



**HAL**  
open science

## Diagramme de phase de l'orthoferrite de terbium en présence d'un champ magnétique

R. Bidaux, J.E. Bouree, J. Hammann

► **To cite this version:**

R. Bidaux, J.E. Bouree, J. Hammann. Diagramme de phase de l'orthoferrite de terbium en présence d'un champ magnétique. *Journal de Physique*, 1975, 36 (9), pp.803-809. 10.1051/jphys:01975003609080300 . jpa-00208319

**HAL Id: jpa-00208319**

**<https://hal.science/jpa-00208319>**

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 — 7.460

## DIAGRAMME DE PHASE DE L'ORTHOFERRITE DE TERBIUM EN PRÉSENCE D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE

R. BIDAUX, J. E. BOUREE et J. HAMMANN

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique,  
 Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay  
 BP 2, 91190 Gif-sur-Yvette, France

(Reçu le 6 janvier 1975, accepté le 4 avril 1975)

**Résumé.** — Les propriétés magnétiques de  $\text{TbFeO}_3$  à basse température sont étudiées en fonction d'un champ appliqué suivant les directions cristallographiques  $x$  et  $y$ . Les mesures de susceptibilité différentielle effectuées suivant  $x$  en fonction de la température permettent de construire le diagramme de phase des deux types d'échantillons qui se distinguent par l'existence ou non d'une phase intermédiaire ferromagnétique avant l'apparition de l'ordre antiferromagnétique vers 3 K. Un traitement théorique tenant compte de la possibilité d'une rotation progressive du système des Fe dans le plan  $xOz$ , a été développé et a permis d'interpréter quantitativement les résultats expérimentaux en utilisant les valeurs des paramètres d'échange Fe-Tb et Tb-Tb déterminées par ailleurs.

Les mesures d'aimantation suivant la direction  $y$  montrent deux transitions successives à 1,1 K pour des valeurs du champ très différentes. Une explication qualitative de l'existence de cette double transition peut être donnée en introduisant une structure coopérative intermédiaire de type  $F_x F_y$ , associée à une rotation du système des Fe de  $G_x F_z$  à  $G_z F_x$ .

**Abstract.** — The low temperature magnetic properties of  $\text{TbFeO}_3$  have been studied as a function of an applied field along the  $x$  and  $y$  crystallographic directions. Differential susceptibility measurements along the  $x$  axis performed at various temperatures lead to experimental phase diagrams of two types of samples which are distinguished by the presence or absence of an intermediate ferromagnetic phase before the final antiferromagnetic ordering around 3 K. A theoretical treatment taking into account a possible gradual rotation of the Fe system in the  $xOz$  plane, has been developed and gives a quantitative interpretation of the experimental results when previously determined values of the Fe-Tb and Tb-Tb interactions are used.

The magnetization measurements along the  $y$  direction at 1.1 K show two transitions occurring for quite different values of the applied field. A qualitative explanation of this behaviour can be given when one introduces an intermediate cooperative structure  $F_x F_y$ , associated with a rotation of the Fe system from  $G_x F_z$  to  $G_z F_x$ .

**1. Introduction.** — L'orthoferrite de terbium ( $\text{TbFeO}_3$ ) présente, outre un ordre magnétique du système des fers qui apparaît à relativement haute température ( $T_N = 651$  K [1]), deux transitions à basses températures

$$(T_{R_1} = 6,2 \text{ K [2] et } T_{R_2} = 3,15 \text{ K [2])}$$

correspondant à deux mises en ordre successives du système des terres rares.  $T_{R_1}$  caractérise le passage des ions Tb d'un état paramagnétique à un état ordonné de type  $F_x C_y$ ; simultanément, les ions Fe qui étaient caractérisés pour  $T > T_{R_1}$  (zone appelée paramagnétique par référence aux terres rares) par un ordre de type  $G_x F_z$  adoptent pour  $T < T_{R_1}$  une configuration  $G_z F_x$ , ce qui traduit une rotation d'ensemble des moments Fe d'un angle de  $90^\circ$  autour

d'une direction  $Oy$ . La figure 1 montre la configuration d'ensemble, notée I.

$T_{R_2}$  marque le passage de la configuration I à une nouvelle configuration, notée VI sur la figure 1 par référence à une publication antérieure [3], dans laquelle les moments Tb deviennent antiferromagnétiques  $A_x G_y$ , en même temps que les moments Fe reprennent leur structure  $G_x F_z$  de haute température.

Ce comportement a été relaté en détail dans les références [2], [4, 5] et a été analysé théoriquement dans la référence [3] en utilisant certains résultats obtenus sur  $\text{YFeO}_3$ , composé dans lequel les Fe forment le seul système magnétique [6].

