



**HAL**  
open science

# Magnétisme de CrBe12 en champs intenses et résistivité électrique de CrBe12 et de VBe12

R. Jesser, O. Laborde

► **To cite this version:**

R. Jesser, O. Laborde. Magnétisme de CrBe12 en champs intenses et résistivité électrique de CrBe12 et de VBe12. *Journal de Physique*, 1984, 45 (11), pp.1819-1826. 10.1051/jphys:0198400450110181900 . jpa-00209927

**HAL Id: jpa-00209927**

**<https://hal.science/jpa-00209927>**

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

72.15E — 75.30C — 75.50C

## Magnétisme de $\text{CrBe}_{12}$ en champs intenses et résistivité électrique de $\text{CrBe}_{12}$ et de $\text{VBe}_{12}$

R. Jesser (\*) et O. Laborde (\*\*)

(\*) L.M.S.E.S., L.A. N° 306 au C.N.R.S., 3, rue de l'Université, 67084 Strasbourg, France

(\*\*) C.R.T.B.T. et S.N.C.I., Laboratoires du C.N.R.S., avenue des Martyrs, 38042 Grenoble, France

(Reçu le 22 mai 1984, révisé le 23 juillet, accepté le 26 juillet 1984)

**Résumé.** — Le composé intermétallique  $\text{CrBe}_{12}$  a été reconnu comme ferromagnétique faible et itinérant. Dans ce travail, nous présentons des mesures d'aimantations en champs intenses ( $0 < H \leq 150$  kOe) et à basse température ( $4,2 \text{ K} \leq T \leq 35 \text{ K}$ ) effectuées sur  $\text{CrBe}_{12}$ , ainsi que des mesures de résistivité électrique à basse température ( $1,25 \text{ K} \leq T \leq 294 \text{ K}$ ) et à champ nul ( $H = 0$ ) effectuées sur  $\text{CrBe}_{12}$  et sur  $\text{VBe}_{12}$  (isomorphe à  $\text{CrBe}_{12}$ , mais purement paramagnétique). Les résultats essentiels de l'étude magnétique de  $\text{CrBe}_{12}$  en champs intenses (linéarité en  $T^2$  de l'aimantation à saturation  $\sigma_s$  à basse température, et moment ferromagnétique absolu relativement faible  $\mu_0 \simeq 0,27 \mu_B/\text{Cr}$ ) constituent des arguments supplémentaires en faveur du caractère itinérant du ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$ . Cependant les résultats de l'étude de la résistivité électrique  $\rho(T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$ , soulèvent quelques problèmes :  $\rho(T)$  n'est pas linéaire en  $T^2$ , ni en  $T^{3/2}$  à  $T < T_c$  et la résistivité résiduelle de désordre de spin est relativement importante en raison de l'anomalie de  $\rho(T)$  à  $T = T_c$ . Le graphe de variation thermique de  $\rho(T)$  de  $\text{VBe}_{12}$  a une allure quasi parabolique à basse température :  $\rho(T) \simeq \rho_0 + aT^n$  avec  $n \sim 2$ .

Enfin, on peut interpréter le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  comme résultant d'un mécanisme d'échange indirect entre les moments localisés sur les atomes de Cr par l'intermédiaire des électrons de conduction de la matrice. On peut concevoir le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  comme limite localisée du modèle généralisé de fluctuation de spin de ferromagnétisme itinérant proposé récemment par Moriya.

**Abstract.** — The intermetallic compound  $\text{CrBe}_{12}$  is actually known as a weak itinerant ferromagnet. In this work, we report magnetization measurements performed on  $\text{CrBe}_{12}$  in high fields ( $0 < H \leq 150$  kOe) at low temperatures ( $4.2 \text{ K} \leq T \leq 35 \text{ K}$ ), and electrical resistivity measurements at low temperatures ( $1.25 \text{ K} \leq T \leq 294 \text{ K}$ ) in a zero field ( $H = 0$ ) performed on  $\text{CrBe}_{12}$  and  $\text{VBe}_{12}$  (isomorphic to  $\text{CrBe}_{12}$ , but only paramagnetic). The main results of our high-field magnetization study of  $\text{CrBe}_{12}$  (the linear  $T^2$  dependence of the saturation magnetization  $\sigma_s$  at low temperatures and the relatively weak ferromagnetic moment  $\mu_0 \simeq 0.27 \mu_B/\text{Cr}$ ) provide further support for the itinerant character of the ferromagnetism of  $\text{CrBe}_{12}$ . On the other hand, the behaviour of the electrical resistivity  $\rho(T)$  of  $\text{CrBe}_{12}$  raised some problems :  $\rho(T)$  is neither linear to  $T^2$  nor to  $T^{3/2}$  at  $T < T_c$  and the spin-disorder residual resistivity is relatively important owing to the anomaly in  $\rho(T)$  at  $T = T_c$ . The thermal variation curve of  $\rho(T)$  of  $\text{VBe}_{12}$  has an almost parabolic shape at low temperatures :  $\rho(T) \simeq \rho_0 + aT^n$  with  $n \sim 2$ .

Finally, the ferromagnetism of  $\text{CrBe}_{12}$  could be interpreted as resulting from a mechanism of indirect exchange between the localized moments (at the Cr sites) through the conduction electrons of the  $\text{CrBe}_{12}$  matrix. The ferromagnetism of  $\text{CrBe}_{12}$  may be considered as a localized limit of the generalized model of spin fluctuations in itinerant ferromagnetism, model recently proposed by Moriya.

### 1. Introduction.

L'ensemble des études magnétiques et calorimétriques ([1] à [5]) effectuées jusqu'à présent sur le composé intermétallique  $\text{CrBe}_{12}$ , a permis de classer ce composé comme ferromagnétique faible et itinérant. Les propriétés caractéristiques du composé  $\text{CrBe}_{12}$  peuvent se résumer comme suit.

(i) Ce composé cristallise dans la structure tétragonale centrée D2d (du type  $\text{ThMn}_{12}$ ) de paramètres  $a = 7,230 \text{ \AA}$  et  $c = 4,173 \text{ \AA}$  (d'après Pearson [6]).

(ii) Le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  est caractérisé par un point de Curie assez bas ( $T_c \simeq 50 \text{ K}$ , [1], [3]) et par un moment ferromagnétique absolu  $\mu_0$  relativement faible :  $\mu_0 \simeq 0,34 \mu_B/\text{Cr}$  [1] (1 Cr correspondant à  $A = \text{CrBe}_{12} \simeq 160,166 \text{ g}$  de  $\text{CrBe}_{12}$ ). La valeur modérée du champ coercitif  $H_c$  de  $\text{CrBe}_{12}$  ( $H_c \simeq 215 \text{ Oe}$  à  $4,2 \text{ K}$ , [1]) laisse prévoir une énergie d'anisotropie magnétocristalline modérée, voire faible pour ce composé.

(iii) Le rapport caractéristique  $q_c/q_s$  des nombres de porteurs  $q_c$  (dédit de la constante de Curie para-

magnétique) et  $q_s$  (dédit du moment ferromagnétique absolu), est de l'ordre de 4 pour  $\text{CrBe}_{12}$ , ce qui constitue le principal argument en faveur du caractère itinérant du ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  d'après le critère de Rhodes et de Wohlfarth [7, 8].

