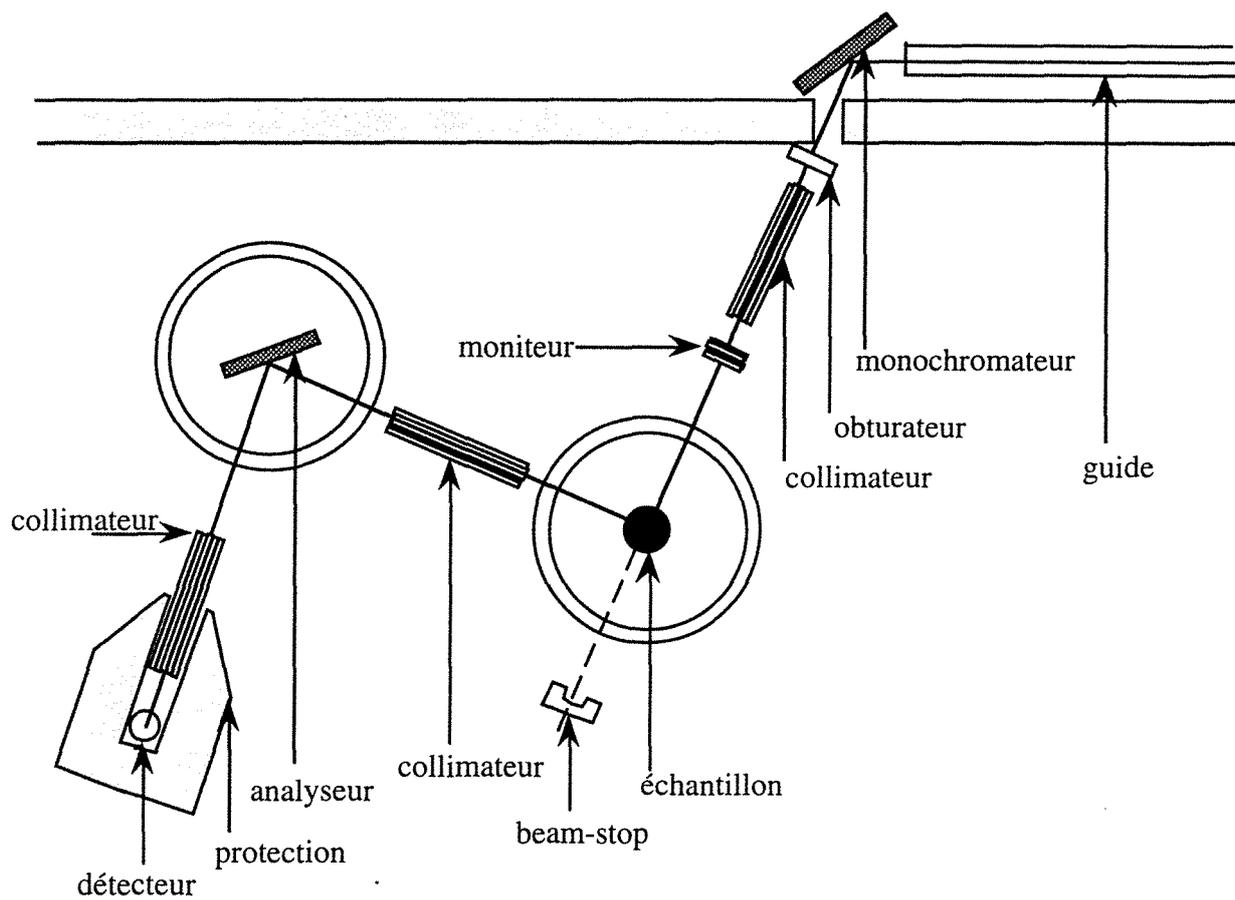
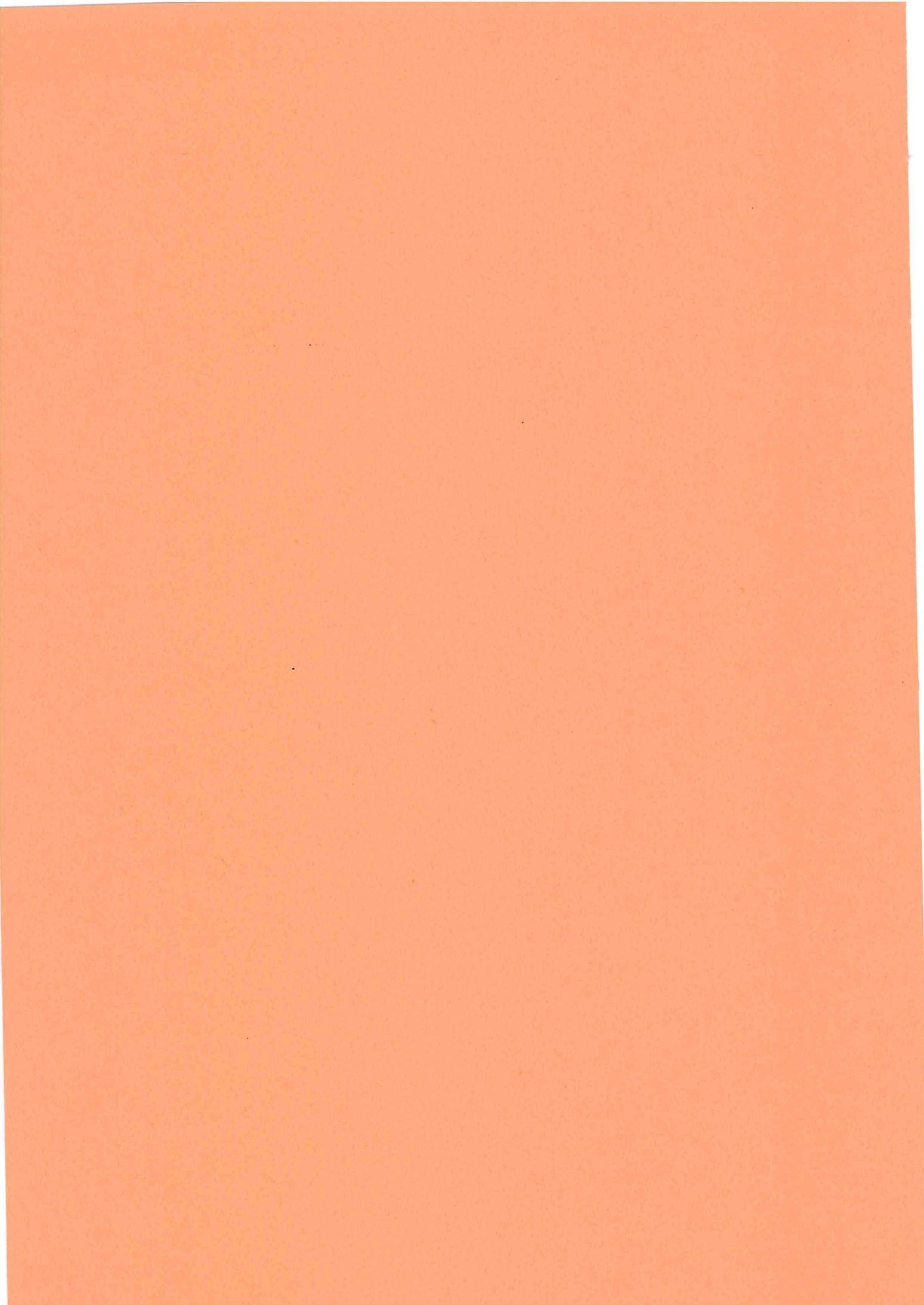


Fig. II-20: schéma du spectromètre trois axes G43 du Laboratoire Léon Brillouin (Saclay).





Chapitre III

Comportement magnétique de films épitaxiés de dysprosium

L'objectif de ce chapitre est l'étude du comportement magnétique de films de dysprosium épitaxiés sur des éléments induisant des déformations de type α opposées, à savoir l'yttrium et l'erbium. Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, l'épitaxie sur l'erbium devrait tendre à contracter le réseau hexagonal du dysprosium dans le plan de base et, par conséquent, à le dilater selon l'axe c ; il s'agit donc d'une déformation analogue à la déformation de type α_2 qui se produit spontanément dans l'élément massif lors de la transition hélicoïdale-ferromagnétique. À l'opposé, l'épitaxie sur l'yttrium devrait tendre à dilater le réseau hexagonal du dysprosium dans le plan de base et à le contracter selon l'axe c ; il s'agit alors d'une déformation opposée à celle qui se produit dans l'élément massif à la température de Curie. Cette étude s'inscrit à la suite de travaux succincts réalisés par Farrow *et al.* [64] sur un film de dysprosium épitaxié entre deux couches d'erbium et par Majkrzak *et al.* [40] sur quatre films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium.

Nous présentons tout d'abord (paragraphe 1) l'étude de l'état cristallin des échantillons par diffraction de rayons X aux grands angles, ce qui a permis de déterminer le paramètre c des différents films de dysprosium et leur état de déformation épitaxiale. Nous abordons ensuite l'étude de leur comportement magnétique proprement dit : celui des films de dysprosium épitaxiés sur yttrium (paragraphe 2) puis celui des films de dysprosium épitaxiés sur erbium (paragraphe 3). Nous terminons par une modélisation permettant d'estimer l'importance des différents effets, y compris ceux liés à l'épitaxie, sur les phénomènes observés (paragraphe 4).

1. Structure cristalline

1.1 Résultats expérimentaux

Deux spectres typiques obtenus pour un film de dysprosium épitaxié entre deux couches de 500 Å d'yttrium et pour un film de dysprosium épitaxié entre deux couches de 1000 Å d'erbium sont présentés respectivement figures III-1 et III-2.

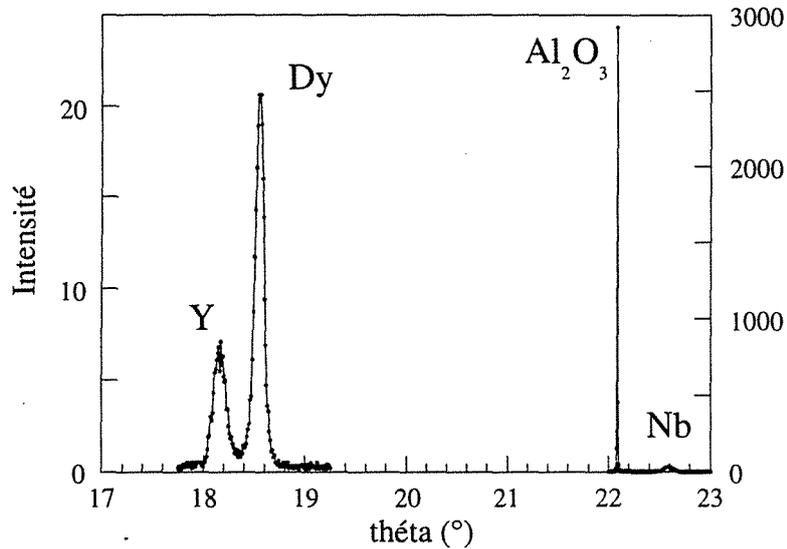


Fig. III-1 : spectre de diffraction de rayons X aux grands angles obtenu pour le film de dysprosium de 650 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium de 500 Å.

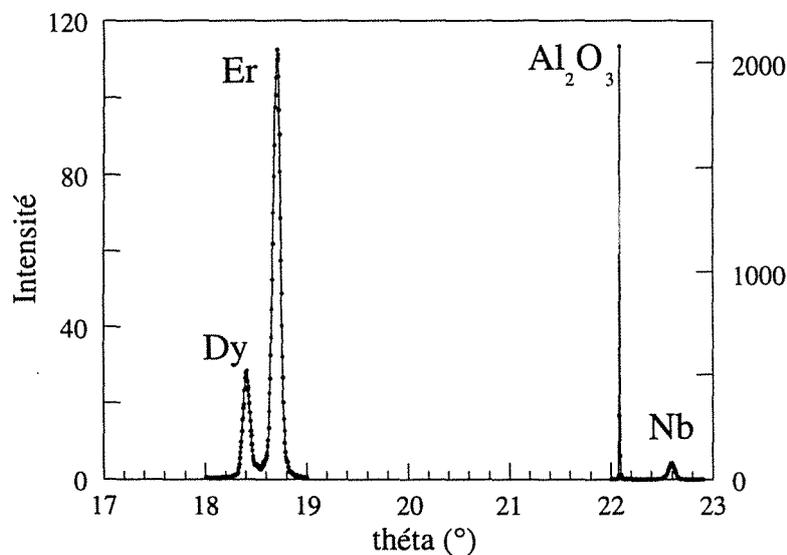


Fig. III-2 : spectre de diffraction de rayons X aux grands angles obtenu pour le film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre deux couches d'erbium de 1000 Å.

Les pics situés en $\theta = 22.086^\circ$ et $\theta = 22.59^\circ$ sur les deux spectres correspondent respectivement aux pics (11 $\bar{2}$ 0) du saphir et (110) du niobium.

Sur la figure III-1, les pics de Bragg (0002) de l'yttrium et du dysprosium sont situés respectivement en $\theta = 18.162^\circ$ et $\theta = 18.548^\circ$.

Le pic de Bragg du dysprosium apparaît à un angle plus petit sur la figure III-2 ($\theta = 18.406^\circ$), ce qui traduit un accroissement de paramètre c. Le pic en $\theta = 18.704^\circ$ correspond au pic de Bragg (0002) de l'erbium.

Les caractéristiques principales des spectres obtenus à température ambiante sur l'ensemble des films de dysprosium épitaxiés sur yttrium et sur erbium sont reportées dans le tableau ci-dessous. Précisons que, dans le cas du système Y/Dy/Y, l'épaisseur des couches d'yttrium entourant le film de dysprosium est de 500 Å, alors que l'épaisseur des couches d'erbium est de 1000 Å pour les échantillons Er/Dy/Er.

Les valeurs correspondant au pic du dysprosium des deux films les plus fins épitaxiés sur erbium n'y figurent pas car l'intensité du pic est trop faible pour que l'ajustement soit satisfaisant.

épaisseur (Å)	Al ₂ O ₃		Dy	
	position θ	position θ	paramètre c	largeur mi-h.
Y/550/Y	22.085	18.559	5.621	0.112
Y/600/Y	22.085	18.525	5.630	0.121
Y/650/Y	22.086	18.548	5.624	0.102
Y/1150/Y	22.084	18.533	5.628	0.080
Y/2000/Y	22.086	18.523	5.631	0.067
Y/2900/Y	22.087	18.521	5.632	0.069
Y/3200/Y	22.085	18.482	5.643	0.071
Er/100/Er	22.085	----	----	----
Er/200/Er	22.087	----	----	----
Er/450/Er	22.084	18.419	5.6617	0.1012
Er/600/Er	22.087	18.406	5.6656	0.0816
Er/3000/Er	22.084	18.455	5.6511	0.0566

En supposant que les substrats utilisés aient des caractéristiques cristallines tout à fait similaires, la dispersion observée sur la position du pic de Bragg du saphir provient uniquement de l'incertitude expérimentale, qui est par conséquent de l'ordre de 0.14‰. La largeur à mi-hauteur de ce pic est de l'ordre de 0.003°. La position du pic de Bragg du dysprosium permet de déterminer le paramètre c du film de dysprosium avec une précision de 0.13‰, dont l'évolution est discutée au paragraphe 1.2 suivant.

La longueur de cohérence cristalline L du film de dysprosium peut être estimée à partir de la largeur à mi-hauteur $\Delta\theta$ à laquelle elle est reliée par :

$$L = \frac{\lambda}{2\cos\theta\sqrt{\Delta\theta^2 - \Delta\theta_0^2}}$$

où λ est la longueur d'onde du faisceau incident, et $\Delta\theta_0$ est la résolution expérimentale, déterminée d'après la largeur à mi-hauteur du pic du saphir supposé de parfaite qualité cristallographique. Les longueurs de cohérence cristalline en fonction de l'épaisseur de dysprosium sont reportées figure III-3.

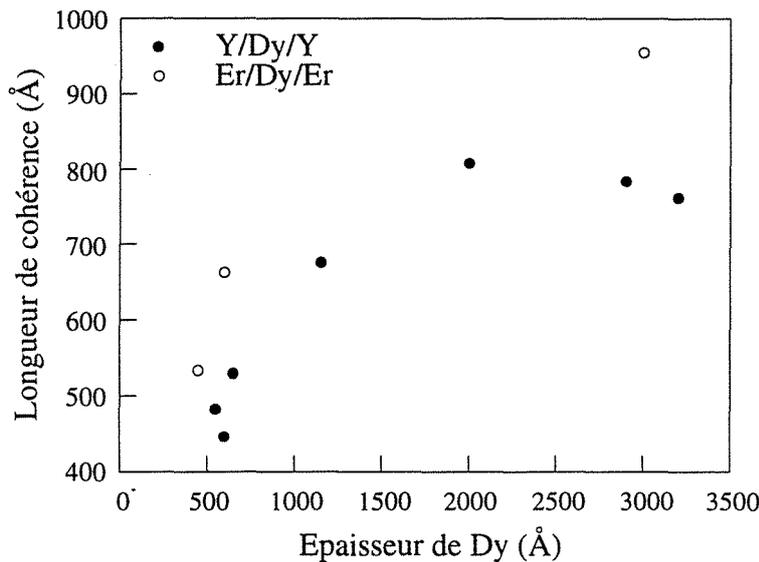


Fig. III-3: évolutions de la longueur de cohérence cristalline des films de dysprosium épitaxiés entre yttrium et erbium en fonction de l'épaisseur de dysprosium.

La longueur de cohérence cristalline des films d'épaisseur inférieure à 800 Å est du même ordre de grandeur que l'épaisseur, ce qui révèle une grande qualité cristallographique parallèlement à la direction de croissance. Lorsque l'épaisseur dépasse 800 Å, la longueur de cohérence devient inférieure à l'épaisseur du film et sature à 800 Å pour les épaisseurs supérieures à 2000 Å.

1.2 Etat de déformation des films de dysprosium

Afin d'estimer l'état de déformation des films de dysprosium, nous avons utilisé un modèle élastique idéal, où l'échantillon est simplement considéré comme la superposition d'une couche A de dysprosium (d'épaisseur l_A) et d'une couche B d'erbium ou de d'yttrium (d'épaisseur l_B) ; il serait équivalent d'alterner des couches de A et des couches de B, pourvu que les épaisseurs cumulées restent les mêmes. L'épitaxie supposée parfaite

entre les deux couches conduit à l'égalité de leurs paramètres dans le plan de base, par augmentation du paramètre a de l'élément de paramètre initial plus petit, et diminution du paramètre a de l'autre élément. Les paramètres, obtenus en minimisant l'énergie élastique par rapport aux déformations dans les deux éléments (voir annexe A), s'écrivent :

$$a_A = a_A^\circ \left(1 + \frac{(a_B^\circ - a_A^\circ)}{\langle a^\circ \rangle} \frac{l_B}{l_A + l_B} \right) = a_B = a_B^\circ \left(1 - \frac{(a_B^\circ - a_A^\circ)}{\langle a^\circ \rangle} \frac{l_A}{l_A + l_B} \right)$$

où a_A° et a_B° sont les paramètres des éléments massifs et $\langle a^\circ \rangle$ est la moyenne des paramètres a° des éléments massifs.

En vertu des lois d'élasticité, les paramètres c sont modifiés selon les relations :

$$c_A = c_A^\circ \left(1 - 2 \frac{(a_A - a_A^\circ)}{a_A} \frac{C_{13}}{C_{33}} \right)$$

$$c_B = c_B^\circ \left(1 + 2 \frac{(a_B - a_B^\circ)}{a_B} \frac{C_{13}}{C_{33}} \right)$$

où c_A° et c_B° sont les paramètres des éléments massifs et C_{13} et C_{33} sont les constantes élastiques supposées communes aux deux éléments.

À partir des paramètres ainsi déterminés, il est immédiat de calculer les déformations dues à l'épitaixie définies dans le repère cartésien : ε°_{11} (selon a) et ε°_{33} (selon c), ainsi que celles définies par Callen et Callen [29] (page 35) : $\varepsilon^{\circ\alpha,1}$ et $\varepsilon^{\circ\alpha,2}$; $\varepsilon^{\circ\gamma}$ est nulle car l'épitaixie n'affecte pas la symétrie hexagonale. Les résultats des calculs sont reportés dans le tableau suivant en fonction du rapport $\rho_{Dy} = l_{Dy}/(l_B + l_{Dy})$:

	ρ_{Dy}	a_{Dy} (Å)	c_{Dy} (Å)	ε°_{11} (10 ⁻²)	ε°_{33} (10 ⁻²)	$\varepsilon^{\circ\alpha,1}$ (10 ⁻²)	$\varepsilon^{\circ\alpha,2}$ (10 ⁻²)
Y/Dy/Y	0.2	3.638	5.616	1.26	-0.60	1.91	-1.07
	0.4	3.327	5.624	0.94	-0.45	1.44	-0.81
	0.6	3.616	5.633	0.63	-0.30	0.96	-0.54
	0.8	3.604	5.641	0.31	-0.15	0.48	-0.27
Dy massif		3.593	5.650	0	0	0	0
Er/Dy/Er	0.8	3.586	5.655	-0.18	0.09	-0.28	0.16
	0.6	3.580	5.660	-0.37	0.18	-0.56	0.31
	0.4	3.573	5.665	-0.55	0.26	-0.84	0.47
	0.2	3.566	5.670	-0.74	0.35	-1.12	0.63

Il apparaît que l'épitaxie d'un film de dysprosium sur erbium conduit à des déformations $\varepsilon^{\circ\alpha,1}$ négative et $\varepsilon^{\circ\alpha,2}$ positive, c'est-à-dire de mêmes signes que les coefficients de magnétostriction λ_1 et λ_2 , caractéristiques des déformations spontanées qui ont lieu dans l'élément massif à la transition ferromagnétique.

En revanche, un film de dysprosium épitaxié sur yttrium subit des déformations $\varepsilon^{\circ\alpha,1}$ positive et $\varepsilon^{\circ\alpha,2}$ négative, de signes opposés aux coefficients de magnétostriction correspondant.

Les évolutions théoriques des paramètres a et c en fonction de l'épaisseur du film de dysprosium sont présentées figure III-4, où ils sont comparés aux paramètres c déterminés expérimentalement (ronds blancs et ronds noirs).

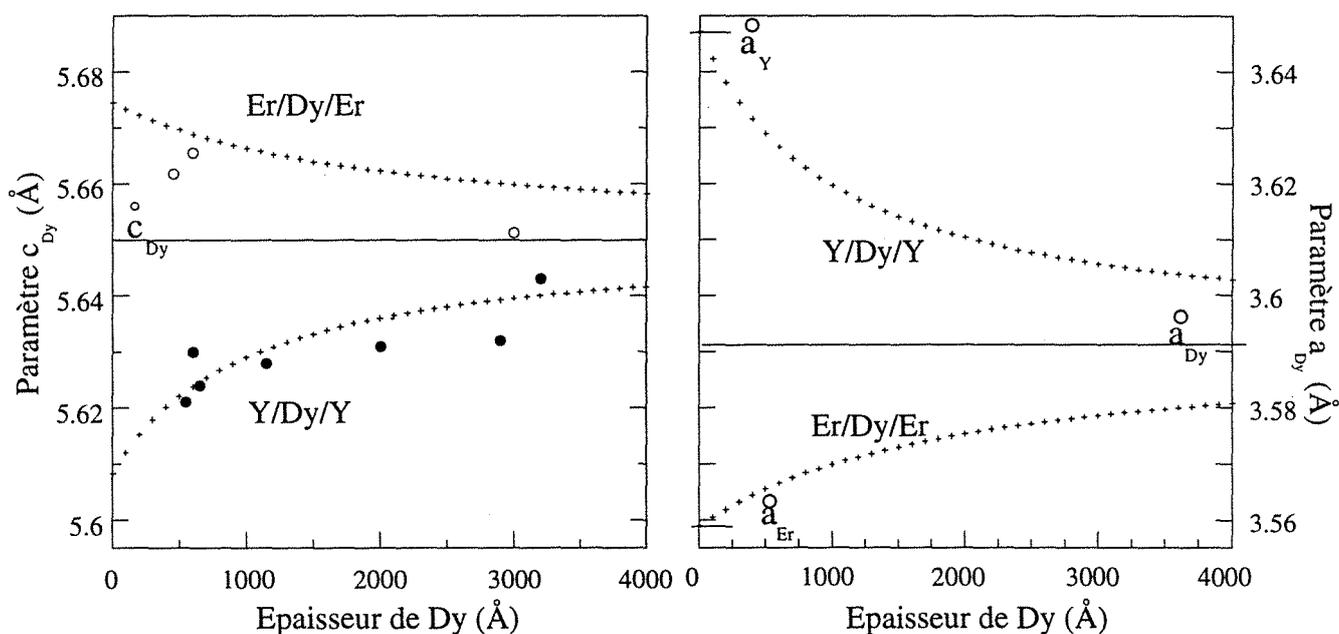


Fig. III-4 : évolutions expérimentales du paramètre c des films de dysprosium épitaxiés entre erbium (ronds blancs) et entre yttrium (ronds noirs) en fonction de l'épaisseur de dysprosium. Les croix correspondent aux évolutions théoriques des paramètres c (à gauche) et a (à droite).

Le paramètre a théorique du film de dysprosium tend vers la valeur de l'élément massif pour les grandes épaisseurs de dysprosium, et vers le paramètre de l'élément sur lequel il est épitaxié pour les faibles épaisseurs. Parallèlement, le paramètre c tend vers le paramètre du dysprosium massif pour les grandes épaisseurs de dysprosium et s'en écarte lorsque l'épaisseur de dysprosium diminue : il décroît pour le système Y/Dy/Y et croît pour le système Er/Dy/Er.

L'évolution des paramètres expérimentaux est tout à fait conforme au modèle élastique idéal. Les valeurs expérimentales sont seulement légèrement plus proches du paramètre de l'élément massif, ce qui traduit un effet de relaxation des contraintes, en particulier pour les films épitaxiés sur erbium. Notons en outre que les paramètres des films de 600 Å et 3200 Å épitaxiés sur yttrium semblent élevés par rapport à la tendance générale. Cette particularité peut être due au fait qu'ils ont été élaborés à partir de substrats d'une provenance différente de ceux utilisés pour les autres films.

Puisque les évolutions attendues sont liées aux états de contrainte du film de dysprosium, les échantillons seront caractérisés par le paramètre c expérimental plutôt que par l'épaisseur, les valeurs correspondant aux films de 100 Å et 200 Å épitaxiés sur erbium étant respectivement extrapolées à 5.67 Å et 5.668 Å.

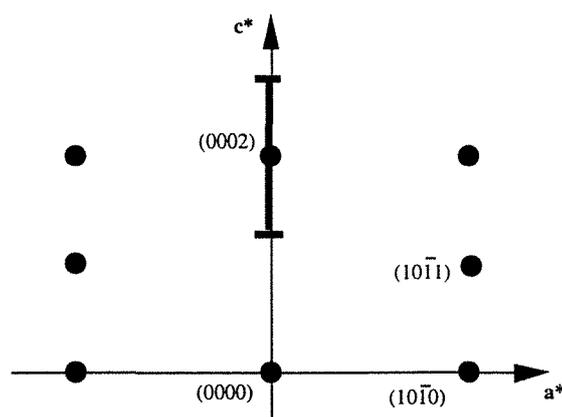
2. Comportement magnétique de films de dysprosium épitaxiés entre deux films d'yttrium

L'étude du comportement magnétique des films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium a été menée par diffraction de neutrons et par mesures d'aimantation. Les mesures d'aimantation ont été réalisées de façon systématique sur l'ensemble des sept échantillons dont les caractéristiques cristallines ont été présentées au paragraphe 1. Les expériences de diffraction de neutrons ont été conduites sur deux échantillons de comportements magnétiques extrêmes (Y/Dy 600 Å/Y et Y/Dy 3200 Å/Y), ce qui a permis d'identifier les phases magnétiques et les transitions décelées par mesures d'aimantation.

Par souci de clarté, nous présentons tout d'abord les résultats de diffraction neutronique obtenus le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) (paragraphe 2.1). Les résultats de mesures d'aimantation sont abordés par la suite (paragraphe 2.2).

2.1 Etude par diffraction neutronique

Les expériences réalisées correspondent à l'exploration du réseau réciproque le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) :



Comportement d'un film de dysprosium de 3200 Å épitaxié sur yttrium

Une série de spectres de diffraction neutronique obtenus à partir de l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y est présentée figure III-5.

On observe à température ambiante un pic intense situé en $q = 2.225 \text{ \AA}^{-1}$, correspondant au pic de Bragg (0002) du dysprosium, et un pic d'yttrium de très faible intensité en $q = 2.186 \text{ \AA}^{-1}$.

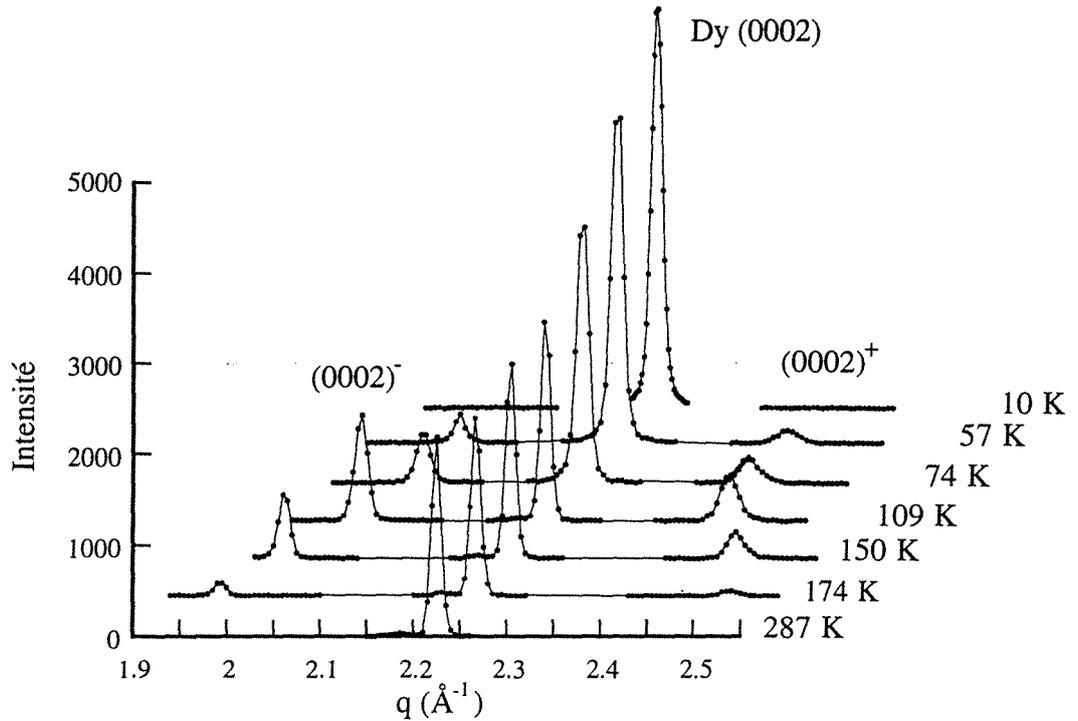


Fig. III-5 : spectres de diffraction de neutrons obtenus à différentes températures pour le film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre yttrium.

Les positions des pics indiquent que le rapport du paramètre c de l'yttrium sur celui du dysprosium est de 1.0178, alors qu'il est égal à 1.0152 dans les éléments massifs, ce qui va dans le sens d'une légère compression du réseau du dysprosium selon la direction (0001), en accord avec les résultats obtenus par diffraction de rayons X.

En dessous d'environ 180 K, deux pics supplémentaires $(0002)^-$ et $(0002)^+$ apparaissent ; à 174 K, ils se situent respectivement en $q = 1.953 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.497 \text{ \AA}^{-1}$. Ils sont de nature purement magnétique et traduisent l'ordre hélicoïdal dans le plan de base du dysprosium. Lorsque la température diminue de 170 K à 80 K, ces pics se rapprochent du pic du dysprosium et leur intensité croît alors que, parallèlement, aucune variation de l'intensité du pic de Bragg du dysprosium n'est observée.

À partir de 80 K, on observe une diminution de l'intensité des satellites magnétiques au profit d'une contribution magnétique sur le pic de Bragg du dysprosium. Cela traduit la transition de la phase hélicoïdale à la phase ferromagnétique.

Les évolutions thermiques des intensités intégrées du pic de Bragg (0002) et des satellites magnétiques $(0002)^+$ et $(0002)^-$ sont récapitulées à la figure III-6.

Elles montrent la disparition de l'ordre hélicoïdal et la transition vers un état ferromagnétique sous champ nul. Il apparaît cependant une coexistence des deux phases

sur un domaine de 30 K : l'ordre ferromagnétique s'établit à 80 K alors que les satellites magnétiques ne disparaissent complètement qu'à 50 K.

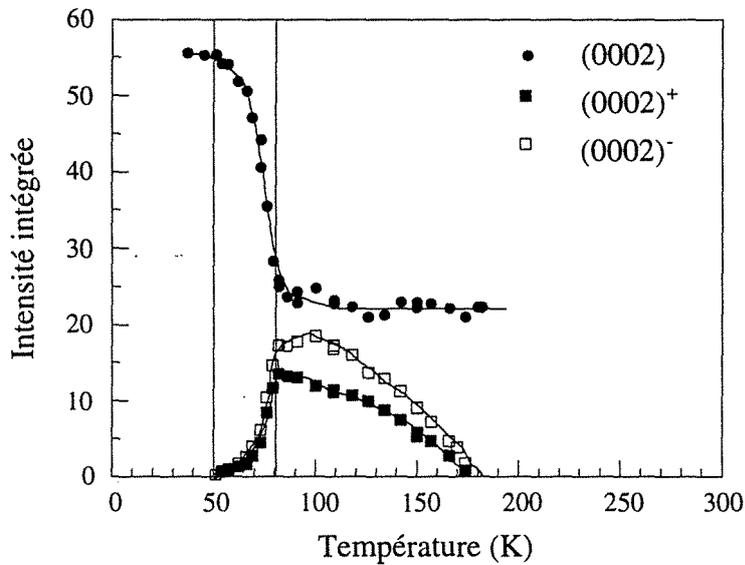


Fig. III-6 : évolutions thermiques des intensités intégrées du pic de Bragg (0002) et des satellites magnétiques (0002)⁺ et (0002)⁻, mesurées par diffraction de neutrons pour l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y.

L'évolution thermique du paramètre c, déterminée d'après la position du pic de Bragg du dysprosium, est présentée à la figure III-7.

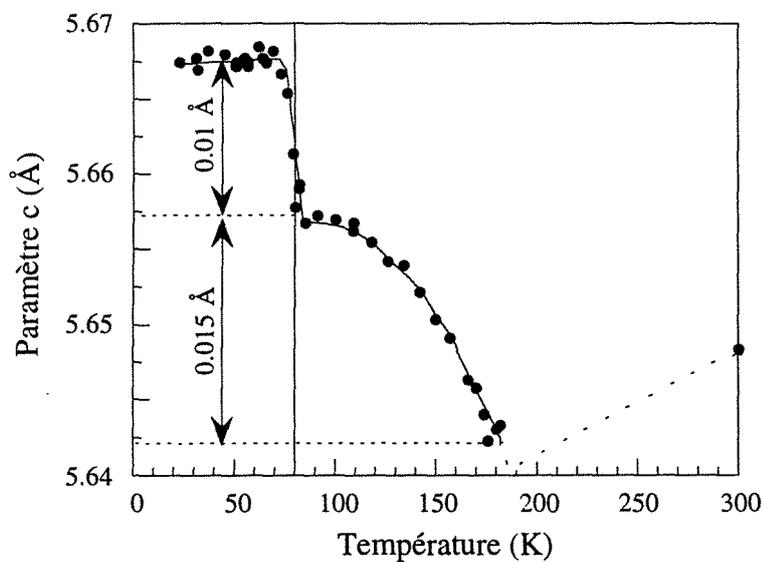


Fig. III-7 : évolution thermique du paramètre c, déterminé par diffraction de neutrons, du film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre yttrium.

La variation se rapproche fortement de celle rencontrée dans le matériau massif reportée à la figure I-10 [7]. Comme on l'attend du phénomène de dilatation thermique, le paramètre décroît depuis la température ambiante jusqu'à environ 180 K avec une pente d'environ $-0.007 \text{ \AA}/100 \text{ K}$. Il augmente ensuite, rapidement puis plus lentement, jusqu'à environ 80 K, où il subit une expansion discontinue de 0.18%. Il reste alors constant jusqu'aux plus basses températures.

Cette évolution est cohérente avec le développement de l'ordre hélicoïdal entre 180 K et 80 K puis la transition ferromagnétique à 80 K, correspondant à l'apparition d'une contribution magnétique sur le pic de Bragg du dysprosium (figure III-6). Néanmoins, le saut marqué par le paramètre c plaide pour une transition plus brutale que ne le laisse penser la persistance des satellites magnétiques en dessous de T_C et l'évolution de l'intensité du pic de Bragg.

La variation thermique du pas de l'hélice entre 180 K et 50 K, déduit directement de l'espacement entre les deux satellites magnétiques, est présentée à la figure III-8.

L'angle de 45° à la température de Néel décroît pour atteindre 28° à la température de Curie. Il demeure alors constant sur le domaine de coexistence des phases hélicoïdale et ferromagnétique.

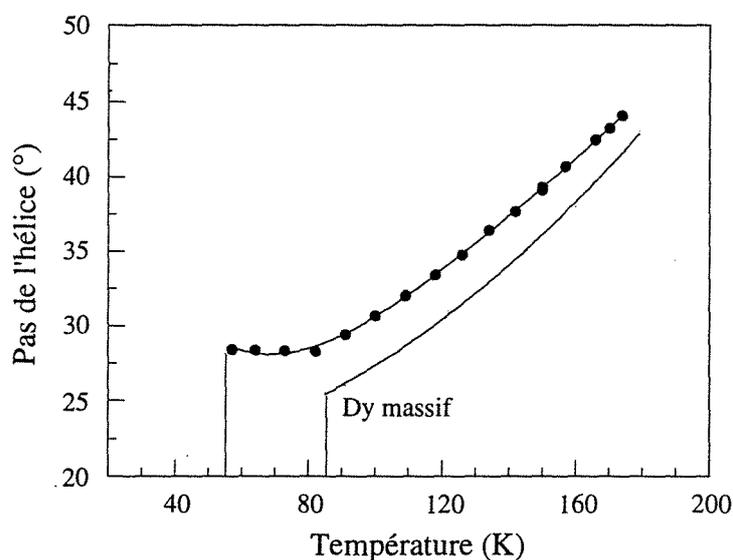


Fig. III-8 : évolution thermique de l'angle de rotation des moments magnétiques dans la structure en hélice du film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre yttrium.

Comparaison de l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y avec le comportement du dysprosium massif

Le comportement magnétique du film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium est finalement très proche de celui du dysprosium massif présenté dans

la littérature (voir paragraphe 2.1 du chapitre I). La température de Néel semble voisine de la valeur rencontrée dans l'élément massif (elle sera déterminée plus précisément par mesures d'aimantation).

Dans la phase hélicoïdale, on note seulement une légère différence du pas de l'hélice, qui reste supérieur dans le film de 3200 Å. La différence entre la valeur dans le film et dans le massif s'accroît quand la température diminue, mais n'excède jamais 3°.

Le paramètre c évolue comme dans le matériau massif, présentant une augmentation continue dans la phase hélicoïdale (déformation α partielle) et un saut brusque à la transition ferromagnétique (passage à une déformation α totale).

La seule différence notable se trouve donc être la coexistence des phases hélicoïdale et ferromagnétique sur un domaine de 30 K. Ceci n'est pas incompatible avec une transition du premier ordre mais peut traduire une certaine inhomogénéité, confirmée par l'évolution de la largeur du pic de Bragg du dysprosium (figure III-9).

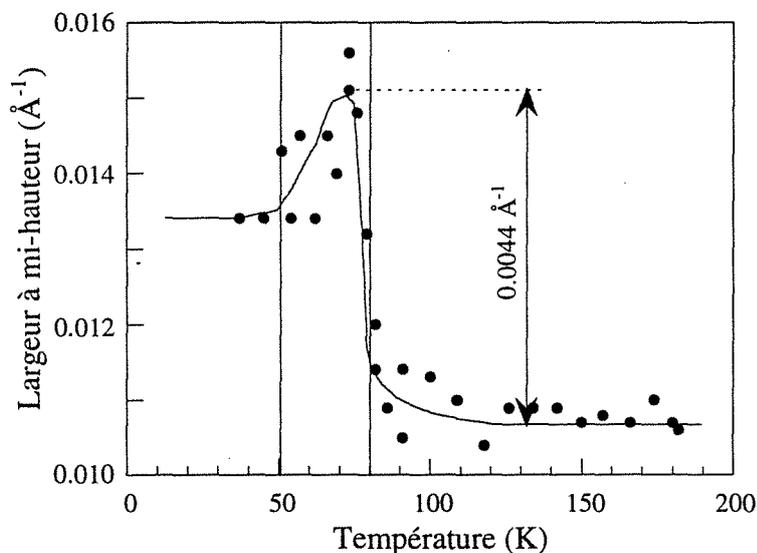


Fig. III-9 : évolution thermique de la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg (0002) du dysprosium mesuré par diffraction de neutrons pour le film de 3200 Å de dysprosium épitaxié entre yttrium.

La largeur à mi-hauteur de 0.0107 Å^{-1} dans la phase hélicoïdale augmente de façon très brutale à la transition et présente un maximum dans le domaine de coexistence des deux phases magnétiques. En dessous de 50 K, elle se stabilise à 0.0134 Å^{-1} . Vu la résolution expérimentale de 0.0073 Å^{-1} , la longueur de cohérence passe de 810 Å dans la phase hélicoïdale à 560 Å dans la phase ferromagnétique, avec un minimum de 475 Å lors de la transition.

On peut malgré tout considérer que le comportement magnétique de cet échantillon est suffisamment semblable à celui du dysprosium massif pour servir de référence.

Les résultats obtenus sur cet échantillon indiquent une différence significative par rapport aux films d'erbium épitaxiés entre deux couches d'yttrium : le film de dysprosium de 3200 Å présente un comportement "normal", alors qu'il a été montré qu'un film d'erbium de 14500 Å était encore très fortement influencé par l'yttrium puisqu'il ne présentait pas de transition ferromagnétique, même aux plus basses températures [57].

Comportement d'un film de dysprosium de 600 Å épitaxié sur yttrium

Une série de spectres a été mesurée à différentes températures pour l'échantillon Y/Dy 600 Å/Y, autour de la réflexion (0002) le long de la direction c^* (figure III-10).

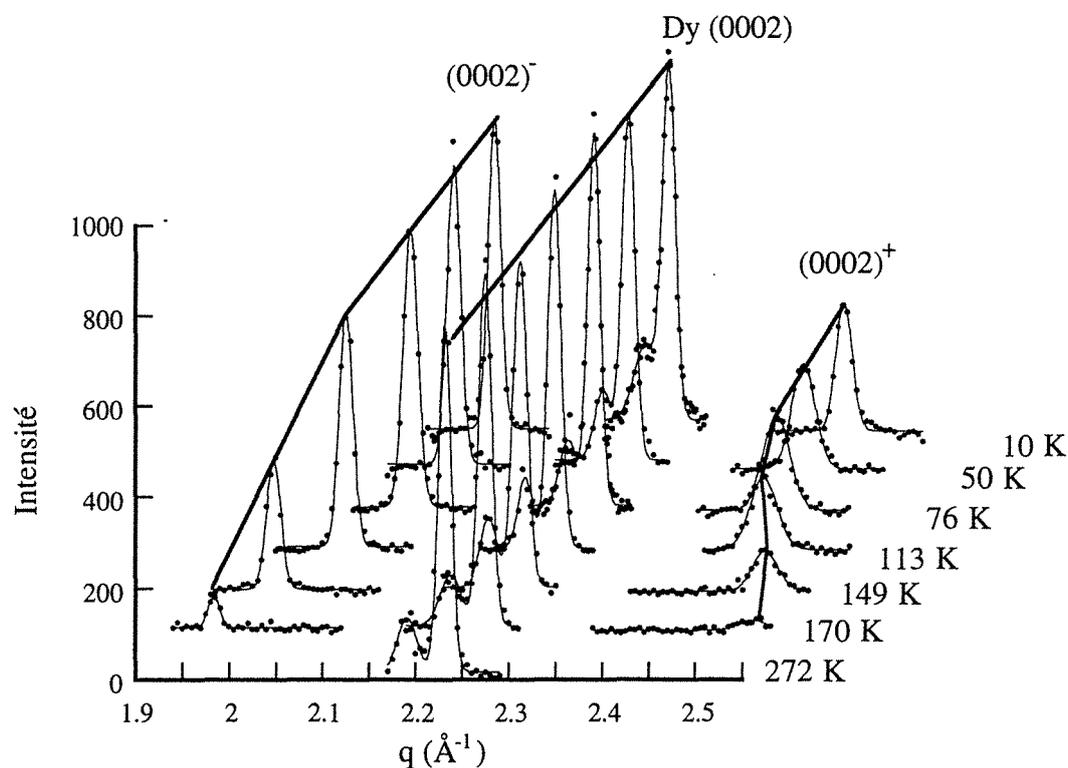


Fig. III-10 : spectres de diffraction de neutrons obtenus à différentes températures pour le film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre yttrium.

À température ambiante, on reconnaît en $q = 2.191 \text{ \AA}^{-1}$ le pic (0002) de l'yttrium et en $q = 2.232 \text{ \AA}^{-1}$ celui du dysprosium, d'intensité relative plus faible que précédemment puisque le film est moins épais. Ces positions indiquent un rapport du paramètre c de l'yttrium sur celui du dysprosium égal à 1.0188, ce qui confirme les résultats de

diffraction de rayons X d'une compression du réseau du dysprosium selon l'axe c plus importante dans ce film que dans l'échantillon étudié précédemment.

En dessous de 170 K, apparaissent les deux satellites magnétiques de l'ordre hélicoïdal dans le plan de base du dysprosium. L'angle de rotation entre les moments portés par deux plans atomiques successifs à 160 K, directement relié à la position des pics magnétiques, est 45.4° ; cette valeur est supérieure de 5.4° à la valeur mesurée dans l'élément massif à la même température.

Contrairement à ce que nous avons observé pour le film de dysprosium de 3200 Å, l'ordre hélicoïdal persiste jusqu'aux plus basses températures et l'on n'observe aucune contribution magnétique supplémentaire sur le pic de Bragg (0002). Ceci signifie que la transition ferromagnétique qui se produit à 85 K dans le dysprosium massif est absente dans ce film de 600 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium.

L'évolution thermique du paramètre c du dysprosium est présentée à la figure III-11, avec celle du film de dysprosium épais étudié précédemment.

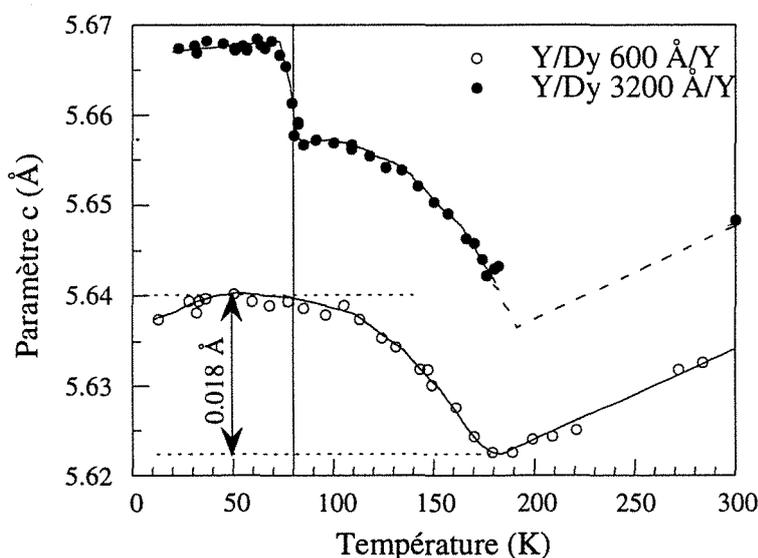


Fig. III-11: évolutions thermiques des paramètres c, déterminés par diffraction de neutrons, des films de dysprosium de 600 Å et 3200 Å épitaxiés entre yttrium.

Le paramètre c décroît depuis la température ambiante jusqu'à la température de Néel, puis augmente continûment quand la température diminue jusqu'à 80 K. Il reste ensuite sensiblement constant jusqu'à basse température. On n'observe pas de saut caractéristique de la transition ferromagnétique, ce qui confirme sa suppression. Notons que le paramètre mesuré dans ce film est de 0.27% inférieur à celui du film épais et que leurs évolutions thermiques sont tout à fait similaires au-dessus de 100 K.

L'évolution thermique du pas de l'hélice est reportée figure III-12.

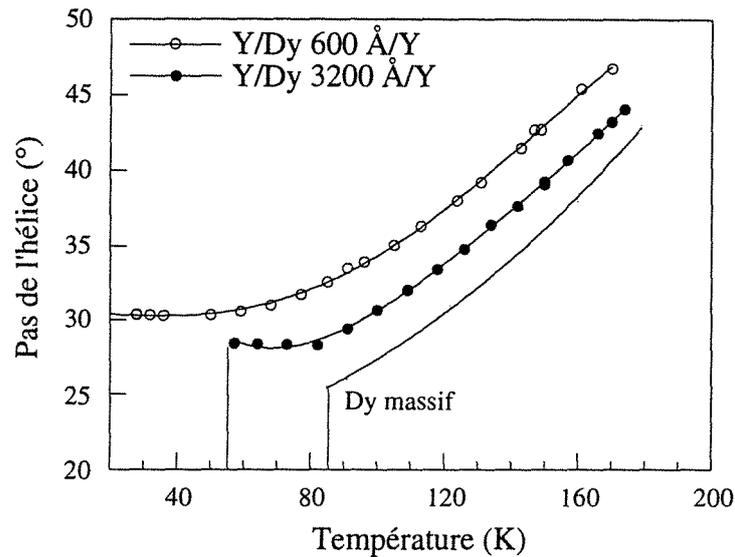


Fig. III-12 : évolutions thermiques de l'angle de rotation entre moments de dysprosium, déterminé par diffraction de neutrons, pour les échantillons Y/Dy 600 Å/Y, Y/Dy 3200 Å/Y et pour le dysprosium massif.

Il diminue rapidement avec la température jusqu'à 80 K, mais se stabilise à 30° à partir de 60 K environ. Il demeure, à toute température, supérieur à la valeur mesurée dans le massif et à celle mesurée pour le film de 3200 Å.

L'écart par rapport au massif est le plus important à basse température mais il est déjà significatif à la température de Néel : la barrière énergétique étant proportionnelle à $(1-\cos\omega)^2/\cos\omega$, l'augmentation de l'angle de rotation de 4° par rapport à la valeur rencontrée dans l'élément massif (44°) signifie que l'état de déformation du film a élevé cette barrière d'un facteur 1.5. Cela peut expliquer en partie la stabilité de la phase hélicoïdale jusqu'à basse température, la seconde raison étant la diminution de l'énergie magnétoélastique causée par la déformation épitaxiale induite : déformation α_2 négative et α_1 positive, comme cela apparaît dans le tableau au paragraphe 1.2.

Comportement sous champ magnétique d'un film de 550 Å épitaxié sur yttrium

Ayant montré que des films de dysprosium dont l'épaisseur est de l'ordre de 600 Å ne présentaient pas de transition ferromagnétique lorsqu'ils sont épitaxiés entre deux couches d'yttrium, nous avons procédé à quelques expériences de diffraction neutronique sous champ magnétique. Les mesures effectuées sur cet échantillon sont relativement

incomplètes puisque nous n'avons étudié l'influence du champ magnétique qu'à basse température.

Les spectres obtenus sous des champs croissants montrent la disparition de la phase hélicoïdale (c'est-à-dire des pics purement magnétiques) au profit d'un ordre ferromagnétique (c'est-à-dire d'une contribution magnétique supplémentaire sur le pic de Bragg (0002)).

Cela apparaît clairement sur la figure III-13, où sont présentées conjointement les variations sous champ de l'intensité intégrée du pic de Bragg et de sa position (paramètre c).

On constate qu'un champ magnétique de 5 kOe est suffisant pour induire la transition ferromagnétique, ce qui correspond approximativement au champ magnétique nécessaire pour vaincre l'ordre hélicoïdal du dysprosium massif à 120 K (figure I-8).

Cette courbe met également en évidence l'étroite relation entre comportements magnétique et mécanique : bien que la transition ferromagnétique ne soit pas induite par la déformation spontanée du réseau cristallin mais par l'application d'un champ magnétique, elle s'accompagne d'une expansion selon l'axe c de 0.25%. Cette dilatation est plus importante que celle qui apparaît spontanément dans le film épais de 3200 Å à la transition ferromagnétique (0.18%).

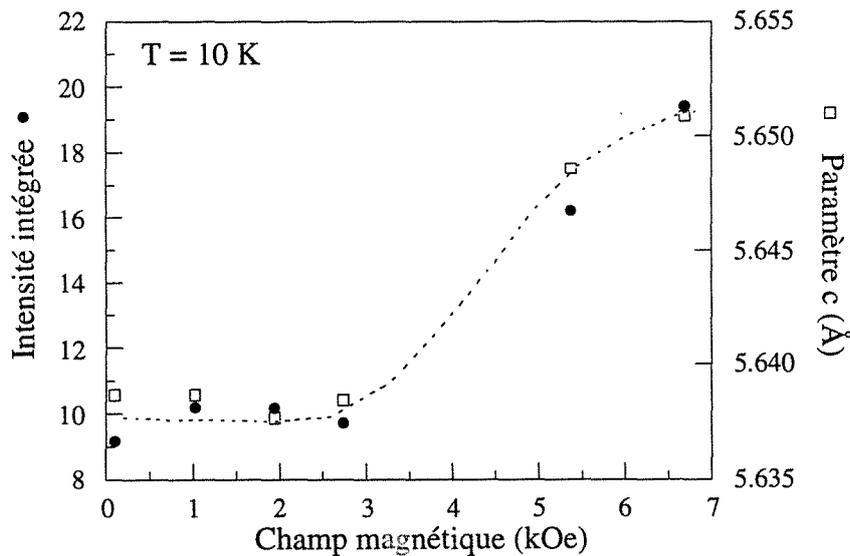


Fig. III-13 : évolutions de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) et du paramètre c du dysprosium en fonction du champ magnétique pour l'échantillon Y/Dy 550 Å/Y. Les résultats sont obtenus par diffraction de neutrons à $T = 10$ K en appliquant le champ magnétique dans le plan de l'échantillon.

2.2 Mesures d'aimantation

Si les mesures de diffraction neutronique n'ont concerné que quelques échantillons, les mesures d'aimantation ont été effectuées sur l'ensemble des films élaborés. Comme cela a été précisé au chapitre 2, nous avons procédé à deux types de mesures :

- (i) des mesures d'aimantation sous champ fixe en température décroissante (FC);
- (ii) des cycles d'hystérésis à température fixe sur les échantillons refroidis en champ nul (AFC).

Evolution en température sous champ fixe (FC)

Les mesures ont été réalisées sous des champs magnétiques extérieurs de 2.6 kOe et de 50 Oe, appliqués dans le plan (0001) du réseau hexagonal ; alors que le champ de 50 Oe nous a paru le plus petit champ raisonnable, le champ de 2.6 kOe a été choisi afin de comparer nos résultats à ceux de Majkrzak *et al.* [40], dont les mesures ont été effectuées sous ce même champ.

La figure III-14 représente les variations de l'aimantation en fonction de la température sous 2.6 kOe pour les échantillons Y/Dy 600 Å/Y et Y/Dy 3200 Å/Y, dont le comportement a été analysé en détail par diffraction de neutrons au paragraphe précédent.

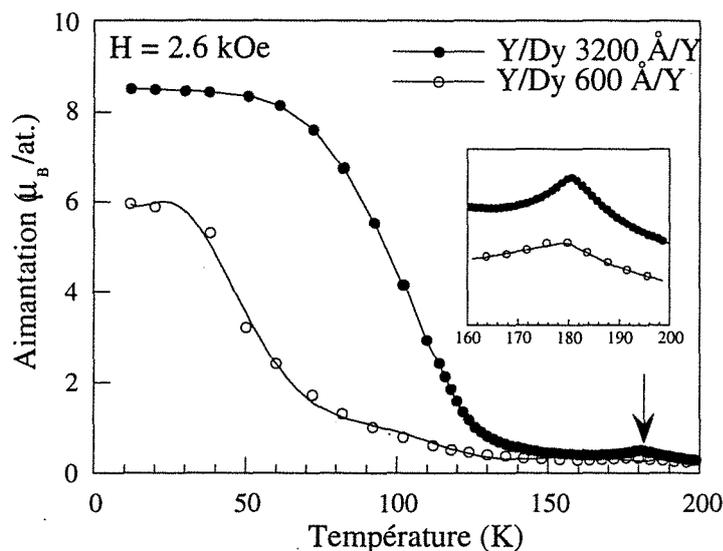


Fig. III-14 : variations de l'aimantation (FC) en fonction de la température sous un champ magnétique de 2.6 kOe appliqué dans le plan des couches pour les échantillons Y/Dy 3200 Å/Y et Y/Dy 600 Å/Y. L'encadré représente un agrandissement de la zone comprise entre 160 K et 200 K, où est visible le pic de susceptibilité caractéristique de l'apparition de la phase hélicoïdale.

Lorsque la température diminue, apparaît tout d'abord un pic de susceptibilité magnétique, indiqué par une flèche sur la figure III-14 et nettement visible dans l'encadré. Caractéristique d'une transition de phase, il correspond à l'apparition de la phase hélicoïdale. Le maximum de ce pic se situe à 178 K pour l'échantillon Y/Dy 600 Å/Y et 181 K pour l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y. La valeur déterminée pour le film épais est légèrement supérieure à la température de Néel habituellement rencontrée dans la littérature pour l'élément massif (178 K [5], 179 K [6]).

Lorsque la température diminue au-delà du pic de susceptibilité, on observe tout d'abord un domaine d'aimantation faible, interprété comme le domaine de stabilité de la phase hélicoïdale, puis une augmentation de l'aimantation, montrant l'apparition d'un ordre ferromagnétique. Les températures de transition ferromagnétique de ces deux films sont nettement différentes, confirmant les résultats de diffraction neutronique ; nous y reviendrons par la suite.

