



HAL
open science

Diffraction de neutrons par les superréseaux et films épitaxiés à base de terres rares

C. Dufour, K. Dumesnil, Ph. Mangin, G. Marchal, M. Hennion

► **To cite this version:**

C. Dufour, K. Dumesnil, Ph. Mangin, G. Marchal, M. Hennion. Diffraction de neutrons par les superréseaux et films épitaxiés à base de terres rares. *Journal de Physique IV Proceedings*, 1996, 06 (C7), pp.C7-65-C7-76. 10.1051/jp4:1996708 . jpa-00254496

HAL Id: jpa-00254496

<https://hal.science/jpa-00254496>

Submitted on 4 Feb 2008

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.

Diffraction de neutrons par les superréseaux et films épitaxiés à base de terres rares

C. Dufour, K. Dumesnil, Ph. Mangin, G. Marchal et M. Hennion*

LMPSM, Université Henri Poincaré Nancy 1, BP. 239, 54506 Vandœuvre cedex, France

* LLB, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette cedex, France

Résumé: La diffraction de neutron est un outil puissant d'étude des propriétés magnétiques des superréseaux et films épitaxiés à base de terres rares. Grâce à cette technique, nous avons mis en évidence, dans les superréseaux Dy/Er, la propagation cohérente de la phase hélicoïdale du dysprosium à travers l'erbium paramagnétique. Ce couplage est remplacé à basse température par un couplage antiferromagnétique entre couches de dysprosium ferromagnétiques. Dans les superréseaux Dy/Er et dans les films de dysprosium épitaxiés, la diffraction de neutrons permet la détermination précise de l'évolution thermique des angles de rotation entre moments magnétiques ainsi que celle de *tous* les paramètres cristallographiques. Ces informations permettent d'estimer les modifications des énergies induites par l'épitanie et la superpériodicité lors de la transition entre phases hélicoïdale et ferromagnétique.

1 INTRODUCTION

Les terres rares lourdes présentent à l'état massif des structures magnétiques riches et variées, résultat d'une compétition entre l'énergie d'échange entre les moments 4f (interaction indirecte à longue distance RKKY), l'énergie de champ cristallin (interaction coulombienne entre le nuage 4f et les ions voisins) et l'énergie magnétostrictive (somme des énergies élastique et magnétoélastique) [1]. Les terres rares lourdes et l'yttrium cristallisent dans une structure hcp. Excepté le gadolinium qui est directement ferromagnétique, les terres rares lourdes développent en-dessous de leur température d'ordre magnétique une structure modulée suivie à basse température d'un ordre ferromagnétique. Dans le gadolinium, l'échange stabilise la structure ferromagnétique dès la température d'ordre car la susceptibilité des électrons de conduction, liée à la géométrie de la surface de Fermi, présente un maximum pour un vecteur d'onde nul. Dans les autres terres rares lourdes, une structure modulée est stabilisée à la température de Néel car ce maximum de susceptibilité intervient pour un vecteur d'onde non-nul [2]. La transition de la phase hélicoïdale à la phase ferromagnétique dans le terbium, le dysprosium, l'erbium et l'holmium s'accompagne, pour sa part, d'effets magnétostrictifs importants qui se traduisent par des déformations de réseau. La diffraction de neutrons a joué un rôle majeur dans la détermination des configurations de spin des terres rares à l'état massif depuis les travaux pionniers de W.C. Koehler et de ses associés à Oak Ridge il y a plus de 30 ans.

Dans les superréseaux monocristallins de terres rares fabriqués par épitanie par jets moléculaires (E.J.M.), deux paramètres sont susceptibles de changer les propriétés magnétiques des terres rares impliquées dans ces structures artificielles ou d'induire de nouvelles propriétés: *l'épitanie et la superpériodicité*. L'épitanie engendre des déformations qui modifient les énergies élastique et magnétoélastique et par conséquent avancent ou retardent l'apparition de la phase ferromagnétique. Les déformations épitaxiales peuvent conduire à une modification de la surface de Fermi et en conséquence de la contribution de l'énergie d'échange. La superpériodicité peut elle aussi modifier la surface de Fermi, et donc influencer sur la stabilité de la phase modulée. Par ailleurs, le couplage RKKY agissant à grande distance, l'ordre magnétique peut se propager sur plusieurs superpériodes.

Jusque récemment, les superréseaux à base d'une terre rare lourde magnétique et d'une terre rare non-magnétique (ou d'yttrium chimiquement voisin) ont principalement été étudiés (Gd/Y[3], Er/Y [4], Dy/Y[5], Dy/Lu[6], Ho/Y [7]...). Les résultats obtenus les plus importants peuvent se résumer en 2 points: i) existence de couplages magnétiques à longue distance à travers l'yttrium ou le lutécium non-magnétiques; ii) stabilisation de la phase hélicoïdale de la terre rare magnétique sur de grande plage de température (plusieurs dizaines de degrés).

Nous présentons ici les principaux résultats obtenus par diffraction de neutrons et concernant les propriétés magnétiques du dysprosium: dans les films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'yttrium (notés tricouches Y/Dy/Y), dans les films de dysprosium épitaxiés entre deux couches d'erbium (notés tricouches Er/Dy/Er) et dans les superréseaux Dy/Er. Les tricouches ont été étudiées dans l'objectif de mieux

comprendre les propriétés magnétiques observées dans les superréseaux. Alors que, dans les superréseaux Dy/Er, les effets de l'épitaxie et de la superpériodicité s'ajoutent et sont parfois difficiles à séparer, les tricouches Er/Dy/Er permettent de comprendre les seuls effets de l'épitaxie. Les tricouches Y/Dy/Y ont été fabriquées pour permettre des comparaisons entre deux systèmes où les déformations épitaxiales sont de signe opposé, les distances interatomiques dans l'erbium et l'yttrium étant respectivement plus petites et plus grandes que dans le dysprosium.