(iv) Les atomes de Cr ne constituent pas les seuls porteurs de moments magnétiques dans  $\text{CrBe}_{12}$ . En effet, les expériences [2] de RMN effectuées sur  $\text{CrBe}_{12}$  dans l'état ferromagnétique et dans l'état paramagnétique, ont montré l'existence d'une densité non négligeable de polarisation magnétique des atomes de Be, polarisation reconnue comme anti-parallèle aux moments des atomes de Cr.

(v) Le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  a été interprété comme résultant d'un mécanisme d'échange indirect entre les moments localisés sur les atomes de Cr par l'intermédiaire des électrons de conduction de la matrice de  $\text{CrBe}_{12}$ . On peut aussi concevoir le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  comme limite localisée du modèle généralisé de fluctuation de spin de ferromagnétisme itinérant (Moriya [9], Gautier [10]).

(vi) Cependant le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$  garde encore un caractère énigmatique. Une étude récente [11] de la transition de phase magnétique de  $\text{CrBe}_{12}$  en fonction de la pression  $P$  jusqu'à 19 kbar, a confirmé l'existence de la transition du ferromagnétisme au paramagnétisme sous  $P = 1$  bar, mais à  $T_c = T_{c_1} \simeq 46,4$  K. Cette étude a aussi montré — l'apparition d'une 2<sup>e</sup> transition vers  $T_{c_2} \simeq 29,6$  K sous l'effet de la pression, — la possibilité de suppression des 2 températures  $T_{c_1}$  et  $T_{c_2}$  de transition sous pression  $P$  assez élevée. Les résultats obtenus, notamment le comportement de  $T_{c_1}$  et  $T_{c_2}$  en fonction de  $P$ , ne concordent pas avec un simple modèle de ferromagnétisme itinérant, mais font appel à une interprétation plus complexe, soulignant ainsi le caractère énigmatique du ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$ .

Afin de compléter l'ensemble des données déjà acquises sur le ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$ , nous avons effectué sur ce composé des mesures d'aimantations en champs intenses ( $0 < H \leq 150$  kOe) et à basse température ( $4,2 \text{ K} \leq T \leq 35 \text{ K}$ ), ainsi que des mesures de résistivité électrique à champ nul ( $H = 0$ ) à basse température ( $1,25 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$ ). A titre de comparaison, nous avons aussi mesuré la résistivité électrique entre 1,75 K et 300 K du composé  $\text{VBe}_{12}$  isomorphe à  $\text{CrBe}_{12}$ , mais purement paramagnétique avec une susceptibilité  $\chi$  faible et variant relativement peu avec  $T$  ( $\chi \simeq 3,1 \times 10^{-6}$  uem/g/Oe à 4,2 K contre  $\chi \simeq 1,2 \times 10^{-6}$  uem/g/Oe à 1 105 K [12]).

## 2. Méthodes expérimentales.

Les composés  $\text{CrBe}_{12}$  et  $\text{VBe}_{12}$  ont été préparés par fusion des constituants massifs au four à induction, dans des creusets en glucine (BeO) sous atmosphère d'argon. La pureté nominale des constituants uti-

lisés, était de 99,0 % pour le Be (l'impureté principale étant l'oxyde BeO) et de 99,9 % pour le V et le Cr. Les échantillons obtenus ont été recuits durant 48 heures à 900 °C sous atmosphère d'argon, puis refroidis lentement à température ambiante. L'étude des poudres aux R.X. (clichés Debye-Scherrer) a confirmé la structure tétragonale centrée D2b des composés  $\text{VBe}_{12}$  et  $\text{CrBe}_{12}$  obtenus, les valeurs des paramètres  $a$  et  $c$  correspondants étant en accord satisfaisant avec la littérature. La proportion volumique de phase étrangère peut être considérée comme négligeable dans nos échantillons de  $\text{CrBe}_{12}$  et de  $\text{VBe}_{12}$ .

Nous avons caractérisé complètement notre échantillon de  $\text{CrBe}_{12}$  en déterminant son point de Curie ferromagnétique :  $T_c = 44 \pm 1$  K par extrapolation à  $\sigma_r = 0$  du graphe de l'aimantation rémanente  $\sigma_r = \sigma_r(T)$  relevé (au moyen d'un magnétomètre de Foner) dans un champ de 13 Oe après aimantation de l'échantillon dans un champ de 20 kOe à 4,2 K. Les différences relatives entre ce point de Curie  $T_c$  et les valeurs  $T_c \simeq 50$  K [1], [3] et  $T_c \simeq 46,4$  K [11], peuvent s'expliquer par l'existence dans notre échantillon d'un léger excédent de Be sur la composition exacte  $\text{CrBe}_{12}$ , l'écart stoechiométrique relatif correspondant étant estimé inférieur à 1 %.

Les mesures d'aimantations en champs intenses ( $0 < H \leq 150$  kOe) ont été faites au S.N.C.I. (Grenoble, France) avec l'équipement adéquat (magnétomètre à extraction verticale, bobine de Bitter à 5 MW de puissance, calorimètre à température variable). L'étalonnage en valeur absolue des aimantations a été réalisé au moyen d'échantillons étalons de  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  [13] et de Ni [14]. L'incertitude relative de nos mesures d'aimantations peut être considérée comme inférieure à 1 %.

La résistivité a été mesurée avec un pont de mesures alternatif donnant, pour les valeurs des résistances mesurées, une résolution de  $10^{-4}$ . Le système de mesure est doté d'un dispositif d'acquisition de données [15] avec micro-ordinateur. L'imprécision majeure sur la résistivité réside dans les difficultés rencontrées pour déterminer les dimensions de l'échantillon (section et longueur entre prises de tensions). La valeur absolue de  $\rho$  n'est obtenue qu'à quelques pour cent près, ce qui nous dispense de toutes corrections ultérieures comme par exemple de tenir compte des effets de dilatation thermique dans l'analyse des résultats.

## 3. Résultats expérimentaux.

3.1 AIMANTATIONS EN CHAMPS INTENSES. — Les isothermes d'aimantations massiques  $\sigma = \sigma(H, T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$  ont été relevées à diverses températures  $T$  entre 4,2 K et 35 K en fonction du champ interne ou effectif  $H$  entre 0 et 150 kOe (champ  $H$  corrigé de l'effet du champ démagnétisant). Les courbes iso-

thermes correspondantes (non représentées ici) montrent une approche assez rapide à la saturation (pour  $H \geq 30$  kOe) de l'aimantation de CrBe<sub>12</sub> à toutes les températures étudiées, suggérant une loi d'approche à la saturation en  $1/H^2$ . Pour déterminer l'aimantation à saturation  $\sigma_s(T)$  et la susceptibilité paramagnétique superposée  $\chi_H(T)$  de CrBe<sub>12</sub>, nous avons analysé les données d'aimantations  $\sigma(H, T)$  en champs intenses au moyen de l'expression classique (I)  $\sigma(H, T) = H\chi_H(T) + \sigma_s(T) [1 - H_0^2(T)/H^2]$ , où  $H\chi_H(T)$  représente le paramagnétisme superposé (supposé linéaire en champ) et  $H_0(T)$  constitue un champ caractérisant la rapidité d'approche à la saturation (en  $1/H^2$ ) de l'aimantation ferromagnétique  $\sigma(H, T) - H\chi_H(T)$  de CrBe<sub>12</sub>. La susceptibilité différentielle  $d\sigma(H, T)/dH$  à haut champ conduit directement à la susceptibilité paramagnétique superposée  $\chi_H(T)$  de CrBe<sub>12</sub> par  $d\sigma(H, T)/dH = \chi_H(T) + 2\sigma_s(T)H_0^2(T)/H^3$ . La linéarité de  $d\sigma(H, T)/dH$  en  $1/H^3$  a été effectivement observée (à l'erreur expérimentale près) à toutes les températures étudiées dans la limite  $H > 30$  kOe, permettant la détermination de  $\chi_H(T)$ .

