



HAL
open science

Comportement non linéaire de l'aimantation de FeCl_2 , FeBr_2 et FeI_2 en champ perpendiculaire à l'axe d'anisotropie

J. Gelard, P. Carrara, A.R. Fert

► **To cite this version:**

J. Gelard, P. Carrara, A.R. Fert. Comportement non linéaire de l'aimantation de FeCl_2 , FeBr_2 et FeI_2 en champ perpendiculaire à l'axe d'anisotropie. *Journal de Physique*, 1974, 35 (2), pp.163-169. 10.1051/jphys:01974003502016300 . jpa-00208140

HAL Id: jpa-00208140

<https://hal.science/jpa-00208140>

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.

Classification
 Physics Abstracts
 8.544 — 8.550

COMPORTEMENT NON LINÉAIRE DE L'AIMANTATION DE FeCl_2 , FeBr_2 ET FeI_2 EN CHAMP PERPENDICULAIRE A L'AXE D'ANISOTROPIE

J. GELARD, P. CARRARA, A. R. FERT et le groupe champ pulsé du SPSRM de Saclay (*)

Laboratoire de Physique des Solides (**), Institut National des Sciences Appliquées,
 Avenue de Ranguel, 31077 Toulouse Cedex, France

(Reçu le 16 juillet 1973, révisé le 5 octobre 1973)

Résumé. — Nous présentons, pour les halogénures ferreux FeCl_2 , FeBr_2 , FeI_2 , les isothermes d'aimantation obtenues, à basse température, en champ magnétique perpendiculaire (champ statique et champ pulsé). Ces résultats expérimentaux mettent en évidence un écart à la loi linéaire d'aimantation. Nous donnons une interprétation naturelle de nos résultats par le traitement rigoureux d'un modèle théorique où l'on considère une assemblée d'ions triplets caractérisés par une anisotropie uniaxiale dont l'amplitude D est du même ordre de grandeur que les interactions d'échange, ferromagnétiques dans le plan (J_1) et antiferromagnétiques entre plans (J_2) (approximation du champ moléculaire). Cette étude théorique permet d'évaluer l'écart à la loi linéaire pour toute valeur de D , J_1 et J_2 et montre le rôle fondamental joué par l'anisotropie. Ce modèle théorique donne une explication plus satisfaisante des résultats obtenus pour FeCl_2 , FeBr_2 et FeI_2 que ceux donnés par les modèles précédents.

Abstract. — We present, for ferrous halogenides, FeCl_2 , FeBr_2 , FeI_2 , the magnetization isotherms obtained, at low temperature, in a perpendicular magnetic field (static and pulsed fields). These experimental results show a divergence from the linear magnetization law. We give a natural interpretation of our results by using a rigorous treatment of a theoretical model in which we consider an assembly of triplet ions with a single ion uniaxial anisotropy, the magnitude of which is of the same order as the intralayer ferromagnetic exchange interaction (J_1) and the intralayer antiferromagnetic one (J_2) (molecular field-approximation). This study allows us to calculate the divergence from the linear law for all values of D , J_1 and J_2 and shows the fundamental role played by the anisotropy. The theoretical model gives a more satisfactory explanation of the experimental results obtained for FeCl_2 , FeBr_2 and FeI_2 than given by previous models.

La structure cristalline des halogénures ferreux (FeCl_2 , FeBr_2 et FeI_2) est formée d'un empilement de plans d'ions Fe^{++} séparés par deux plans d'ions halogènes. L'ordre magnétique à basse température [$T_N(\text{FeCl}_2) = 24,8$ K [1], [2] $T_N(\text{FeBr}_2) = 14,2$ K [3] et $T_N(\text{FeI}_2) = 9,3$ K [4]] est de type antiferromagnétique à deux sous-réseaux α et β ; les aimantations sont parallèles à l'axe d'anisotropie (axe Oz). Pour FeI_2 , bien que sa structure magnétique soit différente [4], le comportement en champ magnétique perpendiculaire est de même nature que pour FeCl_2 et FeBr_2 et sera traité dans le même cadre.

Les composés FeCl_2 , FeBr_2 , FeI_2 sont caractérisés par des couplages d'échange magnétiques J_1 dans

le plan et J_2 entre plans. Des études récentes ont montré que si FeCl_2 [2], [5] est caractérisé par $J_1/J_2 \neq -8$ et FeBr_2 [6], [7] par $J_1/J_2 \neq -1$ (les couplages dans le plan sont ferromagnétiques alors qu'entre plans, ils sont antiferromagnétiques ($J_1 > 0$, $J_2 < 0$), par contre FeI_2 est caractérisé par :

$$\frac{J_1}{J_2} \neq 0,5 \quad \text{avec} \quad J_1 \quad \text{et} \quad J_2 < 0.$$

D'autre part, l'énergie d'anisotropie cristalline de chaque ion est de même ordre de grandeur que les énergies d'interaction magnétique.

A basse température dans un champ magnétique perpendiculaire à l'axe Oz, on observe par raison de symétrie, une structure de type spin-flop (SF) caractérisée par les valeurs suivantes des aimantations réduites des sous-réseaux α et β :

$$\langle j_z^\alpha \rangle = - \langle j_z^\beta \rangle, \quad \langle j_x^\alpha \rangle = \langle j_x^\beta \rangle.$$

(*) Y. Allain, J. Denis, A. Miedan-Gros, SPSRM Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, Gif-sur-Yvette (France).

(**) Associé au CNRS.