Avant de présenter les propriétés structurales et magnétiques des films épitaxiés et des superréseaux, il est nécessaire de rappeler la structure magnétique du dysprosium massif.

Le dysprosium massif s'ordonne dans une phase hélicoïdale à $T_N=179\text{K}$ et devient ferromagnétique à $T_C=89\text{K}$. Dans la phase hélicoïdale, les moments magnétiques du même plan (0001) sont tous parallèles et le vecteur d'onde de l'hélice est selon l'axe c. L'angle de rotation entre les moments de deux plans consécutifs décroît de $\omega_1=45^\circ$ à T_N à $\omega_f=25^\circ$ à T_C . A la transition ferromagnétique, il tombe brutalement à 0° et tous les moments magnétiques s'alignent selon la direction $(11\bar{2}0)$ [8].

2 FABRICATION ET CARACTERISATION STRUCTURALE DES ECHANTILLONS

Les échantillons (films et superréseaux) sont synthétisés par épitaxie par jets moléculaires sur un substrat de saphir $(11\bar{2}0)$. Une couche tampon de niobium (110) est déposée sur le substrat afin d'éviter la contamination des terres rares par l'oxygène du saphir [9].

La direction de croissance des terres rares est l'axe c du réseau hexagonal. La croissance est contrôlée par diffraction RHEED. Après le dépôt du superréseau (en général 3000\AA environ), les clichés de RHEED montrent des raies fines et bien contrastées caractéristiques d'une bonne qualité cristalline.

Les échantillons sont ensuite caractérisés par diffraction de R.X. aux grands angles. Leur qualité cristalline est alors mise en évidence par des longueurs de cohérence cristalline supérieures à 800\AA et une mosaïcité comprise entre 0.2 et 0.3° .

Les mesures du paramètre c montrent que les déformations induites sont celles que l'on attend d'une épitaxie pratiquement parfaite entre les terres rares. Dans les tricouches Y/Dy/Y, où les paramètres massifs de l'yttrium sont supérieurs à ceux du dysprosium, les films de dysprosium sont déformés avec une extension du paramètre a et une diminution du paramètre c. Au contraire, dans les tricouches Er/Dy/Er, où les paramètres massifs de l'erbium sont inférieurs à ceux du dysprosium, le dysprosium présente une réduction du paramètre a et une augmentation du paramètre c. *L'amplitude des déformations dépend de l'épaisseur du film de dysprosium.* Il est ainsi possible d'imposer le paramètre c du dysprosium dans une gamme de $\pm 2\%$ par rapport à sa valeur à l'état massif.

3 DIFFRACTION DE NEUTRONS PAR UN SUPERRESEAU MAGNETIQUE

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 . 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.

Soit \mathbf{q} le vecteur de diffusion. Dans l'approximation de Born de la théorie de la diffusion, le facteur de structure nucléaire est donné par l'expression: $f(\mathbf{q}) = \sum_i b_i \exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$

où b_i est l'amplitude de diffusion nucléaire cohérente du $i^{\text{ème}}$ atome situé en \mathbf{r}_i .

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

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

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

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 $\Gamma_V = 2\pi/n_V d_V$.

L'intensité diffractée s'écrit donc sous la forme : $I(\mathbf{q}) \propto |f(\mathbf{q})|^2 = |S(\mathbf{q})|^2 |F(\mathbf{q})|^2$

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

$N\Lambda$ 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.

- $|F(\mathbf{q})|^2 = b_A^2 L_A(q) + b_B^2 L_B(q) + 2b_A b_B \sqrt{L_A(q)L_B(q)} \cos(q\Lambda/2)$ est la somme de trois termes. Les deux premiers termes présentent des maxima aux positions $mq_A = m2\pi/d_A$ et $mq_B = m2\pi/d_B$ 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 mq_A et mq_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 mq_A et mq_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 mq_A et mq_B .

Il en 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 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.

Si les neutrons sont non polarisés et si les moments magnétiques à l'intérieur de chaque couche et d'une couche à l'autre sont parallèles, le facteur de structure 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 l'amplitude de diffusion nucléaire b_i . Elle décrit l'interaction du neutron avec le moment de l'atome et est donnée par :

$$p_i^\perp(\mathbf{q}) = \frac{e^2 \gamma}{2mc^2} m^\perp \tilde{f}_i(\mathbf{q}) = 2.7 \text{ fm } g_J J_i \tilde{f}_i(\mathbf{q})$$

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

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.

Pour la structure antiferromagnétique, il faut ajouter un terme de déphasage supplémentaire entre les moments orientés dans des sens opposés : $\exp(i\pi)$. 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 $q d_A + \alpha$, 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.* [10].

Le facteur de structure magnétique se calque simplement sur celui obtenu en diffraction nucléaire, en effectuant les substitutions qui tiennent compte des amplitudes de diffusion magnétiques et des nouveaux déphasages entre plans : i) les déphasages entre plans successifs $q d_A$ et $q d_B$ sont remplacés par $(q + \kappa_A) d_A$ et $(q + \kappa_B) d_B$.; ii) le déphasage entre deux bicouches successives $q \Lambda = q(n_A d_A + n_B d_B)$ est remplacé par $(q + \kappa_A) n_A d_A + (q + \kappa_B) n_B d_B = q \Lambda + (\kappa_A n_A + \kappa_B n_B) = q \Lambda + \Phi$.

