



HAL
open science

Etude des propriétés magnétiques sous champs intenses de monocristaux de : gadolinium, terbium, dysprosium, holmium, erbium

Jacques-Louis Féron

► **To cite this version:**

Jacques-Louis Féron. Etude des propriétés magnétiques sous champs intenses de monocristaux de : gadolinium, terbium, dysprosium, holmium, erbium. Physique [physics]. Faculté des sciences de l'Université de Grenoble, 1969. Français. NNT: . tel-03792795

HAL Id: tel-03792795

<https://hal.science/tel-03792795>

Submitted on 30 Sep 2022

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.

THÈSES

présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Jacques-Louis FÉRON

Ingénieur I. E. G.

1^{re} THÈSE

Etude des propriétés magnétiques sous champs
intenses de monocristaux de : gadolinium,
terbium, dysprosium, holmium, erbium.

2^e THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 30 avril 1969, devant la Commission d'Examen

MM. L. NÉEL

Président

E.-F. BERTAUT

A. MOUSSA

R. PAUTHENET

} Examineurs

L I S T E D E S P R O F E S S E U R SDOYEN HONORAIRE : M. MORETDOYEN : M. BONNIERPROFESSEURS TITULAIRES :

MM.	NEEL Louis	Chaire de Physique Expérimentale
	HEILMANN René	Chaire de Chimie
	KRAVTCHENKO Julien	Chaire de Mécanique Rationnelle
	CHABAUTY Claude	Chaire de Calcul Différentiel et Intégral
	BENOIT Jean	Chaire de Radioélectricité
	CHENE Marcel	Chaire de Chimie Papetière
	FELICI Noël	Chaire d'Electrostatique
	KUNTZMANN Jean	Chaire de Mathématiques Appliquées
	BARBIER Reynold	Chaire de Géologie Appliquée
	SANTON Lucien	Chaire de Mécanique des Fluides
	OZENDA Paul	Chaire de Botanique
	FALLOT Maurice	Chaire de Physique Industrielle
	KOSZUL Jean-Louis	Chaire de Mathématiques
	GALVANI O.	Mathématiques
	MOUSSA André	Chaire de Chimie Nucléaire
	TRAYNARD Philippe	Chaire de Chimie Générale
	SOUTIF Michel	Chaire de Physique Générale
	CRAYA Antoine	Chaire d'Hydrodynamique
	REULOS R.	Théorie des Champs
	BESSION Jean	Chaire de Chimie
	AYANT Yves	Physique Approfondie
	GALLISSOT	Mathématiques
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques
	BLAMBERT Maurice	Chaire de Mathématiques
	BOUCHEZ Robert	Physique Nucléaire
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	MICHEL Robert	Chaire de Minéralogie et Pétrographie
	BONNIER Etienne	Chaire d'Electrochimie et d'Electro-
		métallurgie
	DESSAUX Georges	Chaire de Physiologie Animale
	PILLET E.	Chaire de Physique Industrielle et
		Electrotechnique
	YOCOZ Jean	Chaire de Physique Nucléaire Théorique
	DEBELMAS Jacques	Chaire de Géologie Générale
	GERBER R.	Mathématiques
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	VAUQUOIS B.	Chaire de Calcul Electronique

PROFESSEURS TITULAIRES (suite)

MM.	BARJON R.	Physique Nucléaire
	BARBIER Jean-Claude	Chaire de Physique
	SILBER R.	Mécanique des Fluides
	BUYLE-BODIN Maurice	Chaire d'Electronique
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	KLEIN J.	Mathématiques
	VAILLANT F.	Zoologie et Hydrobiologie
	ARNAUD Paul	Chaire de Chimie
	SENGEL P.	Chaire de Zoologie
	BARNOUD F.	Chaire de Biosynthèse de la Cellulose
	BRISSONNEAU P.	Physique
	GAGNAIRE	Chaire de Chimie Physique
Mme	KOFLER L.	Botanique
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	PEBAY-PEROULA J.C.	Physique
	RASSAT A.	Chaire de Chimie Systématique
	DUCROS P.1	Chaire de Cristallographie Physique
	DODU Jacques	Chaire de Mécanique Appliquée I.U.T.
	ANGLES D'AURIAC P.	Mécanique des Fluides
	LACAZE A.	Thermodynamique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	GIDON P.	Géologie et Minéralogie
	GIRAUD P.	Géologie
	PERRET R.	Servomécanisme
Mme	BARBIER M.J.	Electrochimie
Mme	SOUTIF J.	Physique
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	DEPASSEL R.	Mécanique des Fluides
	GASTINEL A.	Mathématiques Appliquées
	GLENAT R.	Chimie
	BARRA J.	Mathématiques Appliquées
	COUMES A.	Electronique
	PERRIAUX J.	Géologie et Minéralogie
	ROBERT A.	Chimie Papetière
	BIAREZ J.P.	Mécanique Physique
	BONNET G.	Electronique
	CAUQUIS G.	Chimie Générale
	BONNETAIN L.	Chimie Minérale
	DEPOMMIER P.	Etude Nucléaire et Génie Atomique
	HACQUES Gérard	Calcul Numérique
	POLOUJADOFF M.	Electrotechnique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	NAPP-ZINN	Botanique
	RODRIGUES Alexandre	Mathématiques Pures
	STANDING Kenneth	Physique Nucléaire

MAÎTRES DE CONFERENCES

MM.	LANCIA Rolland	Physique Atomique
Mme	KAHANE J.	Physique
	DEPORTES C.	Chimie
Mme	BOUCHE L.	Mathématiques
	SARROT-REYNAUD	Géologie Propédeutique
Mme	BONNIER M.J.	Chimie
	KAHANE A.	Physique Générale
	DOLIQUE J.M.	Electronique
	BRIERE G.	Physique M.P.C.
	DESRE G.	Chimie S.P.C.N.
	LAJZEROWICZ J.	Physique M.P.C.
	VALENTIN P.	Physique M.P.C.
	BERTRANDIAS J.P.	Mathématiques Appliquées T.M.P.
	LAURENT P.	Mathématiques Appliquées T.M.P.
	CAUBERT J.P.	Mathématiques Pures
	PAYAN J.J.	Mathématiques
Mme	BERTRANDIAS F.	Mathématiques Pures M.P.C.
	LONGEQUEUE J.P.	Physique
	NIVAT M.	Mathématiques Appliquées
	SOHM J.C.	Electrochimie
	ZADWORNY F.	Electronique
	DURAND F.	Chimie Physique
	CARLER G.	Biologie Végétale
	AUBERT Guy	Physique M.P.C.
	DELPUECH J.J.	Chimie Organique
	PFISTER J.C.	Physique C.P.E.M.
	CHIBON P.	Biologie Animale
	IDELMAN S.	Physiologie Animale
	BOUVARD Maurice	Hydrologie
	RICHARD Lucien	Botanique
	PELMONT Jean	Physiologie Animale
	BLOCH Daniel	Electrotechnique I.P.
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées I.P.
	MOREAU René	Hydraulique I.P.
	BRUGEL L.	Energétique I.U.T.
	SIBILLE R.	Construction Mécanique I.U.T.
	ARMAND Yves	Chimie I.U.T.
	BOLLIET Louis	Informatique I.U.T.
	KUHN Gérard	Energétique I.U.T.
	GERMAIN Jean-Pierre	Construction Mécanique I.U.T.
	CONTE René	Thermodynamique
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
Mlle	PIERY Yvette	Biologie Animale

MAÎTRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	SAWCZUK A.	Mécanique des Fluides
	CHEEKE J.	Thermodynamique
	YAMADA O.	Physique du Solide
	NATR Lubomir	B.M.P.V.
	NAYLOR Arch	Physique Industrielle
	SILBER Léo	Radioélectricité
	NAZAKI Akihiro	Mathématiques Appliquées
	RUTLEDGE Joseph	Mathématiques Appliquées
	DONOHU Paul	Physique Générale
	EGGER Kurt	B.M.P.V.

Le présent travail a été effectué au Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal de Grenoble.

J'exprime ma respectueuse gratitude à Monsieur le Professeur Néel, Membre de l'Institut, Directeur du Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour l'honneur qu'il me fait en présidant ce Jury de thèse.

Monsieur le Professeur Pauthenet m'a proposé le sujet de cette étude et en assuré la direction. Il m'est particulièrement agréable de lui adresser mes vifs remerciements pour la confiance qu'il m'a depuis longtemps témoignée, pour son aide constante et les conseils précieux qu'il m'a toujours prodigués.

Je remercie Monsieur Bertaut, Directeur de Recherche au C.N.R.S., pour l'attitude toujours accueillante qu'il a bien voulu avoir à mon égard et pour l'intérêt qu'il a porté à cette étude.

Je suis très sensible à l'honneur qu'à bien voulu m'accorder Monsieur le Professeur Moussa, en acceptant d'être membre de mon Jury de thèse.

Je suis très heureux de remercier Monsieur Bloch, Maître de Conférences, pour les conseils efficaces qu'il m'a donnés au cours de cette étude.

Je tiens à remercier Monsieur Picoche, Ingénieur au C.N.R.S., pour l'aide amicale et journalière dont il a fait preuve au cours de ce travail.

Je remercie avec une même pensée amicale tous mes camarades de laboratoire, chercheurs et techniciens qui ont contribué à la réussite de ce travail, en particulier, Monsieur Geoffray et les membres de l'équipe de Calcul.

Mademoiselle Menéroud a assumé avec bienveillance, compétence et rapidité, la tâche de dactylographier ce Mémoire; qu'elle soit assurée de ma bien amicale reconnaissance.

I N T R O D U C T I O N

Les éléments terres rares diffèrent entre eux par le nombre d'électrons sur la couche 4f. Les couches atomiques 5s et 5p sont pleines et restent localisées; les électrons 5d et 6s forment un nuage électronique au milieu duquel sont régulièrement disposés les ions terres rares trivalents. Les électrons 4f, principaux responsables du magnétisme, sont situés sur une couche profonde et de faible extension spatiale. La petitesse de la couche 4f rend négligeables les couplages directs entre les moments magnétiques atomiques; ceux-ci sont couplés par l'intermédiaire des électrons de conduction. L'interaction d'échange qui en résulte dépend fortement de la distance entre atomes; ceci conduit à des effets magnétostrictifs importants. De plus, la distribution des charges électriques autour d'un atome de référence crée un champ électrique cristallin qui est à l'origine de la forte anisotropie magnétique des terres rares de la seconde série.

Une étude expérimentale des propriétés magnétiques de ces substances dans le domaine ordonné est nécessaire pour préciser les valeurs des aimantations à saturation absolue, des aimantations spontanées et de leurs variations thermiques. Une telle étude est un moyen pour déterminer les constantes d'anisotropie ainsi que leurs variations avec la température; elle permet également d'obtenir les valeurs des champs critiques qui caractérisent les transitions antiferromagnétiques-ferromagnétiques propres à certains éléments. Ces différentes grandeurs peuvent fournir de précieux renseignements sur la contribution macroscopique des électrons de conduction au magnétisme des terres rares, sur le lien entre les constantes

d'anisotropie et les paramètres microscopiques, sur l'importance relative des énergies qui stabilisent l'ordre magnétique à champ nul.

C'est seulement dans un passé récent que l'on a pu obtenir d'une part des monocristaux de taille et de qualité suffisantes, d'autre part des champs magnétiques continus intenses, nécessaires pour entreprendre une étude magnétique complète des terres rares.

Dans le premier chapitre de ce Mémoire, nous décrivons l'installation des champs forts du Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal, ainsi que le dispositif expérimental de mesure des aimantations. Le second chapitre est consacré à nos résultats expérimentaux relatifs aux monocristaux de terres rares. Dans le troisième chapitre, nous étudions la contribution des électrons de conduction à l'échange et aux effets superposés à l'état ferromagnétique. Nous consacrons le quatrième chapitre à l'étude de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline et à sa variation avec la température. Dans un cinquième chapitre, nous discutons l'importance relative des différentes énergies qui interviennent lors des transitions induites par le champ, ainsi que des effets secondaires de ces transitions.

C H A P I T R E I

APPAREILLAGE EXPERIMENTAL

I - DESCRIPTION DE L'INSTALLATION DE PRODUCTION DES CHAMPS FORTS

Les champs magnétiques utilisés de manière courante dans les laboratoires sont généralement produits à l'aide d'électro-aimants. Avec des appareils de taille raisonnable, le champ maximal atteint est de 30 kOe. Au-delà de cette limite, il est préférable d'utiliser des bobines sans fer. Alors que certains laboratoires à l'étranger^(1,2,3) disposent depuis plusieurs années de champs magnétiques continus de l'ordre de 100 kOe, ce n'est que récemment que de tels champs ont été produits en France⁽⁴⁾. L'installation du C.N.R.S., que nous nous proposons de décrire brièvement, a été conçue en 1962; elle fonctionne régulièrement depuis 1965⁽⁵⁾.

Cette installation est d'un type classique; la puissance électrique est élevée ainsi que les débits d'eau nécessaires au refroidissement des bobines. Pour obtenir des champs supérieurs à 80 kOe, dans un diamètre utile de 50 mm, il faut une puissance électrique de 1700 kW.

1 - Alimentation

Pour réaliser une alimentation à courant continu de haute puissance, on a le choix entre des redresseurs statiques et des groupes convertisseurs. Lors de la conception de cette installation, des raisons technologiques et économiques ont fait choisir la solution groupe convertisseur qui alliait, à l'époque, une plus grande facilité du

réglage du courant et une meilleure stabilité du courant dans le temps.

L'alimentation électrique est constituée d'une génératrice à courant continu, à excitation indépendante, entraînée par un moteur asynchrone. En régime nominal, elle fournit une intensité de 5000 A sous une tension de 340 V. La puissance est contrôlée par un système à double boucle, le courant de l'induit étant asservi à une valeur de référence. Les deux boucles de régulation agissent sur le courant de l'inducteur de la génératrice; leur stabilité est assurée par des amplificateurs opérationnels correcteurs de phase. Des essais effectués à l'aide d'un enregistreur galvanométrique, de bande passante jusqu'à 3 Hz, indiquent une stabilité du courant de $\pm 5 \cdot 10^{-5}$ entre l'intensité nominale et le dixième de celle-ci.

2 - Circuit hydraulique de refroidissement

Le refroidissement des bobines est assuré par de l'eau très pure circulant dans un circuit fermé en cuivre et en acier inoxydable. Le débit d'eau peut varier de 80 à 160 m³/h; il a été déterminé pour que la température moyenne de l'eau à la sortie des bobines ne dépasse pas 20 degrés. Une pompe de 80 CV assure aux bornes des bobines une différence de pression qui peut varier de 3 à 9 kg/cm². L'eau est purifiée à l'aide d'un échangeur d'ions à résines; sa résistivité est de 2 M Ω .cm. La puissance dissipée dans la bobine est évacuée par un échangeur de température d'une puissance nominale de 2 MW. L'eau du circuit secondaire de l'échangeur est pompée de la nappe phréatique dans un puits à proximité du laboratoire; sa température est en toute saison de 13°C. La température moyenne de l'eau de refroidissement

dissement à l'entrée des bobines, 20°C, est relativement basse; cela permet des différences élevées de température entre le fluide et la paroi du conducteur à refroidir sans risque d'ébullition, de l'ordre de 80 degrés.

3 - Bobines

a - bobine de Wood

Nous avons utilisé et amélioré deux types de bobines. Initialement fabriquées en Angleterre par la société "Oxford Instrument Company", les bobines du type Wood^(6,7) sont maintenant réalisées et améliorées au Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal. De telles bobines sont constituées de quatre galettes mises en série électriquement par un système de bagues métalliques (figure 1). Chaque galette est formée par l'enroulement en spirale d'un méplat de cuivre de 1,25 mm d'épaisseur et de 31,5 mm de largeur. Chaque spire est isolée électriquement de sa voisine par un fil de nylon de 22/100 de mm de diamètre, bobiné sur le méplat. L'espace ainsi ménagé entre spires est utilisé également pour la circulation de l'eau de refroidissement.

Le diamètre intérieur utile de la bobine est de 50,8 mm. La densité de courant est constante à l'intérieur du conducteur; sa valeur est de 127 A/mm² pour l'intensité nominale. Le champ maximal varie de 81 kOe à 86 kOe suivant les valeurs du coefficient de foisonnement de chaque bobine. L'homogénéité axiale du champ $\frac{H(z) - H_{\max}}{H_{\max}}$ au centre de la bobine est inférieure à 1 % sur une distance de 24 mm (figure 2).

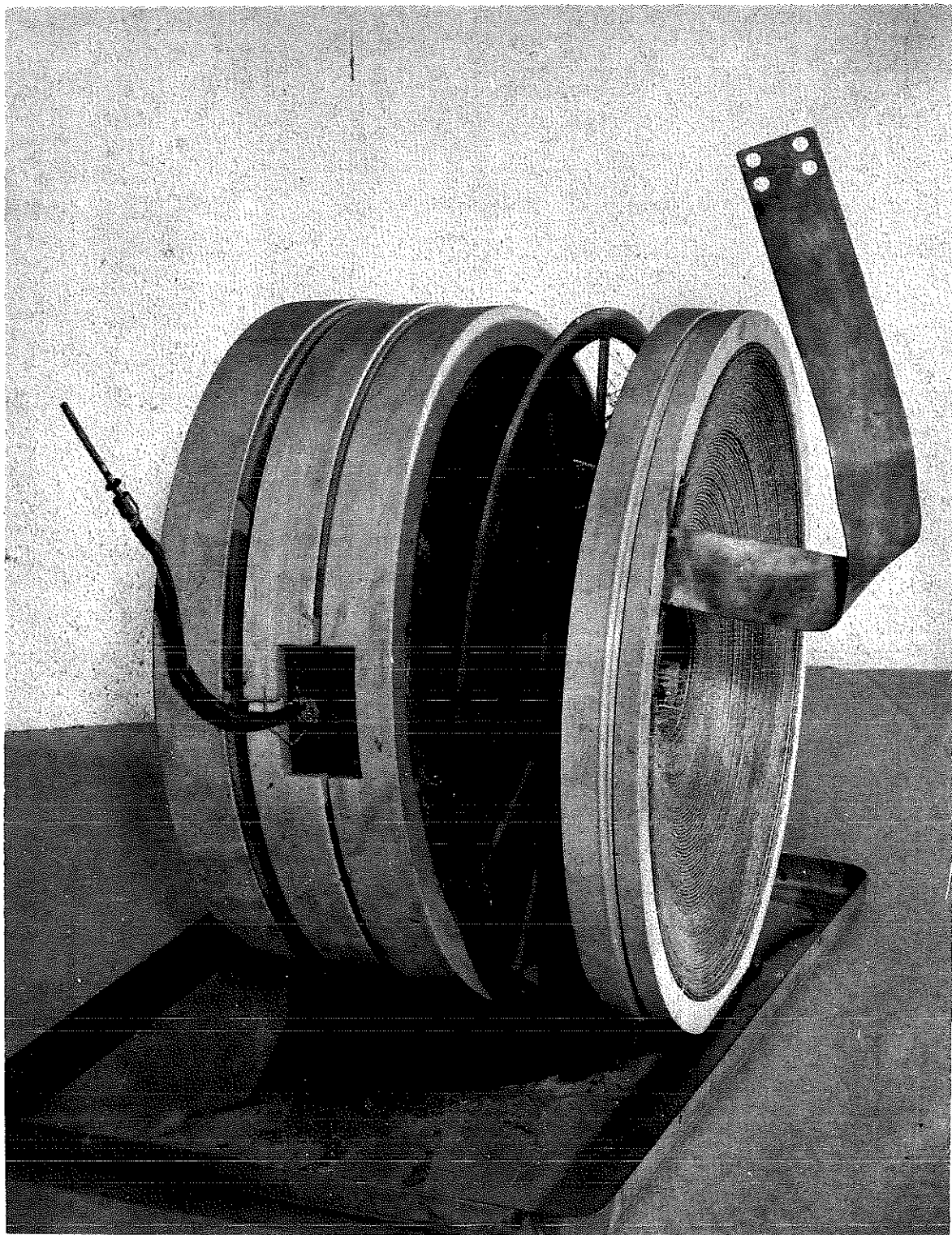
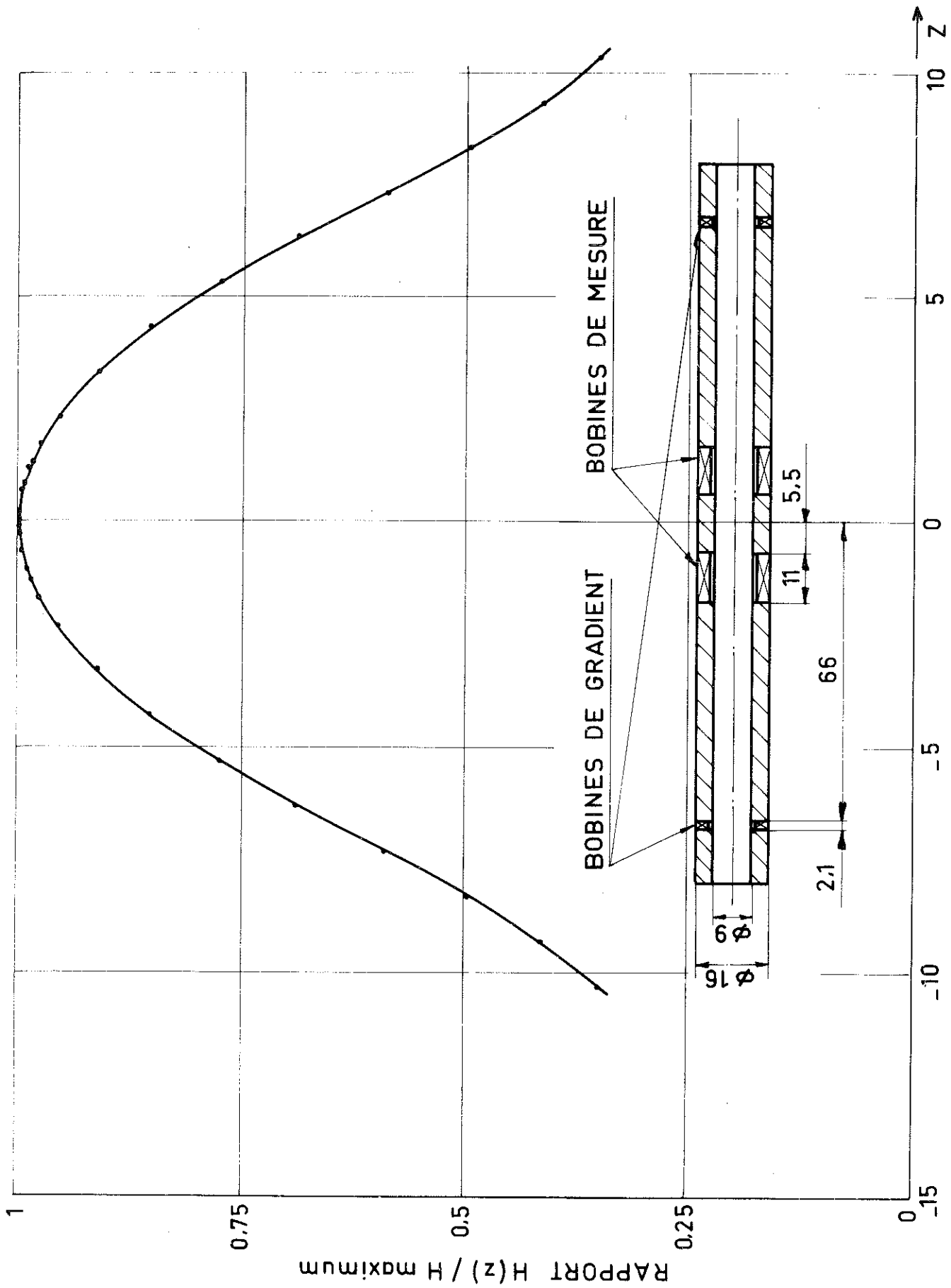