Pour un champ suffisamment fort, le système de spins effectue sans discontinuité d'aimantation, une transition de la phase SF à une phase paramagnétique (P) caractérisée par :

$$\langle j_z^a \rangle = \langle j_z^b \rangle = 0, \quad \langle j_x^a \rangle = \langle j_x^b \rangle.$$

A basse température, l'aimantation transverse en phase SF varie, en général, linéairement avec le champ magnétique appliqué, résultat prévu par un calcul classique de minimisation de l'énergie totale.

Cependant, l'étude expérimentale des halogénures ferreux (FeCl_2 , FeBr_2 , FeI_2) montre que l'aimantation transverse n'est pas fonction linéaire du champ magnétique appliqué et que la transition de la phase SF à la phase P a lieu pour une valeur du champ sensiblement plus faible que celle prévue par le modèle classique. Plusieurs auteurs Jacobs [8], Rodbell [9], Busch [10] et Allain [11] ont également observé des comportements semblables sur d'autres composés antiferromagnétiques.

Nous allons donner les résultats expérimentaux obtenus avec FeCl_2 , FeBr_2 et FeI_2 et examiner les interprétations théoriques proposées par différents auteurs et susceptibles d'expliquer le comportement expérimental observé : déviation de zéro de l'aimantation d'un antiferromagnétique, couplage magnéto-élastique et interaction d'échange biquadratique. Nous développerons ensuite une étude théorique complète suivant le modèle proposé par Carrara [5] et [12].

Dans ce modèle, on considère une assemblée de spins ($j = 1$) et l'on traite simultanément l'hamiltonien de champ moléculaire, le potentiel cristallin axial et le terme Zeeman dans le champ magnétique perpendiculaire à l'axe d'anisotropie.

Cependant Carrara n'avait développé les calculs que dans la limite des champs faibles et également au voisinage de la transition de phase. Il supposait d'autre part, que les énergies d'anisotropie cristalline et d'échange antiferromagnétique étaient très inférieures à l'énergie d'échange ferromagnétique.

Nous avons procédé à une analyse numérique du problème pour toute valeur du champ magnétique et pour des valeurs quelconques des paramètres J_1 , J_2 et D caractéristiques des interactions magnétiques et de l'anisotropie cristalline. Cette étude fait apparaître le rôle essentiel joué par cette anisotropie et permet d'expliquer les comportements expérimentaux différents des aimantations perpendiculaires des halogénures ferreux étudiés.

1. Résultats expérimentaux. — L'étude expérimentale du comportement de l'aimantation transverse a été effectuée jusqu'à 300 kOe en champ pulsé. (On trouvera référence [13], les caractéristiques de l'appareillage utilisé.) Toutefois, pour des champs inférieurs à 60 kOe, ce comportement a été déterminé de manière plus précise au moyen d'un champ statique créé par une bobine supraconductrice.

1.1 BROMURE FERREUX. — **1.1.1 Champ statique.** — L'échantillon utilisé est un cylindre plat d'axe c , de masse $m = 510 \pm 2$ mg.

Les caractéristiques principales de notre dispositif de mesure de l'aimantation sont données ailleurs [14].

La figure 1 montre la loi de variation de l'aimantation avec le champ appliqué pour $T = 1$ K et $H < 60$ kOe. La susceptibilité perpendiculaire initiale est égale à :

$$\chi_{\perp}^M(0) = 0,135 \text{ C. G. S. mole}^{-1}.$$

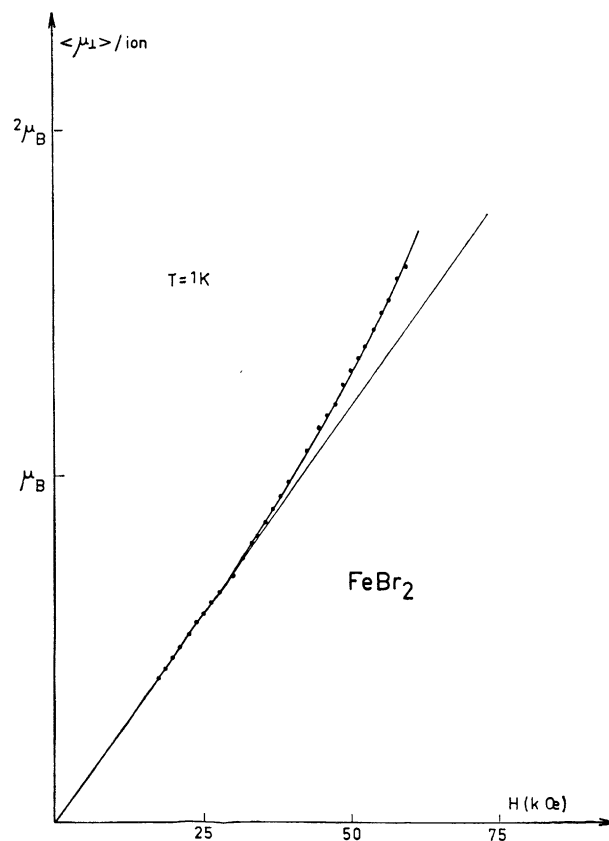


FIG. 1. — Ecart à la loi linéaire d'aimantation pour FeBr_2 (champ statique).

1.1.2 Champ pulsé. — Le diamètre intérieur du solénoïde étant de 5 mm, l'échantillon utilisé est petit ($m \approx 10$ mg). L'étalonnage en champ du solénoïde a été réalisé préalablement à l'aide de ZnCr_2Se_4 qui est saturé à 4,2 K pour un champ de 63 kOe, tandis que l'étalonnage en aimantation a été réalisé à partir d'un échantillon de MnFe_2O_4 [13].