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

Le signe \pm 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, la probabilité de trouver le spin polarisé selon κ ou dans la direction opposée est $1/2$. L'intensité magnétique totale est :

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

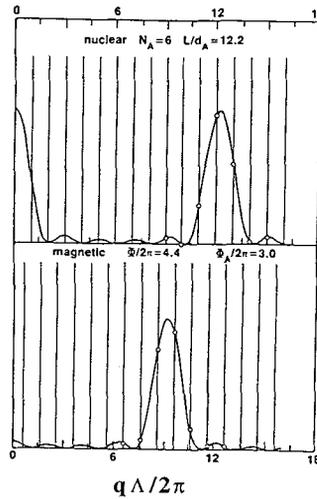


Figure 1: Représentation schématique des facteurs de structure de diffusion de neutron nucléaire et magnétique. Les traits verticaux représentent $|S(\mathbf{q})|^2$ et la ligne continue $|F(\mathbf{q})|^2$. L'intensité des pics qui seraient observés lors d'une expérience de diffraction est symbolisée par les ronds blancs et résulte de l'intersection des deux fonctions ci-dessus.

Les mesures de diffraction magnétique ont été faites sur le spectromètre G4.3 au Laboratoire Léon Brillouin (L.L.B.) du Centre d'Etudes Nucléaires à Saclay. 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. 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.

4 COUPLAGE DU DYSPROSIUM A TRAVERS L'ERBIUM DANS LES SUPERRESEAUX Dy/Er [11].

Le dysprosium présentant une anisotropie dans le plan de base (0001), l'étude de ses phases magnétiques se fait par diffraction de neutron en explorant le réseau réciproque le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002).

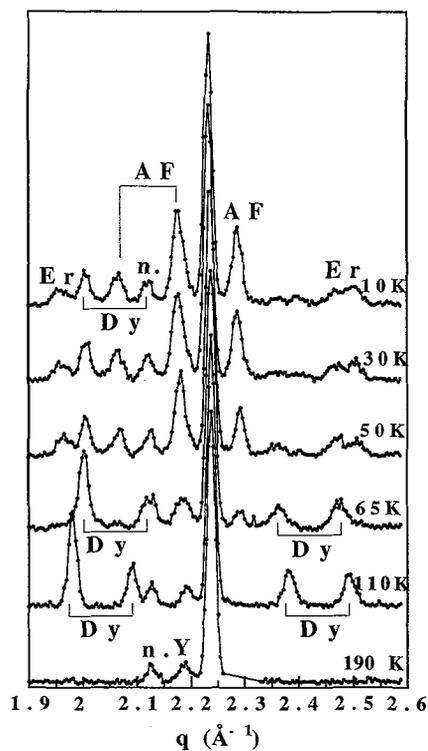


Figure 2: Spectres de diffraction de neutrons le long de c^* autour de la réflexion (0002) à différentes températures pour un superréseau $Dy_{34\text{Å}}/Er_{23\text{Å}}$

Un ensemble de spectres de diffraction de neutrons à différentes températures est présenté sur la figure 2 pour un superréseau $(Dy_{34\text{Å}}/Er_{23\text{Å}})_{x50}$. Les trois pics présents à 190K correspondent au pic de Bragg moyen du superréseau ($q=2.237 \text{ \AA}^{-1}$), à un satellite (n.) dû à la modulation chimique et au pic de Bragg dû à la couche tampon et à la couche de couverture d'yttrium.

4.1. Propagation cohérente de l'hélice du dysprosium à travers l'erbium paramagnétique

Entre 179K et environ 85K, le dysprosium massif est hélicoïdal alors que l'erbium massif est paramagnétique. Pour le superréseau $(Dy_{34\text{Å}}/Er_{23\text{Å}})_{x50}$, des satellites d'origine magnétique (Dy sur la figure 2) apparaissent dans cette gamme de température et révèlent l'existence d'un ordre magnétique hélicoïdal dans le dysprosium. Le fait que ces satellites soient séparés en plusieurs pics distants de $2\pi/\Lambda$ prouve qu'il y a *propagation cohérente de l'ordre hélicoïdal du dysprosium à travers l'erbium paramagnétique* (fig. 2). Quand la température diminue, les pics magnétiques se déplacent vers le pic moyen du superréseau car la période magnétique augmente.

A partir de la largeur de ces pics magnétiques, il est possible de déterminer la longueur de cohérence magnétique de la phase hélicoïdale. Cette longueur de cohérence décroît avec la température. Dans le superréseau $Dy_{34\text{Å}}/Er_{23\text{Å}}$, l'hélice se propage sur 600Å environ à 110K et 450Å à 80K.

La propagation de l'ordre hélicoïdal à travers l'erbium est le fait des électrons de conduction. Dans le domaine de température considéré, il ne se manifeste aucun signe d'ordre à longue distance des moments 4f de l'erbium. Le couplage entre moments 4f du dysprosium se fait par la stabilisation d'une onde de densité de spin dans les bandes de conduction du dysprosium et de l'erbium. 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 d'environ 50° . Cette valeur correspond approximativement au maximum de susceptibilité généralisée des électrons de conduction dans l'erbium massif. Cette propagation de l'hélice du dysprosium à travers l'erbium paramagnétique est similaire à celle observée à travers l'yttrium ou le lutécium dans les superréseaux Dy/Y et Dy/Lu.

La longueur de cohérence magnétique de la phase hélicoïdale du dysprosium dépend de l'épaisseur de la couche d'erbium. Dans le superréseau Dy 35\AA /Er 111\AA , la propagation est limitée à environ une couche de dysprosium.