L'analyse théorique est basée sur les remarques suivantes : les moments de Tb ne pouvant quitter leur axe d'anisotropie dans le plan  $xOy$ , il existe un décou-

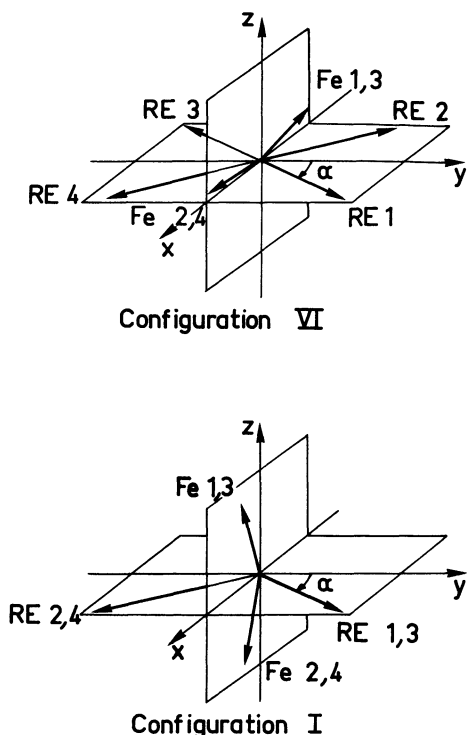


FIG. 1. — Configurations I et VI.

plage complet entre le système des Fe et celui des Tb quand les fers sont dans la configuration  $G_x F_z$ . La configuration  $G_z F_x$  des fers, au contraire, induit entre les deux systèmes un couplage qui a été décrit en se limitant aux interactions d'échange isotropes et aux interactions dipolaires. On conçoit ainsi qu'il existe une compétition entre les structures I et VI : dans la structure VI, l'énergie libre de chacun des systèmes Fe et Tb est minimisée séparément, et les interactions antiferromagnétiques Tb-Tb sont déterminantes dans le choix de la structure magnétique des Tb ; la structure I, au contraire, ne peut être stabilisée énergétiquement que par l'apport du terme de couplage Fe-Tb, qui doit être suffisamment important pour astreindre les Tb à abandonner leur structure propre antiferromagnétique.

Les paramètres essentiels, tels que les termes d'échange isotrope Fe-Tb et Tb-Tb ont été ajustés en comparant les résultats théoriques obtenus en supposant les interactions dipolaires prépondérantes, avec des résultats expérimentaux déduits principalement des mesures d'aimantation en fonction d'un champ appliqué suivant la direction  $z$  [2]. Les conclusions de l'étude théorique [3] mettent en relief l'importance des interactions dipolaires malgré des valeurs non négligeables des paramètres d'échange. Cet état de fait se traduit en particulier par une dépendance critique de la stabilité de la structure I en fonction de la forme de l'échantillon, et plus précisément en fonction de la valeur du coefficient de champ démagnétisant suivant la direction  $x$  ( $N_x$ ). La figure 6 de la référence [3] montre que pour  $N_x/4\pi > 0,13$ , la structure I ne peut plus apparaître.

Ce dernier résultat théorique n'est visible expérimentalement que dans la mesure où il est possible, dans un échantillon macroscopique, d'éviter l'apparition de domaines qui confèreraient à cet échantillon, quelle que soit sa forme, un comportement analogue à celui prévu pour  $N_x = 0$ . Une telle condition semble être en partie réalisée dans certains échantillons monocristallins obtenus par la méthode du flux et contenant ainsi environ 1 % d'impuretés de plomb [2], [7] ; il a été vérifié que le comportement magnétique de ces échantillons était compatible avec le comportement théorique prévu pour  $N_x/4\pi > 0,13$ .

L'influence des domaines sur le comportement d'ensemble des différents échantillons, qui vient ainsi d'être mise en évidence, doit se manifester également dans les propriétés métamagnétiques en particulier lorsque le champ est appliqué dans des directions cristallographiques simples comme  $x$  ou  $y$ . Le but de cette publication est de présenter les mesures d'aimantation qui ont été effectuées suivant ces directions.

Un champ appliqué parallèlement à  $x$  favorise fortement l'apparition de la structure I, en particulier par son action sur le moment ferromagnétique faible du système des fers. La rotation de ce moment en fonction du champ appliqué, induit à basse température une transition métamagnétique de la configuration VI à la configuration I pour une valeur du champ très inférieure au champ local antiferromagnétique. Ce comportement sera décrit et interprété à l'aide d'un traitement théorique qui tient compte de la possibilité d'un retournement progressif du moment résultant des fers.

Le champ appliqué dans la direction  $y$  induit deux transitions successives à  $T = 1$  K. Ce résultat expérimental sera présenté ici et discuté de façon très qualitative, vu la complexité du traitement plus exact qui pourrait être envisagé.

**2. Technique expérimentale.** — La technique cryogénique ainsi que la méthode de mesure d'aimantation par extraction sont brièvement décrits dans la référence [2]. Pour accéder au diagramme de phase en présence d'un champ magnétique dirigé suivant  $x$ , nous avons eu recours à des mesures de susceptibilité différentielle en fonction du champ. Ces mesures sont en effet les mieux adaptées à la détermination de l'ordre des transitions à condition que les échantillons utilisés présentent une forme ellipsoïdale qui permette de définir correctement un facteur de champ démagnétisant : dans ces conditions une transition du premier ordre est caractérisée par une valeur constante de  $dM/dH$  en fonction de  $H$  ( $M$  est l'aimantation,  $H$  le champ appliqué) alors que la transition du second ordre qui se traduit par un point d'inflexion sur les courbes d'aimantation, donne un maximum facile à détecter sur les courbes  $dM/dH$ .