La figure 1 illustre les variations en  $1/H^2$  de l'aimantation ferromagnétique  $\sigma - H\chi_H$  de CrBe<sub>12</sub> pour toutes les températures étudiées. Comme le montre cette figure, la loi (I) est suivie à mieux de 1 % près sur toute l'étendue de champ  $31 \text{ kOe} \leq H \leq 150 \text{ kOe}$  à  $48 \text{ kOe} \leq H \leq 150 \text{ kOe}$  (suivant  $T$ ), conduisant à une détermination précise de l'aimantation à saturation  $\sigma_s(T)$  de CrBe<sub>12</sub>. Nous avons aussi pu déterminer cette aimantation  $\sigma_s(T)$  au moyen des portions des isothermes d'aimantations  $\sigma(H, T)$  en  $H$  correspondant à la pleine saturation de l'aimantation ferromagnétique :  $\sigma(H, T) - H\chi_H(T) \approx \sigma_s(T)$  dans les champs assez élevés ( $H \geq 80$  kOe à  $H \geq 100$  kOe, suivant  $T$ ). Nous avons vérifié la bonne concordance entre les 2 séries de valeurs obtenues pour  $\sigma_s(T)$ , l'écart relatif maximal reste inférieur à 1 % pour toutes les températures étudiées. Néanmoins nous gardons comme valeurs définitives de  $\sigma_s(T)$  les valeurs obtenues par les lois d'approche à la saturation en  $1/H^2$  (Fig. 1).

La figure 2 illustre les variations thermiques des 3 grandeurs  $\chi_H(T)$ ,  $H_0(T)$  et  $\sigma_s(T)$ . La croissance fai-

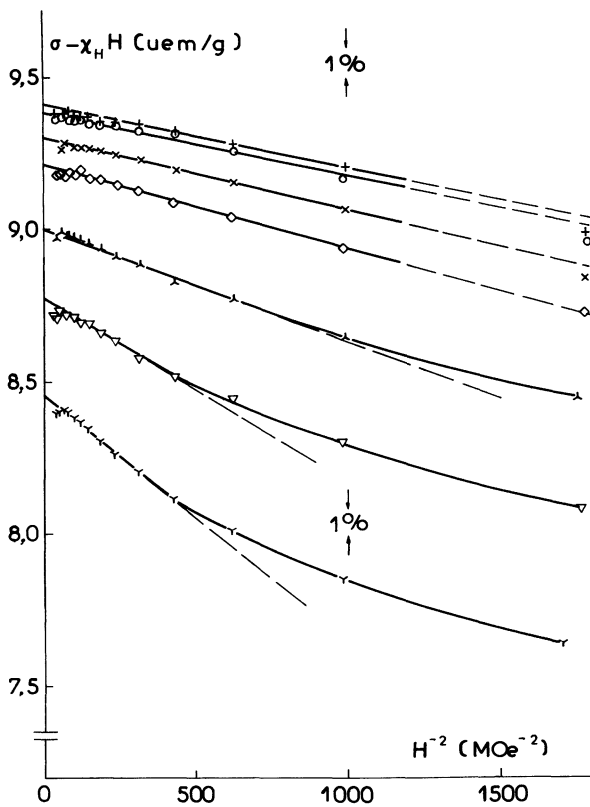


Fig. 1. — Isothermes des aimantations ferromagnétiques  $\sigma - H\chi_H$  (en uem/g) de CrBe<sub>12</sub> en fonction de  $H^{-2}$  (en MOe<sup>-2</sup>) avec  $H = 23,5$  kOe à 150 kOe, à  $T = + 4,2$  K;  $\circ$  8,1 K;  $\times$  12,5 K;  $\diamond$  16,6 K;  $\lambda$  23,4 K;  $\nabla$  29,2 K et  $\Upsilon$  31,5 K.

[Isothermal curves of the ferromagnetic magnetization  $\sigma - H\chi_H$  (in emu.g<sup>-1</sup>) of CrBe<sub>12</sub> against  $H^{-2}$  (in MOe<sup>-2</sup>) with  $H = 23.5$  kOe to 150 kOe, at  $T = + 4.2$  K;  $\circ$  8.1 K;  $\times$  12.5 K;  $\diamond$  16.6 K;  $\lambda$  23.4 K;  $\nabla$  29.2 K and  $\Upsilon$  31.5 K.]

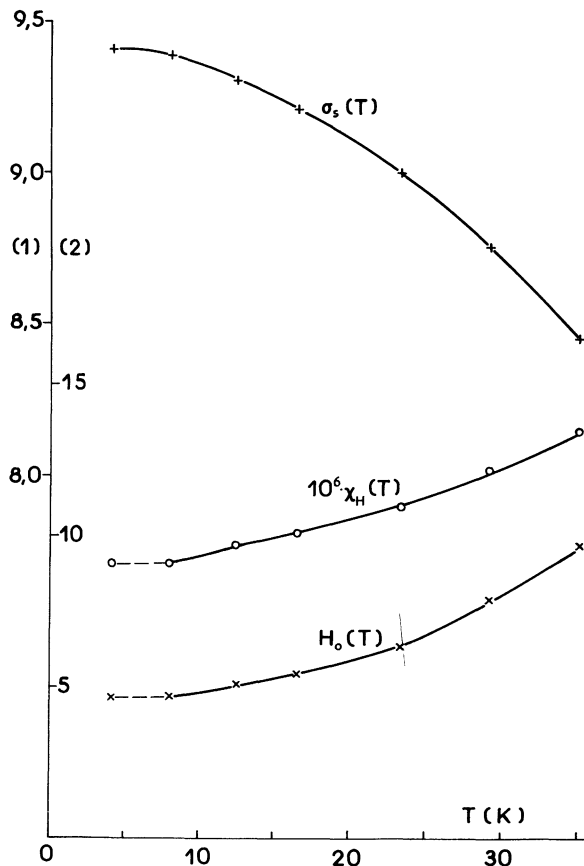


Fig. 2. — Variations thermiques des 3 grandeurs caractéristiques de CrBe<sub>12</sub> en champs intenses, + et échelle (1)  $\sigma_s(T)$  en uem/g,  $\circ$  et échelle (2)  $10^6 \chi_H(T)$  en uem/g/Oe,  $\times$  et échelle (2)  $H_0(T)$  en kOe.