4.2 Ordre antiferromagnétique ou ferromagnétique des couches de dysprosium à basse température.

A partir de 50K, de nouveaux pics notés AF apparaissent sur les spectres de la figure 2. Ces pics correspondent à un arrangement antiparallèle entre couches de dysprosium ferromagnétiques. La longueur de cohérence de cette nouvelle phase antiferromagnétique est de 400\AA à 60K et de 300\AA à 10K.

Une étude sur un ensemble de superréseaux Dy/Er présentant des couches de diverses épaisseurs montre que le dysprosium subit toujours une transition ferromagnétique intracouche à une température légèrement inférieure à la température de Curie du dysprosium massif. Quand l'épaisseur des couches d'erbium est inférieure à 20\AA , les couches de dysprosium se couplent parallèlement entre elles alors que si l'épaisseur des couches d'erbium est supérieure à 20\AA , le couplage entre couches est antiferromagnétique.

L'antiferromagnétisme est détruit de façon irréversible par un champ de quelques kG et laisse la place à un ordre ferromagnétique entre couches. Sous champ nul, la phase hélicoïdale coexiste avec la phase antiferromagnétique jusqu'à basse température. Des mesures d'aimantation montrent que l'irréversibilité de la phase antiferromagnétique pourrait être due à l'existence d'une barrière d'énergie entre les empilements parallèle et antiparallèle de couches ferromagnétiques de dysprosium.

L'origine de l'ordre antiparallèle dans les superréseaux Dy/Er doit être précisé. Ce couplage n'étant pas oscillant, il faut invoquer un mécanisme autre que le couplage RKKY. L'ordre antiparallèle est similaire à celui apparaissant dans les superréseaux Dy/Lu. Toutefois, comme nous le verrons plus loin, les superréseaux Dy/Er ne présentent pas de distorsion orthorhombique et le modèle invoqué pour les superréseaux Dy/Lu (distorsion orthorhombique par colonne et interaction dipolaire entre microdomaines) ne peut leur être appliqué.

Les deux bosses relativement larges situées à $q = 1.97\text{\AA}^{-1}$ et $q = 2.45\text{\AA}^{-1}$ qui apparaissent sur les spectres de la figure 2 en dessous de 50K, révèlent l'ordre hélicoïdal dans le plan de base de l'erbium.

5 TRANSITION FERROMAGNETIQUE DANS LE DYSPROSIUM EPITAXIE

5.1 Paramètres gouvernant la transition ferromagnétique

Si on se place dans la base des modes de déformation hexagonaux, trois déformations indépendantes apparaissent [12] et s'expriment en fonction des déformations définies par rapport aux axes cartésiens:

$\epsilon_{\alpha_1} = \epsilon_{11} + \epsilon_{22} + \epsilon_{33}$ est un mode de dilatation (augmentations simultanées de a, b et c)

$\epsilon_{\alpha_2} = 1/3 (2\epsilon_{33} - \epsilon_{11} - \epsilon_{22})$ est un mode de distorsion cylindrique (augmentation de c et diminution de a)

$\epsilon_{\gamma} = 1/2 (\epsilon_{11} - \epsilon_{22})$ est un mode de distorsion orthorhombique (augmentation de a et diminution de b).

Remarquons que les déformations α sont liées à la variation du paramètre c (ϵ_{33}), contrairement à la déformation γ qui ne s'exprime qu'en fonction de ϵ_{11} et ϵ_{22} .

Dans le dysprosium massif, dans la phase hélicoïdale, les déformations α sont partielles et il n'y a pas de déformation γ (la moyenne de l'énergie magnétoélastique associée au mode γ est nulle). En revanche, en phase ferromagnétique, des déformations α totales et une distorsion γ se produisent.

La transition ferromagnétique n'est pas favorable si seule l'énergie d'échange est considérée; elle se produit lorsque la somme des énergies d'échange et magnétostrictive est plus faible dans l'état ferromagnétique (énergie d'échange ferromagnétique+ énergie associée à la déformation γ + énergie associée aux déformations α totales) que dans l'état hélicoïdal (énergie d'échange hélicoïdale+ énergie associée aux déformations α partielles).

Dans l'erbium, il n'y a pas de distorsion γ . De même que dans le dysprosium, les déformations α sont partielles dans la phase hélicoïdale et totales dans la phase ferromagnétique [13]. La transition

ferromagnétique a lieu lorsque la différence d'énergie entre les déformations α partielles et totales devient supérieure à la différence d'énergie d'échange entre phase modulée et phase ferromagnétique.

L'épitaxie d'un film de terre rare M-RE sur un autre film de terre rare RE' produit plusieurs effets:

i) un effet de "clamping": la déformation qui diminuerait l'énergie magnétoélastique dans M-RE seule induit une distorsion dans RE' et donc une augmentation de l'énergie purement élastique. Cet effet est toujours défavorable à l'apparition de la transition ferromagnétique

ii) un effet de déformation épitaxiale: les déformations α induites par épitaxie dans M-RE peuvent (suivant leur signe) diminuer ou augmenter l'énergie magnétostrictive et, par conséquent, favoriser ou non l'apparition de la phase ferromagnétique. Cet effet doit donc créer une augmentation de température de Curie dans les films de dysprosium épitaxiés sur erbium, et une diminution dans les films de dysprosium épitaxiés sur yttrium.

Il est important de noter que, à cause de la symétrie hexagonale du plan de base des deux terres rares, l'épitaxie n'induit pas de distorsion γ . Par ailleurs, les contraintes épitaxiales peuvent modifier les surfaces de Fermi et donc l'énergie d'échange dans le film épitaxié.