Pour effectuer ces mesures, on place l'échantillon dans une bobine détectrice dont le flux à vide est

compensé, et on fait varier le champ linéairement en fonction du temps. Le signal proportionnel à  $dM/dt$  ( $t$  désigne le temps) est détecté par un amplificateur galvanométrique (de gain  $10^4$  à  $10^6$ ) dont la sortie est connectée sur la voie Y d'un enregistreur X-Y. On peut ainsi mesurer jusqu'à  $5 \mu\text{V}$  à pleine échelle ce qui permet d'avoir des vitesses de balayage suffisamment faibles (environ  $0,3 \text{ kOe/min.}$ ) pour que la température de l'échantillon reste parfaitement constante.

Pour éviter les fluctuations de  $dH/dt$ , le courant qui alimente la bobine supraconductrice est délivré par une alimentation de courant qui régule la tension aux bornes de cette bobine. L'entrée X de l'enregistreur est branchée aux bornes d'une résistance de  $10^{-3} \Omega$  placée en série dans le circuit de la bobine.

Les deux échantillons qui ont été utilisés pour toutes les études présentées ici sont choisis comme cas typiques des deux comportements magnétiques décrits dans l'introduction : l'échantillon type I est celui qui subit deux transitions successives à basse température ; l'échantillon II caractérisé par un blocage partiel des domaines, ne présente que la transition antiferromagnétique. Le cristal I est taillé en forme de sphère de diamètre 2 mm, le cristal II est sous forme de plaquette perpendiculaire à  $z$ , d'épaisseur 0,4 mm et de diamètre moyen 3 mm.

**3. Champ appliqué dans la direction  $x$ .** — **3.1 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.** — Les courbes correspondant aux mesures d'aimantation par extraction à 1,15 K figurent dans la référence [8], pour illustrer le comportement théorique à 0 K. Les conclusions concernant l'échantillon de type I sont conformes aux prévisions : la transition métamagnétique est du premier ordre, la pente de la courbe d'aimantation est constante et égale à la pente de champ démagnétisant ( $N/4\pi = \frac{1}{3}$ ) pendant toute la largeur de la transition. Ceci signifie qu'à partir d'une certaine valeur du champ appliqué, des domaines ferromagnétiques de structure I commencent à se développer de manière à garder le champ interne constant pendant la transition. Dans ces échantillons, on peut ainsi définir une valeur caractéristique du champ seuil  $H_s$  qui s'obtient par extrapolation de la partie linéaire de la courbe d'aimantation.

A 1,15 K on trouve  $H_s = 1,52 \text{ kOe}$ , qu'il faut comparer à la valeur  $H_s = 2,12 \text{ kOe}$  obtenue pour l'échantillon II par la même méthode. Cette différence peut s'expliquer par le blocage partiel des domaines dans ce dernier type d'échantillon. Le retard à la transition est dû à l'impossibilité de créer une structure de domaines minimisant correctement l'énergie de champ démagnétisant qui apparaît dans la phase ferromagnétique. Le comportement au cours de la transition est imprévisible aussi longtemps que celle-ci reste du premier ordre et il devient difficile de définir une valeur de champ seuil caractéristique. Nous avons choisi d'adopter la valeur du champ correspondant

au maximum de la susceptibilité différentielle, ce qui est le bon critère lorsque la transition devient du second ordre.

La figure 2 représente un réseau de courbes  $dM/dH(H)$  à diverses températures pour l'échantillon I. Les courbes sont obtenues en champ décroissant. A 1,1 K, le plateau associé à la transition est précédé d'un pic très prononcé qui se manifeste également sur les courbes à champ croissant et qui correspond au rattrapage du retard à la transition. Lorsque la température augmente, les plateaux observés se rapprochent de l'origine indiquant une diminution du champ seuil sans changement d'ordre de la transition. A partir de 3,1 K, l'échantillon possède un moment spontané. Il faut remarquer que dans le domaine ferromagnétique les régions à susceptibilité constante sont moins bien marquées. A 3,4 K, lorsque le champ décroît,  $dM/dH$  diminue au voisinage de l'origine. Ce comportement est lié au temps de relaxation des domaines à champ nul, déjà mis en évidence dans la référence [2]. A 6 K, l'écart par rapport au comportement idéal est encore plus apparent, et il devient difficile au-dessus de cette température de voir le passage à la structure paramagnétique.

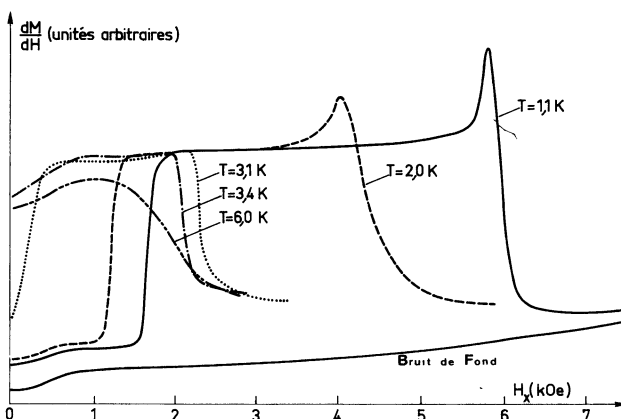


FIG. 2. — Réseau de courbes  $dM/dH$  d'un échantillon I en fonction du champ extérieur dans la direction  $x$  à différentes températures. Courbes effectuées en champ décroissant.