Examinons tout d'abord l'influence du champ magnétique sur la température de transition ferromagnétique d'un même échantillon. La figure III-15 présente les courbes d'aimantation obtenues sur l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y sous 50 Oe et sous 2.6 kOe.

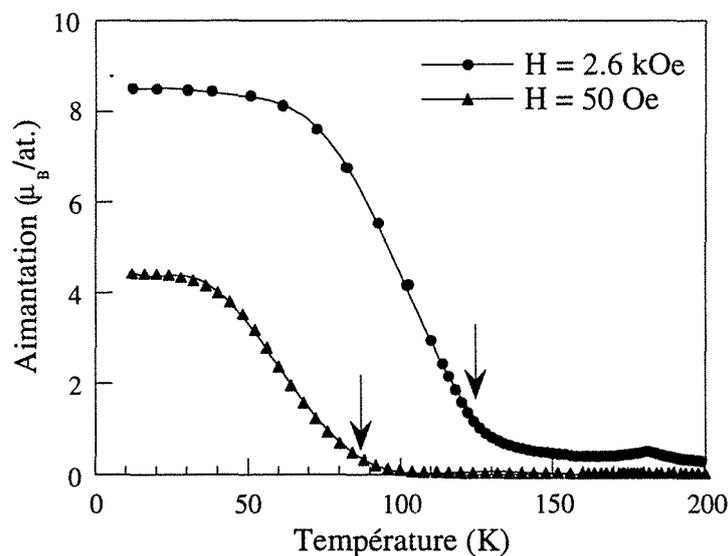


Fig. III-15 : courbes d'aimantation (FC) obtenues sous 2.6 kOe et sous 50 Oe pour l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y. Les flèches indiquent les températures de Curie déduites de ces courbes.

La transition se produit à une température d'autant plus élevée que le champ magnétique appliqué est fort : elle débute à 120 K sous 2.6 kOe et à 85 K sous 50 Oe. Ce résultat obtenu sous champ faible est cohérent avec les expériences de diffraction de neutrons sous champ nul, puisque l'augmentation subite de paramètre c a été observée à 80 K.

La température de transition semble donc voisine de celle de l'élément massif, contrairement au film de 5000 Å étudié par Majkrzak [40], qui, bien que plus épais,

présente sous 2.6 kOe une transition à 90 K, c'est-à-dire décalée de 20 K par rapport au massif dans les mêmes conditions de champ magnétique. D'autre part, la transition apparaît beaucoup moins abrupte que celle présentée figure I-9 [7] pour le dysprosium massif ou que celle observée par Majkrzak [40]. Cette observation peut être corrélée à la coexistence des phases hélicoïdale et ferromagnétique mise en évidence par diffraction de neutrons.

La figure III-16 présente les courbes d'aimantations obtenues sous 2.6 kOe et 50 Oe pour l'échantillon Y/Dy 600 Å/Y.

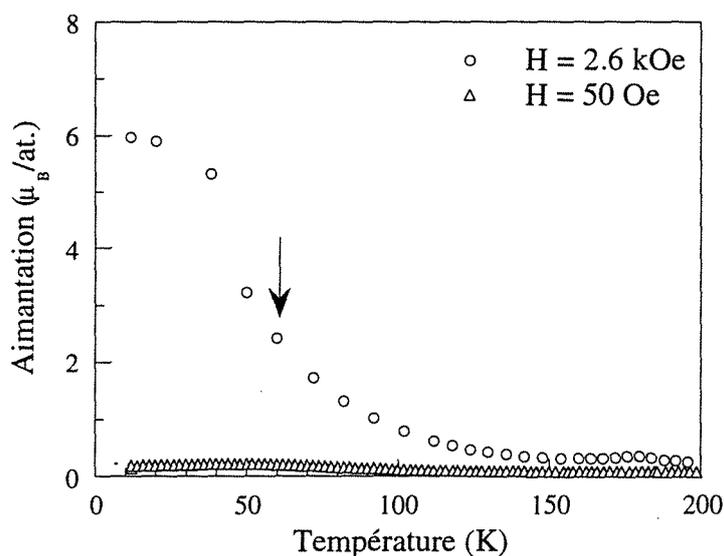


Fig. III-16 : courbes d'aimantation obtenues sous 2.6 kOe et sous 50 Oe pour l'échantillon Y/Dy 600 Å/Y. La transition ferromagnétique ne se produit pas sous 50 Oe.

Le champ magnétique de 50 Oe n'est pas suffisant pour induire la transition ferromagnétique bloquée sous champ nul, comme cela a été mis en évidence par diffraction de neutrons. En revanche, le champ magnétique de 2.6 kOe provoque la transition ferromagnétique. La température de transition est cependant délicate à déterminer car l'augmentation de l'aimantation se fait de façon progressive et la transition apparaît encore plus étalée que dans le film de 3200 Å.

Nous avons malgré tout choisi de localiser la transition à 60 K, au début de l'augmentation plus rapide de l'aimantation ; il est clair qu'elle est décalée vers les basses températures par rapport à l'échantillon précédent.

Afin d'étudier l'influence de l'épaisseur du film de dysprosium sur les températures d'apparition des phases hélicoïdale et ferromagnétique, des mesures d'aimantation analogues ont été réalisées sur trois autres échantillons du même type, où seule l'épaisseur du film de dysprosium varie : Y/Dy 1150 Å/Y, Y/Dy 2000 Å/Y et

Y/Dy 2900 Å/Y. Les courbes d'aimantation obtenues pour l'ensemble des échantillons sont présentées figure III-17.

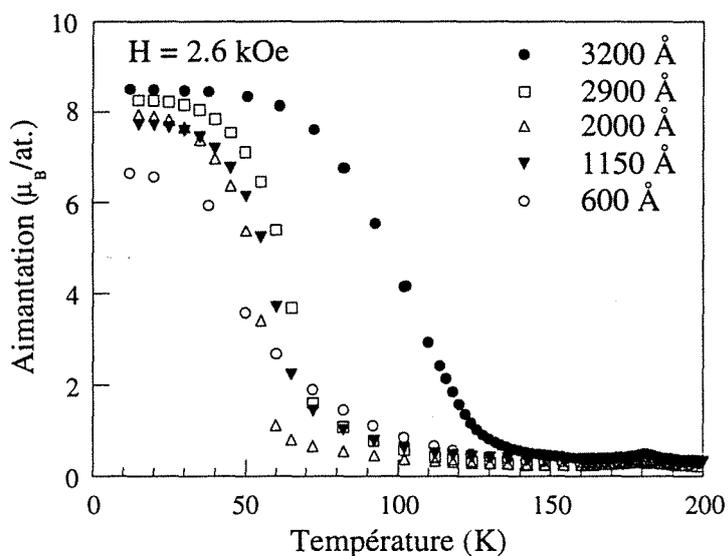


Fig. III-17 : courbes d'aimantation (FC) obtenues sous 2.6 kOe pour une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium.

Température de Néel

La position du maximum du pic de susceptibilité, obtenue sous 2.6 kOe, est reportée figure III-18 en fonction de l'épaisseur du film de dysprosium.

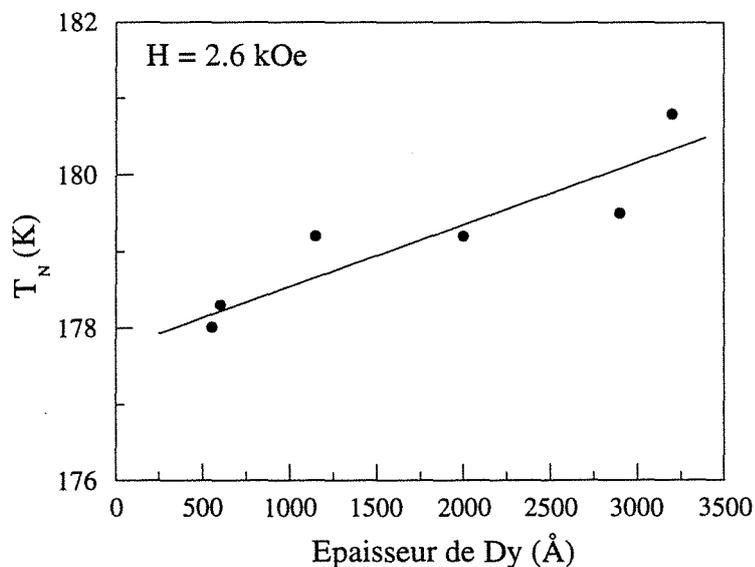


Fig. III-18: variation de la température de Néel (déterminée sous 2.6 kOe) des films de dysprosium épitaxiés entre yttrium en fonction de l'épaisseur de dysprosium.

Bien que l'effet soit très faible, un déplacement de la température d'ordre vers les plus basses températures se manifeste avec la diminution de l'épaisseur du film de dysprosium. Bien que la diminution de l'épaisseur du film corresponde à l'accroissement du paramètre c , nous verrons que la température de Néel est sensible à l'épaisseur, indépendamment de la variation de paramètre.

La température de Néel du film de 3200 Å, de l'ordre de 181 K, est supérieure à celle généralement rencontrée dans la littérature pour l'élément massif. Néanmoins, la tendance observée en fonction de l'épaisseur du film nous conduit à considérer cette température comme la limite pour les grandes épaisseurs ; elle sera donc choisie comme référence et supposée comme celle de l'élément massif.

Température de Curie

Sous 2.6 kOe, les films transitent vers l'état ferromagnétique à une température dont l'évolution en fonction du paramètre c du film de dysprosium est reportée figure III-19.

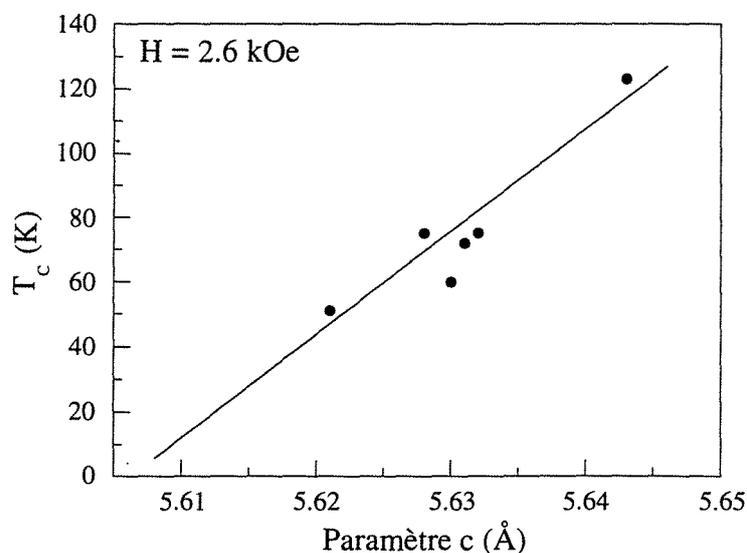


Fig. III-19 : variation de la température de Curie du film de dysprosium en fonction de son paramètre c , pour une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium. Ces valeurs ont été déterminées d'après les courbes d'aimantation obtenues sous 2.6 kOe.

La température de transition est, pour tous les échantillons, inférieure à la température rencontrée dans l'élément massif dans les mêmes conditions de champ magnétique (120 K) et diminue quand le paramètre c du film de dysprosium décroît. Elle atteint 50 K pour le film le plus contraint selon c , ce qui représente une diminution de 55% par rapport à l'élément massif. La variation est pratiquement linéaire et l'extrapolation à 0 K indique

qu'un film de paramètre c de 5.607 \AA ne subit pas de transition ferromagnétique sous 2.6 kOe . D'après la courbe présentée figure III-4, le paramètre de 5.607 \AA est celui d'un film de 200 \AA épitaxié sur yttrium mais, comme nous le verrons par la suite et contrairement au cas de la température de Néel, le paramètre c et non l'épaisseur du film est le facteur déterminant pour la température de Curie.

Notons que le comportement du film de paramètre 5.63 \AA s'écarte de la droite suivie par les autres échantillons. Ce décalage est à relier à celui observé figure III-4, indiquant déjà une différence dans la structure cristalline qui a été expliquée par l'utilisation d'un substrat de provenance différente.

Evolution sous champ (AFC) : courbes de première aimantation

Afin d'approfondir l'étude du comportement magnétique des films de dysprosium épitaxiés mentionnés au paragraphe précédent, nous avons mesuré des cycles d'aimantation à des températures comprises entre 12 K et 180 K . Le champ magnétique était appliqué dans le plan du film et pouvait varier de -7.5 T à $+7.5 \text{ T}$. Afin d'éliminer les effets d'hystérèse, l'échantillon a été réchauffé au-dessus de sa température d'ordre puis refroidi à la température désirée sous champ nul entre chaque cycle.

L'ensemble des courbes de première aimantation obtenues sur l'échantillon épais $\text{Y/Dy } 3200 \text{ \AA/Y}$ est reporté figure III-20.

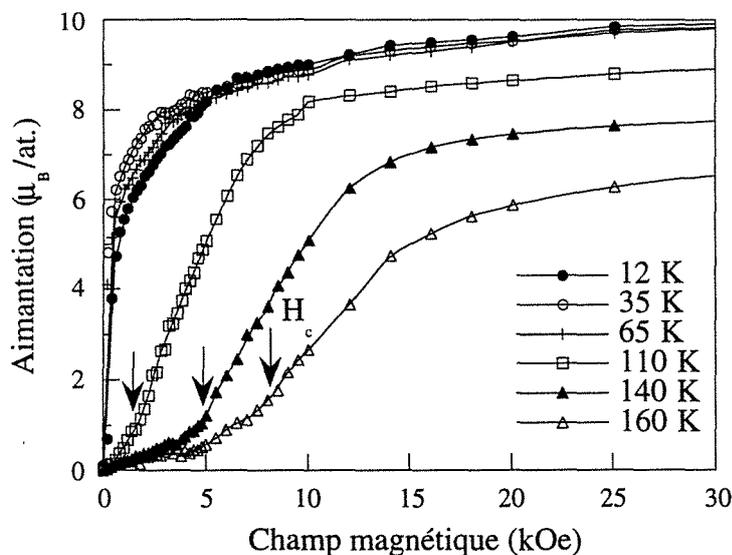


Fig. III-20 : courbes de première aimantation obtenues à différentes températures pour le film de 3200 \AA épitaxié entre deux couches d'yttrium. Le champ critique correspondant à la transition ferromagnétique est indiqué par une flèche sur la courbe à 160 K .

Ces courbes se regroupent en deux types :

- Les courbes obtenues entre 160 K et 110 K présentent une région de faible susceptibilité jusqu'à un champ critique H_c , au-delà duquel l'aimantation augmente rapidement pour atteindre la saturation. Le domaine de faible susceptibilité correspond à la stabilité de la phase hélicoïdale et la transition à partir de H_c est due à l'apparition de la phase ferromagnétique.
 - Les courbes obtenues en dessous de 65 K présentent une susceptibilité très forte dès les plus faibles champs : la phase ferromagnétique est stable sous champ nul.
- Au-dessus de 180 K, l'augmentation de l'aimantation est linéaire en fonction du champ, ce qui traduit la phase paramagnétique.

Les résultats obtenus sur l'échantillon Y/Dy 600 Å/Y sont présentés figure III-21.

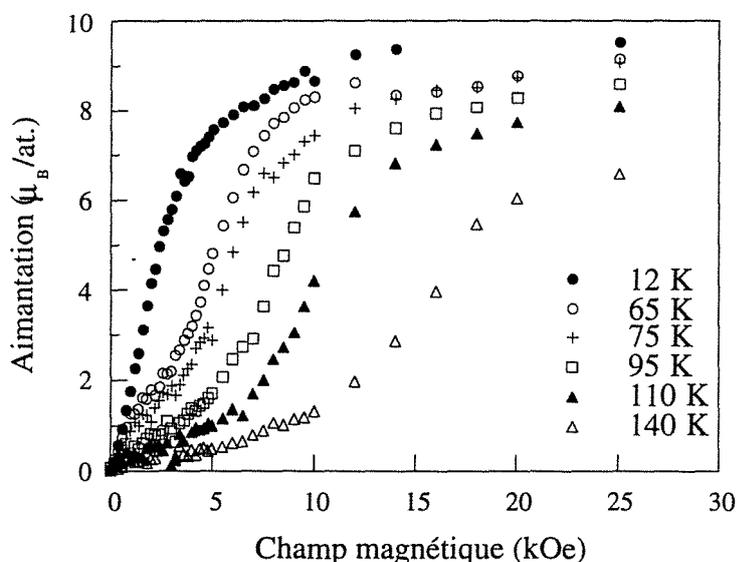


Fig. III-21 : courbes de première aimantation obtenues à différentes températures pour le film de 600 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium.

Pour cet échantillon, les courbes présentent toutes l'allure des courbes du premier type, dont la susceptibilité est faible en champ nul. Dans le domaine des hautes températures, on retrouve la même évolution que sur la figure précédente, avec un décalage du champ H_c vers les champs magnétiques élevés : le champ critique qui était précédemment de 2 kOe à 110 K passe à 10 kOe pour cette même température.

Les courbes obtenues à basse température présentent à leur tour un domaine de susceptibilité faible, ce qui vient confirmer la stabilité de la phase hélicoïdale jusqu'à basse température, déjà mise en évidence par diffraction de neutrons.

Comme précédemment, la détermination de H_c est particulièrement difficile quand le champ critique se rapproche de zéro car la transition ferromagnétique apparaît moins abrupte. Ceci est en particulier vrai à 12 K où le plateau a pratiquement disparu ; il n'en reste pas moins que la susceptibilité n'est pas infinie et que les expériences de diffraction de neutrons mettent parfaitement en évidence la phase hélicoïdale.

Des mesures analogues ont été réalisées sur les autres échantillons. Les évolutions thermiques des champs critiques pour les divers échantillons sont représentées figure III-22.

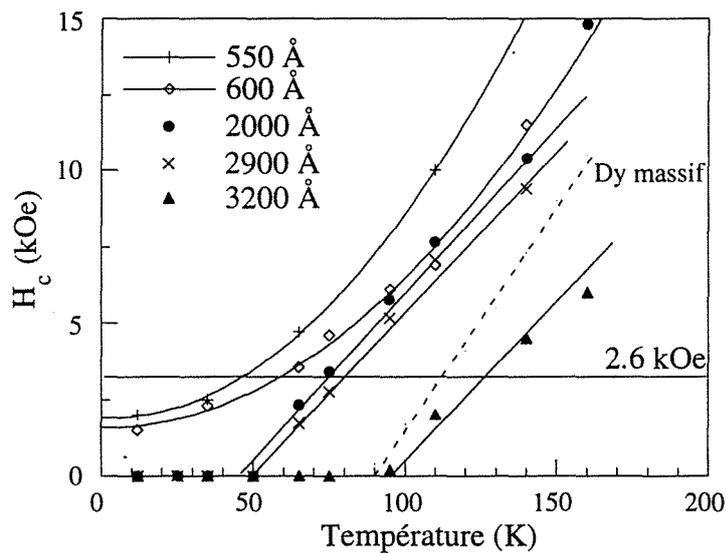


Fig. III-22 : évolutions thermiques du champ critique d'apparition de la phase ferromagnétique pour une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium. Les abscisses des points d'intersection des courbes avec l'horizontale $H = 2.6$ kOe correspondent aux températures de Curie présentées sur la figure III-19.

Les échantillons se regroupent nettement en deux types : ceux d'épaisseur inférieure à 700 Å, dont le champ critique n'est jamais nul, et ceux d'épaisseur supérieure, qui présentent un domaine de température plus ou moins étendu sur lequel le champ critique est nul. Les premiers échantillons conservent un ordre hélicoïdal jusqu'à basse température alors que les seconds subissent une transition ferromagnétique.

L'intersection entre ces courbes et la droite horizontale correspondant au champ critique de 2.6 kOe permet de déterminer les températures d'apparition de la phase ferromagnétique lorsque l'échantillon est refroidi sous un champ de 2.6 kOe. Elles sont cohérentes avec les valeurs reportées figure III-19.

La stabilité de la phase hélicoïdale est donc, à une température donnée, d'autant plus importante que le film est mince, c'est-à-dire contraint dans le sens des déformations de

type α opposées à celles qui se produisent spontanément à la transition ferromagnétique dans l'élément massif.

Notons toutefois une certaine incohérence, puisque le film de 2900 Å a un comportement plus proche de celui du film de 2000 Å que du film de 3200 Å, dont la courbe est nettement décalée et révèle une stabilité de la phase hélicoïdale inférieure à celle de l'élément massif. Ce décalage, déjà visible sur l'évolution des paramètres c (figure III-4), confirme qu'il est plus logique de caractériser les films par leur paramètre que par leur épaisseur. La réduction du champ critique par rapport à l'élément massif peut toutefois n'être qu'apparente et provenir de l'incertitude à déterminer H_C sur des courbes dont la transition est très étalée (figure III-20), contrairement à celles présentées figure I-8.

Phénomènes d'hystérèse

La figure III-23 présente les cycles d'aimantation obtenus à 12 K et 110 K sur les films de 600 Å et 3200 Å.

Le cycle obtenu à 12 K pour le film de 3200 Å (figure (a)) est tout à fait caractéristique de la phase ferromagnétique, avec une aimantation rémanente élevée lorsque le champ magnétique diminue.

Le cycle obtenu à 110 K pour le film de dysprosium de 600 Å (figure (d)) montre nettement la réversibilité de la phase hélicoïdale sous champ, puisque le champ critique observé en champ croissant se retrouve sur la partie de la courbe en champ décroissant puis lorsque le champ appliqué est négatif.

Les courbes mesurées à 110 K pour le film de 3200 Å (figure (c)) et à 12 K pour le film de 600 Å (figure (b)) présentent également sous faible champ l'allure caractéristique de l'ordre hélicoïdal, par ailleurs parfaitement identifié par diffraction neutronique. Toutefois, il ne semble pas évident que cette hélice soit restaurée lorsque le champ magnétique est supprimé, car la partie de la courbe en champ décroissant ne suit pas celle mesurée en champ croissant.

Pour le film de 600 Å à 12 K, l'aimantation rémanente est égale à 78% de sa valeur à saturation et l'application d'un champ de -300 Oe semble provoquer le retournement des moments du dysprosium dans le sens du champ sans repasser par la phase hélicoïdale.

Bien que ce champ coercitif ne soit pas très élevé, il n'en reste pas moins que la phase hélicoïdale à basse température paraît irréversible, contrairement à celle qui se développe à 110 K.

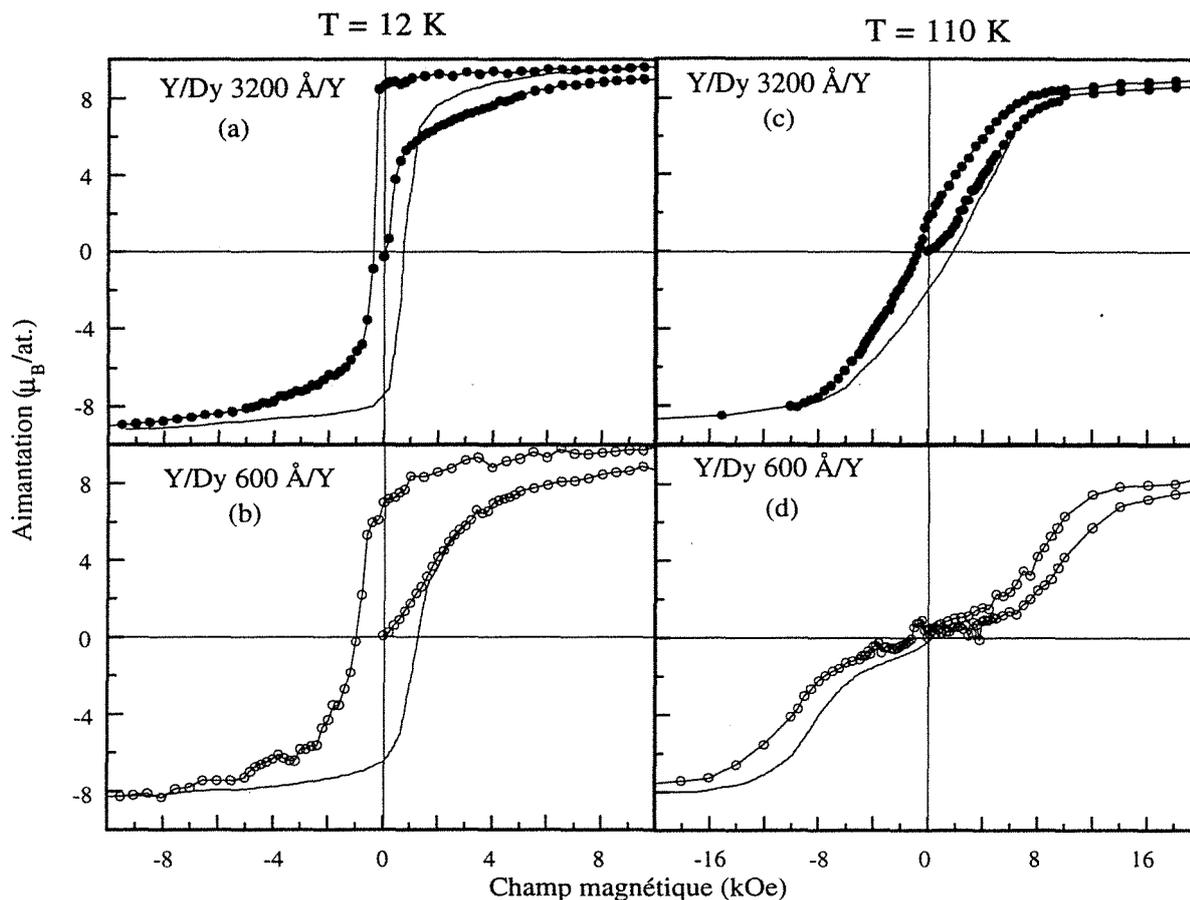


Fig. III-23 : cycles d'hystérésis à 12 K ((a) et (b)) et 110 K ((c) et (d)) pour les échantillons Y/Dy 3200 Å/Y et Y/Dy 600 Å/Y.

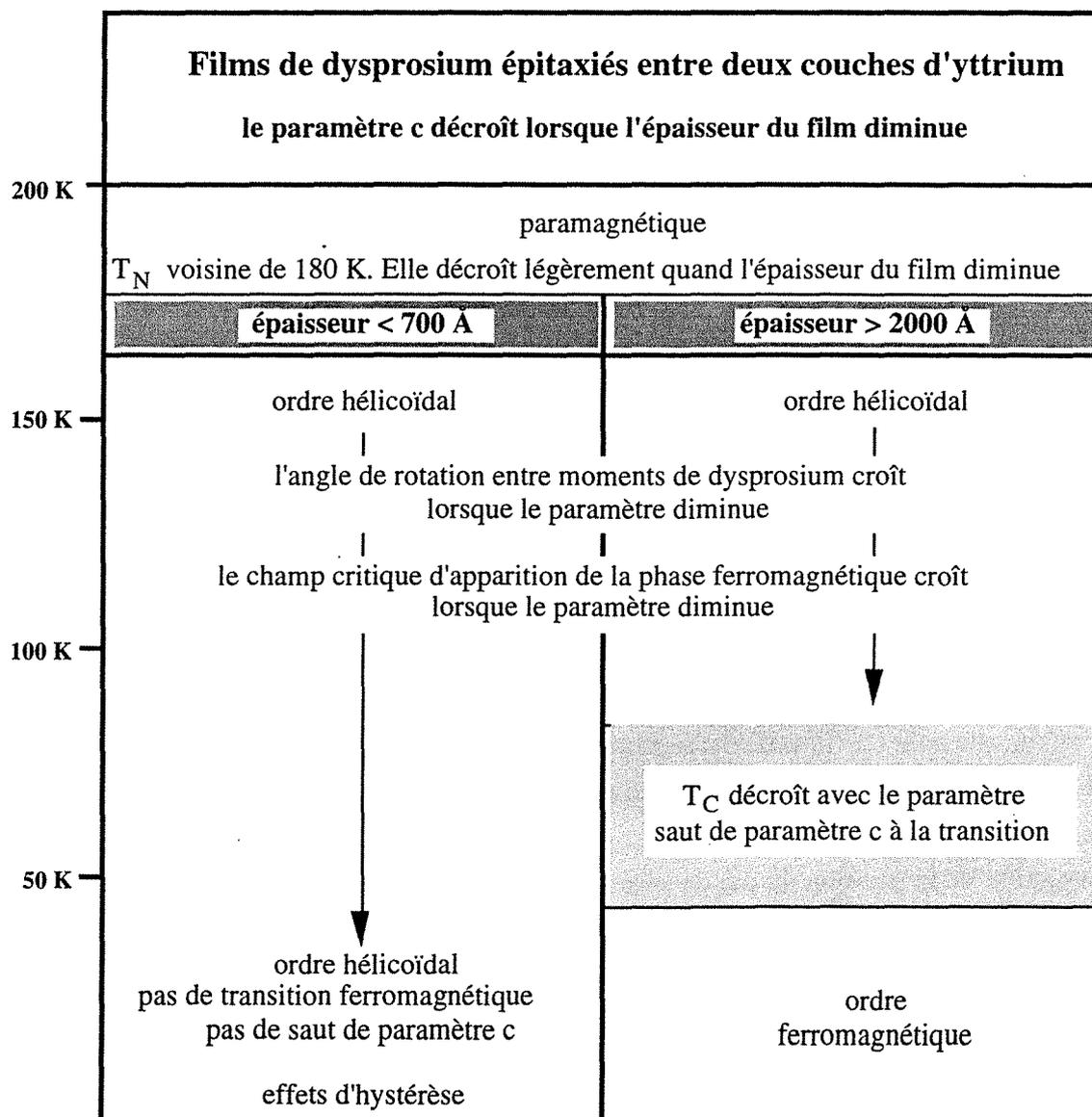
Ceci peut se comprendre à partir de considérations énergétiques : à 110 K, c'est l'énergie Zeeman qui induit la transition ferromagnétique en compensant les termes d'énergie d'échange et élastique ; si le champ est supprimé, l'arrangement hélicoïdal, très stable, est restauré. À basse température, le terme d'anisotropie magnétocristalline devient significatif et favorise l'orientation des moments selon l'une des directions équivalentes de facile aimantation. Il ne peut pas provoquer la transition ferromagnétique de par son caractère à un ion, car le choix de l'alignement d'un moment selon une direction facile n'est pas cohérent d'un site à l'autre ; toutefois, si la phase ferromagnétique est induite par l'application d'un champ magnétique selon une direction facile, le terme d'anisotropie stabilise l'arrangement parallèle.

Ces quelques courbes montrent les forts effets d'irréversibilité rencontrés dans ces systèmes. C'est un point que nous n'avons pas développé mais qui nécessiterait une attention particulière.

2.3 Récapitulatif

Le comportement magnétique des films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium s'avère étroitement lié à l'état de déformation α induit par l'épitaxie sur un élément de paramètre dans le plan supérieur à celui du dysprosium.

Si les films épais, peu déformés, présentent un diagramme de phase magnétique très voisin de celui de l'élément massif, la température de transition ferromagnétique des films déformés peut être considérablement réduite, voire supprimée. La diminution de la température de transition est alors corroborée par l'évolution thermique du paramètre c et la stabilité accrue de la phase hélicoïdale. Outre l'influence directe des déformations épitaxiales sur l'énergie magnétoélastique, la légère réduction de la température de Néel et surtout, l'augmentation de l'angle de rotations entre les moments dans la phase hélicoïdale, traduisent une modification de l'échange dans les films épitaxiés sur yttrium.



3. Comportement magnétique de films de dysprosium épitaxiés entre deux films d'erbium

Après l'étude du comportement des films de dysprosium épitaxiés entre des couches d'yttrium, élément qui tend à induire des déformations $\varepsilon^{\alpha,1} > 0$ et $\varepsilon^{\alpha,2} < 0$, nous consacrons ce paragraphe à l'étude des films de dysprosium épitaxiés entre des couches d'erbium, élément qui, au contraire, induit des déformations $\varepsilon^{\alpha,1} < 0$ et $\varepsilon^{\alpha,2} > 0$, c'est-à-dire de mêmes signes que les coefficients de magnétostriction correspondants (voir tableau au paragraphe 1.2 de ce chapitre).

Les mesures d'aimantation ont été réalisées de façon systématique sur l'ensemble des cinq échantillons dont les caractéristiques cristallines ont été étudiées au paragraphe 1.2 ; les résultats sont présentés au paragraphe 3.1.

Le paragraphe 3.2 est consacré aux expériences de diffraction de neutrons, essentiellement effectuées sur l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er. Les spectres ont été collectés le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002), afin d'identifier les phases magnétiques et le long de la direction a^* autour de la réflexion (10 $\bar{1}$ 0) pour étudier en détail l'évolution thermique des paramètres cristallins dans le plan de base et observer l'éventuelle distorsion orthorhombique à la transition ferromagnétique.

3.1 Mesures d'aimantation

Evolution en température sous champ fixe (FC)

Une étude systématique de l'aimantation (FC) a été menée sur une série de films de dysprosium d'épaisseurs 100 Å, 200 Å, 450 Å, 600 Å et 3000 Å. Comme précédemment, l'aimantation a été mesurée sous un champ de 2.6 kOe appliqué dans le plan des couches en abaissant la température de 200 K à 10 K.

Les courbes obtenues sont présentées figure III-24.

De même que pour les films de dysprosium épitaxiés entre yttrium, le pic de susceptibilité indiqué par une flèche est caractéristique de l'apparition de l'ordre hélicoïdal dans le dysprosium.

L'évolution de la position du pic de susceptibilité en fonction de la valeur absolue de la déformation selon c du film de dysprosium est présentée figure III-25, où sont également portées les valeurs mesurées pour les films de dysprosium épitaxiés sur yttrium. L'augmentation de la valeur absolue de la déformation correspond à la diminution de l'épaisseur du film de dysprosium, quel que soit l'élément sur lequel il est épitaxié.

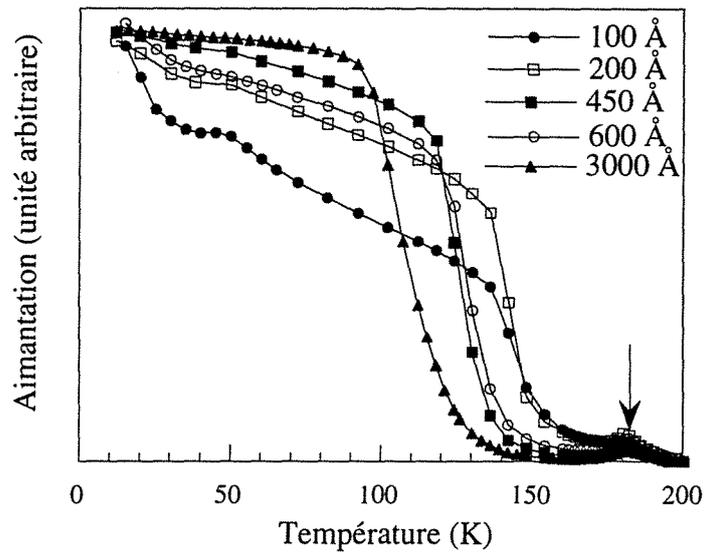


Fig. III-24 : variation thermique de l'aimantation sous 2.6 kOe d'une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'erbium. Le champ a été appliqué dans le plan (0001) et les mesures ont été réalisées en température décroissante.

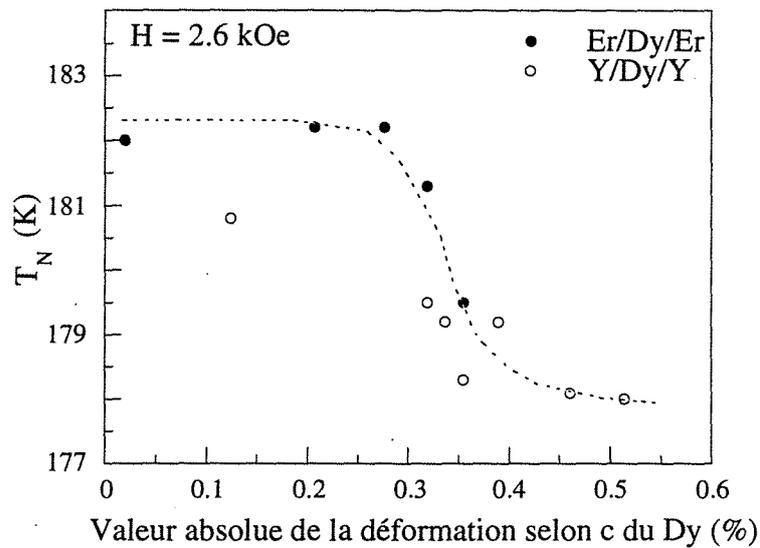


Fig. III-25 : variation de la température de Néel d'un film de dysprosium épitaxié en fonction de la valeur absolue de sa déformation selon c. Les valeurs indiquées par les symboles noirs correspondent aux films épitaxiés entre erbium ; les valeurs indiquées par les symboles blancs correspondent aux films épitaxiés entre yttrium.

Il apparaît que la température de Néel des films les moins déformés (les plus épais) est de l'ordre de 182 K. Elle diminue légèrement lorsque la valeur absolue de la déformation croît, cet effet demeurant faible puisque la température de Néel du film le plus déformé (Y/Dy 550 Å/Y) n'est abaissée que de 4 K. Notons que le film déformé de 0.12% est l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y, dont le comportement marginal a déjà été souligné.

Que le réseau du dysprosium soit dilaté ou contracté dans le plan de base par les contraintes épitaxiales, l'influence sur la température de Néel est identique dans les deux systèmes, ce qui conduit à invoquer un effet de film mince plutôt qu'un effet de contrainte. Les résultats sur des films d'erbium épitaxiés entre yttrium [54] montrent aussi une légère diminution de la température de Néel quand l'épaisseur du film d'erbium décroît : de 85 K pour le film de 14500 Å, elle atteint 84 K pour le film de 375 Å.

La phase hélicoïdale du dysprosium épitaxié sur erbium est suivie d'une transition ferromagnétique (figure III-24) qui se situe, quel que soit l'échantillon, à une température supérieure à la température de Curie du dysprosium massif mesurée dans les mêmes conditions de champ magnétique. Ainsi, le film le plus épais de 3000 Å devient ferromagnétique à 120 K, c'est-à-dire à une température 10% supérieure à celle de l'élément massif et le film de 200 Å transite vers 145 K, subissant donc une élévation de sa température de Curie de plus de 30% par rapport à l'élément massif.

La variation de la température de transition ferromagnétique en fonction de la déformation du dysprosium selon l'axe c est représentée à la figure III-26.

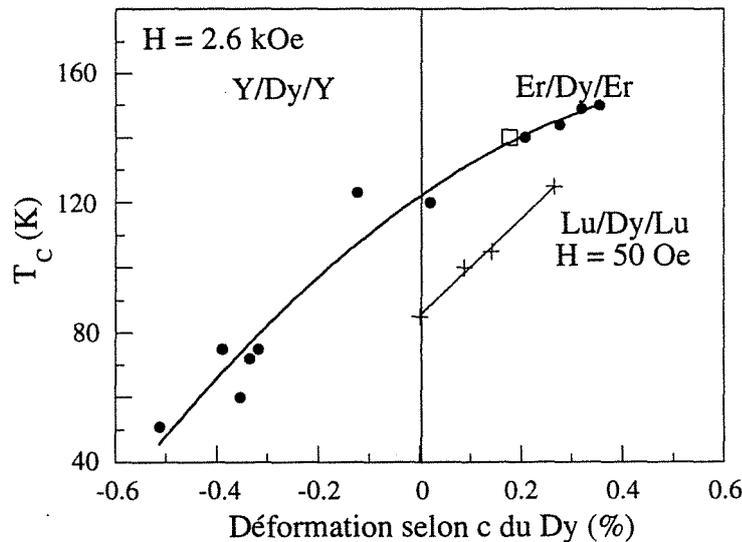


Fig. III-26 : variation de la température de Curie d'un film de dysprosium épitaxié en fonction de sa déformation selon c. Les films contraints selon c (déformation négative) sont ceux épitaxiés entre yttrium ; les films étirés selon c (déformation positive) sont ceux épitaxiés entre erbium ou entre lutécium [63]. Le carré blanc indique la température de transition sous 2 kOe d'un film de dysprosium de 500 Å épitaxié entre erbium [64].

L'influence des contraintes épitaxiales induites dans le film de dysprosium est ici manifeste et il est remarquable que l'on puisse relier les températures de Curie des divers échantillons par une même courbe, que la déformation induite soit négative, en raison de l'épitaxie sur yttrium, ou positive, par épitaxie sur erbium.

Nous avons adjoint les résultats obtenus sous 50 Oe sur des films Lu/Dy/Lu [63]. La différence observée entre les films de dysprosium épitaxiés entre erbium et entre lutécium provient certainement du champ magnétique appliqué.

Par ailleurs, le comportement sous 2 kOe du film de dysprosium de 500 Å étudié par Farrow [64], indiqué par un carré blanc, est en parfait accord avec nos résultats.

Evolution sous champ (AFC) : courbes de première aimantation

La figure III-27 présente les courbes de première aimantation obtenues sur l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er à 110 K, 140 K, 160 K et 180 K.

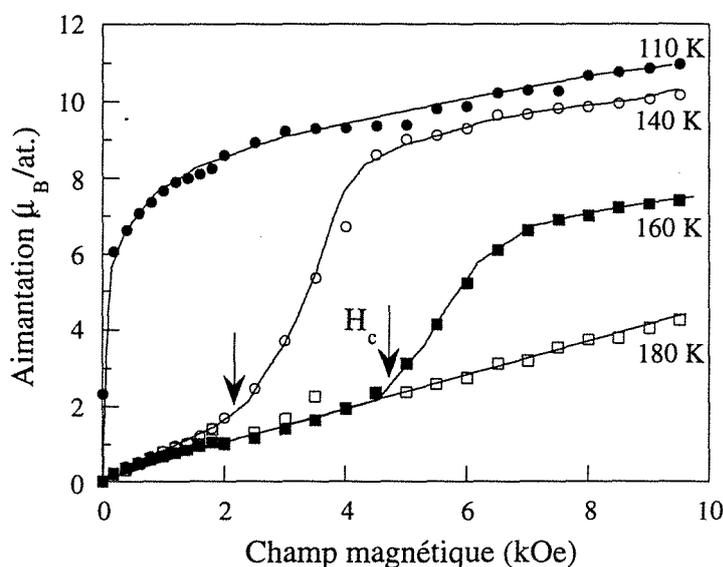


Fig. III-27 : courbes de première aimantation pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er à 110 K, 140 K, 160 K et 180 K. Le champ magnétique a été appliqué dans le plan (0001).

À 160 K et 140 K, il existe un domaine de faible susceptibilité caractéristique de l'ordre hélicoïdal qui s'étend jusqu'à H_c , au-delà duquel le film de dysprosium devient ferromagnétique.

À 110 K, le domaine de faible susceptibilité a disparu, ce qui traduit un ordre ferromagnétique dans le film de dysprosium, alors que la température est de 20 K supérieure à la température de Curie du dysprosium massif.

Quand la température est abaissée, l'ordre dans le dysprosium stable sous champ nul demeure ferromagnétique.

Ce type de mesures ayant été réalisé sur l'ensemble des échantillons, les évolutions thermiques du champ critique entre 10 K et 160 K sont présentées figure III-28 pour les films de dysprosium épitaxiés, entre yttrium et entre erbium.

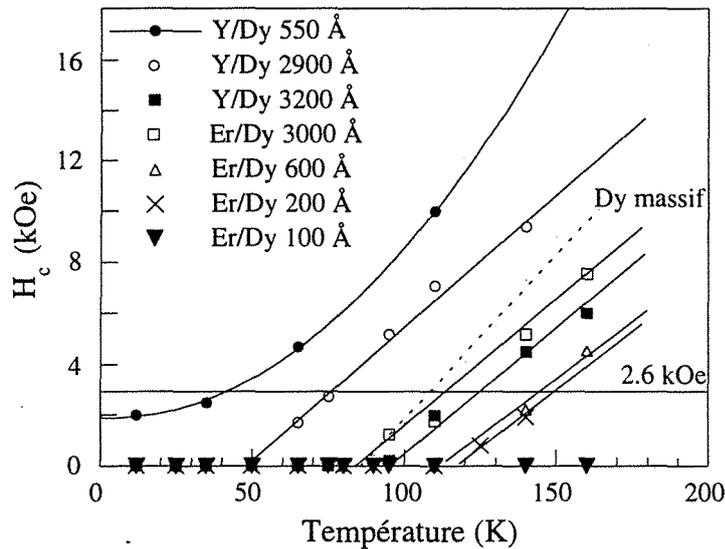


Fig. III-28 : évolutions thermiques du champ critique pour la série de films de dysprosium épitaxiés, entre yttrium et entre erbium. Les valeurs ont été déterminées à partir des cycles d'aimantation mesurés avec le champ magnétique appliqué dans le plan (0001).

Il est clair sur cette figure que, dans les échantillons Y/Dy/Y, la phase hélicoïdale du dysprosium est d'autant plus stable (en champ et en température) que l'épaisseur de dysprosium est faible. À l'inverse, la phase ferromagnétique est d'autant plus stable que la couche de dysprosium des échantillons Er/Dy/Y est mince.

La variation du champ critique à 140 K et à 110 K en fonction de la déformation selon c du film de dysprosium est présentée figure III-29.

Le champ magnétique H_c des films de dysprosium décroît lorsque la déformation selon c augmente. L'ordre ferromagnétique est donc stabilisé dans les films dont le réseau cristallin est étiré selon l'axe c, comme nous l'avons déduit de la variation de la température de Curie (figure III-26), et comme le montrent également les résultats obtenus sur Lu/Dy/Lu [63]. Notons que les champs critiques mesurés à 110 K et à 140 K sur le dysprosium massif (déformation nulle) sont respectivement de 3 kOe et 7.2 kOe

(voir figure I-8) ; ces valeurs (représentées par des étoiles) sont en accord avec les évolutions présentées ici.

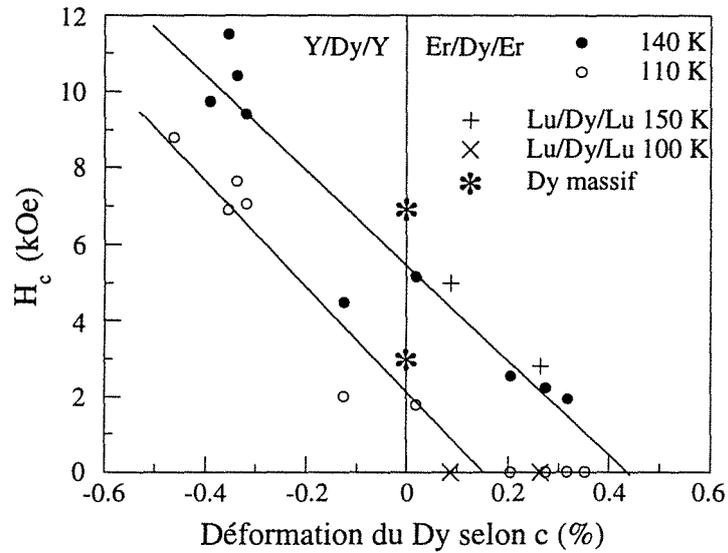


Fig. III-29: variation du champ critique à 140 K et à 110 K en fonction de la déformation selon c du film de dysprosium épitaxié. Les déformations négatives correspondent aux films épitaxiés entre yttrium ; les déformations positives correspondent aux films épitaxiés entre erbium. Les valeurs correspondant à deux films épitaxiés sur lutécium [63] et au dysprosium massif [5] sont reportées à titre de comparaison.

3.2 Etude par diffraction neutronique

L'étude par diffraction de neutrons de l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er a été menée en explorant aussi bien les réflexions (0002) le long de la direction c^* que la réflexion (10 $\bar{1}$ 0) le long de la direction a^* . Nous avons étudié les évolutions des intensités et des positions de ces pics de Bragg en fonction de la température et du champ magnétique appliqué. La première partie est consacrée à l'étude de la phase hélicoïdale et du paramètre c , alors que l'étude du paramètre dans le plan, et donc des distorsions magnétocristallines, est abordée dans la seconde partie.

Diffraction de neutrons le long de (0001) : angle de rotation dans la phase hélicoïdale et paramètre c

Les spectres mesurés à différentes températures pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er sont reportés figure III-30. Le domaine d'exploration présenté a été limité au voisinage de pics de Bragg des deux éléments.

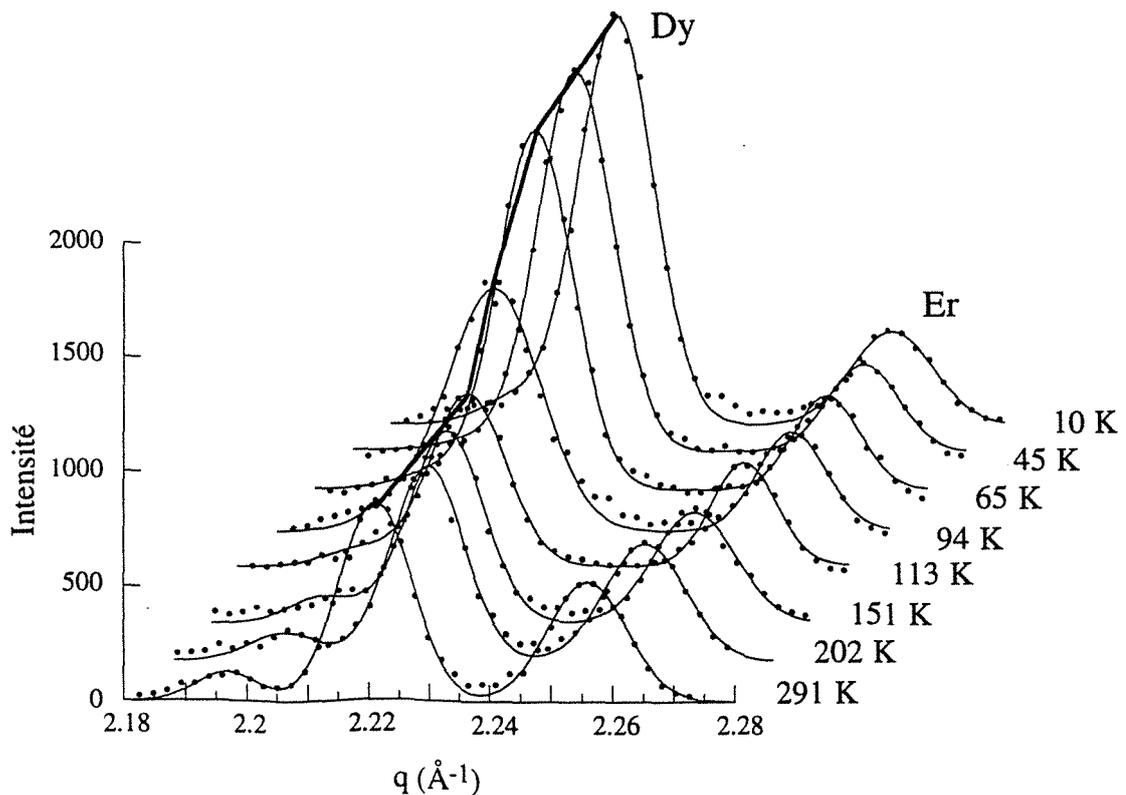


Fig. III-30 : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour des réflexions (0002) pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.

À température ambiante, on distingue le pic de Bragg du dysprosium situé en $q = 2.221 \text{ \AA}^{-1}$ et celui de l'erbium en $q = 2.256 \text{ \AA}^{-1}$. On remarquera le rapport des intensités entre ces deux pics, dû à la forte amplitude de diffusion du dysprosium par rapport à l'erbium ($b_{\text{Dy}}/b_{\text{Er}} = 2.14$). Les largeurs à mi-hauteur sont de 0.011 \AA^{-1} et 0.0105 \AA^{-1} respectivement pour le dysprosium et l'erbium. Le rapport du paramètre c du dysprosium sur celui de l'erbium est de 1.0157, alors qu'il est de 1.0107 dans les éléments massifs. Cela confirme la dilatation selon l'axe (0001) du réseau du dysprosium, observée par diffraction de rayons X.

Quand la température diminue, une contribution ferromagnétique apparaît nettement sur le pic du dysprosium à partir de 100 K, comme le montre l'évolution de l'intensité intégrée du pic du dysprosium en fonction de la température (figure III-31).

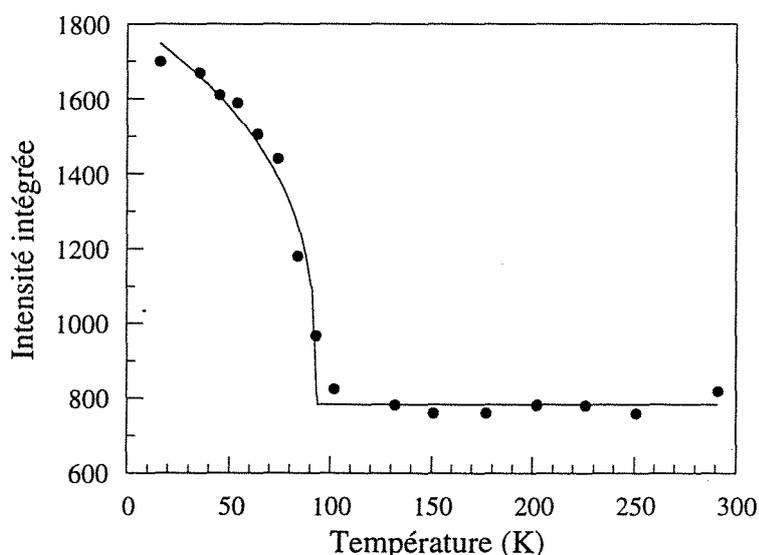


Fig. III-31 : évolution thermique de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) du dysprosium mesuré par diffraction de neutrons pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.

Dans la phase hélicoïdale, les positions des satellites magnétiques ont permis de déterminer l'angle de rotation entre les moments de dysprosium. Les valeurs déterminées pour ce film de dysprosium épitaxié entre erbium sont présentées sur la figure III-32 (carrés noirs), avec celles obtenues pour les films de dysprosium épitaxiés entre yttrium (ronds noirs et blancs), pour le dysprosium massif et pour un superréseau Dy/Lu [64]. L'angle de rotation mesuré dans le film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre erbium est nettement inférieur à celui de l'élément massif ; il demeure en revanche supérieur à celui déterminé dans les films de dysprosium épitaxiés sur lutécium, très certainement parce que les contraintes induites par l'erbium sont moindres que celles induites par le lutécium

(la différence de paramètre dans le plan entre le lutécium et l'yttrium est de 2.5 % alors qu'elle n'est que de 0.9% entre l'erbium et l'yttrium).

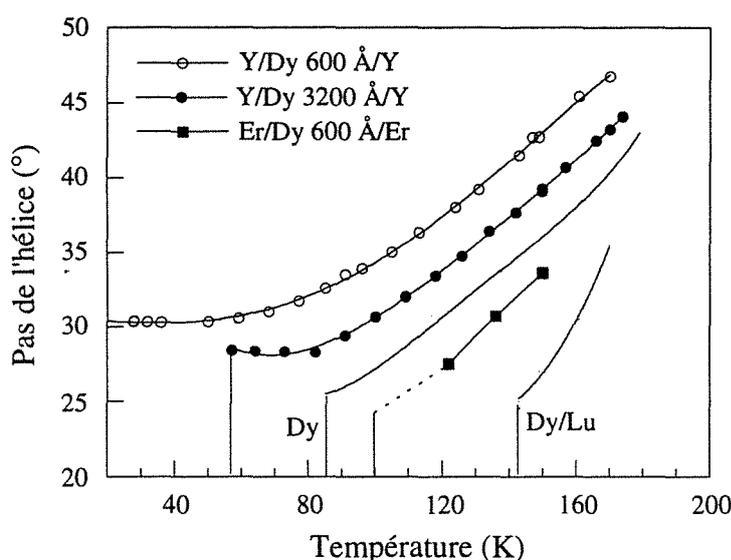


Fig. III-32 : évolutions thermiques de l'angle de rotation entre moments de dysprosium dans la phase hélicoïdale, mesuré par diffraction de neutrons, pour des films de dysprosium épitaxiés entre yttrium et entre erbium. Les courbes obtenues pour le dysprosium massif et pour un superréseau Dy/Lu [64] sont reportées à titre de comparaison.

Il apparaît clairement sur cette figure que l'angle de rotation entre les moments de dysprosium est d'autant plus petit que la température de disparition de la phase hélicoïdale est élevée et donc que le paramètre c du film de dysprosium est grand.

On en déduit que l'épitaxie d'un film de dysprosium modifie la barrière énergétique entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique, qui se trouve augmentée dans le cas de déformations induites α_2 négative et α_1 positive (épitaxie sur yttrium) et réduite dans le cas de déformations de signes opposés (épitaxie sur erbium).

Après avoir refroidi l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er en champ nul, un champ extérieur de 5.5 kOe a été appliqué dans le plan du film selon la direction de facile aimantation (11 $\bar{2}$ 0) du dysprosium ; différents spectres ont été collectés en élevant la température de l'échantillon sous champ.

Les spectres obtenus à 10 K sous champ nul et sous champ sont présentés figure III-33. L'application du champ magnétique a pour effet d'accroître légèrement l'intensité du pic de Bragg du dysprosium, mais sans le déplacer. Cela est tout à fait compatible avec l'état ferromagnétique stable sous champ nul : le réseau cristallographique du dysprosium était déjà étiré selon l'axe c sous champ nul et une expansion supplémentaire de paramètre n'est pas favorable. L'augmentation de l'intensité est probablement due à une diminution de la désorientation entre des domaines dans le plan.

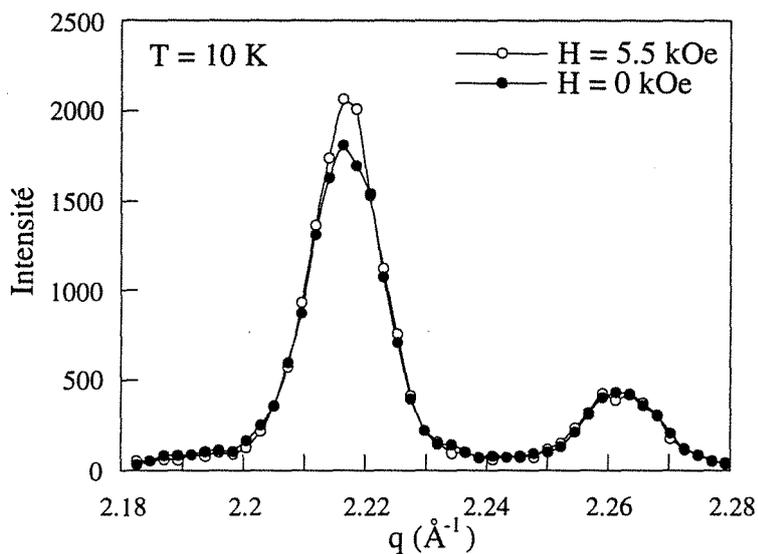


Fig. III-33: spectres de diffraction de neutrons obtenus à 10 K pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er, sous champ nul et sous un champ de 5.5 kOe appliqué dans le plan des couches.