[Thermal variations of the 3 characteristic quantities of CrBe<sub>12</sub> in high magnetic fields, + and scale (1)  $\sigma_s(T)$  in emu.g<sup>-1</sup>,  $\circ$  and scale (2)  $10^6 \chi_H(T)$  in emu.g<sup>-1</sup>.Oe<sup>-1</sup>,  $\times$  and scale (2)  $H_0(T)$  in kOe.]

ble ou modérée de  $\chi_H(T)$  avec  $T$  est un phénomène couramment observé pour les alliages ou composés ferromagnétiques à base de métaux de transition 3d. L'ordre de grandeur de  $\chi_H$  ( $\chi_H \sim 10 \times 10^{-6}$  uem/g/Oe) est compatible avec le paramagnétisme de bande 3d augmenté par effet d'échange électron-électron que l'on trouve usuellement dans les alliages ou composés à base d'éléments de transition 3d. La croissance du champ  $H_0(T)$  avec  $T$  illustre la diminution de la rapidité de saturation de l'aimantation ferromagnétique de  $\text{CrBe}_{12}$  vers les températures élevées ( $T \sim 35$  K). Ce paramètre semble être constant aux basses températures : à  $T < 10$  K,  $H_0(T) \simeq H_0^* \simeq 4,7$  kOe. Cette valeur constante  $H_0^*$  (si elle existe réellement) constitue une mesure plus ou moins fidèle du (ou de la somme des) potentiel(s)  $V_0$  des interactions d'échange indirect (du type RKKY) entre porteurs de moments localisés (ici les atomes de Cr) par l'intermédiaire des électrons de conduction de la matrice.

La variation de l'aimantation  $\sigma_s(T)$  n'est pas linéaire en  $T$ , ce qui suggère l'analyse de  $\sigma_s(T)$  en  $T^2$  d'une part et en  $T^{3/2}$  d'autre part (Fig. 3). Cette figure montre la linéarité de  $\sigma_s(T)$  en  $T^2$  :  $\sigma_s(T) = \sigma_0[1 - \alpha T^2]$  pour  $T = 4,2$  K à 29,2 K avec  $\alpha = 7,680 \times 10^{-4}$  uem.g $^{-1}$ .K $^{-2}$ .

Nous en déduisons l'aimantation absolue  $\sigma_0 = \sigma_s(T = 0$  K) et le moment ferromagnétique absolu  $\mu_0$  de  $\text{CrBe}_{12}$  :  $\sigma_0 \approx 9,422$  uem/g et  $\mu_0 \approx 0,270$   $\mu_B$ /Cr (1 Cr correspondant à  $A = \text{CrBe}_{12} \approx 160,166$  g de  $\text{CrBe}_{12}$ ).

Le comportement linéaire de  $\sigma_s(T)$  en  $T^2$  à basse température ( $T < T_c$ ), loi caractéristique du ferro-

magnétisme itinérant, constitue le résultat essentiel de cette partie (cf. discussion au 4<sup>e</sup> §).

**3.2 RÉSISTIVITÉS ÉLECTRIQUES.** — Les résistivités électriques  $\rho = \rho(T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$  et de  $\text{VBe}_{12}$  ont été mesurées en champ nul ( $H = 0$ ) en fonction de la température  $T$  entre 1,25 K et 294 K. La figure 4 illustre les variations thermiques correspondantes. L'allure des 2 graphes  $\rho = \rho(T)$  vers 290 K montre que  $\rho(T)$  ne tend vers la linéarité en  $T$  qu'aux températures les plus élevées ( $T \sim 290$  K).

Le graphe de  $\rho(T)$  en  $T$  de  $\text{CrBe}_{12}$  comporte une anomalie très marquée au point de Curie ferromagnétique  $T_c \simeq 44$  K (en accord avec la valeur  $T_c = 44 \pm 1$  K citée plus haut pour notre échantillon de  $\text{CrBe}_{12}$ ); alors que le graphe de  $\rho(T)$  en  $T$  de  $\text{VBe}_{12}$  a une allure régulière et quasi parabolique.

Nous avons d'abord procédé à l'examen détaillé des variations de  $\rho(T)$  avec  $T$  pour  $\text{CrBe}_{12}$  et  $\text{VBe}_{12}$  aux très basses températures ( $1,25$  K  $\leq T \leq 6$  K). La résistivité  $\rho(T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$  ne présente pas de minima en fonction de  $T$  :  $\rho(T)$  est une fonction monotone et croissante avec  $T$  sur tout l'intervalle  $1,25$  K  $\leq T \leq 294$  K. Une première estimation de la résistivité résiduelle  $\rho_0$  de  $\text{CrBe}_{12}$  donne  $\rho_0 \simeq 2,27$   $\mu\Omega$  cm. Par contre, nous n'avons pas pu établir avec certitude la loi de variation de  $\rho(T)$  de  $\text{VBe}_{12}$  avec  $T$  entre 1,75 et 5,7 K, car cette variation est inférieure à la dispersion des points expérimentaux correspondants sur cet intervalle de température. Cependant, une extrapolation linéaire à  $T = 0$  de  $\rho(T)$  en  $T^2$  a permis une

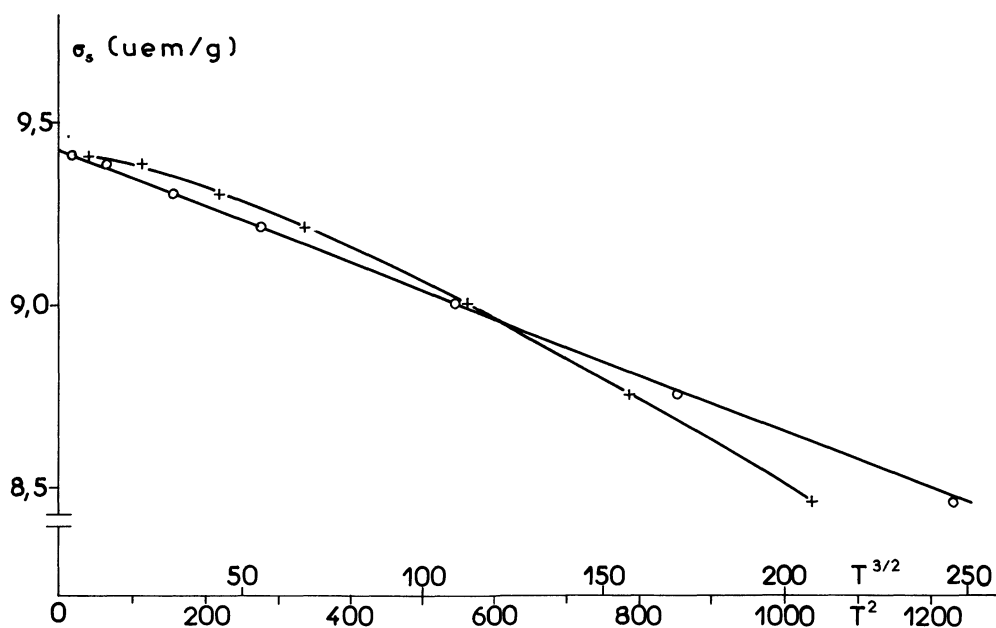


Fig. 3. — Analyse de  $\sigma_s(T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$  en  $T^{3/2}$  (points +) et en  $T^2$  (points O) avec  $T$  en K ;  $\sigma_s(T)$  est linéaire en  $T^2$  (à l'erreur expérimentale près) sur l'étendue de température  $T = 4,2$  K à 29,2 K.