La figure 3 donne les résultats correspondants de l'échantillon II. La susceptibilité présente toujours un maximum qui a pour caractéristique de se stabiliser vers une valeur du champ égale à  $H = 1,7 \text{ kOe}$  à partir de 4 K, et de s'estomper progressivement lorsque la température augmente. Ceci semble en contradiction avec  $T_N = 3,45 \text{ K}$  déterminé d'après les mesures d'aimantation suivant  $z$ . En fait il semble que les points d'inflexion sur les courbes d'aimantation au-dessus de  $T_N$  puissent être associés à la fin de la rotation du moment ferromagnétique des fers en fonction du champ appliqué. Cette interprétation apparaîtra plus clairement dans l'étude théorique.

**3.2 DIAGRAMME DE PHASE.** — Les champs critiques déterminés à partir des réseaux de courbes des figures 2

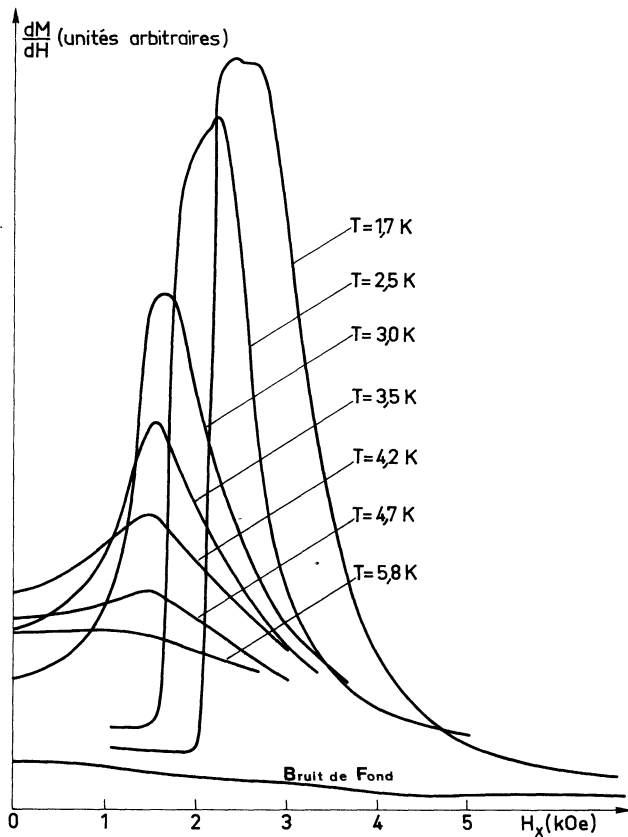


FIG. 3. — Réseau de courbes  $dM/dH$  d'un échantillon II en fonction du champ extérieur dans la direction  $x$  à différentes températures.

et 3 sont reportés sur les figures 6 et 7. Ils délimitent certaines parties des diagrammes de phase des échantillons I et II. Pour comprendre ces diagrammes, les calculs de la référence [3] ont été élargis afin de tenir compte de la possibilité de rotation progressive du système des Fe. La méthode de résolution a déjà servi à la description du comportement métamagnétique à 0 K [8]. Elle permet de tracer l'aimantation résultante en fonction du champ appliqué dans la phase antiferromagnétique VI et dans la phase ferromagnétique I, le champ critique étant déterminé ensuite par la règle de Maxwell lorsque la transition est du premier ordre et par le point de raccordement des deux courbes lorsqu'elle est du second ordre. Le traitement consiste à considérer les deux systèmes d'ions magnétiques séparément :

La structure VI est décrite à partir de deux ions de terre rare inéquivalents par rapport au champ appliqué, notés  $m_1$  (ions 1 et 4 de la Fig. 1) et  $m_2$  (ions 3 et 2). Les moments de ces ions sont soumis à un champ effectif suivant leur direction d'anisotropie :

$$h_1 = h + h^{\text{Fe}} + \beta_{\text{F}} m + \beta_{\text{AF}} s$$

$$h_2 = h + h^{\text{Fe}} + \beta_{\text{F}} m - \beta_{\text{AF}} s.$$

$h$  représente la projection du champ extérieur sur l'axe d'anisotropie,  $h^{\text{Fe}}$  la contribution du système

des Fe;  $m = (m_1 + m_2)/2$  est le moment résultant et  $s = (m_1 - m_2)/2$  le paramètre d'ordre antiferromagnétique (voir [9]).

$\beta_{\text{F}}$  et  $\beta_{\text{AF}}$  sont des coefficients de champ moléculaire respectivement ferromagnétique et antiferromagnétique (voir [9]) qui tiennent compte des interactions entre ions Tb évaluées dans les références [2] et [3].

A partir des expressions :

$$m_1 = f(h_1)$$

$$m_2 = f(h_2)$$

la fonction  $f(h)$  étant définie dans la référence [9], on peut, à température donnée, déterminer  $m$  en fonction de  $h + h^{\text{Fe}}$  dans les deux cas correspondant à  $s \neq 0$  (solution antiferromagnétique) et à  $s = 0$  (solution ferromagnétique).