L'évolution thermique du paramètre c en champ nul, ainsi que les valeurs mesurées sous champ en température croissante sont présentées sur la figure III-34.

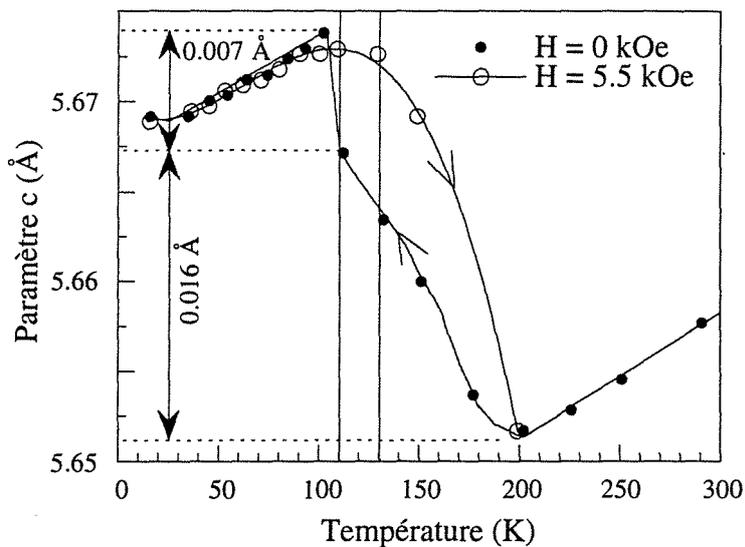


Fig. III-34: évolution thermique du paramètre c, déterminé par diffraction de neutrons, du film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre erbium. Les ronds noirs correspondent aux valeurs mesurées sous champ nul en température décroissante ; les ronds blancs correspondent aux valeurs mesurées sous un champ de 5.5 kOe appliqué dans le plan (0001), en température croissante.

Lorsque la température diminue sous champ nul, il se produit tout d'abord la contraction thermique habituelle avec une pente de $-0.007 \text{ \AA}/100 \text{ K}$, suivie d'une augmentation progressive à partir de 200 K, due à la distorsion α partielle qui accompagne la phase hélicoïdale.

Il n'apparaît pas de saut aussi nettement marqué que dans l'élément massif, mais l'expansion qui débute à 200 K s'accélère entre 110 K et 100 K, où elle atteint 0.1% sur un intervalle de 10 K. À partir de 100 K, le paramètre décroît jusqu'à basse température comme dans l'élément massif devenu ferromagnétique, avec une pente analogue à celle mesurée au-dessus de la température de Néel.

Cette augmentation plus rapide au voisinage de 105 K peut traduire la transition ferromagnétique entre 110 K et 100 K sous champ nul. Ceci confirme les résultats d'aimantation selon lesquels la transition se produirait 20 K au-dessus de la transition du dysprosium massif, c'est-à-dire à 105 K. Néanmoins, cette discontinuité n'est ni aussi abrupte ni aussi importante que dans l'élément massif.

L'apparence progressive de la transition peut ici aussi provenir d'inhomogénéités, comme le laisse également supposer l'évolution thermique de la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg (figure III-35).

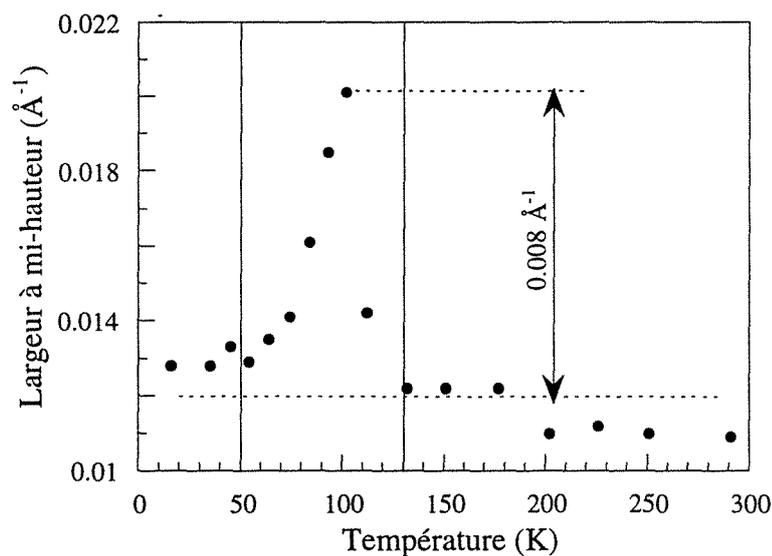


Fig. III-35 : évolution thermique de la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg (0002) du dysprosium, mesurée par diffraction de neutrons pour l'échantillon Er/Dy 600 $\text{\AA}/\text{Er}$.

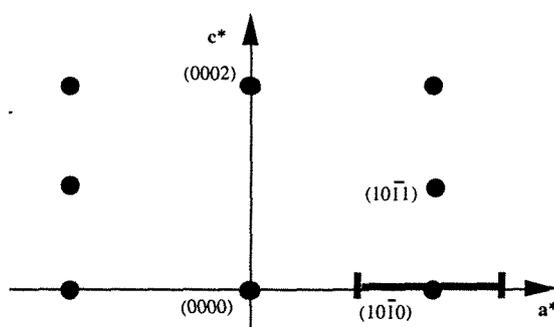
En effet, quand la température diminue, la largeur à mi-hauteur augmente à partir de 130 K puis diminue entre 100 K et 50 K, ce qui représente un élargissement maximal de 67% et donc une diminution de la cohérence au voisinage de la transition ferromagnétique, où elle est de l'ordre de 330 \AA .

L'évolution du paramètre c en température croissante sous champ (ronds blancs sur la figure III-34) suit la courbe obtenue en température décroissante dans le domaine de température 10 K - 100 K. Un écart important apparaît au-delà de 100 K : la décroissance liée à la transition vers la phase hélicoïdale commence aux environs de 130 K, c'est-à-dire 20 K au-dessus de la transition décelée en refroidissant l'échantillon sous champ nul. Notons qu'il peut s'ajouter des phénomènes d'hystérèse puisque la transition ferromagnétique-hélicoïdale est du premier ordre.

Diffraction de neutrons le long de a^* autour de $(10\bar{1}0)$: paramètre b et distorsions magnétocristallines

Si les mesures suivant la direction c^* renseignent sur la déformation de type α , elles n'apportent aucune information sur la distorsion γ dont il est admis qu'elle joue un rôle essentiel dans la transition ferromagnétique (voir paragraphe 3.6 du chapitre I).

Pour appréhender cette distorsion, une série de spectres a été mesurée le long de la direction a^* autour des réflexions $(10\bar{1}0)$ du dysprosium et de l'erbium :



L'ensemble des spectres obtenus à différentes températures est présenté figure III-36.

Le spectre à 300 K montre la présence d'un seul pic situé en $q = 2.0376 \text{ \AA}^{-1}$, ce qui correspond à une valeur du paramètre b (tel qu'il est défini figure I-3) de 3.0836 \AA . Le pic est de forme parfaitement gaussienne et sa largeur à mi-hauteur 0.0137 \AA^{-1} correspond à la résolution expérimentale.

Or, d'après les paramètres b des éléments massifs donnés au chapitre I, l'absence d'épitaxie conduirait à deux pics distincts situés en $q = 2.02 \text{ \AA}^{-1}$ pour le dysprosium et $q = 2.038 \text{ \AA}^{-1}$ pour l'erbium. Vu la résolution expérimentale, ils seraient parfaitement séparés. L'observation d'un pic unique permet de conclure que les paramètres des deux éléments sont les mêmes, ou tout du moins trop voisins pour être discernés l'un de l'autre, et que ce pic correspond à la fois aux contributions de l'erbium et du dysprosium. Cela est en accord avec une épitaxie de grande qualité et compatible avec la concordance entre les valeurs théorique et expérimentale du paramètre c mentionnée en début de chapitre (figure III-4).

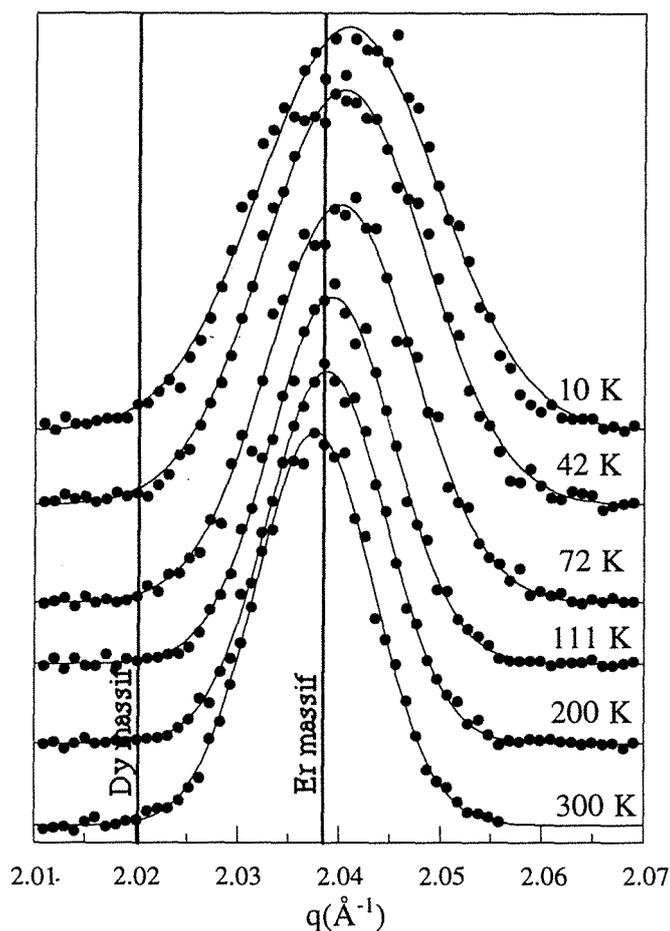


Fig. III-36 : spectres de diffraction de neutrons mesurés le long de la direction a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.

Les spectres obtenus à basses températures montrent qu'un élargissement se produit vers 110 K et se poursuit jusqu'aux plus basses températures. D'après l'allure du spectre à 10 K, l'élargissement observé correspondrait plutôt au dédoublement du pic initial.

La figure III-37 présente le spectre obtenu à 10 K, où les deux pics sont ajustés par des formes gaussiennes.

Le résultat de cet ajustement plaide en faveur de deux pics situés en $q = 2.038 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.047 \text{ \AA}^{-1}$, ce qui correspond à des paramètres b de 3.083 \AA et 3.069 \AA .

Les deux contributions de paramètres b différents peuvent s'interpréter par une distorsion orthorhombique γ des hexagones du dysprosium, distribuée selon les trois directions équivalentes de facile aimantation $(11\bar{2}0)$ (figure III-38). La contribution de l'erbium est superposée à ces pics.

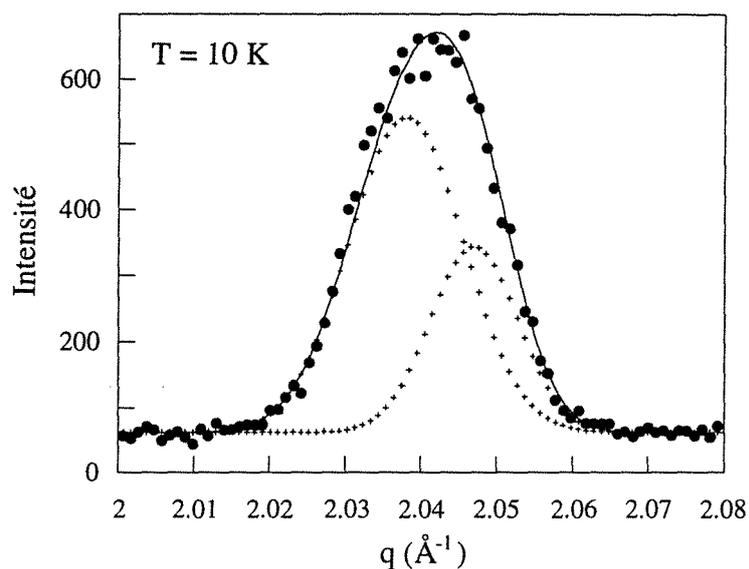


Fig. III-37 : spectre de diffraction de neutrons mesuré à 10 K le long de la direction a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er. La courbe en trait plein correspond à un ajustement constitué de la somme de deux gaussiennes (croix).

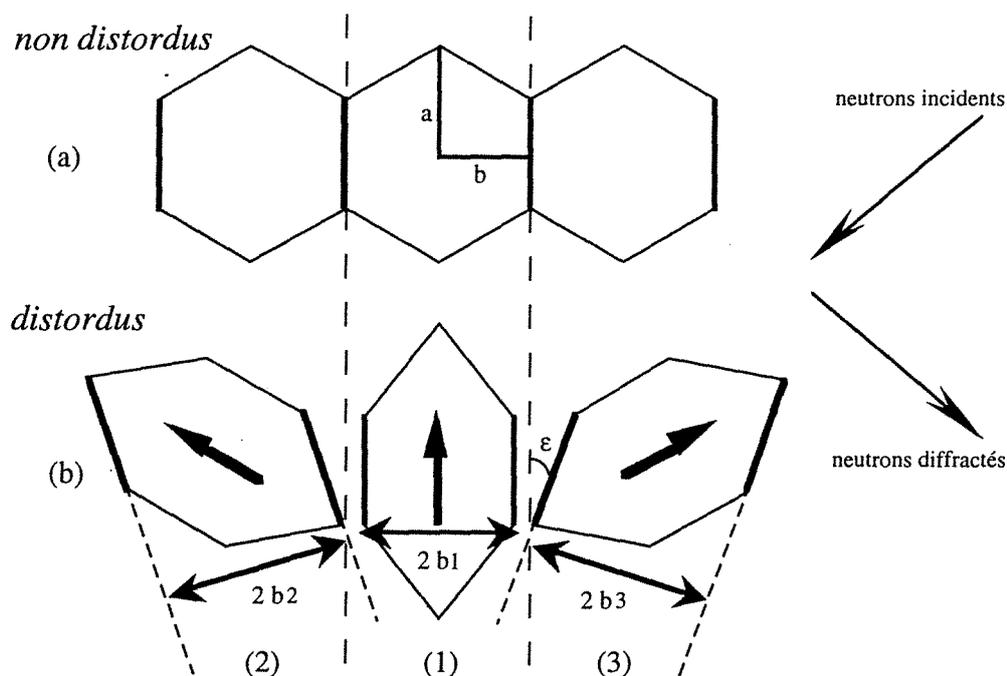


Fig. III-38 : représentation schématique de la distorsion orthorhombique du réseau du dysprosium selon les trois directions équivalentes de facile aimantation ((1), (2) et (3)). Lors de la diffraction de neutrons sur les plans $(10\bar{1}0)$ (dessinés en gras), une telle distorsion aléatoire conduit à l'observation de deux contributions : celle des plans espacés de $2b_1$ et celle des plans espacés de $2b_2$ ou $2b_3$, dont les distances interréticulaires sont identiques.

Considérons les hexagones non distordus représentés sur le schéma (a), où $2b$ est la distance séparant deux cotés parallèles. $2\pi/b$ représente bien la position du pic de Bragg correspondant à la réflexion sur ces plans, dessinés en traits gras.

S'il apparaît une distorsion avec dilatation de 0.2% selon l'axe vertical et une contraction de -0.5% selon la perpendiculaire à cet axe, on obtient une configuration distordue (1) où la distance entre les plans en réflexion a diminué de 0.5%.

Si la distorsion se produit selon l'une des deux autres directions de facile aimantation équivalentes, tournées de 60° , on se trouve dans les configurations 2 ou 3 ; dans cette situation, les plans de réflexion ont effectué une rotation ϵ de 0.2° , ce qui est très faible par rapport à la mosaïque dans le plan, estimée à 3° d'après les expériences de diffraction de rayons X. Ils restent donc en situation de réflexion et leur distance interréticulaire ($2b_2$ et $2b_3$) n'a diminué que de 0.024% par rapport à la situation non distordue.

Aussi, sur la figure III-37, le pic de droite correspond à la distorsion (1) alors que le pic de gauche provient des distorsions (2) et (3), auxquelles se superpose vraisemblablement la contribution de l'erbium.

Pour vérifier la validité de l'hypothèse stipulant que les deux pics proviennent de domaines distordus dont les orientations des aimantations sont différentes, nous avons appliqué un champ magnétique dans le plan des couches (verticalement par rapport à la figure III-38). L'objectif était de rendre le film de dysprosium monodomaine dans la configuration (1) et de conserver seulement une des deux contributions.

Les résultats obtenus à 10 K, 42 K et 111 K sont présentés figure III-39. Les spectres obtenus sous champ et sous champ nul figurent simultanément pour faciliter la comparaison.

À basse température, l'effet est tout à fait spectaculaire. L'application du champ renforce le pic situé à droite, c'est-à-dire celui issu de la configuration (1), au détriment de l'autre pic. Il y a augmentation de la proportion de domaines d'aimantation verticale et de distorsion γ selon cet axe.

La distorsion ne semble pas plus importante puisque le pic mesuré sous champ n'est pas décalé vers les grandes valeurs de q par rapport au pic situé à droite sur le spectre III-37. Au contraire, la structure monodomaine paraît entraîner une légère augmentation de paramètre b par rapport à celui associé aux domaines d'aimantation verticale observés sous champ nul.

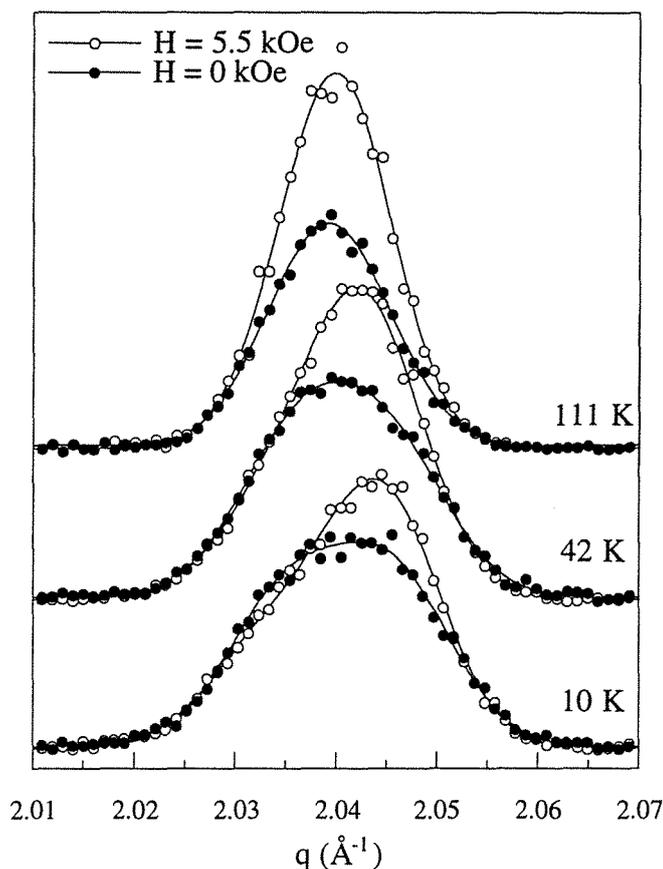


Fig. III-39 : spectres obtenus le long de a^* autour de la direction $(10\bar{1}0)$ pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er. Les spectres dont les mesures sont présentées par les points noirs ont été obtenus sous champ nul en température décroissante. Les spectres dont les mesures sont présentées par les points blancs ont été obtenus sous champ en température croissante.

À 111 K, seule une augmentation de l'intensité du pic original est observée. À cette température, le pic était unique en champ nul, c'est-à-dire qu'il n'y avait pas de distorsion γ et, d'après la courbe III-31, on se situait légèrement au-dessus de la transition ferromagnétique. L'application du champ magnétique, qui conduit à une augmentation de l'intensité du pic sans provoquer son élargissement ou son déplacement, ne provoque donc pas de distorsion, mais aligne les moments magnétiques dans la direction du champ. Toutefois, l'application du champ induit un accroissement de paramètre c (figure III-34), ce qui tendrait de nouveau à confirmer que la dilatation selon l'axe c en phase ferromagnétique et la distorsion γ ne sont pas totalement liées.

L'existence de domaines magnétiques petits n'est pas favorable dans un monocristal de dysprosium massif en raison de l'énergie de paroi qui leur est associée. Le comportement observé précédemment peut donc trouver son origine dans la présence des couches d'erbium : une distorsion homogène du film de dysprosium entraînerait une déformation

analogue dans l'erbium, défavorable pour l'erbium du point de vue élastique comme du point de vue magnétostrictif. La formation de petits domaines permettrait ainsi à l'erbium d'accommoder la distorsion du dysprosium sans accumuler une trop grande énergie élastique. Beach *et al.* [61] ont observé un phénomène analogue dans les superréseaux [Dy/Lu], où les couches de dysprosium se distordent en formant des domaines afin de minimiser l'énergie élastique dans les couches de lutécium voisines (voir le paragraphe 4.5 du chapitre I).

Sous l'application d'un champ magnétique, la structure ferromagnétique devient monodomaine et s'accompagne à basse température d'une distorsion de type γ homogène dans le film de dysprosium. Cette situation étant, nous l'avons vu, énergétiquement défavorable pour l'erbium, l'apparition de la structure monodomaine provoque une légère augmentation du paramètre b , c'est-à-dire une distorsion moindre.

La figure III-40 présente les évolutions thermiques du paramètre c et de la différence entre les paramètres b des deux contributions explicitées précédemment. Les variations du paramètre c ont été corrigées de l'effet de dilatation thermique, c'est-à-dire que la pente de $-0.007 \text{ \AA}/100 \text{ K}$ mesurée à haute température a été soustraite de la courbe présentée figure III-34.

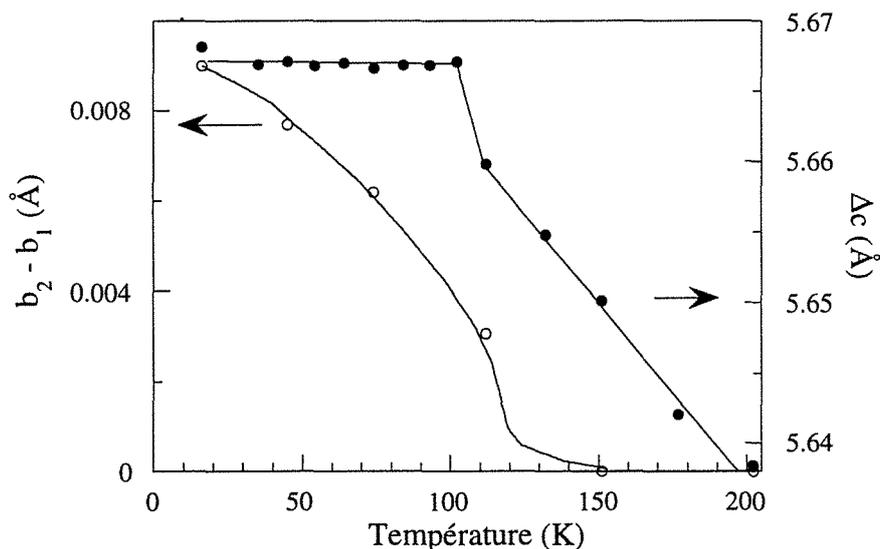


Fig. III-40 : évolutions thermiques du paramètre c , corrigé de l'effet de dilatation thermique, et de la différence entre les paramètres b des deux contributions observées à partir de 110 K. Ces résultats sont obtenus par diffraction neutronique pour un film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre erbium.

Il apparaît que le paramètre c corrigé de la dilatation thermique, constant au-dessus de 200 K, croît dans la phase hélicoïdale, où le mode de déformation α_2 n'est que

partiellement bloqué puis subit un saut à la transition ferromagnétique et demeure stable jusqu'à basse température.

Le paramètre b_2 étant relativement proche de la valeur de b dans l'hexagone non distordu, la différence $b_2 - b_1$ représente en fait l'effet de distorsion orthorhombique γ . La courbe présentée ci-dessus révèle une absence de distorsion au-dessus de 150 K, où le mode de déformation γ est donc totalement bloqué. La distorsion γ apparaît au voisinage de la transition ferromagnétique mais elle ne représente à 70 K que 2/3 de la distorsion observée à basse température. Ce comportement est différent de celui du dysprosium massif, pour lequel la distorsion orthorhombique se produit de façon brutale à la transition ferromagnétique, où elle atteint pratiquement sa valeur définitive.

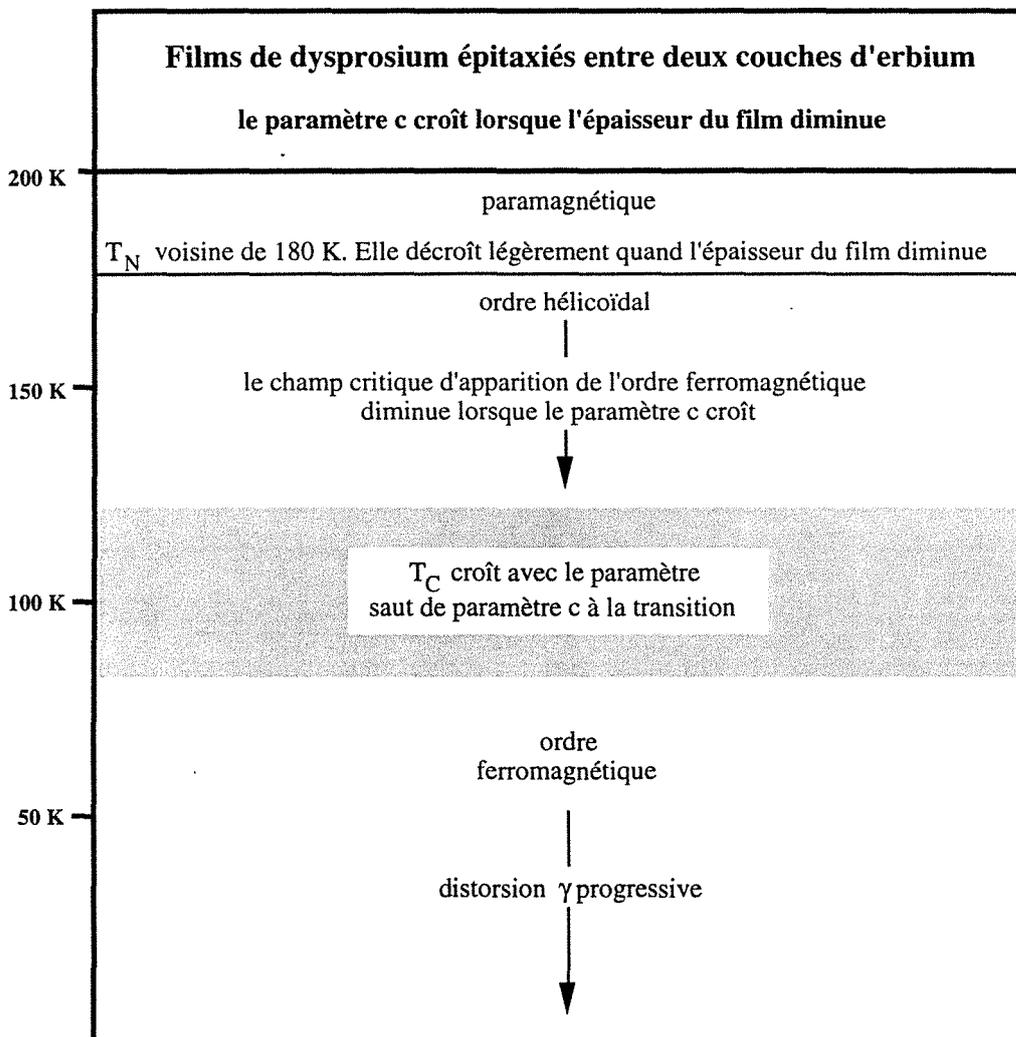
De nouveau, les modes de déformation γ et α_2 semblent moins liés que dans l'élément massif, vraisemblablement parce qu'ils ne provoquent pas la même augmentation d'énergie élastique dans les couches d'erbium voisines : la distorsion de type γ dans le film de dysprosium entraîne celle des couches d'erbium, tout à fait défavorable. C'est la raison pour laquelle la distorsion observée à la transition n'est que partielle ; elle s'accroît au fur et à mesure que la température décroît, lorsque les coefficients magnétostrictifs du dysprosium sont suffisamment élevés pour que le gain en énergie magnétoélastique que représente une distorsion supplémentaire compense le coût en énergie élastique dans l'erbium.

3.3 Récapitulatif

Les films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'erbium présentent un comportement magnétique étroitement lié à leur état de déformation épitaxiale ($\epsilon^{\alpha,2} > 0$ et $\epsilon^{\alpha,1} < 0$) et donc à bien des égards opposé à celui des films épitaxiés sur yttrium.

Dans le système Er/Dy/Er, la phase ferromagnétique se trouve d'autant plus stabilisée (en température et en champ) que le film est déformé, c'est-à-dire de faible épaisseur. Cette stabilisation est corroborée par l'observation d'un angle de rotation entre spins dans la phase hélicoïdale inférieur à celui du dysprosium massif ; ce décalage traduit par ailleurs un abaissement de la barrière énergétique entre les phases ferromagnétique et hélicoïdale.

Outre l'influence directe des déformations induites par l'erbium sur la température de transition ferromagnétique du dysprosium, la présence des couches d'erbium de part et d'autre du film de dysprosium conduit à une modification des effets magnétostrictifs qui accompagnent la transition : la distorsion de type γ a lieu progressivement et provoque l'apparition de domaines, afin de minimiser l'énergie élastique dans les couches d'erbium. Ces domaines sont détruits par l'application d'un champ magnétique.



4. Modélisation

4.1 Présentation du calcul

Pour mieux cerner l'influence des différents termes conduisant au déplacement de la température de Curie, nous avons effectué un calcul énergétique (voir annexe B) permettant d'obtenir des diagrammes tels que celui présenté à la figure I-25 pour le dysprosium massif.

En supposant que les constantes élastiques des deux éléments sont les mêmes et en négligeant, comme Evenson et Liu [31], le terme croisé C_{12}^α , l'énergie totale par atome (atomes de type A et de type B) s'écrit :

$$\begin{aligned}
 E = & \rho_A \left[\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\varepsilon_A^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\varepsilon_A^{\alpha,2})^2 + \frac{1}{2} C^\gamma (\varepsilon_A^\gamma)^2 \right] \\
 & + \rho_B \left[\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\varepsilon_B^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\varepsilon_B^{\alpha,2})^2 + \frac{1}{2} C^\gamma (\varepsilon_B^\gamma)^2 \right] \\
 & + \rho_A \left[-B_A^{\alpha,1} \varepsilon_A^{\alpha,1} - B_A^{\alpha,2} \varepsilon_A^{\alpha,2} - B_A^\gamma \varepsilon_A^\gamma \right] \\
 & + \rho_A E_{\text{éch.}}
 \end{aligned}$$

où l'on reconnaît successivement l'énergie élastique dans le matériau A, l'énergie élastique dans le matériau B, les énergies magnétoélastiques associées aux modes de déformation α et γ dans le matériau A, et l'énergie d'échange dans l'élément A. ρ_A et ρ_B sont les proportions (épaisseurs relatives) de chaque élément.

Dans la phase ferromagnétique, comme dans le dysprosium massif, les coefficients B_A^i sont reliés aux constantes élastiques et aux coefficients de magnétostriction par :

$$B_A^{\alpha,1} = C_{11}^\alpha \lambda_1, \quad B_A^{\alpha,2} = C_{22}^\alpha \lambda_2 \quad \text{et} \quad B_A^\gamma = \frac{C^\gamma \lambda^\gamma}{2}$$

Dans la phase hélicoïdale, la formule de l'énergie totale est modifiée en tenant compte de l'absence de distorsion γ et en remplaçant les termes $B_A^{\alpha,1}$ et $B_A^{\alpha,2}$, comme dans le modèle d'Evenson et Liu (voir paragraphe 3.5 du chapitre I), par :

$$\begin{aligned}
 (B_A^\gamma)_{\text{hél.}} &= 0 \\
 (B_A^{\alpha,1})_{\text{hél.}} &= (\lambda_1)_{\text{hél.}} C_{11}^\alpha \\
 (B_A^{\alpha,2})_{\text{hél.}} &= (\lambda_2)_{\text{hél.}} C_{22}^\alpha
 \end{aligned}$$

où les coefficients de magnétostriction $(\lambda_1)_{\text{hél.}}$ et $(\lambda_2)_{\text{hél.}}$, définis au paragraphe 3.5 du chapitre I, sont des combinaisons linéaires de λ_1 et λ_2 et fonctions de l'angle de rotation entre moments ω .

En choisissant comme référence le dysprosium massif hélicoïdal non déformé, $(E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}} = 0$ et $(E_{\text{éch.}})_{\text{fer.}}$ est égal à la barrière d'énergie d'échange donnée au paragraphe 3.3 du chapitre I.

L'état d'équilibre dans chaque phase magnétique est obtenu en minimisant l'énergie totale par rapport aux déformations dans les deux éléments et en imposant comme contrainte l'égalité des paramètres a dans le plan des deux matériaux ; cela est techniquement réalisé par le biais des multiplicateurs de Lagrange.

Les déformations à l'équilibre $\bar{\varepsilon}$ sont les suivantes :

- Au-dessus de T_N , les déformations sont purement épitaxiales et correspondent à celles déterminées au paragraphe 1.2 de ce chapitre : $\bar{\varepsilon}_{A(B)}^{\alpha,1} = \varepsilon_{A(B)}^{\circ\alpha,1}$ et $\bar{\varepsilon}_{A(B)}^{\alpha,2} = \varepsilon_{A(B)}^{\circ\alpha,2}$

- Dans la phase ferromagnétique,

$$\begin{aligned} \bar{\varepsilon}_A^\gamma &= \left(\frac{1}{2}\lambda^\gamma\right)\rho_A & \bar{\varepsilon}_B^\gamma &= \left(\frac{1}{2}\lambda^\gamma\right)\rho_A \\ \bar{\varepsilon}_A^{\alpha,1} &= \lambda_1 + \varepsilon_{A}^{\circ\alpha,1}(1-\eta) & \text{et} & \bar{\varepsilon}_B^{\alpha,1} = \varepsilon_{B}^{\circ\alpha,1}(1-\eta) \\ \bar{\varepsilon}_A^{\alpha,2} &= \lambda_2 + \varepsilon_{A}^{\circ\alpha,2}(1-\eta) & \bar{\varepsilon}_B^{\alpha,2} &= \varepsilon_{B}^{\circ\alpha,2}(1-\eta) \end{aligned}$$

où :

$$\eta = \frac{\lambda_1}{3(\Delta a / a)} - \frac{\lambda_2}{2(\Delta a / a)} \text{ avec } \frac{\Delta a}{a} = \frac{(a_B^\circ - a_A^\circ)}{\langle a^\circ \rangle}$$

Pour le système Dy/Er, η est positif et inférieur à un, si bien que les déformations de type α sont égales aux déformations spontanées mesurées dans l'élément massif, augmentée d'une partie des déformations induites par épitaxie. En particulier, $\varepsilon_{A}^{\circ\alpha,2}$ étant positive, la déformation $\bar{\varepsilon}_A^{\alpha,2}$ à l'équilibre en phase ferromagnétique est supérieure à λ_2 .

Pour le système Dy/Y, $\varepsilon_{A}^{\circ\alpha,2}$ et η sont négatifs : la déformation $\bar{\varepsilon}_A^{\alpha,2}$ est inférieure à λ_2 .

Notons que, $\bar{\varepsilon}_A^\gamma$ et $\bar{\varepsilon}_B^\gamma$ ne dépendant que du matériau A, la somme de l'énergie magnétostrictive de type γ pour A et du terme d'énergie élastique γ pour B n'est fonction que de l'élément A. Elle est égale à $-\frac{1}{2}\rho_A^2 C^\gamma \left(\frac{1}{2}\lambda^\gamma\right)^2$.

- Dans la phase hélicoïdale :

$$\begin{aligned} \bar{\varepsilon}_A^Y &= 0 & \bar{\varepsilon}_B^Y &= 0 \\ \bar{\varepsilon}_A^{\alpha,1} &= (\lambda_1)_{\text{hél.}} + \varepsilon_A^{\circ\alpha,1}(1 - \eta_{\text{hél.}}) & \text{et} & \bar{\varepsilon}_B^{\alpha,1} = \varepsilon_B^{\circ\alpha,1}(1 - \eta_{\text{hél.}}) \\ \bar{\varepsilon}_A^{\alpha,2} &= (\lambda_2)_{\text{hél.}} + \varepsilon_A^{\circ\alpha,2}(1 - \eta_{\text{hél.}}) & & \bar{\varepsilon}_B^{\alpha,2} = \varepsilon_B^{\circ\alpha,2}(1 - \eta_{\text{hél.}}) \end{aligned}$$

Le terme $\eta_{\text{hél.}}$ est obtenu en substituant $(\lambda_1)_{\text{hél.}}$ et $(\lambda_2)_{\text{hél.}}$ à λ_1 et λ_2 dans l'expression de η .

Les énergies calculées à partir de ces déformations permettent d'analyser l'influence de divers paramètres, tels que les contraintes épitaxiales ou l'échange, sur l'équilibre énergétique du système.

4.2 Diagrammes énergétiques

Influence de l'énergie magnétoélastique

Les figures III-41 et III-42 présentent deux diagrammes correspondant à un film de dysprosium d'épaisseur relative 0.75 épitaxié sur yttrium et sur erbium ; hormis les paramètres cristallins des éléments, ils ont été obtenus à partir de conditions initiales rigoureusement identiques, avec en particulier l'angle de rotation entre moments déterminé dans le dysprosium massif. Ils doivent être comparés au diagramme obtenu pour le dysprosium massif au chapitre I (figure I-25).

- La ligne horizontale indiquée par des croix, représente l'énergie élastique en phase paramagnétique E° , due aux déformations épitaxiales *seules*. Elle est nulle dans le dysprosium massif ; elle est ici positive pour les deux systèmes car elle dépend des carrés de déformations et non de leur signe. Elle est plus élevée dans le cas de l'épitaxie sur yttrium, car la différence de paramètre entre dysprosium et yttrium est supérieure à celle entre dysprosium et erbium.
- La courbe symbolisée par les ronds blancs est la somme de l'énergie précédente et de l'énergie magnétoélastique $(E^\circ_{\text{me.}})_{\text{hél.}}$ qu'aurait le système en phase hélicoïdale, s'il ne subissait pas de déformations autres que celles liées à l'épitaxie (ε°) (données au paragraphe 1.2 en début de chapitre). L'énergie magnétoélastique dépendant linéairement des déformations, ce terme est positif dans le cas de l'épitaxie sur yttrium et négatif dans le cas de l'épitaxie sur erbium. Cette énergie est la courbe de base remplaçant l'horizontale $E = 0$ du dysprosium massif (figure I-25) ; elle correspond à l'énergie totale de la phase hélicoïdale du dysprosium $(E)_{\text{hél.}}$ qui ne subirait pas d'autre déformation que celles induites par l'épitaxie.

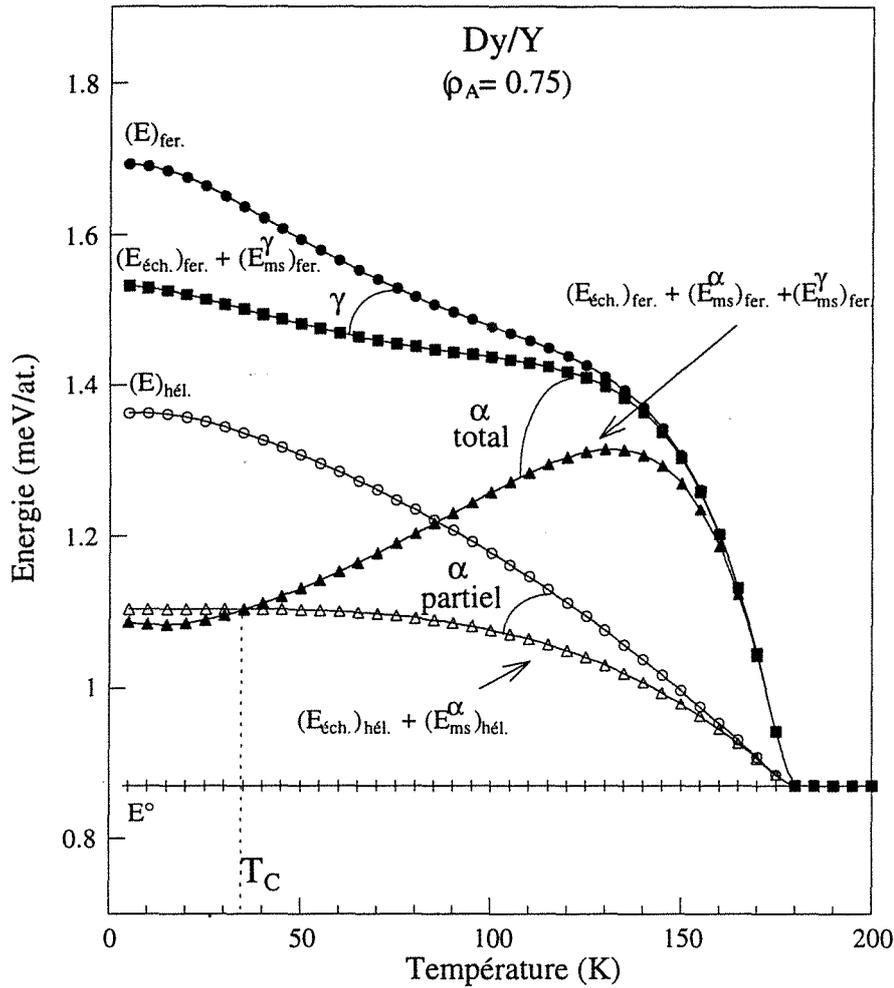


Fig. III-41 : diagramme énergétique du dysprosium dans un système épitaxié idéal, constitué de dysprosium (d'épaisseur relative 0.75) et d'yttrium. Les paramètres utilisés pour cette modélisation sont ceux du dysprosium massif.

- La courbe en ronds noirs est la somme des énergies E° , $(E^\circ_{me.})_{fer.}$ et $\Delta E_{éch.}$, où $(E^\circ_{me.})_{fer.}$ est l'énergie magnétoélastique qu'aurait le système en phase ferromagnétique, s'il ne subissait pas de déformations autres que celles liées à l'épitaxie ; il s'agit de l'énergie totale de la phase ferromagnétique $(E)_{fer.}$ du matériau uniquement déformé par épitaxie. En l'absence de toute autre déformation, la phase hélicoïdale est donc la phase stable.
- Les carrés noirs représentent l'énergie de la phase ferromagnétique qui, outre la déformation épitaxiale, subit la déformation de type γ . Dans les deux cas présentés ici, le gain en énergie magnétostrictive de type γ est plus faible que dans l'élément massif. Cela s'explique par le fait que, si la distorsion γ permet un gain d'énergie magnétostrictive dans le dysprosium, elle entraîne un coût en énergie élastique dans les couches voisines.

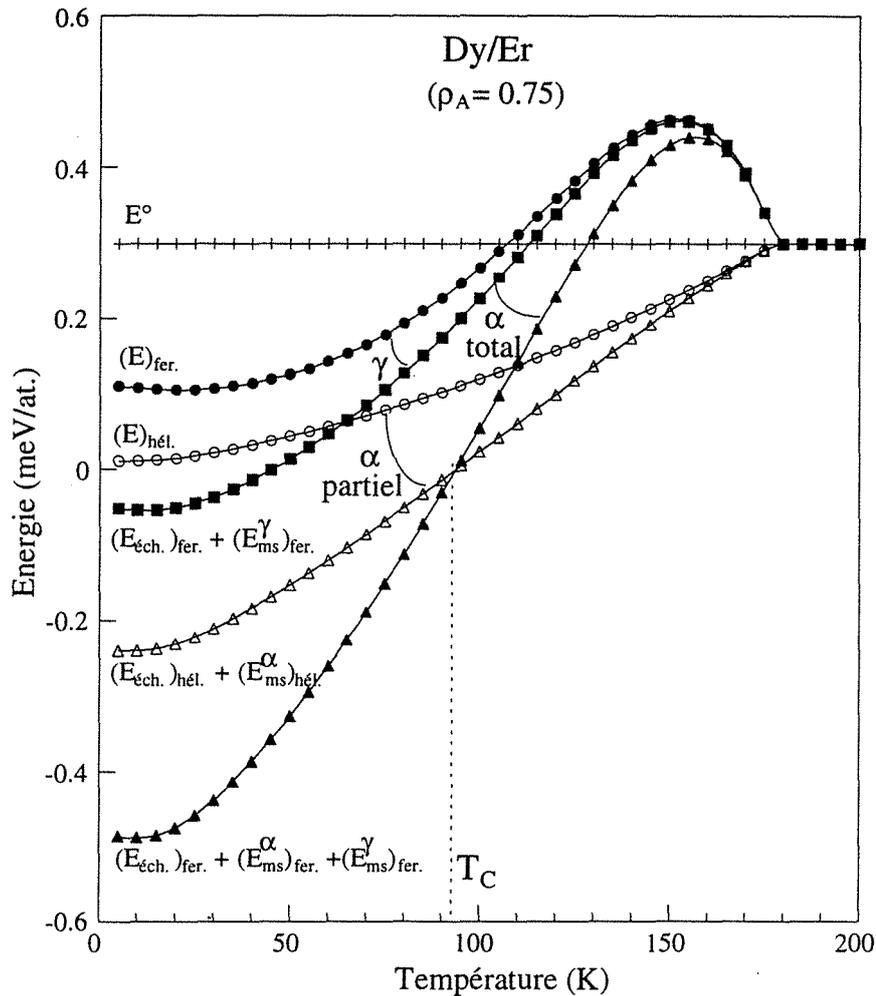


Fig. III-42 : diagramme énergétique du dysprosium dans un système épitaxié idéal, constitué de dysprosium (d'épaisseur relative 0.75) et d'erbium. Les paramètres utilisés pour cette modélisation sont ceux du dysprosium massif.

Dans le cas de l'épitaxie sur yttrium, et contrairement au cas du dysprosium massif, cette courbe ne croise pas la courbe de base $(E)_{\text{hél.}}$. En l'absence de déformation de type α , la phase hélicoïdale est stable jusqu'à basse température. L'épitaxie tend donc, du point de vue de la distorsion γ , à abaisser la température de Curie. Dans le cas de l'épitaxie sur erbium, cet effet demeure mais est atténué par l'énergie magnétoélastique due aux déformations α épitaxiales.

- La courbe représentée par les triangles noirs est l'énergie totale de la phase ferromagnétique, en présence de déformations de type γ et α , compte tenu des déformations épitaxiales. La différence entre cette courbe et la précédente (carrés noirs) correspond donc au gain d'énergie magnétostrictive obtenu en phase ferromagnétique par la déformation α totale.

- La courbe représentée par les triangles blancs est l'énergie totale de la phase hélicoïdale, en présence des déformations α partielles, compte tenu des déformations épitaxiales. Le gain d'énergie magnétostrictive obtenu en phase hélicoïdale par la déformation α partielle correspond à la différence entre cette courbe et celle symbolisée par les ronds blancs.

Il apparaît que les gains d'énergie magnétostrictive réalisés lors des déformations α en phase ferromagnétique ou hélicoïdale sont fortement influencés par l'état de déformation épitaxiale du dysprosium (qui se traduit sur ces diagrammes par l'évolution de l'énergie magnétoélastique due aux déformations épitaxiales : $(E)_{\text{hél.}} \text{ puisque } (E_{\text{éch.}})_{\text{hél.}}=0$).

La température de transition ferromagnétique (le point d'intersection entre les courbes indiquées par les triangles noirs et par les triangles blancs) est essentiellement influencée par la différence entre les énergies magnétostrictives dues à la déformation α partielle en phase hélicoïdale et à la déformation α totale en phase ferromagnétique. Il apparaît que la transition ferromagnétique est considérablement retardée dans le film de dysprosium épitaxié sur yttrium, mais qu'elle n'est que légèrement avancée dans le film de dysprosium épitaxié sur erbium.

Si le modèle rend compte de façon satisfaisante des résultats présentés dans ce chapitre dans le cas de l'épitaxie sur yttrium, il semble insuffisant pour rendre compte de l'importance de l'augmentation de T_C dans le cas de l'épitaxie sur erbium. Cela conduit à introduire un facteur supplémentaire, tel que la modification de l'échange ; l'échange était effectivement supposé identique dans les systèmes précédents, puisque l'évolution thermique de l'angle de rotation entre spins utilisée pour le calcul était la même dans les deux cas.

Influence de l'échange

Le diagramme présenté ci-dessous (figure III-43) a été calculé en reprenant le cas de la figure III-42 et en ne modifiant que l'évolution thermique de l'angle de rotation entre spins. La valeur de cet angle à la transition a été choisie à 22° , afin de tenir compte de la réduction observée par rapport au dysprosium massif dans le cas de l'épitaxie sur erbium (figure III-32).

Il apparaît que, dans leur ensemble, les énergies liées à la phase ferromagnétique sont diminuées par rapport au diagramme III-42. Si l'on considère les énergies totales des phases magnétiques, la courbe en triangles noirs coupe celle en triangles blanc aux environs de 100 K, ce qui correspond à une augmentation de T_C d'approximativement 10 K par rapport au diagramme III-42 et de plus de 20 K par rapport au diagramme I-25.

L'introduction dans le modèle d'un abaissement de la barrière d'échange se traduit donc par un effet sur T_C aussi important que celui lié à l'énergie magnétoélastique due à l'épitaxie. La prise en compte de la modification de l'échange est donc fondamentale.

Dans le cas du système Dy/Y, il faudrait de même considérer l'augmentation de l'angle de rotation par rapport au massif, ce qui aurait pour conséquence de "remonter" les trois courbes correspondant à la phase ferromagnétique et de retarder encore la transition ferromagnétique.

Il apparaît finalement que si l'épitaxie sur yttrium a facilement tendance à stabiliser la phase hélicoïdale, ce qui est visible par une modélisation simple, l'influence de l'épitaxie sur erbium est moindre et nécessite une modélisation plus fine.

Cette observation explique l'allure de la courbe présentée figure III-26, où l'augmentation de la température de Curie en fonction de la déformation du dysprosium selon c est plus marquée pour le système Y/Dy/Y que pour le système Er/Dy/Er.

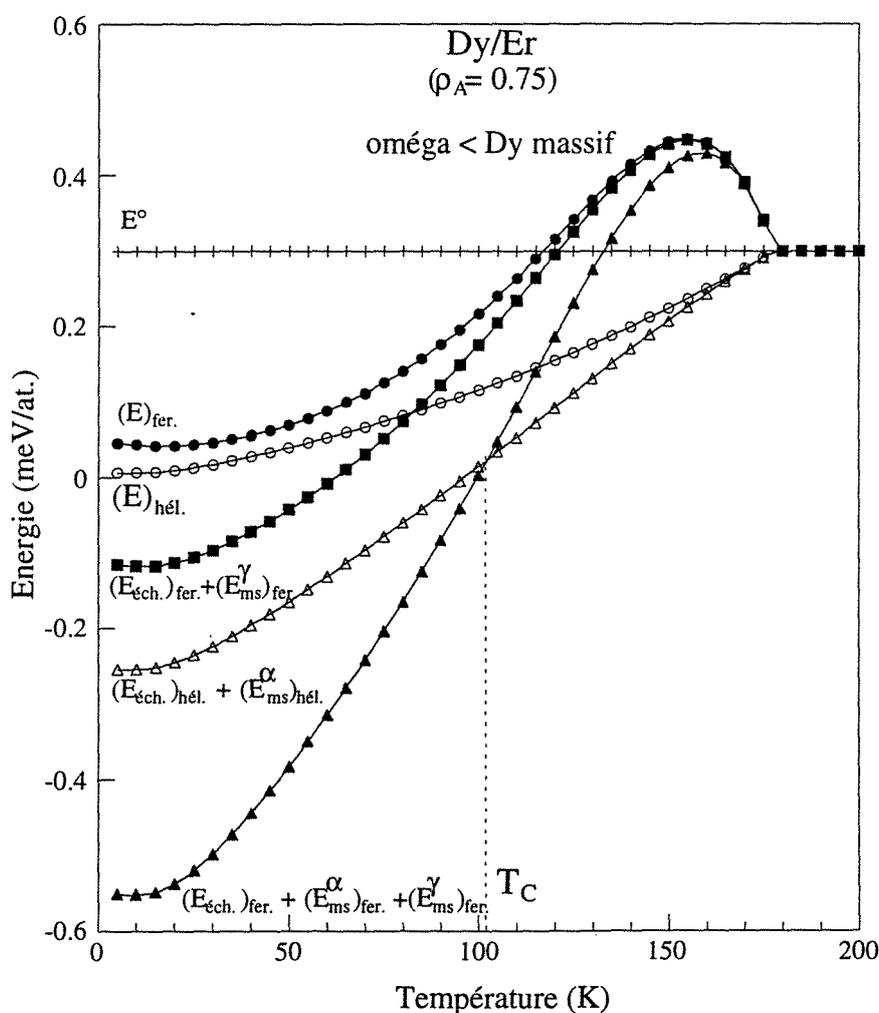


Fig. III-43 : diagramme énergétique du dysprosium dans un système épitaxié idéal, constitué de dysprosium (d'épaisseur relative 0.75) et d'erbium. La modélisation considère une modification de l'échange par rapport au dysprosium massif (via l'angle de rotation entre spins dans la phase hélicoïdale).

4.3 Evolutions des paramètres

Cette modélisation permet également de rendre compte des évolutions thermiques des paramètres. Les variations des paramètres c dans le dysprosium massif et dans le système Dy/Y, où l'épaisseur relative de dysprosium est 0.6, sont présentées à la figure III-44. Ces courbes sont à comparer à celles obtenues expérimentalement (figure III-11).

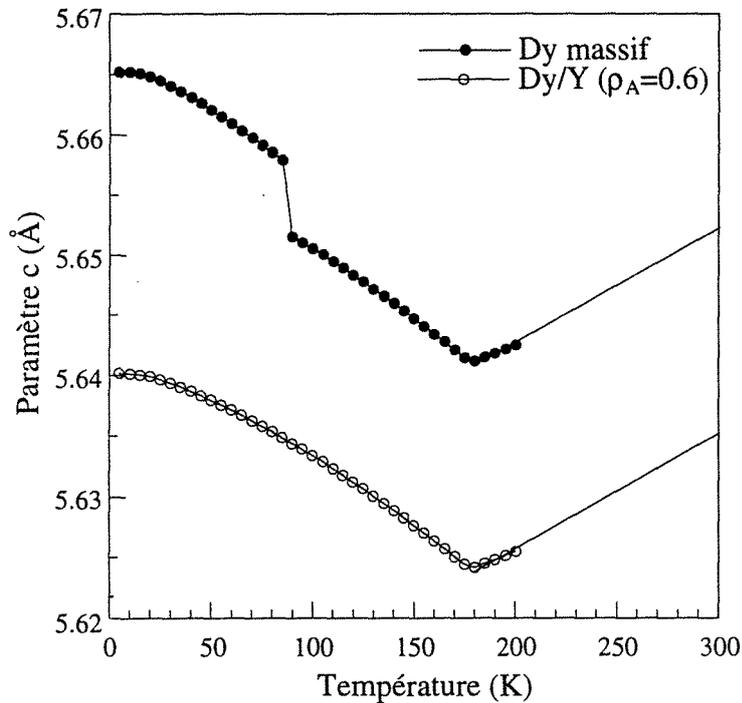


Fig. III-44 : évolutions thermiques des paramètres c du dysprosium massif et du dysprosium dans un système épitaxié idéal à base de dysprosium et d'yttrium (d'épaisseur relative de dysprosium = 0.6).

Le paramètre c du dysprosium épitaxié sur yttrium est inférieur à la valeur du massif dès la température ambiante, en raison des contraintes épitaxiales. Quand la température diminue, il subit la contraction thermique classique jusqu'à T_N , puis augmente car la phase hélicoïdale permet une déformation α_2 partielle. Le saut de paramètre est en revanche supprimé, car la transition ferromagnétique est bloquée pour cette épaisseur de dysprosium.