Figure 1: Bobinage type Wood



LONGUEURS SUIVANT L'AXE DE LA BOBINE cm

Figure 2 : Carte de champ d'une bobine Wood

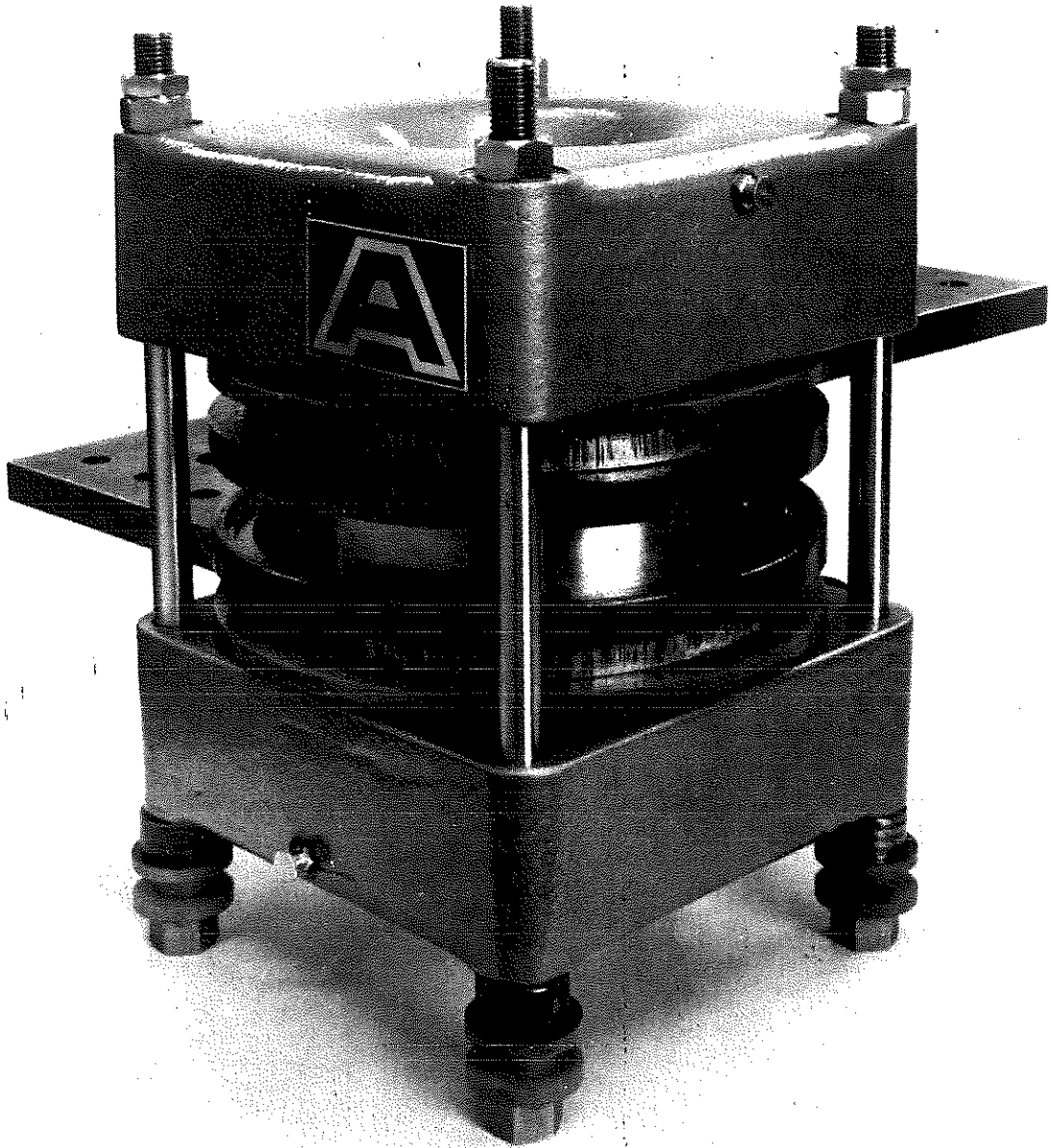
Dans ce type de bobine la surface totale de refroidissement est très grande ($88\,400\text{ cm}^2$). Il suffit d'un coefficient d'échange thermique relativement faible ($2\text{ W/cm}^2\text{.degré}$) pour maintenir une augmentation raisonnable de la température moyenne du cuivre (37 degrés) lorsque la puissance dissipée est maximale. Cette valeur du coefficient d'échange thermique est réalisable avec des vitesses faibles de l'eau de refroidissement, de l'ordre de 3,8 m/s. Malgré cette vitesse réduite, les spires sont sujettes à des vibrations mécaniques importantes qui créent des fluctuations du champ; celles-ci perturbent les mesures d'aimantation.

Pour atténuer ces vibrations, on a été amené à disposer plus régulièrement les canaux de refroidissement. L'espacement entre spires au moyen d'un fil de nylon a été abandonné; le méplat est rainuré; une feuille de mylar isole chaque spire de sa voisine. Les pertes de charge sont moindres; de plus on peut réaliser un meilleur serrage mécanique de l'ensemble, le bobinage étant plus homogène.

b - bobine de Bitter

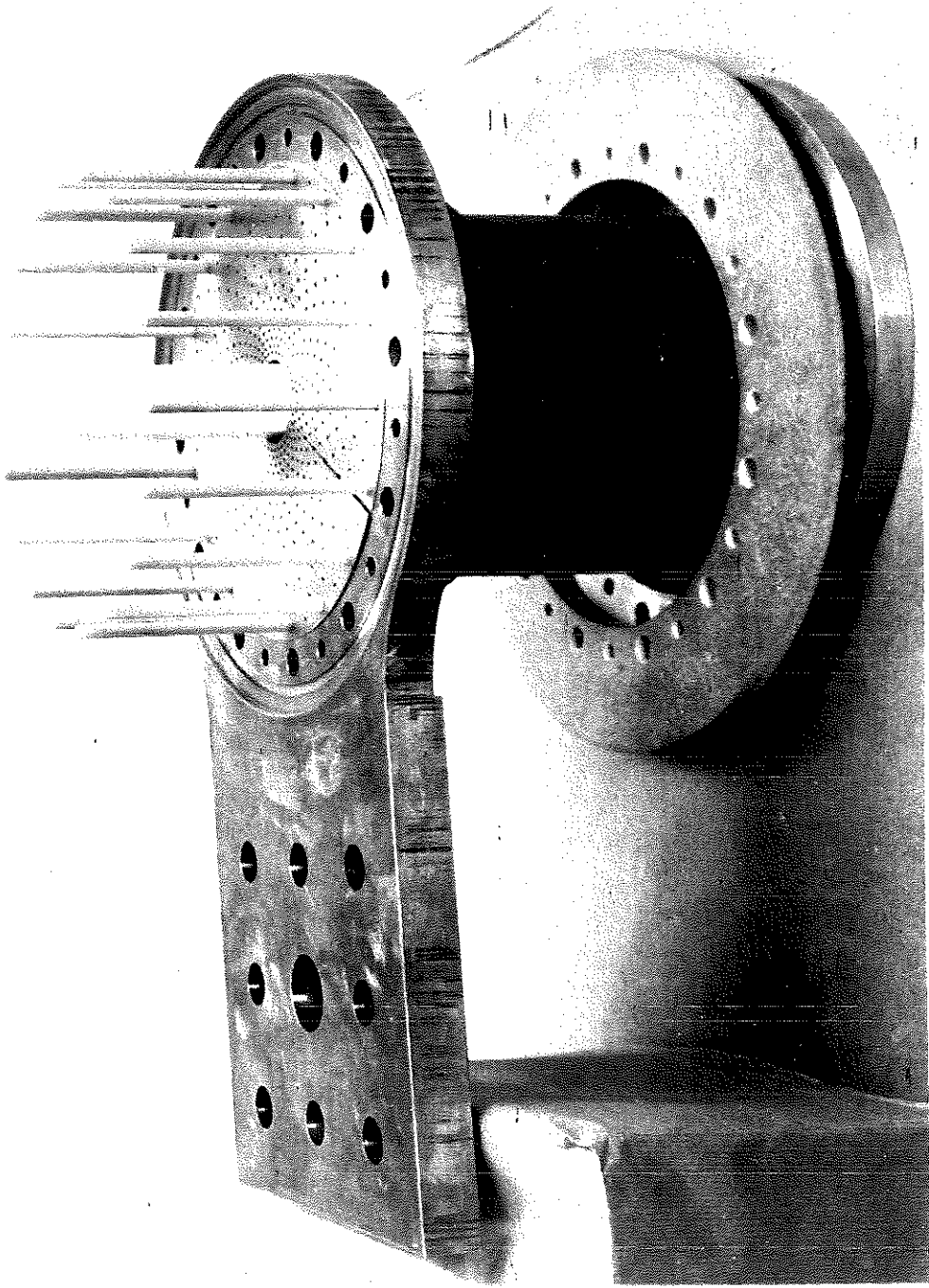
Nous décrivons maintenant un type de bobine très différent et plus optimisé que le précédent. Cette bobine, fabriquée par la société Alstom, donne un champ de 103 500 Oe dans un diamètre utile de 30 mm, lorsque l'intensité qui la traverse est de 4550 A; la puissance absorbée est alors de 1,13 MW^(5,8).

Cette bobine est constituée par un empilement de 230 disques de Bitter en cuivre, d'épaisseur 0,3 mm, de diamètre intérieur 33,5 mm (figures 3a, 3b). Ces disques sont percés de 486 trous de diamètre 1,5 mm; ils sont fendus suivant un rayon; ils sont isolés sur une face à l'exception



59580 - GET - ALSTHOM
CENTRE NATIONALE DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE - BOBINE SANS FER pour le
LABORATOIRE D'ELECTROSTATIQUE ET DE PHYSIOLOGIE DU MELM - GRENOBLE
Diametre utile 50 mm - Induction au centre 10 Wb/m² - Débit d'eau de refroidissement 22 l/s
Excitation 1,7 MW 5000 A 510 V en courant continu
Bobine assemblée - montage terminé

Figure 3a



59556 GET ALSTHOM
CENTRE NATIONALE DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE - BORNIE SANS FER pour le
LABORATOIRE D'ELECTROSTATIQUE ET DE PHYSIQUE DU METAL - GRIGNOIRF
Diamètre utile 40 mm Induction au centre 10 Wb m⁻² Débit d'eau de refroidissement 22 l/s
Excitation 17 MW 5000 A 510 V en courant continu
Débit d'ampère

Figure 3b

d'un secteur de 20 degrés par lequel est assuré le contact électrique avec la face non isolée du disque voisin. L'isolant doit supporter une température de 150°C dans l'eau et ne pas fluer lors du serrage de l'empilement; son épaisseur est de 40 microns. Dix huit tiges isolantes en permaglass, assurent le contrage des disques et le parfait alignement des trous sur la hauteur totale de l'empilement; 486 canaux cylindriques sont ainsi formés dans lesquels circule l'eau de refroidissement. Pour réduire la résistance de contact entre disques, l'enroulement est serré sous une pression de 100 kg/cm^2 , entre deux plateaux en bronze.

La surface d'échange de cette bobine est très faible (1580 cm^2); il est nécessaire de réaliser un refroidissement hydraulique avec des performances très élevées. Le dimensionnement de cette bobine a été calculé dans le but de réaliser une répartition uniforme du flux d'échange thermique ($15 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{degré}$); les trous de refroidissement sont disposés de manière telle que chaque canal évacue la même quantité de chaleur. Les formules d'échange thermique pour des tubes lisses et pour des vitesses d'écoulement du fluide inférieures à 10 m/s, ont servi de base de départ au calcul. En fait, le fonctionnement a montré que le refroidissement est plus efficace que celui prévu dans le projet initial, en particulier à cause de la rugosité des canaux qui améliore le coefficient d'échange thermique d'un facteur 2.

c - efforts électrodynamiques dans les bobines de Bitter

Dans ces bobines, les forces électrodynamiques sont très importantes; elles développent des contraintes voisines de la limite élastique du cuivre. En première

approximation, assimilons la bobine à un cylindre épais contenant la densité d'énergie magnétique $\frac{H^2}{8\pi}$. La contrainte tangentielle σ_θ est maximale sur le rayon intérieur a_1 du cylindre. Si α est le rapport du rayon extérieur a_2 au rayon a_1 , on établit la relation :

$$(\sigma_\theta)_{\max} = \sigma_\theta(a_1) = \frac{H^2}{8\pi} \frac{\alpha^2 + 1}{\alpha^2 - 1} \quad (1).$$

Dans le cas de la bobine de Bitter ($H = 100$ kOe et $\alpha = 5,73$), la valeur de $(\sigma_\theta)_{\max}$ ainsi obtenue est : $4,17$ kg/mm².

Cette méthode de calcul est très pessimiste; afin de mieux connaître la répartition radiale des contraintes ainsi que leurs valeurs maximales, il faut tenir compte de la distribution réelle des forces électromagnétiques^(9,10). Nous admettons que la pression de serrage de l'empilement empêche tout glissement relatif des disques, ce qui a été observé en pratique. Dans un premier temps, nous ne tenons pas compte de la présence des trous et nous supposons que les disques ont un comportement élastique isotrope. Dans un disque, la densité de courant i en un point est proportionnelle à l'inverse de la distance r de ce point à l'axe z de la bobine, $i = \frac{c}{r}$; nous considérons que la composante axiale H_z du champ varie linéairement avec le rayon r ,

$$H_z(r) = ar + b;$$

nous négligeons la composante radiale du champ; si e est l'épaisseur du disque, la force volumique est égale à

$$R = \frac{H_z(r)i}{e} = (ac + \frac{bc}{r}) \frac{1}{e}.$$

Pour le disque situé au milieu de l'enroulement, soumis au champ maximum et par suite aux contraintes maximales, les variations des contraintes tangentielles et

radiales σ_{θ} et σ_r sont représentées sur la figure 4; on constate que σ_{θ} est nettement plus grand en module que σ_r ; la contrainte tangentielle $\sigma_{\theta}(r)$ est maximale sur le rayon intérieur a_1 et vaut $16,5 \text{ kg/mm}^2$. Il faut comparer cette valeur à celle de la limite élastique (27 kg/mm^2) du cuivre 4/4 dur utilisé.

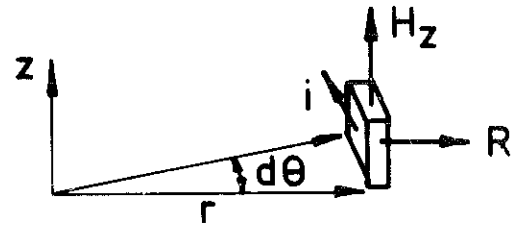
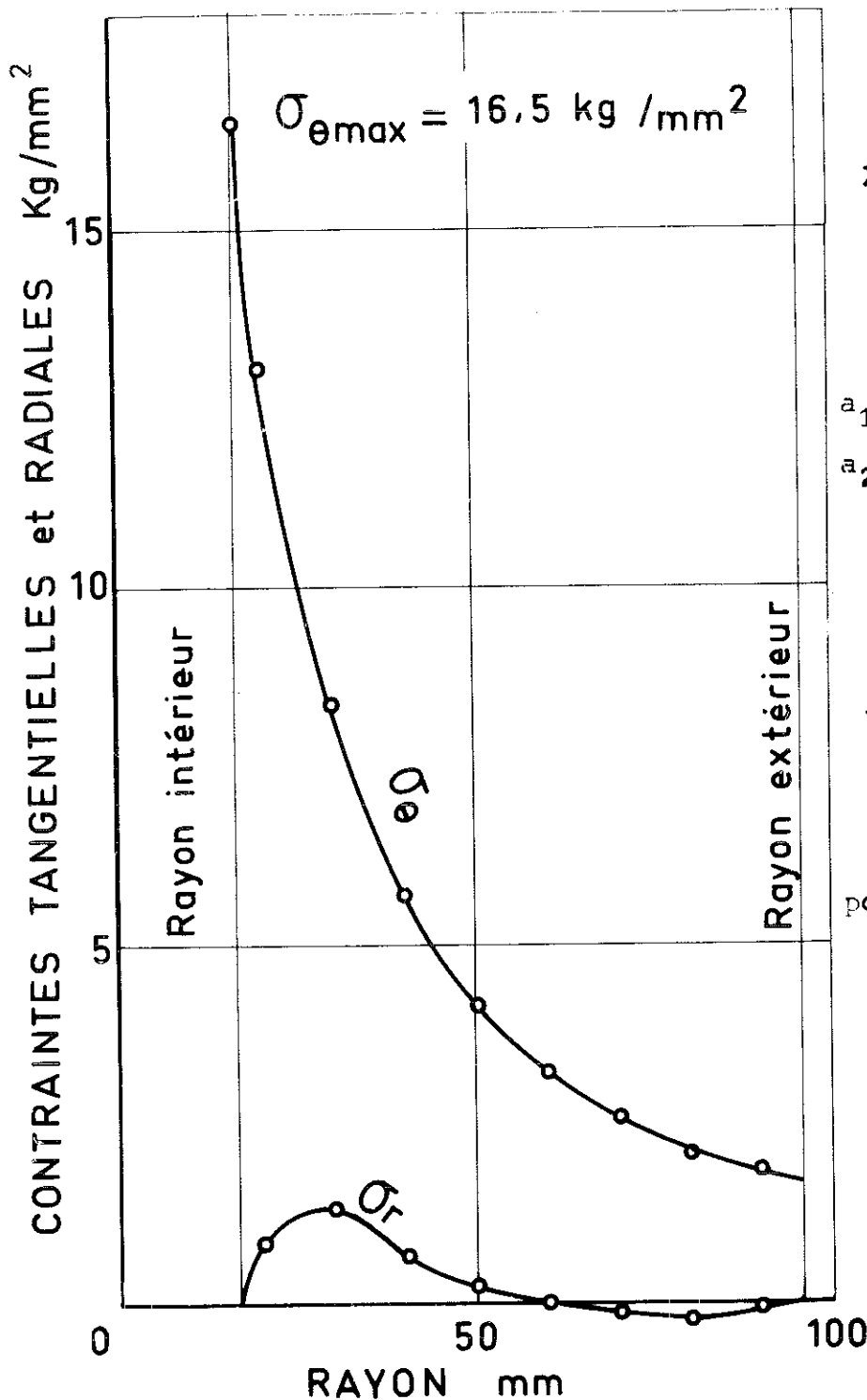
Dans notre calcul, nous n'avons pas tenu compte de la présence des trous, qui augmente d'environ 20 % la contrainte maximale; malgré cela, on reste dans le domaine élastique; expérimentalement nous n'avons constaté aucune déformation plastique. Remarquons que la contrainte maximale est proportionnelle au produit $a_1 \cdot H_{\text{max}}^2$; pour des bobines produisant des champs supérieurs dans un diamètre utile identique, il sera nécessaire d'utiliser un autre conducteur que le cuivre pur, par exemple un alliage cuivre-zirconium.

4 - Etalonnage en champ

Lors de l'utilisation des bobines pour des mesures physiques, la valeur du champ est déterminée à l'aide de la mesure du courant qui traverse la bobine. A cet effet, nous avons construit un shunt en manganine dont la résistance vaut $101,1 \pm 0,1 \mu\Omega$; cette résistance a été mesurée par comparaison avec une résistance étalon SIEMENS ($100 \mu\Omega$) à l'aide d'un pont de Thomson. Pour la valeur nominale de l'intensité, la puissance dissipée dans le shunt est 2500 W; un refroidissement hydraulique est nécessaire afin d'éviter toute variation de la résistance du shunt avec l'intensité.

On détermine pour chaque bobine la relation entre le courant et le champ au centre de la bobine par le calcul et par étalonnage. On utilise pour ceci la variation de flux engendrée par le déplacement d'une petite bobine; cette

BOBINE de BITTER 100 kOe



a_1 rayon intérieur : 16,8 mm

a_2 rayon extérieur : 96 mm

$$\alpha = \frac{a_2}{a_1} = 5,73$$

$$\begin{cases} H_z = ar + b \\ i = \frac{c}{r} \\ R = ac + \frac{bc}{r} \end{cases}$$

pour $\begin{cases} H_z(a_1) = 103,5 \text{ kOe} \\ i(a_1) = 570 \text{ A/mm}^2 \end{cases}$

$$A = -22,24 \text{ kg/mm}^2$$

$$B = 17,8 \cdot 10^{-4} \text{ kg}$$

$$\mu = 0,3$$

$$\sigma_{\theta} = A + \frac{B}{r^2} - \frac{ac}{3} (1 + 2\nu)r - \frac{bc}{2} (1 + \nu) \log r - \nu \frac{bc}{2}$$

$$\sigma_r = A - \frac{B}{r^2} - \frac{ac}{3} (2 + \nu)r - \frac{bc}{2} (1 + \nu) \log r - \frac{bc}{2}$$

$$\sigma_{\theta \max} = a_1 i_0 H_0 \left[0,107 \frac{3\alpha - 2}{\alpha - 1} + \frac{2\alpha^2}{\alpha^2 - 1} \left[0,68 \frac{\alpha}{\alpha - 1} \log \alpha - 0,785 \right] \right]$$

Figure 4 : Contraintes dans une bobine de Bitter

variation de flux est mesurée à l'aide d'un intégrateur numérique VIDAR. La surface de la bobine de mesure est déterminée par la même méthode, au moyen d'un électro-aimant dont le champ est mesuré par résonance magnétique nucléaire. La précision relative $\frac{\Delta H}{H}$ du champ au centre de la bobine est évaluée à $5 \cdot 10^{-4}$.

La variation du champ avec l'intensité est linéaire; le coefficient de proportionnalité est constant quelle que soit l'intensité à mieux de 10^{-3} . Pour une même intensité, les valeurs calculées et mesurées du champ diffèrent de moins de 0,2 %.

II - DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE DE MESURE DES AIMANTATIONS

1 - Mesure des aimantations

La technique de mesure des aimantations est connue sous le nom de méthode d'extraction; elle a été proposée par P. Weiss⁽¹¹⁾ en 1905. On déplace l'échantillon soumis à un champ magnétique entre deux bobines de mesure connectées en série opposition; la force électromotrice induite aux bornes de ces bobines est intégrée à l'aide d'un galvanomètre balistique. Le circuit du galvanomètre comporte des résistances en série et en parallèle permettant de faire varier la sensibilité de l'appareillage, ainsi qu'une mutuelle inductance de 16 mH pour vérifier la reproductibilité du circuit de mesure et déterminer la correspondance entre les flux induits, pour les différentes sensibilités.

Le champ magnétique dans l'entrefer d'un électro-aimant est suffisamment stable pour que la sensibilité du galvanomètre limite la sensibilité du circuit de mesure.

En revanche, dans le cas des bobines sans fer de haute puissance, la sensibilité de l'appareillage est limitée par le bruit de fond engendré par les fluctuations d'origine mécanique et électrique du champ magnétique.

Comme nous l'avons signalé plus haut, les spires des bobines sont soumises à des vibrations qui ont pour effet de produire des variations spatiales du champ par rapport aux bobines de mesure. Si l'homogénéité axiale du champ était suffisante, les fluctuations du champ ne produiraient aucun bruit de fond électrique aux bornes des bobines de mesure. Malheureusement une meilleure homogénéité ne peut être obtenue qu'au prix d'une diminution sensible de la valeur maximale du champ. De plus, toute fluctuation du courant inducteur entraîne une fluctuation semblable du champ du fait de la dépendance linéaire de ces deux grandeurs. Si la régulation du courant assure une stabilité correcte pour les basses fréquences, il n'en est pas de même pour les fréquences supérieures à 5 Hz. La bande passante du galvanomètre s'étend de 0 à 20 Hz; celui-ci est très sensible aux forces électromotrices parasites induites par les fluctuations du champ.

Afin d'augmenter le rapport ρ , signal sur bruit aux bornes du galvanomètre, nous avons amélioré le dispositif des bobines de détection. En premier lieu, ces bobines ont été placées à l'intérieur du vase cryogénique pour augmenter le couplage entre celles-ci et l'échantillon. Par la même occasion, on diminue considérablement la surface des bobines et par suite les forces électromotrices parasites induites. Les dimensions des bobines de détection ont été déterminées de sorte que le rapport ρ ait une valeur optimale. Formées de 1300 spires chacune, elles sont bobinées sur un mandrin en lalton de 9 mm de diamètre intérieur et

16 mm de diamètre extérieur (figure 2). Un dispositif micrométrique permet d'ajuster la position des bobines de détection afin que leur coefficient de mutuelle inductance avec la bobine de champ soit nul.