L'étape suivante consiste alors à appliquer ces résultats aux relations qui décrivent la rotation des fers et qui ont été extrapolées à partir des études faites sur  $\text{YFeO}_3$  [6], [10]. Pour toute valeur de  $m$  et de  $h + h^{\text{Fe}}$ , il peut exister deux solutions à ces relations. Si  $\theta$  représente l'angle que fait le faible moment ferromagnétique des fers avec l'axe  $x$ , une solution permanente correspond à  $\theta = 0$  (retournement complet des fers), l'autre solution possible conduisant à une valeur non nulle de  $\theta$ . L'état le plus stable énergétiquement est toujours donné par la solution  $\theta \neq 0$  lorsqu'elle existe.

On aboutit ainsi au tracé des deux courbes  $m$  fonction du champ appliqué, correspondant aux configurations VI et I. Chaque courbe présente d'abord la solution  $\theta \neq 0$ , le passage à  $\theta = 0$  s'accompagnant

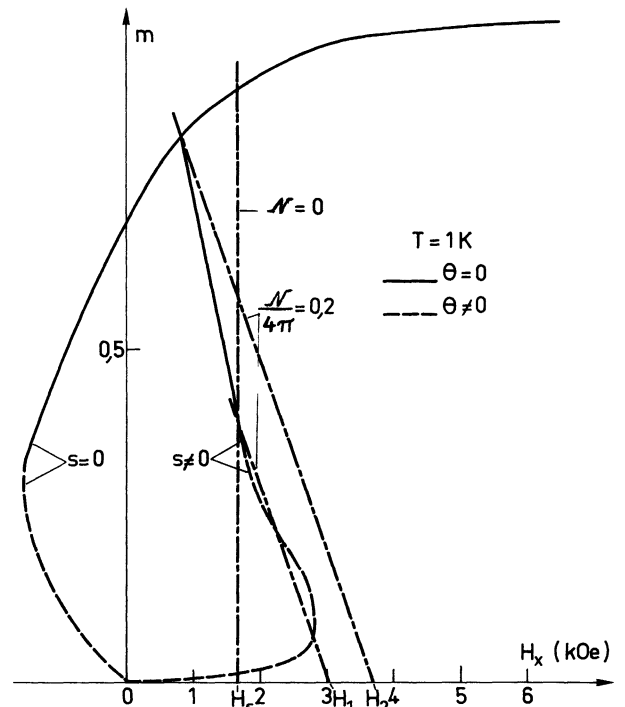


FIG. 4. — Courbes d'aimantation théoriques en fonction du champ extérieur dans la direction  $x$  à 1 K avec représentation des comportements monodomaines pour  $\mathcal{N} = 0$  et  $\mathcal{N}/4\pi = 0,2$ .

d'une discontinuité de la pente. Ceci est visible sur les figures 4 et 5 qui montrent quelques courbes typiques à différentes températures, calculées pour un facteur de champ démagnétisant  $\mathcal{N} = 0$ . Pour remonter au cas  $\mathcal{N} \neq 0$ , il suffit de faire le changement d'axe des ordonnées défini par

$$H' = H + \mathcal{N}m.$$

La figure 4 à  $T = 1$  K conduit à une valeur de champ seuil  $H_s = 1,65$  kOe obtenue par la loi d'égalité des aires. Ce résultat est celui qui caractérise un échantillon de type I (comportement  $\mathcal{N} = 0$ ). Dans le cas d'un échantillon qui resterait toujours monodomaine, le champ critique est obtenu par la même loi des aires après le changement d'axe correspondant à la valeur effective de  $\mathcal{N}$ . Le comportement à

$$\frac{\mathcal{N}}{4\pi} = 0,2$$

a été pris en exemple. A 1 K (Fig. 4) il est caractérisé par la présence de deux transitions successives, la première étant du premier ordre à  $H_1 = 3,0$  kOe, la seconde du second ordre à  $H_2 = 3,7$  kOe. On retrouve ce comportement pour  $\mathcal{N} = 0$  vers 2 K.

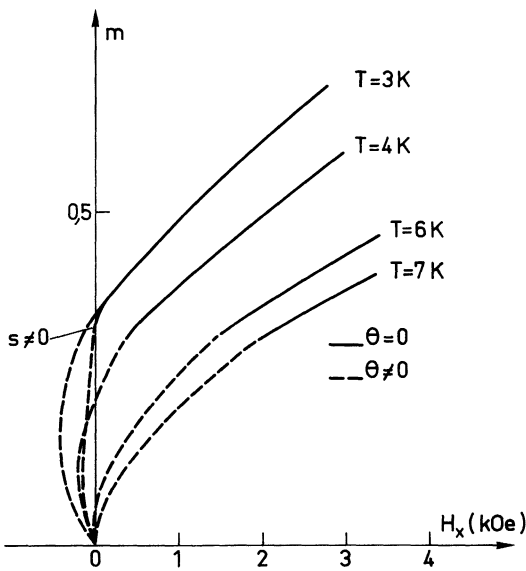


FIG. 5. — Courbes d'aimantation théoriques en fonction du champ extérieur dans la direction  $x$  à 3 K. Evolution des courbes d'aimantation pour  $s = 0$  entre 4 K et 7 K.

Au-dessus de 2,6 K, les courbes antiferromagnétiques partent de l'origine vers des valeurs négatives du champ et recourent l'axe des ordonnées pour des valeurs de  $m$  différentes de zéro, ce qui indique l'existence d'un moment résultant à champ nul. En particulier, on peut voir sur la figure 5 qu'à 3 K le système des fers est complètement retourné bien que la phase antiferromagnétique soit encore la plus stable ( $H_s = 0,15$  kOe). A partir de 3,1 K, les courbes antiferromagnétiques n'existent plus pour des valeurs positives du champ, on entre ainsi dans la phase

ferromagnétique. La figure 5 montre l'évolution des courbes ferromagnétiques de 4 à 7 K avec le passage à la phase paramagnétique à 6,4 K.