5. Conclusion

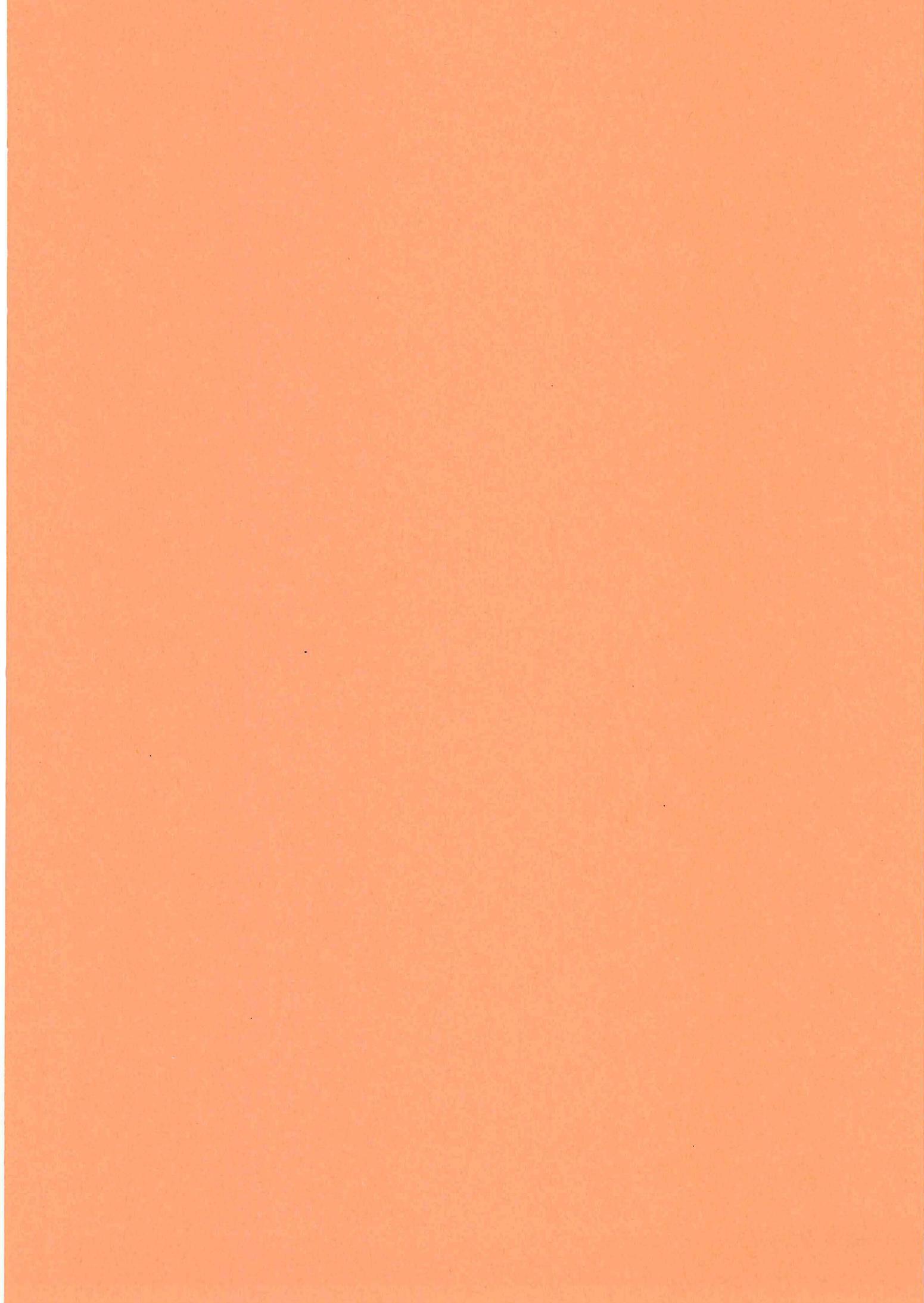
La conclusion de ce chapitre est assez nette. Les films de dysprosium épitaxiés et déformés dans le sens de la déformation spontanée qui apparaît dans l'élément massif à la transition ferromagnétique voient leur température de Curie augmenter. Les films déformés en sens inverse voient leur température de Curie diminuer.

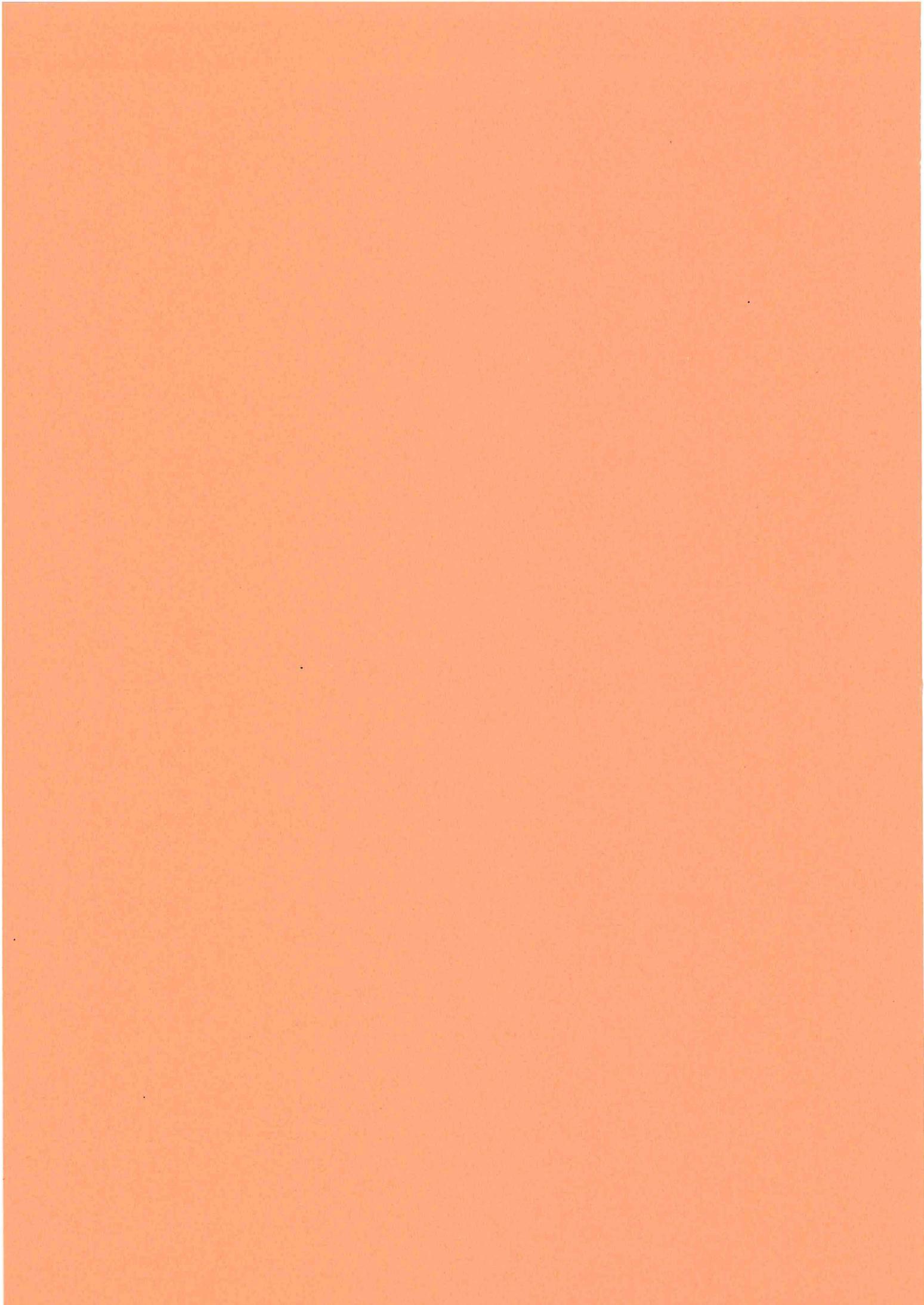
Cette affirmation tranchée ne doit pas faire oublier que, dans les systèmes épitaxiés, la déformation de type γ est toujours défavorable à la transition et que seule est favorable la différence entre les énergies liées aux déformations α totale (en phase ferromagnétique) et partielle (en phase hélicoïdale).

Il faut aussi garder en mémoire que l'énergie magnétoélastique n'est qu'un des facteurs de stabilité des phases magnétiques, et que le deuxième facteur qu'est l'énergie d'échange varie également dans les systèmes épitaxiés, comme le traduit l'évolution de l'angle de rotation entre spins.

Enfin, la modélisation basée sur les travaux de Callen et Callen [29] montre la justesse des analyses développées dans les années 70.







Chapitre IV

Comportement magnétique de superréseaux Dy/Er

Après l'étude du comportement magnétique des films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium et d'erbium, nous abordons celle, plus complexe, des superréseaux Dy/Er, dont nous n'avons trouvé aucune trace dans la littérature.

Dans de tels systèmes, les situations du dysprosium et de l'erbium sont à bien des égards opposées :

- (i) l'anisotropie de l'erbium conduit à une direction de facile aimantation parallèle à l'axe c alors que celle du dysprosium est contenue dans le plan de base.
- (ii) le raccordement des réseaux cristallins dans le plan de base implique dans le dysprosium des déformations de type α favorables à la transition ferromagnétique et, dans l'erbium, des déformations de type α défavorables à la transition ferromagnétique dans cet élément.
- (iii) le dysprosium est susceptible de présenter une déformation γ , alors que ce type de déformation orthorhombique ne se rencontre pas dans l'erbium massif.

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'étude de la structure cristalline des superréseaux, réalisée par diffraction de rayons X aux grands angles. Nous présentons ensuite l'étude de leurs comportements magnétiques, effectuée de nouveau par diffraction neutronique et mesures d'aimantation. Les résultats obtenus ont montré qu'il était pertinent de regrouper les superréseaux en trois catégories, selon l'épaisseur de leurs

couches d'erbium : importante (supérieure à 100 Å), "intermédiaire" (entre 20 Å et 100 Å) et faible (inférieure à 20 Å). C'est par conséquent de cette manière que sera structurée la présentation de notre étude.

1. Structure cristalline

Les expériences de diffraction de rayons X réalisées aux grands angles sont de deux types :

- (i) le dispositif CGR théta-60 a été utilisé pour collecter des spectres sur l'ensemble du domaine angulaire, en particulier pour repérer les positions des pics de surstructure nucléaire et déterminer la modulation chimique ;
- (ii) le dispositif Philips haute résolution a permis de localiser précisément les réflexions de Bragg du superréseau, du substrat, des couches tampons, et de comparer les paramètres c moyens d'un échantillon à l'autre.

Un spectre de diffraction typique obtenu à l'aide du diffractomètre CGR théta-60 sur le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]_{x50}$ est présenté figure IV-1.

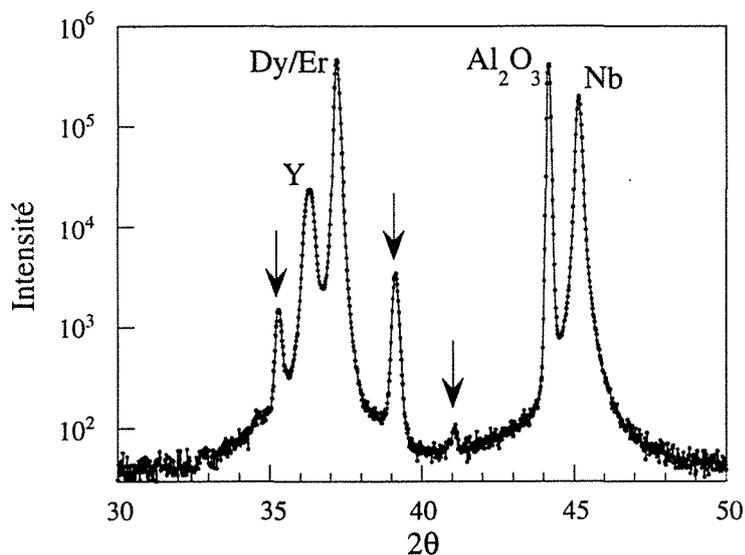


Fig. IV-1 : spectre de diffraction de rayons X pour le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]_{x50}$.

Les pics de surstructure nucléaire sont indiqués par des flèches.

Le pic situé en $2\theta = 37.14^\circ$ correspond au pic de Bragg moyen (0002) du superréseau. Les pics en $2\theta = 36.26^\circ$, $2\theta = 44.18^\circ$ et $2\theta = 45.15^\circ$ sont les réflexions (0002) de l'yttrium, (11 $\bar{2}$ 0) du substrat et (110) du niobium. Les pics de plus faible intensité indiqués par des flèches sont dus à la modulation chimique du superréseau ; ils

apparaissent aux positions $2\theta = 35.2^\circ$, $2\theta = 39.07^\circ$ et $2\theta = 41.01^\circ$, ce qui révèle une période de 57 Å.

La largeur à mi-hauteur du pic principal est de 0.0696° , révélant une cohérence cristalline de 780 Å, c'est-à-dire approximativement 14 bicouches, selon la direction de croissance (0001). La largeur à mi-hauteur des satellites nucléaires, du même ordre de grandeur, indique que la périodicité de la structure est maintenue sur la longueur de cohérence cristalline.

Les résultats obtenus pour l'ensemble des échantillons avec le dispositif de diffraction haute résolution sont résumés dans le tableau suivant :

Superréseau	Al ₂ O ₃		Dy/Er		
	position θ	position θ	paramètre c	largeur mi-h.	long. coh.
[Dy(35Å)/Er(111Å)]x47	22.086	18.667	5.589	0.0664	820
[Dy(34Å)/Er(23Å)]x50	22.087	18.590	5.611	0.0696	780
[Dy(60Å)/Er(60Å)]x60	22.086	18.589	5.612	0.0563	960
[Dy(70Å)/Er(59Å)]x20	22.087	18.620	5.603	0.0729	740
[Dy(19Å)/Er(19Å)]x40	22.084	18.628	5.600	0.0633	860
[Dy(35Å)/Er(11Å)]x80	22.086	18.558	5.621	0.0633	860

Le paramètre c moyen du superréseau, déterminé d'après la position du pic de Bragg (0002), augmente régulièrement avec le rapport de l'épaisseur des couches de dysprosium sur l'épaisseur des couches d'erbium, comme cela est visible sur la figure IV-2 (ronds noirs).

Les résultats expérimentaux sont comparés au paramètre c moyen théorique, déduit du calcul d'élasticité présenté au chapitre III (paragraphe 1.2). Quand l'épaisseur relative de dysprosium augmente, le paramètre a croît continûment depuis la valeur dans l'erbium massif et tend vers celle rencontrée dans le dysprosium massif. Cette augmentation de paramètre dans le plan s'accompagne de la diminution du paramètre c perpendiculaire au plan, à la fois dans les couches d'erbium et dans les couches de dysprosium : le paramètre c du dysprosium, dilaté dans les superréseaux à faible épaisseur de dysprosium, tend vers le paramètre c de l'élément massif ; le paramètre c de l'erbium est contracté au fur et à mesure que l'épaisseur de dysprosium augmente.

Le paramètre c moyen théorique croît avec le rapport de l'épaisseur des couches de dysprosium sur l'épaisseur des couches d'erbium, et suit raisonnablement le paramètre expérimental, confirmant que l'épitaxie entre couches est presque parfaite.

La couche tampon et la couche de protection d'yttrium ne semblent pas avoir d'influence importante.

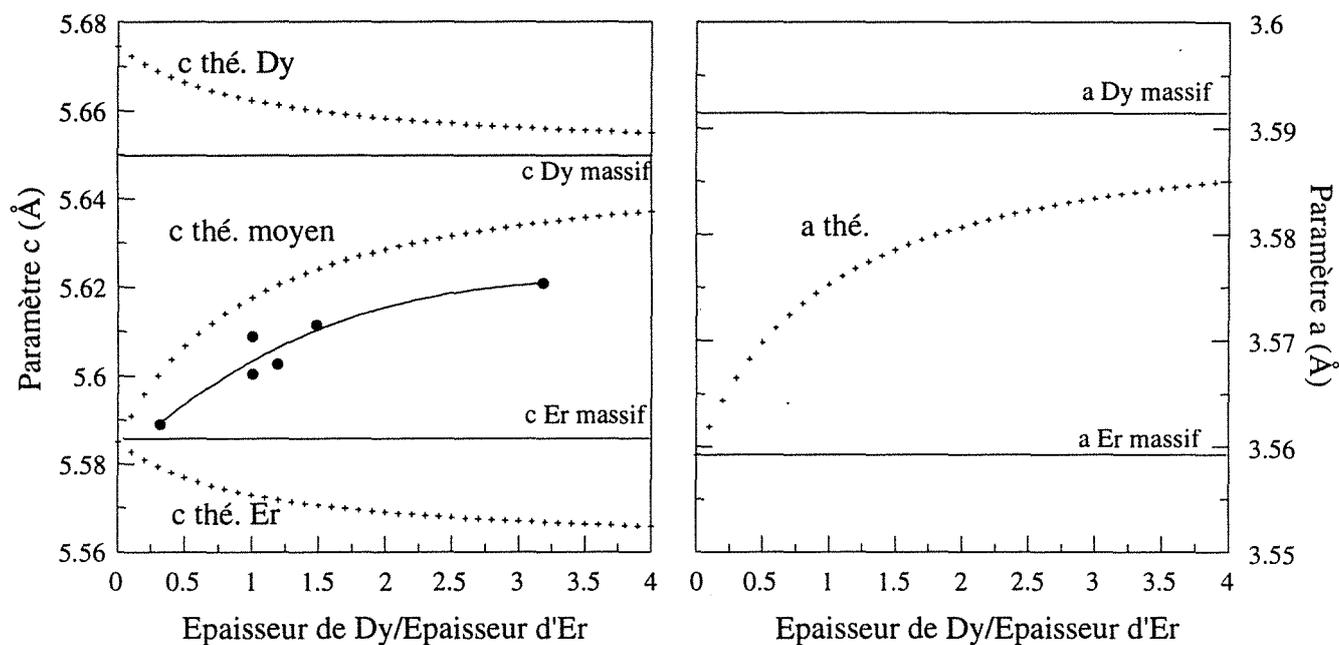


Fig. IV-2 : variation des paramètres a et c théoriques des superréseaux Dy/Er en fonction du rapport des épaisseurs des couches de dysprosium et d'erbium. Les paramètres c expérimentaux sont indiqués par les ronds noirs.

Les interfaces chimiques entre les différentes couches des superréseaux n'ont pas été spécifiquement étudiées. Retenons toutefois qu'une étude réalisée par Borchers *et al.* [57] sur les superréseaux [Er/Y] révèle une interdiffusion minimale qui s'étend sur approximativement deux plans atomiques de chaque côté de l'interface.

Cet ordre de grandeur est confirmé pour les systèmes Ho/Y [59] et Dy/Lu [61].

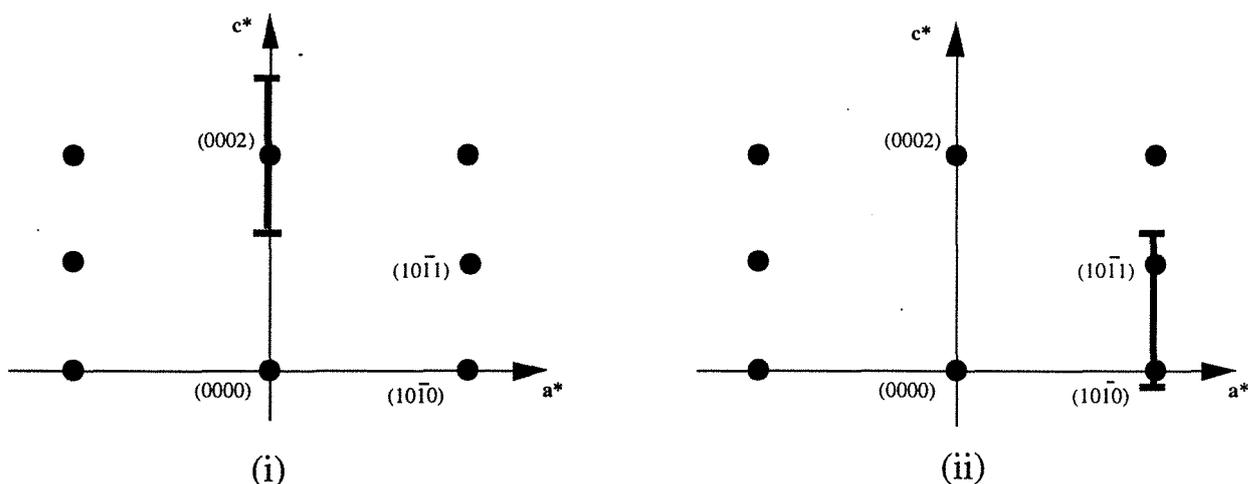
2. Comportement magnétique de superréseaux à forte épaisseur d'erbium

L'échantillon autour duquel s'articule cette étude est le superréseau $[\text{Dy}(35 \text{ \AA})/\text{Er}(111 \text{ \AA})]_{\times 47}$. L'épaisseur des couches d'erbium est supérieure à 100 \AA et l'épaisseur des couches de dysprosium est proche de celles de deux autres superréseaux de moindre épaisseur d'erbium étudiés par la suite.

2.1 Diffraction de neutrons

Les expériences de diffraction de neutrons réalisées sur cet échantillon sont de deux types (voir schéma ci-dessous) :

- (i) le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour l'analyse de l'ordre magnétique dans le plan (0001) , particulièrement dans les couches de dysprosium ;
- (ii) le long de la direction c^* autour des réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ pour analyser l'ordre magnétique perpendiculairement au plan (0001) , en particulier dans les couches d'erbium.



Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^ autour de la réflexion (0002)*

La figure IV-3 présente une série de spectres obtenus à différentes températures lors du refroidissement progressif de l'échantillon. Il apparaît que les satellites observés sur la gauche du pic principal sont, à toute température, beaucoup plus intenses et mieux résolus que ceux situés sur la droite. Ce phénomène, sans doute expérimental, n'entrave en rien la compréhension des spectres.

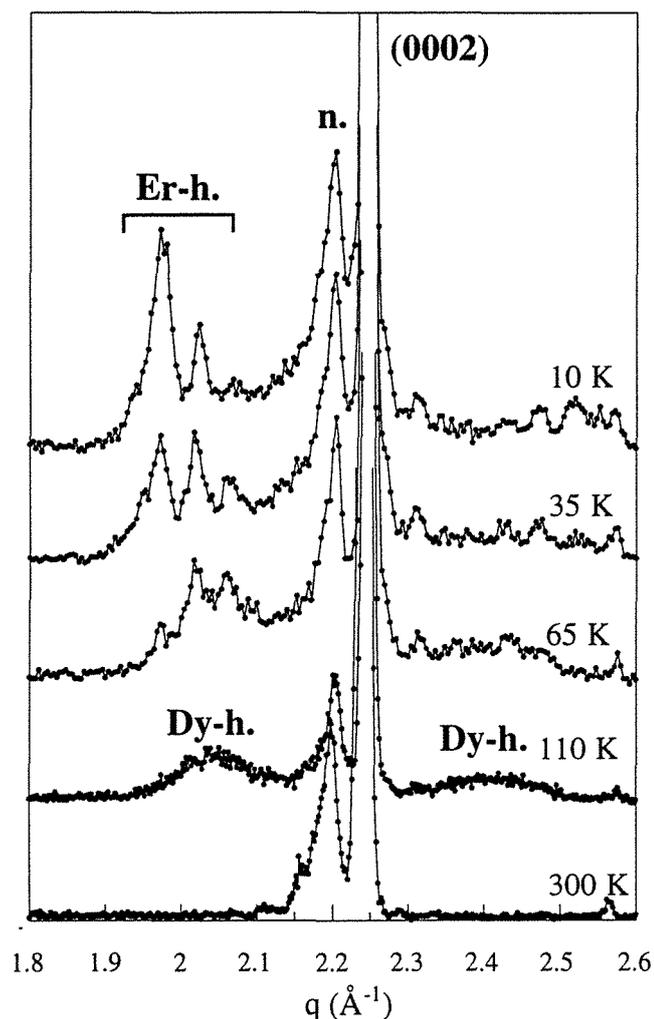


Fig. IV-3 : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) du superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(111 \text{ \AA})]_{x47}$.

À température ambiante, l'intensité diffractée est d'origine purement nucléaire. Le pic le plus intense situé en $q = 2.242 \text{ \AA}^{-1}$ est le pic de Bragg (0002) moyen du superréseau. Le satellite de surstructure du premier ordre en $q = 2.199 \text{ \AA}^{-1}$ (n.) correspond à une modulation chimique de 146 \AA . L'épaule apparaissant sur la gauche de ce satellite provient de la réflexion (0002) des couches tampon et de couverture d'yttrium.

À 110 K , c'est-à-dire à une température inférieure à la température de Néel du dysprosium massif mais supérieure à celle de l'erbium massif, des pics magnétiques très larges, indiqués par Dy-h. sur la figure, apparaissent de chaque côté du pic de Bragg au voisinage de $q = 2.05 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.41 \text{ \AA}^{-1}$. De même que sur les spectres de diffraction des films de dysprosium épitaxiés (figure III-5), ils montrent la présence de l'ordre hélicoïdal dans le plan (0001) des couches de dysprosium avec un angle de rotation à 110 K de 28.5° , voisin de celui rencontré dans l'élément massif (voir figure III-12).

Cependant, les pics liés à l'ordre hélicoïdal dans ce superréseau présentent une largeur à mi-hauteur de 0.133 \AA^{-1} nettement plus importante que celles observées pour les films de dysprosium épitaxiés (figures III-5 et III-10), conduisant à une longueur de cohérence de 47 \AA , inférieure à l'épaisseur d'une bicouche. On est donc en présence d'un ordre hélicoïdal dans le dysprosium, interrompu par l'erbium et ne se propageant pas de façon cohérente d'une couche de dysprosium à l'autre. L'intensité du pic de Bragg moyen est par ailleurs inchangée par rapport au spectre obtenu à température ambiante.

Avec l'abaissement de la température, une série de pics résolus de largeur à mi-hauteur 0.033 \AA^{-1} (longueur de cohérence de 195 \AA) et d'intensités relatives variant avec la température apparaissent à 65 K aux valeurs de q voisines de $q = 1.972 \text{ \AA}^{-1}$, $q = 2.015 \text{ \AA}^{-1}$, $q = 2.058 \text{ \AA}^{-1}$. Ils se déplacent légèrement quand la température diminue ($\Delta q = +0.007 \text{ \AA}^{-1}$ à 10 K) mais l'espacement de 0.043 \AA^{-1} entre les pics ne varie pas avec la température. Cet écart correspond précisément à la modulation chimique, incitant à penser qu'ils sont le résultat de la convolution d'une fonction étalée par un peigne de Dirac dû à la périodicité.

À 65 K, les pics semblent avoir pour enveloppe le large pic magnétique de l'hélice de dysprosium observé à 110 K, qui n'a pour autant pas disparu. Cela indique l'apparition d'une cohérence partielle entre les hélices de dysprosium à travers l'erbium. La cohérence inexistante à 110 K apparaîtrait au voisinage de la température pour laquelle l'erbium massif commence à développer un ordre magnétique. L'aspect partiel du phénomène est probablement dû au fait que toutes les hélices, initialement incohérentes à 110 K, ne peuvent pas spontanément se mettre en cohérence car, si ceci nécessite des rotations de moments magnétiques assez faciles à effectuer, cela entraînerait également des changements de chiralité, impossibles à réaliser.

À 35 K, et plus encore à 10 K, les pics d'intensité maximale sont les pics situés à $q = 1.98 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.023 \text{ \AA}^{-1}$, c'est-à-dire au voisinage de la position du satellite de l'erbium massif (1.972 \AA^{-1}). Ces pics proviennent des couches d'erbium, dans lesquelles se développe, comme pour l'élément massif en dessous de 50 K, une composante hélicoïdale dans le plan (0002). Cette composante est cohérente à travers le dysprosium. Une modulation CAM ne peut être détectée dans cette géométrie car le vecteur de diffusion est parallèle à l'axe c .

L'évolution serait alors celle imaginée au paragraphe 3.2 du chapitre 2 où les deux couches du superréseau développent une contribution hélicoïdale cohérente et où les pas d'hélice sont suffisamment différents pour que le facteur de structure de la bicouche présente deux composantes séparées. La composante du dysprosium très large apparaît la

première ; la composante de l'erbium apparaît à plus basse température lorsque cet élément acquiert un ordre hélicoïdal dans le plan.

À 10 K, l'intensité des satellites attribuables au dysprosium est devenue faible, ce qui indique une baisse de contribution de l'ordre hélicoïdal. Cependant, cette diminution n'est pas au profit d'une composante ferromagnétique à longue distance puisque le pic de Bragg principal (0002) ne voit toujours pas son intensité augmenter.

On peut seulement discerner une augmentation du bruit de fond entre le pic principal et le satellite nucléaire du premier ordre, au voisinage de $q = 2.22 \text{ \AA}^{-1}$ (figure IV-4).

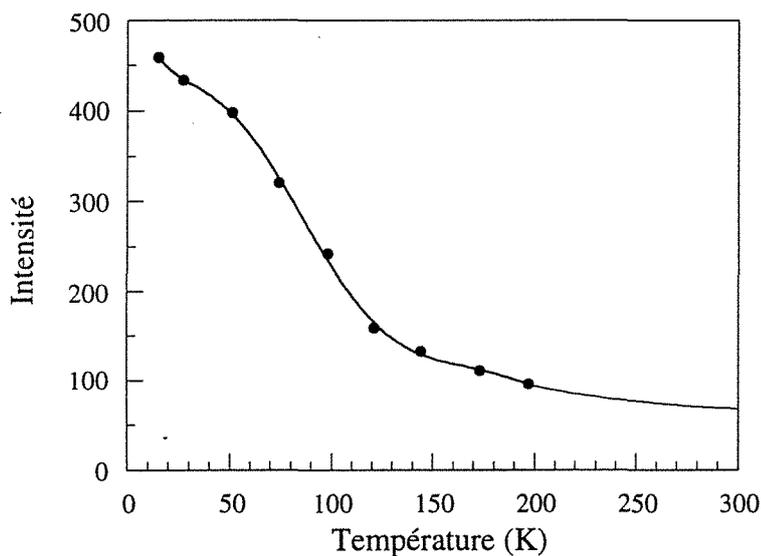


Fig. IV-4 : évolution thermique de l'intensité mesurée en $q = 2.22 \text{ \AA}^{-1}$ sur les spectres de diffraction de neutrons pour le superréseau $[\text{Dy}(35 \text{ \AA})/\text{Er}(111 \text{ \AA})]_{x47}$.

Cette augmentation à partir de 100 K environ pourrait être due, comme cela apparaîtra nettement sur les échantillons d'épaisseur d'erbium plus faible, à un couplage magnétique antiparallèle entre couches de dysprosium individuellement ferromagnétiques.

L'évolution thermique du paramètre c moyen, déterminée d'après la position du pic de Bragg est présentée figure IV-5.

Le paramètre moyen diminue de la température ambiante jusqu'à 200 K, avec une pente de $-0.01 \text{ \AA}/100\text{K}$, légèrement supérieure à la pente habituellement observée au-dessus de la température de Néel pour les films épais de dysprosium (figure III-7). De 200 K à 80 K, la pente est plus faible puis il se produit une expansion selon la direction (0001) à partir de 80 K.

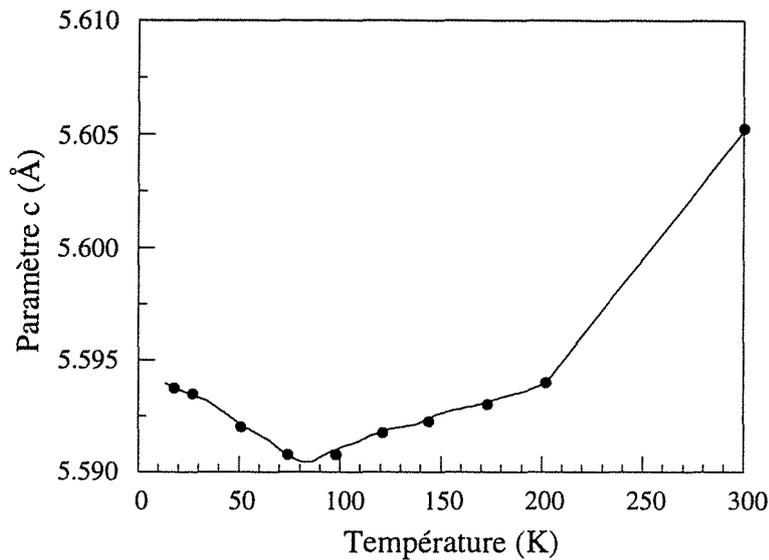


Fig. IV-5 : variation thermique du paramètre c moyen du superréseau $[\text{Dy}(35 \text{ \AA})/\text{Er}(111 \text{ \AA})]_{x47}$, déterminée par diffraction de neutrons.

La rupture de pente au voisinage de 200 K est due à l'apparition de l'ordre magnétique hélicoïdal dans les couches de dysprosium, qui s'accompagne d'une dilatation du réseau selon la direction (0001) lorsque la température diminue (déformation α partielle). Le paramètre croît dans les couches de dysprosium mais la décroissance qui se poursuit dans les couches d'erbium paramagnétiques l'emporte sur la variation du paramètre moyen. En dessous de 80 K, les couches d'erbium présentent à leur tour un ordre magnétique (voir figure I-4), ce qui provoque l'augmentation du paramètre c moyen. Il n'apparaît toutefois pas de discontinuité telle que celle qui se produit à 80 K dans le dysprosium ou à 20 K dans l'erbium massif, ce qui indique l'absence de transition ferromagnétique, au moins dans l'erbium ; une discontinuité du paramètre du dysprosium, vu sa faible épaisseur, pourrait ne pas être détectée.

Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^* autour des réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$

L'exploration du réseau réciproque effectuée le long de $(10\bar{1}1)$ est celle schématisée (ii) au début de ce paragraphe.

La figure IV-6 présente les spectres obtenus à 110 K, 60 K, 35 K et 10 K.

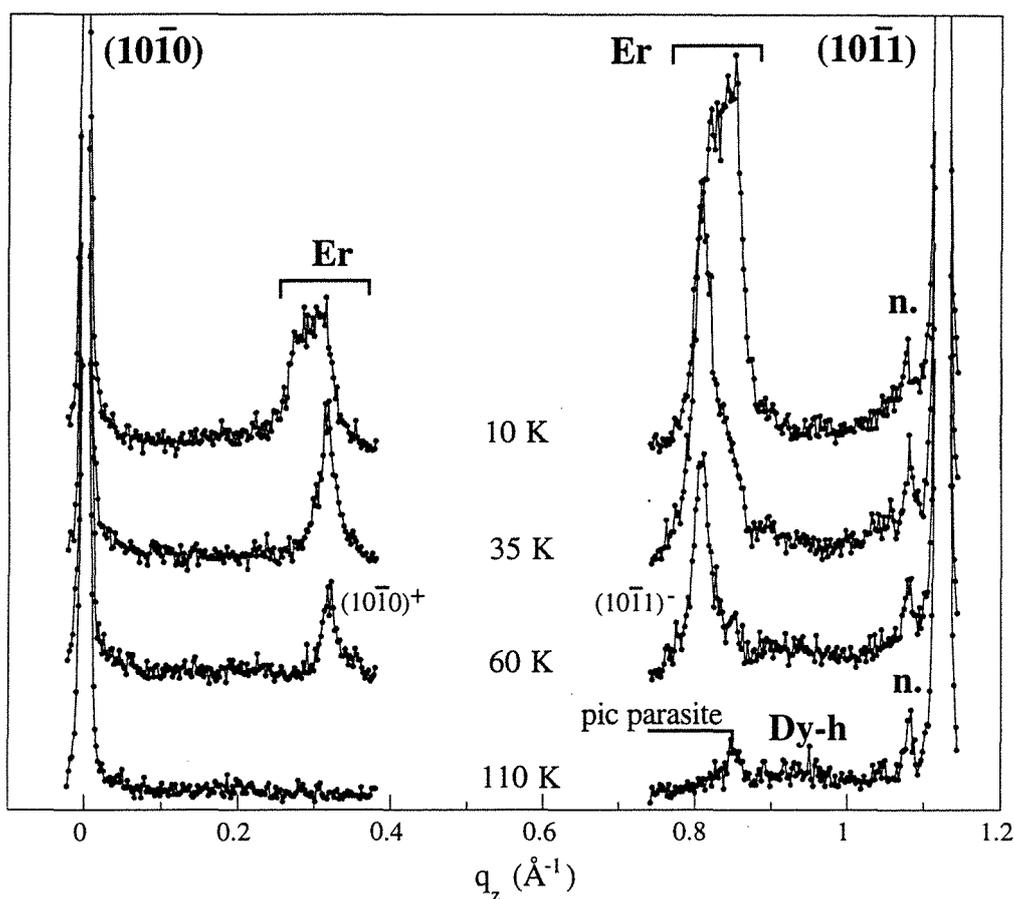


Fig. IV-6 : spectres de diffraction de neutrons obtenus le long de c^* entre les réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(111 \text{ \AA})]_{x47}$.

À 110 K, les pics de Bragg $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ du réseau moyen apparaissent en $q = 0 \text{ \AA}^{-1}$ et en $q = 1.124 \text{ \AA}^{-1}$ (valeur moitié du vecteur d'onde auquel apparaît le pic principal (0002) à cette même température). Le satellite situé en $q = 1.081 \text{ \AA}^{-1}$ (n.), à 0.043 \AA^{-1} du pic $(10\bar{1}1)$, vient rappeler la modulation chimique de 146 \AA . Notons dès maintenant que les intensités des pics principaux varient très peu avec la température et que donc les composantes des moments magnétiques selon l'axe c , de même que celles dans le plan (0001) , n'indiquent pas l'apparition d'un ordre ferromagnétique à grande distance.

Le spectre exhibe, outre les pics principaux, une bosse (Dy-h) due à l'ordre hélicoïdal incohérent dans le plan des couches de dysprosium. Son intensité est plus faible que celle observée autour du pic de Bragg (0002) car elle est multipliée par le facteur $1/2 (1 + \cos^2\theta)$ provenant du fait que l'aimantation n'est plus perpendiculaire au vecteur de diffusion (voir paragraphe 3.2 du chapitre II).

Le pic situé en $q = 0.85 \text{ \AA}^{-1}$ est un pic parasite provenant de la diffraction par le porte-échantillon.

La bosse (Dy-h) demeure à 60 K mais la statistique est trop faible pour résoudre les pics dus à la cohérence partielle mise en évidence lors de l'exploration autour de (0002). Le fait le plus marquant à 60 K est l'apparition de deux pics $(10\bar{1}0)^+$ et $(10\bar{1}1)^-$, satellites de $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$, situés respectivement en $q = 0.319 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 0.8085 \text{ \AA}^{-1}$. De telles positions correspondent à un angle de rotation de 51° , ce qui est la valeur rencontrée dans l'erbium massif au voisinage de sa température de Néel. Puisque, à cette température, il n'y a pas de contribution de l'erbium le long de c^* autour de (0002), l'ordre magnétique se restreint, comme dans l'élément massif, à une structure modulée selon l'axe c (CAM).

Lorsque la température décroît, deux nouveaux pics émergent en $q = 0.287 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 0.841 \text{ \AA}^{-1}$. À 0.287 \AA^{-1} des pics principaux, ils correspondent au pic le plus intense attribué à l'erbium dans le spectre effectué le long de c^* autour du pic (0002). S'il s'agit effectivement de satellites de même nature, les modulations dans l'erbium selon c et dans le plan de base donneraient naissance à deux pics correspondant à des vecteurs d'onde différents, ce qui est en contradiction avec l'ensemble des résultats trouvés dans l'élément massif, qui affirment que les périodicités sont les mêmes.

Cette différence peut être intrinsèque au superréseau [57], ou n'être qu'une apparence due à la différence de cohérence entre la composante hélicoïdale dans le plan et la composante selon c (CAM) : nous pouvons supposer que la composante selon l'axe c est incohérente et donne un pic large au maximum de $F(\mathbf{q})$, alors que la composante dans le plan de base est cohérente et conduit à un maximum sur une des dents du peigne $S(\mathbf{q})$, non confondue avec le maximum de $F(\mathbf{q})$ (figure II-16). Dans ce cas, l'angle de rotation de la modulation selon c varierait peu avec la température et serait voisin de 49° à 10 K, c'est-à-dire supérieur à la valeur de 44° rencontrée dans l'élément massif à basse température.

Une seconde hypothèse serait d'admettre que, parmi les quatre pics présents à basse température, deux sont des satellites d'ordre un alors que les autres seraient des satellites d'ordre trois : la modulation selon c serait devenue carrée comme dans le matériau massif au-dessus de la transition ferromagnétique à 20 K. Cependant, les positions des pics observés à 35 K et à 10 K ne sont pas compatibles avec cette hypothèse et, d'autre part, les intensités des éventuels satellites d'ordre trois sembleraient étrangement importantes. En particulier, l'intensité du satellite d'ordre trois du pic $(10\bar{1}0)$ peut difficilement être comparable à celle du satellite d'ordre un du pic $(10\bar{1}1)$.

La première hypothèse paraît être la seule envisageable. L'ordre magnétique de l'erbium à basse température est constitué de la superposition d'une phase modulée selon c , incohérente, et de l'ordre hélicoïdal dans le plan de base, partiellement cohérent à travers le dysprosium. Il ne devient jamais ferromagnétique, contrairement au matériau massif,

ce qui est en accord avec l'état de contrainte imposé par son épitaxie sur un élément de paramètre a supérieur (le dysprosium). La couche tampon d'yttrium peut également influencer dans ce sens.

Si la modulation selon l'axe c de l'erbium est cohérente dans les superréseaux [Er/Y] [52], une étude très récente réalisée par Simpson *et al.* sur des superréseaux Ho/Er [77] mentionne un résultat semblable au nôtre : Simpson *et al.* ont observé, pour trois échantillons d'épaisseur d'erbium inférieure à 60 Å, la superposition d'un pic large, attribué à l'ordre magnétique de la composante selon c confiné dans une seule couche d'erbium, et de pics résolus, attribués à l'ordre cohérent de la composante dans le plan de base de l'holmium. Selon les auteurs, la différence entre les longueurs de cohérence des ordres magnétiques parallèle et perpendiculaire au plan de base n'est pas compatible avec la théorie RKKY classique, qui serait supplantée par un modèle tenant compte de la structure de bandes du superréseau magnétique. L'onde de densité de spins devant être continue à l'interface entre les éléments, la fonction d'onde des électrons de conduction associée aux ordres en hélice dans l'holmium et l'erbium serait de nature à transmettre l'ordre hélicoïdal dans le plan de base mais ne pourrait pas propager la phase de la modulation selon c .

Si cette interprétation peut expliquer dans notre cas le fait que la modulation selon c de l'erbium ne soit pas cohérente, elle n'est toutefois pas totalement satisfaisante, car l'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium est transmis à travers les couches de dysprosium ferromagnétiques.

2.2 Mesures d'aimantation

Champ magnétique appliqué dans le plan des couches

La figure IV-7 présente la variation thermique de l'aimantation (FC) du superréseau refroidi sous un champ de 50 Oe.

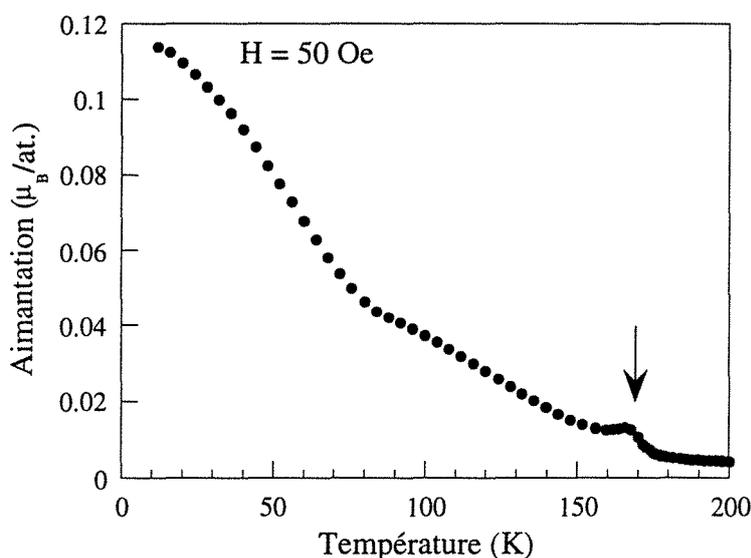


Fig. IV-7 : variation thermique de l'aimantation (FC) du superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)] \times 47 sous un champ magnétique de 50 Oe. Le champ est appliqué dans le plan des couches et les mesures effectuées en température décroissante.

Lors de la décroissance en température, on distingue le pic de susceptibilité, indiqué par une flèche, révélant l'apparition de l'ordre hélicoïdal dans les couches de dysprosium à 167 K. Il s'agit d'une valeur inférieure d'environ 10 K à la température de Néel du dysprosium massif. Cette diminution de la température de Néel provient de la faible épaisseur des couches de dysprosium, dont l'influence était déjà visible lors de l'étude des films de dysprosium épitaxiés (figure III-25). En dessous de 150 K, une augmentation continue de l'aimantation est observée, lente entre 150 K et 75 K puis rapide à partir de 75 K. C'est d'ailleurs à cette température que le paramètre c moyen commence à croître (figure IV-5) et que le spectre de diffraction de neutrons, typique d'un ordre hélicoïdal incohérent à haute température, manifeste l'apparition d'une cohérence partielle et d'un ordre antiferromagnétique, révélant la transition ferromagnétique dans les couches de dysprosium (figure IV-4).

En fait, la différence essentielle entre cette courbe et celles obtenues sur les films de dysprosium présentées au chapitre précédent (figure III-24) tient à l'absence d'un domaine d'aimantation "nulle" dans la phase clairement hélicoïdale entre 150 K et 80 K.

L'accroissement entre 150 K et 75 K n'est habituellement pas observé sous un si faible champ, puisque l'ordre hélicoïdal conduit à un moment résultant nul. Cette différence est confirmée par les courbes de première aimantation présentées figure IV-8.

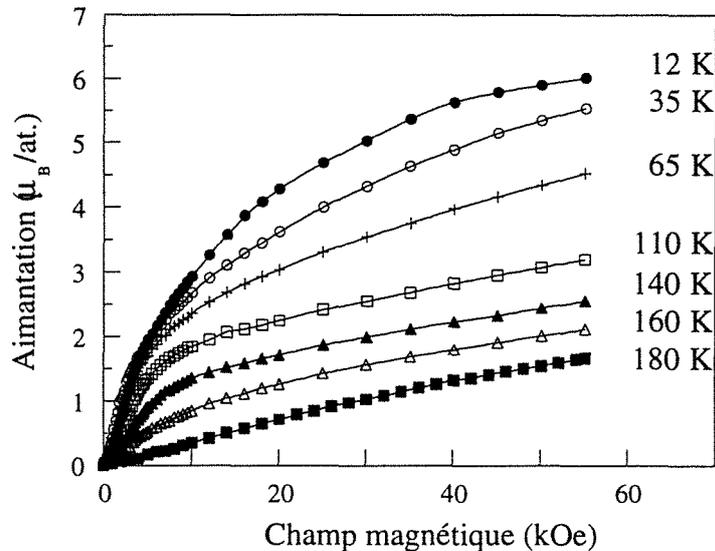


Fig. IV-8 : évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(111 \text{ \AA})]_{x47}$. Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches.

Les courbes mesurées entre 160 K et 65 K ne présentent pas de domaine de faible susceptibilité caractéristique de l'ordre hélicoïdal. Puisque cette structure en hélice est néanmoins incontestable d'après les expériences de diffraction de neutrons, nous en concluons que ce comportement particulier est dû à la non-cohérence des hélices. Les couches de dysprosium se comportent comme des films indépendants, dont l'ordre magnétique est facilement perturbé par le champ magnétique qui agit sur les moments "non-compensés". L'aimantation totale d'une couche n'est pas nulle car l'épaisseur de la couche ne correspond pas forcément à un nombre entier de rotations de l'hélice.

Les courbes d'aimantation à 12 K, 35 K et 65 K, c'est-à-dire en dessous de la température d'ordre de l'erbium, présentent une augmentation continue jusqu'aux champs les plus élevés, indiquant que le champ, appliqué dans le plan perpendiculaire à la direction de facile aimantation de l'erbium, est insuffisant pour saturer l'échantillon. La valeur maximale mesurée à 12 K est d'ailleurs inférieure à la valeur à saturation, moyenne des moments à saturation des deux éléments, pondérée des épaisseurs relatives des couches. La courbe à 180 K est linéaire depuis les plus faibles champs, ce qui indique un comportement paramagnétique de l'échantillon dans son ensemble.

Un agrandissement de la figure précédente entre 0 kOe et 10 kOe est présenté à la figure IV-9.

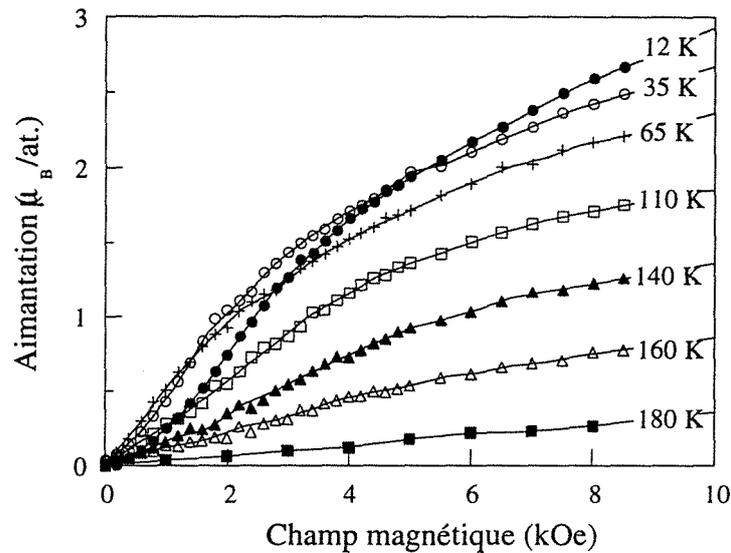


Fig. IV-9 : évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique entre 0 kOe et 10 kOe pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(111 \text{ \AA})]x47$. Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches.

Outre l'absence déjà mentionnée du régime de faible susceptibilité attaché habituellement à l'ordre hélicoïdal au-dessus de 110 K, cette figure montre une tendance à une susceptibilité moindre en champ faible lorsque la température décroît de 65 K à 12 K. Cette évolution est sans doute due à l'apparition d'une légère composante antiferromagnétique entre couches ferromagnétiques de dysprosium.

Champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches

Les courbes de première aimantation obtenues à différentes températures dans cette configuration sont présentées figure IV-10. Les courbes se décomposent en trois parties. De 0 kOe à un champ critique H_c , la susceptibilité est faible ; elle est suivie d'une augmentation rapide de l'aimantation entre H_c et un champ H_f , au-delà duquel une croissance lente s'apparente à une saturation à basse température (entre 12 K et 50 K). La valeur du moment à saturation est toutefois inférieure à la valeur théorique. Ceci est dû au fait que les moments des couches de dysprosium sont fortement confinés dans le plan (0001) et ne contribuent donc pas au signal mesuré ici.

Cette évolution s'interprète de façon tout à fait classique : le domaine de 0 kOe à H_c est celui de la stabilité de la phase modulée selon l'axe c dans l'erbium ; le champ H_c

correspond au début de la transition de l'erbium vers la structure en cône à composante ferromagnétique suivant c , transition qui se termine à H_f .

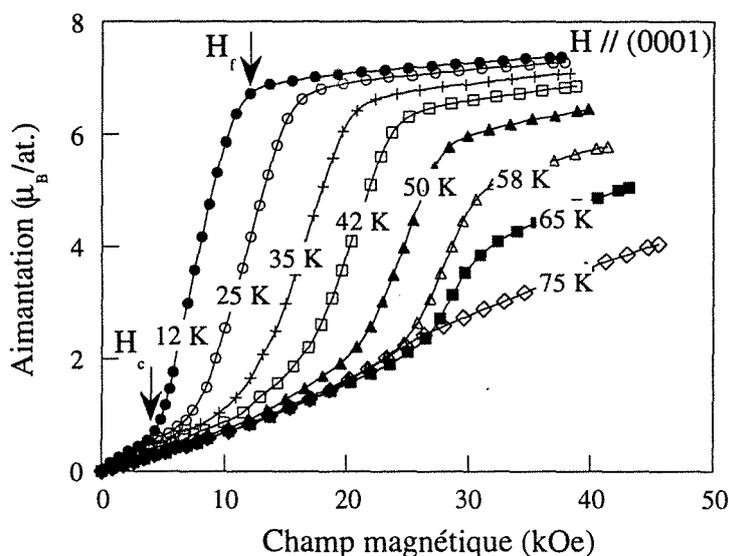


Fig. IV-10 : évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(111 \text{ \AA})]_{x47}$. Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan des couches.

La variation thermique de H_c est reportée figure IV-11, où elle est comparée aux résultats obtenus pour l'erbium massif (figure I-15), les films d'erbium épitaxiés entre yttrium [58] et les superréseaux $[Er/Y]$ [57].

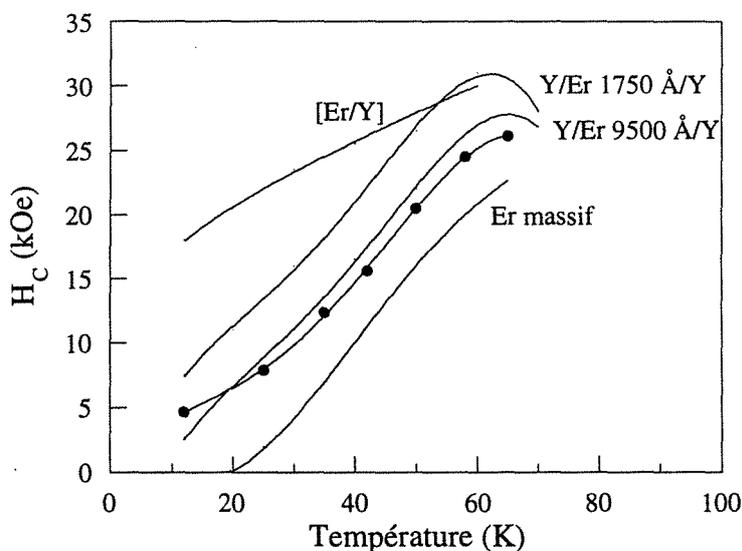


Fig. IV-11 : évolution thermique du champ critique (H_c) pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(111 \text{ \AA})]_{x47}$ (ronds noirs). Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan des couches. Les courbes obtenues pour l'erbium massif, des films d'erbium épitaxiés entre yttrium [58] et des superréseaux Er/Y [57] sont également présentées à titre de comparaison.

La variation du champ critique du superréseau (ronds noirs) suit approximativement celle du film épais de 9500 Å épitaxié entre yttrium. Comme pour les films, et contrairement au comportement de l'erbium massif, le champ critique à basse température n'est pas nul, ce qui confirme l'absence de phase ferromagnétique en champ nul. Ceci est en accord avec les expériences de diffraction de neutrons, où aucune contribution magnétique supplémentaire n'a été observée à basse température sur le pic (10 $\bar{1}$ 1). Les valeurs du champ critique mesurées pour les superréseaux Er/Y sont nettement supérieures, en raison des contraintes épitaxiales induites par l'yttrium dans l'erbium, plus importantes que celles induites par le dysprosium.

Si la figure IV-10 fait bien apparaître le comportement magnétique de l'erbium, dont l'axe c est la direction de facile aimantation, la figure IV-7 pourrait inciter à penser que l'absence de zone de faible susceptibilité est due à un effet d'interface sur une couche de dysprosium peu épaisse. Nous verrons au paragraphe suivant qu'il n'en est rien, puisque, pour une même épaisseur de dysprosium, la zone de faible susceptibilité réapparaît lorsque l'hélice est cohérente.

Il n'en demeure pas moins que se pose le problème de l'interface magnétique entre le dysprosium dont les moments sont orientés dans le plan et l'erbium, dont l'axe c est la direction d'aimantation facile. Il existe vraisemblablement quelques plans d'interface magnétique qui assurent la transition entre ces deux configurations. Nous n'en avons pas fait l'étude mais ces plans sont sans doute au nombre de trois ou quatre, situés du côté de la couche d'erbium.

Pour cela, nous nous appuyons sur les valeurs des énergies d'échange et d'anisotropie indiquées au chapitre I paragraphe 3.4. Les épaisseurs de paroi à 90° sont voisines pour les deux éléments et de l'ordre de deux ou trois plans atomiques ; en revanche, l'énergie d'une paroi est supérieure dans le dysprosium, ce qui conduit à penser qu'une paroi à 90° s'étend sur trois plans atomiques dans l'erbium. La situation peut être plus complexe s'il existe un alliage d'interface.

2.3 Récapitulatif

Les aspects importants du comportement magnétique de ce superréseau dont l'épaisseur des couches d'erbium est supérieure à 100 Å sont les suivants (résumés dans le tableau page suivante) :

(i) En dessous de 170 K, les couches de dysprosium présentent une structure hélicoïdale dans le plan de base qui ne se propage pas à travers l'erbium paramagnétique.

(ii) Lorsque l'erbium développe une première structure magnétique modulée selon l'axe c , comme l'élément massif, il apparaît une cohérence partielle de l'hélice du dysprosium à travers l'erbium.

(iii) À basse température, la contribution de l'ordre hélicoïdal du dysprosium est considérablement réduite au profit d'un arrangement antiparallèle entre couches de dysprosium devenues ferromagnétiques. Les couches de dysprosium ne présentent jamais d'ordre ferromagnétique à grande distance dans le plan de base.

Le ferromagnétisme intracouche ne se manifeste pas de façon claire. La température de Curie n'est pas supérieure à 80 K, bien que les couches de dysprosium soient fortement déformées ($\epsilon^{\alpha,1} < 0$ et $\epsilon^{\alpha,2} > 0$) dans le sens de la déformation spontanée du dysprosium massif à la transition ferromagnétique. Rappelons par ailleurs que cette transition ne concerne pas l'ensemble de l'échantillon, la phase hélicoïdale étant parallèlement observée jusqu'à basse température.

(iv) L'erbium ne présente pas de transition ferromagnétique. Il conserve la structure CAM, suite aux déformations α induites par l'épitaxie sur le dysprosium (et éventuellement sur l'yttrium). L'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium se transmet de façon cohérente à travers les couches de dysprosium ferromagnétiques et présente un vecteur d'onde apparent différent de celui de la modulation selon c , incohérente à travers le dysprosium.

	Dysprosium (35 Å)	paramètre c	Erbium (111 Å)
200 K	paramagnétique	décroissance thermique	
150 K	ordre hélicoïdal incohérent	décroissance thermique dans Er + croissance dans Dy (α partiel)	paramagnétique
100 K		↓ décroissance plus lente du paramètre moyen	
50 K	ordre hélicoïdal partiellement cohérent ----- ordre hélicoïdal + apparition d'un ordre antiferromagnétique à grande distance ----- ordre ferromagnétique dans les couches ordre antiferromagnétique à grande distance	croissance dans les deux éléments pas de saut marqué	modulation suivant c (CAM) ----- modulation incohérente suivant c (CAM) + modulation cohérente dans le plan de base (hélice) ----- pas d'ordre ferromagnétique dans les couches

 $T_N = 167$ K

superréseau Dy/Er à épaisseur d'erbium > 100 Å

Tableau récapitulatif :

3. Comportement magnétique de superréseaux à épaisseur d'erbium intermédiaire

L'étude a été réalisée essentiellement sur deux échantillons : $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$ et $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})] \times 50$.