Avec cette disposition, l'échantillon est maintenu, au cours de son déplacement, dans un champ constant. Cette propriété constitue un très gros avantage dans l'étude sous champs intenses de substances magnétiques qui présentent des transitions induites par le champ, car l'hystérésis avec le champ de ces transitions est souvent très importante.

En second lieu, pour diminuer l'influence des fluctuations d'origine mécanique, nous avons ajouté sur le mandrin supportant les bobines de détection un couple de bobines dites de "gradient" connectées en série-opposition (figure 2). En effet, si les bobines de détection ont une surface totale S , une fraction γS est soumise à un gradient de champ $\left(\frac{dH}{dz}\right)_1$. Lors d'un déplacement dz du champ par rapport aux bobines de détection, il apparaît à leurs bornes une force électromotrice induite proportionnelle à $\gamma S \left(\frac{dH}{dz}\right)_1 \frac{dz}{dt}$. Cette f.e.m. est compensée partiellement par celle qui est induite dans les bobines de "gradient"; en effet ces bobines sont placées dans la zone où le gradient du champ est maximal; elles sont également soumises au déplacement dz ; chacune d'elles comporte 253 spires.

Pour atténuer encore l'effet des fluctuations du champ sur les bobines, nous avons disposé autour de celles-ci un cylindre épais en cuivre (8 mm d'épaisseur) qui, à basse température par les courants qui y sont induits, joue le rôle d'écran. Nous avons pu grâce à ces améliorations augmenter la sensibilité de l'appareillage d'un facteur 15. L'utilisation d'un suiveur de spot, pour enregistrer les déviations du galvanomètre, a permis d'améliorer la résolution de l'appareillage.

L'aimantation M d'un échantillon de masse m est proportionnelle à la déviation maximale δ du galvanomètre, suivant la relation

$$M = \frac{k_1}{m} \left[k_2 \frac{I'}{\delta'} (R_s) \right] \delta ; \quad (2)$$

k_2 est le coefficient de la mutuelle inductance en série avec le galvanomètre; δ' est la déviation de celui-ci quand un courant d'intensité I' est coupé dans le circuit primaire de la mutuelle inductance. Le produit $k_2 \frac{I'}{\delta'}$, ne dépend que de la résistance R_s en série dans le circuit du galvanomètre. La variation de $k_2 \frac{I'}{\delta'}$ est linéaire avec R_s lorsque celle-ci est grande devant la résistance interne du galvanomètre.

Afin d'atteindre la valeur absolue de l'aimantation, il faut connaître le coefficient de couplage k_1 entre l'échantillon et les bobines de mesure. On peut calculer ce coefficient si on considère l'échantillon comme un dipôle magnétique; cette hypothèse n'est valable que pour des échantillons petits. On ne connaît cependant pas avec précision la position de chaque spire des bobines de détection en raison du faible diamètre (0,12 mm) du fil; le calcul de k_1 ne peut être qu'approximatif. On a déterminé la valeur de k_1 par étalonnage à l'aide de moments magnétiques connus.

Nous avons utilisé des bobines de taille suffisamment petite par rapport à celle des bobines de détection pour qu'elles puissent être considérées comme des dipôles magnétiques. Leurs surfaces (49 cm², 50,38 cm², 50,75 cm²) ont été déterminées en mesurant le flux qui les traverse quand elles sont placées dans un champ magnétique homogène et connu. La valeur du moment magnétique équivalent, quand elles sont parcourues par un courant de 100 mA est faible :

0,49 uem, 0,504 uem, 0,5075 uem. Nous avons également utilisé un monocristal de nickel taillé en forme de sphère de 5,5 mm de diamètre dont l'aimantation, 55,01 uem/g à 293°K dans un champ de 3500 Oe^(13a), a été mesurée par G. Aubert à l'aide d'une méthode absolue. L'écart entre les deux déterminations expérimentales de k_1 est inférieur à 0,7 %. Nous avons choisi la seconde détermination parce que les substances que nous avons étudiées sont généralement sous forme de sphère. Les bobines de détection étant à l'intérieur du vase cryogénique, elles sont soit à la température de l'hélium liquide soit à celle de l'hydrogène liquide; nous avons constaté expérimentalement que leurs déformations géométriques étaient identiques pour ces deux températures; la valeur de k_1 à 4,2°K et à 20,3°K est 1332 ± 4 CGS.

En prenant comme valeurs moyennes $\delta = \delta' = 200$ mm et $m = 500$ mg dans la formule (2), la précision relative sur l'aimantation, somme de la précision relative sur $k_1 \frac{\Delta k_1}{k_1} = 0,3$ % et de la précision relative sur le facteur $k_2 \frac{I'}{\delta^2} \delta$, 0,3 %, est égale à $\frac{\Delta M}{M} = 0,6$ %.

Lorsque l'on mesure de faibles aimantations (inférieures à 2 uem), le bruit de fond augmente l'incertitude sur la déviation δ . Nous considérons en fait le bruit de fond comme erratique, ce qui nous permet d'utiliser la méthode des moindres carrés pour améliorer la précision $\frac{\Delta \delta}{\delta}$.

Pour illustrer les performances de cet appareil rappelons l'étude faite sur la variation avec le champ de la susceptibilité de l'oxyde de manganèse MnO ⁽¹²⁾. La différence entre la susceptibilité initiale et celle en

champ fort vaut 20.10^{-6} uem/gOe à $20,3^{\circ}\text{K}$; cette différence a pu être déterminée avec une précision de 5 %.

D'autre part nous avons pu mesurer à 10 % près la susceptibilité superposée à l'état ferromagnétique des métaux de terres rares (50.10^{-6} uem/gOe). Remarquons que dans ce cas, seule la précision relative de la déviation intervient; cette dernière $\frac{\Delta\delta}{\delta}$ vaut 7.10^{-4} .

2 - Mesure des températures

Afin de faire varier la température de l'échantillon entre 1,6 et 300°K , on utilise un vase cryogénique de 2 litres de contenance, qui permet d'utiliser des bains d'hélium ou d'hydrogène liquide avec une autonomie de 36 heures (figure 5).

La queue du vase a 50 mm de diamètre extérieur et 36 mm de diamètre intérieur. La tige porte-échantillon a un diamètre de 7 mm, ce qui permet d'utiliser des échantillons sphériques de 6 mm de diamètre. L'échantillon est en contact thermique étroit avec une capsule métallique où sont logées côte à côte deux thermosondes, l'une en platine, l'autre en carbone. Cette tige se situe à l'intérieur d'un calorimètre qui comporte un enroulement chauffant bobiné en double spirale. A l'aide d'un système de vannes, on peut soit mettre en contact thermique l'échantillon avec le bain cryogénique, soit l'en isoler. Le porte-échantillon comporte en outre un petit enroulement chauffant auxiliaire.

Entre 300°K et $20,3^{\circ}\text{K}$, on mesure la température à l'aide d'une résistance en platine Lyon-Alemand dont la résistance à l'ambiante est de 50Ω . Monté sur un support en pyrex, le fil de platine n'est soumis à aucune contrainte.

La sensibilité de la thermosonde est de $180 \mu\text{V}/\text{degré}$ entre 40 et 300°K , lorsque le courant qui la traverse est de $850 \mu\text{A}$; on l'étalonne à l'aide du point triple de l'eau, de la température de liquéfaction de l'oxygène et de celle de l'hydrogène, en tenant compte de la variation de ces températures avec la pression. Entre $20,3^\circ\text{K}$ et $4,2^\circ\text{K}$, la résistivité du platine tend vers sa valeur résiduelle; la sensibilité des thermomètres en platine diminue alors fortement; de plus entre $20,3^\circ\text{K}$ et 40°K le platine présente une magnétorésistance importante.

On a été amené à utiliser entre $4,2^\circ\text{K}$ et 40°K une thermosonde en carbone Allen Bradley dont la résistance vaut 1050Ω à $4,2^\circ\text{K}$. L'intensité du courant qui la traverse doit être telle que la puissance maximale dissipée soit toujours inférieure à $10 \mu\text{W}$; la sensibilité de cette thermosonde augmente lorsque la température diminue; en outre elle présente relativement moins de magnétorésistance que la thermosonde en platine. Pour étalonner la résistance de carbone entre $1,6^\circ\text{K}$ et $20,3^\circ\text{K}$, on utilise des points obtenus par pompage sur des bains d'hélium ou d'hydrogène, dont la température est déterminée à l'aide des courbes de pression de vapeur saturante; entre $20,3^\circ\text{K}$ et 40°K , elle est étalonnée par comparaison avec la thermosonde en platine.

Pour mesurer la résistance des thermosonde on utilise la méthode quatre fils; la force électromotrice est mesurée avec un pont potentiométrique AOIP - P12, l'équilibre étant détecté à l'aide d'un graphispot.

Afin d'obtenir les températures autres que celles des bains cryogéniques, on isole l'échantillon de ceux-ci en faisant le vide sur les enceintes intérieures du calorimètre et on utilise les enroulements chauffants. La tem-

pérature est stabilisée à l'aide d'une régulation de type proportionnel et intégral. Le premier amplificateur d'erreur de la boucle est constitué par le graphispot qui permet d'utiliser la thermosonde de mesure comme organe détecteur du signal d'erreur sans pour cela perturber la mesure de la température. Entre 4,2 et 300°K la température de l'échantillon peut être maintenue constante dans un intervalle de $\pm 0,1^\circ\text{K}$ autour de la valeur affichée.

La précision relative sur la détermination de la température est identique à celle sur la mesure de la résistance R de la thermosonde en platine. En effet, l'étalonnage R(T) de la thermosonde a été fait à l'aide des Tables du National Bureau of Standards⁽¹³⁾ qui permettent d'obtenir des écarts absolus inférieurs à 0,01°K. La précision relative sur la température est celle des appareils de mesure

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\Delta R}{R} = 10^{-3}.$$

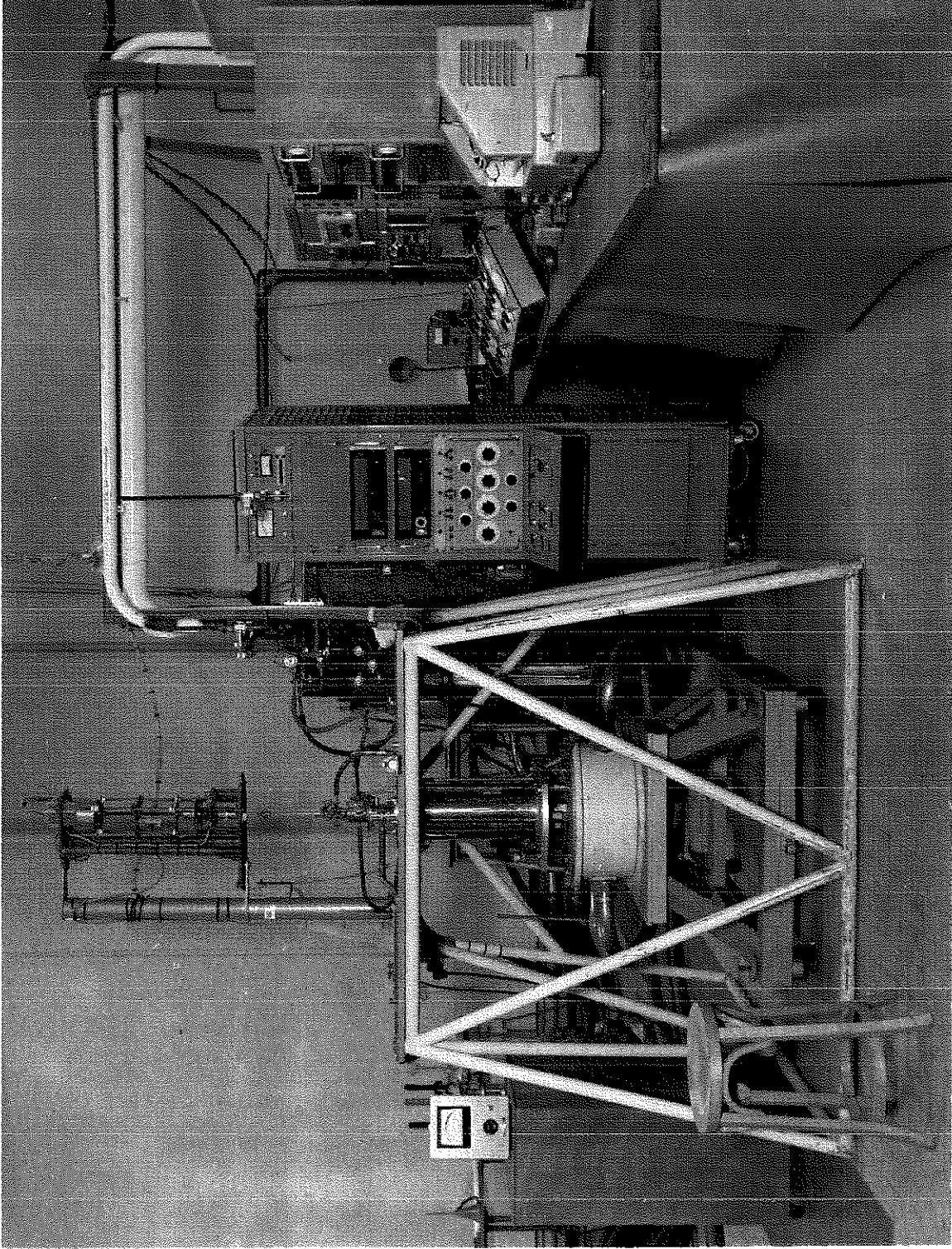


Figure 5 : Ensemble expérimental

C H A P I T R E I I

RESULTATS EXPERIMENTAUX

1 - Considérations expérimentales

Les propriétés physiques des terres rares de la seconde série ont fait l'objet de nombreuses études tant théoriques qu'expérimentales. En particulier, le comportement magnétique sous champ de monocristaux (Gd au Tm), a été étudié principalement par Legvold et ses collaborateurs^(14,15,16,17,18) dans des champs ne dépassant pas 18 kOe. Les structures magnétiques de ces mêmes éléments ont été déterminées par Koehler et autres^(19,20,21,22) à l'aide de la diffraction des neutrons.

Les terres rares de la seconde série : Gd, Tb, Dy, Ho et Er possèdent la même structure cristalline : la structure hexagonale compacte du type magnésium (A_3). Pour ces éléments, la séquence d'empilement AB, AB, etc, est la plus simple possible. Le rapport c/a des paramètres cristallins décroît régulièrement de 1,59 pour le gadolinium à 1,57 pour l'erbium; ces valeurs de c/a diffèrent notablement de la valeur idéale $\frac{c}{a} = 1,633$.

Les monocristaux de terres rares utilisés ont été fournis par Metals Research, Cambridge (Angleterre). Les monocristaux sont d'abord obtenus sous forme de barreau par fusion de zone sous atmosphère d'argon, puis ils sont taillés par électroérosion sous forme de sphères de 6 mm de diamètre. La pureté annoncée des échantillons est de 99,8 %. La dispersion des axes c des cristaux est inférieure à 2 degrés.

2 - Gadolinium

a - variation de l'aimantation avec le champ et la température

Le gadolinium est ferromagnétique dans sa phase magnétique ordonnée^(14,25,26) (figure 6). Sous forme monocristalline, il présente sous champ deux comportements magnétiques distincts, suivant que la température est inférieure ou supérieure 220°K.

Pour les températures inférieures à 220°K, une courbe de variation de l'aimantation M en fonction du champ extérieur, H_e , se décompose en trois régions, quelle que soit la direction du champ appliqué par rapport aux axes cristallographiques (figure 7). En champ faible, l'aimantation M est proportionnelle au champ; la susceptibilité correspondante est égale à $1/N$, l'inverse du coefficient de champ démagnétisant de l'échantillon (région I). Cette variation linéaire de M se poursuit jusqu'à un champ H_a dont les valeurs diffèrent, pour une même température, suivant que le champ est appliqué selon l'axe a ou l'axe b . Pour des champs supérieurs à H_a , les courbes d'aimantation s'écartent de la droite de champ démagnétisant; l'aimantation atteint sa valeur spontanée vers 12 000 Oe (région II). Sous champs intenses, l'aimantation continue à croître lentement avec le champ; dans la limite de l'erreur expérimentale, les valeurs de l'aimantation pour un même champ ne dépendent pas de l'orientation du champ par rapport aux axes du cristal (région III).

Aux températures supérieures à 220°K, suivant l'axe a , seules les régions I et III sont observées; en revanche suivant l'axe b , on n'observe que les régions II et III. Remarquons que selon l'axe b , la variation de l'aimantation dans la région II est alors quasi linéaire avec le champ (figure 6).

GADOLINIUM

He PARALLELE A L'AXE b

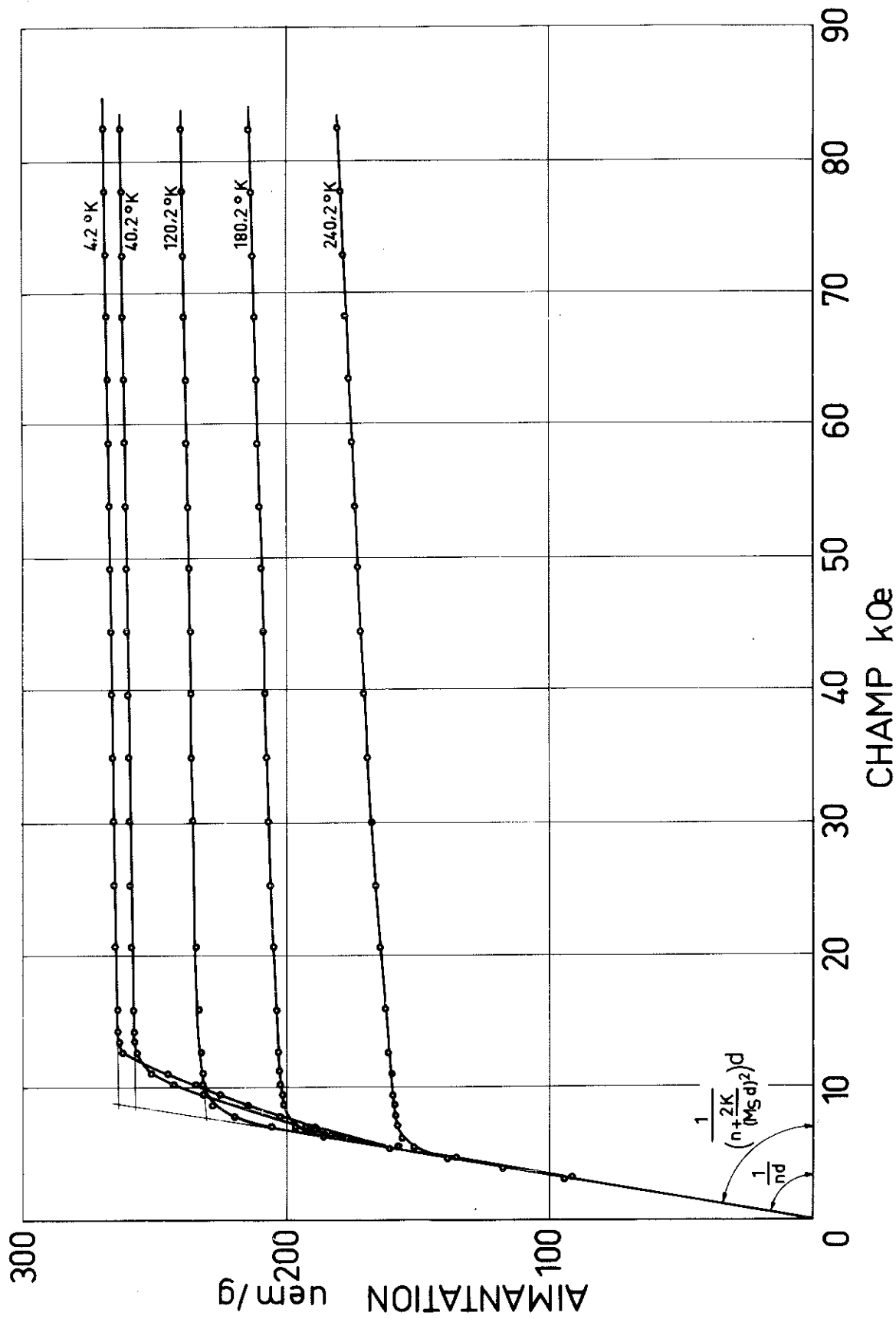


Figure 6 : Réseau d'isothermes du gadolinium

GADOLINIUM

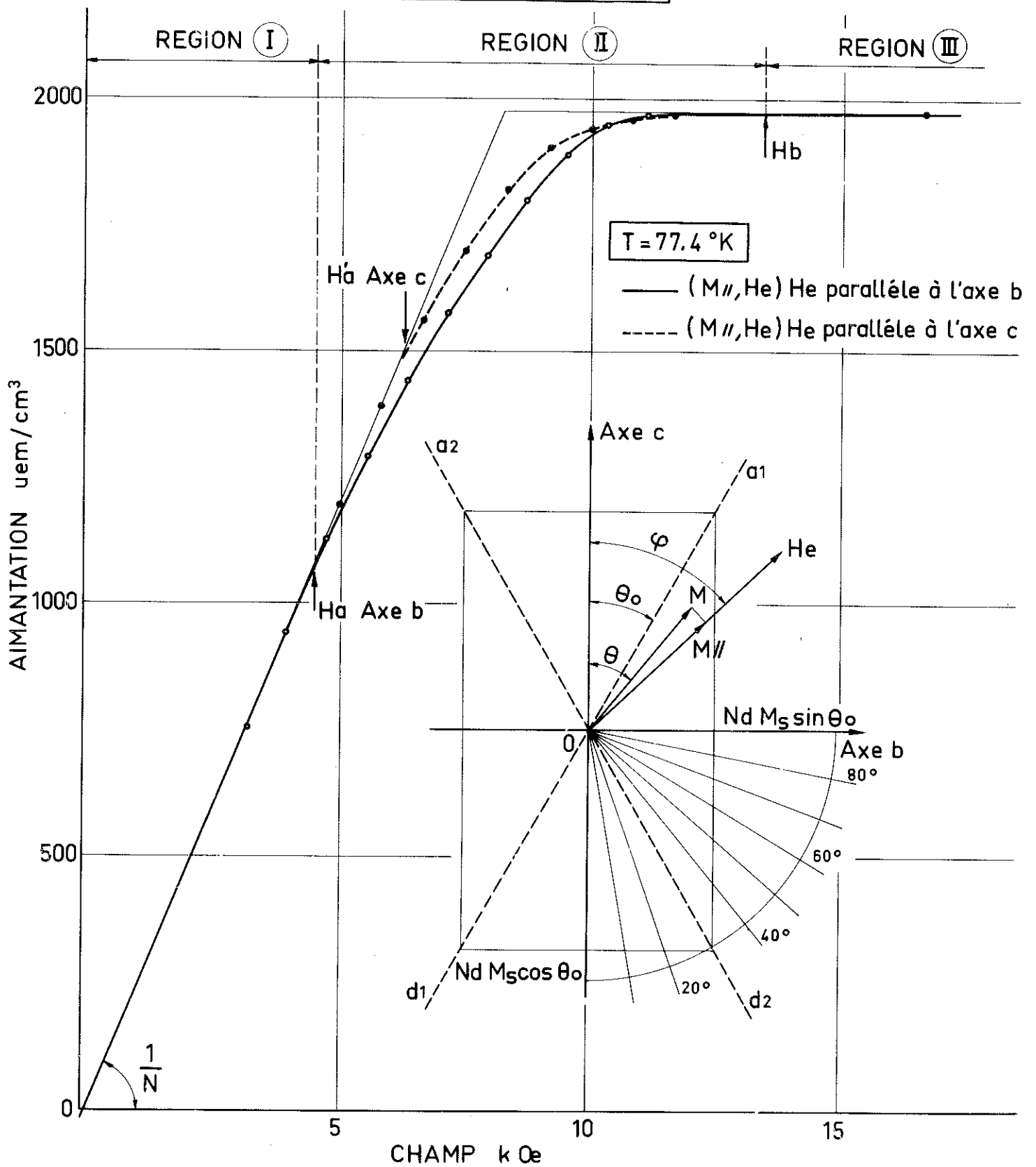


Figure 7 : Courbes d'aimantation du gadolinium à 77°K

Pour une même température et quelle que soit la direction du champ dans le plan de base, les courbes d'aimantation sont identiques dans la limite de l'erreur expérimentale.