[Analysis of  $\sigma_s(T)$  of  $\text{CrBe}_{12}$  against  $T^{3/2}$  (+ plots) and against  $T^2$  (O plots) with  $T$  in K ;  $\sigma_s(T)$  behaves linearly against  $T^2$  (within the experimental error) over the temperature range  $T = 4.2$  K to 29.2 K.]

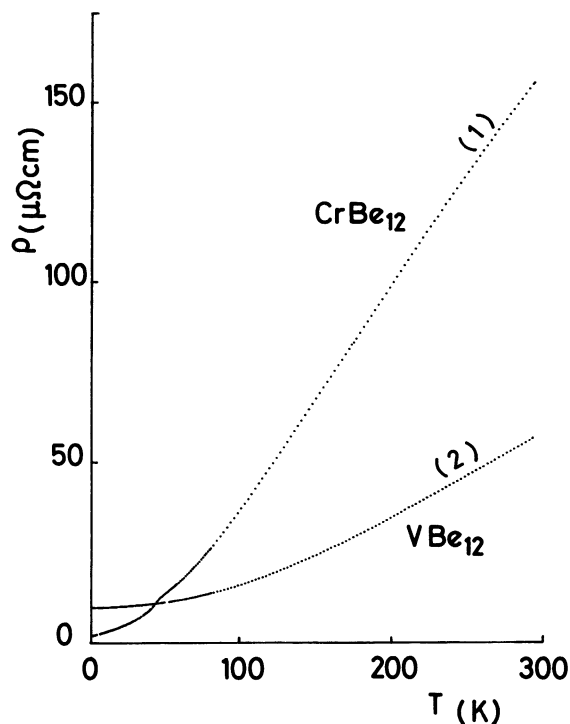


Fig. 4. — Variations thermiques des résistivités électriques  $\rho(T)$  en  $\mu\Omega$  cm de CrBe<sub>12</sub> (graphe 1) et de VBe<sub>12</sub> (graphe 2) entre 1,25 K et 294 K.

[Thermal variation of the electrical resistivities  $\rho(T)$  in  $\mu\Omega$  cm of CrBe<sub>12</sub> (curve 1) and of VBe<sub>12</sub> (curve 2) between 1.25 K and 294 K.]

première estimation de la résistivité résiduelle  $\rho_0$  de Be<sub>12</sub>V :  $\rho_0 \approx 10,10 \mu\Omega$  cm.

Nous sommes limités à une analyse purement phénoménologique des variations thermiques de  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> sur toute l'étendue des températures explorées (1,25 K à 294 K), à part le voisinage immédiat du point de Curie ( $T \approx T_c$ ) faisant l'objet d'un travail ultérieur (en cours). Les principaux résultats de cette analyse peuvent être résumés comme suit.

(i) Les variations thermiques de  $\rho(T)$  aux très basses températures (1,25 K à 6 K) ne laissent pas apparaître de manière évidente une simple loi de puissance (en  $T^2$  ou en  $T^{3/2}$ ).

(ii) Le comportement de la résistivité  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> dans l'état ferromagnétique peut être représenté qualitativement par 2 lois empiriques différentes.

— La loi  $\rho(T) \approx \rho_0 + aT^n$ , suivie entre 1,26 K et 22,5 K et obtenue par itération sur  $\rho_0$  dans la représentation  $\log(\rho - \rho_0)$  en  $\log T$  (Fig. 5a) est caractérisée par les paramètres  $\rho_0 = 2,273 \mu\Omega$  cm,  $n \approx 1,247$  et  $a \approx 0,0610 \mu\Omega$  cm.  $K^{-n}$ .

— La loi  $\rho(T) = \rho_0 + AT + BT^2$ , suivie entre 3,6 K et 32,9 K (Fig. 5b) et obtenue par itération sur  $\rho_0$  dans la représentation  $(\rho - \rho_0)/T$  en  $T$ , est caractérisée par les paramètres  $\rho_0 = 2,261 \mu\Omega$  cm,  $A \approx 0,0869 \mu\Omega$  cm.  $K^{-1}$  et  $B \approx 0,00215 \mu\Omega$  cm.  $K^{-2}$ .

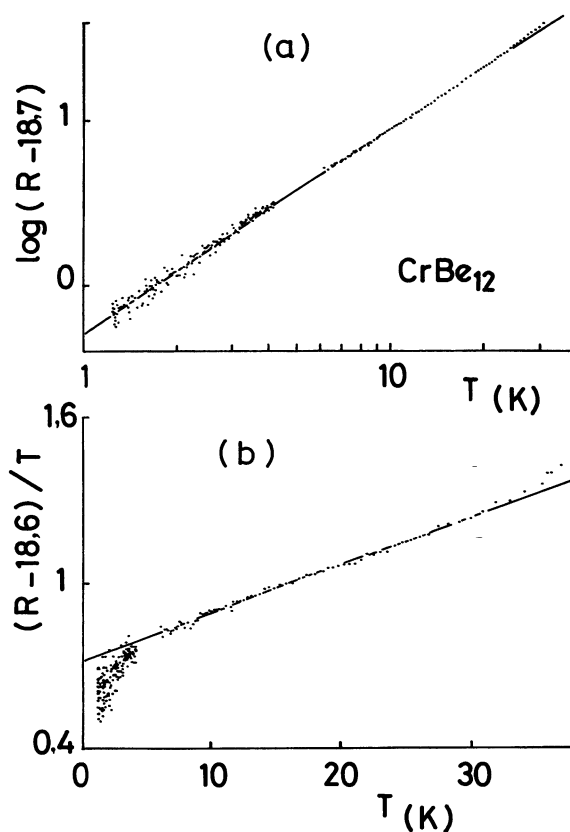


Fig. 5. — Analyse de  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> à  $T < T_c$  par  $R(T) = (l/s) \rho(T)$ , le facteur  $l/s$  étant supposé constant. (a) Représentation  $\log(R - R_0)$  en  $\log T$  entre 1,26 K et 32 K avec  $R_0 = 18,700 \mu\Omega$  donnant  $\rho_0 = 2,273 \mu\Omega$  cm et  $\rho(T) \approx \rho_0 + aT^n$  entre 1,26 K et 22,5 K avec  $n \approx 1,247$  et  $a \approx 0,0610 \mu\Omega$  cm.  $K^{-n}$ . (b) Représentation  $(R - R_0)/T$  en  $T$  entre 1,25 K et 38 K avec  $R_0 = 18,600 \mu\Omega$ , donnant  $\rho_0 = 2,261 \mu\Omega$  cm et  $\rho(T) \approx \rho_0 + AT + BT^2$  entre 3,6 K et 32,9 K avec  $A \approx 0,0869 \mu\Omega$  cm.  $K^{-1}$  et  $B \approx 0,00215 \mu\Omega$  cm.  $K^{-2}$ .