La figure 2 montre l'isotherme d'aimantation 4,2 K. L'écart à la loi linéaire croît avec le champ appliqué jusqu'à 85 kOe. Cet écart est alors maximum et correspond à

$$\frac{\Delta M_{\perp}}{M_{\perp}} = 30 \%$$

D'autre part, l'extrapolation de la loi linéaire conduirait à un champ de transition de la phase SF à la phase paramagnétique de 125 kOe alors que

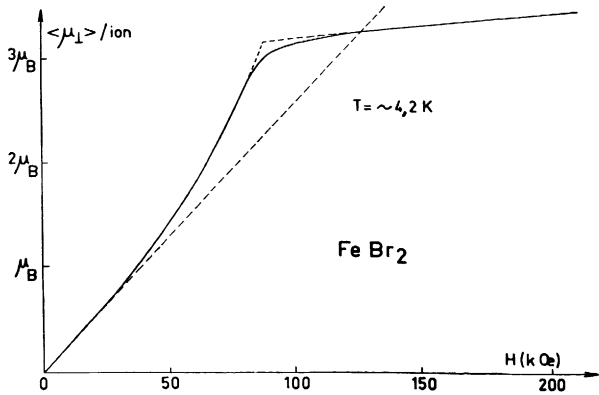


FIG. 2. — Variation de l'aimantation perpendiculaire en fonction du champ appliqué (champ pulsé).

l'expérience donne la valeur de 85 kOe. La figure 3 montre l'évolution thermique du phénomène.

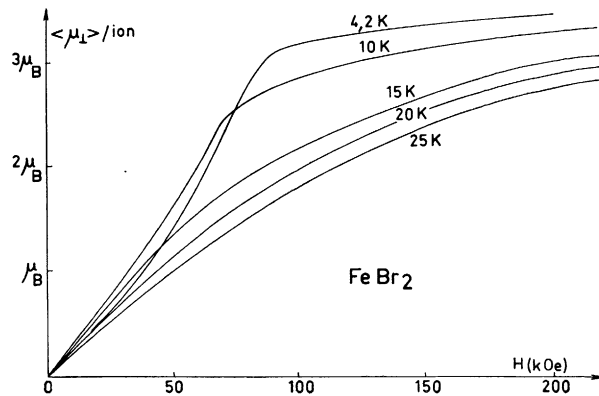


FIG. 3. — Variation de l'aimantation perpendiculaire en champ pulsé pour diverses valeurs de températures.

1.2 CHLORURE FERREUX. — Nous rappelons figures 4 et 5 les résultats expérimentaux obtenus par Carrara [5].

En champ statique, nous avons déterminé la susceptibilité perpendiculaire initiale à zéro degré :

$$\chi_{\perp}^M(0) = 0,145 \text{ C. G. S. mole}^{-1} .$$

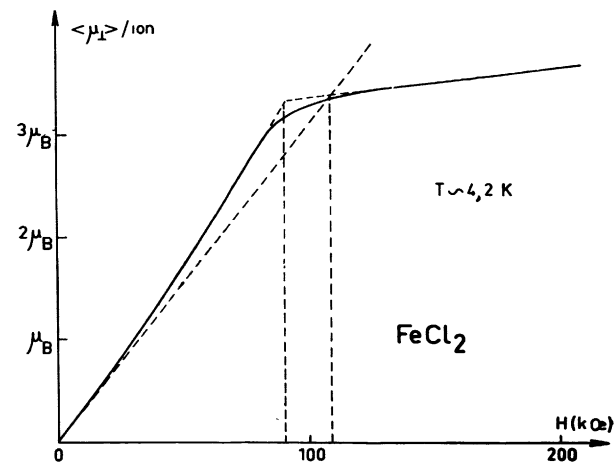


FIG. 4. — Aimantation perpendiculaire de FeCl₂ à 4,2 K (champ pulsé).

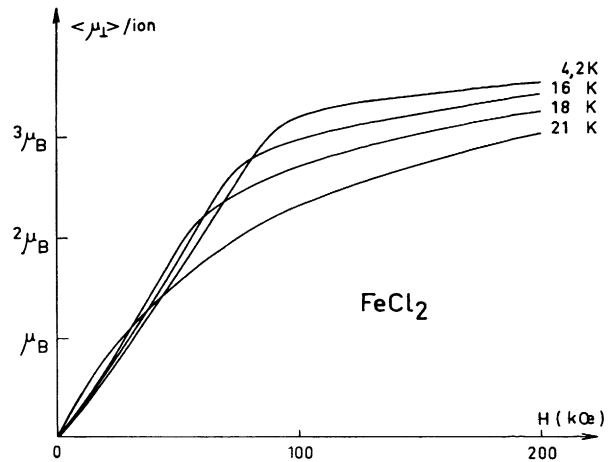


FIG. 5. — Variation de l'aimantation perpendiculaire en champ pulsé pour diverses valeurs de températures.

1.3 IODURE FERREUX. — L'échantillon de masse 33 mg est placé dans un récipient en téflon car FeI₂ est très hygroscopique.

La figure 6 montre les isothermes d'aimantation perpendiculaire les plus caractéristiques obtenues en champ pulsé.