Dans un cristal ferromagnétique, l'aimantation spontanée M_s est l'aimantation prise par l'échantillon sous champ intérieur nul suivant la direction de facile aimantation. Par la suite M_s sera définie à chaque température par l'ordonnée du point d'intersection de la portion linéaire de la région III avec la droite de champ démagnétisant. Pour le gadolinium, les valeurs expérimentales de $M_s(T)$ sont identiques, quelle que soit l'orientation du champ par rapport aux axes cristallographiques. Désignons respectivement par M_{sb} et M_{sc} les valeurs de M_s déterminées suivant l'axe b et l'axe c ; à 4,2°K on a :

$$M_{sb} = 263 \pm 1 \text{ uem/g}, \quad M_{sc} = 262,5 \pm 1 \text{ uem/g}.$$

Nous avons porté sur la figure 8a, les variations de M_s en fonction de la température ainsi que la fonction de Brillouin $B_J = 7/2$ d'un ion trivalent de moment cinétique total $j = 7/2$. Sur les figures 8b et 8c, nous avons tracé la variation de M_s en fonction respectivement de la puissance $3/2$ et du carré de la température. Entre zéro et 120°K, nous constatons qu'une loi linéaire en T^2 rend compte de la variation expérimentale de $M_s(T)$ à mieux de 0,3 %,

$$M_s(T) = M_{s0} \left[1 - 0,82 \cdot 10^{-5} T^2 \right] ; \quad (3)$$

l'aimantation à saturation absolue M_{s0} , exprimée en magnétons de Bohr est $7,39 \pm 0,03 \mu_B$. Cette valeur de M_{s0} est à comparer à la valeur de l'aimantation à 0°K mesurée par Legvold et ses collaborateurs⁽¹⁴⁾, $M_{0,\infty} = 7,55 \mu_B$; ces auteurs ont déterminé $M_{0,\infty}$ par extrapolation en $1/H$ à champ infini des courbes d'aimantation.

GADOLINIUM

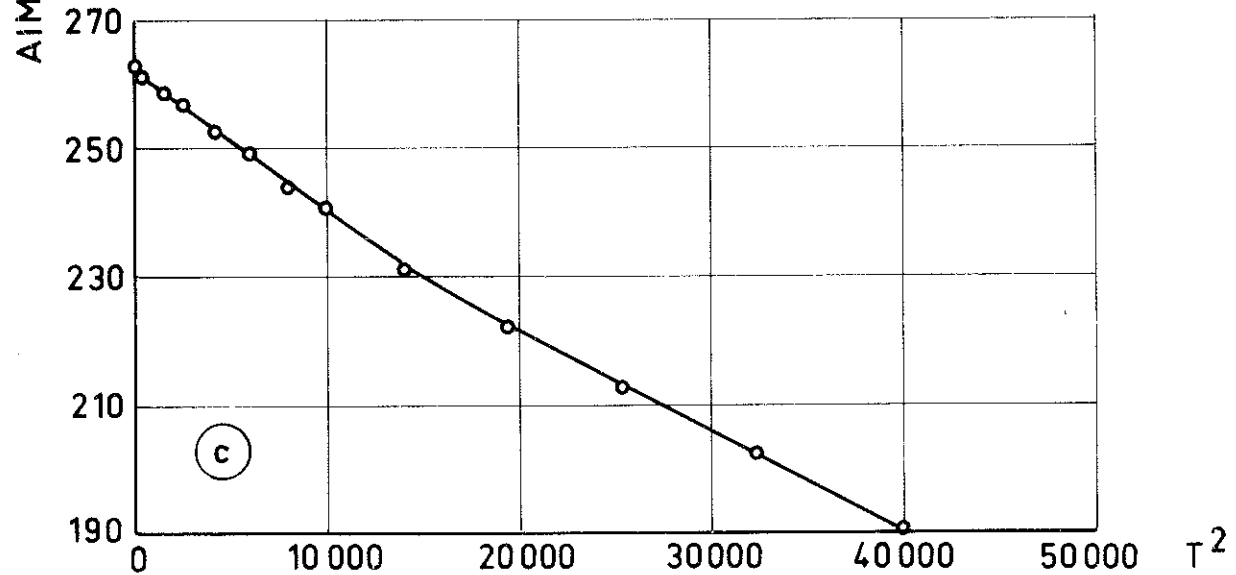
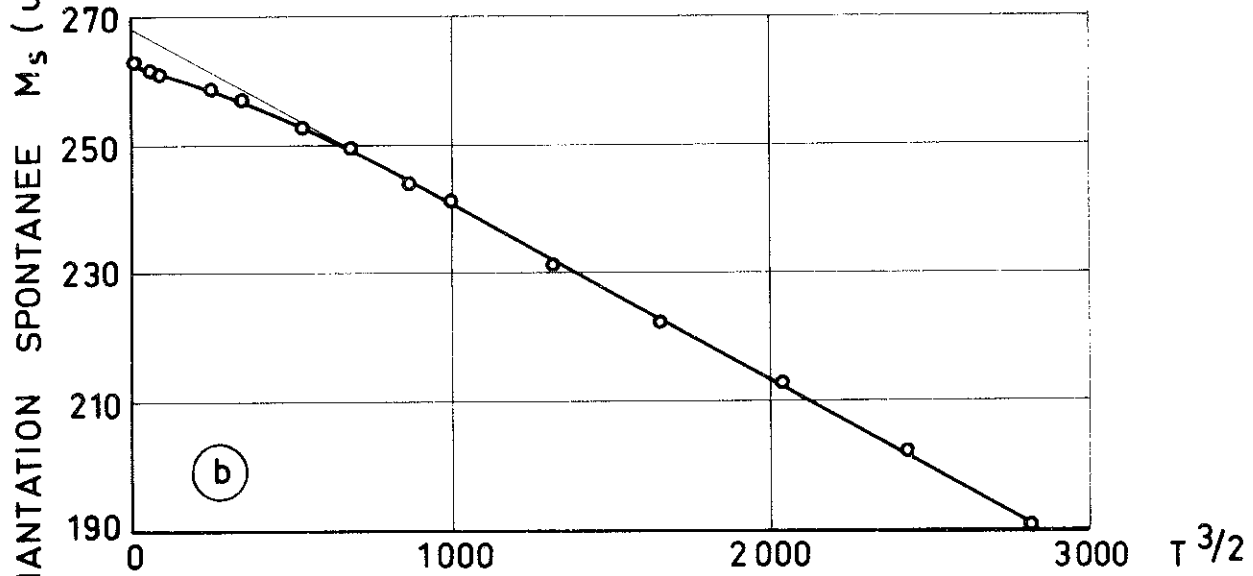
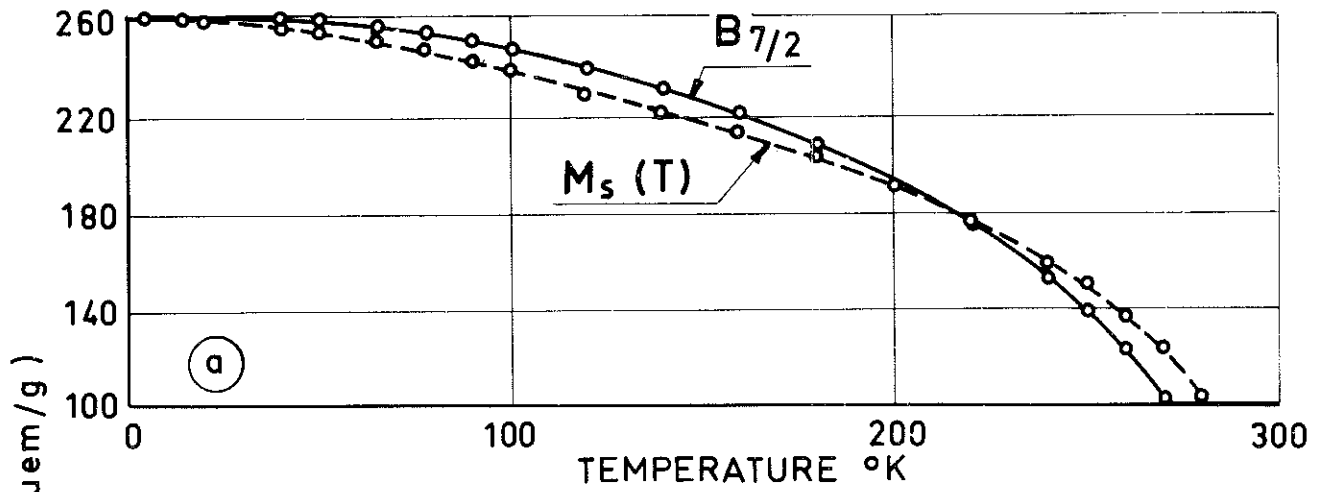


Figure 8 : Variation thermique de l'aimantation spontanée

La température de Curie T_C a été définie comme étant la température pour laquelle la variation isotherme de M^2 en fonction du rapport $\frac{H_i}{M}$ passe par l'origine; H_i est le champ à l'intérieur de l'échantillon⁽²⁷⁾ (figure 9). T_C vaut $291 \pm 0,5^\circ\text{K}$, lorsque le champ est orienté suivant l'axe c . Il n'a pas été possible de déterminer T_C par cette méthode quand le champ est appliqué dans le plan de base; en effet l'anisotropie magnétocristalline n'est pas nulle au voisinage de T_C et le rapport $(\frac{H_i}{M})$ ne peut atteindre une valeur nulle⁽²⁸⁾.

Par analyse de la variation de l'aimantation avec le champ dans la région III des isothermes (M, H_e) nous avons déterminé une susceptibilité χ_{ms} superposée à l'état ferromagnétique (cf. chapitre III, § 2). En première approximation χ_{ms} est indépendant de la température au-dessous de 200°K ; χ_{ms} vaut $45 \cdot 10^{-6}$ uem/g (figure 10). L'erreur sur χ_{ms} est de $\pm 10\%$; cela correspond à une précision relative sur l'aimantation $\frac{\Delta M}{M}$ de $7 \cdot 10^{-4}$ pour un champ appliqué de 40 k Oe.

b - Détermination des constantes d'anisotropie

Expérimentalement, entre zéro et 220°K , la présence de la région II des couches d'aimantation quelle que soit l'orientation du champ appliqué, indique l'existence d'un cône de facile aimantation⁽²⁹⁾. Au-dessus de 220°K , en revanche, l'axe c est axe de facile aimantation.

L'anisotropie dans le plan de base est très faible (800 erg/g à $4,2^\circ\text{K}$)⁽³⁰⁾; même à basses températures nous n'avons pas pu l'observer.

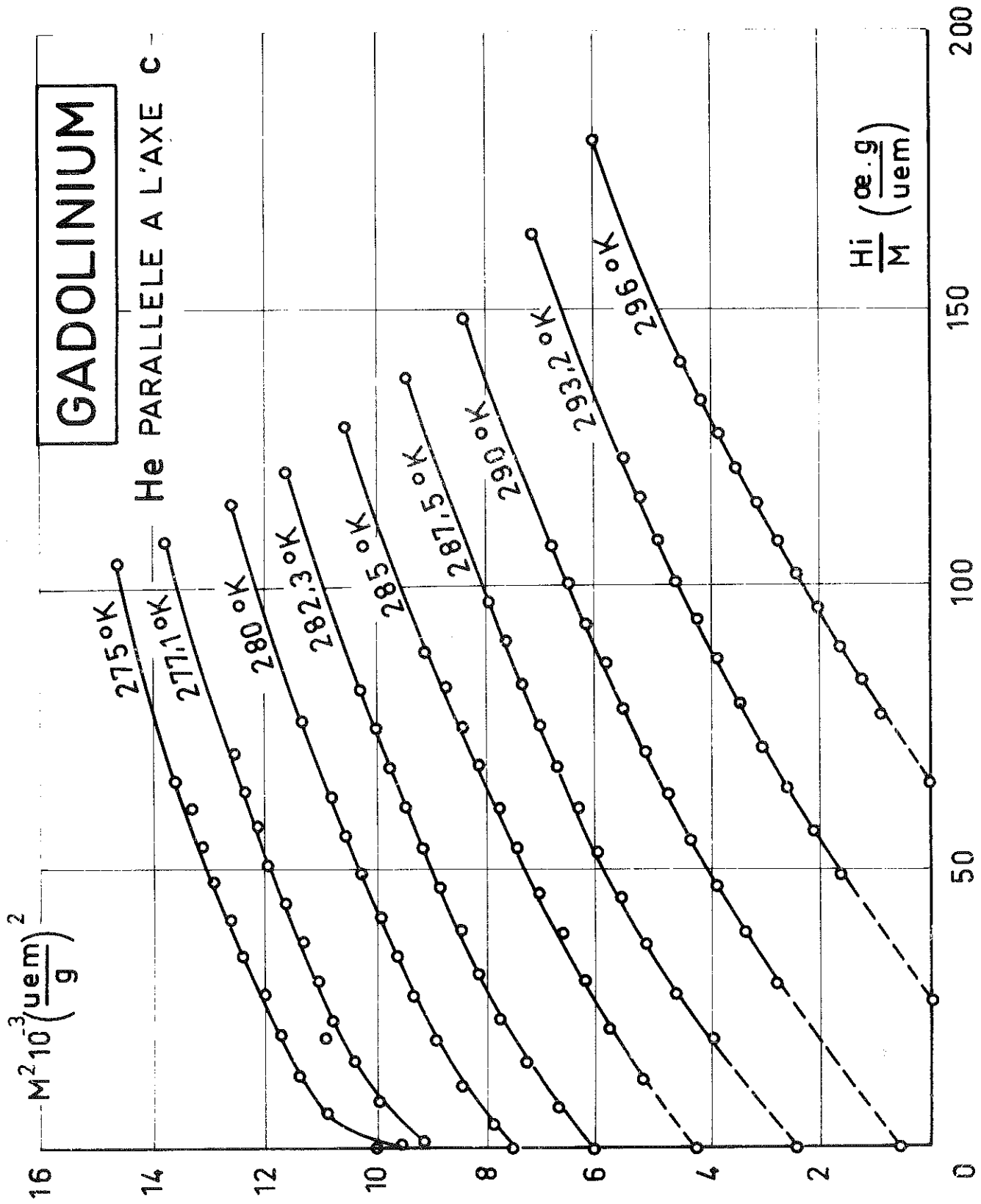


Figure 9 : Détermination de la température de Curie du gadolinium

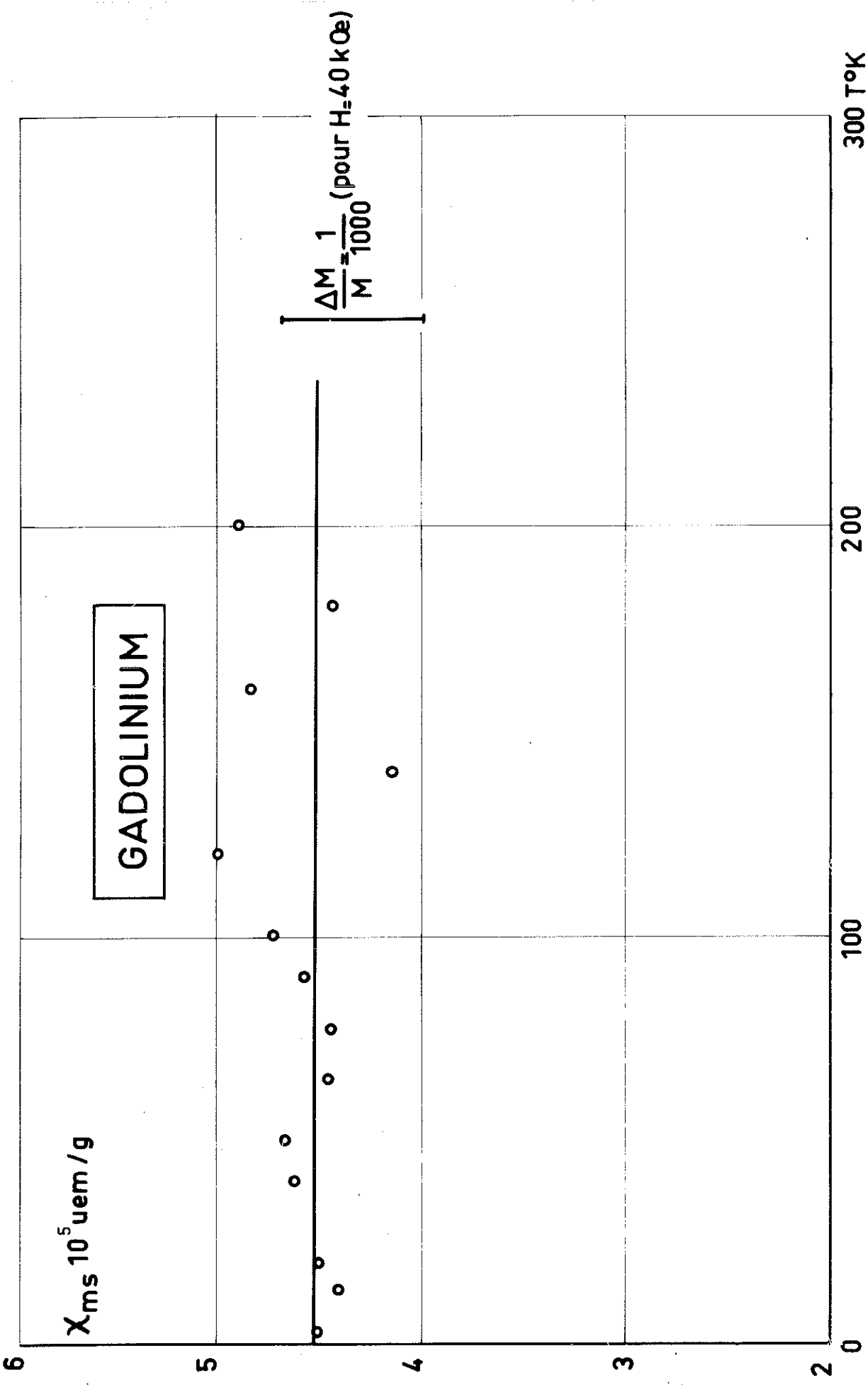


Figure 10 : Susceptibilité superposée du gadolinium

En première approximation, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline d'un cristal uniaxe peut être mise sous la forme

$$W_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta, \quad (4)$$

θ est l'angle entre l'axe a et le vecteur aimantation \vec{M} . En absence de champ extérieur, la position d'équilibre θ_0 de \vec{M} est définie par le minimum de W_a . En général, θ_0 prend les valeurs 0 ou $\Pi/2$ et on se trouve en présence d'axes de facile aimantation. Si K_1 et K_2 , en revanche, satisfont aux inégalités

$$0 < -K_1 < 2K_2; \quad (5)$$

il existe alors un cône préférentiel d'aimantation dont l'angle au sommet $2\theta_0$ est défini par

$$\theta_0 = \arcsin \sqrt{\frac{-K_1}{2K_2}} \quad (6)$$

La théorie des phases de domaines élémentaires^(31,32) conduit aux équations théoriques des courbes d'aimantation (cf. chapitre IV, § 1). Par la comparaison des courbes expérimentales et théoriques, on déduit les constantes d'anisotropie K_1 et K_2 . Afin d'exprimer ces constantes en ergs/cm³, la densité d du gadolinium a été prise égale à 7,97 à 300°K; nous avons évalué les variations de d avec la température à l'aide des variations thermiques des paramètres cristallins⁽³³⁾.

Sur la figure 11, nous avons représenté les variations thermiques de K_1 et K_2 . Leurs déterminations sont faites avec une précision $\frac{\Delta K}{K} = 8\%$. La précision diminue sensiblement lorsque K_1 et K_2 sont voisins de zéro, c'est-à-dire pour les températures supérieures à 200°K. K_1 et K_2

GADOLINIUM

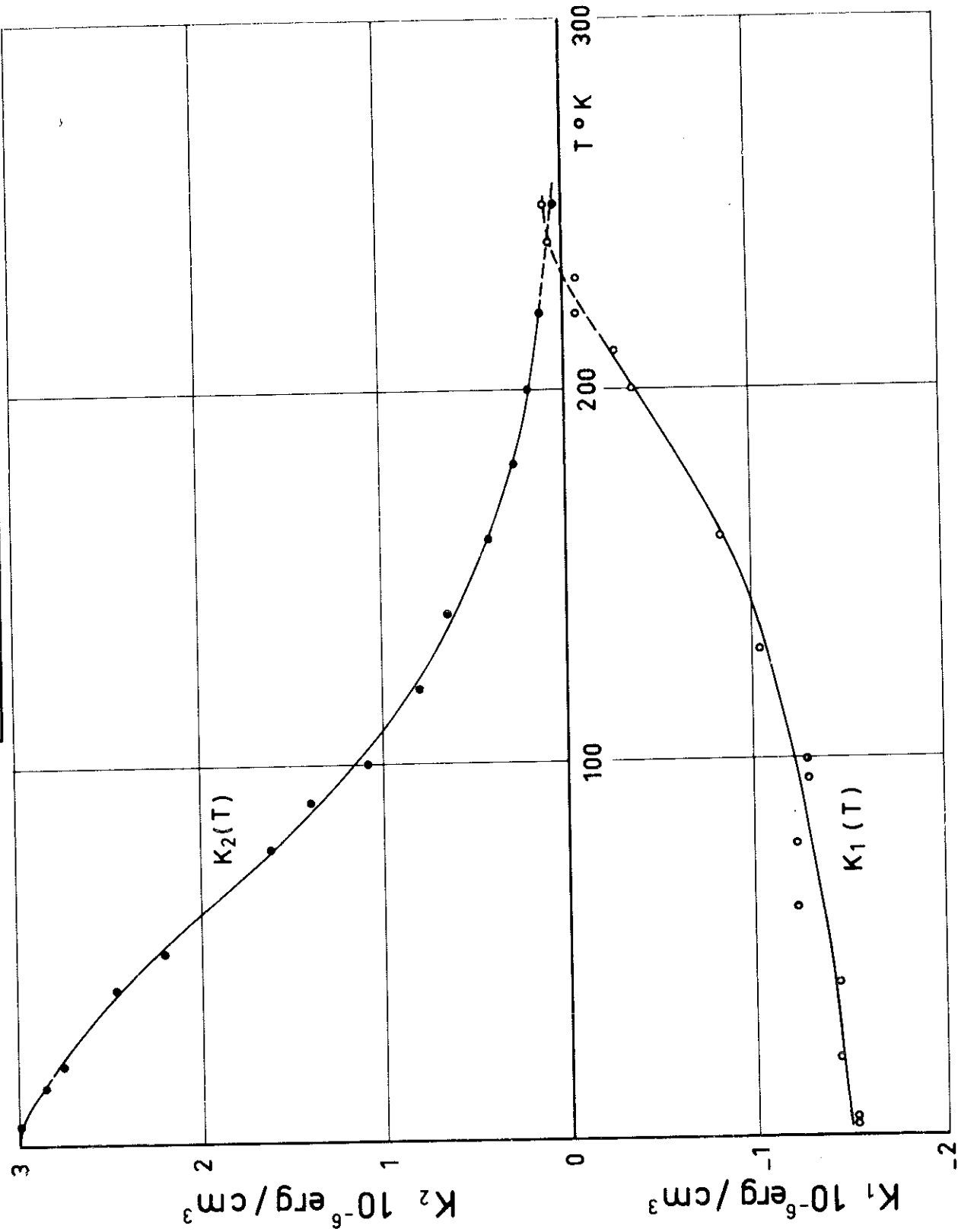


Figure 11 : Variations thermiques des constantes d'anisotropie du gadolinium

ont pour valeurs à 4,2°K

$$K_1 = - 1,55 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$$

$$K_2 = 3 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3.$$

Ces valeurs sont en accord avec celles déterminées par Graham par une méthode de couple⁽³⁴⁾. K_1 est toujours négatif sauf peut être au voisinage de la température de Curie. Pour les températures inférieures à 220°K, K_1 et K_2 satisfont bien aux inégalités (5) nécessaires à la présence d'un cône préférentiel d'aimantation.

c - cône préférentiel d'aimantation

Afin de déterminer avec précision l'angle au sommet θ_0 du cône préférentiel, nous avons étudié les variations de l'aimantation mesurée parallèlement au champ quand celui-ci est appliqué dans une direction quelconque caractérisée par l'angle φ qu'elle fait avec l'axe c . Analysons le mécanisme d'aimantation à l'aide de la figure 7.