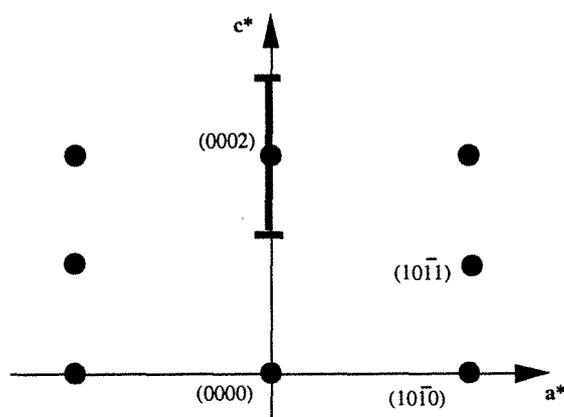
L'étude par diffraction de neutrons (paragraphe 3.1) a été menée le long de la direction c^* autour des réflexions (0002) , $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$, puis le long de la direction a^* autour du noeud $(10\bar{1}0)$ du réseau réciproque ; la description des divers spectres expérimentaux est présentée dans la partie 3.1.a). L'ensemble des mesures effectuées à différentes températures en champ nul et sous champ a permis de déterminer la stabilité des phases magnétiques ainsi que les évolutions des paramètres perpendiculaire (c) et parallèle (b) au plan de base ; cette analyse est reportée dans la partie 3.1.b). L'étude a été finalement complétée par des expériences de diffraction de neutrons polarisés (paragraphe 3.1.c)).

Les mesures magnétiques, dont les résultats sont exposés au paragraphe 3.2, ont été réalisées, comme précédemment, en température décroissante sous champ (FC), puis des cycles ont été obtenus en appliquant le champ parallèlement et perpendiculairement au plan des couches.

3.1 Diffraction de neutrons

a) Description des spectres expérimentaux

Diffraction de neutrons le long de la direction c^ autour de la réflexion (0002)*



La figure IV-12 présente une série de spectres de diffraction de neutrons obtenus à différentes températures le long de la direction c^* autour du pic de Bragg (0002) sur le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})] \times 50$.

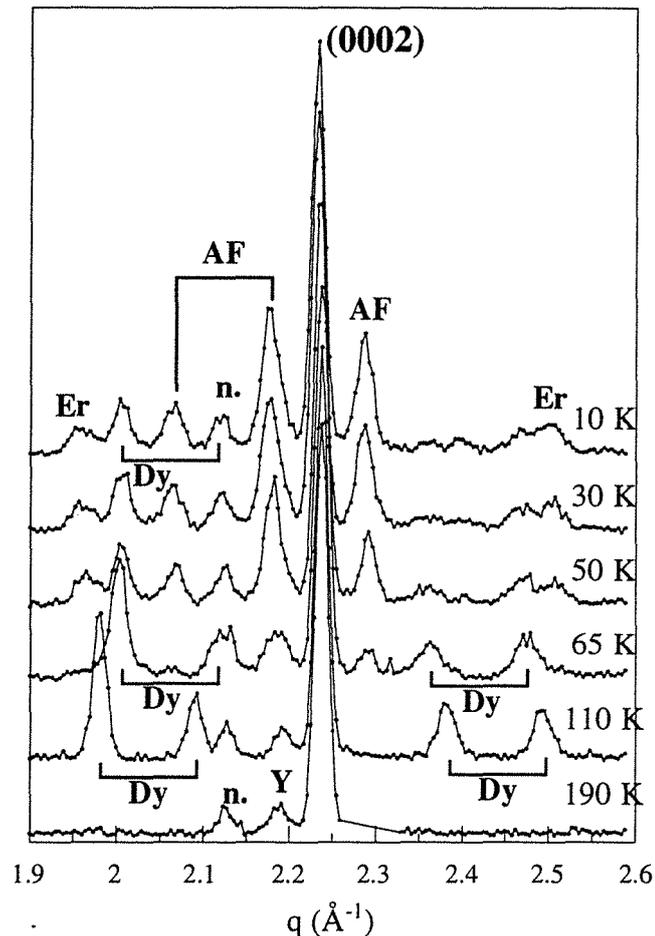


Fig. IV-12: spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]_{x50}$.

À 190 K, trois pics sont présents : le pic de Bragg moyen du superréseau, en $q = 2.237 \text{ \AA}^{-1}$, un satellite de surstructure nucléaire du premier ordre (n.), en $q = 2.127 \text{ \AA}^{-1}$ et le pic de Bragg (0002) de l'yttrium (Y), en $q = 2.186 \text{ \AA}^{-1}$. La position du pic de surstructure correspond à une modulation chimique $\Lambda = 57 \text{ \AA}$.

À 110 K, quatre pics supplémentaires situés de part et d'autre du pic de Bragg nucléaire sont observés. Ils proviennent de l'apparition de l'ordre hélicoïdal dans les couches de dysprosium. L'apparition d'un ensemble de satellites magnétiques résolus de part et d'autre du pic de Bragg (voir paragraphe 3.2 du chapitre II et figure II-16) signifie que l'hélice magnétique qui se développe dans le dysprosium se propage de façon cohérente à travers les couches d'erbium paramagnétique.

La propagation de l'ordre hélicoïdal à travers l'erbium est le fait des électrons de conduction et il ne se manifeste parallèlement aucun signe d'ordre à longue distance des moments magnétiques 4f de cet élément : le couplage à grande distance entre moments 4f du dysprosium est réalisé par la stabilisation d'une onde de densité de spin dans les bandes de conduction du dysprosium et de l'erbium.

Un phénomène similaire a été observé dans des superréseaux constitués d'une terre rare magnétique et d'un élément non magnétique (Dy/Y [47], Dy/Lu [61], Ho/Y [59]) mais jamais en présence de deux éléments magnétiques, hormis pour le système Ho/Er [77], dont les résultats ont été publiés très récemment. L'erbium paramagnétique se comporte donc en ce sens comme l'yttrium et le lutécium non magnétiques, bien que ses moments 4f soient alors désordonnés, et la stabilisation d'une onde de densité de spin dans la bande de conduction de l'erbium n'influe pas sur l'ordre magnétique de cet élément.

Rappelons que nous n'avions pas obtenu un tel couplage dans l'échantillon d'épaisseur d'erbium 111 Å et qu'il avait fallu attendre le développement de l'ordre magnétique dans l'erbium pour voir apparaître une cohérence partielle. L'épaisseur limite au-delà de laquelle les électrons de conduction ne transmettent plus la cohérence sans renforcement par l'ordre des moments 4f se situe vraisemblablement aux environs de 100 Å.

L'épaisseur limite de propagation cohérente de l'ordre hélicoïdal à haute température a été estimée à 140 Å pour les superréseaux Dy/Y [41] et de 80 Å pour les superréseaux Dy/Lu [61]. Cette limite est liée à l'extension selon la direction c de l'enveloppe de l'intégrale d'échange $\tilde{J}(q)$ de l'élément séparant les couches de dysprosium.

À partir de 65 K, apparaissent deux nouveaux pics situés de part et d'autre du pic de Bragg à $q = 2.186 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.288 \text{ \AA}^{-1}$, c'est-à-dire exactement entre les pics de surstructure nucléaires. C'est la manifestation d'un ordre ferromagnétique à l'intérieur des couches et antiferromagnétique à grande distance, dont on pressentait l'apparition dans le superréseau $[\text{Dy}(35 \text{ \AA})/\text{Er}(111 \text{ \AA})]_{\times 47}$. Les couches de dysprosium devenues individuellement ferromagnétiques se couplent antiferromagnétiquement. L'absence d'ordre ferromagnétique à grande distance est confirmée par l'intensité inchangée des pics nucléaires. Le phénomène de couplage antiferromagnétique reste très partiel à cette température, puisque les intensités des pics dus à l'ordre hélicoïdal ont peu diminué, bien que l'on se situe en dessous de la température de Curie de dysprosium massif.

Il s'agit manifestement d'un comportement similaire à celui rencontré dans les superréseaux Dy/Lu [61] à la différence cependant que le lutécium est non magnétique, alors que l'erbium l'est certainement à cette température. L'origine invoquée par les auteurs est un couplage de nature dipolaire d'une couche de dysprosium à l'autre entre des domaines distordus orthorhombiquement (voir paragraphe 4.5 du chapitre I).

Remarquons dès maintenant que, dans cet échantillon également, la température d'apparition de l'ordre ferromagnétique intracouche ne semble pas particulièrement élevée par rapport à celle du dysprosium massif ; l'augmentation de T_C rencontrée dans les films de dysprosium épitaxiés sur erbium n'est pas observée.

Lorsque la température décroît, la diminution de l'intensité des pics correspondant à l'ordre hélicoïdal se poursuit, alors que celle des pics antiferromagnétiques augmente (un pic antiferromagnétique d'ordre supérieur apparaît d'ailleurs en $q = 2.074 \text{ \AA}^{-1}$).

À partir de 50 K, apparaissent en outre deux pics en $q = 1.972 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.518 \text{ \AA}^{-1}$, dus à la contribution magnétique de l'erbium dans le plan de base. Ces satellites révèlent la présence d'un ordre hélicoïdal dans l'erbium dont l'angle de rotation est 44° ; ils sont de faible intensité, mais il est néanmoins possible de distinguer que leur largeur à mi-hauteur est importante et que l'ordre magnétique dans le plan (0001) de l'erbium ne se propage pas de façon cohérente à travers les couches ferromagnétiques de dysprosium.

Les spectres à 30 K et 10 K présentent des caractéristiques analogues au spectre obtenu à 50 K : contribution magnétique hélicoïdale dans le plan de base de l'erbium, ordre antiferromagnétique entre couches de dysprosium et résidu de la phase hélicoïdale dans le dysprosium.

La coexistence des phases hélicoïdale et antiferromagnétique a été également observée dans les superréseaux Dy/Lu [61], mais elle est limitée à un domaine de 30 K.

La série de spectres obtenus dans les mêmes conditions sur l'échantillon [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60 (figure IV-13) présente une évolution similaire.

Le spectre obtenu à température ambiante ne présente que des pics d'origine purement nucléaire : le pic de Bragg (0002) de l'yttrium situé à $q = 2.185 \text{ \AA}^{-1}$ et le pic de Bragg moyen du superréseau situé à $q = 2.238 \text{ \AA}^{-1}$.

À partir de 160 K apparaissent deux ensembles de satellites magnétiques de part et d'autre du pic de Bragg moyen, révélant l'ordre hélicoïdal dans le plan de base du dysprosium, cohérent à travers l'erbium paramagnétique. L'intensité de ces pics a manifestement augmenté à 110 K et ils se sont rapprochés du pic de Bragg moyen, en raison de l'évolution thermique de l'angle de rotation entre les moments de dysprosium. Notons que trois satellites sont visibles à gauche du pic de Bragg, alors que deux seulement apparaissaient sur le spectre précédent (figure IV-12). Cela est dû à la modulation chimique plus élevée dans cet échantillon, dont l'effet est de resserrer les dents du peigne de Dirac.

Le spectre à 70 K révèle l'émergence de deux pics situés en $q = 2.163 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.213 \text{ \AA}^{-1}$, c'est-à-dire entre les pics de surstructure nucléaires. Ils indiquent l'apparition de l'ordre antiparallèle entre les moments portés par deux couches de dysprosium consécutives. Parallèlement, l'intensité des pics dus à la phase hélicoïdale a diminué.

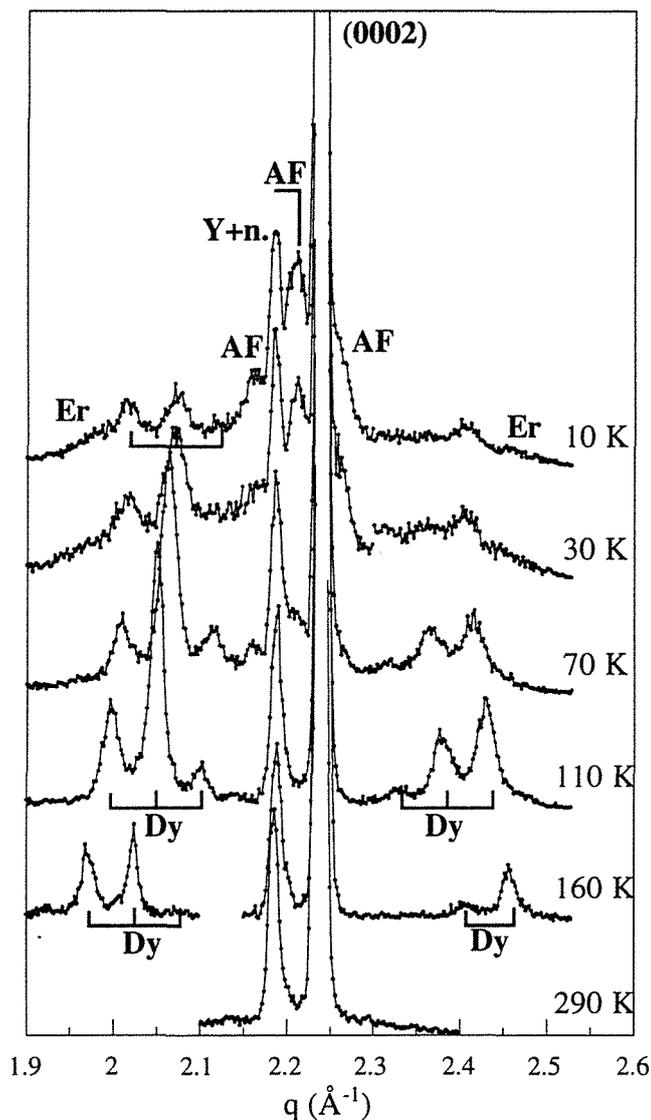


Fig. IV-13: spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour le superréseau $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})] \times 60$.

Cette tendance se confirme sur les spectres obtenus à 30 K et à 10 K : l'intensité des pics antiferromagnétiques augmente alors que celle des pics de l'hélice diminue, sans jamais totalement disparaître. L'intensité du pic de Bragg principal ne varie pas avec la température, conformément à l'absence d'ordre ferromagnétique à longue distance. À partir de 30 K, apparaissent en outre deux bosses relativement larges, approximativement en $q = 1.97 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.45 \text{ \AA}^{-1}$, qui révèlent l'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium. Sans pouvoir l'exclure totalement, il n'y a pas de signe net de la cohérence de cette composante, contrairement aux observations du paragraphe précédent sur le superréseau à forte épaisseur d'erbium.

L'effet de l'application d'un champ magnétique de 5.5 kOe selon la direction de facile aimantation $(11\bar{2}0)$ du dysprosium à 10 K est représenté sur la figure IV-14.

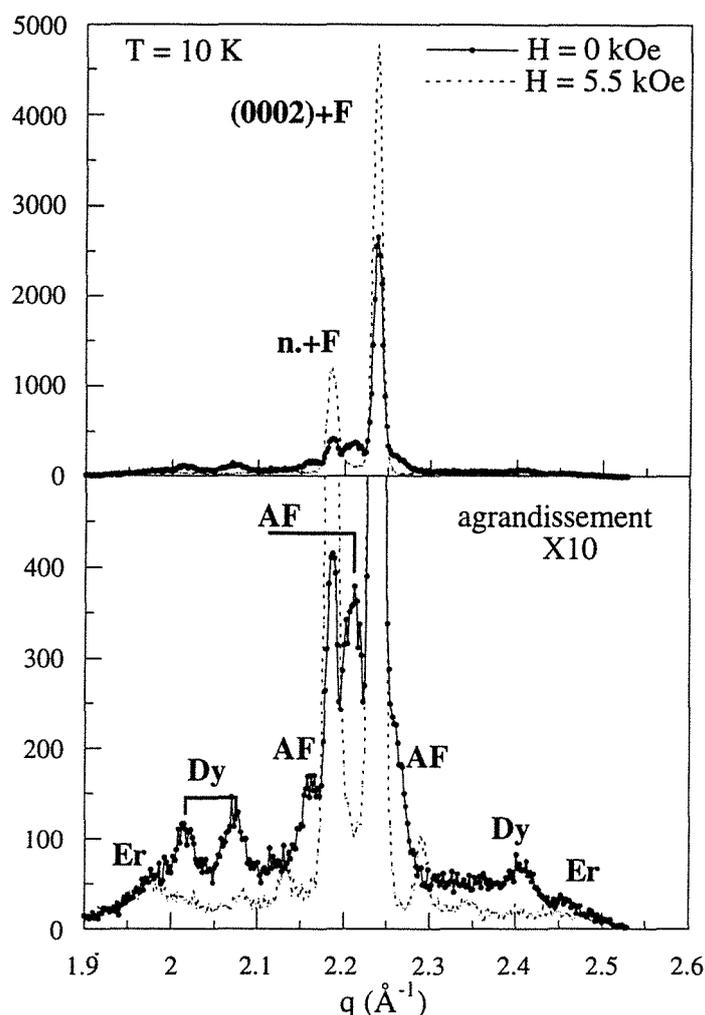


Fig. IV-14 : spectres de diffraction de neutrons sous champ nul et sous un champ magnétique de 5.5 kOe appliqué dans le plan des couches pour le superréseau $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})] \times 60$.

Sur le spectre obtenu sous champ (en trait pointillé), les pics magnétiques situés entre les pics de surstructure ont disparu, au profit d'une contribution magnétique superposée aux pics nucléaires (pic principal et satellites). Les moments portés par les couches de dysprosium, à l'origine antiparallèles d'une couche à l'autre, se sont orientés dans la direction du champ pour aboutir à un ordre ferromagnétique à longue distance.

Simultanément, la phase hélicoïdale qui persistait à cette température a été détruite, comme le montre la disparition des satellites magnétiques. En revanche, le pic provenant de l'arrangement hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium est toujours présent, car cet ordre magnétique est associé à une phase à forte composante suivant l'axe c , que le champ magnétique appliqué dans le plan des couches n'est pas suffisant pour vaincre.

Les évolutions des intensités des pics magnétiques dus à l'hélice du dysprosium, des pics antiferromagnétiques et du pic de Bragg (0002) en fonction du champ magnétique appliqué sont reportées figure IV-15.

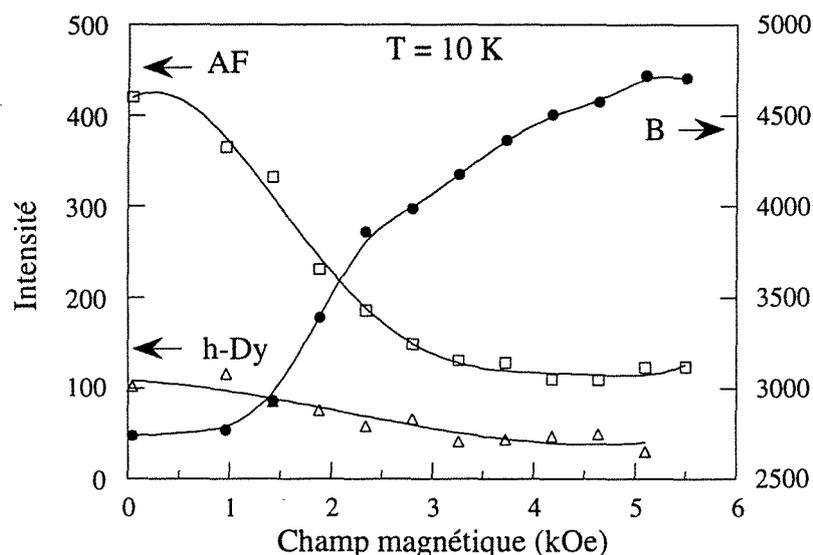


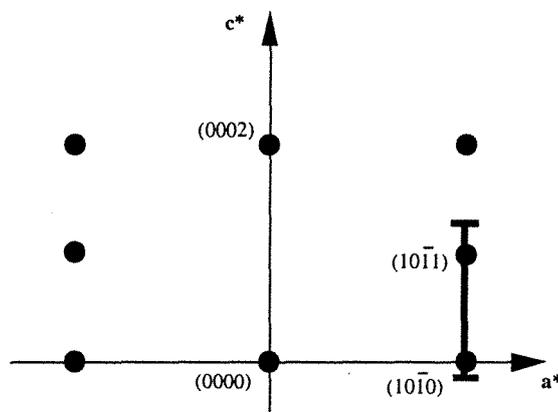
Fig. IV-15: évolutions sous champ à 10 K des intensités intégrées du pic de Bragg (B), antiferromagnétique (AF), et du pic dû à l'ordre hélicoïdal (h-Dy).

L'application d'un champ de 1.8 kOe est suffisante pour entraîner la rotation des moments et détruire l'arrangement antiparallèle. Si le champ magnétique est supprimé, le spectre demeure inchangé (traits pointillés, figure IV-14). La suppression du champ magnétique ne permet donc pas de retrouver l'arrangement antiparallèle précédent ; il est nécessaire de porter l'échantillon au-dessus de sa température d'ordre puis d'abaisser la température en champ nul pour observer de nouveau les pics de la phase antiferromagnétique.

L'irréversibilité en champ de l'ordre antiferromagnétique traduit le caractère métastable de cette phase et l'existence d'une barrière énergétique entre les arrangements parallèles et antiparallèles entre couches de dysprosium. Si l'ordre antiferromagnétique est favorisé lorsque la température est abaissée en champ nul, l'anisotropie magnétocristalline peut expliquer la stabilisation de la phase ferromagnétique induite par l'application du champ magnétique.

Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^ autour des réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$*

Afin de déterminer la structure magnétique de l'erbium dans ces superréseaux, des expériences de diffraction de neutrons ont été réalisées le long de la direction c^* autour des pics de réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$.



Les figures IV-16 et IV-17 présentent les spectres obtenus à 110 K, 60 K, 38 K et 10 K sur les superréseaux $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})] \times 50$ et $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$. Comme cela était déjà visible sur la figure IV-6, il doit être fait abstraction d'un pic parasite à 0.85 \AA^{-1} , qui vient parfois se superposer à d'autres pics d'origine physique.

Il apparaît sur ces deux ensembles de spectres que les intensités mesurées autour du pic $(10\bar{1}0)$ sont nettement moins importantes que celles mesurées autour du pic $(10\bar{1}1)$. Cela provient de la différence entre les facteurs de structure de ces deux réflexions et nous nous limiterons à la description des évolutions observées autour de $(10\bar{1}1)$, sachant que la situation est similaire autour de $(10\bar{1}0)$.

Les résultats confirment tout d'abord l'existence des structures magnétiques observées par diffraction neutronique autour de (0002) . En ce qui concerne par exemple le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})] \times 50$ (figure IV-16), on retrouve à 110 K le pic de Bragg moyen $(10\bar{1}1)$ (en $q = 1.119 \text{ \AA}^{-1}$), un pic de surstructure d'origine nucléaire (en $q = 1.006 \text{ \AA}^{-1}$), ainsi que les deux satellites magnétiques provenant de l'ordre hélicoïdal dans les couches de dysprosium (en $q = 0.864 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 0.973 \text{ \AA}^{-1}$).

Le spectre à 60 K marque l'émergence des pics dus à l'arrangement antiparallèle entre couches de dysprosium ferromagnétiques (en $q = 0.947 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 1.062 \text{ \AA}^{-1}$) ainsi que le déplacement des pics de l'ordre hélicoïdal du dysprosium.

Lorsque la température décroît, l'intensité des pics de nature antiferromagnétique augmente, parallèlement à la diminution de la contribution hélicoïdale du dysprosium.

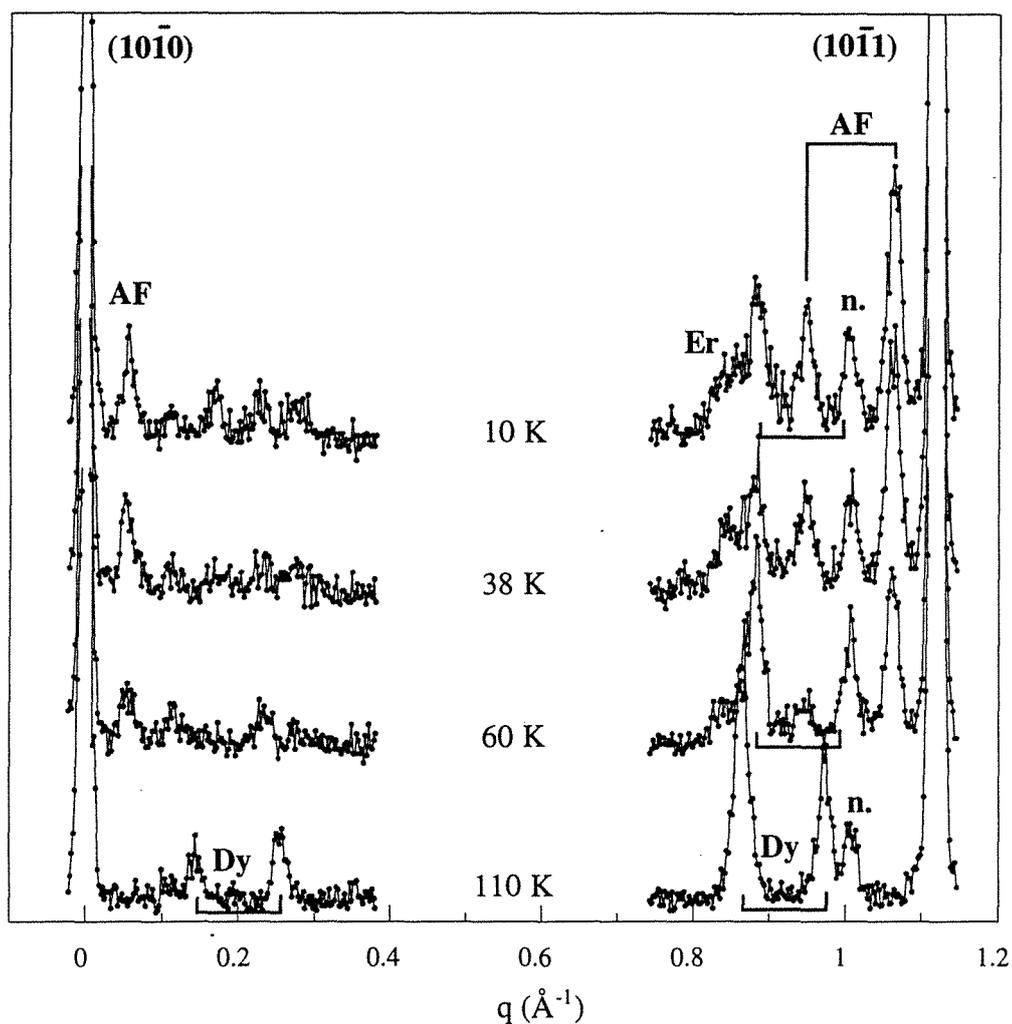


Fig. IV-16 : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* entre les réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ pour le superréseau $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})]_{x50}$.

L'information nouvelle apportée par ce type d'expérience concerne la structure magnétique de l'erbium. Elle apparaît au voisinage de 60 K sous la forme d'un pic large, plus intense que le pic attribué à l'erbium (à 10 K) sur le spectre réalisé autour de (0002) (figure IV-12). Ce pic révèle la modulation suivant l'axe c (CAM) à une température où ne se développe vraisemblablement pas d'ordre hélicoïdal dans le plan (0001).

Lorsque la température décroît, ce pic voit son intensité augmenter et se présente toujours sous la forme d'une unique bosse large. La largeur du pic d'erbium confirme que la composante CAM est incohérente entre couches, la cohérence de la composante hélicoïdale n'étant pas totalement exclue. Rappelons que pour le système Ho/Er [77], une cohérence de la composante hélicoïdale est observée dans les superréseaux Ho(28 Å)/Er(65 Å), Ho(57 Å)/Er(62 Å) et Ho(122 Å)/Er(30 Å).

Comme dans le superréseau à forte épaisseur d'erbium, aucune structure de modulation "carrée" selon l'axe c , comme celle qui se développe dans l'élément massif entre 52 K et 20 K, n'est visible sur ces spectres, mais la faible statistique des résultats ne permet pas de conclure à l'absence d'une telle modulation.

Comme précédemment, l'intensité inchangée des pics de Bragg $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ indique qu'il n'apparaît pas d'ordre ferromagnétique à grande distance dans l'erbium.

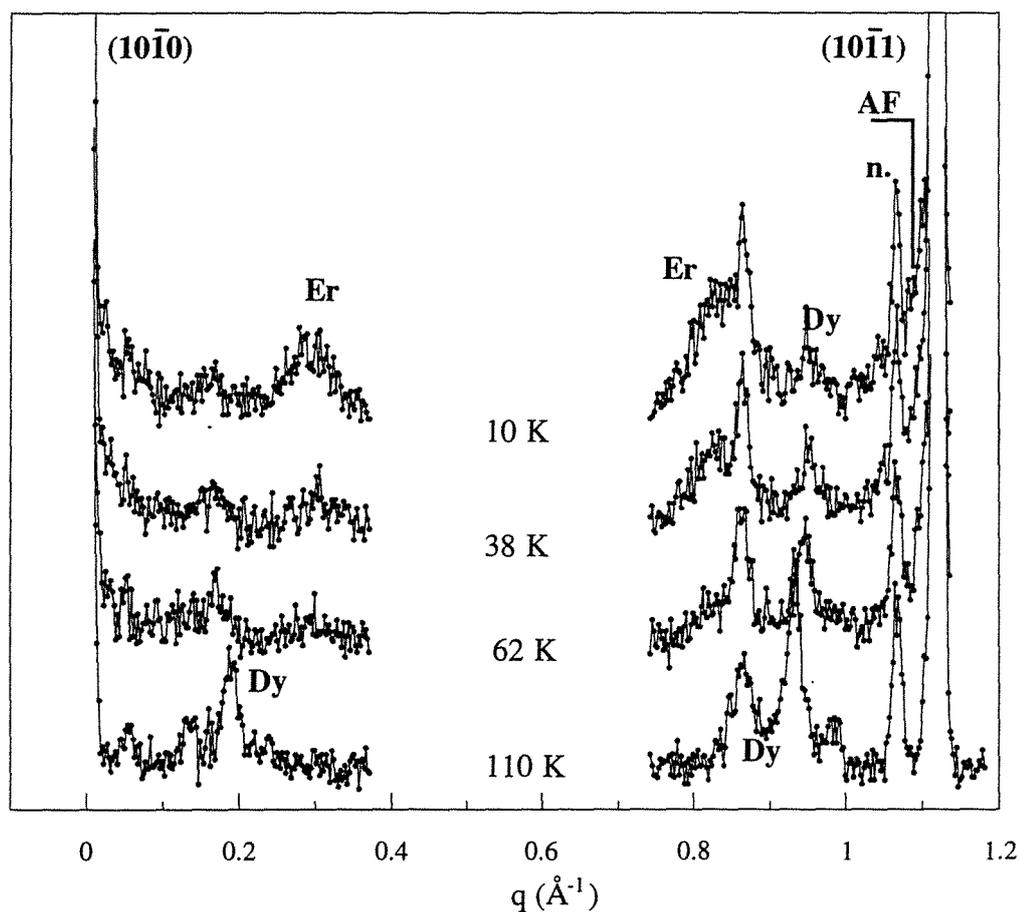
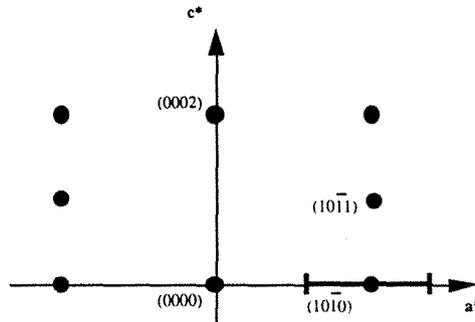


Fig. IV-17 : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* entre les réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ pour le superréseau $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})]_{x60}$.

Diffraction de neutrons le long de la direction a^ autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$*

Les derniers spectres présentés correspondent à l'exploration du réseau réciproque le long de la direction a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$.



Les spectres obtenus à différentes températures en champ nul pour les deux superréseaux sont présentés sur la figure IV-18. Ces deux ensembles de spectres sont très voisins et ne diffèrent que par la position du pic, liée à la composition du superréseau.

À toute température, le spectre présente un pic de Bragg moyen, situé entre les positions théoriques correspondant aux paramètres b des éléments massifs. L'intensité est constante en température, ce qui confirme l'absence de transition vers un ordre ferromagnétique à longue distance dans les couches d'erbium.

À 300 K, le pic possède une largeur à mi-hauteur de 0.0136 \AA^{-1} , correspondant à la résolution expérimentale. Lorsque la température décroît, le pic évolue peu puisqu'il ne se décale que de 0.001 \AA^{-1} et s'élargit de 0.0004 \AA^{-1} entre 300 K et 10 K. Il n'apparaît donc ni élargissement significatif, ni dédoublement du pic, contrairement à ce qui a été observé pour le film de dysprosium de 590 \AA épitaxié entre erbium (figure III-36), dont le pic $(10\bar{1}0)$ se déplace de 0.0032 \AA^{-1} et s'élargit de 0.007 \AA^{-1} entre 300 K et 10 K.

Il semble donc qu'il ne se produise pas de distorsion orthorhombique de type γ dans les couches de dysprosium de ces superréseaux, bien qu'elles deviennent individuellement ferromagnétiques. Ceci est contraire à ce qui a été observé pour les superréseaux Dy/Lu [61].

L'application à basse température d'un champ magnétique de 5.5 kOe selon la direction d'aimantation facile du dysprosium (figure IV-19) a pour effet essentiel d'augmenter l'intensité du pic. Ceci est dû à l'orientation des domaines parallèlement au champ et perpendiculairement au vecteur de diffusion. On n'observe aucune modification du profil du pic mais seulement un très léger déplacement, traduisant une contraction selon b de l'ordre de -0.05% , alors qu'elle est de -0.5% dans l'élément massif à la transition ferromagnétique. La distorsion γ apparaît comme bloquée.

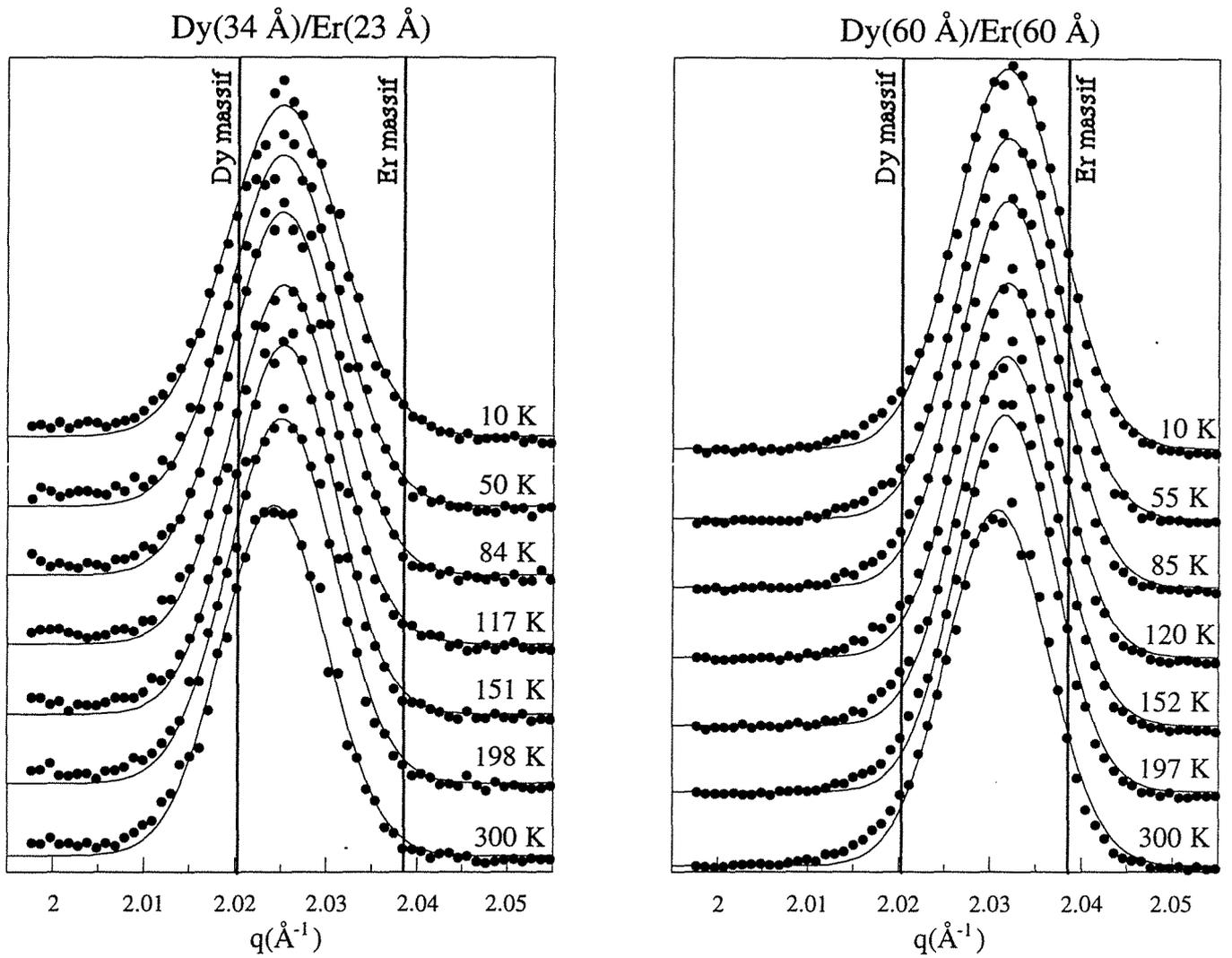


Fig. IV-18 : spectres de diffraction de neutrons le long de a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$.

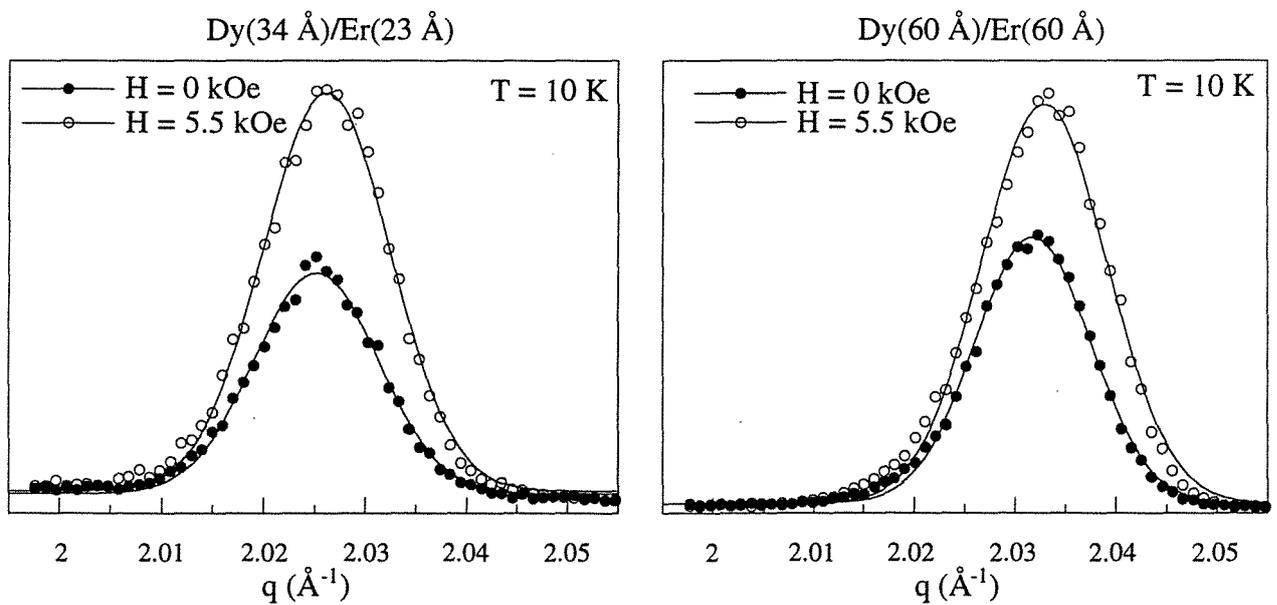


Fig. IV-19 : effet de l'application d'un champ magnétique à 10 K sur les spectres de diffraction neutronique mesurés le long de a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$.

b) Analyse des spectres expérimentaux

Phase hélicoïdale : angle de rotation entre moments et longueur de cohérence

La modélisation des spectres de diffraction expérimentaux (figures IV-12 et IV-13) à partir de l'expression du facteur de structure donnée au chapitre 2 (paragraphe 3.2), permet de déterminer d'une part, l'angle que font entre eux les moments portés par deux plans atomiques de dysprosium consécutifs (ω_{Dy}) et d'autre part, l'angle de rotation effectif dans les couches d'erbium paramagnétique (ω_{Er}). La figure IV-20 présente l'évolution thermique de ω_{Dy} et ω_{Er} pour les deux superréseaux.

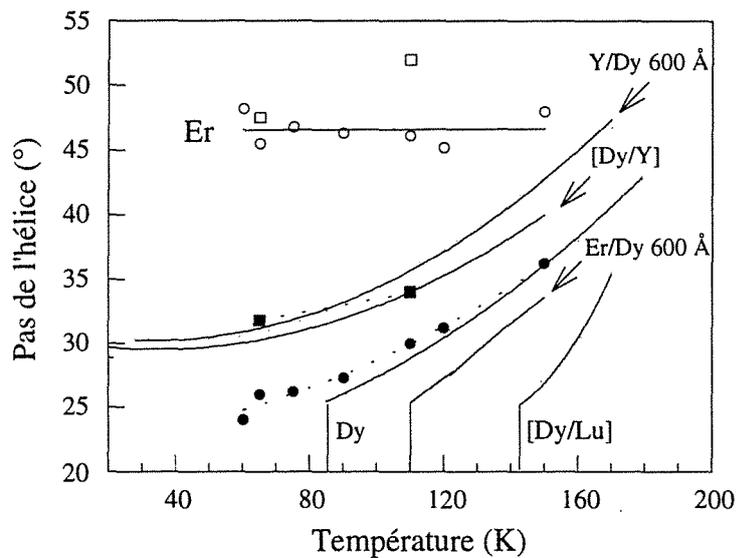


Fig. IV-20 : évolution thermique du pas de l'hélice de la phase hélicoïdale dans les couches de dysprosium (symboles noirs) et d'erbium (symboles blancs) pour les superréseaux $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})] \times 60$ (symboles ronds) et $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})] \times 50$ (symboles carrés). Les valeurs mesurées dans les films de dysprosium de 600 Å épitaxiés entre yttrium et entre erbium ont été également reportées, avec les courbes correspondant au dysprosium massif, aux superréseaux $[Dy/Y]$ [50] et $[Dy/Lu]$ [63].

L'angle effectif dans l'erbium est sensiblement constant en température et voisin de 46°. Cette valeur correspond approximativement à la position du maximum de susceptibilité généralisée $\chi_{Er}(\mathbf{q})$ de l'erbium, c'est-à-dire au vecteur d'onde reliant les deux portions plates et parallèles de sa surface de Fermi (figure I-23). L'erbium transmet donc l'ordre magnétique du dysprosium avec un vecteur d'onde qui lui est propre, identique à celui qui apparaît dans sa propre structure magnétique à la température d'ordre. Le principe de

cette propagation est le même que dans l'élément massif : c'est une interaction de type RKKY où la polarisation des électrons de conduction est vectrice de l'ordre magnétique. Le comportement des superréseaux [Ho/Er] est similaire et l'angle effectif dans l'erbium a été estimé à 51° [77].

L'angle de rotation dans le dysprosium ω_{Dy} décroît avec la température mais reste toujours supérieur à celui rencontré dans le dysprosium massif. Au vu du chapitre précédent, ce décalage est inattendu, puisque nous avons observé que le dysprosium épitaxié sur erbium présente un angle de rotation plus faible que celui du massif et qu'il faut épitaxier le dysprosium sur yttrium pour voir cet angle augmenter (figure III-32).

Ce résultat est aussi contraire à ceux obtenus sur d'autres systèmes tels que Dy/Y [50] et Dy/Lu [63], où le décalage entre les angles de rotation dans les couches de dysprosium et dans l'élément massif semble lié au signe de la contrainte induite par épitaxie : pour les films épitaxiés sur yttrium, la déformation α_1 dans le plan est positive et l'angle mesuré est supérieur à celui de l'élément massif ; pour les films épitaxiés sur lutécium ou erbium, la déformation α_1 est négative et l'angle est inférieur à la valeur du massif. Ce comportement est observé aussi bien pour les films épitaxiés que pour les superréseaux, contrairement à notre étude.

Notre résultat va en revanche dans le sens des observations effectuées sur les superréseaux [Ho/Er] [77], où l'angle de rotation mesuré à 100 K entre moments d'holmium est supérieur de 2° à la valeur rencontrée dans l'holmium massif, alors que la contrainte subie par l'holmium dans le plan est négative. Nous n'avons pas trouvé trace dans la littérature d'une étude de films d'holmium épitaxiés entre deux couches d'erbium qui nous permette de noter une différence entre le cas des films et le cas des superréseaux.

La largeur à mi-hauteur des pics dus à l'ordre hélicoïdal dans le dysprosium permet de déterminer la longueur de cohérence magnétique de cette phase. La figure IV-21 présente les évolutions thermiques de ces longueurs de cohérence pour les deux échantillons analysés. Les longueurs de cohérence de la phase antiferromagnétique y sont également reportées (symboles blancs).

Les longueurs de cohérence de la phase hélicoïdale diminuent avec la température, passant pour le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50 de 10 bicouches à 110 K à 6 bicouches à 10 K et pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60 de 5 bicouches à 2 bicouches. La longueur de cohérence de l'ordre antiparallèle est du même ordre de grandeur que celle de la phase hélicoïdale avec laquelle elle coexiste à basse température,

et est voisine de celle de la phase antiferromagnétique observée dans les superréseaux Dy/Lu [62] (approximativement 250 Å).

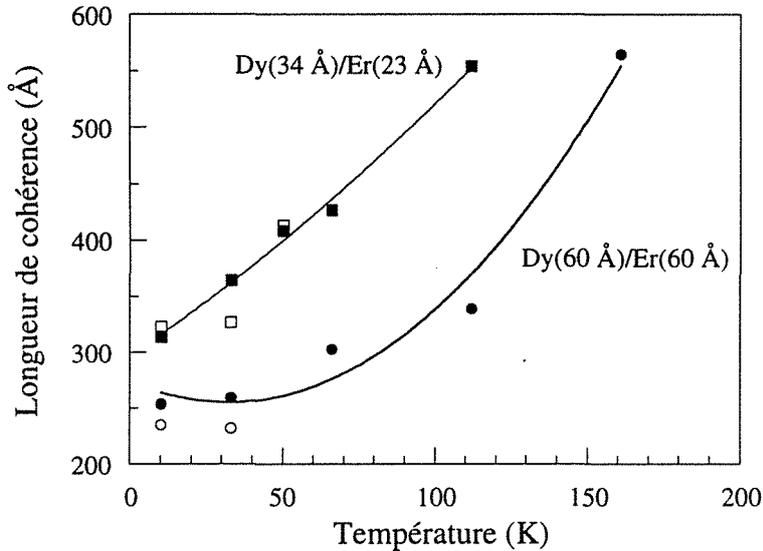


Fig. IV-21 : évolution thermique des longueurs de cohérence des phases hélicoïdale (symboles noirs) et antiferromagnétique (symboles blancs) dans les couches de dysprosium pour les superréseaux $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})] \times 60$ (symboles ronds) et $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})] \times 50$ (symboles carrés).

Les longueurs de cohérence déterminées pour les superréseaux Dy/Y [50] et Dy/Lu [62] sont constantes en température et plus faibles : 250 Å dans l'échantillon Dy(45 Å)/Y(57 Å) et 100 Å dans le superréseau Dy(40 Å)/Lu(60 Å).

En revanche, les longueurs de cohérence reportées pour les superréseaux [Dy/Y] de direction de croissance perpendiculaire à l'axe c [51] et pour le superréseau Ho(57 Å)/Er(62 Å) de direction de croissance parallèle à c [77] décroissent également avec la température, passant pour le système Ho/Er de 850 Å à 100 K à 450 Å à basse température.

Erwin *et al.* [51] expliquent ce comportement par des fluctuations de déformation aux interfaces qui se répercutent localement sur l'échange, puisque l'axe c est parallèle au plan des couches, et conduisent à une réduction considérable de la cohérence, même à haute température (voir paragraphe 4.3 du chapitre I). Cette interprétation ne peut convenir à notre situation où l'axe c est perpendiculaire au plan d'épitaxie et où la cohérence observée à haute température est relativement élevée. Il est toutefois possible que des fluctuations de déformation selon c apparaissent dans l'erbium lorsque la température diminue, induisant des modifications locales de la surface de Fermi et provoquant un abaissement de la susceptibilité des électrons de conduction de cet élément.

Evolutions des paramètres perpendiculaire (c) et parallèle (b) au plan de base

Les positions des pics de Bragg (0002) (figures IV-12 et IV-13) et (10 $\bar{1}$ 0) (figure IV-18) ainsi que leurs intensités ont été suivies en température décroissante en champ nul et lors de la remontée en température sous champ. Les variations de paramètres correspondantes sont présentées figure IV-22 pour les deux superréseaux.

Les évolutions thermiques en champ nul des paramètres dans ces deux superréseaux se décomposent en trois domaines :

(i) Au-dessus de la température de Néel, c'est-à-dire approximativement 175 K, les paramètres b et c décroissent avec la température en raison de la contraction thermique classique.

(ii) Entre 175 K et approximativement 70 K, le paramètre c augmente de 0.008 Å dans le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50 et de 0.003 Å dans le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60. Dans ce domaine de température, les couches de dysprosium présentent un ordre hélicoïdal et l'erbium est paramagnétique. Par conséquent, le paramètre c moyen augmente, mais cette évolution est atténuée par la contraction thermique qui se poursuit dans les couches d'erbium. Il apparaît d'ailleurs que le superréseau dont la proportion d'erbium est plus importante subit une dilatation de plus faible amplitude. Cette dilatation était totalement masquée dans le superréseau riche en erbium, dont le paramètre c moyen continue à décroître dans ce domaine de température (figure IV-5).

(iii) Lorsque la température diminue en dessous de 70 K, l'augmentation de paramètre c s'accélère nettement et se poursuit jusqu'à basse température. L'expansion du réseau mesurée dans cet intervalle de température atteint 0.09 % pour les deux échantillons. Cette augmentation plus rapide peut s'expliquer par l'apparition conjuguée d'un ordre magnétique dans l'erbium et ferromagnétique dans le dysprosium.

Toutefois, les résultats obtenus diffèrent à ce stade d'un échantillon à l'autre.

Pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60, il est clair qu'aucune discontinuité caractéristique d'une transition ferromagnétique ne se produit. Or, si la transition ferromagnétique est effectivement bloquée dans l'erbium, il n'en est pas de même pour le dysprosium. Il semble donc que les couches de dysprosium deviennent ferromagnétiques de manière progressive, peut-être en raison de la persistance de la phase hélicoïdale mentionnée précédemment.

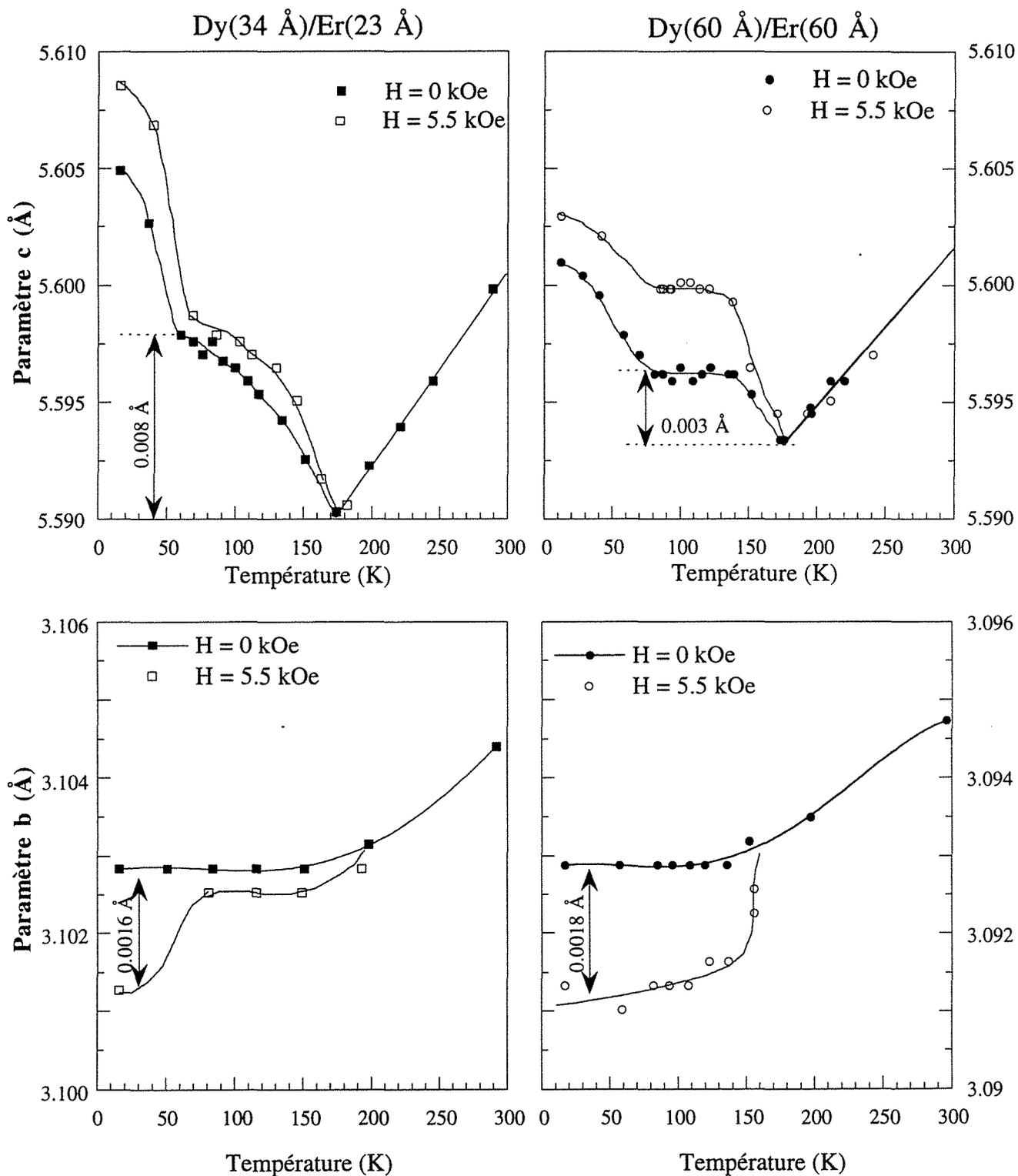


Fig. IV-22: évolutions thermiques des paramètres c et b moyens des superréseaux $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]$ (symboles carrés) et $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$ (symboles ronds). Les valeurs ont été obtenues en refroidissant l'échantillon sous champ nul (symboles noirs) et en réchauffant l'échantillon sous un champ magnétique de 5.5 kOe (symboles blancs).

L'évolution du paramètre c moyen pour le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]_{\times 50}$ présente une augmentation plus brutale mais qui se manifeste à une température trop basse pour correspondre à la transition du dysprosium. Elle serait davantage liée à une contribution de l'erbium. Les couches de dysprosium deviennent donc, dans ce cas également, ferromagnétiques sans provoquer d'expansion discontinue du paramètre c .

Dans les deux échantillons, le paramètre b reste constant en dessous de 150 K, ce qui traduit l'absence de distorsion γ puisque le pic $(10\bar{1}0)$ ne s'élargit pas à basse température (figure IV-18).

L'application d'un champ magnétique de 5.5 kOe selon la direction de facile aimantation du dysprosium induit, nous l'avons vu, un ordre ferromagnétique à grande distance dans les couches de dysprosium et détruit la structure hélicoïdale résiduelle. Cette modification de structure magnétique s'accompagne d'une expansion supplémentaire selon l'axe c (de 0.04 % pour le superréseau $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})]_{\times 60}$ et 0.07 % pour le superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]_{\times 50}$). Simultanément, on observe une contraction très faible du paramètre b d'environ -0.05%.

Lorsque la température augmente sous champ, les variations des paramètres du superréseau $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})]_{\times 60}$ présentent trois étapes qui peuvent être interprétées parallèlement à l'observation des variations thermiques de l'intensité intégrée du pic de Bragg (figure IV-23).

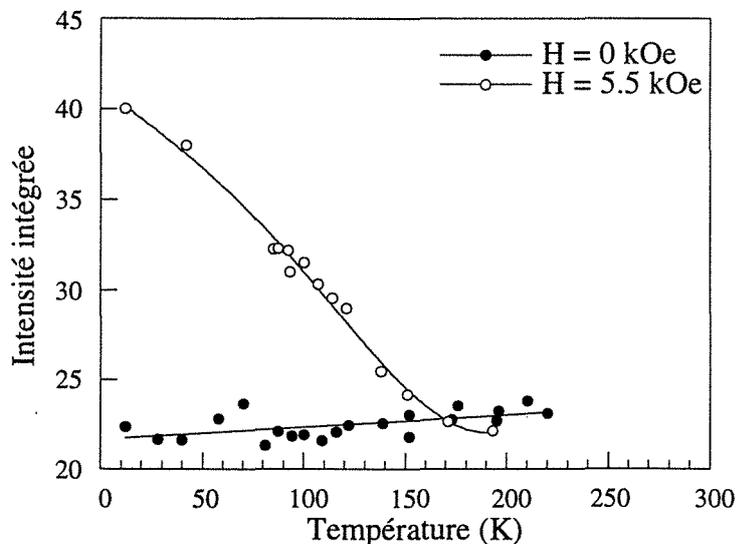


Fig. IV-23: évolutions thermiques de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) du superréseau $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})]_{\times 60}$. Les valeurs ont été obtenues en température décroissante en champ nul (ronds noirs) et croissante sous champ (ronds blancs).

(i) Entre 10 K et 85 K, c'est-à-dire approximativement en dessous de la température de Néel de l'erbium, le paramètre c décroît alors que le paramètre b est constant. Le paramètre c dans le dysprosium, toujours ferromagnétique, ne varie pas et seule intervient l'évolution du paramètre c de l'erbium, ce qui se traduit par la diminution du paramètre c moyen.

(ii) Entre 85 K et 120 K, les couches de dysprosium sont toujours ferromagnétiques et ordonnées parallèlement à travers l'erbium. Le paramètre est donc sensiblement constant et de 0.07% supérieur à la valeur mesurée à la même température sous champ nul, c'est-à-dire quand la structure magnétique est en hélice.

(iii) Au dessus de 120 K, température de disparition de la contribution magnétique sur le pic de Bragg, les couches de dysprosium retrouvent la structure magnétique en hélice, à laquelle correspond un paramètre c plus petit et un paramètre b légèrement plus élevé.