Les figures 6 et 7 résument l'ensemble de tous ces résultats théoriques respectivement pour  $\mathcal{N} = 0$  et  $\mathcal{N}/4\pi = 0,2$ . On y distingue la ligne de transition délimitant la phase antiferromagnétique VI (notée AF), les limites d'existence à champ nul d'une phase ferromagnétique (notée  $F_I$  dans la région où le retournement des fers n'est pas complet), et enfin la ligne

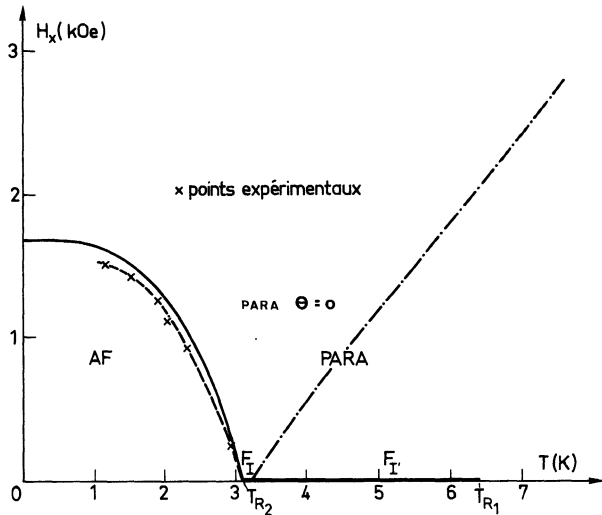


FIG. 6. — Diagramme de phase pour  $\mathcal{N} = 0$  en présence d'un champ appliqué suivant  $x$ . PARA,  $F_I$ ,  $F_{I'}$ , et AF se réfèrent respectivement aux phases paramagnétique, ferromagnétique (configurations I et I') et antiferromagnétique (configuration VI) du système terre rare.

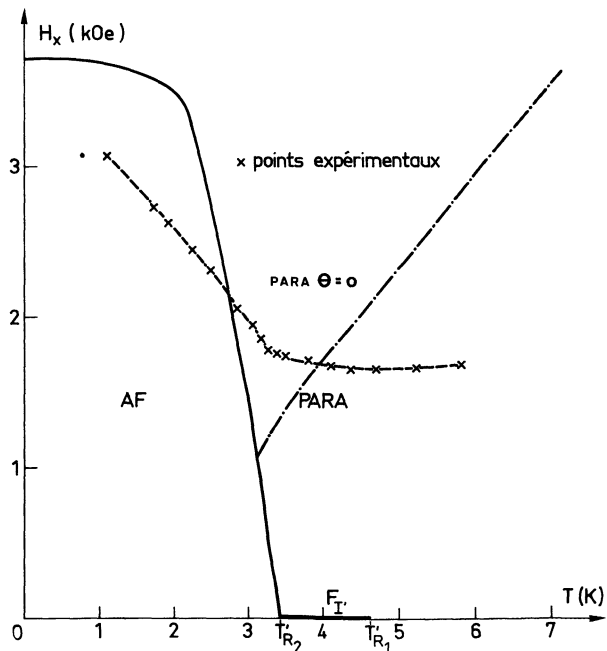


FIG. 7. — Diagramme de phase pour  $\mathcal{N}/4\pi = 0,2$  en présence d'un champ appliqué suivant  $x$ . PARA,  $F_I$ , et AF se réfèrent respectivement aux phases paramagnétique, ferromagnétique (configuration I) et antiferromagnétique (configuration VI) du système terre rare.

délimitant dans la phase paramagnétique des terres rares (notée PARA) la région où le retournement des fers est complet. Les points expérimentaux sont reportés sur ces figures. On peut remarquer en ce qui concerne les échantillons II que les points d'inflexion observés au-dessus de 3 K correspondent raisonnablement à la ligne de délimitation  $\theta \neq 0 \rightarrow \theta = 0$  et non à la ligne de transition antiferromagnétique. Cette ligne de délimitation correspond sur nos courbes théoriques à des points de rupture de pente, mais lorsqu'on fait varier les valeurs des différents paramètres ( $L_3, L_4, W$ ) [3], [6], il est possible de trouver des courbes présentant des points d'inflexion.

En conclusion de cette étude, il est intéressant de revenir sur le comportement de  $\text{TbFeO}_3$  à champ nul pour remarquer les améliorations qui sont obtenues par rapport à la référence [3] lorsqu'on tient compte du retournement progressif du système des fers. En particulier, le domaine ferromagnétique est nettement élargi avec des températures de transition qui sont  $T_{R_1} = 6,4$  K et  $T_{R_2} = 3,1$  K par rapport aux valeurs 6,2 K et 3,15 K observées expérimentalement (voir [2]). La figure 8 représente la variation de  $\sin \theta$  en fonction de la température pour  $N = 0$  et  $N/4\pi = 0,2$ . Cette grandeur est liée directement aux mesures d'aimantation à champ faible suivant la direction  $z$ , présentées dans la référence [2].