Pour $\varphi > \theta_0$, dans la région I, les variations de M sont dues au déplacement des parois des domaines; le champ à l'intérieur de l'échantillon est nul; le vecteur aimantation \vec{M} est parallèle et proportionnel au vecteur champ \vec{H}_e . Le processus se poursuit jusqu'au champ H_a pour lequel l'échantillon est subdivisé en deux phases de domaines dont les aimantations respectives sont dirigées suivant $\vec{O}a_1$ et $\vec{O}d_2$. Dans la région II, les proportions des deux phases varient jusqu'à ce que l'une des deux phases disparaissent; cela se produit pour le champ H_b , la variation de M résulte de la rotation du vecteur aimantation spontanée \vec{M}_s de la phase unique de domaine vers le champ extérieur suivant une loi d'approche à la saturation. Pour $\varphi > \theta_0$, la projection de \vec{H}_a dans le plan de base est théoriquement indépendante de l'angle φ et vaut $N M_s d \sin\theta_0$.

T A B L E A U 1

Constantes d'anisotropie du gadolinium

$$1 \mu_B = 35,6 \text{ uem/g}$$

Température	$M_S(T)$	$-K_1$	K_2
°K	uem/g	10^6 erg/cm^3	10^6 erg/cm^3
4,2	263	1,54	3
14,05	261,5	1,74	2,85
20,3	261	1,45	2,76
40,2	258,7	1,45	2,47
50,2	257	1,49	2,21
65,2	252,5	1,23	1,70
77,4	249,1	1,23	1,62
90,2	243,8	1,29	1,40
100,2	241	1,29	1,08
120,2	231	0,823	0,811
140,2	222	0,836	0,648
160,2	212,5	0,825	0,417
180,2	202	0,347	0,283
200,2	190	0,364	0,214
220,2	176	0,06	0,138
240,2	158,2	0,09	0,075
250,2	151		0,063

Pour $\varphi < \theta_0$, nous pouvons également distinguer trois régions dans le processus d'aimantation. Dans une direction donnée d'angle polaire φ , le passage de la région I à la région II a lieu au champ H_a' , pour lequel l'échantillon est divisé en deux phases de domaines dont les aimantations respectives sont dirigées suivant $\vec{O}a_1$ et $\vec{O}a_2$. On montre que la projection de \vec{H}_a' sur l'axe a est indépendante de l'angle φ et a alors pour valeur $N M_s d \cos \theta_0$.

Pour différentes températures, nous avons porté en coordonnées polaires sur la figure 12, le long du rayon vecteur d'angle polaire φ , les valeurs de H_a , champ qui sépare expérimentalement les régions I et II. Pour une température donnée nous constatons que, conformément à la théorie des phases de domaines, les différents points sont sur un rectangle dont la diagonale a pour angle polaire θ_0 . Le nombre important de points expérimentaux permet de déterminer avec précision la valeur de θ_0 . La variation thermique de θ_0 a été portée sur la figure 13. Nous avons également représenté la détermination de θ_0 par diffraction des neutrons⁽³⁵⁾ et par mesure d'anisotropie⁽³⁴⁾. Nos valeurs de θ_0 sont en bon accord avec les mesures par diffraction neutronique; nous n'avons jamais observé, contrairement à Graham, que le plan de base était de facile aimantation.

3 - Terbium

a - variation de l'aimantation avec le champ et la température

Le terbium est ferromagnétique entre 0 et 220°K^(15,19); l'axe b est de facile aimantation (figure 14). Lorsque le champ est appliqué selon cette direction, les courbes d'aimantation présentent les régions I et III.

GADOLINIUM

RAYON VECTEUR 1cm = 152 oe

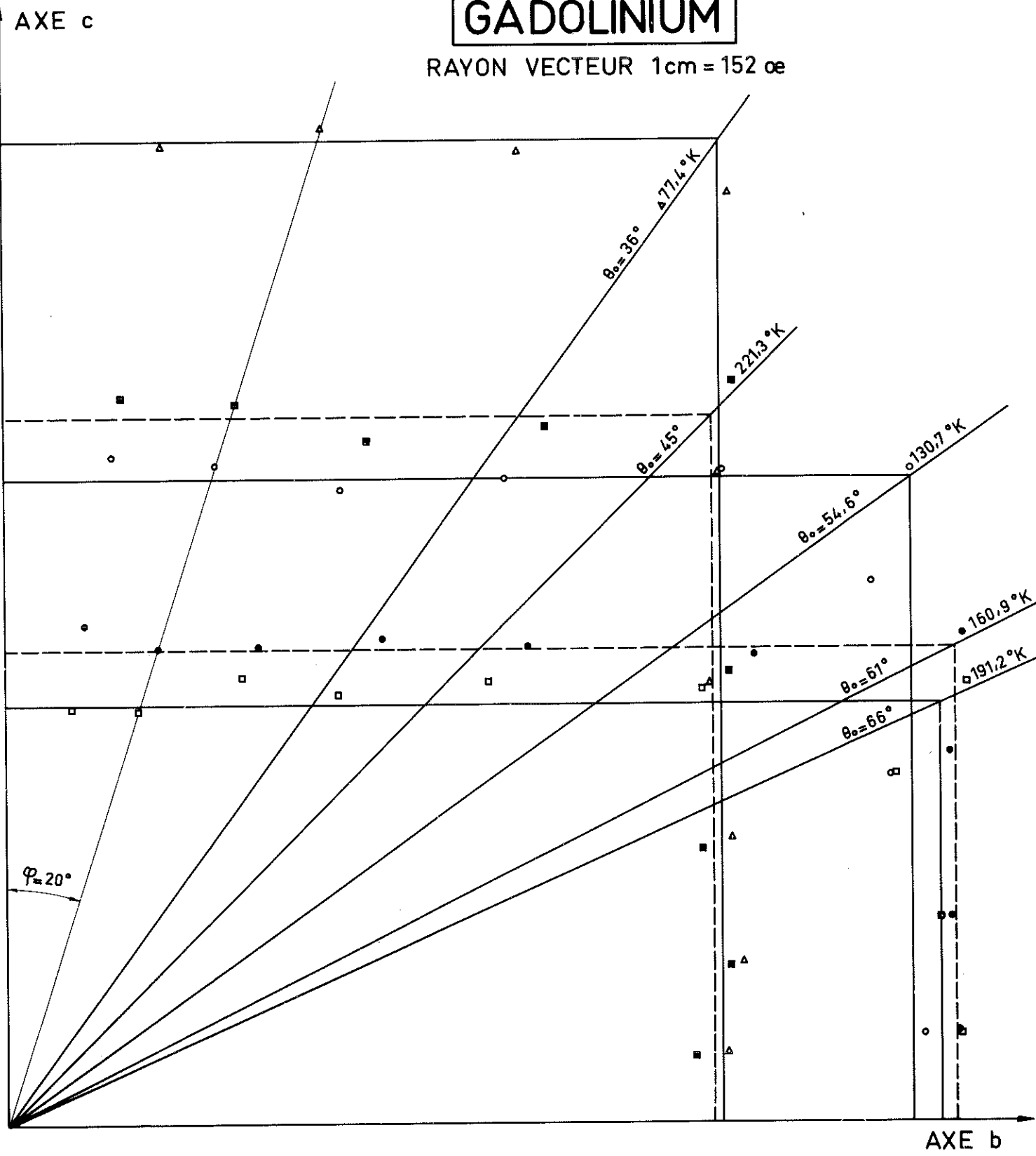


Figure 12 : Détermination θ_0 de l'angle du cône du gadolinium

GADOLINIUM

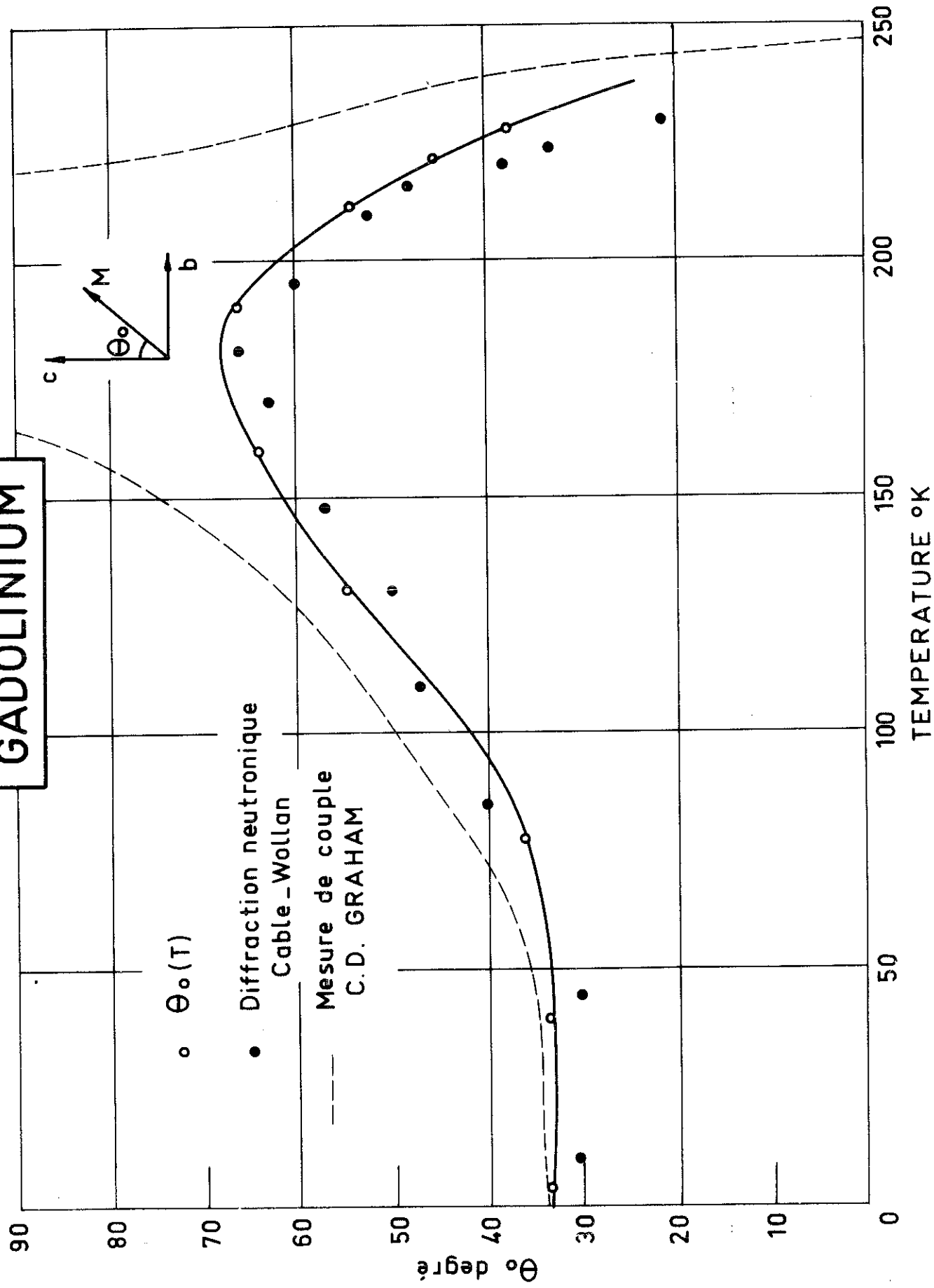


Figure 13 : Variation thermique de θ_0

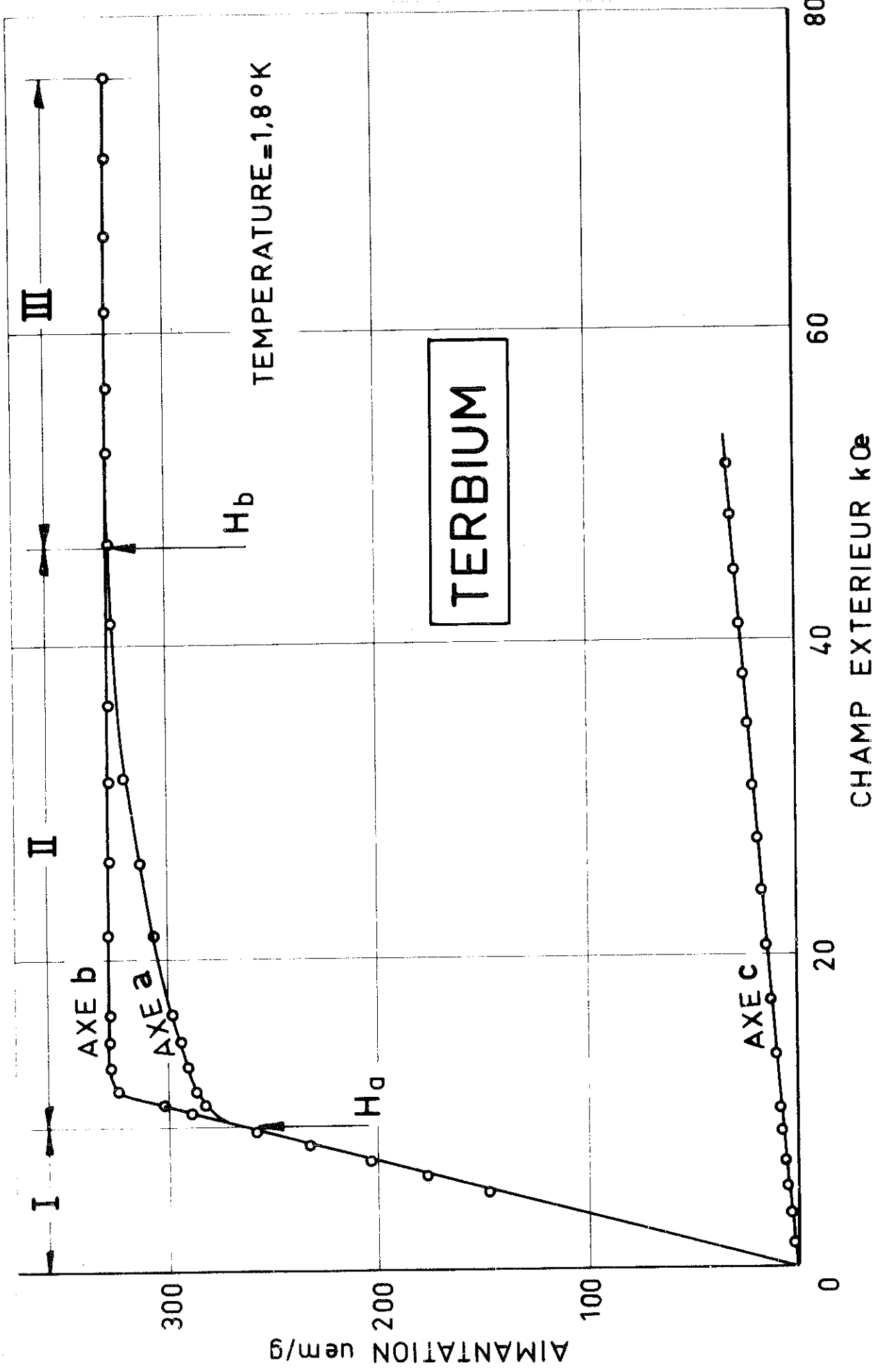


Figure 14 : Courbes d'aimantation du terbium à 4,2°K

Pour chaque température, l'aimantation spontanée M_s est déterminée par extrapolation en champ interne nul de la région III. Sur la figure 15a, nous avons porté la variation de M_s avec la température, ainsi que la fonction de Brillouin $B_{J=6}$ pour un ion trivalent de moment cinétique total $J = 6$. Pour déterminer le meilleur accord expérimental, nous avons porté respectivement sur les figures 15b et 15c, la variation de M_s en fonction de la puissance $3/2$ et du carré de la température. Entre 0 et 120°K , nous constatons que la variation de M_s avec T^2 est en bon accord avec l'expérience à mieux de 0,3 % et elle peut être représentée par la relation :

$$M_s(T) = M_{s0} [1 - 0,944 \cdot 10^{-5} T^2] \quad . \quad (7)$$

L'aimantation à saturation absolue M_{s0} vaut $9,28 \pm 0,03 \mu_B$.

La susceptibilité superposée χ_{ms} a été déterminée par analyse de la région III des courbes d'aimantation. Pour les températures inférieures à 120°K , elle est, en première approximation, indépendante de la température; sa valeur est $52 \pm 4 \cdot 10^{-6}$ uem/g (figure 35).

Selon l'axe a , les courbes d'aimantation présentent les régions I, II et III (figure 16). Dans la limite de l'erreur expérimentale, au-dessus de 40 000 Oe à $4,2^\circ\text{K}$, pour un même champ, l'aimantation mesurée selon l'axe a est identique à celle observée quand le champ est appliqué selon l'axe b . En particulier pour une même température, l'aimantation spontanée M_s , déterminée par extrapolation à champ interne nul, est la même selon les deux axes a et b . Par exemple à $4,2^\circ\text{K}$:

$$M_{sb} = 326,5 \pm 1,4 \text{ uem/g}; \quad M_{s\alpha} = 327,5 \pm 1,4 \text{ uem/g}.$$

TERBIUM

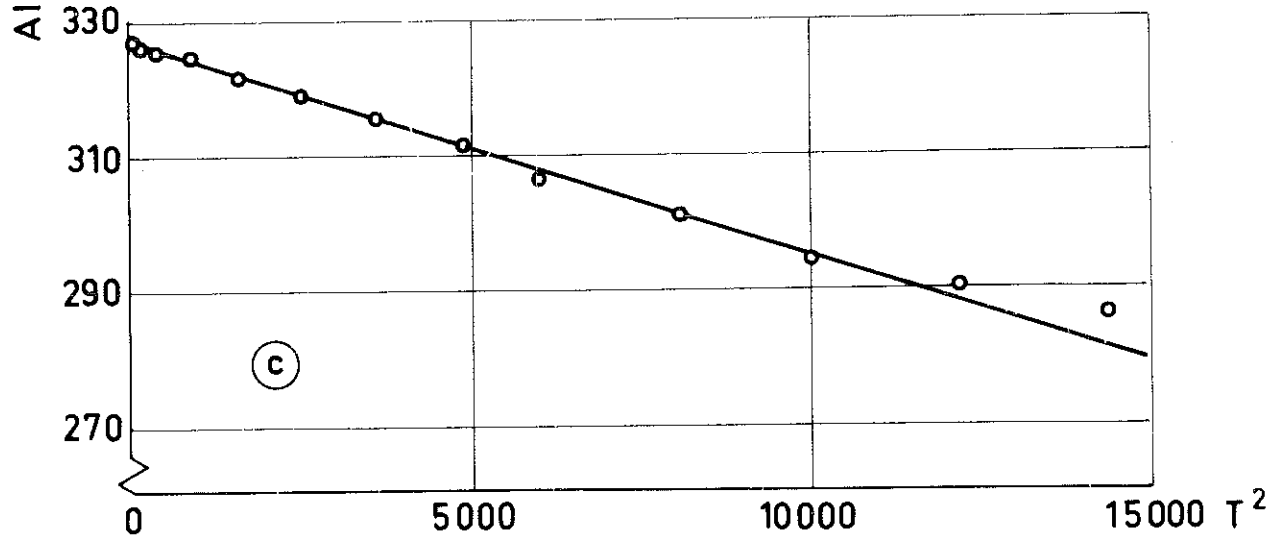
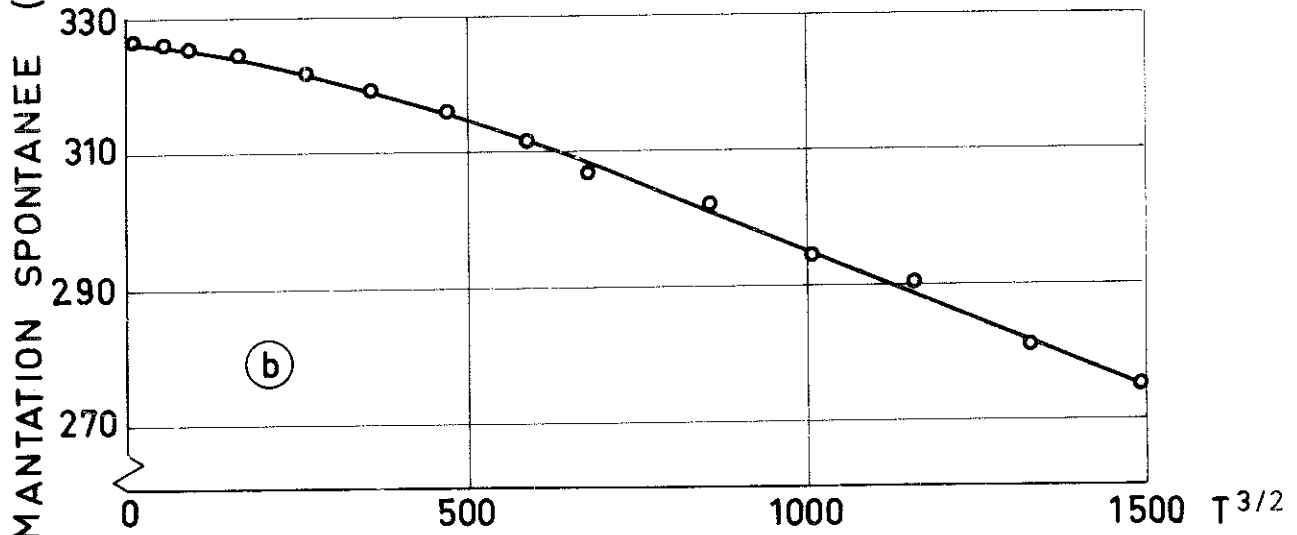
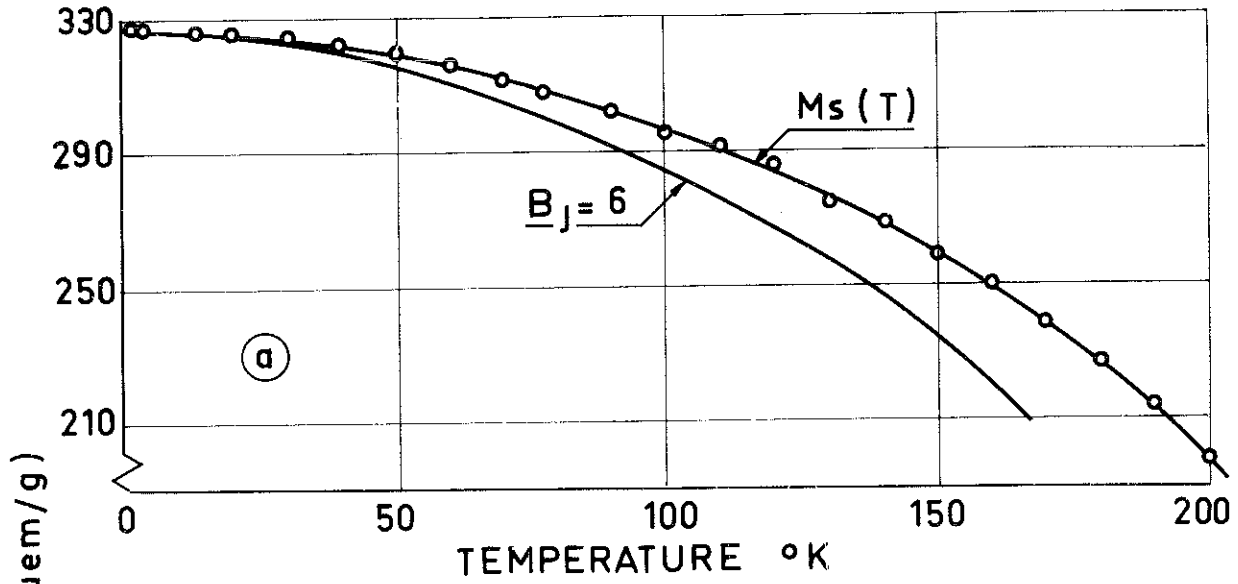