5.2 Variations de température de Curie

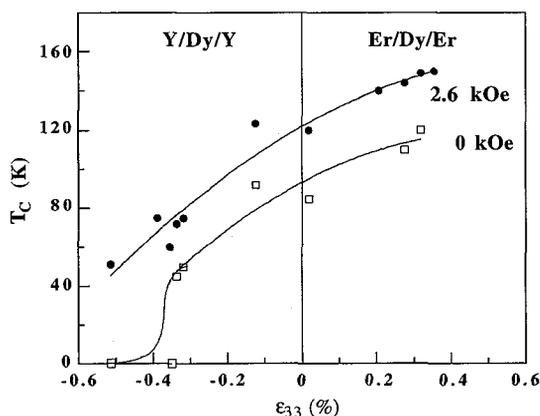


Figure 3: Variation de la température de Curie (valeurs mesurées sous un champ de 2.6kOe et valeurs extrapolées à champ nul), pour un ensemble de films de dysprosium de différentes épaisseurs épitaxiés entre yttrium et entre erbium, en fonction des contraintes épitaxiales ϵ_{33} .

Les valeurs de T_C sous champ sont déterminées directement à partir de l'évolution thermique de l'aimantation sous champ. Les valeurs de T_C sous champ nul sont obtenues par extrapolation à champ nul de la courbe représentant l'évolution thermique du champ critique d'apparition de la phase ferromagnétique et sont confirmées par les résultats des mesures de diffraction de neutrons.

La figure 3 présente l'évolution de la T_C du dysprosium en fonction de la contrainte induite par épitaxie ϵ_{33} (déterminée par diffraction de R-X) pour un ensemble de films de dysprosium épitaxiés entre de l'erbium ou de l'yttrium. Notons que le signe de ϵ_{33} dépend du matériau sur lequel le dysprosium est épitaxié alors que sa valeur absolue est liée à l'épaisseur relative du film de dysprosium. L'épitaxie sur erbium induit dans la couche de dysprosium une déformation de type α_2 analogue à celle qui se produit spontanément à la transition dans le dysprosium massif. Au contraire, l'épitaxie sur yttrium induit une déformation α_2 de signe opposé. Le résultat le plus important visible sur cette courbe est que *la température de Curie du dysprosium augmente continuellement avec la déformation épitaxiale, indépendamment de l'élément sur lequel est épitaxié le dysprosium*. L'évolution n'est cependant pas linéaire: T_C augmente lentement pour les valeurs positives de la contrainte et décroît plus rapidement pour les valeurs négatives. Le fait que la température de Curie augmente ou diminue s'explique par l'état de déformation du dysprosium induit par son épitaxie sur l'erbium ou l'yttrium [14,15].

Dans les superréseaux Dy/Er, de façon tout à fait inattendue, la température de transition ferromagnétique du dysprosium n'est pas augmentée par rapport à celle du dysprosium massif mais légèrement abaissée [11]. Elle est donc très nettement inférieure à celle d'un film de dysprosium épitaxié sur erbium soumis aux mêmes contraintes. Ces valeurs de température de Curie sont en désaccord avec ce qui est attendu de la déformation induite dans le dysprosium par son épitaxie sur l'erbium. Nous allons voir dans les paragraphes suivants que différents phénomènes peuvent expliquer la valeur de la température de Curie du dysprosium dans les superréseaux (augmentation de la différence d'énergie d'échange entre phase hélicoïdale et ferromagnétique et blocage de la distorsion γ).

5.3 Différence d'énergie d'échange entre phases hélicoïdale et ferromagnétique

L'angle de rotation entre moments de dysprosium situés dans deux plans (0001) successifs est lié à la différence entre l'énergie d'échange dans la phase hélicoïdale et l'énergie d'échange dans la phase

ferromagnétique $\Delta E_{\text{éch}}$. En théorie de champ moyen, cette différence est proportionnelle à : $\frac{(1-\cos\omega)^2}{\cos\omega}$

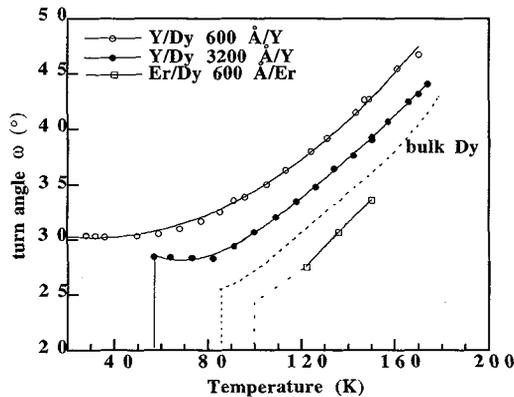


Figure 4: Dépendance thermique de l'angle de rotation entre moments de dysprosium pour trois films de dysprosium: Y/Dy600Å/Y (ronds ouverts), Y/Dy3200Å/Y (ronds pleins) et Er/Dy600Å/Er (carrés ouverts). La ligne pointillée représente l'évolution de ω dans le dysprosium massif.

Afin d'évaluer $\Delta E_{\text{éch}}$, nous avons déterminé l'angle de rotation entre moments de dysprosium ω en fonction de la température. Cet angle est déterminé à partir de la position des satellites dus à la phase hélicoïdale du dysprosium apparaissant dans les spectres de diffraction de neutrons le long de c^* autour de la réflexion (0002). Dans les terres rares à l'état massif, l'angle ω décroît avec la température, ce qui traduit une réduction de la différence d'énergie d'échange, par suite de la variation des intégrales d'échange et de la modification de la surface de Fermi attribuée à la formation de superzones dues à l'ordre magnétique [16].