Les évolutions sous champ des paramètres du superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)] sont sensiblement différentes de celles de l'échantillon précédent. Elles peuvent être plus facilement expliquées si l'on se réfère aux variations thermiques de l'intensité intégrée du pic (0002) (figure IV-24).

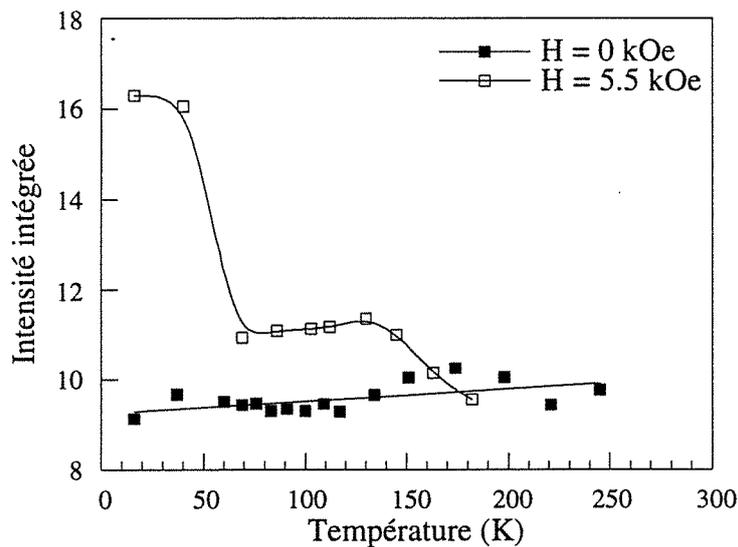


Fig. IV-24: évolutions thermiques de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) du superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x60. Les valeurs ont été obtenues en température décroissante en champ nul (carrés noirs) et croissante sous champ (carrés blancs).

(i) La décroissance de paramètre c en dessous de 70 K est, comme précédemment, vraisemblablement due à la contribution de l'erbium. Il est néanmoins surprenant qu'elle s'accompagne d'une diminution brutale de l'intensité du pic (0002), puisque la contribution magnétique de l'erbium dans le plan de base est théoriquement hélicoïdale. Il

semble donc que l'application du champ de 5.5 kOe à basse température ait induit une composante ferromagnétique de l'erbium dans le plan de base.

(ii) Entre 70 K et 150 K, l'ordre ferromagnétique à grande distance est conservé entre les couches de dysprosium ferromagnétiques. Néanmoins, la différence de paramètres entre cette structure et la structure hélicoïdale est nettement inférieure à celle mesurée dans l'échantillon précédent.

c) Diffraction de neutrons polarisés sous champ le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002)

Des expériences de diffraction de neutrons polarisés ont été conduites sur ces deux échantillons pour analyser la phase antiparallèle qui apparaît à basse température, comme cela a été expliqué dans le paragraphe 3.2 du chapitre 2.

Les mesures ont été réalisées sur un domaine en q allant de 2.08 \AA^{-1} à 2.33 \AA^{-1} , ce qui couvre le pic de Bragg moyen, un pic de surstructure nucléaire et deux pics antiferromagnétiques.

Le rapport de "flipping" est 17 et la longueur d'onde utilisée 4.488 \AA . Deux intensités diffractées dépendantes du spin ont été mesurées : I^{++} , correspondant à l'intensité diffractée sans retournement des spins "up" et I^{+-} , correspondant à l'intensité diffractée avec retournement de spin. Comme l'intensité I^{++} est plus importante que I^{+-} , aucune correction n'a été apportée à I^{++} , alors que la grandeur $I^{++}/17$ a été soustraite aux valeurs de I^{+-} pour compenser le rapport de flipping.

Le champ magnétique a été appliqué selon l'axe a du plan de base, choisi également comme axe de quantification.

Un ensemble de spectres de diffraction de neutrons polarisés obtenus à 10 K sous différents champs magnétiques pour l'échantillon $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})]_{x50}$ est présenté figure IV-25.

Sous très faible champ, l'intensité I^{+-} présente uniquement deux pics aux positions antiferromagnétiques. L'intensité I^{++} est constituée de trois contributions : le pic (0002) moyen du superréseau, le pic de surstructure nucléaire (n.) et les pics antiferromagnétiques (AF). L'élément important est que les intensités I^{++} et I^{+-} des pics antiferromagnétiques sont identiques, ce qui signifie que les domaines antiferromagnétiques sont orientés de façon équiprobable selon les trois directions équivalentes de facile aimantation.

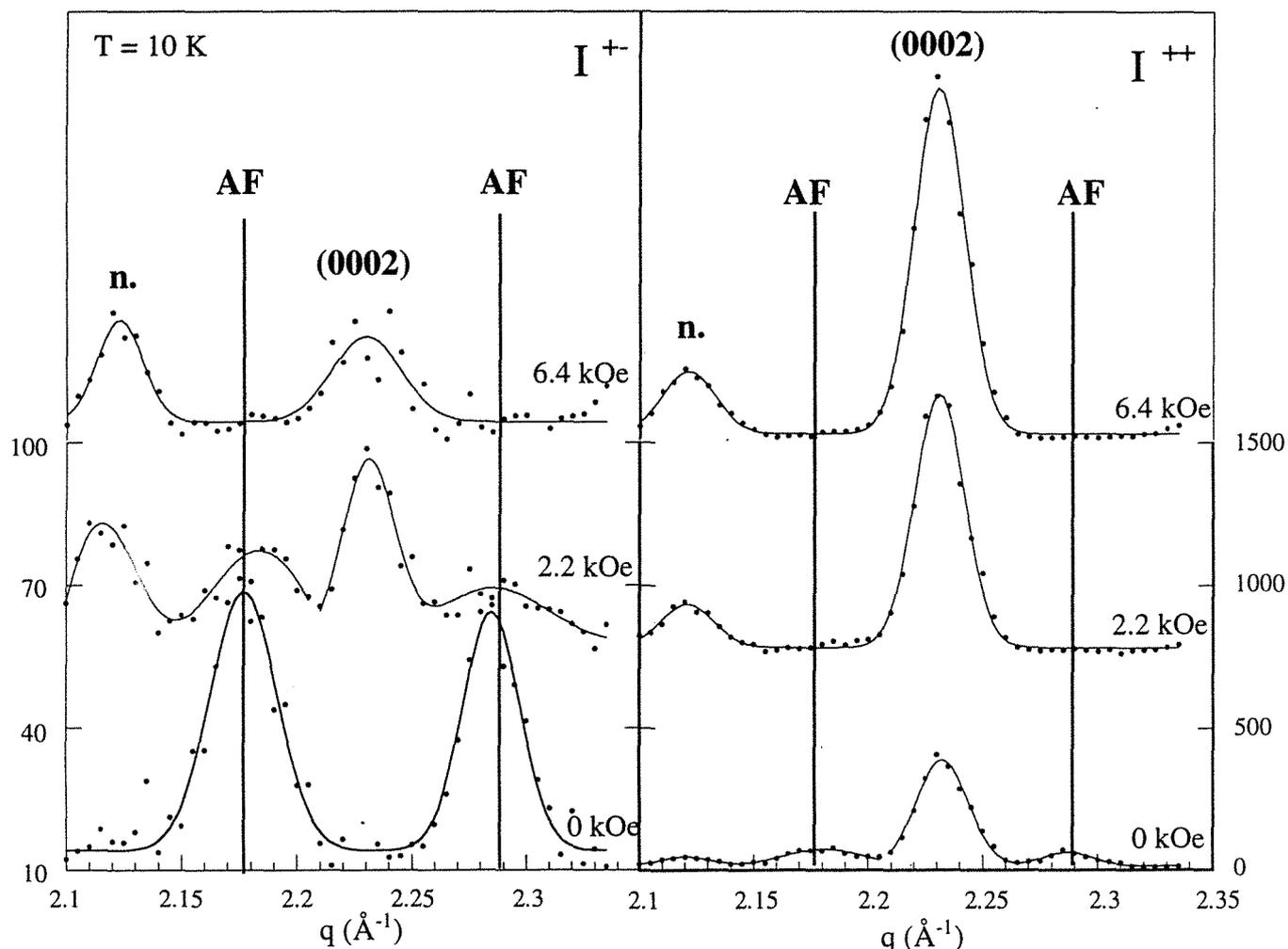


Fig. IV-25: spectres de diffraction de neutrons polarisés obtenus à 10 K sous champ nul et sous champ appliqué dans le plan des couches pour l'échantillon $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})]_{50}$.

Sous l'application d'un champ magnétique de 2.2 kOe, les intensités I^{++} du pic de Bragg moyen et du satellite de surstructure augmentent. Ceci révèle l'apparition d'une composante ferromagnétique à grande distance, dont la contribution vient s'ajouter à l'intensité nucléaire. Parallèlement, les pics antiferromagnétiques sont considérablement réduits, aussi bien sur le spectre I^{++} que sur le spectre I^{+-} ; seule une petite contribution ferromagnétique est apparue sur le spectre I^{+-} .

Sous un champ de 6.4 kOe, il n'y a plus trace d'une contribution antiferromagnétique, que ce soit avec ou sans retournement de spin. Les moments magnétiques sont alignés selon l'axe a de facile aimantation (la faible composante ferromagnétique avec

retournement de spin peut être due à une correction insuffisante du rapport de polarisation, auquel l'intensité I^{+-} est très sensible.).

Si le champ magnétique est ensuite supprimé (figure IV-26), les contributions antiferromagnétiques ne réapparaissent sur aucun des deux spectres, les intensités sans retournement de spin du pic de Bragg moyen et du satellite de surstructure diminuent et une contribution ferromagnétique avec retournement de spin émerge de nouveau.

Ceci confirme que l'arrangement antiparallèle est irréversible en champ et signifie que des domaines ferromagnétiques se sont créés, certains s'étant écartés de la direction selon laquelle était appliqué le champ.

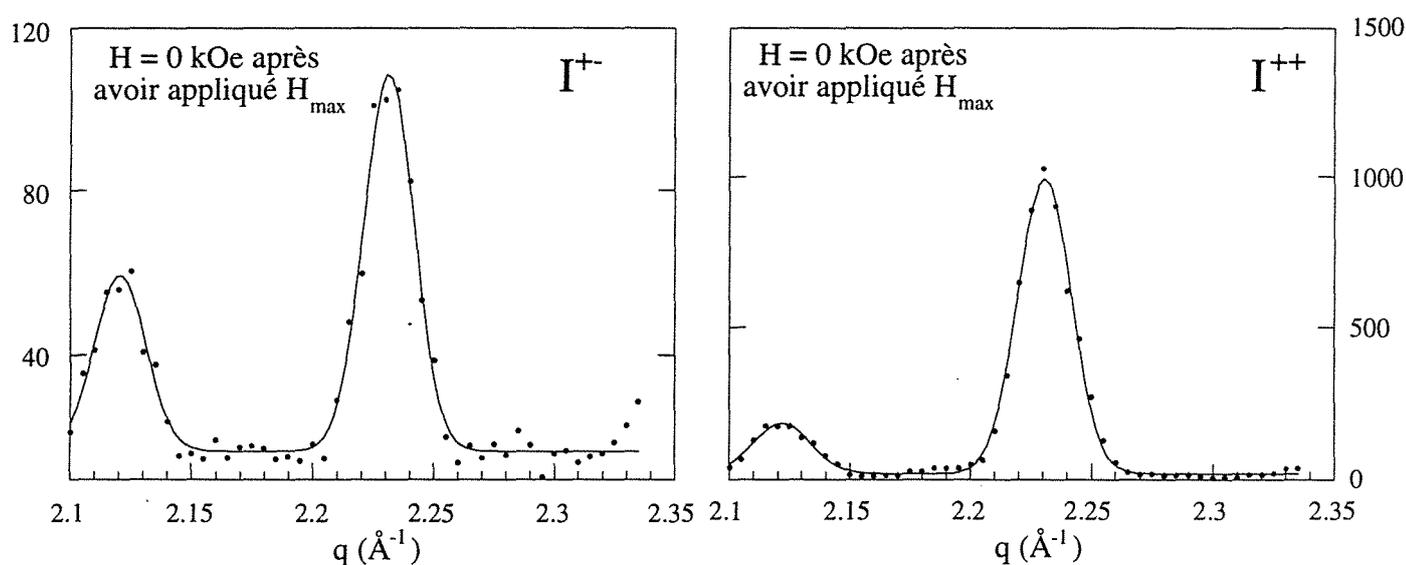


Fig. IV-26 spectres de diffraction de neutrons polarisés obtenus à 10 K en champ nul, après avoir appliqué un champ de 6.4 kOe dans le plan des couches pour l'échantillon $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})]x50$.

La situation dite "spin-flop", pour laquelle la contribution antiferromagnétique serait uniquement présente dans la composante avec retournement de spin, comme pour le système Gd/Y [43] présenté au chapitre I (paragraphe 4.2), n'a pu être observée. Il n'est donc pas possible, même sous champ faible, d'orienter les domaines antiferromagnétiques perpendiculairement à la direction du champ, ce qui traduit une énergie de couplage antiferromagnétique inférieure à l'énergie d'anisotropie dans le plan des couches.

3.2 Mesures d'aimantation

Champ magnétique appliqué dans le plan des couches

Dépendance en champ magnétique

Les résultats de diffraction de neutrons ont mis en évidence une phase hélicoïdale dans le dysprosium, depuis la température de Néel jusqu'à la température d'ordre, et une phase antiparallèle à basse température. Nous présentons les résultats concernant la stabilité de la phase hélicoïdale, puis les résultats obtenus à basse température.

Les courbes de première aimantation du superréseau $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$ obtenues pour les températures supérieures à 65 K sont présentées figure IV-27.

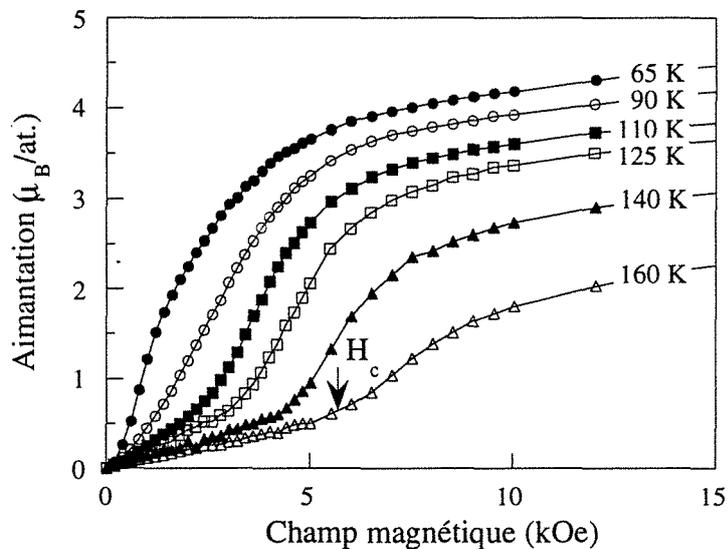


Fig. IV-27: courbes de première aimantation obtenues pour le superréseau $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$. Les mesures ont été réalisées à des températures supérieures à 65 K en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches.

Les courbes mesurées au-dessus de 90 K présentent un régime de faible susceptibilité, caractéristique de la phase hélicoïdale, jusqu'à un champ critique H_c .

La stabilité de la phase hélicoïdale croît quand la température augmente, comme le montre l'évolution thermique du champ critique (figure IV-28), présentée avec celles des superréseaux $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})] \times 50$ et $[\text{Dy}(70 \text{ \AA})/\text{Er}(59 \text{ \AA})] \times 20$.

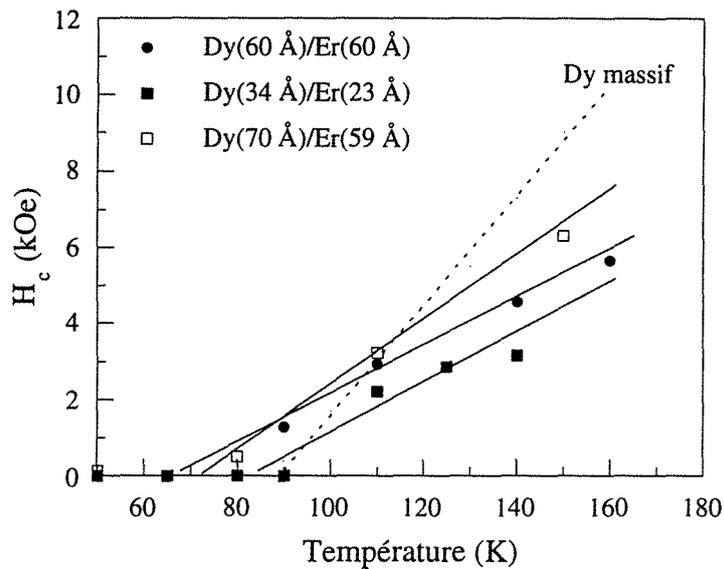


Fig. IV-28 : évolutions thermiques des champs critiques dans la phase hélicoïdale pour trois superréseaux [Dy/Er].

Il apparaît que l'ordre hélicoïdal cohérent à grande distance est moins stable que la phase observée dans le dysprosium massif. Cela peut être expliqué, comme dans le cas du superréseau à forte épaisseur d'erbium, par une interaction de type Zeeman entre le champ appliqué et les moments non compensés des couches de dysprosium.

L'extrapolation des variations de H_c confirme ce qu'indiquaient les expériences de diffraction neutronique : la température de transition ferromagnétique du dysprosium est du même ordre de grandeur voire inférieure à la température de Curie de l'élément massif, contrairement à l'influence attendue de l'épitaxie sur erbium, qui a été observée dans le cas des films étudiés au chapitre III (figure III-26). Les déformations de type α induites dans le dysprosium par l'épitaxie devraient abaisser la barrière énergétique entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique.

Il est tout à fait remarquable que la diminution de la température de transition aille de pair avec l'augmentation de l'angle de rotation entre moments dans la phase hélicoïdale (figure IV-20).

Les courbes de première aimantation obtenues pour les températures inférieures à 65 K sont présentées figure IV-29.

En dessous de 65 K, les courbes présentent de nouveau une région de susceptibilité faible jusqu'à un champ critique H_c qui augmente quand la température décroît. Ce régime révèle l'arrangement antiparallèle entre couches de dysprosium, observé par diffraction neutronique, détruit lorsque les moments s'orientent parallèlement les uns aux autres dans

le sens du champ. Il est néanmoins difficile de saturer l'échantillon, car apparaît ensuite la contribution magnétique de l'erbium, dont les moments quittent leur axe de facile aimantation pour s'orienter à leur tour dans le sens du champ.

Le comportement du superréseau $[\text{Dy}(34 \text{ \AA})/\text{Er}(23 \text{ \AA})] \times 50$ est qualitativement semblable.

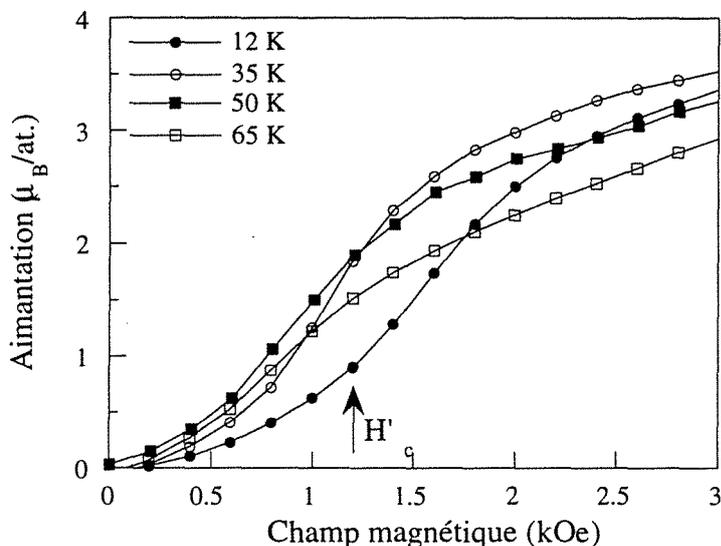


Fig. IV-29: courbes de première aimantation obtenues pour le superréseau $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$. Les mesures ont été réalisées à des températures inférieures à 65 K en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches.

Le cycle d'aimantation mesuré à 12 K pour l'échantillon $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Er}(60 \text{ \AA})] \times 60$ est reporté figure IV-30.

Comme cela a été vu précédemment, le domaine de faible susceptibilité sur la courbe de première aimantation traduit l'ordre antiferromagnétique. Il est remplacé par une phase ferromagnétique à grande distance lorsque le champ magnétique appliqué dépasse 1.2 kOe.

L'aimantation rémanente obtenue après l'application d'un champ de 55 kOe est importante, ce qui confirme le résultat observé en diffraction de neutrons : l'arrangement antiparallèle entre moments des couches de dysprosium ne réapparaît pas si le champ magnétique est annulé.

Il est nécessaire d'appliquer un champ de l'ordre de -1.7 kOe pour renverser les moments de dysprosium ; cette transition s'effectue alors de façon brutale : il y a retournement simultané des domaines ferromagnétiques à grande distance.

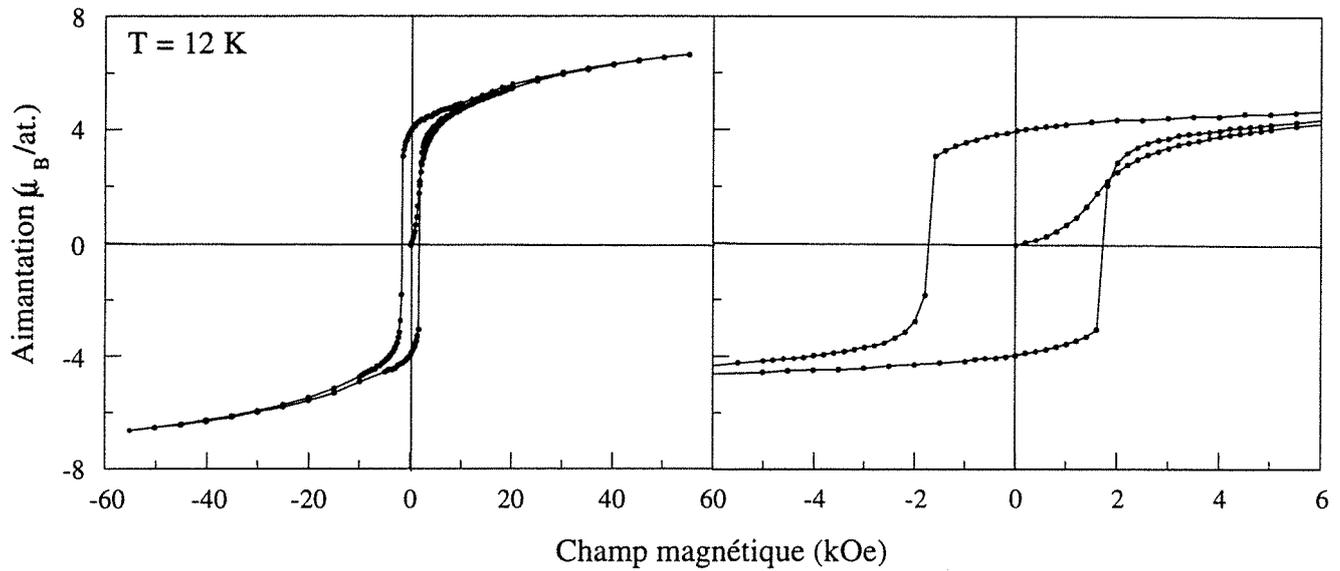


Fig. IV-30 : cycle d'aimantation obtenu à 12 K pour le superréseau $[\text{Dy}(60\text{ \AA})/\text{Er}(60\text{ \AA})]_{\times 60}$, en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches.

Evolution en température

La figure IV-31 présente la courbe d'aimantation (FC) obtenue sous 50 Oe pour l'échantillon $[\text{Dy}(60\text{ \AA})/\text{Er}(60\text{ \AA})]_{\times 60}$.

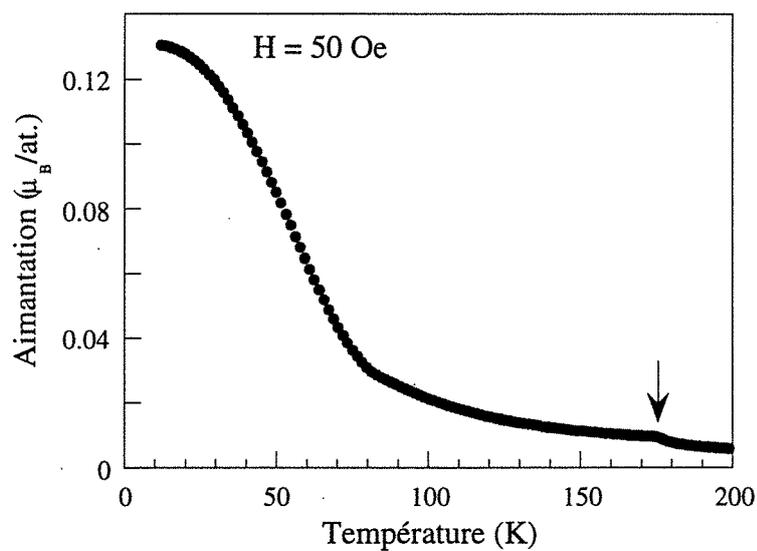


Fig. IV-31 : variation thermique sous 50 Oe de l'aimantation du superréseau $[\text{Dy}(60\text{ \AA})/\text{Er}(60\text{ \AA})]_{\times 60}$. Le champ est appliqué dans le plan des couches et les mesures sont effectuées en abaissant la température.

Le pic de susceptibilité observé révèle le passage de l'état paramagnétique à la phase hélicoïdale à 175 K.

Lorsque la température décroît, l'aimantation augmente faiblement entre 150 K et 80 K puis rapidement à partir d'environ 80 K. La faible aimantation FC entre 150 K et 80 K, comparée à celle obtenue pour le superréseau dont l'épaisseur des couches d'erbium est supérieure à 100 Å (figure IV-7) montre que la stabilité en champ de l'ordre hélicoïdal dans les couches de dysprosium est accrue s'il est cohérent à travers l'erbium.

Les courbes d'aimantation en refroidissant l'échantillon sous 50 Oe ont été mesurées sur plusieurs superréseaux, dont on a ainsi pu déterminer les températures de Néel et de Curie. Elles sont reportées dans le tableau suivant.

Superréseau	T _C (K)	T _N (K)
[Dy(34Å)/Er(23Å)]x50	85	169
[Dy(60Å)/Er(60Å)]x60	65	175
[Dy(70Å)/Er(59Å)]x20	72	176

Alors que la température de Néel décroît lorsque l'épaisseur des couches de dysprosium diminue, la température de transition ferromagnétique est abaissée quand le rapport de l'épaisseur des couches d'erbium sur celle des couches de dysprosium augmente et est inférieure à T_C du dysprosium massif.

Au stade de cette étude, trois explications peuvent être avancées pour interpréter la réduction de T_C :

- (i) l'effet de la couche tampon d'yttrium qui compense la déformation induite par l'erbium,
- (ii) l'absence de distorsion γ (voir paragraphes 3.1.a (figure IV-18) et 3.1.b (figure IV-22)), qui retarde la transition ferromagnétique,
- (iii) l'élévation de la barrière d'énergie d'échange entre les phases ferromagnétique et hélicoïdale, déduite de l'augmentation de l'angle de rotation entre moments dans la phase hélicoïdale (figure IV-20).

Champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches

Les courbes de première aimantation obtenues en appliquant le champ magnétique parallèlement à l'axe c des deux superréseaux sont présentées figure IV-32.

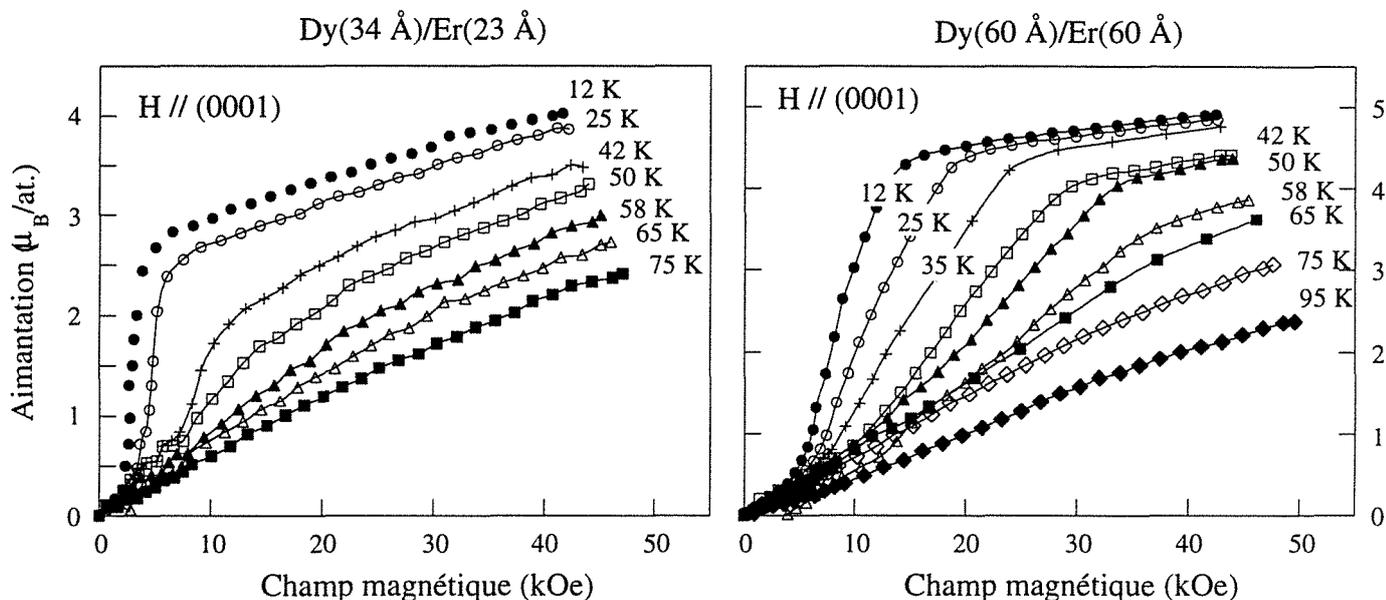


Fig. IV-32 : courbes de première aimantation obtenues pour les superréseaux $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})] \times 50$ et $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})] \times 60$. Les mesures ont été réalisées en appliquant le champ magnétique perpendiculairement au plan des couches.

Ces courbes sont à comparer au comportement de l'erbium massif (figure I-15) et du superréseau dont l'épaisseur de couches d'erbium est supérieure à 100 \AA (figure IV-10).

Trois points essentiels sont à noter :

- (i) L'ordre ferromagnétique spontané dans l'erbium est absent, puisque le champ critique n'est jamais nul, même à basse température.
- (ii) Le champ critique est moins net lorsque l'épaisseur d'erbium est faible, en particulier à haute température. On peut par exemple observer les courbes à 42 K et les comparer à celle obtenue sur la figure IV-10.
- (iii) À une température donnée, le champ critique décroît avec l'épaisseur relative des couches d'erbium (figure IV-33) et se trouve même inférieur à la valeur mesurée dans l'élément massif au-dessus d'une certaine température. Cela n'est pas en accord avec l'influence attendue des contraintes épitaxiales induites par le dysprosium : la transition ferromagnétique de l'erbium étant bloquée sous champ nul, le champ magnétique nécessaire à la transition devrait être, à toute température, supérieur à celui de l'erbium massif, en particulier lorsque l'épaisseur relative d'erbium est faible.

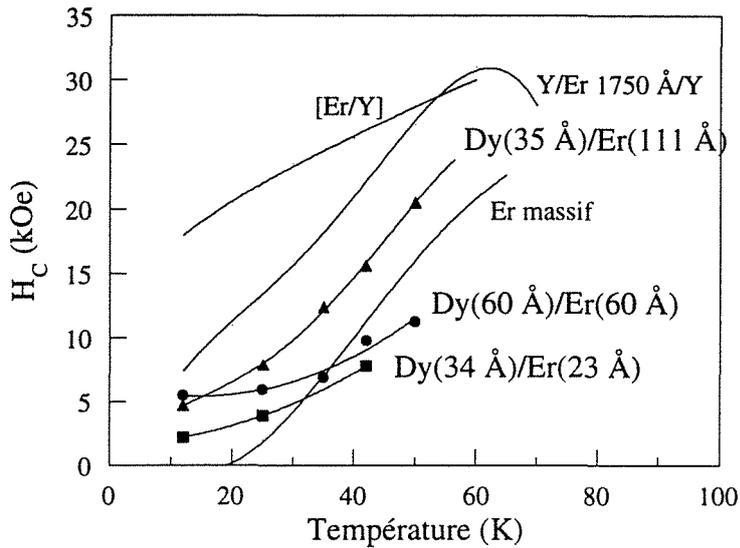


Fig. IV-33 : évolutions thermiques des champs critiques pour les superréseaux [Dy/Er], lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan des couches. Les courbes correspondant à l'erbium massif, à un film d'erbium de 1750 Å épitaxié sur yttrium et aux superréseaux [Er/Y] sont également présentées à titre de comparaison.

L'origine de ce comportement peut résider dans l'influence importante du magnétisme du dysprosium sur les couches d'erbium de faible épaisseur. Dans les superréseaux Dy/Er, les moments de dysprosium sont fortement confinés dans le plan de base et tendent à écarter les moments d'erbium de l'axe c et à les rapprocher du plan de base.

En d'autres termes, la paroi magnétique à 90° entre les moments de dysprosium orientés dans le plan et les moments d'erbium perpendiculaires au plan est localisée sur quelques couches atomiques du côté de l'erbium, car l'énergie de paroi est plus faible dans l'erbium que dans le dysprosium. Cette double paroi (une à chaque interface entre couches) représente une fraction importante des couches d'erbium de faible épaisseur.

La constante d'anisotropie intervenant au dénominateur dans l'expression de la largeur de paroi, l'étendue de la paroi augmente avec la température, ce qui explique que le champ critique est moins net à haute température, car les courbes se rapprochent de celles obtenues selon une direction difficile. La forme des courbes sous champ élevé pour le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)] laisse d'ailleurs supposer qu'il est plus difficile de saturer cet échantillon selon c que les deux autres superréseaux mentionnés.

Cette analyse sera étayée par l'étude d'un superréseau dont l'épaisseur des couches d'erbium est voisine de 10 Å, présentée au paragraphe suivant.

3.3 Récapitulatif

Les éléments marquants du comportement magnétique des superréseaux à épaisseur d'erbium intermédiaire sont les suivants (résumés dans le tableau ci-dessous) :

(i) L'ordre hélicoïdal dans le plan de base du dysprosium se propage de façon cohérente à travers l'erbium paramagnétique, contrairement à ce qui a été observé pour le superréseau d'épaisseur d'erbium supérieure à 100 Å. Ce phénomène repose sur la stabilisation d'une onde de densité de spins dans les bandes de conduction du dysprosium et de l'erbium, et semble comparable à celui observé dans les superréseaux Dy/Y ou Dy/Lu, bien que les deux éléments possèdent ici un moment 4f localisé.

La longueur de cohérence de cet ordre hélicoïdal diminue avec la température. À haute température, la cohérence entre couches de dysprosium a pour effet de stabiliser la phase hélicoïdale (en champ) par rapport à celle des superréseaux qui ne présentent pas de cohérence.

(ii) À basse température, les couches de dysprosium sont devenues individuellement ferromagnétiques mais se couplent antiparallèlement à travers l'erbium magnétique. Cet ordre antiferromagnétique à grande distance coexiste toutefois avec un résidu d'ordre hélicoïdal jusqu'à basse température. L'application d'un champ magnétique ne permet pas d'établir une configuration spin-flop comme dans les antiferromagnétiques géants classiques mais détruit irréversiblement l'ordre antiparallèle.

(iii) La température d'apparition du ferromagnétisme intracouche dans le dysprosium n'est pas supérieure à celle de l'élément massif, contrairement à ce que pouvait laisser supposer l'étude des films de dysprosium épitaxiés sur erbium. Cela peut être dû à l'absence de distorsion γ , mise en évidence par diffraction de neutrons en réflexion transverse, et à l'élévation de la barrière d'énergie d'échange entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique, déduite de l'augmentation de l'angle de rotation entre spins par rapport à celui de l'élément massif.

(iv) Comme dans le superréseau à forte épaisseur d'erbium, l'erbium ne subit pas de transition ferromagnétique, mais conserve à basse température une composante modulée selon c (CAM) et une composante hélicoïdale dans le plan de base. S'il apparaît que la composante selon c ne se propage pas à travers le dysprosium magnétique, il est difficile d'assurer qu'il en est de même pour la composante dans le plan de base.

Notons enfin que les courbes d'aimantation obtenues sur le superréseau dont l'épaisseur des couches d'erbium est de 23 Å laissent supposer l'influence d'une paroi magnétique à l'interface entre les couches. Cette paroi s'étendrait principalement dans l'erbium, dont les moments auraient tendance à quitter la direction c de facile aimantation.

	Dysprosium	paramètres	Erbium
200 K	paramagnétique	b et c décroissent	paramagnétique
	T_N d'autant plus basse que l'épaisseur des couches de dysprosium est faible		
150 K	ordre hélicoïdal cohérent à travers l'erbium	c du Dy croît en raison de l'ordre hélicoïdal + c de Er décroît ↓ c moyen croît	paramagnétique transmet l'ordre hélicoïdal du dysprosium avec son propre vecteur d'onde
100 K	T_C du même ordre de grandeur ou inférieure à la valeur du massif	b est constant	
	apparition de l'ordre ferromagnétique intracouche et antiferromagnétique intercouche		vers 70 K
50 K	l'ordre hélicoïdal disparaît au profit de l'ordre antiferromagnétique	c moyen croît en raison de l'ordre dans Er + ferro. dans Dy	ordre suivant c (CAM) incohérent pas d'hélice dans le plan de base
	pas d'ordre ferromagnétique à grande distance	b est constant	vers 50 K
		pas de saut de paramètre pas de distorsion γ	ordre suivant c (CAM) incohérent + hélice dans le plan de base (incohérente ?) pas de transition ferromagnétique

Tableau récapitulatif :
superréseaux à épaisseur d'erbium intermédiaire

4. Comportement magnétique de superréseaux à faible épaisseur d'erbium

Le superréseau principalement étudié dans cette partie est l'échantillon [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80. Il devrait permettre d'approfondir trois points essentiels :

- (i) La nature de l'ordre magnétique entre couches de dysprosium. On peut en effet s'interroger sur la persistance de l'arrangement antiparallèle à travers une couche d'erbium de faible épaisseur.
- (ii) Le comportement magnétique des couches d'erbium de faible épaisseur, qui est déjà apparu singulier dans le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50 étudié précédemment. Ce problème est celui de l'extension de l'interface magnétique.
- (iii) Un possible effet d'alliage d'interface, sensible lorsque l'épaisseur des couches d'un des éléments est très réduite.

4.1 Diffraction de neutrons

Diffraction de neutrons sous champ nul le long de la direction c^ autour de la réflexion (0002)*

L'ensemble des spectres de diffraction de neutrons obtenus à différentes températures le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) est reporté figure IV-34.

À température ambiante sont présents le pic de Bragg moyen du superréseau en $q = 2.232 \text{ \AA}^{-1}$, celui de l'yttrium (Y) en $q = 2.182 \text{ \AA}^{-1}$, et un pic de surstructure nucléaire (n.) situé en $q = 2.094 \text{ \AA}^{-1}$, révélant la modulation chimique de 46 Å.

À 150 K émergent deux pics de part et d'autre du pic (0002), dus à l'ordre hélicoïdal dans le dysprosium (Dy), cohérent à travers l'erbium. Ces pics, dont les positions évoluent avec la température, sont observés jusqu'à basse température, où leur intensité est encore tout à fait significative. L'apparition de ces pics fins, et du pic de surstructure nucléaire, montre qu'il existe toujours une modulation chimique et que le superréseau n'est pas réduit à un alliage homogène.

En dessous de 110 K, apparaît une contribution magnétique supplémentaire (F), non pas entre les pics de surstructure, comme pour les trois échantillons analysés précédemment, mais au même endroit que ces satellites, ainsi que sur le pic de Bragg principal. La modulation magnétique est donc dans ce cas égale à la modulation chimique et l'arrangement entre moments des couches de dysprosium n'est plus antiparallèle mais parallèle.

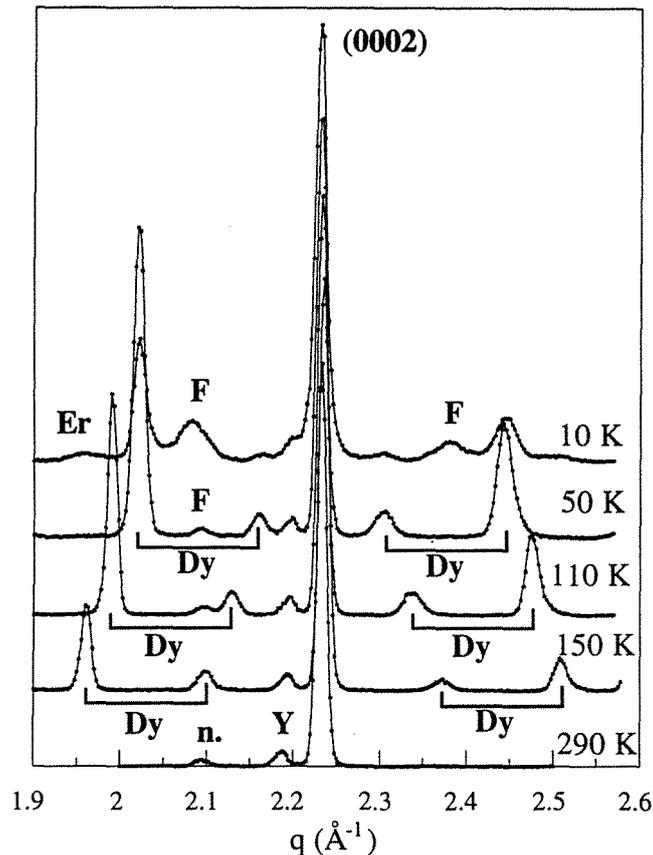


Fig. IV-34 : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour le superréseau $[\text{Dy}(35 \text{ \AA})/\text{Er}(11 \text{ \AA})]_{x80}$.

Il ne s'agit toutefois pas d'un couplage de nature oscillante avec l'épaisseur des couches d'erbium, comme c'est le cas dans les superréseaux $[\text{Gd}/\text{Y}]$ [44-45]. Des mesures d'aimantation réalisées sur plusieurs superréseaux $[\text{Dy}/\text{Er}]$ ont montré que l'ordre ferromagnétique n'apparaissait que pour les échantillons de faible épaisseur d'erbium. Les superréseaux dont l'épaisseur des couches d'erbium dépasse 20 \AA présentent tous l'arrangement antiferromagnétique exposé précédemment.

Les superréseaux $[\text{Dy}/\text{Lu}]$ étudiés par Beach et al. [61] révèlent un comportement similaire : lorsque l'épaisseur des couches de lutécium est inférieure à environ 20 \AA , les aimantations portées par les couches de dysprosium se couplent parallèlement à travers le lutécium, alors que l'ordre est antiferromagnétique à grande distance pour les superréseaux dont l'épaisseur des couches de lutécium est supérieure à 20 \AA .

Les évolutions thermiques de l'angle de rotation entre moments et de la longueur de cohérence de la phase hélicoïdale sont présentées respectivement figures IV-35 et IV-36.

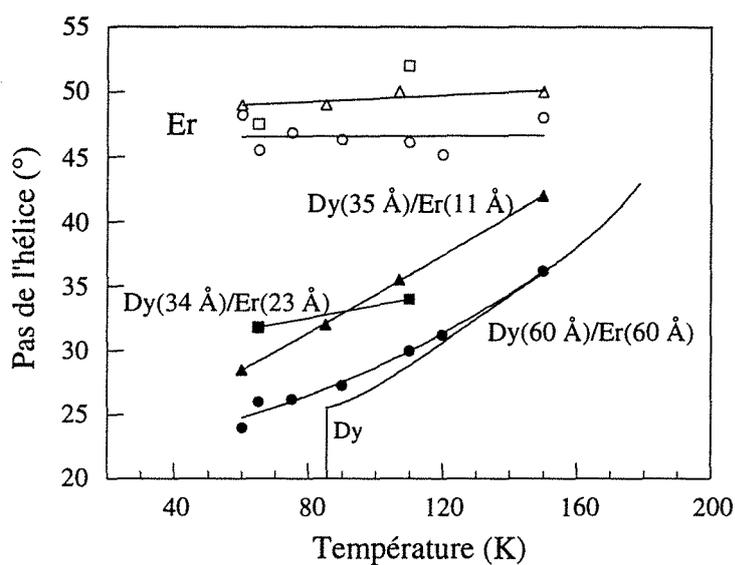


Fig. IV-35 : pas de l'hélice de la phase hélicoïdale dans les couches de dysprosium pour les superréseaux $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(11 \text{ \AA})] \times 80$ (triangles noirs), $[Dy(34 \text{ \AA})/Er(23 \text{ \AA})] \times 50$ (carrés noirs) et $[Dy(60 \text{ \AA})/Er(60 \text{ \AA})] \times 60$ (ronds noirs). Les valeurs de l'angle effectif dans l'erbium sont indiquées par les symboles blancs correspondant aux mêmes superréseaux.

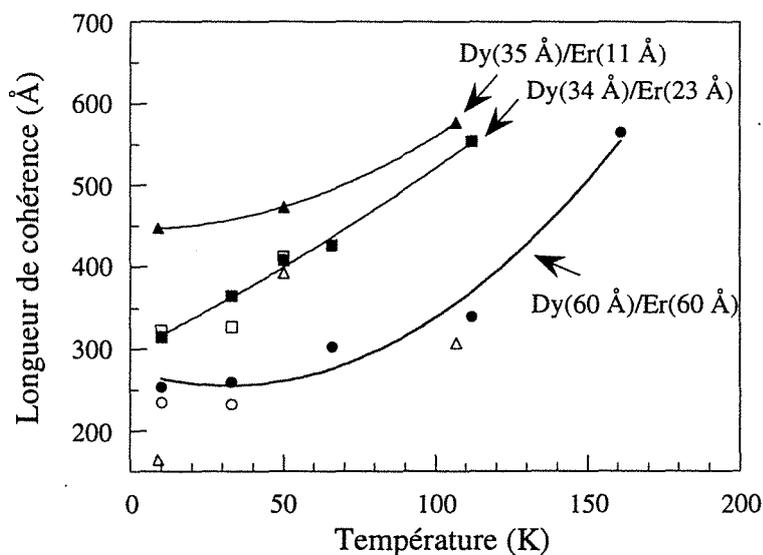


Fig. IV-36 : évolutions thermiques des longueurs de cohérence des phases hélicoïdale (symboles noirs) et parallèle ou antiparallèle (symboles blancs) pour les superréseaux $[Dy/Er]$.

L'angle de rotation des moments dans la phase hélicoïdale du superréseau à faible épaisseur d'erbium (triangles noirs figure IV-35) est, à toute température, supérieur à celui de l'élément massif, à celui du superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)] et vient rejoindre les valeurs mesurées pour le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)] (carrés noirs).

Comme pour les superréseaux étudiés au paragraphe 3, cette augmentation de l'angle de rotation traduit un accroissement de la barrière énergétique entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique, donc une stabilisation de la phase hélicoïdale qui coexiste plus nettement encore avec l'arrangement parallèle entre couches de dysprosium jusqu'à basse température.

Notons que l'angle effectif déterminé dans l'erbium est constant en température et légèrement supérieur à celui mesuré pour le superréseau Dy(60 Å)/Er(60 Å).

Dans ce superréseau, la longueur de cohérence de la phase hélicoïdale (triangles noirs figure IV-36) est supérieure à celle rencontrée pour les autres échantillons et est encore de 450 Å à basse température. La longueur de cohérence est par conséquent d'autant plus élevée que l'épaisseur d'erbium est faible, conformément à ce qui est généralement observé dans les superréseaux où existe un ordre magnétique à grande distance. En revanche, l'ordre ferromagnétique entre couches de dysprosium (triangles blancs) ne s'étend que sur 150 Å à 10 K, ce qui représente moins de quatre bicouches et est inférieur à la longueur de cohérence de l'arrangement antiparallèle rencontrée pour les deux autres superréseaux.

Diffraction de neutrons sous champ le long de la direction c^ autour de la réflexion (0002)*

Des expériences de diffraction ont été réalisées à 10 K, en appliquant le champ magnétique dans le plan (0001) selon la direction de facile aimantation du dysprosium.

La figure IV-37 présente une série de spectres réalisés à 10 K, sous champ magnétique croissant.

Le pic le plus intense est le pic de Bragg (0002) moyen. Les pics situés en $q = 2.022 \text{ \AA}^{-1}$ et $q = 2.083 \text{ \AA}^{-1}$ correspondent respectivement à l'ordre hélicoïdal du dysprosium dans le plan de base et à l'arrangement parallèle entre moments portés par les couches de dysprosium. On constate avec l'augmentation du champ la disparition de la structure hélicoïdale et le renforcement de la phase ferromagnétique, dont l'intensité et la longueur de cohérence augmentent avec la valeur du champ appliqué. Cette dernière passe de 170 Å en champ nul à 380 Å sous 2.8 kOe.

Les variations de l'intensité intégrée du pic de Bragg et du paramètre c moyen en fonction du champ magnétique sont présentées figure IV-38.

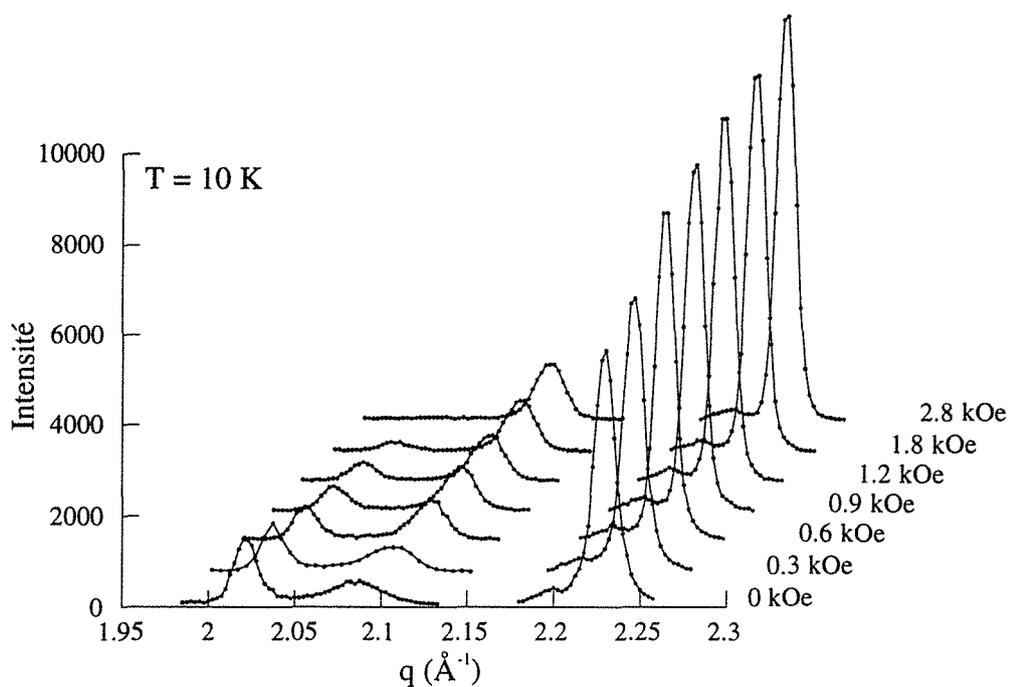


Fig. IV-37 : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) réalisés à 10 K sous champ magnétique croissant pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(11 \text{ \AA})] \times 80$.

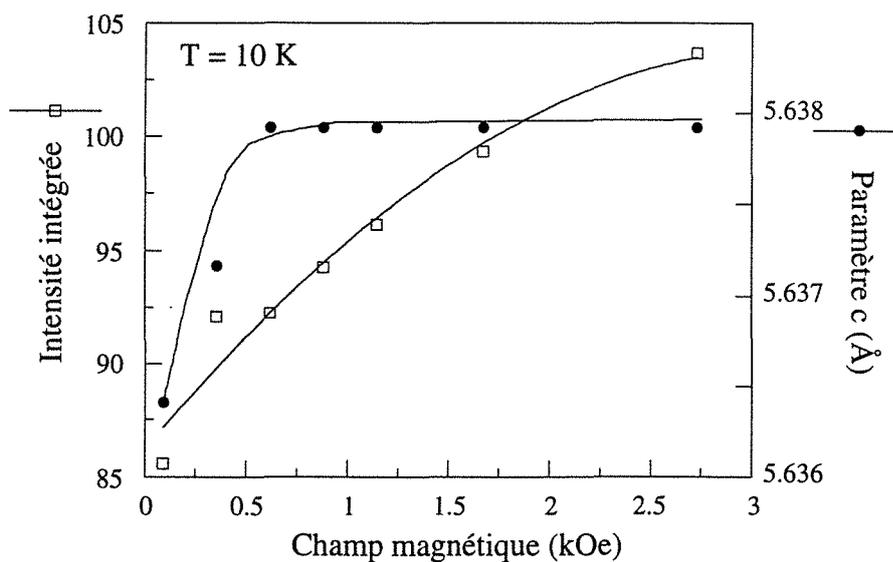


Fig. IV-38 : variations à 10 K en fonction du champ magnétique de l'intensité intégrée du pic (0002) et du paramètre c moyen pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(11 \text{ \AA})] \times 80$.

Dès l'application d'un faible champ de 0.5 kOe, le pic de Bragg se déplace nettement vers les faibles valeurs de q , signature d'une expansion de 0.027% selon la direction c , plus faible que celle observée pour les deux échantillons étudiés au paragraphe précédent.

4.2 Mesures d'aimantation

Champ magnétique appliqué dans le plan des couches

Evolution en température

La figure IV-39 présente les courbes d'aimantation (FC) obtenues en abaissant la température sous un champ de 50 Oe (ronds noirs) et en température croissante de 10 K à 200 K sous ce même champ (ronds blancs) après être descendu à basse température en champ nul (ZFC).

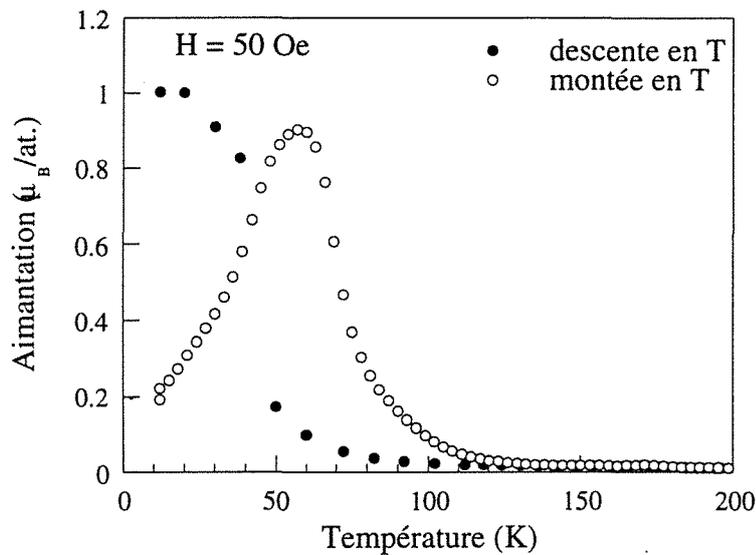


Fig. IV-39: courbes d'aimantation obtenues sous 50 Oe avec le champ magnétique appliqué dans le plan des couches pour le superréseau $[\text{Dy}(35 \text{ \AA})/\text{Er}(11 \text{ \AA})] \times 80$. Les valeurs indiquées par les ronds noirs ont été obtenues en abaissant la température (FC) ; celles indiquées par les ronds blancs ont été obtenues en température croissante (ZFC).

Bien que cela ne soit pas très visible sur la figure présentée ici, les deux courbes présentent un pic de susceptibilité à une température voisine de 171 K, ce qui confirme l'influence de l'épaisseur des couches de dysprosium sur la température de Néel.

Quand le superréseau est refroidi sous champ (ronds noirs), se succèdent un domaine d'aimantation nulle entre la température de Néel et 100 K, une légère augmentation de l'aimantation entre 100 K et 50 K puis une transition très nette à 50 K. La courbe mesurée en température croissante (ronds blancs) révèle de forts effets d'hystérèse.

Le comportement général est toutefois sensiblement différent de ceux observés pour les autres superréseaux :

- (i) La phase hélicoïdale dans les couches de dysprosium est plus stable, ce qui est lié à la longueur de cohérence de l'ordre hélicoïdal à grande distance, particulièrement élevée dans cet échantillon (figure IV-36).
- (ii) La transition est plus abrupte et décalée vers les basses températures ; la fraction ferromagnétique visible à 110 K (figure IV-34) ne devient significative qu'en dessous de 50 K.
- (iii) Le signal mesuré à basse température est environ dix fois supérieur, ce qui peut s'expliquer par l'arrangement ferromagnétique à grande distance.

Les températures de Néel et de Curie déterminées sous 50 Oe pour deux autres superréseaux à faible épaisseur d'erbium sont reportées dans le tableau suivant. Il apparaît que la température de Néel décroît fortement avec l'épaisseur des couches de dysprosium et que les températures de Curie sont particulièrement basses.

Superréseau	T _C (K)	T _N (K)
[Dy(35Å)/Er(11Å)]x50	50	171
[Dy(19Å)/Er(19Å)]x60	52	160
[Dy(10Å)/Er(10Å)]x20	56	147

Dépendance en champ magnétique

Les courbes de première aimantation mesurées entre 12 K et 150 K avec le champ magnétique appliqué parallèlement au plan des couches sont présentées figure IV-40.

La courbe obtenue à 12 K ne présente pas de région de faible susceptibilité mais révèle une contribution ferromagnétique dès les plus faibles champs, en accord avec la tendance à l'arrangement parallèle entre couches de dysprosium observée par diffraction de neutrons. Au-delà d'environ 10 kOe, l'aimantation présente une seconde augmentation, suivie d'un plateau sensiblement constant à partir de 30 kOe, indiquant que le champ magnétique appliqué est suffisant pour saturer l'échantillon, moments de dysprosium et d'erbium confondus. La valeur du moment sous fort champ est en effet assez proche des moments à saturation de l'erbium et du dysprosium massifs.