Figure 15 : Variation thermique de l'aimantation spontanée

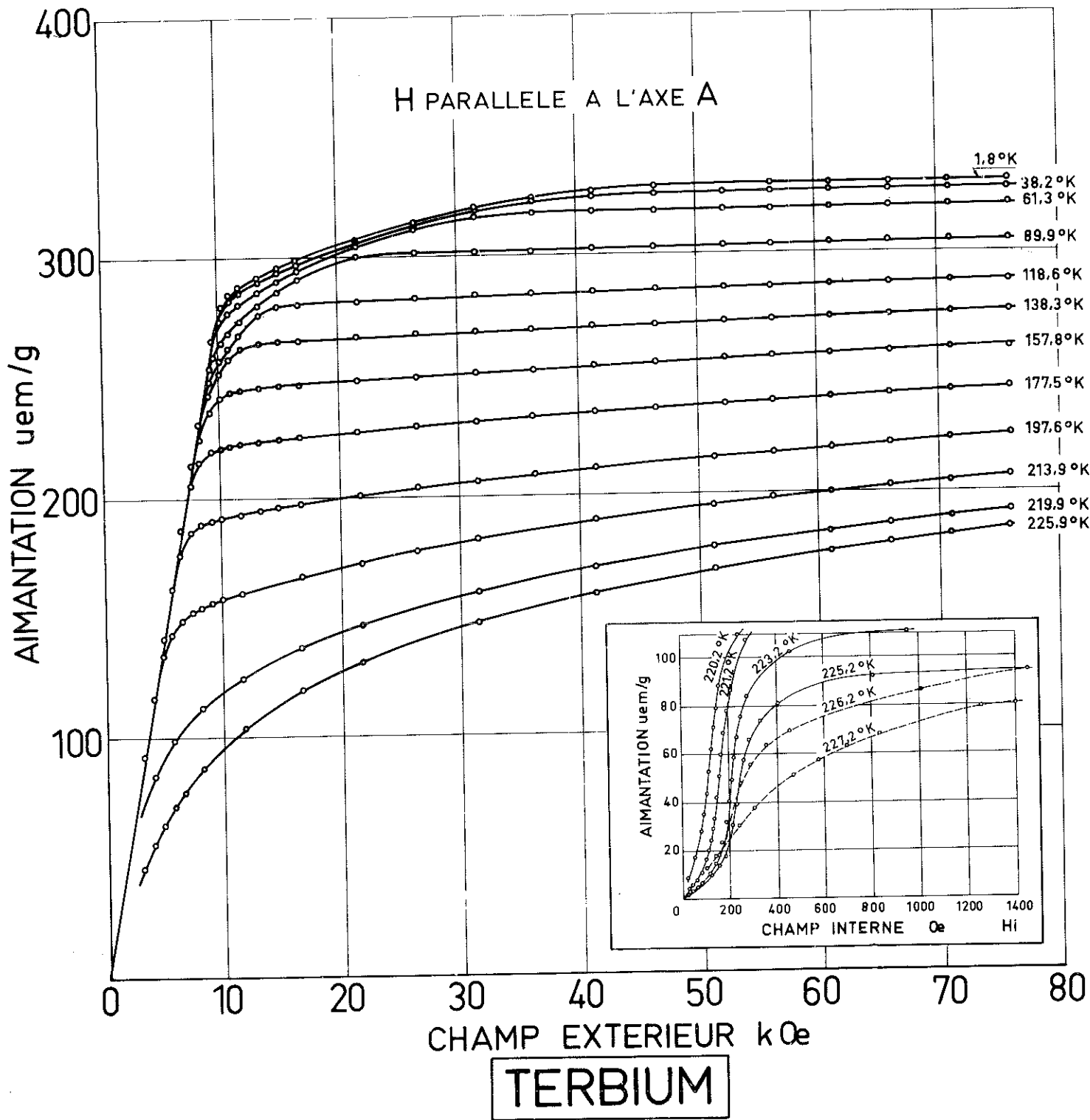


Figure 16 : Réseau d'isothermes du terbium

Détails entre 220°K et 228°K

Selon l'axe α , le champ H_b , qui sépare les régions II et III, vaut 36 100 Oe à 4,2°K; il décroît rapidement avec la température.

Pour des champs inférieurs à 50 000 Oe, appliqués suivant l'axe α , la variation de l'aimantation est presque linéaire avec le champ. On observe une légère courbure des courbes d'aimantation vers l'axe des champs (figure 14). Les valeurs de l'aimantation restent très faibles. A titre d'exemple M suivant l'axe α vaut 33 uem/g à 4,2°K pour un champ de 51200 Oe. L'aimantation spontanée à la même température M_s (4,2°K) est 9,9 fois plus grande.

Entre 220 et 228°K, lorsque le champ est appliqué dans le plan de base, les courbes de variation de l'aimantation en fonction du champ intérieur H_i (encart figure 16) indiquent la présence d'une transition induite par le champ entre un état héli magnétique à champ faible et un état ferromagnétique en champ fort (cf. chapitre V). La variation thermique du champ critique H_c pour lequel la transition se produit, a été portée sur la figure 17; H_c passe par un maximum (225 Oe) à 224,5°K, puis tend vers zéro.

Nous avons pris pour définition de la température de Néel T_N la température pour laquelle la susceptibilité initiale est maximale; elle est égale à $227,5 \pm 0,5^\circ\text{K}$. Entre 220 et 228°K, pour des valeurs du champ interne H_i supérieures au champ critique H_c , la variation isotherme de M^2 est quasi linéaire en fonction de $\frac{H_i}{M}$. La température de Curie T_c peut être définie comme étant la température de l'isotherme $(M^2, \frac{H_i}{M})$ qui passe par l'origine; T_c vaut $228,2 \pm 1^\circ\text{K}$. Aux erreurs expérimentales près, les deux températures T_N et T_c sont identiques. Cela signifie que la différence d'énergie entre la configuration magnétique à champ nul et celle sous

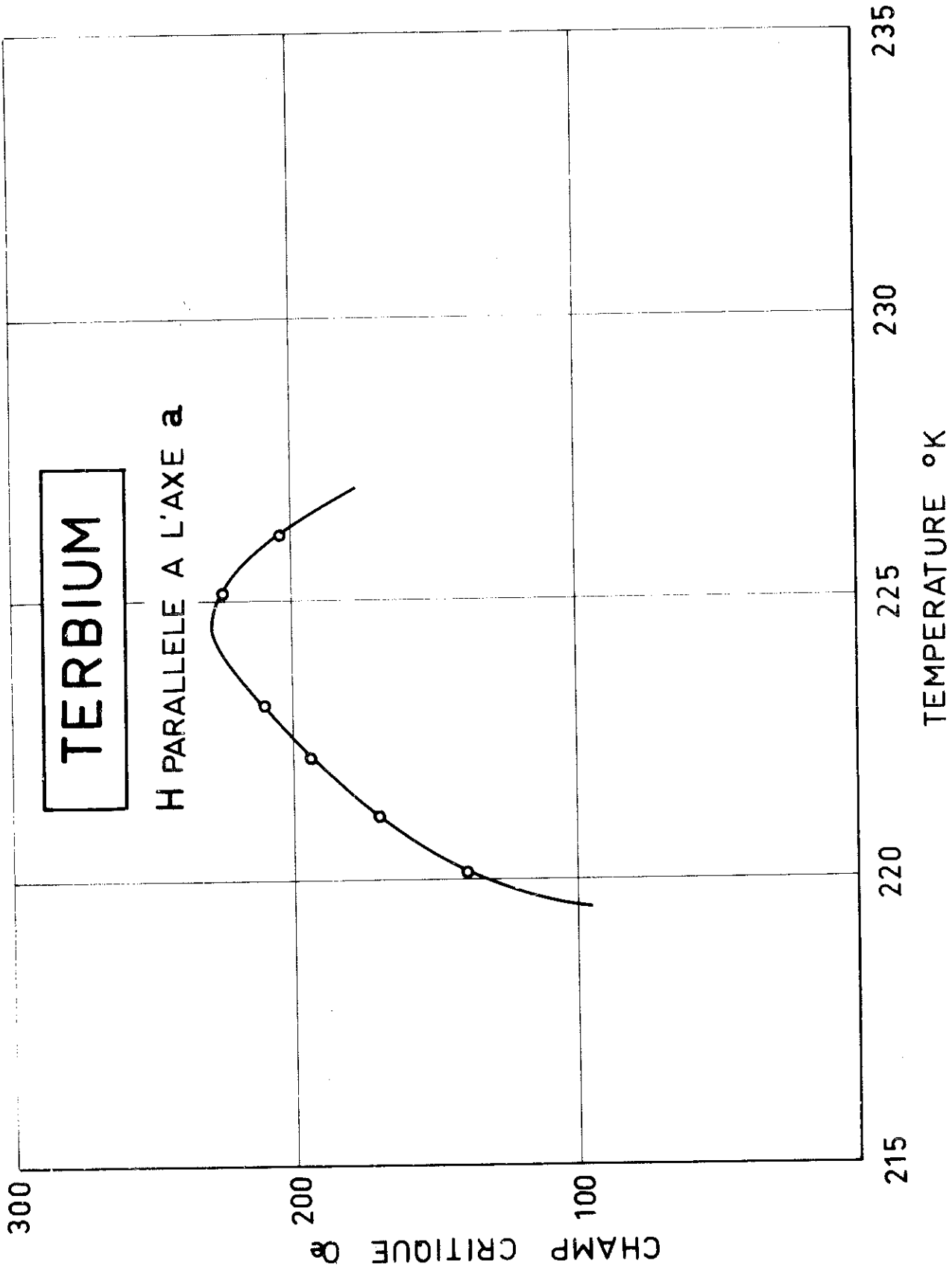


Figure 17 : Variation thermique du champ critique du terbium

champ est très faible. Un ordre de grandeur de cette différence d'énergie est donné par les valeurs du champ critique, qui sont aussi très faibles (cf. chapitre V).

La susceptibilité paramagnétique suit une loi de Curie - Weiss pour les températures supérieures à 300°K. Elle présente une anisotropie. Pour différentes orientations du champ dans le plan (a, c), les points de Curie paramagnétiques sont compris entre $T_{pa} = 236^\circ\text{K}$ lorsque le champ H_e est suivant l'axe a et $T_{pc} = 181^\circ\text{K}$ quand H_e est suivant l'axe c . En revanche, dans la limite de l'erreur expérimentale, aucune anisotropie des points de Curie paramagnétiques n'a été observée quand le champ est appliqué dans une direction quelconque du plan de base (a, b).

4 - Dysprosium

a - variation de l'aimantation avec le champ et la température

Les études par diffraction neutronique⁽²⁰⁾ ont montré que le dysprosium présente dans sa phase magnétique ordonnée deux structures magnétiques différentes à champ nul. De zéro à 89°K, le dysprosium est ferromagnétique⁽¹⁶⁾; de 89°K à sa température d'ordre, il est héli magnétique. Quelle que soit la température, les moments magnétiques sont toujours localisés dans le plan de base (a, b).

L'axe a est de facile aimantation. Dans le domaine ferromagnétique, suivant cet axe, la variation de l'aimantation en fonction du champ interne présente seulement la région III (figure 18).

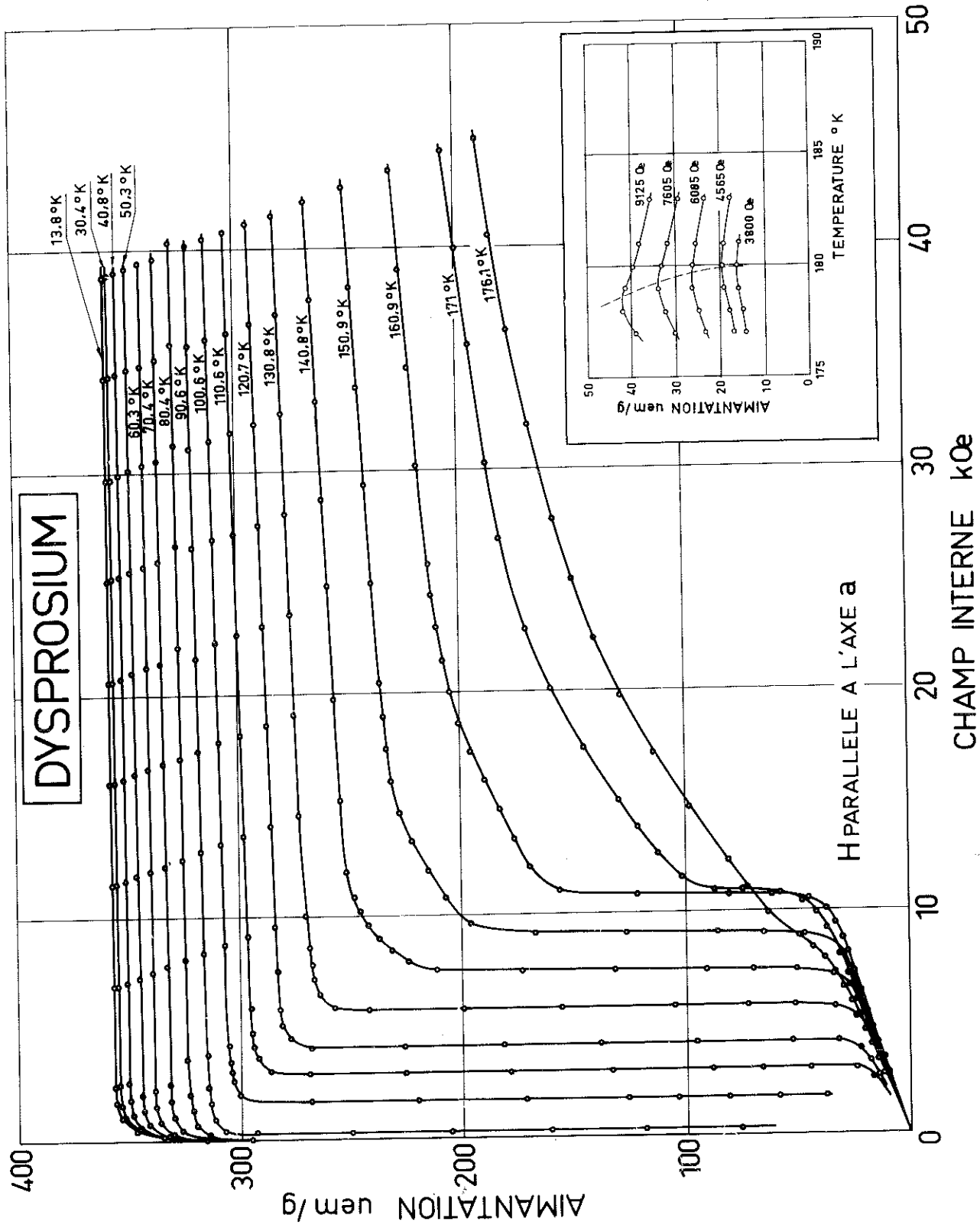


Figure 18 : Réseau d'isothermes du dysprosium

Quand le champ est appliqué suivant l'axe b , pour les températures inférieures à 50°K et pour les champs utilisés, une isotherme (M, H_i) ne présente que la région II; la région III n'apparaît dans les champs très forts qu'au-dessus de 50°K (figure 19). Pour un même champ et une même température, la valeur de l'aimantation dans la région III ne dépend pas de la direction du champ dans le plan de base.

Entre 89°K et la température d'ordre, les isothermes (M, H_i) suivant l'axe a ou l'axe b présentent un caractère métamagnétique (figures 18 et 19). La transition entre l'état héli magnétique et l'état ferromagnétique se produit pour un champ critique H_c dont le module ne dépend pas de l'orientation du champ dans le plan de base; H_c est nul à 89°K ; il croît régulièrement avec la température, passe par un maximum ($11\ 300\ \text{Oe}$) à 168°K , puis décroît rapidement (figure 20). Pour les températures comprises entre 89 et 110°K et pour les valeurs du champ supérieures à H_c , les courbes (M, H_i) selon l'axe b présentent les régions II et III; la région II disparaît au-dessus de 110°K .

L'aimantation spontanée M_s est déterminée dans le domaine ferromagnétique et héli magnétique par extrapolation à champ interne nul de la région III des courbes d'aimantation. Pour les températures supérieures à 150°K , cette extrapolation devient délicate. Sur la figure 21a, nous avons porté en fonction de la température, la variation de M_s et la fonction de Brillouin $B_{J=15/2}$. Sur les figures 21b et 21c nous avons tracé les variations de M_s en fonction de la puissance $3/2$ et du carré de la température. Pour les températures inférieures à 135°K , c'est la loi en T^2 qui présente le meilleur accord avec l'expérience. On peut donc

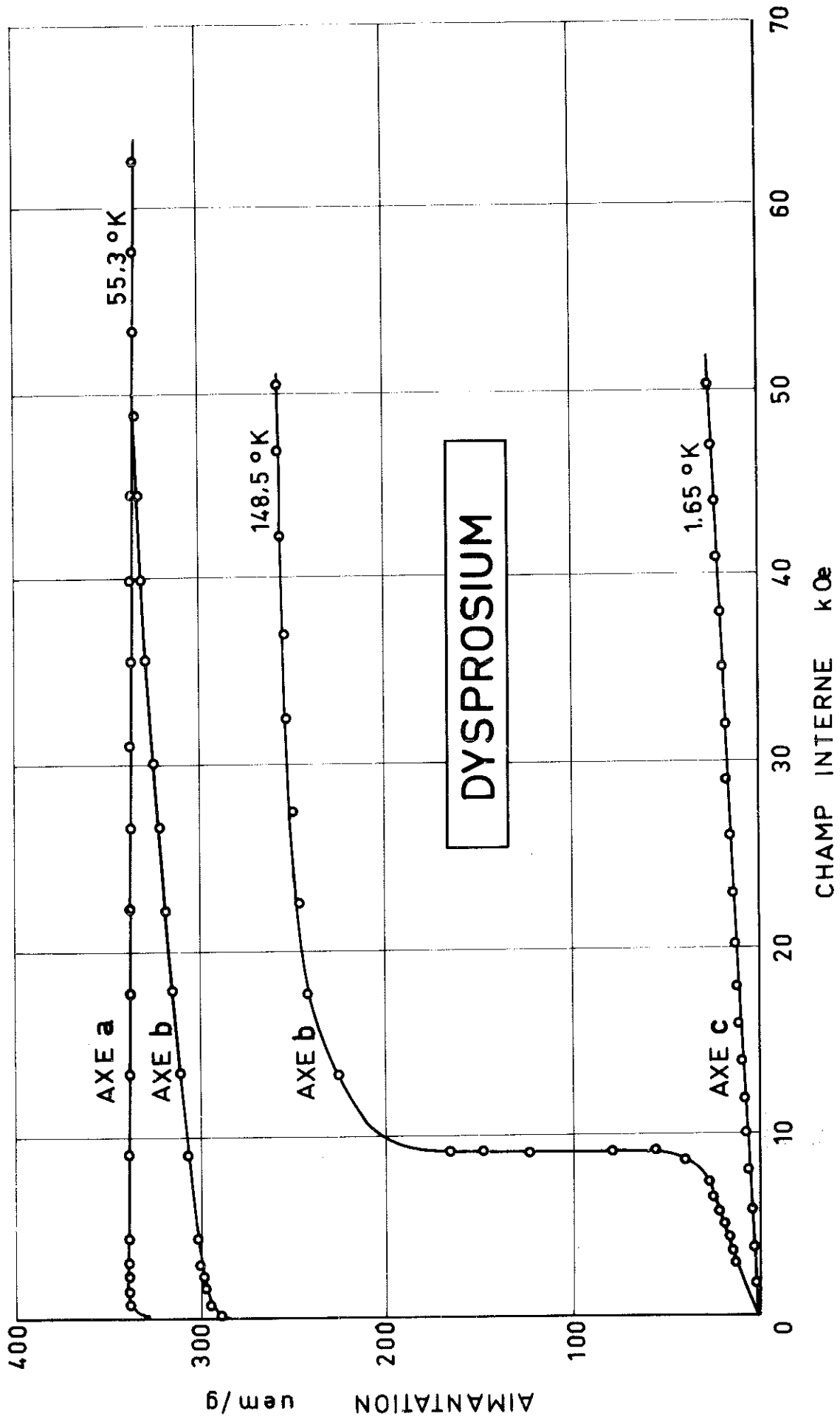


Figure 19 : Courbes d'aimantation du dysprosium

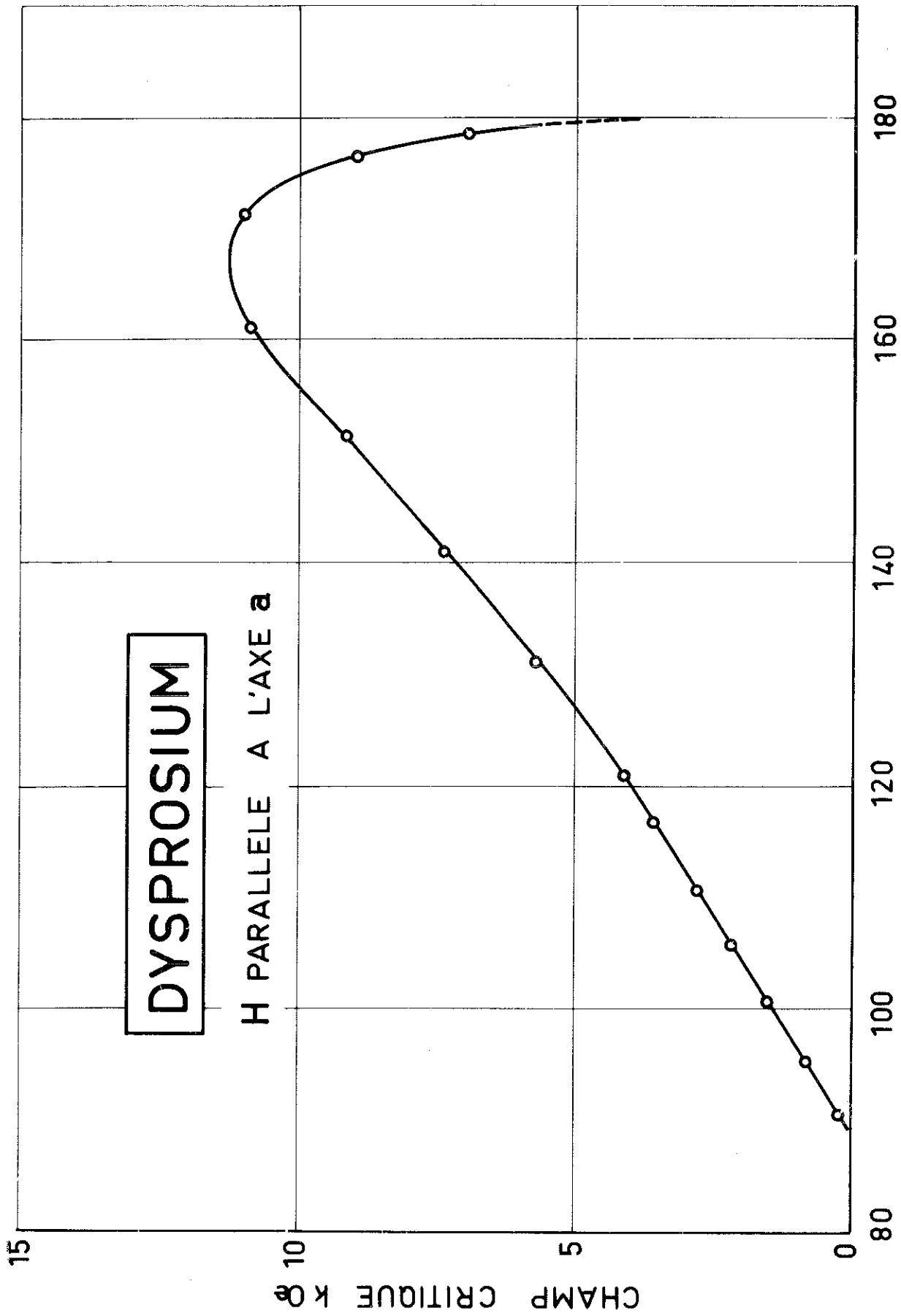


Figure 20 : Variation thermique du champ critique du dysprosium

DYSPROSIUM

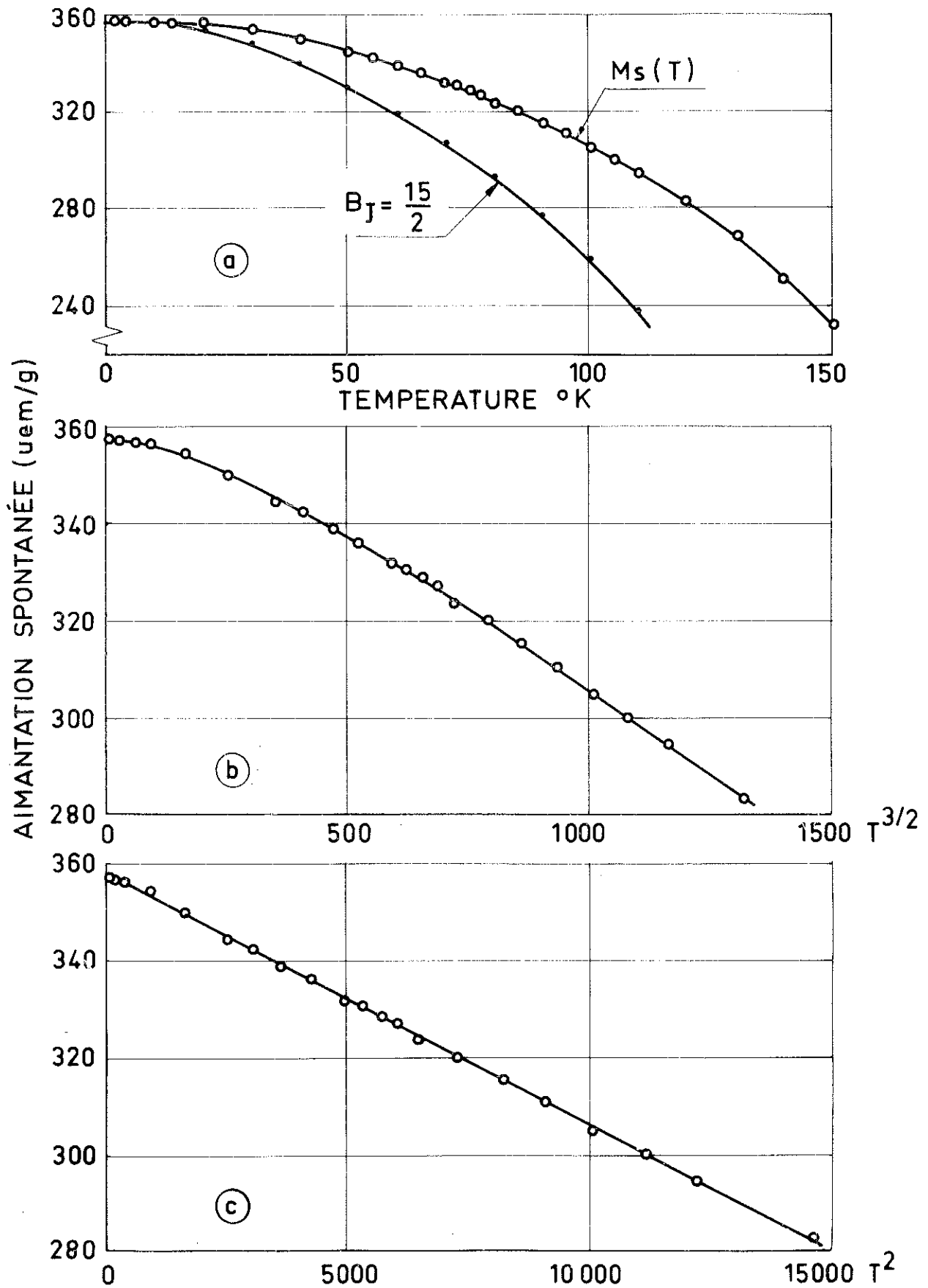


Figure 21 : Variation thermique de l'aimantation spontanée

rendre compte de la variation thermique de M_s par la relation suivante :