5.3.1 Tricouches Y/Dy/Y et Er/Dy/Er

Comme dans le matériau massif, l'angle de rotation dans les films de dysprosium épitaxiés diminue avec la température (figure 4) [14]. Le point important est que *dans les films de dysprosium épitaxiés sur yttrium, l'angle de rotation est toujours supérieur à l'angle de rotation dans le matériau massif; au contraire, dans les films de dysprosium épitaxiés sur erbium, il est toujours inférieur.* Il faut souligner que ces effets apparaissent dès la température d'ordre, température pour laquelle l'ordre magnétique est faible et les effets magnétoélastiques négligeables. Cela signifie que *la différence d'énergie d'échange entre phase hélicoïdale et phase ferromagnétique est modifiée non seulement par la modification des superzones et par l'apparition de termes magnétostrictifs mais aussi par les déformations épitaxiales.*

La diminution (respectivement l'augmentation) d'angle de rotation entre moments de dysprosium dans les tricouches Er/Dy/Er (respectivement dans les tricouches Y/Dy/Y) implique une diminution (respectivement une augmentation) de $\Delta E_{\text{éch}}$.

5.3.2 Angle de rotation entre les spins de dysprosium dans les superréseaux Dy/Er

L'angle de rotation entre moments de dysprosium est toujours supérieur à celui observé dans le dysprosium massif [11]. Cet effet est opposé à celui observé sur les films de dysprosium épitaxiés sur erbium. L'état de déformation induit par l'erbium dans le dysprosium n'est donc plus la seule raison de la modification de l'échange: en effet, la périodicité du superréseau provoque aussi des modifications de la surface de Fermi du dysprosium et donc de la différence d'énergie d'échange. Les valeurs de ω dans les superréseaux, supérieures à celles de ω dans le dysprosium massif indiquent une augmentation de l'énergie d'échange dans la phase ferromagnétique par rapport à l'énergie d'échange dans la phase hélicoïdale et peuvent donc expliquer pourquoi la température de Curie n'est pas augmentée dans les superréseaux Dy/Er, alors qu'elle l'est dans les tricouches Er/Dy/Er.

5.4 Déformations magnétostrictives dans le dysprosium

Afin d'étudier les déformations dans les films de dysprosium et les superréseaux, nous avons effectué deux types d'expérience de diffraction de neutrons: des expériences correspondant à l'exploration de réseau réciproque le long de la direction c^* autour de la réflexion (0002) (que nous avons déjà exploitées dans les paragraphes précédents) et des expériences correspondant à l'exploration de réseau réciproque le long de la direction a^* autour de la réflexion (10 $\bar{1}$ 0). Les premières mesures renseignent sur les déformations de type α (mesure du paramètre c) alors que les secondes renseignent sur la déformation γ (mesure du paramètre b).

5.4.1 Tricouches Y/Dy/Y et Er/Dy/Er

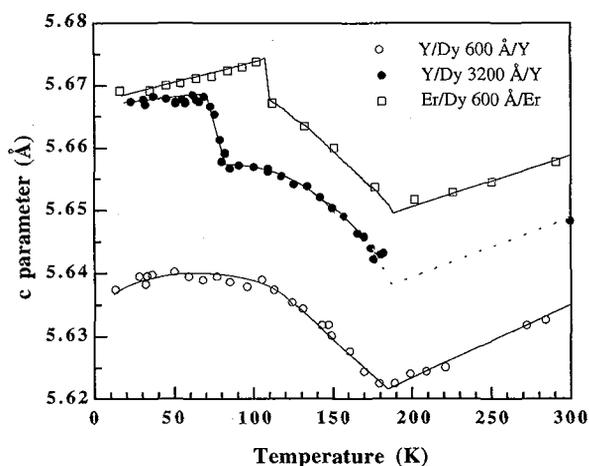


Figure 5: Évolution thermique du paramètre c de trois films de dysprosium: Y/Dy600Å/Y (ronds vides), Y/Dy3200Å/Y (ronds noirs) et Er/Dy600Å/Er (carrés vides).

Au-dessus de la température de Néel (179K), les paramètres c des films de dysprosium (figure 5) présentent la contraction thermique habituelle quand la température diminue [14].

Au-dessous de cette température, les paramètres c augmentent continûment. Cette augmentation est liée à la modification des déformations α dans la phase hélicoïdale. Pour les deux échantillons Y/Dy3200Å/Y et Er/Dy600Å/Er, un saut de paramètre se produit à la température de Curie, ce qui correspond à une augmentation brusque des déformations α comme dans l'élément massif. La contribution des déformations α est plus faible dans le film Er/Dy600Å/Er que dans le film Y/Dy3200Å/Y. Pour le film Y/Dy600Å/Y,

pour lequel aucune température de Curie n'est observée sous champ nul, aucun saut de paramètre n'est visible.

Afin d'étudier la distorsion γ , nous présentons sur la figure 6 des expériences de diffraction de neutrons correspondant à l'exploration de réseau réciproque le long de la direction \mathbf{a}^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour un film de 600\AA de dysprosium épitaxié sur erbium.