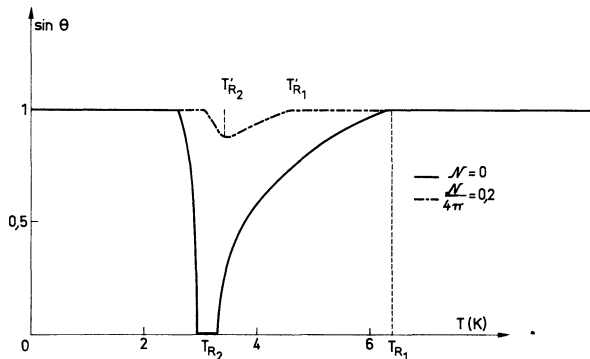
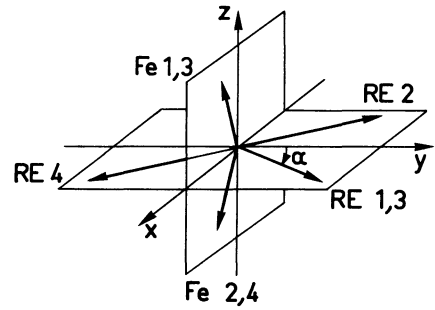


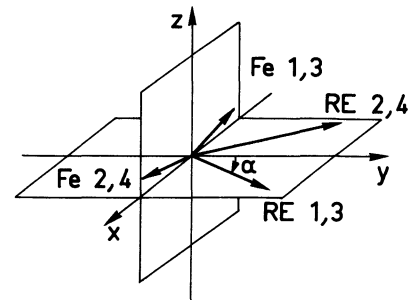
FIG. 8. — Variation théorique de  $\sin \theta$  en fonction de la température, à champ nul, pour  $N = 0$  et  $N/4\pi = 0,2$ .

**4. Champ appliqué dans la direction  $y$ .** — Les mesures d'aimantation à 8,66 K avec un champ appliqué dans la direction  $y$  ont servi dans la référence [2] à la détermination des paramètres caractérisant les singulets de base de l'ion  $\text{Tb}^{3+}$ . En effet à cette température les moments de terre rare sont polarisés par le champ appliqué suivant la configuration VIII de la figure 9. Cette configuration n'inclut aucun couplage Fe-Tb. Si on considère en plus que les moments de Fe sont bloqués dans le plan  $xOz$  par leurs fortes interactions antisymétriques, le problème du champ appliqué dans la direction  $y$  ne fait intervenir que les moments des terres rares.

En prolongeant ces arguments à 1 K, on pourrait prévoir une transition métamagnétique de la configu-



Configuration int.



Configuration VIII

FIG. 9. — Configurations VIII et Intermédiaire.

ration VI à la configuration VIII, faisant intervenir uniquement les interactions entre terres rares. Ces prévisions ne sont pas vérifiées par l'expérience : les courbes d'aimantation à 1 K présentent en effet deux transitions à des champs très différents. La première transition est du premier ordre comme on peut le voir sur la figure 10, qui représente la courbe de l'échantillon I (sphérique) ramenée en fonction du champ interne. La deuxième transition est au contraire très large. Le palier intermédiaire entre les deux transitions correspond pratiquement à la moitié de l'aimantation à saturation. Cette constatation fait penser à la possibilité d'un passage transitoire par

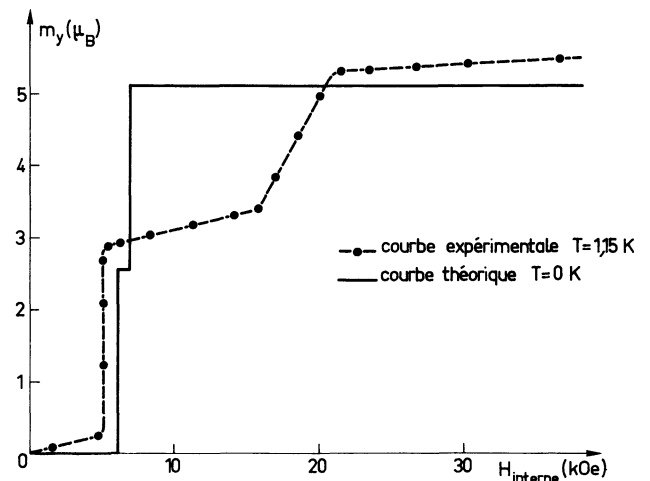


FIG. 10. — Courbe d'aimantation d'un échantillon I en fonction du champ interne dans la direction  $y$  à 1,15 K. Courbe d'aimantation théorique à 0 K.

une configuration intermédiaire représentée sur la figure 9. Des calculs énergétiques à champ nul et à moments saturés montrent en effet que cette configuration est plus stable que la VIII, d'autant plus qu'elle présente un moment résultant dans la direction  $x$  qui a pour effet d'induire un couplage fer-terre rare par retournement du système des fers.

Dans les deux transitions successives observées, les quatre ions de Tb de la maille sont soumis à des champs effectifs différents. Le traitement théorique de ce comportement est donc très difficile. Nous nous contenterons d'une analyse qualitative à 0 K, en supposant les grandeurs des moments terbium indépendantes du champ appliqué, ce qui revient à prendre  $\Delta = 0$  par rapport à  $\Delta/k_B = 1$  K [2] ( $\Delta$  est la séparation énergétique entre les deux singulets fondamentaux de Tb<sup>3+</sup>).