$$M_s(T) = M_{s0} [1 - 1,45 \cdot 10^{-5} T^2] \quad . \quad (8)$$

L'aimantation à saturation absolue de M_{s0} vaut $10,4 \pm 0,04 \mu_B$.

La susceptibilité superposée à l'état ferromagnétique, χ_{ms} , a été déterminée sur la région III des courbes d'aimantation; en première approximation, elle est indépendante de la température et égale à $32 \pm 6 \cdot 10^{-6}$ uem/g (figure 35).

Selon l'axe a , les courbes d'aimantation sont presque linéaires avec le champ; les aimantations ont toujours des valeurs très faibles (figure 19). Par exemple à $4,2^\circ K$ sous un champ de $51\ 200$ Oe, l'aimantation suivant l'axe a , $M_c(4,2^\circ K)$, vaut $28,4$ uem/g; le rapport $\frac{M_c(4,2^\circ K)}{M_s(4,2^\circ K)}$ est égal à $7,93$. Pour des champs faibles (3400 Oe) appliqués selon l'axe a , l'aimantation présente une brusque discontinuité à $90^\circ K$ pour les températures croissantes et à $87^\circ K$ pour les températures décroissantes. Cette discontinuité est liée à la transition du premier ordre ferro - héli-magnétique^(24,36,37); cette transition présente une hystérésis avec la température (figure 22a).

Quand le champ est dans le plan de base (a , b), la température du maximum de susceptibilité dépend de la valeur du champ que l'on applique pour mesurer cette susceptibilité (encart figure 18). Par extrapolation à champ nul, la température de Néel vaut $180 \pm 0,2^\circ K$, selon les trois axes cristallographiques (figures 18 et 22b).

DYSPROSIUM

H PARALLELE A L'AXE C

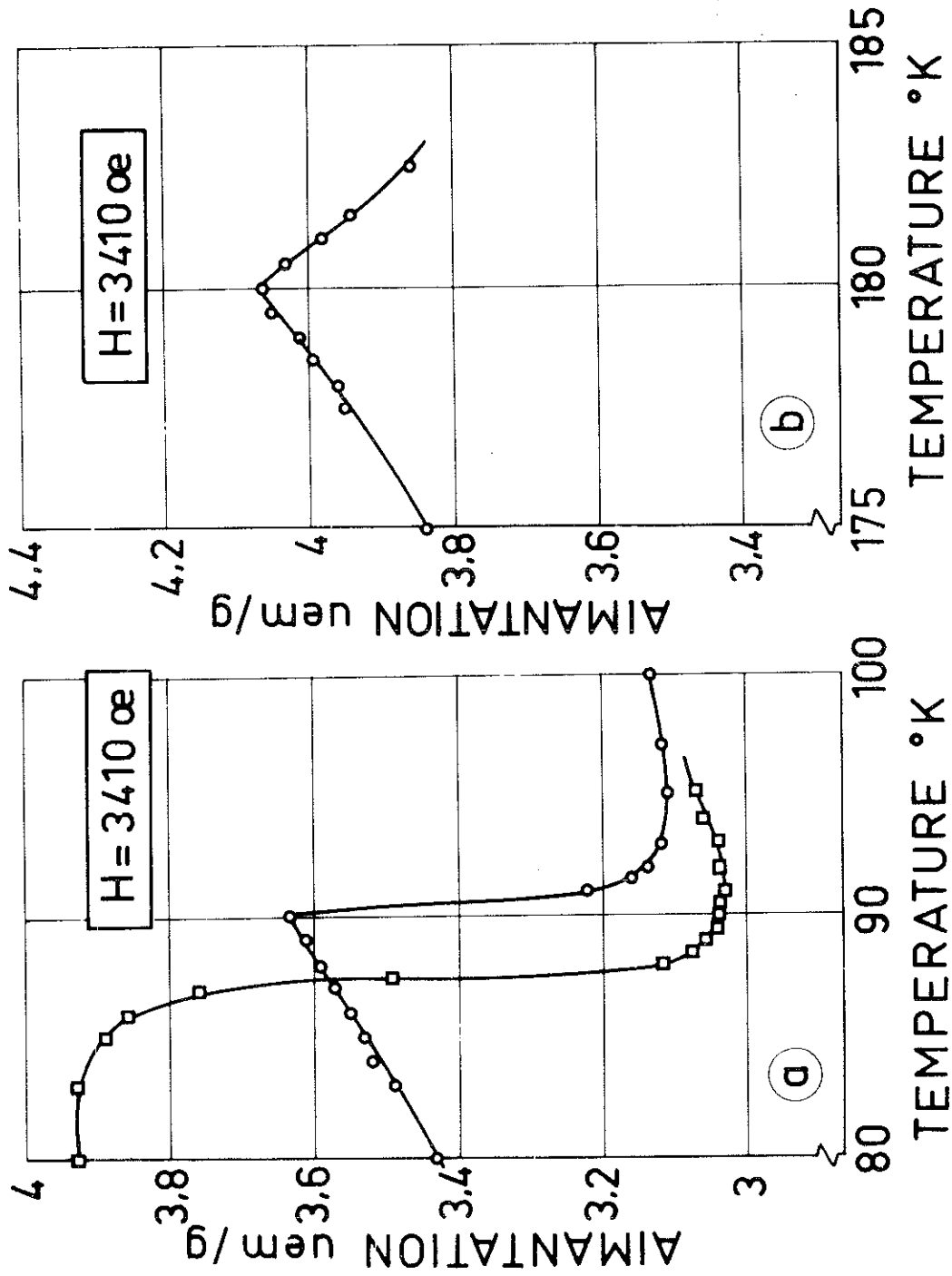


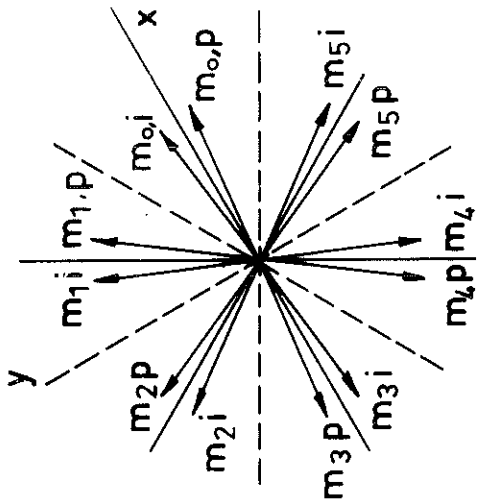
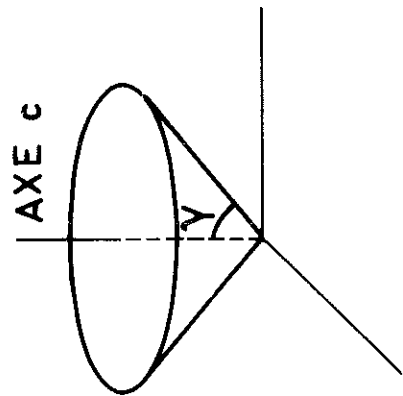
Figure 22 : Transition ferro-antiferromagnétique du dysprosium
maximum de la susceptibilité à la température de Néel

La susceptibilité paramagnétique suit une loi de Curie - Weiss. Dans la limite de l'erreur expérimentale, les valeurs des températures de Curie ne dépendent pas de l'orientation du champ dans le plan de base. En revanche, une anisotropie assez importante des points de Curie a été observée suivant que le champ est suivant l'axe c ($T_{pc} = 109^\circ\text{K}$) ou suivant l'axe a ($T_{pa} = 167^\circ\text{K}$). Les constantes de Curie sont indépendantes de la direction du champ; la valeur du moment paramagnétique $10,5 \mu_B$ est à comparer à la valeur théorique $10,64 \mu_B$ de l'ion trivalent Dy^{3+} .

5 - Holmium

a - structure magnétique à champ nul

Avant de décrire le comportement magnétique sous champ de l'holmium, rappelons rapidement la structure magnétique de cet élément déterminé en champ nul par diffraction neutronique⁽²¹⁾. Entre zéro et 19°K , les moments sont dirigés suivant les génératrices d'un cône dont l'axe est suivant l'axe c . La configuration dans le plan de base est un arrangement hélicoïdal fortement déformé par l'anisotropie hexagonale; en effet le pas de l'hélice est constant dans cette zone de températures; il est tel que si l'arrangement hélicoïdal était idéal, les moments seraient alternativement dans des directions de facile et difficile aimantation; cette situation est énergiquement défavorable. Nous avons indiqué sur la figure 23a l'arrangement réel des moments ainsi que la valeur des composantes des moments suivant les trois axes cristallographiques. De 19°K à la température d'ordre, les moments sont localisés dans le plan de base (a, b); l'arrangement des moments est hélicoïdal; jusqu'à 40°K , il est légèrement déformé par l'anisotropie dans le plan de base (figure 23b). Le pas de l'hélice augmente régulièrement de 30 degrés à 19°K jusqu'à 50 degrés à la température d'ordre.



Dans les plans pairs les atomes sont localisés en

$$(0, 0, 0 + n/6)$$

$$m_{nx}^{pair} = m \sin \gamma \cos \left[2\pi \frac{n}{6} - \delta \right]$$

$$m_{ny}^{pair} = m \sin \gamma \sin \left[2\pi \frac{n}{6} - \delta \right]$$

$$m_{nz}^{pair} = m \cos \gamma$$

Dans les plans impairs les atomes sont localisés

$$\text{en } (1/3, 2/3, 1/12 + n/6)$$

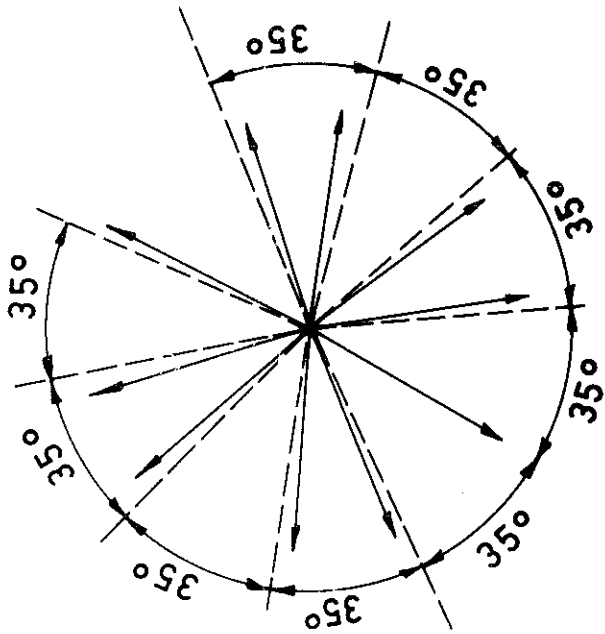
$$m_{nx}^{impair} = m \sin \gamma \cos \left[2\pi \frac{n}{6} + \delta \right]$$

$$m_{ny}^{impair} = m \sin \gamma \sin \left[2\pi \frac{n}{6} + \delta \right]$$

$$m_{nz}^{impair} = m \cos \gamma$$

T = 4,2 °K

(a)



$$\phi_n = (\phi_n)^\circ + h \sin 6(\phi_n)^\circ$$

$(\phi_n)^\circ$ angle de l'hélice

en absence d'anisotropie

$$(\phi_n)^\circ = r(35^\circ) \text{ à } 30^\circ K$$

T = 35 °K

(b)

Figure 23 : Configurations à champ nul des moments de Ho déterminées par diffraction neutronique

b - propriétés magnétiques suivant l'axe b

Dans sa phase magnétiquement ordonnée, quand le champ est appliqué dans le plan de base, l'holmium présente toujours un caractère métamagnétique⁽¹⁷⁾. L'axe *b* est de facile aimantation; le réseau d'isothermes, selon l'axe *b*, a été tracé sur la figure 24. Pour les températures inférieures à 20°K, il n'existe qu'un seul champ critique H_c ; sa valeur est inférieure à 3000 Oe; il passe par un minimum de 1200 Oe à 10°K. Pour ces mêmes températures, entre H_c et 30 000 Oe, l'aimantation augmente faiblement mais non linéairement avec le champ appliqué. Ce comportement est caractéristique de la présence mentionnée plus haut d'un cône d'aimantation. En champs intenses, les courbes (M, H_0) présentent la région III.

La partie des courbes d'aimantation due au cône disparaît au-dessus de 20°K. De 20 à 40°K il n'existe qu'un seul champ critique H_{c1} . De 40 à 60°K, il apparaît un deuxième champ critique H_{c2} . Les courbes d'aimantation présentent un plateau vers 220 uem/g, correspondant à un arrangement intermédiaire entre l'état héli-magnétique et l'état ferromagnétique. De 60 à 95°K, un troisième champ critique H_{c3} apparaît; une courbe d'aimantation comprend alors deux paliers, l'un vers 100 uem/g et l'autre vers 200 uem/g. Au-dessus de 95°K, le palier inférieur disparaît et il est difficile de distinguer le palier supérieur. Sur la figure 25a, nous avons tracé la variation thermique des différents champs critiques.

Bien que les valeurs des champs critiques soient élevées, nous avons pu observer la zone III des courbes d'aimantation. Par extrapolation à champ interne nul, nous avons déterminé l'aimantation spontanée M_s . Sa variation thermique

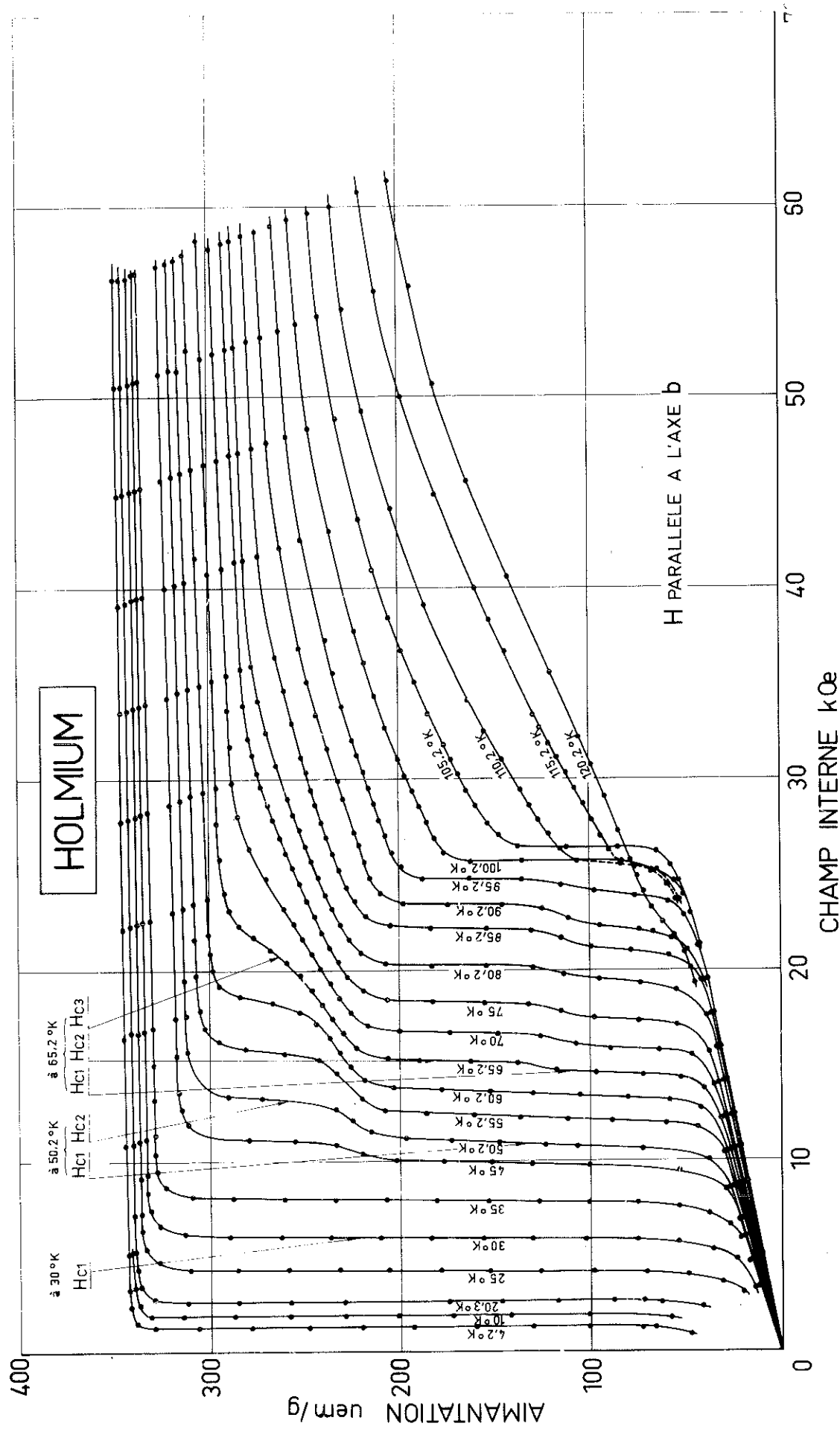


Figure 24 : Réseau d'isothermes de l'holmium (axe σ)

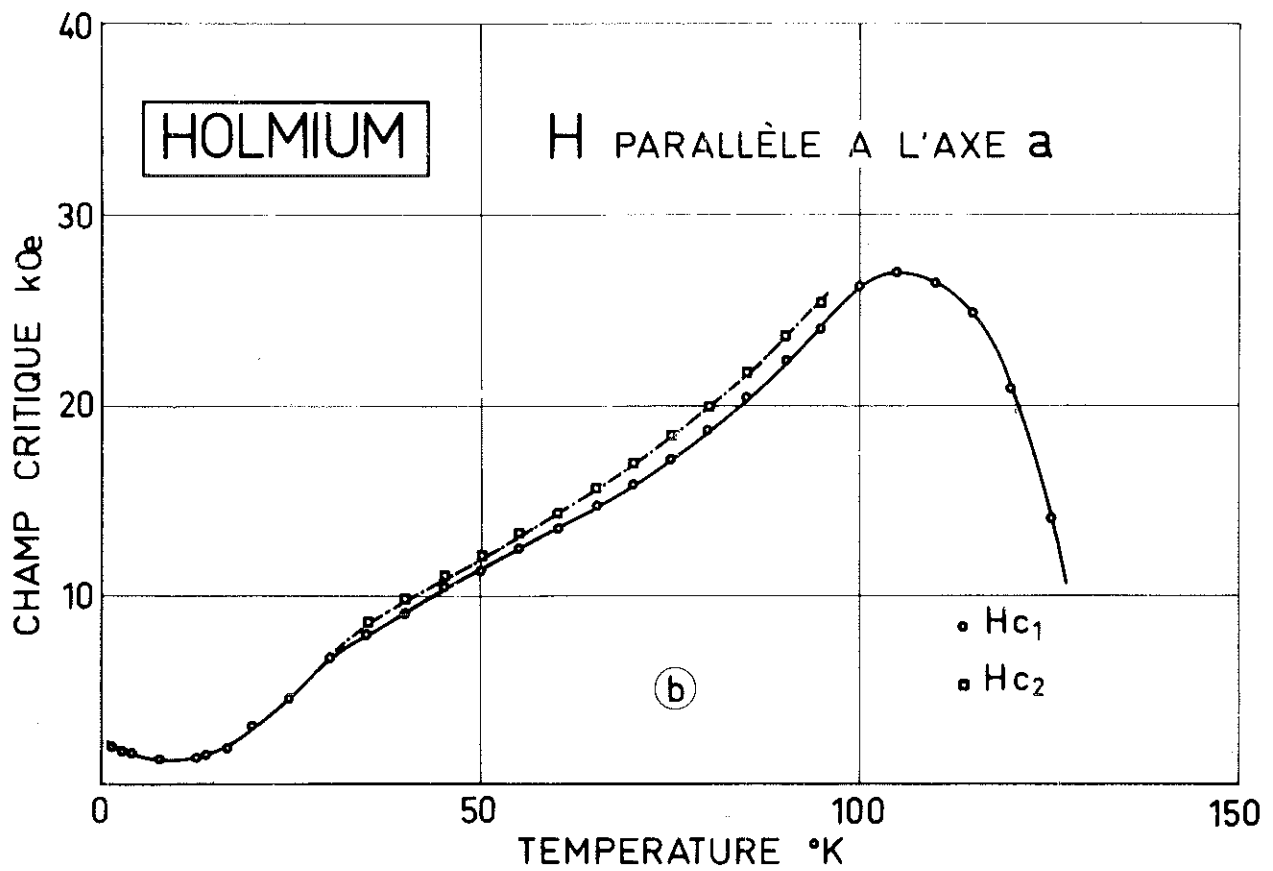
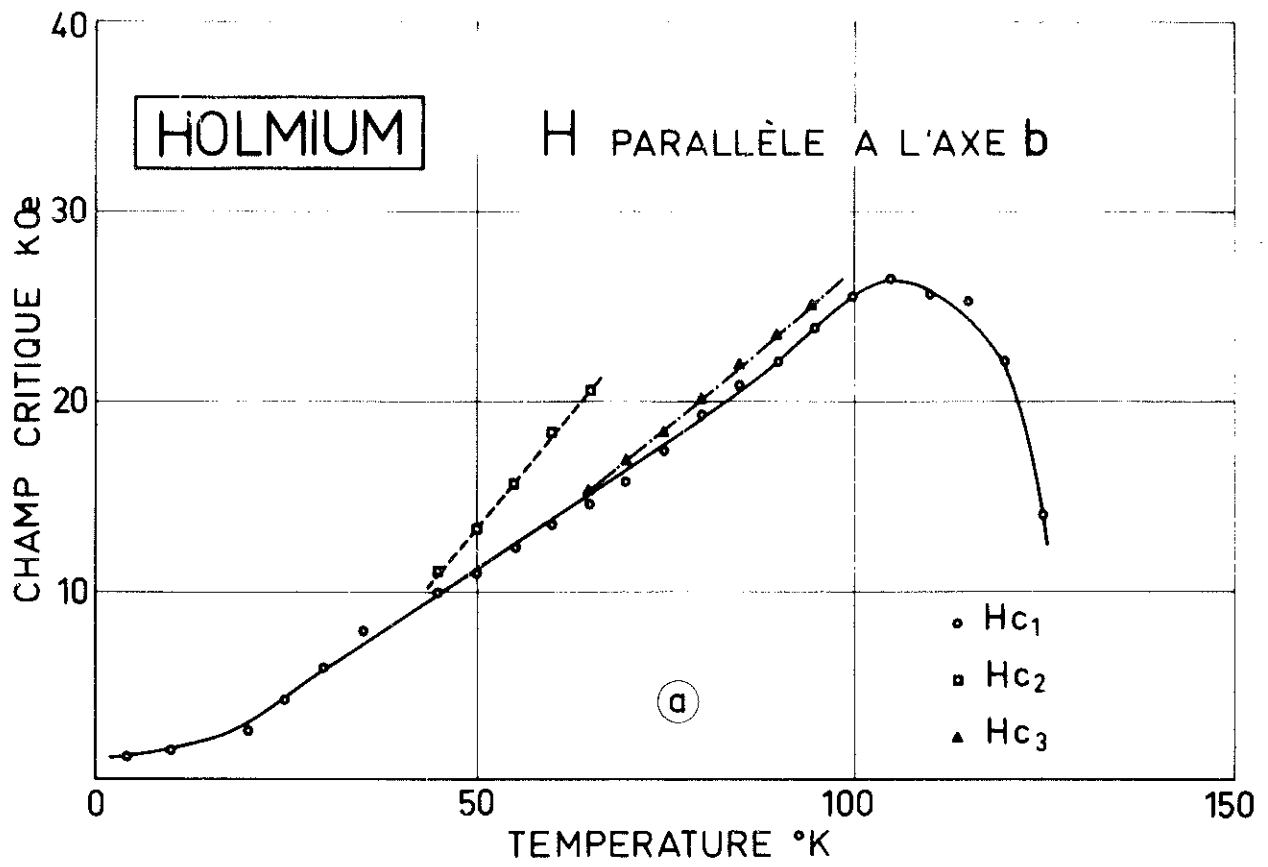