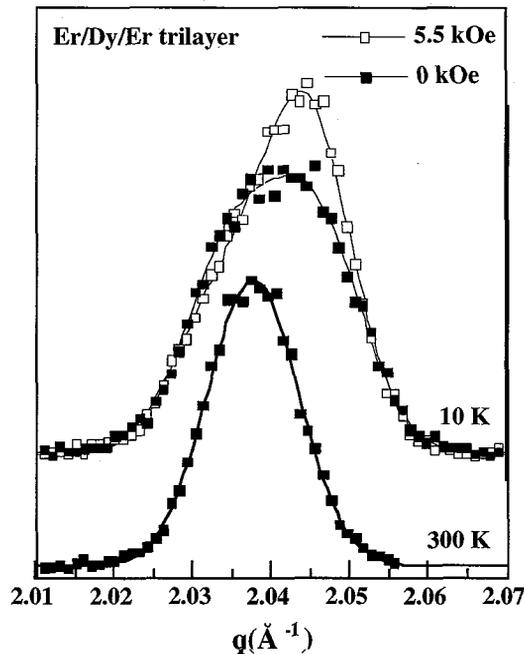


Figure 6: Spectre de diffraction de neutrons le long de la direction \mathbf{a}^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour un film de 600\AA de dysprosium épitaxié sur erbium à 10 K et 300 K sous champ nul (carrés noirs), sous un champ de 5.5 kOe (carrés vides).

A la température ambiante, le spectre montre un unique pic dont la largeur à mi-hauteur correspond à la résolution instrumentale. Cela démontre que le paramètre b est le même pour les deux terres rares épitaxiées. Cela confirme la qualité de l'épitaxie. Sous champ nul, il n'y a aucune évolution de pic jusqu'à 110 K; il n'y a donc pas de distorsion γ au-dessus de T_C .

Le pic devient de plus en plus large en-dessous de 110 K. A 10 K, il peut être ajusté par deux gaussiennes ayant chacune la largeur instrumentale. Ces deux pics sont caractéristiques de l'existence de deux paramètres b .

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. Cette interprétation est confirmée par l'évolution des spectres sous champ (Figure 6). Le champ magnétique vertical favorise un type de domaines, ce qui conduit à une diminution de l'intensité du pic situé à plus faible q et une augmentation de l'intensité du pic situé à plus grand q .

Donc, malgré l'effet de "clamping", une distorsion γ est observée dans les films de dysprosium épitaxiés. Mais contrairement à ce qui se produit dans le dysprosium massif, cette distorsion est *progressive*. Elle n'est pas complète à la température de Curie et se poursuit avec l'abaissement de la température.

5.4.2 Superréseaux Dy/Er

Dans les superréseaux Dy/Er, les évolutions thermiques du paramètre c montrent que les couches de dysprosium deviennent ferromagnétiques pour une température de Curie inférieure à celle du massif sans provoquer d'expansion discontinue du paramètre c . Il semble donc que les couches de dysprosium deviennent ferromagnétiques de manière progressive [11]. Cela peut être lié au fait que l'on observe une persistance de la phase hélicoïdale jusqu'à basse température. Dans le cas des superréseaux, les

déformations α sont en fait difficiles à interpréter puisqu'on observe à la fois celles de l'erbium et celles du dysprosium.

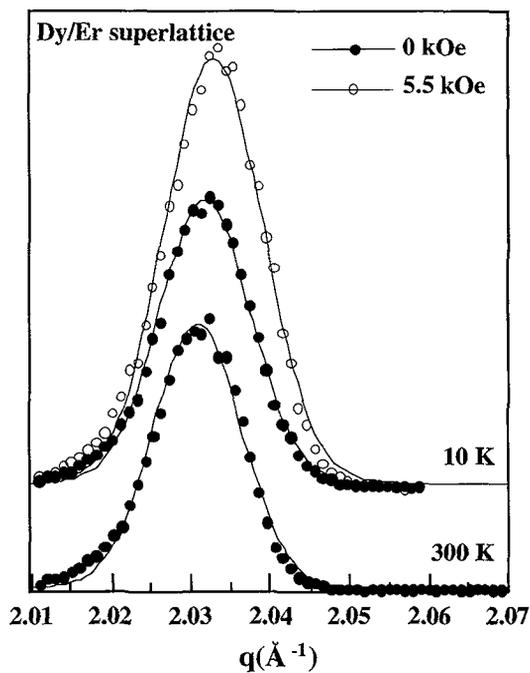


Figure 7: Spectre de diffraction de neutrons le long de la direction \mathbf{a}^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ pour un superréseau Dy60Å/Er60Å à 10K et 300K sous champ nul (ronds noirs) et sous un champ de 5.5kOe (ronds vides).

Pour les superréseaux, les spectres de diffraction le long de la direction \mathbf{a}^* autour de la réflexion $(10\bar{1}0)$ présentent un pic unique ayant une largeur proche de la résolution instrumentale à toute température (figure 7). La position de ce pic unique n'évolue pas avec la température.

La distorsion γ apparaît donc comme bloquée dans les superréseaux Dy/Er. Ce résultat est différent mais ne s'oppose pas aux observations effectuées dans les superréseaux Dy/Lu.

L'application d'un champ magnétique a pour principal effet d'augmenter l'intensité du pic, ce qui est dû au fait que l'arrangement antiferromagnétique est remplacé par un ordre ferromagnétique à longue distance.

6 CONCLUSION

La diffraction de neutrons est un outil puissant pour l'investigation des propriétés magnétiques des superréseaux et films épitaxiés à base de terres rares: elle permet de mettre en évidence les phases magnétiques et d'étudier leur cohérence; elle apporte aussi des informations fondamentales sur les modifications des énergies induites par l'épitaxie et la superpériodicité à la transition hélicoïdale-ferromagnétique.