Soulignons la valeur importante du champ de transition de la phase spin-flop à la phase paramagnétique à 2 K :

$$H_c = 200 \text{ kOe} .$$

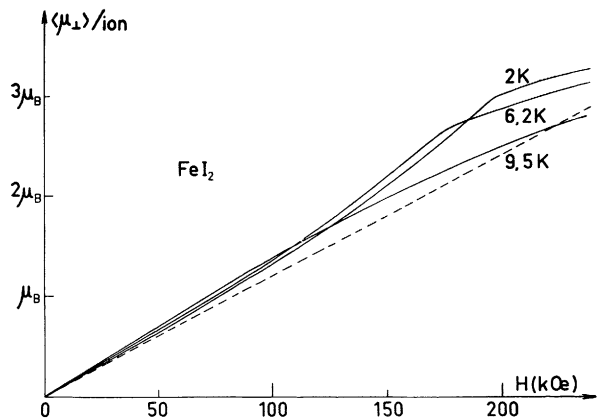


FIG. 6. — Aimantation perpendiculaire de FeI₂ en champ pulsé pour diverses valeurs de températures.

1.4 ORIGINES POSSIBLES DE L'ÉCART A LA LOI D'AIMANTATION LINÉAIRE. — Nous allons examiner les diverses interprétations théoriques susceptibles d'expliquer le comportement non linéaire de l'aimantation transverse des halogénures ferreux (FeCl₂, FeBr₂, FeI₂) et plus généralement des antiferromagnétiques à deux sous-réseaux. Par la suite, nous verrons que si l'on considère notre modèle de spins caractérisés par un triplet isotrope et une énergie d'anisotropie cristalline axiale comparable aux énergies d'interaction d'échange, on est amené à une interprétation naturelle du phénomène.

Jacobs [8] attribue le comportement non linéaire à zéro degré des composés antiferromagnétiques EuTe et CoCl₂ (comportement analogue à celui de FeCl₂ et FeBr₂) à la déviation de zéro de l'aimantation d'un antiferromagnétique.

Toutefois, les études expérimentales en RMN montrent que les déviations de zéro sont généralement faibles (Jones [15], Montgomery [16]), exception faite des antiferromagnétiques à deux dimensions (Folen [17], Lines [18]). Ces faibles déviations de zéro ne sauraient expliquer les écarts à la loi linéaire que nous avons observés.

Soulignons d'autre part, qu'une anisotropie cristalline réduit la déviation de zéro et par suite l'écart à la loi d'aimantation linéaire. De plus, l'effet de l'anisotropie sur la loi d'aimantation perpendiculaire est de sens opposé à celui que nous observons.

Une autre origine possible du comportement non linéaire de l'aimantation transverse est la présence de couplages magnétocristallins [9]. Cette hypothèse conduit à un terme biquadratique dans l'hamiltonien d'échange du système (Kittel [19]). L'aimantation transverse suit alors une loi de variation avec le champ appliqué de même type que celle que nous obtiendrons dans notre modèle théorique :

$$m = aH + bH^3 .$$

L'existence de couplages magnéto-cristallins (*) [20] dans nos composés ne saurait être mise en doute. Cependant, nous allons montrer que notre modèle théorique n'utilisant pas de terme d'interaction biquadratique conduit de manière naturelle à un écart à la loi de variation linéaire comparable à celui observé expérimentalement. De plus, l'évolution de l'amplitude de cet écart avec les paramètres D , J_1 et J_2 caractéristiques de l'anisotropie et des interactions d'échange, trouve une illustration expérimentale excellente dans l'étude comparée des halogénures ferreux.

2. Etude théorique, à zéro degré, de l'aimantation en champ magnétique perpendiculaire faible. — Certains travaux [24], [5] montrent la validité d'un modèle d'ions caractérisés par un triplet $j = 1$ avec une anisotropie axiale pour décrire le comportement magnétique des halogénures ferreux.

A l'intérieur du triplet, nous avons défini les équivalences opératorielle suivantes :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu} &= g\mu_B \mathbf{j}, & g &= \frac{7}{2} \\ \mathbf{S} &= g' \mathbf{j}, & g' &= \frac{3}{2} \end{aligned}$$

donnant le moment magnétique et le spin de chaque ion à partir du spin fictif \mathbf{j} ($j = 1$).

En l'absence de champ magnétique, l'hamiltonien de champ moléculaire d'un ion du réseau α s'écrit :

$$\mathcal{H}_0^\alpha = -D(j_z^2 - \frac{2}{3}) - (J_1 \langle j_z^\alpha \rangle + J_2 \langle j_z^\beta \rangle) j_z^\alpha .$$

A zéro degré, on observe un ordre antiferromagnétique

$$\langle j_z^\alpha \rangle = - \langle j_z^\beta \rangle = 1)$$

le triplet d'un ion étant séparé en sous-niveaux d'énergies :

$$E_{-1} = -\frac{D}{3} + (J_1 - J_2)$$

$$E_0 = \frac{2}{3} D$$

$$E_1 = -\frac{D}{3} - (J_1 - J_2), \quad \text{fondamental .}$$

L'application d'un champ magnétique perpendiculaire de faible amplitude H_e , introduit une perturbation caractérisée par l'hamiltonien de champ moléculaire :

$$\mathcal{H}^\alpha = -H_x^m j_x^\alpha - H_z^m j_z^\alpha$$

avec :

$$H_x^m = (J_1 + J_2) \langle j_x^\alpha \rangle + g\mu_B H_e$$

$$H_z^m = (J_1 - J_2) [\langle j_z^\alpha \rangle - 1] .$$

(Par raison de symétrie $\langle j_x^\beta \rangle = \langle j_x^\alpha \rangle$.)