On doit en conclure que les moments d'erbium ont quitté leur direction de facile aimantation et se sont orientés dans le plan (0001) perpendiculaire à l'axe c. Cela rejoint la discussion sur l'interface magnétique abordée au paragraphe 2 de ce chapitre, à savoir que la paroi à 90° se situe dans la couche d'erbium et s'étend sur environ trois plans

atomiques. L'épaisseur de 11 Å correspondant approximativement à quatre plans atomiques, les moments d'une couche d'erbium contribuent tous à la zone de transition entre les phases magnétiques du dysprosium et de l'erbium ; ils s'écartent peu du plan de base et la susceptibilité dans ce plan se trouve considérablement renforcée.

Entre 12 K et 80 K, le comportement est qualitativement identique. Cependant, le champ magnétique nécessaire pour induire l'orientation des moments d'erbium dans le sens du champ augmente avec la température

Au-delà de 80 K, la contribution de l'erbium a disparu. Les courbes présentent un régime de faible susceptibilité sous faible champ, caractéristique de la structure magnétique en hélice dans les couches de dysprosium.

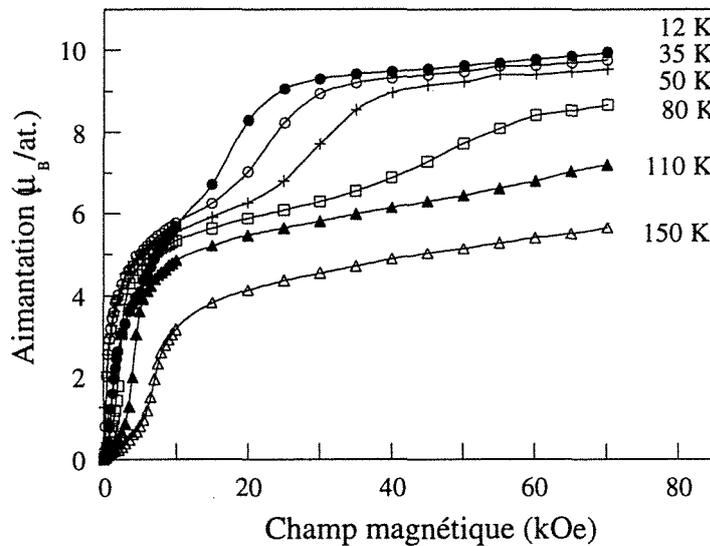


Fig. IV-40 : courbes de première aimantation réalisées avec le champ magnétique appliqué dans le plan des couches pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(11 \text{ \AA})]_x80$.

Champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches

Les courbes de première aimantation mesurées dans cette configuration sont présentées figure IV-41.

Ces courbes ne suivent pas l'évolution habituelle rencontrée dans l'erbium massif (figure I-15) ou dans les superréseaux précédents (figures IV-10 et IV-32). Quelle que soit la température, l'aimantation augmente continûment avec le champ appliqué et le signal est environ deux fois plus faible que pour les autres échantillons.

Ce comportement est plutôt celui d'un échantillon pour lequel le champ est appliqué selon une direction d'aimantation difficile. Cela confirme l'hypothèse développée précédemment, à savoir que les moments d'erbium sont notablement écartés de l'axe c sous l'influence du dysprosium. Ce phénomène, déjà visible dans le superréseau à 23 Å d'erbium (figure IV-32), est tout à fait net dans cet échantillon.

On peut également se demander si un effet d'alliage d'interface pourrait être à l'origine de la stabilisation de la phase hélicoïdale et de la réduction de la température de Néel. Nous n'avons pas fait d'étude plus approfondie dans cette direction.

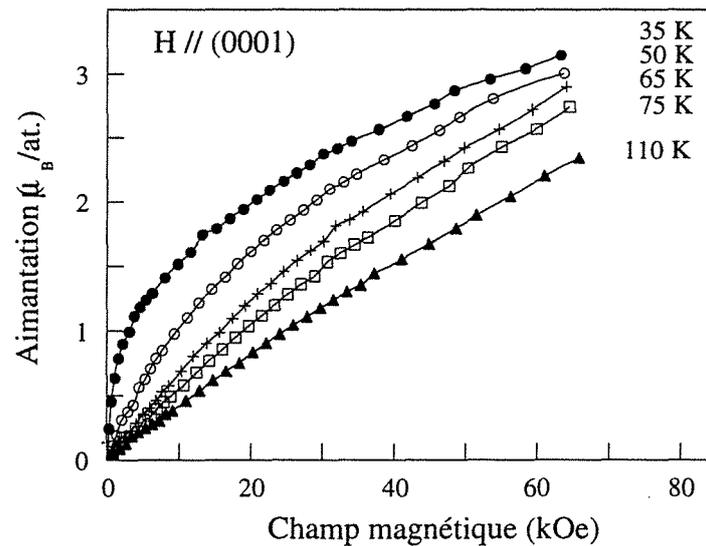


Fig. IV-41: courbes de première aimantation réalisées avec le champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches pour le superréseau $[Dy(35 \text{ \AA})/Er(11 \text{ \AA})]_x80$.

4.3 Récapitulatif

Les superréseaux à faible épaisseur d'erbium partagent un certain nombre de caractéristiques avec les superréseaux à épaisseur d'erbium intermédiaire étudiés au paragraphe précédent :

- (i) L'ordre hélicoïdal dans le plan de base du dysprosium se propage à travers l'erbium paramagnétique. La longueur de cohérence est toutefois supérieure à celle des superréseaux présentés précédemment, ce qui se traduit parallèlement par une stabilité sous champ accrue.
- (ii) La température d'apparition du ferromagnétisme intracouche dans le dysprosium n'est pas supérieure à celle de l'élément massif.
- (iii) La transition ferromagnétique de l'erbium est supprimée.

En revanche, certaines observations sont spécifiques aux superréseaux à faible épaisseur d'erbium :

- (i) À basse température, l'arrangement entre couches de dysprosium, devenues individuellement ferromagnétiques, n'est plus antiparallèle mais parallèle. Cet ordre ferromagnétique s'étend toutefois sur une longueur inférieure à la longueur de cohérence déterminée pour l'ordre antiferromagnétique et coexiste avec une contribution hélicoïdale plus importante. L'application d'un champ magnétique à basse température détruit l'ordre hélicoïdal résiduel.
- (ii) Les courbes d'aimantation présentent des allures singulières qui révèlent une forte susceptibilité de l'erbium dans le plan de base et une faible susceptibilité de l'erbium selon l'axe *c*. Ce comportement opposé à celui de l'erbium massif est attribué à l'existence d'une paroi magnétique qui s'étend sur la totalité de la couche d'erbium.

Tableau récapitulatif :
superréseau à faible épaisseur d'erbium

	Dysprosium(35 Å)	Erbium(11 Å)
200 K	paramagnétique	paramagnétique
	$T_N = 171$ K	
150 K	ordre hélicoïdal cohérent à travers l'erbium	paramagnétique transmet l'ordre hélicoïdal du dysprosium avec son propre vecteur d'onde
100 K	début de l'apparition de l'ordre ferromagnétique à grande distance entre couches de Dy	
50 K	l'ordre ferromagnétique se renforce mais l'ordre hélicoïdal coexiste de façon importante jusqu'à basse température	forte susceptibilité dans le plan de base et réduction de la susceptibilité selon c
	↓	influence du dysprosium situé à moins d'une paroi à 90°. Effet d'alliage ?

5. Conclusion

Par la présence de deux éléments dont les propriétés à l'état massif sont à bien des égards opposées, les superréseaux Dy/Er présentent un comportement magnétique complexe, dont nous résumons ci-dessous les grandes lignes :

(i) Les états de déformation sont ceux attendus d'une épitaxie presque parfaite : le réseau du dysprosium, contracté dans le plan et étiré suivant l'axe c , subit une déformation α_1 négative et α_2 positive, c'est-à-dire de même signe que les coefficients de magnétostriction associés. L'erbium subit une déformation inverse, et donc opposée à la déformation spontanée qu'il manifeste lors du développement de son ordre magnétique.

(ii) La température de Néel du dysprosium décroît avec l'épaisseur des couches de cet élément. C'est un phénomène assez classique de film mince, dû à la réduction des échanges aux interfaces. Comme on l'a vu au chapitre précédent, les contraintes épitaxiales ne jouent là qu'un rôle mineur. L'influence d'un éventuel alliage d'interface, qui ne devrait pas excéder quelques plans atomiques, n'est toutefois pas à exclure.

(iii) L'ordre hélicoïdal du dysprosium se propage de façon cohérente à travers l'erbium paramagnétique, si son épaisseur est inférieure à 100 Å, avec un vecteur d'onde correspondant au maximum de susceptibilité généralisée de cet élément. Pour les épaisseurs supérieures, la cohérence entre les hélices des couches de dysprosium est supprimée, du moins tant que l'erbium est paramagnétique. L'apparition de l'ordre magnétique dans l'erbium semble repousser cette limite de 100 Å.

(iv) Le dysprosium subit une transition ferromagnétique intracouche, à une température que nous appelons T_C ; cependant, trois éléments distinguent la transition ferromagnétique des couches de dysprosium impliquées dans les superréseaux de celles du dysprosium massif et des films de dysprosium épitaxiés sur erbium :

- L'ordre ferromagnétique intracouche reste partiel et l'ordre hélicoïdal persiste à basse température, la contribution hélicoïdale à basse température étant d'autant plus importante que l'épaisseur de dysprosium est faible.
- La température à laquelle apparaît l'ordre ferromagnétique dans chaque couche est inférieure à la température de Curie du dysprosium massif, et donc bien inférieure à la température de Curie d'un film de dysprosium épitaxié sur erbium et soumis aux mêmes contraintes.
- Aucune distorsion de type γ n'est observée.

La stabilisation relative de la phase hélicoïdale est certainement due à la fois, à une augmentation de la barrière d'énergie d'échange entre les phases magnétiques, corroborée par la valeur élevée de l'angle de rotation des spins en phase hélicoïdale, et au blocage de la distorsion γ .

Le problème de la coexistence de phases ferromagnétique et hélicoïdale reste posé.

(v) Le couplage magnétique entre couches de dysprosium est ferromagnétique lorsque l'épaisseur des couches d'erbium est inférieure à 20 Å, et antiferromagnétique pour des épaisseurs d'erbium supérieures. Dans ce dernier cas, la structure antiferromagnétique est détruite de façon irréversible par un champ magnétique, au profit d'une configuration ferromagnétique. Les deux configurations parallèle et antiparallèle correspondent donc à deux minima de potentiel, séparés par une barrière.

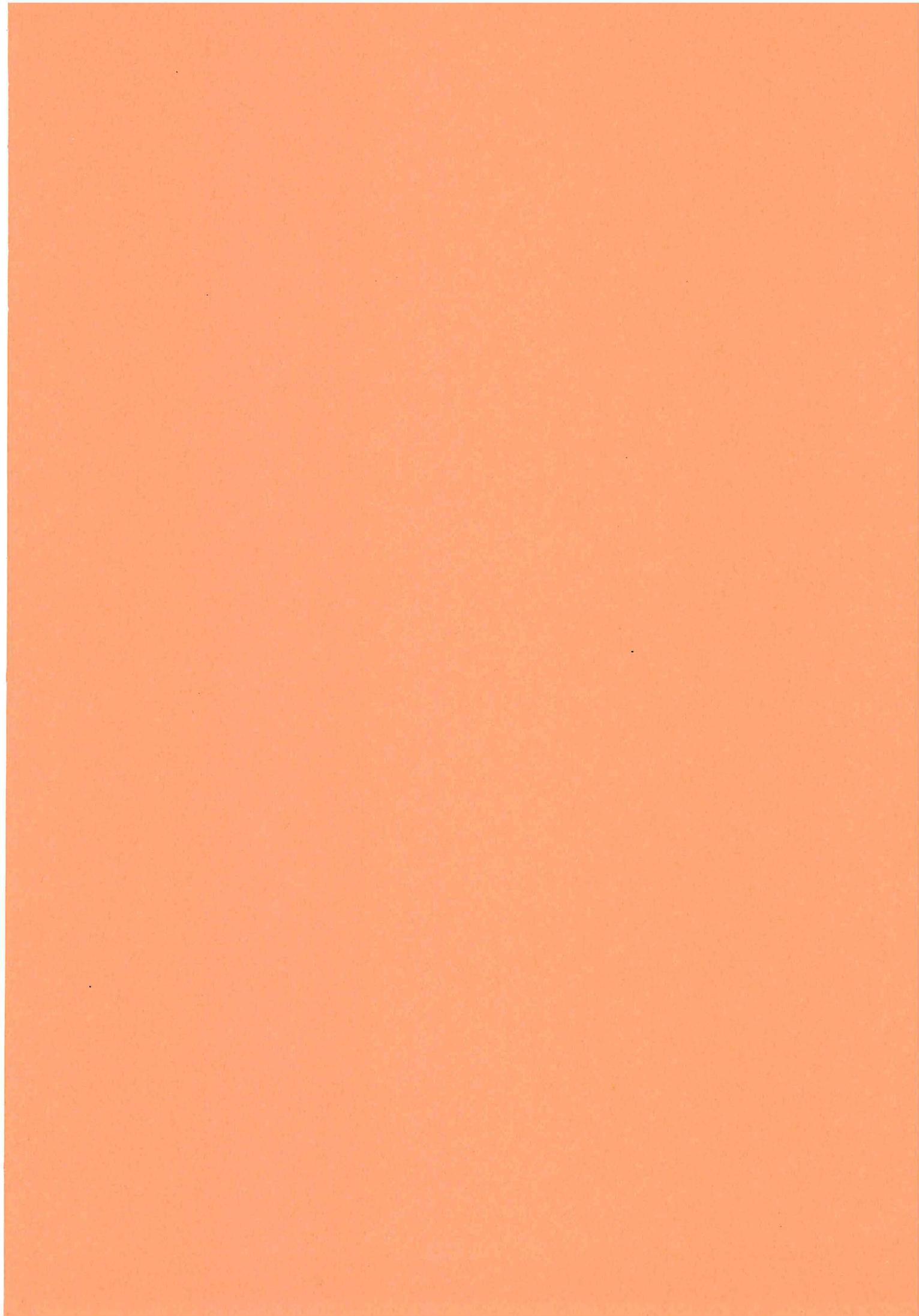
Notons que l'origine du couplage antiferromagnétique invoquée par Beach *et al.* [61] dans les superréseaux [Dy/Lu] (voir paragraphe 4.5 au chapitre I) n'est pas satisfaisante dans notre cas, où la distorsion γ apparaît comme totalement bloquée.

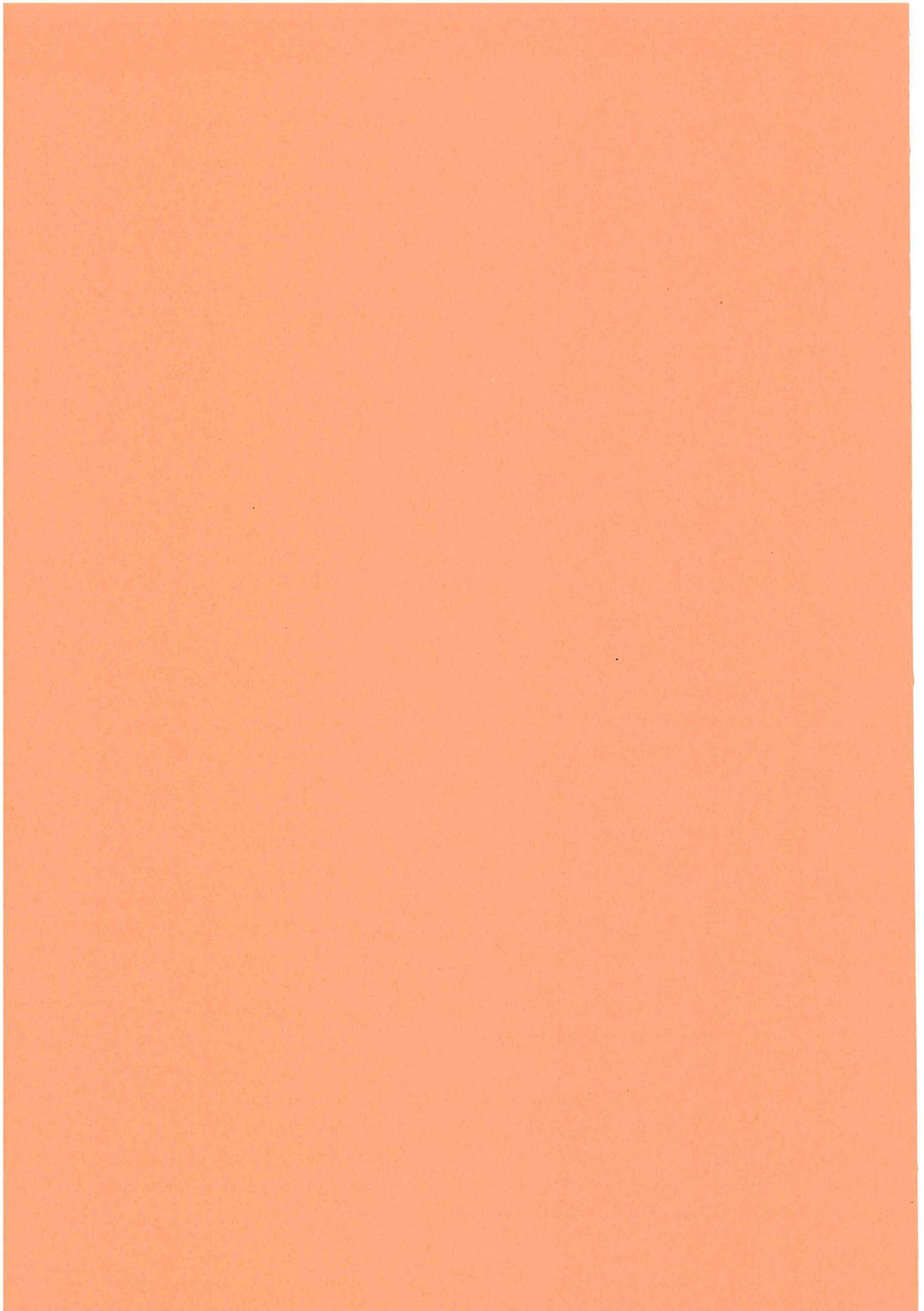
(vi) L'erbium développe successivement, et à des températures proches de celles rencontrées dans le matériau massif, la phase modulée selon c (CAM) et la phase constituée d'une modulation selon c (CAM) et d'un ordre hélicoïdal dans le plan de base. La composante CAM ne présente aucun signe de cohérence, contrairement aux observations réalisées sur les superréseaux [Er/Y] [57] ; en revanche, la composante hélicoïdale semble cohérente à travers les couches de dysprosium, tout du moins dans le superréseau à forte épaisseur d'erbium.

Ceci est certainement lié au fait que le dysprosium développe lui-même un ordre magnétique hélicoïdal qui persiste sous forme partielle à basse température.

(vii) L'erbium ne subit pas de transition ferromagnétique intracouche, ce qui est parfaitement conforme à son état de déformation épitaxiale, opposée à la déformation spontanée de l'élément massif magnétique.

(viii) Aux interfaces entre couches, les moments de dysprosium (de coefficient d'anisotropie K_2^0 particulièrement élevé) restent probablement dans le plan de base, alors que les moments d'erbium des quelques plans atomiques d'erbium voisins constituent une paroi à 90° pour ramener l'aimantation suivant c . Cela confère aux atomes d'erbium d'interface une anisotropie dans le plan de base, et explique l'allure singulière des courbes d'aimantation obtenues sur les superréseaux à faible épaisseur d'erbium.





Conclusion

L'objectif de l'étude présentée dans ce mémoire était l'analyse du comportement magnétique des superréseaux Dy/Er. Pour cela, nous avons réalisé une étude préliminaire de systèmes apparemment moins complexes : les films épais de dysprosium épitaxiés sur yttrium ou erbium.

Les échantillons ont été élaborés dans une enceinte d'épitaxie par jet moléculaire de vide limite $2 \cdot 10^{-11}$ Torr. La méthode suivie est celle préconisée par Kwo *et al.*, où un monocristal de saphir d'orientation (11 $\bar{2}$ 0) est recouvert d'une couche tampon de niobium (110), afin d'éviter l'oxydation des terres rares par l'oxygène du substrat. Dans ces conditions, la direction de croissance des terres rares est l'axe c du réseau hexagonal.

Les films de dysprosium épitaxiés ont été caractérisés par leur paramètre c, déterminé par diffraction de rayons X. La valeur de ce paramètre s'est avérée compatible avec les déformations induites par une épitaxie pratiquement parfaite entre les terres rares. Les films épitaxiés entre deux couches d'yttrium subissent une contraction selon l'axe c ($\epsilon^{\alpha,2} < 0$ et $\epsilon^{\alpha,1} > 0$), consécutive à la dilatation du plan de base, alors que les films épitaxiés entre deux couches d'erbium sont étirés selon l'axe c ($\epsilon^{\alpha,2} > 0$ et $\epsilon^{\alpha,1} < 0$), en raison de la réduction de leur paramètre a dans le plan. Ces déformations sont d'autant plus importantes que l'épaisseur du film est faible.

Les superréseaux ont été caractérisés par leur paramètre c moyen et leur périodicité, déterminée d'après la position des satellites de surstructure. L'évolution du paramètre c moyen en fonction des épaisseurs relatives des couches de dysprosium et d'erbium est compatible avec la présence de déformations opposées dans les couches individuelles : le paramètre c du dysprosium est augmenté et celui de l'erbium diminué par rapport aux valeurs rencontrées pour les éléments massifs.

Au-delà de l'étude structurale, nous avons essentiellement abordé le comportement magnétique des terres rares épitaxiées en nous intéressant à deux points principaux : le couplage magnétique entre couches dans les superréseaux et la transition hélicoïdale-ferromagnétique, gouvernée à la fois par la barrière d'énergie d'échange qui sépare les deux phases et par les déformations magnétostrictives qui leur sont associées.

Couplage magnétique dans les superréseaux Dy/Er

Entre couches de dysprosium

En dessous de la température de Néel du dysprosium, les expériences de diffraction de neutrons ont révélé la propagation cohérente de l'ordre hélicoïdal qui se développe dans le plan de base du dysprosium à travers l'erbium paramagnétique, pour les épaisseurs d'erbium inférieures à 100 Å. La longueur de cohérence de cette phase diminue avec la température et lorsque l'épaisseur des couches d'erbium augmente.

La modélisation des spectres de diffraction, en considérant la propagation d'une hélice de vecteur d'onde différent dans chaque élément, indique que l'angle de rotation effectif dans l'erbium paramagnétique est voisin de 46°. Cette valeur correspond approximativement à la position du maximum de susceptibilité généralisée $\chi_{Er}(\mathbf{q})$ de l'erbium qui transmet donc l'ordre hélicoïdal avec un vecteur d'onde qui lui est propre ; le couplage à grande distance entre moments 4f du dysprosium est réalisé par la stabilisation d'une onde de densité de spin dans les bandes de conduction de l'erbium et du dysprosium.

Ce phénomène est similaire à celui observé dans des superréseaux Dy/Y, Dy/Lu et Ho/Y, bien que l'erbium paramagnétique porte un moment localisé 4f ; l'erbium paramagnétique se comporte donc en ce sens comme l'yttrium et le lutécium non magnétiques. Notons que la stabilisation d'une onde de densité de spin dans la bande de conduction de l'erbium ne favorise pas l'apparition de l'ordre magnétique dans l'erbium à une température supérieure à la température de Néel de l'élément massif.

Dans les superréseaux dont l'épaisseur des couches d'erbium est supérieure à 100 Å, l'extension de l'ordre hélicoïdal se limite approximativement à une couche de dysprosium. L'intensité du couplage RKKY entre les moments 4f de couches de dysprosium successives, liée à la valeur du maximum $\chi_{Er}(\mathbf{q})$, est trop faible pour transmettre l'ordre magnétique à travers une couche épaisse d'erbium.

Il apparaît toutefois une cohérence partielle lorsque la température est abaissée en dessous de la température de Néel de l'erbium. Le développement de l'ordre des moments 4f de l'erbium semble donc renforcer la susceptibilité des électrons de conduction, à moins que

le type de couplage à invoquer dans cette situation soit différent du couplage RKKY classique.

En dessous de la température de Curie, les couches de dysprosium deviennent progressivement ferromagnétiques et donnent naissance à un ordre à grande distance : les aimantations portées par deux couches de dysprosium successives se couplent parallèlement à travers l'erbium, pour les épaisseurs d'erbium inférieures à 20 Å, et antiparallèlement, pour les épaisseurs d'erbium supérieures à 20 Å. Bien que la propagation de la phase hélicoïdale soit liée à un couplage oscillant de type RKKY, l'ordre observé à basse température semble avoir une origine différente, puisque le signe du couplage entre couches de dysprosium ne varie pas de manière oscillante avec l'épaisseur des couches d'erbium.

L'ordre parallèle entre couches de dysprosium est certainement lié au développement d'une paroi magnétique à l'interface entre les couches, essentiellement localisée dans la couche d'erbium et dont la largeur atteint l'épaisseur de la couche dans la limite des faibles épaisseurs.

L'origine de l'ordre antiparallèle doit faire l'objet d'études plus approfondies.

Entre couches d'erbium

À basse température, l'ordre magnétique dans les couches d'erbium est constitué de la superposition d'une phase hélicoïdale dans le plan de base et d'une modulation de la composante selon l'axe c (CAM). Alors que l'ordre de la composante suivant c ne s'étend pas au-delà de l'épaisseur de la couche d'erbium, il apparaît, pour les épaisseurs d'erbium importantes, une cohérence partielle de la phase hélicoïdale développée dans le plan de base.

Un phénomène similaire a été observé dans le système Ho/Er à 8 K [77]. Selon les auteurs, la différence entre les longueurs de cohérence des ordres magnétiques parallèle et perpendiculaire au plan de base prouve que la théorie RKKY classique doit être supplantée par un modèle tenant compte de la structure de bandes du superréseau magnétique : l'onde de densité de spins doit être continue à l'interface entre les éléments, ce qui impliquerait que la fonction d'onde des électrons de conduction associée à l'ordre hélicoïdal dans l'holmium est de nature à transmettre l'ordre hélicoïdal de l'erbium mais ne peut pas transmettre la phase de la modulation selon c .

Cette explication n'est pas totalement satisfaisante dans notre cas, où la composante dans le plan de base de l'erbium est transmise à travers le dysprosium *ferromagnétique*. La persistance de l'ordre hélicoïdal résiduel dans les couches de dysprosium intervient peut-être à ce niveau.

Transition ferromagnétique

Température de Curie

Un effet tout à fait spectaculaire rencontré au cours de ce travail est le déplacement de la température de transition ferromagnétique des films de dysprosium épitaxiés. Pour les films de dysprosium épitaxiés sur erbium, la température de transition est d'autant plus élevée que l'épaisseur de dysprosium est faible, alors que, pour les films épitaxiés sur yttrium, la température de transition est d'autant plus basse que le film est mince et disparaît pour une épaisseur de 600 Å.

D'après les paramètres c déterminés par diffraction de rayons X, il apparaît que la température de Curie augmente continûment avec la déformation induite selon l'axe c du réseau du dysprosium par épitaxie sur yttrium ou sur erbium, indépendamment d'un effet d'épaisseur.

En terme de déformation, la température de Curie des films de dysprosium est augmentée lorsque les déformations épitaxiales de type α_1 et α_2 sont de même signe que les coefficients de magnétostriction λ_1 et λ_2 associés, ce qui est le cas du dysprosium épitaxié sur erbium. À l'opposé, la température de Curie décroît si les déformations épitaxiales et les coefficients de magnétostriction correspondants sont de signes contraires, ce qui est le cas du dysprosium épitaxié sur yttrium.

Par ailleurs, le comportement magnétique des superréseaux Dy/Er est tout à fait inattendu du point de vue de la température de transition ferromagnétique du dysprosium, car, contrairement à ce qui est observé pour les films de dysprosium épitaxiés sur erbium, la température de transition n'est pas augmentée mais plutôt légèrement abaissée par rapport à celle du dysprosium massif.

Notons que le comportement magnétique de l'erbium est quant à lui conforme à la déformation α_2 négative induite par l'épitaxie sur le dysprosium : la transition ferromagnétique observée à 20 K dans l'erbium massif est supprimée dans les superréseaux Dy/Er étudiés, même pour les plus grandes épaisseurs d'erbium.

Barrière d'échange entre les phases ferromagnétique et hélicoïdale

Si l'on ne considérait que les énergies d'échange, la phase magnétique stable du dysprosium et de l'erbium à l'état massif serait la phase modulée. La différence d'énergie d'échange entre les phases ferromagnétique et modulée est appelée barrière énergétique. En théorie de champ moyen, cette barrière est proportionnelle au carré de l'aimantation réduite et à la différence entre la température de Néel et la température de Curie

paramagnétique ; elle est en outre caractérisée par un angle de rotation ω entre les spins en phase hélicoïdale.

Dans les terres rares massives, l'angle ω décroît avec la température, ce qui traduit une réduction de la barrière d'échange par suite de la variation des intégrales d'échange et de la modification de la surface de Fermi avec la température, attribuée à la formation de superzones dues à l'ordre magnétique lui-même.

Films épitaxiés

Dans les films épitaxiés apparaît une modification supplémentaire de la barrière d'échange : l'angle de rotation est à toute température supérieur à celui rencontré dans l'élément massif pour les films de dysprosium épitaxiés sur yttrium (augmentation de la barrière) et inférieur pour les films épitaxiés sur erbium (abaissement de la barrière).

Les effets magnétoélastiques ne peuvent être à l'origine de ce phénomène, car l'angle de rotation des films épitaxiés est différent de celui du massif dès la température de Néel, où ces effets sont tout à fait négligeables. Il faut donc invoquer un changement de la barrière énergétique, dû à une modification de la surface de Fermi en raison des déformations du réseau du dysprosium.

Superréseaux

Dans les superréseaux Dy/Er, l'état de déformation induit dans le dysprosium par l'erbium n'est certainement pas la seule raison de la modification de l'échange puisque, contrairement à ce qui est observé dans les films déformés de façon analogue, l'angle de rotation est supérieur à celui de l'élément massif, en particulier quand les épaisseurs des couches sont faibles.

Cela signifierait que la périodicité chimique du superréseau provoque également des modifications de la surface de Fermi.

Déformations magnétostrictives

Dans le dysprosium et l'erbium massifs, la barrière d'énergie d'échange étant toujours en faveur de la phase hélicoïdale, la transition ferromagnétique est le résultat de déformations magnétostrictives, qui viennent abaisser l'énergie des phases magnétiques.

Dans la phase ferromagnétique, les déformations magnétostrictives γ (distorsion orthorhombique) et α (déformations volumique et cylindrique) viennent abaisser l'énergie du système, alors que dans la phase hélicoïdale, seules les déformations α partielles sont favorables. La transition ferromagnétique se produit, lorsque, par suite de l'augmentation des coefficients magnétoélastiques avec la température, le gain d'énergie dû à la

déformation γ et au passage d'une déformation α partielle à une déformation α totale vient compenser la barrière d'énergie d'échange.

Dans les systèmes épitaxiés à base de dysprosium, deux facteurs supplémentaires sont à prendre en compte :

- (i) L'épitaxie impose une déformation α importante, du signe de la déformation spontanée à la transition ferromagnétique lorsque le dysprosium est épitaxié sur erbium et de signe contraire, dans le cas de l'épitaxie sur yttrium.
- (ii) La distorsion γ devient moins favorable, car elle entraîne la déformation de l'yttrium ou de l'erbium voisin et donc une augmentation d'énergie élastique, puisqu'une telle distorsion n'est jamais favorable dans ces deux éléments.

Films épitaxiés

La dilatation du réseau du dysprosium selon l'axe c qui se produit progressivement dans la phase hélicoïdale a été observée dans les films épais de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium et entre deux couches d'erbium ; elle est généralement de plus faible amplitude que celle rencontrée dans le dysprosium massif. Cette dilatation croît subitement lors de transition ferromagnétique, si elle a lieu.

Les expériences de diffraction neutronique dans une configuration transverse confirment l'apparition simultanée d'une distorsion orthorhombique γ , plus faible que dans le matériau massif. Cependant, à la différence du comportement de l'élément massif, cette distorsion n'est pas complète à la température de Curie et se poursuit avec l'abaissement de la température. De plus, elle donne lieu à la formation de domaines distordus, désorientés de 60° les uns par rapport aux autres.

Un modèle magnétoélastique, considérant que le gain d'énergie magnétoélastique lié aux déformations est réalisé dans le dysprosium et que le coût d'énergie élastique provient des deux matériaux, rend qualitativement assez bien compte de ces observations.

La distorsion γ est systématiquement moins favorable que dans le dysprosium massif, alors que la déformation α devient, selon l'état de contrainte initial, plus favorable (épitaxie sur erbium) ou moins favorable (épitaxie sur dysprosium).

Cela explique le décalage de la transition ferromagnétique observé dans les films épitaxiés. L'augmentation observée expérimentalement de la température de Curie des films de dysprosium épitaxiés sur erbium est toutefois plus importante que celle prévue par ce modèle, vraisemblablement pour deux raisons :

- (i) la barrière d'énergie d'échange entre les phases est réduite
- (ii) l'énergie élastique emmagasinée dans l'erbium est abaissée par la formation de domaines distordus. Notons que la taille de ces domaines reste à déterminer

Superréseaux

Dans les superréseaux Dy/Er, la situation est plus complexe car les expériences de diffraction de neutrons en réflexion transverse montrent sans ambiguïté l'absence de distorsion γ . Cela est toutefois surprenant car si cette distorsion devient moins favorable car elle entraîne des déformations dans les deux éléments, elle est en principe toujours présente, bien que limitée, puisque l'énergie élastique dépend linéairement des déformations alors que l'énergie élastique est quadratique.

Le blocage de la distorsion γ est un facteur important de la réduction de T_C , qui vient s'ajouter à l'augmentation de la barrière énergétique entre les phases magnétiques.

Les déformations de type α du dysprosium sont davantage conformes à ce que l'on attend, bien que leur évaluation soit délicate puisque les déformations α dues à l'erbium viennent s'ajouter, lorsque celui-ci développe à son tour un ordre magnétique. Ces déformations magnétostrictives dans les couches d'erbium doivent d'ailleurs modifier l'état de contrainte des couches de dysprosium, ce dont nous n'avons pas tenu compte.

Epilogue

Il apparaît à la suite de cette étude qu'une part importante des phénomènes observés s'inscrit dans le cadre des connaissances acquises dans les années 70 sur les terres rares dans leur état massif. Ainsi, le rôle de la barrière d'énergie d'échange et l'importance des effets magnétostrictifs dans la transition ferromagnétique sont clairement soulignés.

En imposant des déformations supplémentaires au-dessus de la température d'ordre des éléments, l'épitaxie des terres rares conduit à des comportements magnétiques qui confirment l'analyse de la déformation de type γ et surtout l'analyse de l'importance d'une déformation α totale en phase ferromagnétique, alors qu'elle n'est que partielle en phase hélicoïdale. Les rôles respectifs des modes de déformation apparaissent nettement dans notre étude.

Une démarche sans doute pertinente serait en fait de partir des mesures précises des paramètres et d'en déduire les coefficients de magnétostriction.

La modification de la barrière d'échange est expérimentalement évidente, mais son origine reste à déterminer. Il s'agit d'un travail complexe, pour lequel il faut tenir compte de modifications minimales de la surface de Fermi, liées aux états de déformation et à la période artificielle des superréseaux.

En ce qui concerne le couplage magnétique dans les superréseaux étudiés, la base théorique demeure la polarisation du gaz d'électrons libres dans les deux éléments. Certains points restent cependant à préciser, tels que la portée de cet effet à grande distance et l'influence de la température.

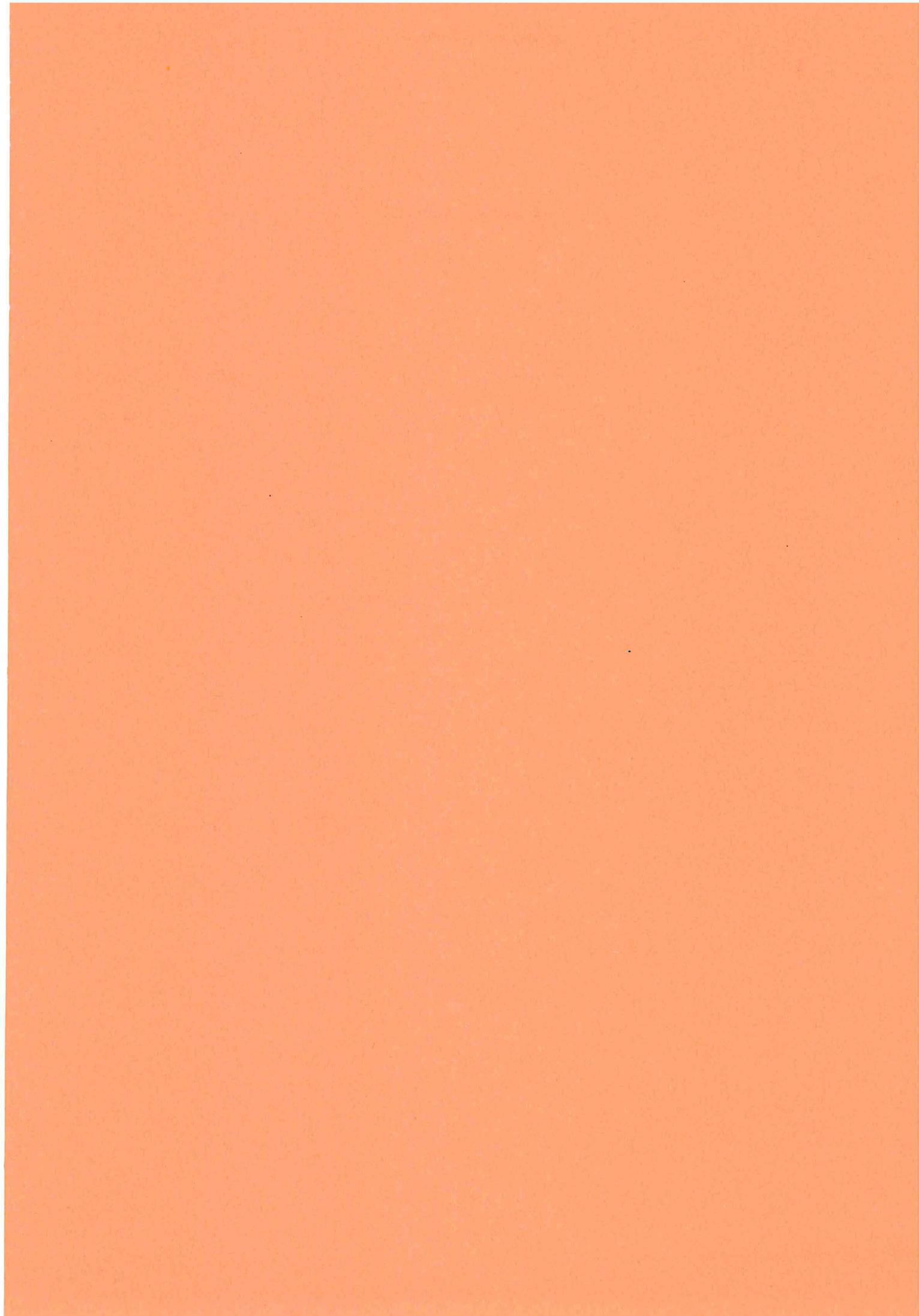
Par ailleurs, l'absence de cohérence de la composante suivant c de l'erbium et la cohérence partielle de sa composante dans le plan de base à travers le dysprosium montrent la nécessité d'affiner le modèle de couplage généralement invoqué.

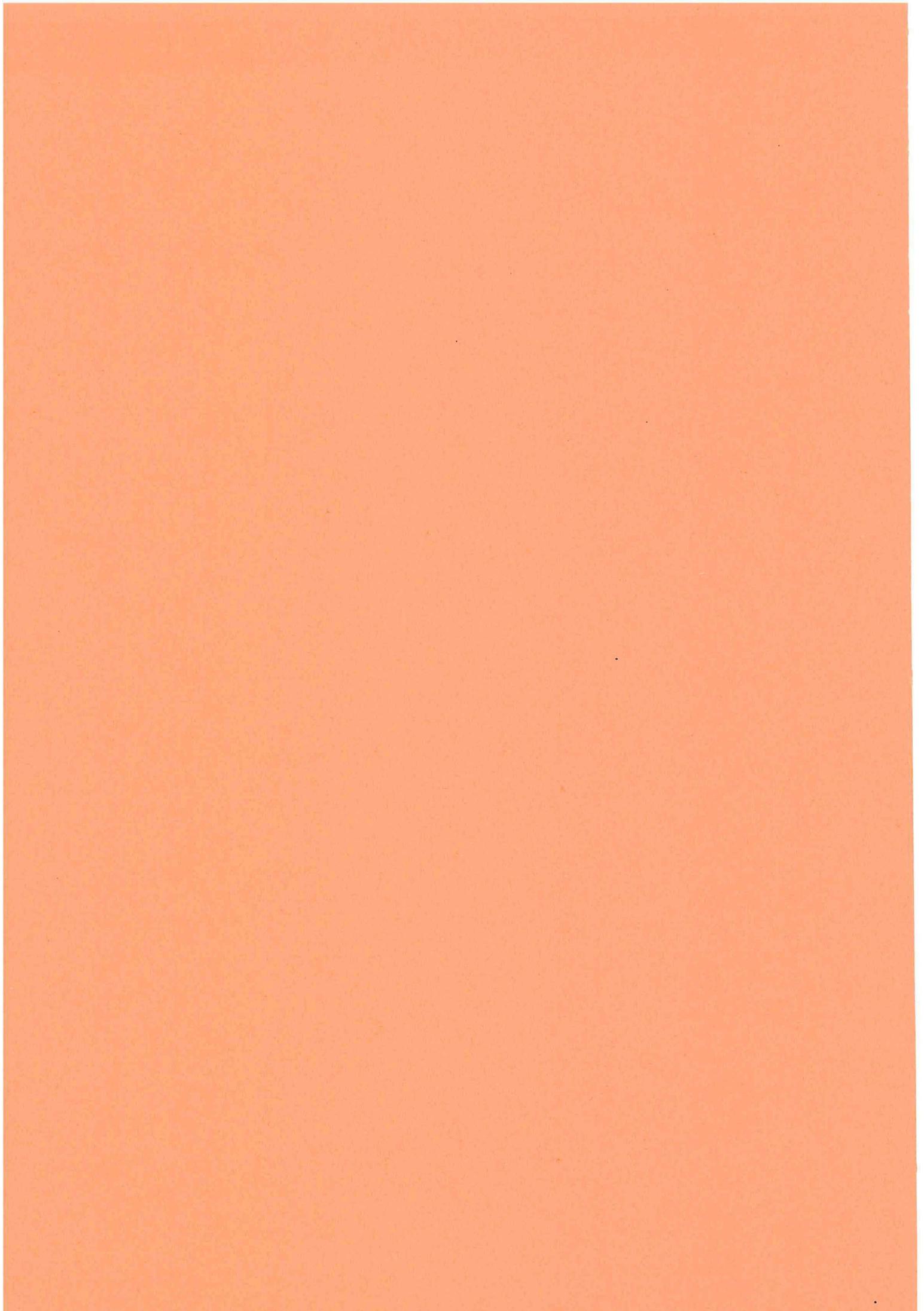
L'origine du couplage antiferromagnétique entre couches de dysprosium à basse température est totalement remise en cause par l'absence de distorsion orthorhombique dans les superréseaux. D'éventuelles sources d'interaction dipolaire peuvent expliquer ce type de couplage ; il reste à les identifier.

L'analyse précise de ces points plus obscurs nécessite tout d'abord un approfondissement du travail expérimental pour améliorer encore davantage la structure cristalline des superréseaux. Ainsi, la coexistence des phases ferromagnétique et hélicoïdale dans les couches de dysprosium traduit certainement des états énergétiques très proches, qui peuvent aussi bien être liés à des considérations thermodynamiques que dus à des aléas structuraux.

Précisons finalement que de nombreuses études restent à faire, afin d'approfondir les mécanismes sous-jacents qui régissent le comportement des systèmes épitaxiés à base de terres rares.

Ainsi, et pour ne citer que celle-ci, l'étude du système Dy/Tb serait fort enrichissante : Ces deux éléments présentent une anisotropie magnétocristalline dans le plan de base, ce qui simplifierait le problème posé par les interfaces magnétiques, mais leurs directions de facile aimantation dans ce plan sont perpendiculaires. Les distorsions de type γ qui ont lieu à la transition ferromagnétique des éléments massifs sont donc de signes contraires. L'épitaxie entre ces deux éléments pourrait conduire au blocage des distorsions γ dans les deux matériaux et retarder leur transition ferromagnétique respective.





Annexe A

Calcul des déformations épitaxiales

L'énergie élastique totale du système s'écrit :

$$E_e = \rho_A \left[\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\varepsilon_A^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\varepsilon_A^{\alpha,2})^2 + C_{12}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,1} \varepsilon_A^{\alpha,2} + \frac{1}{2} C^\gamma (\varepsilon_A^\gamma)^2 \right] \\ + \rho_B \left[\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\varepsilon_B^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\varepsilon_B^{\alpha,2})^2 + C_{12}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,1} \varepsilon_B^{\alpha,2} + \frac{1}{2} C^\gamma (\varepsilon_B^\gamma)^2 \right]$$

Les déformations d'équilibre sont calculées en minimisant cette expression par rapport aux déformations dans les deux éléments et en supposant l'égalité des paramètres dans le plan des deux éléments : $a_A = a_B = a$.

Les déformations définies dans le repère cartésien s'écrivent donc :

$$\varepsilon_A^{11} = \frac{a - a^\circ_A}{a^\circ_A} \quad \text{et} \quad \varepsilon_B^{11} = \frac{a - a^\circ_B}{a^\circ_B}$$

En supposant au dénominateur que $a^\circ_A = a^\circ_B = \langle a^\circ \rangle$, il s'ensuit que :

$$\varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11} = \frac{a^\circ_B - a^\circ_A}{\langle a^\circ \rangle} = \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = \text{cte} \\ \varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22} = \frac{b^\circ_B - b^\circ_A}{\langle b^\circ \rangle} = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} = \text{cte}$$

d'où : $d(\varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11}) = 0$ et $d(\varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22}) = 0$

En introduisant les multiplicateurs de Lagrange s et t, la condition de minimisation de l'énergie élastique totale en tenant compte des relations précédentes s'écrit :

$$dE_e - s(d(\varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11})) - t(d(\varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22})) = 0$$

En exprimant les déformations définies dans le repère cartésien en fonction de celles associées aux modes de déformation irréductibles, l'égalité précédente conduit à :

$$\begin{aligned} d\varepsilon_A^{\alpha,1} (\rho_A C_{11}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,1} + \rho_A C_{12}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,2} - \frac{s+t}{3}) &= 0 \\ d\varepsilon_A^{\alpha,2} (\rho_A C_{22}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,2} + \rho_A C_{12}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,1} + \frac{s+t}{2}) &= 0 \\ d\varepsilon_B^{\alpha,1} (\rho_B C_{11}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,1} + \rho_B C_{12}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,2} + \frac{s+t}{3}) &= 0 \\ d\varepsilon_B^{\alpha,2} (\rho_B C_{22}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,2} + \rho_B C_{12}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,1} - \frac{s+t}{2}) &= 0 \\ d\varepsilon_A^\gamma (\rho_A C^\gamma \varepsilon_A^\gamma - (s-t)) &= 0 \\ d\varepsilon_B^\gamma (\rho_B C^\gamma \varepsilon_B^\gamma - (t-s)) &= 0 \end{aligned}$$

La résolution de ce système conduit à exprimer les déformations en fonction des multiplicateurs de Lagrange :

$$\begin{aligned} \varepsilon_A^{\alpha,1} &= \frac{(s+t) \left[\frac{C_{22}^\alpha}{3} + \frac{C_{12}^\alpha}{2} \right]}{\rho_A (C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha - (C_{12}^\alpha)^2)} & \varepsilon_B^{\alpha,1} &= \frac{-(s+t) \left[\frac{C_{22}^\alpha}{3} + \frac{C_{12}^\alpha}{2} \right]}{\rho_B (C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha - (C_{12}^\alpha)^2)} \\ \varepsilon_A^{\alpha,2} &= \frac{-(s+t) \left[\frac{C_{11}^\alpha}{2} + \frac{C_{12}^\alpha}{3} \right]}{\rho_A (C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha - (C_{12}^\alpha)^2)} & \text{et} & \varepsilon_B^{\alpha,2} &= \frac{(s+t) \left[\frac{C_{11}^\alpha}{2} + \frac{C_{12}^\alpha}{3} \right]}{\rho_B (C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha - (C_{12}^\alpha)^2)} \\ \varepsilon_A^\gamma &= \frac{s-t}{\rho_A C^\gamma} & \varepsilon_B^\gamma &= \frac{t-s}{\rho_B C^\gamma} \end{aligned}$$

Il reste à calculer les grandeurs (s+t) et (s-t). Pour cela, il suffit d'utiliser les relations :

$$\begin{aligned} \varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11} &= \frac{a^\circ_B - a^\circ_A}{\langle a^\circ \rangle} = \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = \text{cte} \\ \varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22} &= \frac{b^\circ_B - b^\circ_A}{\langle b^\circ \rangle} = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} = \text{cte} \end{aligned}$$

en exprimant les déformations définies dans le repère cartésien en fonction des déformations associées aux modes de déformation irréductibles où apparaissent (s+t) et (s-t).

Il s'ensuit que :

$$\varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11} = \left(\frac{s+t}{4}\right) \frac{C_{33}}{\Delta} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B}\right) + \frac{s-t}{C^\gamma} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B}\right) = \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle}$$

$$\varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22} = \left(\frac{s+t}{4}\right) \frac{C_{33}}{\Delta} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B}\right) - \frac{s-t}{C^\gamma} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B}\right) = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle}$$

où :

$$\Delta = C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha - (C_{12}^\alpha)^2$$

$$(s-t) = \frac{1}{U_\gamma} \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} - \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} \right) \text{ avec } U_\gamma = \frac{2}{C^\gamma} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right)$$

donc :

$$(s+t) = \frac{1}{U_{33}} \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} + \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} \right) \text{ avec } U_{33} = \frac{C_{33}}{2\Delta} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right)$$

En injectant ces grandeurs (s-t) et (s+t) dans les expressions des déformations associées aux modes de déformation irréductibles, on obtient les déformations épitaxiales. Si

$$\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle}, \text{ il vient :}$$

$$\varepsilon_{11}^{\circ A} = \rho_B \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = \frac{l_B}{l_A + l_B} \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle}$$

$$\varepsilon_{11}^{\circ B} = -\rho_A \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = -\frac{l_A}{l_A + l_B} \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle}$$

et

$$\varepsilon_{33}^{\circ A} = -\frac{2C_{13}}{C_{33}} \varepsilon_{11}^{\circ A} = -\frac{2C_{13}}{C_{33}} \frac{l_B}{l_A + l_B} \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle}$$

$$\varepsilon_{33}^{\circ B} = -\frac{2C_{13}}{C_{33}} \varepsilon_{11}^{\circ B} = \frac{2C_{13}}{C_{33}} \frac{l_A}{l_A + l_B} \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle}$$

Annexe B

Calcul des déformations d'équilibre en phases ferromagnétique et hélicoïdale

Si l'on considère le terme d'énergie magnétoélastique dans l'élément A et si l'on néglige dans les énergies élastiques le terme croisé C_{12}^α , l'expression de l'énergie à minimiser devient :

$$\begin{aligned} E = & \rho_A \left[\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\varepsilon_A^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\varepsilon_A^{\alpha,2})^2 + \frac{1}{2} C^\gamma (\varepsilon_A^\gamma)^2 \right] \\ & + \rho_B \left[\frac{1}{2} C_{11}^\alpha (\varepsilon_B^{\alpha,1})^2 + \frac{1}{2} C_{22}^\alpha (\varepsilon_B^{\alpha,2})^2 + \frac{1}{2} C^\gamma (\varepsilon_B^\gamma)^2 \right] \\ & + \rho_A [-B_A^{\alpha,1} \varepsilon_A^{\alpha,1} - B_A^{\alpha,2} \varepsilon_A^{\alpha,2} - B_A^\gamma \varepsilon_A^\gamma] \end{aligned}$$

En adoptant la méthode des multiplicateurs de Lagrange et en effectuant les mêmes hypothèses que celles présentées an annexe A, les conditions de minimisations s'écrivent :

$$\begin{aligned} d\varepsilon_A^{\alpha,1} \left(\rho_A C_{11}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,1} - \rho_A B_A^{\alpha,1} - \frac{s+t}{3} \right) &= 0 \\ d\varepsilon_A^{\alpha,2} \left(\rho_A C_{22}^\alpha \varepsilon_A^{\alpha,2} - \rho_A B_A^{\alpha,2} + \frac{s+t}{2} \right) &= 0 \\ d\varepsilon_B^{\alpha,1} \left(\rho_B C_{11}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,1} + \frac{s+t}{3} \right) &= 0 \\ d\varepsilon_B^{\alpha,2} \left(\rho_B C_{22}^\alpha \varepsilon_B^{\alpha,2} - \frac{s+t}{2} \right) &= 0 \end{aligned}$$

$$d\varepsilon_A^\gamma (\rho_A C^\gamma \varepsilon_A^\gamma - \rho_A B_A^\gamma - (s-t)) = 0$$

$$d\varepsilon_B^\gamma (\rho_B C^\gamma \varepsilon_B^\gamma - (t-s)) = 0$$

d'où :

$$\begin{aligned} \varepsilon_A^{\alpha,1} &= \lambda_1 + \frac{(s+t)}{3\rho_A C_{11}^\alpha} & \varepsilon_B^{\alpha,1} &= -\frac{(s+t)}{3\rho_B C_{11}^\alpha} \\ \varepsilon_A^{\alpha,2} &= \lambda_2 - \frac{(s+t)}{2\rho_A C_{22}^\alpha} & \text{et} & \quad \varepsilon_B^{\alpha,2} = \frac{(s+t)}{2\rho_B C_{22}^\alpha} \\ \varepsilon_A^\gamma &= \frac{\lambda^\gamma}{2} + \frac{(s-t)}{\rho_A C^\gamma} & \varepsilon_B^\gamma &= -\frac{(s-t)}{\rho_B C^\gamma} \end{aligned}$$

Il reste à calculer les grandeurs (s+t) et (s-t). Pour cela, il suffit d'utiliser les relations :

$$\begin{aligned} \varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11} &= \frac{a^\circ_B - a^\circ_A}{\langle a^\circ \rangle} = \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = \text{cte} \\ \varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22} &= \frac{b^\circ_B - b^\circ_A}{\langle b^\circ \rangle} = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} = \text{cte} \end{aligned}$$

en exprimant les déformations définies dans le repère cartésien en fonction des déformations associées aux modes de déformation irréductibles où apparaissent (s+t) et (s-t).