Dans les superréseaux Dy/Er, dans la gamme de température où l'erbium est paramagnétique et le dysprosium en phase hélicoïdale, l'hélice du dysprosium se propage à travers les couches d'erbium si l'épaisseur d'erbium est inférieure à 100Å. La longueur de cohérence magnétique de cette phase hélicoïdale est de plusieurs centaines d'angströms. A basse température, le dysprosium devient ferromagnétique avec un couplage antiferromagnétique entre les couches.

Nous avons mis en évidence des effets spectaculaires de déplacement de température de Curie dans les tricouches Y/Dy/Y et Er/Dy/Er et les superréseaux Dy/Er. Ces effets peuvent être qualitativement expliqués.

Dans les films de dysprosium épitaxiés, la distorsion γ est systématiquement moins favorable à la transition ferromagnétique que dans le dysprosium massif. La distorsion α devient, selon l'état de contrainte initial, plus favorable (épitaxie sur erbium) ou moins favorable (épitaxie sur yttrium). D'autre part, dans les films épitaxiés sur erbium, la diminution de la différence d'énergie d'échange favorise la transition

ferromagnétique alors que, dans les films épitaxiés sur yttrium, l'augmentation de la différence d'énergie d'échange défavorise cette transition. Dans les superréseaux, le blocage de la distorsion γ est un facteur important de la réduction de T_C du dysprosium. Cet effet vient s'ajouter à l'augmentation de la différence d'énergie d'échange entre phase hélicoïdale et phase ferromagnétique. Des mesures de diffractions X magnétique au seuil du dysprosium devraient prochainement apporter des informations supplémentaires.

Références

- [1] R.J. Elliott, *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*, (Plenum Publishing, London, 1972)
 B. Coqblin, *The electronic structure of the rare earth metals and alloys : the magnetic heavy rare earth*, (Academic Press, London, 1977)
 K.A. Gschneider, and L. Eyring, *Handbook of the Physics and Chemistry of the rare earths*, (North Holland Publishing, 1988)
 J. Jensen, and A.R. Mackintosh, *Rare Earth Magnetism, Structure and Excitations*, (Oxford University Press, Oxford, U.K., 1991)
- [2] Lindgard P.A., *Phys Rev.* **17** (1978) 2348.
 [3] Majkrzak C.F., Cable J.W., Kwo J., Hong M., McWhan D.B., Yafet Y., Waszczak J.V., Vettier C., *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 2700.
 Kwo J., Hong M., DiSalvo F.J., Waszczak J.V., Majkrzak C.F., *Phys. Rev. B* **35** (1987) 7295.
 [4] Borchers J.A., Salamon M.B., Erwin R.W., Rhyne J.J., Nieuwenhuys G.J., Du R.R., Flynn C.P., Beach R.S., *Phys. Rev. B* **44** (1991) 11814.
 Borchers J.A., Salamon M.B., Erwin R.W., Rhyne J.J., Du R.R., Flynn C.P., *Phys. Rev. B* **43** (1991) 3123.
 [5] Salamon M.B., Sinha S., Rhyne J.J., Cunningham J.E., Erwin R.W., Borchers J., Flynn C.P., *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 259 .
 Rhyne J.J., Erwin R.W., Borchers J., Sinha S., Salamon M.B., Du R., Flynn C.P., *J. Appl. Phys.* **61** (1987) 4043.
 [6] Beach R.S., Borchers J.A., Matheny A., Erwin R.W., Salamon M.B., Everitt B., Pettit K., Rhyne J.J., Flynn C.P., *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993) 3502.
 Beach R.S., Matheny A., M.B. Salamon, Flynn C.P., Borchers J.A., Erwin R.W., Rhyne J.J., *J. Appl. Phys.* **73** (1993) 6901.
 Tsui F., Flynn C.P., *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993) 1462.
 [7] Jehan D.A., Mc Morrow D.F., Cowley R.A., Ward R.C.C., Wells M.R., Hagmann N., Clausen K.N., *Phys. Rev. B* **48** (1993) 5594.
 Mc Morrow D.F., Jehan D.A., Cowley R.A., Waddling P.P.S., Ward R.C.C., Wells M.R., Hagmann N., Clausen K.N., *Europhys. Lett.* **23** (1993) 523.
 [8] Behrendt D.R., Legvold S., Spedding F.H., *Phys. Rev.* **109** (1958) 1544 .
 Wilkinson M.K., Koehler W.C., Wollan E.O., Cable J.W., *J. Appl. Phys.* **32** (1961) 48S .
 Darnell F.J., *Phys. Rev.* **130** (1963) 1825.
 [9] Kwo J., Hong M., Nakahara S., *Appl. Phys. Lett.* **49** (1986) 319.
 [10] Erwin R.W., Rhyne J.J., Salamon M.B., Borchers J., Sinha S., Du R., Cunningham J.E., Flynn C.P., *Phys. Rev. B* **35** (1987) 6808.
 [11] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, G. Marchal et M. Hennion, accepté pour publication dans *Phys. Rev. B* (1996).
 [12] Callen H.B., Callen E., *Phys. Rev.* **139** (1965) A455.
 Cooper B.R., *Phys. Rev. Lett.* **19** (1967) 900.
 Evenson W.E., Liu S.H., *Phys. Rev.* **178** (1969) 783.
 [13] Rosen M., Kalir D., Klimker H., *Phys. Rev. B* **8** (1973) 4399.
 [14] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, G. Marchal et M. Hennion, *Europhys. Lett.* **31**,43 (1995).
 [15] K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, et G. Marchal, *Phys. Rev. B* **53**, 11 218 (1996).
 [16] Elliott R.J., Wedgwood F.A., *Proc. Phys. Soc. (London)* **81** (1963) 846.