La perturbation introduit sur l'énergie du fondamental une correction E , d'où l'on déduit les aimantations parallèle $\langle j_z \rangle$ et perpendiculaire $\langle j_x \rangle$ à l'aide des équations self-consistantes :

$$\begin{aligned} \langle j_x \rangle &= -\frac{\partial E}{\partial H_x^m} = \frac{1}{D+B} H_x^m - \\ &\quad - \frac{1}{(D+B)^2} H_z^m H_x^m - \frac{B-D}{2B(D+B)^3} H_x^{m3} \end{aligned}$$

$$\langle j_z \rangle = -\frac{\partial E}{\partial H_z^m} = 1 - \frac{1}{2(D+B)^2} H_x^{m2}$$

$$\text{avec } B = J_1 - J_2 .$$

La résolution de ce système montre que l'aimantation résultante par ion dans la direction du champ magnétique perpendiculaire H_e se met sous la forme :

$$\langle \mu_x \rangle = g\mu_B \langle j_x \rangle = \chi_\perp H_e + \nu H_e^3$$

avec :

$$\chi_\perp = \frac{(g\mu_B)^2}{D - 2J_2}$$

et

$$\nu = (g\mu_B)^4 \frac{D^2}{2(J_1 - J_2)(D - 2J_2)^4} .$$

On retrouve pour $\chi_\perp(0)$ l'expression habituelle obtenue en champ moléculaire lorsque l'on tient compte de l'anisotropie.

3. Etude théorique, à zéro degré, de l'aimantation en champ magnétique perpendiculaire d'amplitude quelconque. — Dans le cas d'un champ magnétique fort, il n'est pas possible d'utiliser un calcul de perturbations.

(*) KLEINBERGER, R., Communication privée.

On doit alors diagonaliser l'hamiltonien suivant dans le triplet fondamental :

$$\mathcal{H}^{\alpha} = -D(j_z^{\alpha} - \frac{2}{3}) - B \langle j_z^{\alpha} \rangle j_z^{\alpha} - [A \langle j_x^{\alpha} \rangle + g\mu_B H_e] j_x^{\alpha}$$

$$(A = J_1 + J_2, \quad B = J_1 - J_2).$$

Introduisant les paramètres réduits :

$$\mathcal{H}'^{\alpha} = \frac{3}{D} \mathcal{H}^{\alpha}, \quad b = \frac{3}{D} B,$$

$$a = \frac{3}{D} A, \quad h = \frac{3}{D} g\mu_B H_e$$

et les champs effectifs h_z^m et h_x^m :

$$h_z^m = b \langle j_z^{\alpha} \rangle$$

$$h_x^m = a \langle j_x^{\alpha} \rangle + h$$

on obtient l'hamiltonien réduit total d'un ion α en champ perpendiculaire :

$$\mathcal{H}'^{\alpha} = - (3 j_z^{\alpha} - 2) - h_z^m j_z^{\alpha} - h_x^m j_x^{\alpha}.$$

Le problème consiste à rechercher dans la représentation $\{j, j_z\}$ l'état propre de plus basse énergie de l'hamiltonien \mathcal{H}'^{α} et à déterminer les valeurs moyennes des paramètres $\langle j_z^{\alpha} \rangle$ et $\langle j_x^{\alpha} \rangle$ dans cet état. L'aimantation résultante par ion dans la direction du champ perpendiculaire est alors

$$\langle \mu_x \rangle = g\mu_B \langle j_x^{\alpha} \rangle.$$

On note ε et $|\varepsilon\rangle$, les valeurs propres et vecteurs propres de l'hamiltonien \mathcal{H}'^{α} . α, β, γ désignant les composantes de $|\varepsilon\rangle$ dans la base $\{|m\rangle\}$. Le fondamental $|\varepsilon\rangle$ s'écrit :

$$|\varepsilon\rangle = \alpha_- |1\rangle + \beta_- |0\rangle + \gamma_- |-1\rangle$$

où les expressions de α_-, β_- et γ_- sont données par :

$$\frac{\alpha_-}{\beta_-} = - \frac{h_x^m}{\sqrt{2(\varepsilon_- + 1 + h_z^m)}};$$

$$\frac{\gamma_-}{\beta_-} = - \frac{h_x^m}{\sqrt{2(\varepsilon_- + 1 - h_z^m)}}$$

et où ε_- est la plus petite racine de l'équation du 3^e degré :

$$-\varepsilon^3 + \varepsilon(3 + h_x^2 + h_z^2) + 2 + h_x^2 - 2h_z^2 = 0.$$

3.1 PHASE SPIN-FLOP. — Les deux équations de cohérence permettant le calcul de $\langle j_z^{\alpha} \rangle$ et $\langle j_x^{\alpha} \rangle$ sont données par :

$$\langle j_x^{\alpha} \rangle = \langle \varepsilon_- | j_x^{\alpha} | \varepsilon_- \rangle = \sqrt{2} \beta_- (\alpha_- + \gamma_-)$$

$$\langle j_z^{\alpha} \rangle = \langle \varepsilon_- | j_z^{\alpha} | \varepsilon_- \rangle = \alpha_-^2 - \gamma_-^2.$$

La figure 7 montre le comportement dans le domaine SF de l'aimantation perpendiculaire à zéro degré obtenue pour une valeur de a donnée et diverses valeurs de b . La figure permet aussi de comparer les résultats du calcul de perturbation :

$$\langle j_x \rangle = \frac{1}{3 + b - a} h + \frac{9}{2b(3 + b - a)^4} h^3$$

et les résultats obtenus par le traitement exact. Nous constatons que ces résultats sont peu différents.