[Analysis of  $\rho(T)$  of CrBe<sub>12</sub> at  $T < T_c$  through  $R(T) = (l/s) \rho(T)$ , where the factor  $(l/s)$  is assumed to be constant. (a) The  $\log(R - R_0)$  vs.  $\log T$  representation between 1.26 K and 32 K with  $R_0 = 18.700 \mu\Omega$  yielding to  $\rho_0 = 2.273 \mu\Omega$  cm and to  $\rho(T) \approx \rho_0 + aT^n$  between 1.26 K and 22.5 K with  $n \approx 1.247$  and  $a \approx 0.0610 \mu\Omega$  cm.  $K^{-n}$ . (b) The  $(R - R_0)/T$  vs.  $T$  representation between 1.25 K and 38 K with  $R_0 = 18.600 \mu\Omega$ , yielding to  $\rho_0 = 2.261 \mu\Omega$  cm and  $\rho(T) \approx \rho_0 + AT + BT^2$  between 3.6 K and 32.9 K with  $A \approx 0.0869 \mu\Omega$  cm.  $K^{-1}$  and  $B \approx 0.00215 \mu\Omega$  cm.  $K^{-2}$ .]

— Au vu de la précision de nos mesures et au stade actuel de nos expériences, il nous est difficile de faire un choix définitif entre les 2 lois ci-dessus pour représenter analytiquement la résistivité  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> à  $T < T_c$ . La résistivité résiduelle de CrBe<sub>12</sub> peut être donnée sous forme de compromis entre ces 2 lois :  $\rho_0 = 2,27 \pm 0,01 \mu\Omega$  cm.

(iii) Le comportement de la résistivité  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> dans l'état paramagnétique a été analysé dans la représentation  $\log(\rho - \rho_0)$  vs.  $\log T$ , où le

paramètre  $\rho'_0$  désigne la résistivité résiduelle de  $\text{CrBe}_{12}$  dans l'état paramagnétique. Une itération sur  $\rho'_0$  dans cette représentation a conduit à la valeur optimale  $\rho'_0 = 5,835 \mu\Omega \text{ cm}$  de ce paramètre et à une succession de lois empiriques (cf. Fig. 6) du type

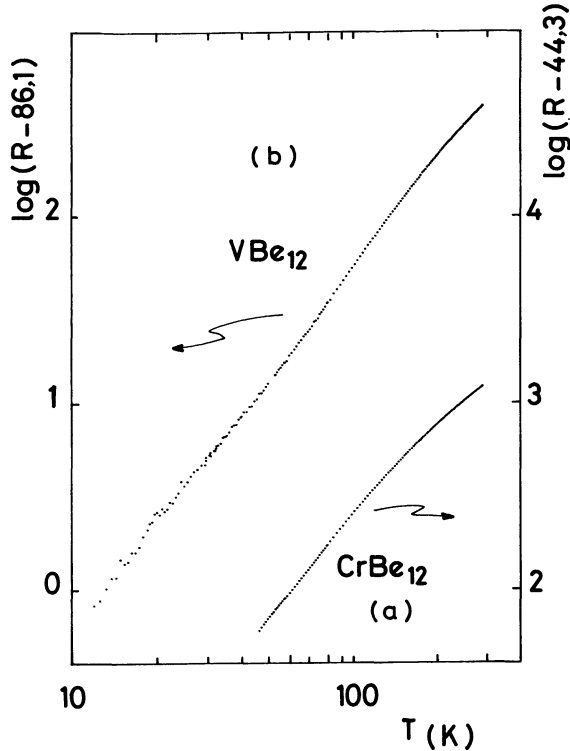


Fig. 6. — Analyses de  $\rho(T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$  à  $T > T_c$  (entre 46 K et 294 K) et de  $\text{VBe}_{12}$  entre 5,7 K et 294 K par  $R(T) = (l/s) \rho(T)$ , le facteur  $l/s$  étant supposé constant pour chacun des 2 échantillons. (a) Représentation  $\log(R - R'_0)$  en  $\log T$  pour  $\text{CrBe}_{12}$  avec  $R'_0 = 44,3 \mu\Omega$  donnant  $\rho'_0 = 5,835 \mu\Omega \text{ cm}$  et (1)  $\rho(T) \approx \rho'_0 + a' T^{n'}$  entre 48,8 K et 110,5 K avec  $n' \approx 1,85$  et  $a' \approx 0,0614 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n'}$ ; (2)  $\rho(T) \approx \rho'_0 + a'' T^{n''}$  entre 216 K et 294 K avec  $n'' \approx 1,20$  et  $a'' \approx 0,1642 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n''}$ . (b) Représentation  $\log(R - R_0)$  en  $\log T$  pour  $\text{VBe}_{12}$  avec  $R_0 = 86,1 \mu\Omega$  donnant  $\rho_0 = 10,102 \mu\Omega \text{ cm}$  et (1)  $\rho(T) \approx \rho_0 + a T^n$  entre 5,7 K et 48,2 K avec  $n \approx 1,82$  et  $a \approx 0,00118 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n}$ ; (2)  $\rho(T) \approx \rho_0 + a' T^{n'}$  entre 48,2 K et 151 K avec  $n' \approx 2,08$  et  $a' \approx 0,00044 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n'}$ ; (3)  $\rho(T) \approx \rho_0 + a'' T^{n''}$  entre 207 K et 293 K avec  $n'' \approx 1,59$  et  $a'' \approx 0,0552 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n''}$ .

[Analyses of  $\rho(T)$  of  $\text{CrBe}_{12}$  at  $T > T_c$  (between 46 K and 294 K) and of  $\text{VBe}_{12}$  between 5.7 K and 294 K through  $R(T) = (l/s) \rho(T)$ , where the factor  $(l/s)$  is assumed to be constant for each of both samples. (a) The  $\log(R - R'_0)$  vs.  $\log T$  representation for  $\text{CrBe}_{12}$  with  $R'_0 = 44.3 \mu\Omega$  yielding to  $\rho'_0 = 5.835 \mu\Omega \text{ cm}$  and to (1)  $\rho(T) \approx \rho'_0 + a' T^{n'}$  between 48.8 K and 110.5 K with  $n' \approx 1.85$  and  $a' \approx 0.0614 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n'}$ ; (2)  $\rho(T) \approx \rho'_0 + a'' T^{n''}$  between 216 K and 294 K with  $n'' \approx 1.20$  and  $a'' \approx 0.1642 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n''}$ . (b) The  $\log(R - R_0)$  vs.  $\log T$  representation for  $\text{VBe}_{12}$  with  $R_0 = 86.1 \mu\Omega$  yielding to  $\rho_0 = 10.102 \mu\Omega \text{ cm}$  and to (1)  $\rho(T) \approx \rho_0 + a T^n$  between 5.7 K and 48.2 K with  $n \approx 1.82$  and  $a \approx 0.00118 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n}$ ; (2)  $\rho(T) \approx \rho_0 + a' T^{n'}$  between 48.2 K and 151 K with  $n' \approx 2.08$  and  $a' \approx 0.00044 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n'}$ ; (3)  $\rho(T) \approx \rho_0 + a'' T^{n''}$  between 207 K and 293 K with  $n'' \approx 1.59$  and  $a'' \approx 0.0552 \mu\Omega \text{ cm} \cdot \text{K}^{-n''}$ .]