Avec cette approximation, les énergies des différentes configurations s'écrivent [3], [6] :

$$E_{VI} = -5942 m_s + E^{Fez}$$

$$E_{VIII} = +1749 m_s + E^{Fez} - 2 h m_s$$

$$E_{Int} = -2339 m_s - h m_s + E^{Fex} + E^{Fe+Tb}$$

$$E'_{Int} = -2339 m_s - h m_s + E^{Fez}$$

Ces énergies sont écrites pour deux ions de Tb plus deux ions de Fe.  $m_s$  est le moment à saturation du terbium et  $E/m_s$  est exprimé en Oersted.  $E^{Fez}$  et  $E^{Fex}$  représentent les énergies du système des fers, respectivement dans les deux cas  $\theta = \pi/2$  et  $\theta = 0$  (voir [6]).  $E_{Int}$  et  $E'_{Int}$  correspondent donc à la structure intermédiaire avec et sans retournement du moment résultant des fers.  $h = H_y \cos \alpha$  est la projection du champ appliqué sur les directions d'anisotropie des moments du terbium.

On peut montrer que

$$E^{Fez} - E^{Fex} - E^{Fe-Tb} = 112 m_s,$$

ce qui stabilise  $E_{Int}$  (avec retournement des fers).

Si on considère maintenant les diverses transitions

possibles entre ces structures, un critère simple <sup>(1)</sup> indique une transition du premier ordre dans les trois cas : structure VI → structure VIII, structure VI → structure Intermédiaire et structure Intermédiaire → structure VIII. Dans ce cas les champs seuil correspondants s'obtiennent en égalant les énergies : soit

$$H_s^{VI+VIII} = 6,5 \text{ kOe}, H_s^{VI-Int} = 6,1 \text{ kOe}$$

et  $H_s^{Int-VIII} = 7,0 \text{ kOe}$ .

Ces valeurs signifient que la transition directe VI-VIII est défavorable par rapport à la succession des deux transitions VI-Int et Int-VIII, qui sont représentées par la courbe d'aimantation théorique de la figure 10. La ressemblance avec les résultats expérimentaux est très grossière à cause des approximations utilisées, qui ont malgré tout l'intérêt d'expliquer la présence des deux transitions.

**5. Conclusion.** — Le diagramme de phase magnétique de TbFeO<sub>3</sub> en présence d'un champ appliqué dans la direction  $x$  a pu être correctement décrit et interprété en mettant en jeu les possibilités de rotation progressive du faible moment résultant des fers. Les différences dues aux effets de forme qui sont à l'origine des comportements différents des échantillons monocristallins, sont apparues clairement dans cette interprétation. Le cas correspondant à l'application d'un champ dans la direction  $y$ , a été commenté qualitativement pour rendre compte de l'existence d'une double transition à basse température. Des études plus complètes pourraient être envisagées pour interpréter ce genre de comportement de façon plus exacte. Mais le problème principal dans TbFeO<sub>3</sub> reste celui de l'effet des impuretés sur la formation et le blocage des domaines ferromagnétiques qui sont à l'origine des différents comportements observés. Nous nous sommes contentés de constater l'existence de ce phénomène ; son étude plus approfondie demanderait la connaissance des structures de domaines et la possibilité de reproduire et d'observer l'implantation des impuretés.

<sup>(1)</sup> Ce critère consiste à remarquer que si les interactions à l'intérieur du sous-réseau qui se retourne au cours de la transition sont ferromagnétiques, c'est-à-dire favorables à un retournement global de ce sous-réseau plutôt que par moments isolés, la transition considérée est nécessairement du premier ordre.

### Bibliographie

- [1] TREVES, D., *J. Appl. Phys.* **36** (1965) 1033.
- [2] BOUREE, J. E. et HAMMANN, J., *J. Physique* **36** (1975) 57.
- [3] BIDAUX, R., BOUREE, J. E. and HAMMANN, J., *Dipolar interactions in rare earth orthoferrites-II : TbFeO<sub>3</sub>* ; à paraître dans *J. Phys. & Chem. Solids*.
- [4] BERTAUT, E. F., CHAPPERT, J., MARESCAL, J., REBOUILLAT, J. P. and SIVARDIERE, J., *Solid State Commun.* **5** (1967) 293.
- [5] BELAKHOVSKY, M., CHAPPERT, J., ROUSKOV, T. and SIVARDIERE, J., *J. Physique colloq.* **32** (1971) C1-492.
- [6] BIDAUX, R., BOUREE, J. E. and HAMMANN, J., *J. Phys. & Chem. Solids* **35** (1974) 1645.
- [7] REMEIK, J. P. and KOMETANI, T. Y., *Mater. Res. Bull.* **3** (1968) 895.
- [8] BIDAUX, R., BOUREE, J. E. and HAMMANN, J., *Proceedings of the 20th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, San Francisco (1974).
- [9] BIDAUX, R., GAVIGNET-TILLARD, A. and HAMMANN, J., *J. Physique* **34** (1973) 19.
- [10] JACOBS, I. S., BURNE, H. F. and LEVINSON, L. M., *J. Appl. Phys.* **42** (1971) 1631.