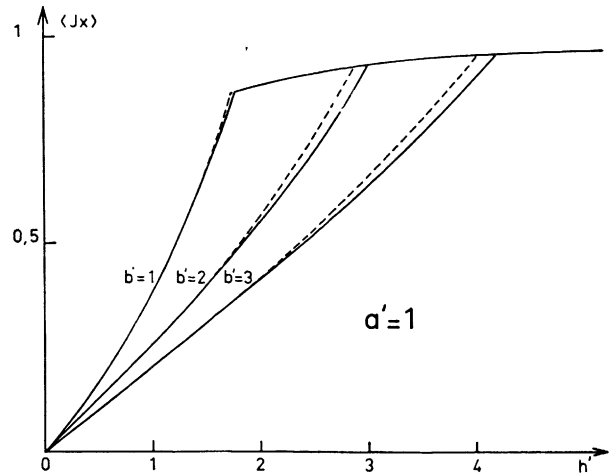


FIG. 7. — Variation de l'aimantation par ion $\langle j_x \rangle = \frac{1}{g\mu_B} \mu_x$ en fonction du champ appliqué $h = \frac{3}{D} g\mu_B H_e$ pour diverses valeurs des paramètres a et b caractéristiques des interactions d'échange

$$\left[a = \frac{3}{D} (J_1 + J_2) \quad \text{et} \quad b = \frac{3}{D} (J_1 - J_2) \right].$$

Les courbes en pointillés correspondent au résultat du calcul de perturbation.

3.2 PHASE PARAMAGNÉTIQUE. — A zéro degré et dans le domaine de stabilité (champs forts) de la phase paramagnétique (P), la valeur propre de \mathcal{H}'^{α} de plus basse énergie est :

$$\varepsilon_- = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{9 + 4h_x^2}.$$

Le vecteur propre associé est :

$$|\varepsilon_- \rangle = \alpha_- |1\rangle + \beta_- |0\rangle + \gamma_- |-1\rangle$$

où

$$\alpha_- = \gamma_- = \frac{h_x^m}{\sqrt{2} \sqrt{h_x^2 + (1 - \varepsilon_-)^2}},$$

$$\beta_- = - \frac{1 + \varepsilon_-}{\sqrt{h_x^2 + (1 + \varepsilon_-)^2}}.$$

L'équation de cohérence $\langle j_x \rangle = \langle \varepsilon_- | j_x | \varepsilon_- \rangle$ conduit à :

$$a^2 \langle j_x \rangle^4 + 2ah \langle j_x \rangle^3 + (h^2 - a^2 + \frac{9}{4}) \langle j_x \rangle^2 - 2ah - h^2 = 0.$$

La figure 8 montre l'ensemble des résultats obtenus dans le domaine paramagnétique.

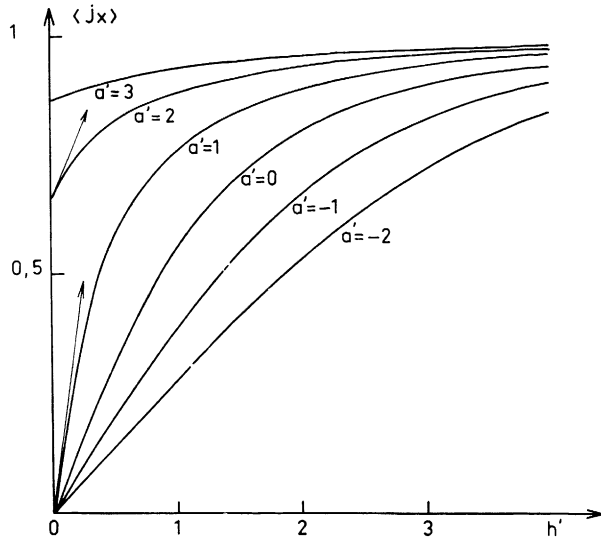


FIG. 8. — Variation de l'aimantation par ion $\langle j_x \rangle$ calculée dans le domaine paramagnétique, en fonction du champ appliqué h pour diverses valeurs du paramètre a .

3.3 TRANSITION EN CHAMP PERPENDICULAIRE DE LA PHASE SPIN-FLOP A LA PHASE PARAMAGNÉTIQUE. — En écrivant l'annulation de $\langle j_z \rangle$ à la transition de la phase SF à la phase P, on obtient :

$$b^4 u^4 - 2 b^2 (b^2 - \frac{9}{4}) u^3 + [(b^2 + \frac{9}{4})^2 - 45 b^2] u^2 + 72 b^2 u - 36 b^2 = 0$$

où $u = \langle j_x \rangle^2$. L'aimantation $\langle j_x \rangle$ à la transition ne dépend que du paramètre b .

On en déduit la valeur du champ à la transition par :

$$h = \frac{3}{2} \frac{\langle j_x \rangle}{\sqrt{1 - \langle j_x \rangle^2}} - a \langle j_x \rangle.$$

La figure 9 donne la variation de l'aimantation $\langle j_x \rangle$ à la transition SF \rightarrow P à zéro degré en fonction du paramètre b .