$\rho(T) \approx \rho'_0 + aT^n$ , l'exposant  $n$  passant de la valeur  $n' \approx 1,85$  entre 49 K et 110,5 K à la valeur  $n'' \approx 1,20$  entre 216 K et 294 K. La décroissance de l'exposant  $n$  vers  $T \geq 110,5 \text{ K}$  ( $n'' < n'$ ) est compatible avec l'évolution de la résistivité  $\rho(T)$  de  $\text{CrBe}_{12}$  vers la linéarité en  $T$  aux températures les plus élevées.

(iv) La différence  $\Delta\rho_0 = \rho'_0 - \rho_0$  constitue la résistivité (résiduelle) de désordre de spin. Elle n'est pas négligeable pour  $\text{CrBe}_{12}$  :  $\Delta\rho_0 \approx 3,124 \mu\Omega \text{ cm}$  est du même ordre de grandeur que  $\rho_0 \approx 2,27 \mu\Omega \text{ cm}$ .

De même que pour  $\text{CrBe}_{12}$ , nous nous sommes limités à une analyse purement phénoménologique des variations thermiques de  $\rho(T)$  de  $\text{VBe}_{12}$  au moyen de la représentation  $\log(\rho - \rho_0)$  en  $\log T$  sur toute l'étendue des températures explorées (1,75 K à 294 K). Les résultats de cette analyse peuvent être résumés comme suit.

(i) Par itération sur  $\rho_0$  dans cette représentation, entre 5,7 K et 294 K, nous avons obtenu la valeur optimale  $\rho_0 = 10,102 \mu\Omega \text{ cm}$  de ce paramètre et une succession de lois empiriques de puissance  $\rho(T) \approx \rho_0 + aT^n$  (cf. Fig. 6), l'exposant  $n$  prenant les valeurs successives  $n \approx 1,82$  entre 5,7 K et 48,2 K ;  $n' \approx 2,08$  entre 48,2 K et 151 K et  $n'' \approx 1,59$  entre 207 K et 293 K. Comme nous l'avons déjà signalé plus haut, les variations thermiques de  $\rho(T)$  entre 1,75 K et 5,4 K ne sont pas suffisantes pour déterminer de telles lois dans ce domaine de température.

(ii) Ces lois confirment l'allure quasi parabolique du graphe  $\rho(T)$  en  $T$  de  $\text{VBe}_{12}$  aux températures assez basses ( $n$  et  $n' \sim 2$  pour  $T \leq 151 \text{ K}$ ). La décroissance de l'exposant  $n$  de  $\rho - \rho_0$  en  $T$  ( $n'' < n'$ ) concorde avec l'évolution de  $\rho(T)$  vers la linéarité en  $T$  aux températures les plus élevées. L'évolution de l'exposant  $n$  ( $n \approx 1,82$  à  $n' \approx 2,08$ , puis à  $n'' \approx 1,59$ ) avec la température, peut être expliquée par l'existence d'une contribution de phonons variant classiquement en  $T^5$  vers 50 K et tendant vers une loi en  $T$  aux plus hautes températures ( $T \sim 290 \text{ K}$ ).

(iii) On peut noter que la résistivité résiduelle de  $\text{VBe}_{12}$ , purement paramagnétique, est nettement plus élevée que celle de  $\text{CrBe}_{12}$  qui est ferromagnétique :  $\rho_0 \approx 10,10 \mu\Omega \text{ cm}$  pour  $\text{VBe}_{12}$ , alors que  $\rho_0 \approx 2,27 \mu\Omega \text{ cm}$  pour  $\text{CrBe}_{12}$  dans l'état ferromagnétique, voire  $\rho'_0 \approx 5,835 \mu\Omega \text{ cm}$  pour  $\text{CrBe}_{12}$  dans l'état paramagnétique. Nous n'avons, actuellement, aucune explication pour ce résultat.

#### 4. Discussion et conclusion.

Les propriétés ferromagnétiques de  $\text{CrBe}_{12}$  en champs intenses, rapportées dans ce travail (moment absolu relativement faible  $\mu_0 \approx 0,27 \mu_B/\text{Cr}$  et linéarité en  $T^2$  de l'aimantation à saturation  $\sigma_s$  à basse température) constituent des arguments supplémentaires en faveur du caractère itinérant du ferromagnétisme de  $\text{CrBe}_{12}$ .

Cependant, les résultats de l'étude de la résistivité

$\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> soulèvent un certain nombre de problèmes. Citons à cet effet :

(i) le problème de l'existence d'un domaine de basse température ( $T \leq 6$  K) où  $\rho(T)$  serait linéaire en  $T^2$  ou, à défaut, en  $T^{3/2}$ ;

(ii) l'importance relative de la résistivité  $\Delta\rho_0$  de désordre de spin ( $\Delta\rho_0 \approx 3,124 \mu\Omega$  cm contre  $\rho_0 \approx 2,27 \mu\Omega$  cm), alors que pour ZrZn<sub>2</sub> (composé reconnu comme typique du ferromagnétisme itinérant) l'on observe [16, 17]  $\Delta\rho_0$  faible ou nul, de même que pour Sc<sub>3</sub>In [18], ainsi que pour les alliages (Ni<sub>1-x</sub>Pd<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Al [19];

(iii) la difficulté d'un choix entre les 2 lois empiriques  $\rho(T) \simeq \rho_0 + AT + BT^2$  et  $\rho(T) = \rho_0 + aT^n$  ( $n \simeq 1,25$ ) pour représenter phénoménologiquement les variations thermiques de  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> à  $T < T_c$ .

Cependant, nous pouvons tenter l'interprétation du comportement de  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> dans le cadre de la théorie généralisée de fluctuation de spin de ferromagnétisme itinérant [9, 10]. A cet effet, nous utilisons, à titre de comparaison, les principaux résultats des études [20, 21] de résistivité électrique  $\rho(T)$  effectuées sur le composé Au<sub>4</sub>V ordonné dont les propriétés ferromagnétiques ont aussi été interprétées [21] dans cette théorie généralisée. La résistivité  $\rho(T)$  de ce composé est linéaire en  $T^2$  à basse température :  $\rho = \rho_0 + AT^2$  à  $T < T_c$ , ce résultat est très bien expliqué en termes de fluctuations de spin dans la théorie de Ueda-Moriya [22]. L'anomalie de  $\rho(T)$  à  $T = T_c$  conduit à une résistivité de désordre de spin  $\Delta\rho_0$  qui est loin d'être négligeable devant la résistivité résiduelle  $\rho_0$  :  $\Delta\rho_0 \simeq 25 \mu\Omega$  cm contre  $\rho_0 = 70,5 \mu\Omega$  cm. En attribuant un sens physique à la loi empirique  $\rho = \rho_0 + AT + BT^2$  rendant aussi compte des variations thermiques de  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> à  $T < T_c$ , on pourrait aussi interpréter le terme  $BT^2$  comme résultant des fluctuations de spin dans la théorie de Ueda-Moriya [22]; le terme  $AT$  montrerait l'existence de contributions supplémentaires à la résistivité de CrBe<sub>12</sub>, contributions linéaires en  $T$  dont l'origine peut être magnétique et (ou) autre (phonons à basse température ?). On pourrait aussi invoquer l'existence d'une faible proportion de sites magnétiques différents pour les atomes de Cr, résultant de la faible non-stoechiométrie de notre échantillon de CrBe<sub>12</sub>.