Il s'ensuit que :

$$\begin{aligned} \varepsilon_A^{11} - \varepsilon_B^{11} &= \left(\frac{\lambda_1}{3} - \frac{\lambda_2}{2} + \frac{\lambda^\gamma}{2} \right) + \frac{(s+t)C_{33}}{4C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right) + \frac{(s-t)}{C^\gamma} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right) = \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} \\ \varepsilon_A^{22} - \varepsilon_B^{22} &= \left(\frac{\lambda_1}{3} - \frac{\lambda_2}{2} - \frac{\lambda^\gamma}{2} \right) + \frac{(s+t)C_{33}}{4C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right) - \frac{(s-t)}{C^\gamma} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right) = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} \end{aligned}$$

d'où :

$$\begin{aligned} (s-t) &= \frac{1}{U_\gamma} \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} - \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} - \lambda^\gamma \right) \text{ avec } U_\gamma = \frac{2}{C^\gamma} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right) \\ (s+t) &= \frac{1}{U^\alpha} \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} + \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle} - 2 \left(\frac{\lambda_1}{3} - \frac{\lambda_2}{2} \right) \right) \text{ avec } U^\alpha = \frac{C_{33}}{2C_{11}^\alpha C_{22}^\alpha} \left(\frac{1}{\rho_A} + \frac{1}{\rho_B} \right) \end{aligned}$$

Si $\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} = \frac{\Delta b}{\langle b^\circ \rangle}$, en injectant les grandeurs (s-t) et (s+t) dans les expressions des déformations associées aux modes de déformation irréductibles, on obtient :

$$\varepsilon_A^{\alpha,1} = \lambda_1 + \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} - \frac{\lambda_1}{3} + \frac{\lambda_2}{2} \right) \frac{4C_{22}^\alpha}{3C_{33}} \rho_B$$

$$\varepsilon_A^{\alpha,2} = \lambda_2 - \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} - \frac{\lambda_1}{3} + \frac{\lambda_2}{2} \right) \frac{2C_{11}^\alpha}{C_{33}} \rho_B$$

$$\varepsilon_A^\gamma = \frac{\lambda^\gamma}{2} - \frac{\lambda^\gamma}{2} \rho_B = \frac{\lambda^\gamma}{2} \rho_A$$

$$\varepsilon_B^{\alpha,1} = \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} - \frac{\lambda_1}{3} + \frac{\lambda_2}{2} \right) \frac{4C_{22}^\alpha}{3C_{33}} \rho_A$$

et

$$\varepsilon_B^{\alpha,2} = \left(\frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} - \frac{\lambda_1}{3} + \frac{\lambda_2}{2} \right) \frac{2C_{11}^\alpha}{C_{33}} \rho_A$$

$$\varepsilon_B^\gamma = \frac{\lambda^\gamma}{2} \rho_A$$

D'après le calcul présenté en annexe A, les déformations purement épitaxiales s'écrivent :

$$\varepsilon_A^{\circ\alpha,1} = 2\rho_B \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} \left(\frac{C_{33} - C_{13}}{C_{33}} \right)$$

$$\varepsilon_A^{\circ\alpha,2} = -\frac{2}{3}\rho_B \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} \left(\frac{C_{33} + 2C_{13}}{C_{33}} \right)$$

$$\varepsilon_B^{\circ\alpha,1} = -2\rho_A \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} \left(\frac{C_{33} - C_{13}}{C_{33}} \right)$$

et

$$\varepsilon_B^{\circ\alpha,2} = \frac{2}{3}\rho_A \frac{\Delta a}{\langle a^\circ \rangle} \left(\frac{C_{33} + 2C_{13}}{C_{33}} \right)$$

Comme par ailleurs : $C_{22}^\alpha = \frac{3}{2}(C_{33} - C_{13})$ et $C_{11}^\alpha = \frac{1}{3}(C_{33} + 2C_{13})$, les expressions des déformations d'équilibre en phase *ferromagnétique* deviennent :

$\bar{\varepsilon}_A^{\alpha,1} = \lambda_1 + \varepsilon_A^{\circ\alpha,1} (1 - \eta)$	$\bar{\varepsilon}_B^{\alpha,1} = \varepsilon_B^{\circ\alpha,1} (1 - \eta)$
$\bar{\varepsilon}_A^{\alpha,2} = \lambda_2 + \varepsilon_A^{\circ\alpha,2} (1 - \eta)$	et $\bar{\varepsilon}_B^{\alpha,2} = \varepsilon_B^{\circ\alpha,2} (1 - \eta)$
$\bar{\varepsilon}_A^\gamma = \frac{\lambda^\gamma}{2} \rho_A$	$\bar{\varepsilon}_B^\gamma = \frac{\lambda^\gamma}{2} \rho_A$

où :

$$\eta = \frac{\lambda_1}{3\Delta a / \langle a^\circ \rangle} - \frac{\lambda_2}{2\Delta a / \langle a^\circ \rangle}$$

Par analogie, les déformations d'équilibre en phase *hélicoïdale* s'écrivent :

$\bar{\varepsilon}_A^{\alpha,1} = (\lambda_1)_{\text{hél.}} + \varepsilon_A^{\circ\alpha,1} (1 - \eta_{\text{hél.}})$	$\bar{\varepsilon}_B^{\alpha,1} = \varepsilon_B^{\circ\alpha,1} (1 - \eta_{\text{hél.}})$
$\bar{\varepsilon}_A^{\alpha,2} = (\lambda_2)_{\text{hél.}} + \varepsilon_A^{\circ\alpha,2} (1 - \eta_{\text{hél.}})$	et $\bar{\varepsilon}_B^{\alpha,2} = \varepsilon_B^{\circ\alpha,2} (1 - \eta_{\text{hél.}})$
$\bar{\varepsilon}_A^\gamma = 0$	$\bar{\varepsilon}_B^\gamma = 0$

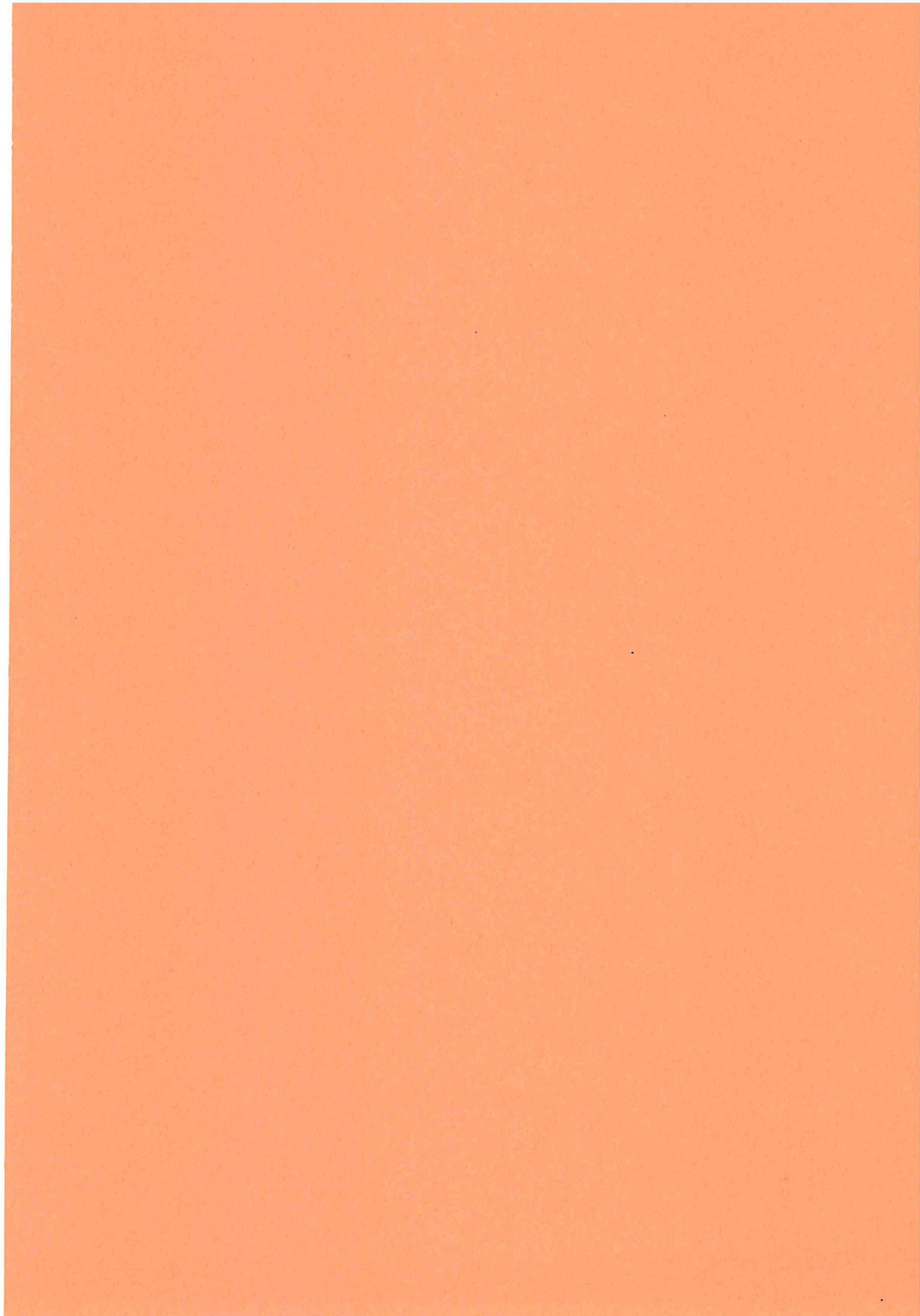
où :

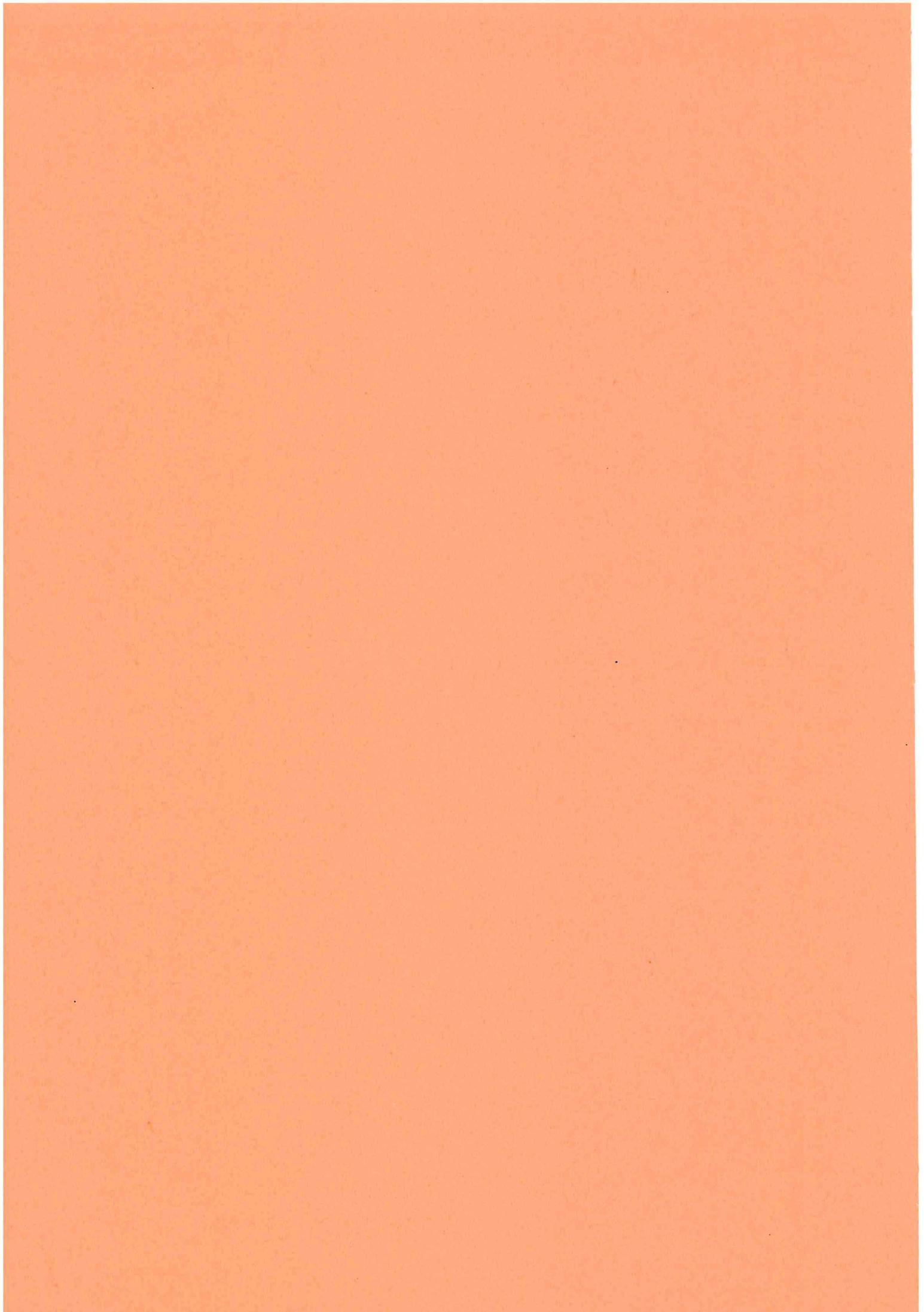
$$\eta_{\text{hél.}} = \frac{(\lambda_1)_{\text{hél.}}}{3\Delta a / \langle a^\circ \rangle} - \frac{(\lambda_2)_{\text{hél.}}}{2\Delta a / \langle a^\circ \rangle}$$

$$(\lambda_1)_{\text{hél.}} = \frac{1}{2} \lambda_1 (1 + \cos \omega) - \frac{1}{4\sqrt{3}} \frac{C_{22}^\alpha}{C_{11}^\alpha} \lambda_2 (1 - \cos \omega)$$

avec :

$$(\lambda_2)_{\text{hél.}} = \frac{1}{4} \lambda_2 (1 + 3 \cos \omega) - \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{C_{11}^\alpha}{C_{22}^\alpha} \lambda_1 (1 - \cos \omega)$$





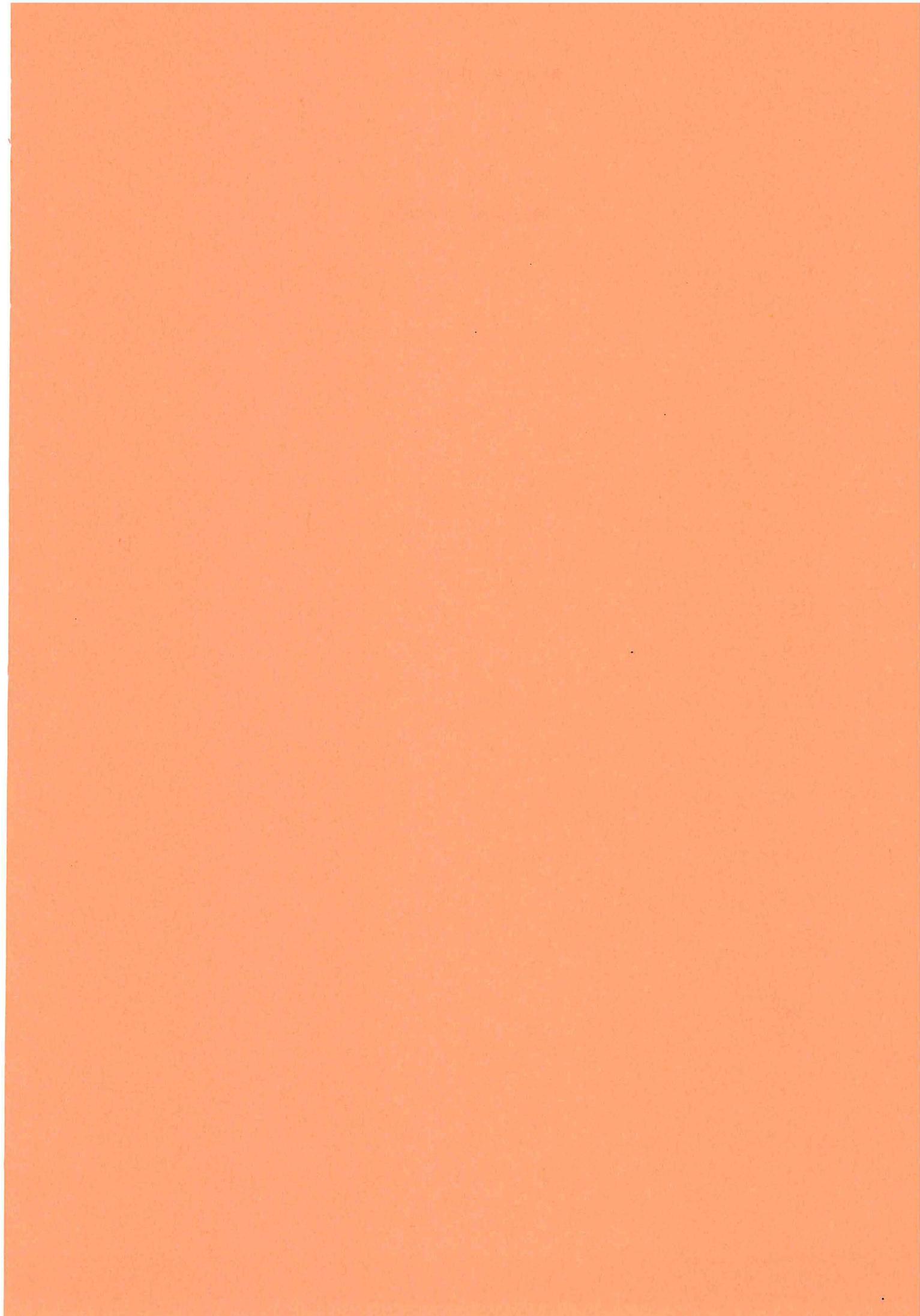
Références

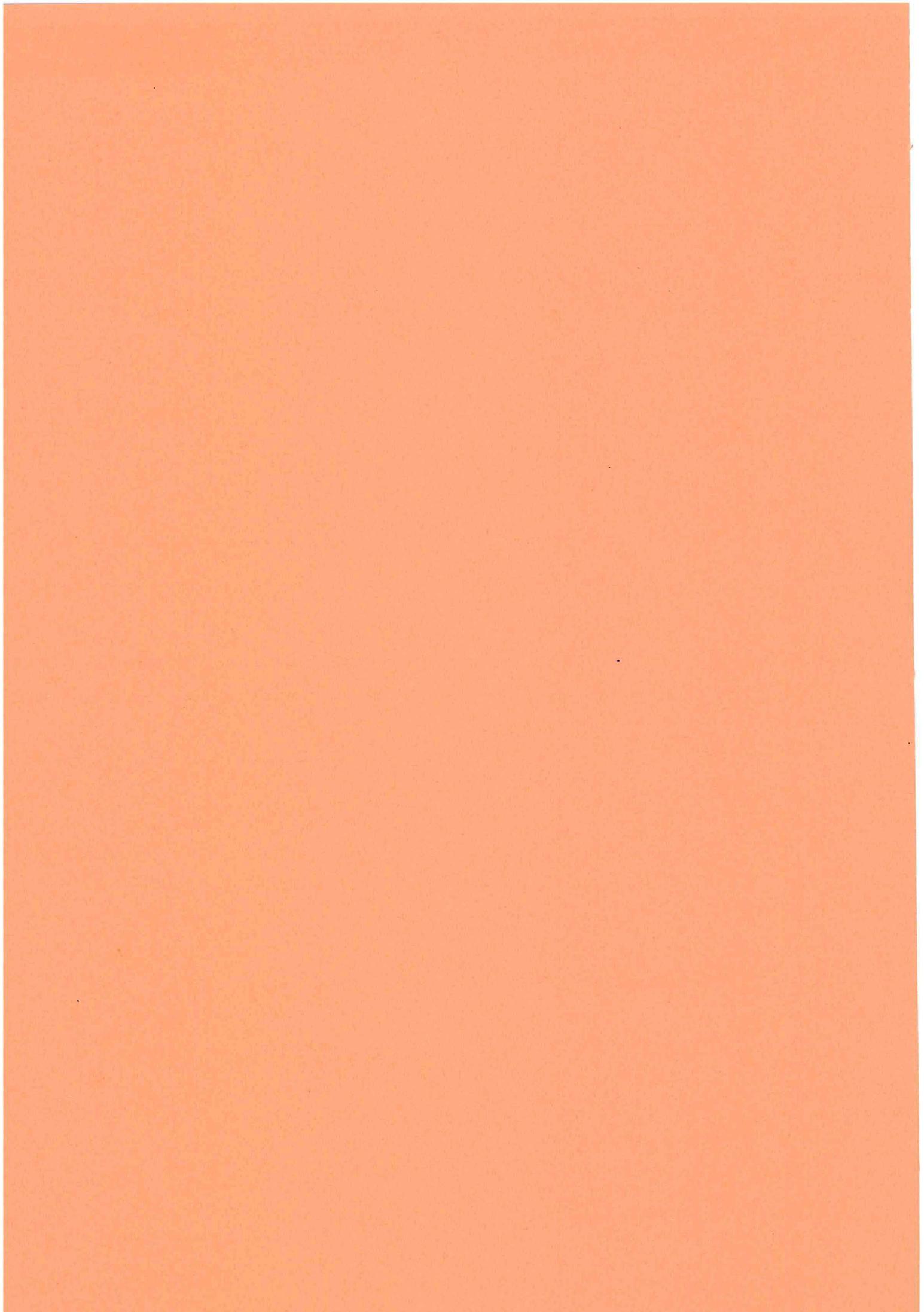
- [1] R.J. Elliott, *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*, Plenum Publishing, London (1972)
- [2] B. Coqblin, *The electronic structure of the rare earth metals and alloys : the magnetix heavy rare earth*, Academic Press, London (1977)
- [3] K.A. Gschneider, and L. Eyring, *Handbook of the Physics and Chemistry of the rare earths*, North Holland Publishing (1988)
- [4] J. Jensen, and A. Macintosh, *Rare Earth Magnetism, Structure and Excitations*, Oxford University Press, Oxford, U.K. (1991)
- [5] D.R. Behrendt, S. Legvold, and F.H. Spedding, *Phys. Rev.*, **109**, 1544 (1958).
- [6] M.K. Wilkinson, W.C. Koehler, E.O. Wollan, and J.W. Cable, *J. Appl. Phys.* **32**, 48S (1961).
- [7] T.T. Jew, M.S. Thesis, Ioma State University Library, Ames, Iowa, 50011, USA (1963)
- [8] F.J. Darnell, *Phys. Rev.*, **130**, 1825 (1963)
- [9] J.W. Cable, E.O. Wollan, W.C. Koehler and M.K. Wilkinson, *Phys. Rev.* **140**, A1896 (1965).
- [10] D. Gibbs, J. Bohr, J.D. Axe, D.E. Moncton and K.L. D'Amico, *Phys. Rev. B* **34**, 8182 (1986).
- [11] W.J. Gray and R.H. Spedding, Iowa State University Report, IS (2044), 1968.
- [12] J.J. Rhyne, and S. Legvold, *Phys. Rev.*, **140**, A2143 (1965)
- [13] F.J. Darnell, *Phys. Rev.* **132**, 1098 (1963)

- [14] R.W. Green, S. Legvold, and F.H. Spedding, *Phys. Rev.*, **122**, 827 (1961)
- [15] J.J. Rhyne, S. Foner, E.J. McNiff, and R. Doclo, *J. Appl. Phys.*, **39**, 892 (1968)
- [16] Y. Kitano, and T. Nagamiya, *Prog. Theoret. Phys. (Kyoto)*, **31**, 1 (1964)
- [17] A.H. Millhouse, and W.C. Koehler, *Colloques internationaux du CNRS (Paris-Grenoble 1969), Les éléments des terres rares*, éd. du CNRS, 213 (1970)
- [18] C. Kittel, *Introduction à la physique de l'état solide*, Dunod université (1972)
- [19] M.A. Ruderman and C. Kittel, *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
- [20] T. Kasuya, *Prog. Theor. Phys. (Kyoto)* **16**, 45 (1956)
- [21] K. Yosida, *Phys. Rev.* **106**, 893 (1957)
- [22] S.C. Keeton and T.C. Loucks, *Phys. Rev.* **168**, 672 (1968).
- [23] A.J. Freeman, J.O. Dimmock, and R.E. Watson, *Phys. Rev. Lett.*, **16**, 94 (1966)
- [24] C. Jackson, *Phys. Rev.* **178**, 949 (1969)
- [25] P.A. Lindgard, *Phys Rev.* **17**, 2348 (1978)
- [26] R.J. Elliott, and F.A. Wedgwood, *Proc. Phys. Soc. (London)* **81**, 846 (1963)
- [27] K.W.H. Stevens, *Proc. Phys. Soc. (London)* **A65**, 209 (1952)
- [28] H.B. Callen and E. Callen, *J.Phys.Chem.Solids* **27**, 1271 (1966).
- [29] H.B. Callen, and E. Callen, *Phys. Rev.* **139**, A455 (1965)
- [30] B.R. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 900 (1967).
- [31] W.E. Evenson, and S.H. Liu, *Phys. Rev.* **178**, 783 (1969)
- [32] E.S. Fisher, and D. Dever, *Trans. Met. Soc. AIME* **239**, 48 (1967)
- [33] A.E. Clark, B.F. DeSavage, and R. Bozorth, *Phys. Rev.* **138**, A216 (1965)
- [34] M. Rosen, and H. Klimker, *Phys. Rev. B*, **1**, 3748 (1970)
- [35] M. Rosen, D. Kalir, and H. Klimker, *Phys. Rev. B* **8**, 4399 (1973)
- [36] E. Spiller, *Appl. Optics* **15**, 2333 (1976)
- [37] F. Mezei, *Commun. Phys.* **1**, 81 (1976)
- [38] O. Schärpf, *Physica B* **156 & 157**, 631 (1989)
- [39] M.N. Baibich et al., *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988)

- [40] C.F. Majkrzak, J. Kwo, M. Hong, Y. Yafet, D. Gibbs, C.L. Chien, and J. Bohr, *Advances in Physics* **40**, 99 (1991)
- [41] J.J. Rhyne, and R.W. Erwin, chap. 8 of *Magnetic Materials*, ed. K.H.J. Buschow (1993)
- [42] J. Kwo, M. Hong, and S. Nakahara, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 319 (1986)
- [43] C.F. Majkrzak, J.W. Cable, J. Kwo, M. Hong, D.B. McWhan, Y. Yafet, and J.V. Waszczak, and C. Vettier, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2700 (1986)
- [44] J. Kwo, M. Hong, F.J. DiSalvo, J.V. Waszczak, and C.F. Majkrzak, *Phys. Rev. B* **35**, 7295 (1987)
- [45] Y. Yafet, *J. Appl. Phys.* **61**, 4058 (1987)
- [46] A. Herpin, *Théorie de Magnétisme*, Bibliothèque des Sciences et techniques du nucléaire, Presse Universitaire de France (1967)
- [47] M.B. Salamon, S. Sinha, J.J. Rhyne, J.E. Cunningham, R.W. Erwin, J. Borchers, and C.P. Flynn, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 259 (1986)
- [48] S. Sinha, J. Cunningham, R. Du, M.B. Salamon, and C. P. Flynn, *J. Magn. Mater.* **54-57**, 773 (1986)
- [49] J.J. Rhyne, R.W. Erwin, J. Borchers, S. Sinha, M.B. Salamon, R. Du, and C.P. Flynn, *J. Appl. Phys.* **61**, 4043 (1987)
- [50] C.P. Flynn, F. Tsui, M.B. Salamon, R.W. Erwin, and J.J. Rhyne, *J. Phys. Condens. Matter* **1**, 5997 (1989)
- [51] F. Tsui, C.P. Flynn, M.B. Salamon, R.W. Erwin, J.A. Borchers, and J.J. Rhyne, *Phys. Rev. B* **43**, 13320 (1991)
- [52] L.E. Wenger, G.W. Hunter, J.A. Mydosh, J.A. Gotaas, and J.J. Rhyne, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1090 (1986)
- [53] R.W. Erwin, J.J. Rhyne, M.B. Salamon, J. Borchers, S. Sinha, R. Du, J.E. Cunningham, and C.P. Flynn, *Phys. Rev. B.* **35**, 6808 (1987)
- [54] J.A. Borchers, G. Nieuwenhuys, M.B. Salamon, C.P. Flynn, R. Du, R.W. Erwin, and J.J. Rhyne, *J. Phys. (Paris)* **C8**, Suppl. 12, 1685 (1988)
- [55] R.S. Beach, J.A. Borchers, M.B. Salamon, R. Du, and C.P. Flynn, *J. Appl. Phys.* **67**, 5710 (1990)
- [56] J.A. Borchers, M.B. Salamon, R.W. Erwin, J.J. Rhyne, G.J. Nieuwenhuys, R.R. Du, C.P. Flynn, and R.S. Beach, *Phys. Rev. B.* **44**, 11814 (1991)
- [57] J.A. Borchers, M.B. Salamon, R.W. Erwin, J.J. Rhyne, R.R. Du, and C.P. Flynn, *Phys. Rev. B.* **43**, 3123 (1991)
- [58] J.A. Borchers, Ph. D. thesis, University of Illinois, Urbana-Champaign (1990)

- [59] D.A. Jehan, D.F. Mc Morrow, R.A. Cowley, R.C.C. Ward, M.R. Wells, N. Hagmann, and K.N. Clausen, *Phys. Rev. B* **48**, 5594 (1993)
- [60] D.F. Mc Morrow, D.A. Jehan, R.A. Cowley, P.P.S. Waddling, R.C.C. Ward, M.R. Wells, N. Hagmann, and K.N. Clausen, *Europhys. Lett.* **23**, 523 (1993)
- [61] R.S. Beach, J.A. Borchers, A. Matheny, R.W. Erwin, M.B. Salamon, B. Everitt, K. Pettit, J.J. Rhyne, and C.P. Flynn, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3502 (1993)
- [62] R.S. Beach, A. Matheny, M.B. Salamon, C.P. Flynn, J.A. Borchers, R.W. Erwin, and J.J. Rhyne, *J.A.P.* **73**, 6901 (1993)
- [63] R.S. Beach, Ph.D. thesis, University of Illinois, Urbana-Champaign (1993)
- [64] R.F.C. Farrow, S.S.P. Parkin, V.S. Speriosu, A. Bezing, A.P. Segmuller, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol. **151**, 203 (1989)
- [65] F. Tsui, and C.P. Flynn, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1462 (1993)
- [66] E. Benes, M. Schmid, and G. Thorn, *Thin Solid Films*, **174**, 307 (1989).
- [67] C. Dufour, Thèse, I.N.P.L., Nancy, France (1990).
- [68] C. Lu, M.J. Lighner, and C.A. Gogol, *J. of Vac. Sci. Technol.*, **14**, 103 (1977).
- [69] D.F. McMorrow, R.A. Cowley, A. Gibaud, R.C.C. Ward, and M.R. Wells, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2195 (1993) *et références incluses*.
- [70] L.A. Bruce, and H. Jaeger, *Phil. Mag. A* **38**, 223 (1978).
- [71] C. Flynn, *J. Phys. F: Met. Phys.* **18**, L195 (1988).
- [72] D.B. Mc Whan : *Synthetic modulated structures*, L. Chang Leroy and B.C. Giessen editors, academic press (1985)
- [73] D. MacMorrow, *Physica B* **192**, 150 (1993)
- [74] M. Piecuch, and L. Nevot, in : *Metallic Multilayers*, eds A. Chamberod and J. Hillairet, *Mater. Sci. Forum* **59-60**, 93 (1990)
- [75] G.E. Bacon, *Neutron Diffraction*, 3rd. edn, London : Oxford University Press (1975)
- [76] S. Lovesey, *Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter*, Clarendon Press, Oxford (1984)
- [77] J.A. Simpson, D.F. McMorrow, R.A. Cowley, D.A. Jehan, R.C.C. Ward, M.R. Wells, and K.N. Clausen, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1162 (1994)





Liste des figures

Chapitre I

	page
<i>I-1</i> : la série des métaux de terres rares dans la classification périodique des éléments.	6
<i>I-2</i> : extensions radiales relatives des orbitales électroniques du gadolinium.	7
<i>I-3</i> : schéma du plan (0001) du réseau hexagonal. La base ($\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2, \mathbf{a}_3$) est utilisée pour les études cristallographiques ; la base ($\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}$) est utilisée pour les études du comportement magnétique des terres rares.	8
<i>I-4</i> : ordre magnétique des terres rares lourdes, déterminé par diffraction de neutrons.	9
<i>I-5</i> : réseau hexagonal dont la structure magnétique est modulée selon l'axe c.	10
<i>I-6</i> : vecteurs d'onde Q des terres rares lourdes, déterminés par diffraction de neutrons, en fonction de la température réduite T/T_N .	10
<i>I-7</i> : évolution thermique de l'angle de rotation entre les moments de deux plans atomiques (0001) successifs dans la phase hélicoïdale du dysprosium massif.	11
<i>I-8</i> : courbes d'aimantation isothermes pour un monocristal de dysprosium. Le champ magnétique est appliqué selon deux directions perpendiculaires du plan de base.	12
<i>I-9</i> : évolutions thermiques de l'aimantation d'un monocristal de dysprosium. Le dysprosium est refroidi sous un champ magnétique constant, appliqué selon la direction de facile aimantation.	12
<i>I-10</i> : variations thermiques des paramètres de réseau a, b et c du dysprosium.	13
<i>I-11</i> : schéma de la distorsion orthorhombique du réseau hexagonal qui accompagne la transition ferromagnétique du dysprosium.	14
<i>I-12</i> : dessin schématique des états de spin intermédiaires selon l'axe c pour l'erbium massif.	15

<i>I-13</i> :	dépendance en température du vecteur d'onde de la modulation selon <i>c</i> et de l'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium, obtenue par mesures synchrotron.	16
<i>I-14</i> :	variations thermiques des déformations selon les directions de réseau <i>a</i> , <i>b</i> et <i>c</i> de l'erbium.	17
<i>I-15</i> :	évolutions thermiques de l'aimantation d'un monocristal d'erbium. L'erbium est refroidi sous un champ magnétique constant, appliqué selon la direction <i>c</i> de facile aimantation.	17
<i>I-16</i> :	variations de l'aimantation de l'erbium à 4.2 K en fonction du champ magnétique.	18
<i>I-17</i> :	schéma des évolutions thermiques des paramètres <i>c</i> et des phases magnétiques dans le dysprosium et l'erbium massifs.	19
<i>I-18</i> :	diagramme de phases magnétiques du système Dy-Er.	20
<i>I-19</i> :	schéma de principe de l'interaction d'échange indirecte RKKY entre les spins S_i et S_j de deux atomes voisins.	23
<i>I-20</i> :	surface de Fermi du gadolinium.	26
<i>I-21</i> :	surface de Fermi du terbium.	26
<i>I-22</i> :	sections des surfaces de Fermi des terres rares lourdes et de l'yttrium. Le tableau indique les vecteurs d'ondes Q et les angles ω correspondant à l'espacement entre les portions de surface de Fermi.	27
<i>I-23</i> :	interactions d'échange déterminées expérimentalement pour les terres rares lourdes.	28
<i>I-24</i> :	schéma des trois modes de déformation irréductibles α_1 , α_2 et γ .	36
<i>I-25</i> :	dépendance en température des termes d'énergie d'échange et magnétostrictive pour un monocristal de dysprosium massif.	42
<i>I-26</i> :	dépendance en température des paramètres cristallins d'un monocristal de dysprosium massif, déterminée par la minimisation du terme d'énergie magnétostrictive dans les phases hélicoïdale et ferromagnétique.	43
<i>I-27</i> :	dépendance en température de l'énergie magnétoélastique totale d'un monocristal de dysprosium.	44
<i>I-28</i> :	spectre de diffraction de neutrons obtenu pour un superréseau [Gd/Y], mettant en évidence le couplage antiferromagnétique.	47
<i>I-29</i> :	variations du moment rémanent normalisé par rapport au moment en champ nul, et du champ à saturation en fonction du nombre de plans atomiques d'yttrium pour deux séries de superréseaux avec 4 ou 10 plans atomiques de gadolinium.	48
<i>I-30</i> :	représentation schématique de la configuration des moments magnétiques de gadolinium sous faible champ dans le superréseau [Gd ₁₀ /Y ₁₀] _{x225} .	49
<i>I-31</i> :	représentation schématique de la propagation cohérente et à grande distance de l'ordre hélicoïdal du dysprosium à travers l'yttrium.	50

<i>I-32</i> :	évolution thermique de l'angle de rotation des moments dans la structure en hélice à grande distance des superréseaux Dy/Y et du dysprosium massif.	51
<i>I-33</i> :	(a) représentation schématique de $J(\mathbf{q})$; (b) enveloppe de l'intégrale d'échange $J(\mathbf{R})$.	52
<i>I-34</i> :	champ critique en fonction de la température pour des films d'erbium de 1750 Å et 9500 Å épitaxiés sur yttrium, ainsi que pour l'erbium massif.	55
<i>I-35</i> :	variations de l'aimantation en fonction de la température pour le superréseau $[\text{Dy}_{16}/\text{Lu}_{20}]_{\times 60}$ sous des champs magnétiques de 200 Oe et 1 kOe.	56
<i>I-36</i> :	variations thermiques de l'aimantation sous champ pour une structure : GaAs/50 Å LaF ₃ /2000 Å Er/500 Å Dy/1000 Å Er/1000 Å LaF ₃ .	58
<i>I-37</i> :	diagramme de phase magnétique de films minces de dysprosium épitaxiés selon la direction c.	59

Chapitre II

<i>II-1</i> :	schéma de l'installation d'épitaxie par jet moléculaire utilisée pour cette étude au Laboratoire de Métallurgie Physique et Science des Matériaux (Nancy).	66
<i>II-2</i> :	schémas des différents types d'échantillons réalisés au cours de ce travail : film de dysprosium épitaxié sur yttrium ou sur erbium et superréseau Dy/Er.	73
<i>II-3</i> :	relations d'épitaxie entre les plans $(11\bar{2}0)$ du substrat et (110) du niobium.	74
<i>II-4</i> :	relations d'épitaxie entre le plan (0001) de la terre rare et le plan (110) du niobium.	75
<i>II-5</i> :	schéma du diffractomètre haute résolution Philips HRD.	81
<i>II-6</i> :	schéma des différents degrés de liberté possibles (ω , R et T) avec le dispositif de diffraction utilisé.	81
<i>II-7</i> :	variation de l'angle ω où apparaît le maximum d'intensité sur la réflexion $(11\bar{2}0)$ du substrat en fonction de l'angle R de rotation du substrat dans son plan.	83
<i>II-8</i> :	schéma explicatif de la courbe $\omega_M(R)$ mesurée pour déterminer l'angle de coupe du substrat.	83
<i>II-9</i> :	variation de l'intensité en fonction de R pour déterminer l'orientation du substrat.	84
<i>II-10</i> :	superposition des courbes $I(R)$ mesurées pour les réflexions $(10\bar{1}0)$ du substrat, $(12\bar{1})$ du niobium et $(10\bar{1}3)$ de la terre rare.	85
<i>II-11</i> :	schéma de deux bicouches d'un superréseau idéal.	87
<i>II-12</i> :	principe de l'obtention du spectre de diffraction de rayons X pour un superréseau Dy/Er. (a) : $L_A(\mathbf{q})$; (b) : $L_B(\mathbf{q})$; (c) : $(S(\mathbf{q}))^2$; (d) : spectre total.	90
<i>II-13</i> :	distribution aux noeuds du réseau réciproque des intensités RX diffractées par un superréseau .	91

<i>II-14</i> :	distributions des intensités aux noeuds des réseaux réciproques du dysprosium et de l'erbium massifs, dans le cas particulier de l'ordre ferromagnétique selon leur direction de facile aimantation.	97
<i>II-15</i> :	distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque d'un superréseau, dans le cas particulier d'un couplage antiferromagnétique entre couches ferromagnétiques dans le plan.	98
<i>II-16</i> :	contribution magnétique au spectre de diffraction neutronique pour un superréseau Dy/Er. Les deux éléments sont supposés développer un ordre magnétique hélicoïdal dans le plan de base, de vecteurs d'onde différents. (a) : contribution magnétique d'une couche de Dy ; (b) : contribution magnétique d'une couche d'Er ; (c) : $(S^+(\mathbf{q}))^2 + (S^-(\mathbf{q}))^2$; (d) : spectre magnétique total.	100
<i>II-17</i> :	distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque d'un superréseau dans le cas d'un ordre magnétique incohérent hélicoïdal dans le plan de base.	102
<i>II-18</i> :	distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque du dysprosium massif.	103
<i>II-19</i> :	distributions des intensités aux noeuds du réseau réciproque de l'erbium massif.	104
<i>II-20</i> :	schéma du spectromètre trois axes G43 du Laboratoire Léon Brillouin (Saclay).	109

Chapitre III

<i>III-1</i> :	spectre de diffraction de rayons X aux grands angles obtenu pour le film de dysprosium de 650 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium de 500 Å.	112
<i>III-2</i> :	spectre de diffraction de rayons X aux grands angles obtenu pour le film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre deux couches d'erbium de 1000 Å.	112
<i>III-3</i> :	évolutions de la longueur de cohérence cristalline des films de dysprosium épitaxiés entre yttrium et erbium en fonction de l'épaisseur de dysprosium.	114
<i>III-4</i> :	évolutions expérimentales du paramètre c des films de dysprosium épitaxiés entre erbium et entre yttrium en fonction de l'épaisseur de dysprosium. Les croix correspondent aux évolutions théoriques des paramètres c et a.	116
<i>III-5</i> :	spectres de diffraction de neutrons obtenus à différentes températures pour le film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre yttrium.	119
<i>III-6</i> :	évolutions thermiques des intensités intégrées du pic de Bragg (0002) et des satellites magnétiques (0002) ⁺ et (0002) ⁻ , mesurées par diffraction de neutrons pour l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y.	120

<i>III-7</i> :	évolution thermique du paramètre c , déterminé par diffraction de neutrons, du film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre yttrium.	120
<i>III-8</i> :	évolution thermique de l'angle de rotation des moments magnétiques dans la structure en hélice du film de dysprosium de 3200 Å épitaxié entre yttrium.	121
<i>III-9</i> :	évolution thermique de la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg (0002) du dysprosium mesuré par diffraction de neutrons pour le film de 3200 Å de dysprosium épitaxié entre yttrium.	122
<i>III-10</i> :	spectres de diffraction de neutrons obtenus à différentes températures pour le film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre yttrium.	123
<i>III-11</i> :	évolutions thermiques des paramètres c , déterminés par diffraction de neutrons, des films de dysprosium de 600 Å et 3200 Å épitaxiés entre yttrium.	124
<i>III-12</i> :	évolutions thermiques de l'angle de rotation entre moments de dysprosium pour les échantillons Y/Dy 600 Å/Y, Y/Dy 3200Å/Y et pour le dysprosium massif.	125
<i>III-13</i> :	évolutions de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) et du paramètre c du dysprosium en fonction du champ magnétique pour l'échantillon Y/Dy 550 Å/Y. Les résultats sont obtenus par diffraction de neutrons à $T = 10$ K en appliquant le champ magnétique dans le plan de l'échantillon.	126
<i>III-14</i> :	variations de l'aimantation (FC) en fonction de la température sous un champ magnétique de 2.6 kOe appliqué dans le plan des couches pour les échantillons Y/Dy 3200 Å/Y et Y/Dy 600 Å/Y.	127
<i>III-15</i> :	courbes d'aimantation (FC) obtenues sous 2.6 kOe et sous 50 Oe pour l'échantillon Y/Dy 3200 Å/Y.	128
<i>III-16</i> :	courbes d'aimantation obtenues sous 2.6 kOe et sous 50 Oe pour l'échantillon Y/Dy 600 Å/Y	129
<i>III-17</i> :	courbes d'aimantation (FC) obtenues sous 2.6 kOe pour une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium.	130
<i>III-18</i> :	variation de la température de Néel (déterminée sous 2.6 kOe) des films de dysprosium épitaxiés entre yttrium en fonction de l'épaisseur de dysprosium.	130
<i>III-19</i> :	variation de la température de Curie du film de dysprosium en fonction de son paramètre c , pour une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium.	131
<i>III-20</i> :	courbes de première aimantation obtenues à différentes températures pour le film de 3200 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium.	132
<i>III-21</i> :	courbes de première aimantation obtenues à différentes températures pour le film de 600 Å épitaxié entre deux couches d'yttrium.	133
<i>III-22</i> :	évolutions thermiques du champ critique d'apparition de la phase ferromagnétique pour une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium.	134
<i>III-23</i> :	cycles d'hystérésis à 12 K et 110 K pour les échantillons Y/Dy 3200 Å/Y et Y/Dy 600 Å/Y.	136

<i>III-24</i> :	variation thermique de l'aimantation sous 2.6 kOe d'une série de films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'erbium. Le champ a été appliqué dans le plan (0001) et les mesures ont été réalisées en température décroissante.	139
<i>III-25</i> :	variation de la température de Néel d'un film de dysprosium épitaxié en fonction de la valeur absolue de sa déformation selon c.	139
<i>III-26</i> :	variation de la température de Curie d'un film de dysprosium épitaxié en fonction de sa déformation selon c.	140
<i>III-27</i> :	courbes de première aimantation pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er à 110 K, 140 K, 160 K et 180 K. Le champ magnétique a été appliqué dans le plan (0001).	141
<i>III-28</i> :	évolutions thermiques du champ critique pour la série de films de dysprosium épitaxiés, entre yttrium et entre erbium.	142
<i>III-29</i> :	variation du champ critique à 140 K et à 110 K en fonction de la déformation selon c du film de dysprosium épitaxié.	143
<i>III-30</i> :	spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour des réflexions (0002) pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.	144
<i>III-31</i> :	évolution thermique de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) du dysprosium mesuré par diffraction de neutrons pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.	145
<i>III-32</i> :	évolutions thermiques de l'angle de rotation entre moments de dysprosium dans la phase hélicoïdale pour des films de dysprosium épitaxiés entre yttrium et entre erbium.	146
<i>III-33</i> :	spectres de diffraction de neutrons obtenus à 10 K pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er, sous champ nul et sous un champ de 5.5 kOe appliqué dans le plan des couches.	147
<i>III-34</i> :	évolution thermique du paramètre c du film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre erbium. Les ronds noirs correspondent aux valeurs mesurées sous champ nul en température décroissante ; les ronds blancs correspondent aux valeurs mesurées sous un champ de 5.5 kOe appliqué dans le plan (0001), en température croissante.	147
<i>III-35</i> :	évolution thermique de la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg (0002) du dysprosium, mesurée par diffraction de neutrons pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.	148
<i>III-36</i> :	spectres de diffraction de neutrons mesurés le long de a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.	150
<i>III-37</i> :	spectre de diffraction de neutrons mesuré à 10 K le long de la direction a^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er.	151
<i>III-38</i> :	représentation schématique de la distorsion orthorhombique du réseau du dysprosium selon les trois directions équivalentes de facile aimantation ((1), (2) et (3)).	151
<i>III-39</i> :	spectres obtenus le long de a^* autour de la direction $(10\bar{1}0)$ pour l'échantillon Er/Dy 600 Å/Er. Les spectres dont les mesures sont présentées par les points noirs ont été obtenus sous champ	

	nul en température décroissante. Les spectres dont les mesures sont présentées par les points blancs ont été obtenus sous champ en température croissante.	153
<i>III-40</i>	: évolutions thermiques du paramètre c corrigé de l'effet de dilatation thermique, et de la différence entre les paramètres b des deux contributions observées à partir de 110 K. Ces résultats sont obtenus par diffraction neutronique pour un film de dysprosium de 600 Å épitaxié entre erbium.	154
<i>III-41</i>	: diagramme énergétique du dysprosium dans un système épitaxié idéal, constitué de dysprosium (d'épaisseur relative 0.75) et d'yttrium.	160
<i>III-42</i>	: diagramme énergétique du dysprosium dans un système épitaxié idéal, constitué de dysprosium (d'épaisseur relative 0.75) et d'erbium.	161
<i>III-43</i>	: diagramme énergétique du dysprosium dans un système épitaxié idéal, constitué de dysprosium (d'épaisseur relative 0.75) et d'erbium. La modélisation considère une modification de l'échange par rapport au dysprosium massif (via l'angle de rotation entre spins dans la phase hélicoïdale).	163
<i>III-44</i>	: évolutions thermiques des paramètres c du dysprosium massif et du dysprosium dans un système épitaxié idéal à base de dysprosium (d'épaisseur relative de dysprosium 0.6) et d'yttrium.	164

Chapitre IV

<i>IV-1</i>	: spectre de diffraction de rayons X pour le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	168
<i>IV-2</i>	: variation des paramètres a et c théoriques des superréseaux Dy/Er en fonction du rapport des épaisseurs des couches de dysprosium et d'erbium. Les paramètres c expérimentaux sont indiqués par les ronds noirs.	170
<i>IV-3</i>	: spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) du superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47.	172
<i>IV-4</i>	: évolution thermique de l'intensité mesurée en $q = 2.22 \text{ \AA}^{-1}$ sur les spectres de diffraction de neutrons pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47.	174
<i>IV-5</i>	: variation thermique du paramètre c moyen du superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47, déterminée par diffraction de neutrons.	175
<i>IV-6</i>	: spectres de diffraction de neutrons obtenus le long de c^* entre les réflexions $(10\bar{1}0)$ et $(10\bar{1}1)$ pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47.	176

<i>IV-7</i> :	variation thermique de l'aimantation (FC) du superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47 sous un champ magnétique de 50 Oe appliqué dans le plan des couches.	179
<i>IV-8</i> :	évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47. Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches.	180
<i>IV-9</i> :	évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique entre 0 kOe et 10 kOe pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47.	181
<i>IV-10</i> :	évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47. Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan des couches.	182
<i>IV-11</i> :	évolution thermique du champ critique (H_C) pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(111 Å)]x47. Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan des couches.	182
<i>IV-12</i> :	spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	187
<i>IV-13</i> :	spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60.	190
<i>IV-14</i> :	spectres de diffraction de neutrons sous champ nul et sous un champ magnétique de 5.5 kOe appliqué dans le plan des couches pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60.	191
<i>IV-15</i> :	évolutions sous champ à 10 K des intensités intégrées du pic de Bragg (B), antiferromagnétique (AF), et du pic dû à l'ordre hélicoïdal (h-Dy).	192
<i>IV-16</i> :	spectres de diffraction de neutrons le long de c^* entre les réflexions (10 $\bar{1}$ 0) et (10 $\bar{1}$ 1) pour le superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	194
<i>IV-17</i> :	spectres de diffraction de neutrons le long de c^* entre les réflexions (10 $\bar{1}$ 0) et (10 $\bar{1}$ 1) pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60.	195
<i>IV-18</i> :	spectres de diffraction de neutrons le long de a^* autour de la réflexion (10 $\bar{1}$ 0).	197
<i>IV-19</i> :	effet de l'application d'un champ magnétique à 10 K sur les spectres de diffraction neutronique mesurés le long de a^* autour de la réflexion (10 $\bar{1}$ 0).	197
<i>IV-20</i> :	évolution thermique du pas de l'hélice de la phase hélicoïdale dans les couches de dysprosium et d'erbium pour les superréseaux [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60 et [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	198
<i>IV-21</i> :	évolution thermique des longueurs de cohérence des phases hélicoïdale et antiferromagnétique dans les couches de dysprosium pour les superréseaux [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60 et [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	200
<i>IV-22</i> :	évolutions thermiques des paramètres c et b moyens des superréseaux [Dy(34 Å)/Er(23 Å)] et [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60.	202
<i>IV-23</i> :	évolutions thermiques de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) du superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60.	203

<i>IV-24</i> : évolutions thermiques de l'intensité intégrée du pic de Bragg (0002) du superréseau [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x60.	204
<i>IV-25</i> : spectres de diffraction de neutrons polarisés obtenus à 10 K sous champ nul et sous champ appliqué dans le plan des couches pour l'échantillon [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	206
<i>IV-26</i> : spectres de diffraction de neutrons polarisés obtenus à 10 K en champ nul, après avoir appliqué un champ de 6.4 kOe dans le plan des couches pour l'échantillon [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50.	207
<i>IV-27</i> : courbes de première aimantation obtenues pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60. Les mesures ont été réalisées à des températures supérieures à 65 K en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches.	208
<i>IV-28</i> : évolutions thermiques des champs critiques dans la phase hélicoïdale pour trois superréseaux [Dy/Er].	209
<i>IV-29</i> : courbes de première aimantation obtenues pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60. Les mesures ont été réalisées à des températures inférieures à 65 K en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches.	210
<i>IV-30</i> : cycle d'aimantation obtenu à 12 K pour le superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60, en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches.	211
<i>IV-31</i> : variation thermique sous 50 Oe de l'aimantation (FC) du superréseau [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60. Le champ est appliqué dans le plan des couches.	211
<i>IV-32</i> : courbes de première aimantation obtenues pour les superréseaux [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50 et [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60. Les mesures ont été réalisées en appliquant le champ magnétique perpendiculairement au plan des couches.	213
<i>IV-33</i> : évolutions thermiques des champs critiques pour les superréseaux [Dy/Er], lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan des couches.	214
<i>IV-34</i> : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80.	218
<i>IV-35</i> : pas de l'hélice de la phase hélicoïdale dans les couches de dysprosium et d'erbium pour les superréseaux [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80, [Dy(34 Å)/Er(23 Å)]x50 et [Dy(60 Å)/Er(60 Å)]x60.	219
<i>IV-36</i> : évolutions thermiques des longueurs de cohérence des phases hélicoïdale et parallèle ou antiparallèle pour les superréseaux [Dy/Er].	219
<i>IV-37</i> : spectres de diffraction de neutrons le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) réalisés à 10 K sous champ magnétique croissant pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80.	221
<i>IV-38</i> : variations à 10 K en fonction du champ magnétique de l'intensité intégrée du pic (0002) et du paramètre c moyen pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80.	221

- IV-39*: courbes d'aimantation obtenues sous 50 Oe avec le champ magnétique appliqué dans le plan des couches pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80. Les valeurs ont été obtenues en abaissant la température (FC) et en température croissante (ZFC). 222
- IV-40*: courbes de première aimantation réalisées avec le champ magnétique appliqué dans le plan des couches pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80. 224
- IV-41*: courbes de première aimantation réalisées avec le champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches pour le superréseau [Dy(35 Å)/Er(11 Å)]x80. 225

**AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE**

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Madame HENNION Martine, Docteur-Ingénieur de Recherches, CEN
Saclay,
Monsieur COQBLIN Bernard, Directeur de Recherche CNRS,
Université Paris XI,
Monsieur RHYNE J.J., Professeur, Université Missouri Columbia
(USA).**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Mademoiselle DUMESNIL Karine

à soutenir devant l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

**"Couplage magnétique et effets magnétostrictifs dans des films
épitaxiés et superréseaux à base de terres rares"**

en vue de l'obtention du titre de :

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE
LORRAINE**

Spécialité : **"SCIENCES & GENIE DES MATERIAUX"**

Fait à Vandoeuvre le, **11 Janvier 1995**

Le Président de l'I.N.P.L.,

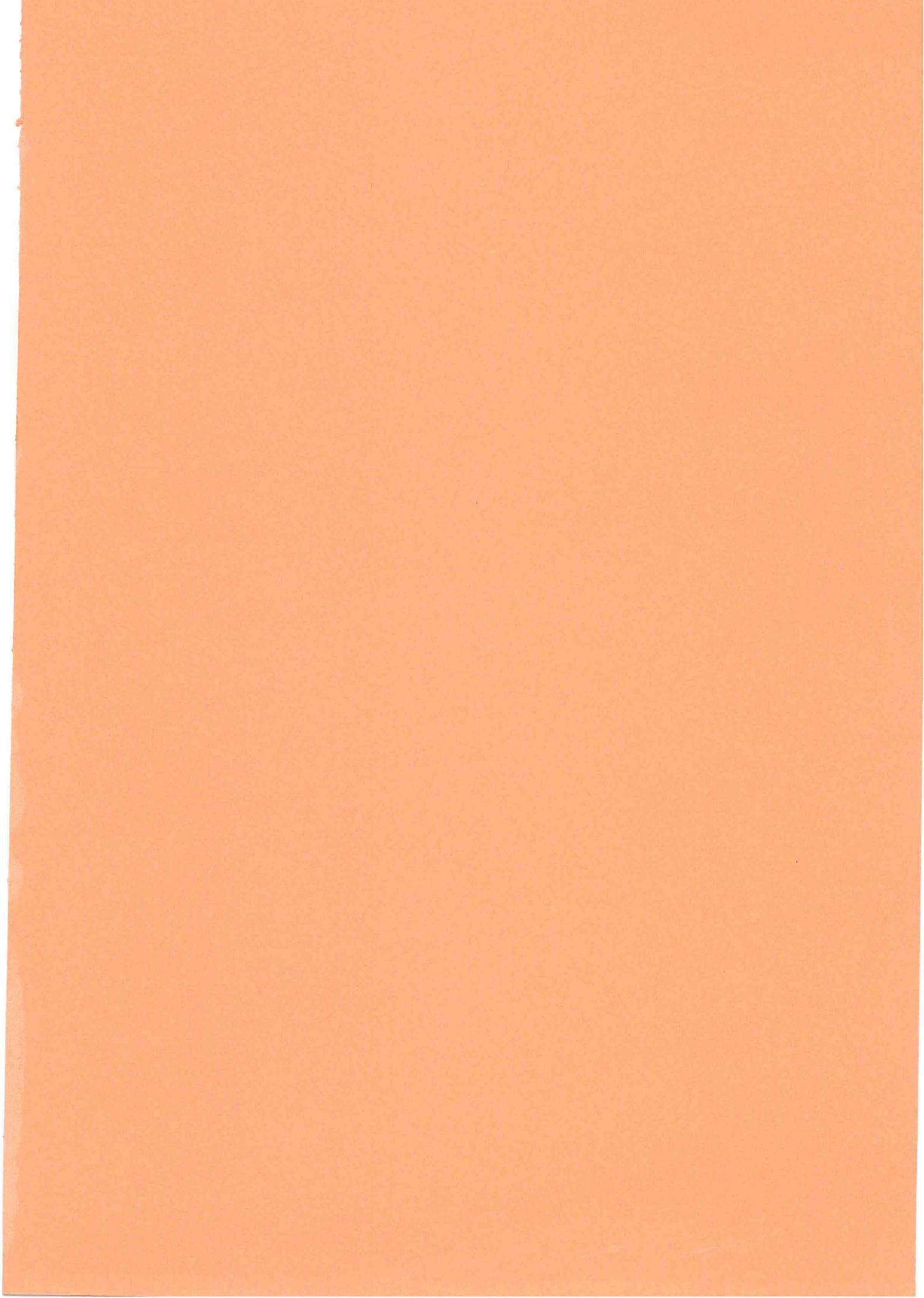
M. LUCIUS



Pour le Président
Le Vice-Président

J. Ch. CHEVRIER

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 5 4 5 0 1
VANDOEUVRE CEDEX



Résumé

Ce travail concerne l'étude des propriétés magnétiques de films de dysprosium épitaxiés entre des couches d'yttrium et d'erbium (Y/Dy/Y et Er/Dy/Er) et de superréseaux de terres rares Dy/Er.

Les échantillons de direction de croissance (0001) ont été préparés dans une enceinte d'épitaxie par jets moléculaires. Les mesures de paramètres c montrent que les films de dysprosium des tricouches Y/Dy/Y sont déformés avec une extension du paramètre a et une diminution de c (déformation α_2 négative), et qu'inversement, les films de dysprosium des systèmes Er/Dy/Er sont déformés avec réduction du paramètre a et extension du paramètre c (déformation α_2 positive). Dans les superréseaux Dy/Er, le dysprosium voit son paramètre c augmenter alors que l'erbium voit son paramètre c diminuer.

Les études de diffraction neutronique et les mesures magnétiques effectuées sur les tricouches ont montré que la température de Curie T_C qui apparaît dans le dysprosium massif vers 85K est modifiée et ne dépend que du paramètre c du dysprosium, c'est-à-dire du signe et de l'amplitude de la déformation α_2 induite par épitaxie. T_C peut atteindre 140K dans les tricouches Er/Dy/Er et devient nulle dans les tricouches Y/Dy/Y d'épaisseur de dysprosium inférieure à 1000Å. L'étude se poursuit par la détermination des champs critiques H_C , des angles de rotation de spins entre deux plans atomiques successifs et des dépendances thermiques des paramètres. Leurs évolutions précisent l'effet des contraintes épitaxiales d'une part sur l'amplitude des effets magnétostrictifs et d'autre part sur la barrière d'énergie d'échange entre les phases hélicoïdale et ferromagnétique. Un modèle magnétoélastique est proposé pour examiner l'influence des différents termes énergétiques sur la transition ferromagnétique du dysprosium épitaxié.

Dans les superréseaux Dy/Er, le dysprosium développe un ordre hélicoïdal cohérent à travers l'erbium paramagnétique qui s'interprète par la propagation virtuelle de l'hélice à travers l'erbium avec un vecteur d'onde correspondant au maximum de susceptibilité généralisée de cet élément. A basse température, le dysprosium devient progressivement ferromagnétique dans les couches mais avec un arrangement antiparallèle à longue distance. Une étude de cet ordre antiferromagnétique et de son évolution sous champ a été réalisée par diffraction de neutrons polarisés. Malgré son état de contrainte, le dysprosium ne voit pas sa température de Curie augmenter, ce qui est interprété par une modification de la barrière énergétique entre les configurations ferromagnétique et hélicoïdale. L'erbium développe vers 80K (comme dans l'élément massif) un ordre modulé dont les moments sont orientés suivant l'axe c (CAM) et présente à plus basse température une composante hélicoïdale dans le plan. Sous l'effet des contraintes épitaxiales négatives, il ne présente pas de transition ferromagnétique à basse température.

Mots-clés : Terre rare - Superréseau - Epitaxie - Magnétostriction - Couplage magnétique - Diffraction de neutrons - Mesures d'aimantation