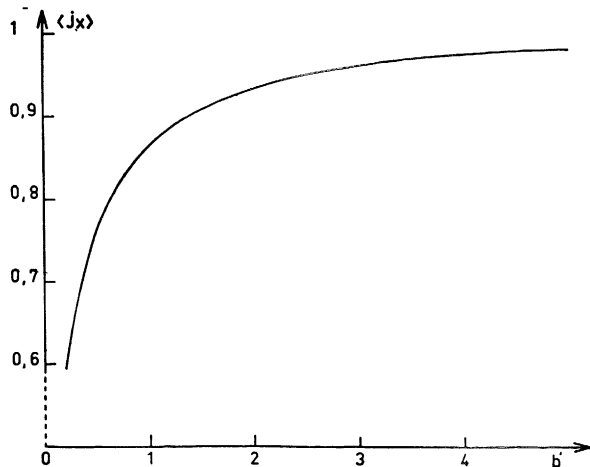


FIG. 9. — Variation de $\langle j_x \rangle$ calculé à la transition de phase SF \rightarrow P en fonction du paramètre d'échange b .

4. Variation thermique de l'aimantation en champ magnétique perpendiculaire. — 4.1 AIMANTATION PERPENDICULAIRE EN PHASE PARAMAGNÉTIQUE. — Les valeurs propres de JC^z en symétrie paramagnétique sont :

$$\begin{aligned} \varepsilon_+ &= \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{9 + 4 h_x^m} \\ \varepsilon_0 &= -1 \\ \varepsilon_- &= \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{9 + 4 h_x^m} \end{aligned}$$

Les composantes α, β, γ des vecteurs propres dans la base $\{|m_j\rangle\}$ sont données par :

$$\begin{aligned} \alpha_{\pm} = \gamma_{\pm} &= \frac{h_x^m}{\sqrt{2} \sqrt{h_x^m + (1 + \varepsilon_{\pm})^2}} \\ &= - \frac{1 + \varepsilon_{\pm}}{\sqrt{h_x^m + (1 + \varepsilon_{\pm})^2}} \end{aligned}$$

Le calcul de $\langle \varepsilon_{\pm} | j_x | \varepsilon_{\pm} \rangle = j_x^{\pm}$ donne

$$j_x^{\pm} = \sqrt{2} \beta_{\pm} (\alpha_{\pm} + \gamma_{\pm}),$$

$\langle j_x \rangle$ s'obtient alors à partir de l'équation de cohérence par :

$$\langle j_x \rangle = \frac{j_x^- + j_x^+ \exp\left(-\frac{\varepsilon_+ - \varepsilon_-}{\tau}\right)}{1 + \exp\left(-\frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_-}{\tau}\right) + \exp\left(-\frac{\varepsilon_+ - \varepsilon_-}{\tau}\right)}$$

où

$$\tau = \frac{3}{D} kT.$$

4.2 AIMANTATION PERPENDICULAIRE EN PHASE SPIN-FLOP. — Les aimantations $\langle j_x \rangle$ et $\langle j_z \rangle$ sont solutions du système des deux équations suivantes :

$$\langle j_x \rangle = \frac{j_x^- + j_x^0 \exp\left(-\frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_-}{\tau}\right) + j_x^+ \exp\left(-\frac{\varepsilon_+ - \varepsilon_-}{\tau}\right)}{1 + \exp\left(-\frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_-}{\tau}\right) + \exp\left(-\frac{\varepsilon_+ - \varepsilon_-}{\tau}\right)}$$

expression identique pour $\langle j_z \rangle$ où les ε_{\pm} et ε_0 sont les solutions de l'équation du troisième degré.

La figure 10 montre les isothermes d'aimantations obtenues pour diverses températures τ . Nous signalons la similitude entre cette figure et la figure 4 représentant les résultats expérimentaux obtenus en champ pulsé avec le bromure ferreux.

5. Application aux halogénures ferreux. — La susceptibilité perpendiculaire à 0 K permet d'obtenir la valeur de l'anisotropie cristalline (paramètre caractéristique D). Cette méthode de détermination de D nous paraît la plus précise. Pour les trois halogénures ferreux, les valeurs de D obtenues sont données tableau I. L'analyse théorique proposée pour expliquer l'écart Δm à la loi linéaire conduit à des ordres

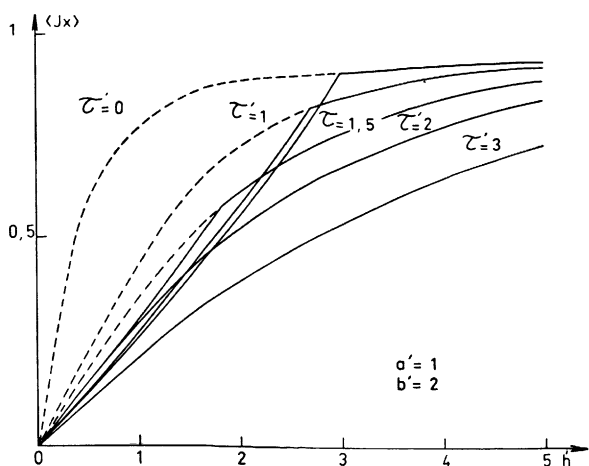


FIG. 10. — Isothermes d'aimantation calculées pour $a = 1, b = 2$ et diverses valeurs de $\tau = \frac{3}{D} T$.

de grandeur en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Dans le cas de FeBr₂, pour un champ de $H = 50$ kOe le calcul théorique donne :

$$\Delta m (\text{théorique}) = 0,04 \mu_B$$

alors que :

$$\Delta m (\text{expérimental}) = 0,1 \mu_B$$

(mesures réalisées en champ statique).