Il nous reste à souligner la valeur plutôt élevée de la résistivité électrique de CrBe<sub>12</sub> à température ambiante :  $\rho$  (294 K)  $\simeq 155 \mu\Omega$  cm pour CrBe<sub>12</sub>

contre  $\rho$  (294 K)  $\simeq 57 \mu\Omega$  cm pour VBe<sub>12</sub>. La valeur élevée de  $\rho$  (294 K) de CrBe<sub>12</sub> peut être utilement comparée à celles que l'on observe pour d'autres composés à magnétisme itinérant tels que TiBe<sub>2</sub> avec  $\rho$  (294 K)  $\sim 80 \mu\Omega$  cm à  $100 \mu\Omega$  cm [15, 23, 24], Au<sub>4</sub>V ordonné avec  $\rho$  (294 K)  $\simeq 160 \mu\Omega$  cm [20, 21], Sc<sub>3</sub>In avec  $\rho$  (294 K)  $\sim 340 \mu\Omega$  cm obtenue par extrapolation linéaire en  $T$  du graphe  $\rho(T)$  en  $T$  [18], et ZrZn<sub>2</sub> avec  $\rho$  (294 K)  $\simeq 660 \mu\Omega$  cm [17]. Cette comparaison montre que la résistivité  $\rho$  (294 K) de CrBe<sub>12</sub> se range parmi toutes les résistivités  $\rho$  (294 K) élevées des composés typiquement itinérants évoqués ci-dessus. De ce fait, on peut considérer cette propriété comme une autre caractéristique des composés à magnétisme itinérant.

L'ensemble des propositions énoncées ci-dessus constitue une limite de ce que l'on peut tirer de notre analyse purement phénoménologique des données de résistivité  $\rho(T)$  de CrBe<sub>12</sub> et de VBe<sub>12</sub>. Une exploitation plus poussée de ces données (notamment toute séparation quantitative des diverses contributions à la résistivité), ne peut se faire qu'au moyen de modèles théoriques plus sophistiqués.

Finalement, nous concluons ce travail par les remarques ci-dessous.

(i) Les composés CrBe<sub>12</sub> et Au<sub>4</sub>V dont les moments sont plutôt localisés sur les atomes magnétiques respectifs Cr et V, ont une résistivité  $\Delta\rho_0$  de désordre de spin relativement importante, alors que les composés ZrZn<sub>2</sub>, Sc<sub>3</sub>In et (Ni<sub>1-x</sub>Pd<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Al dont le degré de localisation des moments sur les atomes magnétiques respectifs Zr, Sc et Ni est plutôt modéré ou faible, ont une résistivité  $\Delta\rho_0$  de désordre de spin faible, voir négligeable devant leur résistivité résiduelle  $\rho_0$ . Cette remarque pose la question de l'existence d'une corrélation entre le degré de localisation des moments sur les atomes magnétiques et l'importance relative de la résistivité  $\Delta\rho_0$  de désordre de spin dans les composés ou alliages 3d reconnus comme ferromagnétiques faibles et itinérants.

(ii) L'interprétation du ferromagnétisme de CrBe<sub>12</sub> reste celle donnée à l'introduction de ce travail : le ferromagnétisme de CrBe<sub>12</sub> résulterait d'un mécanisme d'échange indirect entre les moments localisés sur les atomes de Cr par l'intermédiaire des électrons de conduction de la matrice de CrBe<sub>12</sub>; le ferromagnétisme de CrBe<sub>12</sub> peut être décrit comme limite localisée du modèle généralisé de fluctuation de spin de ferromagnétisme itinérant (Moriya [9], Gautier [10]).

#### Bibliographie

- [1] WOLCOTT, N. M. and FALGE, R. L. Jr., *Phys. Rev.* **171** (1968) 591.  
 [2] WOLCOTT, N. M., FALGE, R. L. Jr., BENNETT, L. H. and WATSON, R. E., *Phys. Rev. Lett.* **21** (1968) 546.  
 [3] HERR, A. and KUENTZLER, R., *Phys. Status Solidi* **B 45** (1971) K1.  
 [4] WOLCOTT, N. M., FALGE, R. L. Jr. and BENNETT, L. H., *J. Appl. Phys.* **40** (1969) 1377.



- [5] KUENTZLER, R. and JESSER, R., *Solid State Commun.* **13** (1973) 915.
- [6] PEARSON, W. B., *A handbook of lattice spacings and structures of metals* (Pergamon Press, Oxford) 1967, Volume 2.
- [7] RHODES, P. and WOHLFARTH, E. P., *Proc. Roy. Soc. London A* **273** (1963) 247.
- [8] WOHLFARTH, E. P., *J. Magn. Magnet. Mat.* **7** (1978) 113.
- [9] MORIYA, T., *J. Magn. Magnet. Mat.* **14** (1979) 1.
- [10] GAUTIER, F., Itinerant Magnetism, in *Magnetism of Metals and Alloys* (Proc. of the Winter-School of Physics at Les Houches, France, February 1980), ed. Cyrot M. (North Holland Publishing Company), to be published 1984.
- [11] JIN, B. J., LIN, T. H., CHU, C. W., SHEN, Y. S. and SCHMIDT, P. H., *Phys. Rev. B* **26** (1982) 3878.
- [12] DOMNGANG, S. and JESSER, R., *J. Phys. F* **4** (1974) 890.
- [13] HINES, W. A. and MOELLER, C. W., *Rev. Sci. Instrum.* **44** (1973) 1544.
- [14] DANAN, H., HERR, A. and MEYER, A. J. P., *J. Appl. Phys.* **39** (1968) 669.
- [15] LEPETIT, R., Thèse de 3<sup>e</sup> cycle, Université de Grenoble (1983).
- [16] OLSEN, C. E., *J. Phys. Chem. Sol.* **19** (1961) 228.
- [17] OGAWA, S., *J. Phys. Soc. Japan* **40** (1976) 1007, *Physica* **91B** (1977) 82.
- [18] MASUDA, Y., HIOKI, T. and OOTA, A., *Physica* **91B** (1977) 291.
- [19] SATO, M., *J. Phys. Soc. Japan* **39** (1975) 98.
- [20] MAPLE, M. B. and LUO, H. L., *Phys. Lett.* **25A** (1967) 121.
- [21] ADACHI, K., MATSUI, M. and FUKUDA, Y., *J. Phys. Soc. Japan* **48** (1980) 62.
- [22] UEDA, K. and MORIYA, T., *J. Phys. Soc. Japan* **39** (1975) 605.
- [23] SHALTIEL, D., MONOD, P. et FELNER, I., *J. Physique Lett.* **41** (1980) L-567.
- [24] MONOD, P., FELNER, I., CHOUTEAU, G. et SHALTIEL, D., *J. Physique Lett.* **41** (1980) L-511.
-