Outre l'écart à la loi linéaire donné par notre modèle, nous pouvons penser qu'il existe une autre contribution d'amplitude sensiblement égale provenant d'un fort couplage magnétocristallin.

L'étude expérimentale de trois composés (FeCl₂, FeBr₂, FeI₂) caractérisés par des valeurs distinctes des paramètres J_1, J_2 et D nous permet de vérifier les prévisions de notre modèle quant à l'évolution de l'écart Δm en fonction de ces 3 paramètres.

Du coefficient $\nu(J_1, J_2, D)$ on peut déduire l'écart Δm et l'exprimer non pas en fonction du champ réel appliqué H , mais en fonction du champ réduit H/H_c où H_c désigne la valeur du champ à la transition de la phase SF à la phase P :

$$\begin{aligned} \Delta m \left(\frac{H}{H_c} \right) &\sim \frac{D^2}{(J_1 - J_2)(D - 2J_2)} \left(\frac{H}{H_c} \right)^3 \\ &\sim \frac{D^2 \chi_{\perp}(0)}{T_N} \left(\frac{H}{H_c} \right)^3 \end{aligned}$$

En se reportant au tableau I des valeurs de $D, \chi_{\perp}(0)$ et T_N caractéristiques de nos composés, nous observons un écart à la loi d'aimantation linéaire plus grand pour FeBr₂ que pour FeCl₂ résultat en accord avec l'étude expérimentale (voir Fig. 3 et 5).

	FeCl ₂	FeBr ₂	FeI ₂
D	14 K	14 K	21 K
$\chi_{\perp}(0)$	0,145	0,135	0,071
C. G. S. mole ⁻¹			
T_N	23 K	14,2 K	9,3 K
$0,54 \frac{D^2 \chi_{\perp}}{T_N}$	0,66	1	1,8

TABLEAU I

Pour l'iodure ferreux l'étude expérimentale fait apparaître un écart à la loi linéaire moins important que celui obtenu par le calcul.

Il faut cependant remarquer que le modèle d'ion triplet est mal adapté à FeI₂ (anisotropie grande) et que d'autre part ce composé a une structure magnétique plus complexe que le chlorure ferreux et le bromure ferreux.

Remerciements. — Nous tenons à remercier M. Legrand (SPSRM de Saclay) qui a bien voulu préparer les monocristaux de FeBr₂ et FeI₂, tâche particulièrement difficile pour l'iodure ferreux.

Bibliographie

[1] WILKINSON, M. K., CABLE, J. W., WOLLAN, E. O. and KOEHLER, W. C., *Phys. Rev.* **113** (1959) 497.
 [2] JACOBS, I. S. and LAWRENCE, P. E., *Phys. Rev.* **164** (1967) 266.
 [3] LANUSSE, M. C., CARRARA, P., FERT, A. R., MISCHLER, G. and REDOULES, J. P., *J. Physique* **33** (1972) 429.
 [4] FERT, A. R., GÉLARD, J., CARRARA, P., *Solid State Commun.* **13** (1973) 1219.
 [5] CARRARA, P., Thèse, Orsay (1967).
 [6] FUJITA, T., ITO, A., ONO, K., *J. Phys. Soc. Japan* **27** (1969) 1143.
 [7] FERT, A. R., GÉLARD, J. and CARRARA, P., *J. Phys. & Chem. Solids* (1974).
 [8] JACOBS, I. S., SILVERSTEIN, S. D., *Phys. Rev. Lett.* **13** (1964) 272.
 [9] RODBELL, D. S., JACOBS, I. S., OWEN, J. et HARRIS, E. A., *Phys. Rev. Lett.* **11** (1963) 10.
 RODBELL, D. S., OWEN, J., *J. Appl. Phys.* **35** (1964) 1574.
 [10] BUSCH, G., JUNOD, P., SCHWOB, P., VOGT, O., HILLIGER, F., *Phys. Lett.* **9** (1964) 7.
 [11] ALLAIN, Y., KREBS, J. P. et DE GUNZBOURG, J., *J. Appl. Phys.* **39** (1968) 1124.
 [12] CARRARA, P., DE GUNZBOURG, J. et ALLAIN, Y., *J. Appl. Phys.* **40** (1969) 1035.
 [13] ALLAIN, Y., DE GUNZBOURG, J., KREBS, J. P. et MIEDAN-GROS, A., *Rev. Sci. Instrum.* **39** (1968) 1360.
 [14] REDOULES, J. P., Thèse de doctorat de spécialité, U. P. S. Toulouse (1971).
 [15] JONES, E. D. et JEFFERTS, *Phys. Rev.* **135** (1964).
 [16] MONTGOMERY, H., TEANEY, D. T., WALSH, W. M., *Phys. Rev.* **128** (1962) 80.
 [17] FOLEN, V. J., RUBINSTEIN, M., *Phys. Lett.* **28A** (1968) 2.
 [18] LINES, M. E., *Phys. Lett.* **24A** (1967).
 [19] KITTEL, C., *Phys. Rev.* **120** (1960).
 [20] LAURENCE, G., *Phys. Lett.* **34A** (1971) 308.
 [21] LAURENCE, G., PETITGRAND, D., *Phys. Rev.* (à paraître).
 [22] NASSER, J. A., HAMMAN, J., *Phys. Stat. Sol.* **56** (1973).
 [23] VETTER, C., ALBERTS, H. L., BEILLE, J. et BLOCH, D., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* (publication en cours).
 [24] ONO, K., ITO, A. et FUJITA, T., *J. Phys. Soc. Japan* **19** (1964) 11.