Figure 25 : Variations thermiques des champs critiques de l'holmium

a été portée sur la figure 26a; nous constatons sur la figure 26c que c'est la loi en T^2 qui représente le mieux l'expérience. La variation thermique $M_s(T)$ peut être traduite par la relation

$$M_s(T) = M_{s0} [1 - 4,3 \cdot 10^{-5} T^2] . \quad (9)$$

L'aimantation à saturation absolue M_{s0} vaut $10,22 \pm 0,04 \mu_B$.

La susceptibilité superposée à l'état ferromagnétique a été déterminée par analyse de la région III des isothermes (M, H_e) . Pour des températures inférieures à 50°K , elle est indépendante de la température et vaut $60 \pm 6 \text{ uem/g}$ (figure 35).

c - propriétés magnétiques suivant l'axe α

L'axe α est axe de difficile aimantation dans le plan de base. Le réseau d'isothermes (M, H_i) a été tracé sur la figure 27. Pour les températures inférieures à 35°K , on n'observe qu'un seul champ critique H_{c1} . Au-dessous de 20°K , H_{c1} a des valeurs inférieures à 3000 Oe. En revanche entre 20 et 35°K , le champ critique augmente avec la température et prend des valeurs plus élevées (8000 Oe à 35°K). De 35 à 100°K il existe deux champs critiques H_{c1} et H_{c2} ; une courbe d'aimantation présente alors un palier. La valeur de l'aimantation à ce palier diminue régulièrement avec la température, de 200 uem/g à 35°K jusqu'à 120 uem/g à 95°K . La différence entre H_{c1} et H_{c2} est faible (1000 Oe) et pratiquement constante; H_{c1} commence par décroître lorsque la température croît, passe par un minimum vers 10°K , puis augmente régulièrement avec la température, passe par un maximum (27 000 Oe) à 105°K , puis tend rapidement vers une valeur nulle (figure 25b). Au-dessous de 70°K , pour des champs supérieurs aux champs critiques, l'aimantation n'atteint jamais sa

HOLMIUM

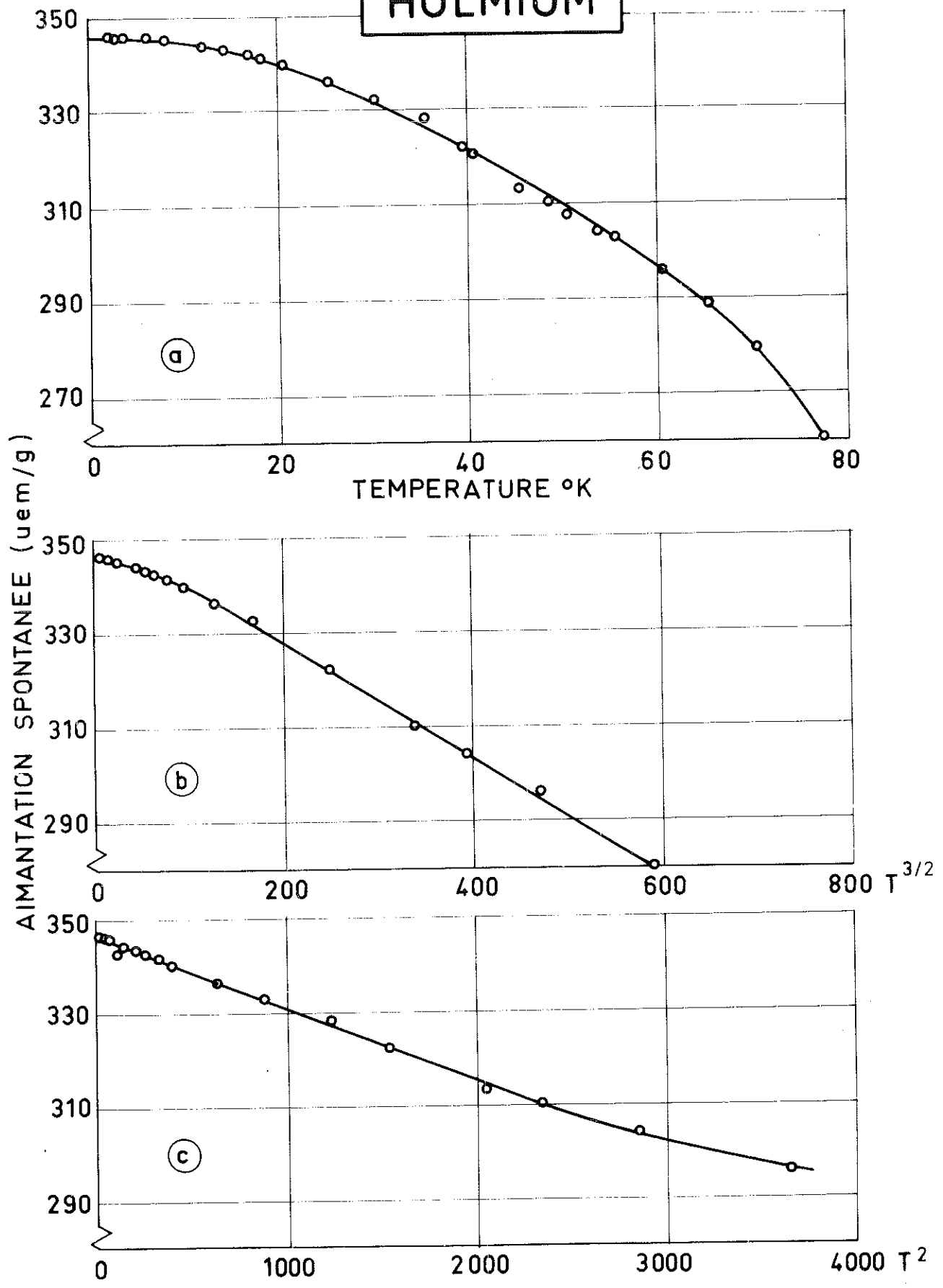


Figure 26 : Variation thermique de l'aimantation spontanée

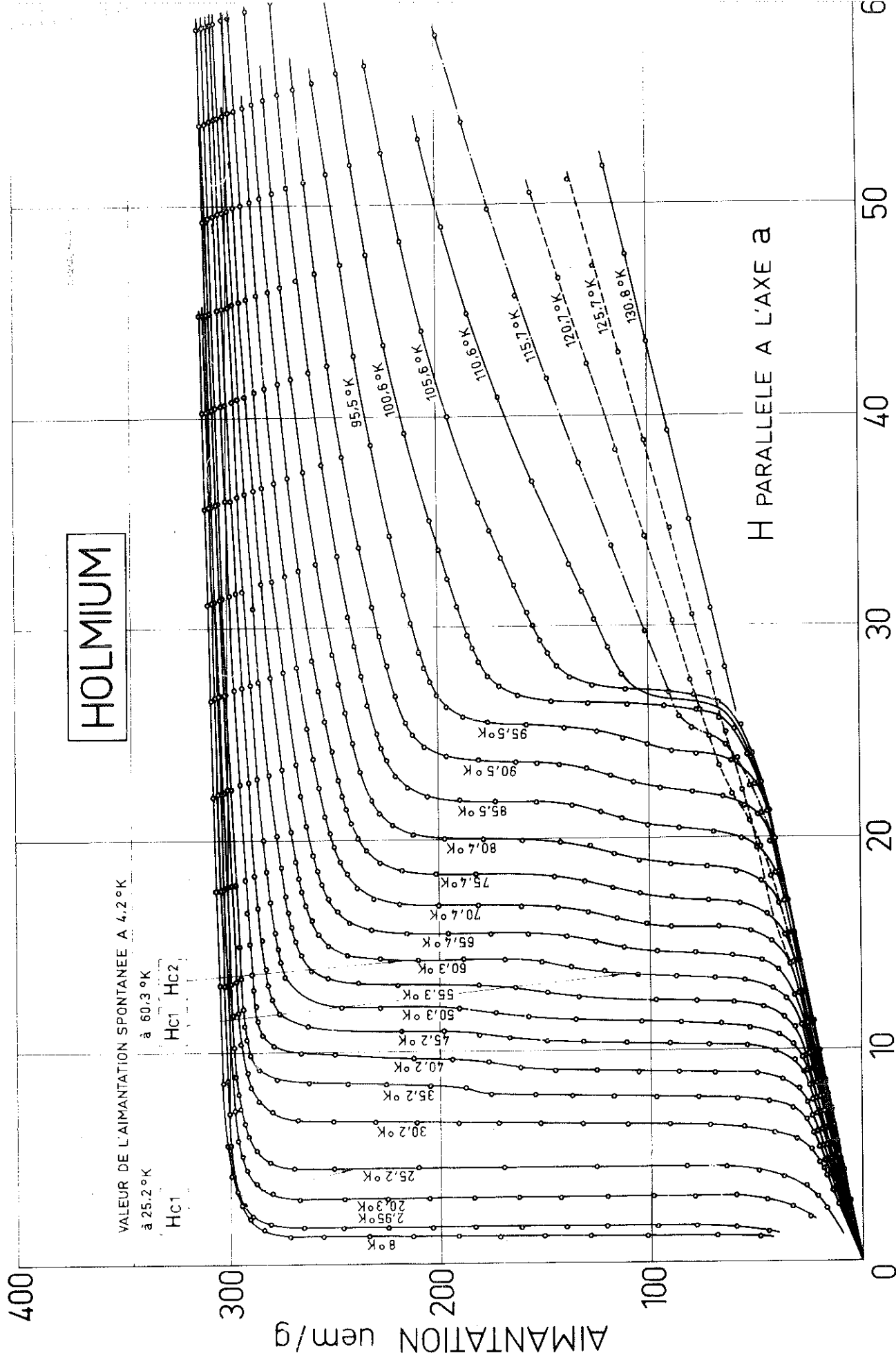


Figure 27 : Réseau d'isothermes de l'holmium (axe a)

valeur spontanée; les courbes (M, H_i) , quelle que soit la valeur du champ, présentent seulement la région II.

d - propriétés magnétiques suivant l'axe c

Pour les températures inférieures à 20°K , l'holmium selon l'axe c a un comportement ferromagnétique. Les courbes d'aimantation (M, H_i) présentent la seule région II (figure 28). Par extrapolation en champ interne nul on obtient la valeur de la composante ferromagnétique suivant l'axe c ; sa valeur maximale à $1,8^\circ\text{K}$ est 60 uem/g ; elle s'annule à 20°K (encart figure 28). Pour les températures supérieures à 20°K , les courbes (M, H_i) ont une variation monotone.

La température de Néel a été déterminée par les mesures de la susceptibilité dans le plan de base; selon l'axe a , $T_{Na} = 131,5 \pm 0,5^\circ\text{K}$; selon l'axe b , $T_{Nb} = 131,7 \pm 0,5^\circ\text{K}$.

La susceptibilité paramagnétique suit une loi de Curie - Weiss. Les températures de Curie paramagnétiques varient entre $T_{pa} = 91,5^\circ\text{K}$ et $T_{pc} = 75^\circ\text{K}$. Aucune anisotropie du point de Curie n'a été observée dans le plan de base. La constante de Curie est indépendante de la direction du champ; on en déduit la valeur du moment paramagnétique $10,9 \mu_B$, qui est à comparer à la valeur théorique $10,6 \mu_B$ de l'ion trivalent Ho^{3+} .

e - description des processus d'aimantation

Le comportement magnétique très particulier de l'holmium que nous venons de décrire, a été également observé par diffraction neutronique par Koehler et ses collaborateurs⁽³⁸⁾. Il peut être résumé par le diagramme schématique (H, T) de la figure 29, quand le champ est appliqué

HOLMIUM

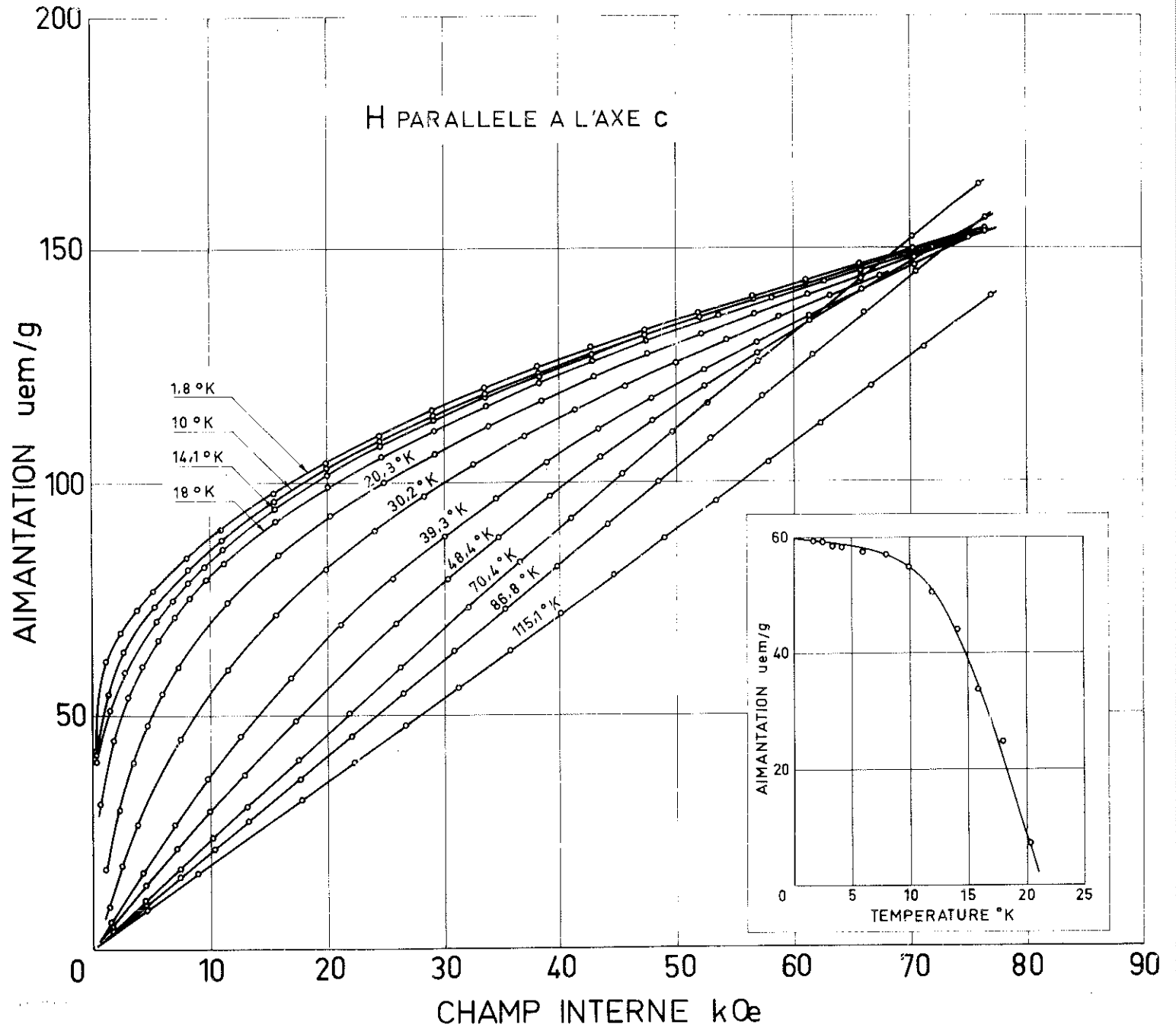


Figure 28 : Réseau d'isothermes de l'holmium (axe c)
Variation thermique de la composante ferromagnétique

dans le plan de base. Les structures intermédiaires I et II sont appelées dans la littérature "fan type structures". Dans de telles structures, les composantes des moments dans le plan de base ont pour expressions :

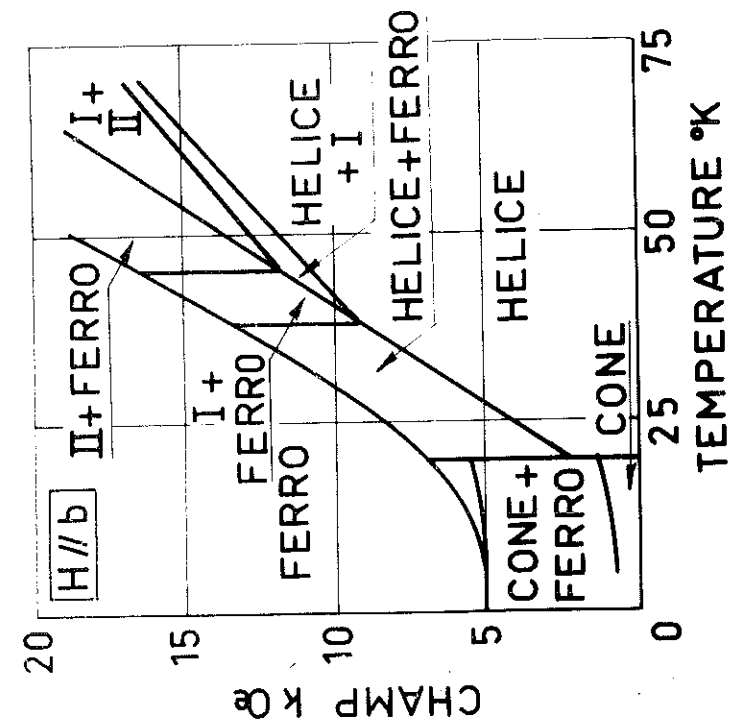
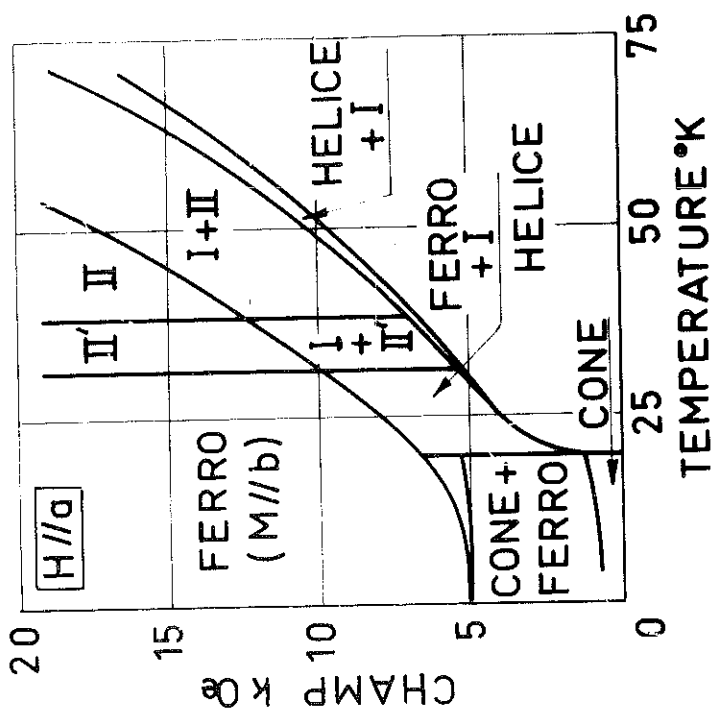
$$m_{nx} = A_0 + A_2 \cos(2n\alpha + \alpha_2) + A_4 \cos(4n\alpha + \alpha_4) + \dots$$

$$m_{ny} = B_1 \sin(n\alpha + \beta_1) + B_3 \sin(3n\alpha + \beta_3) + B_5 \sin(5n\alpha + \beta_5) + \dots$$

x désigne la direction du champ appliqué et y la direction perpendiculaire. Les moments sont disposés ferromagnétiquement dans chaque plan perpendiculaire à l'axe c , n étant le numéro de chaque plan; α est l'angle à champ nul entre les moments de deux plans premiers voisins; α_i et β_i sont des angles de phase constants. Les valeurs des coefficients A_i et B_i ont pu être déterminés par diffraction neutronique à 50°K (figure 29).

Quelle que soit l'orientation du champ dans le plan de base, la structure I est caractérisée par une faible composante ferromagnétique dans la direction du champ. En revanche, la structure II présente une composante ferromagnétique importante le long du champ; la projection des moments perpendiculairement au champ varie sinusoidalement d'un plan à l'autre.

Remarquons que selon l'axe a (difficile aimantation), il n'existe que deux paliers qui correspondent aux structures I et II; l'anisotropie magnétocristalline s'opposant à l'alignement complet des moments pour des champs relativement faibles. Par contre selon l'axe b (facile aimantation), les courbes d'aimantation présentent trois paliers; les deux premiers correspondent aux structures I et II et le troisième à l'ordre ferromagnétique.



$$m_{nx} = A_0 + A_2 \cos(2n\alpha + \alpha_2) + A_4 \cos(4n\alpha + \alpha_4) + \dots$$

$$m_{ny} = B_1 \sin(n\alpha + \beta_1) + B_3 \sin(3n\alpha + \beta_3) + B_5 \sin(5n\alpha + \beta_5)$$

	I	II	FERRO	I	II
A ₀	2,0	4,4	8,87	2,7	6,2
B ₁	1,3	8,0		1,2	6,0
A ₂	5,4	1,8		8,4	
B ₃	8,1			7,6	
A ₄	4,4			4,4	
B ₅	1,6			1,8	

T = 50°K

H parallèle à b

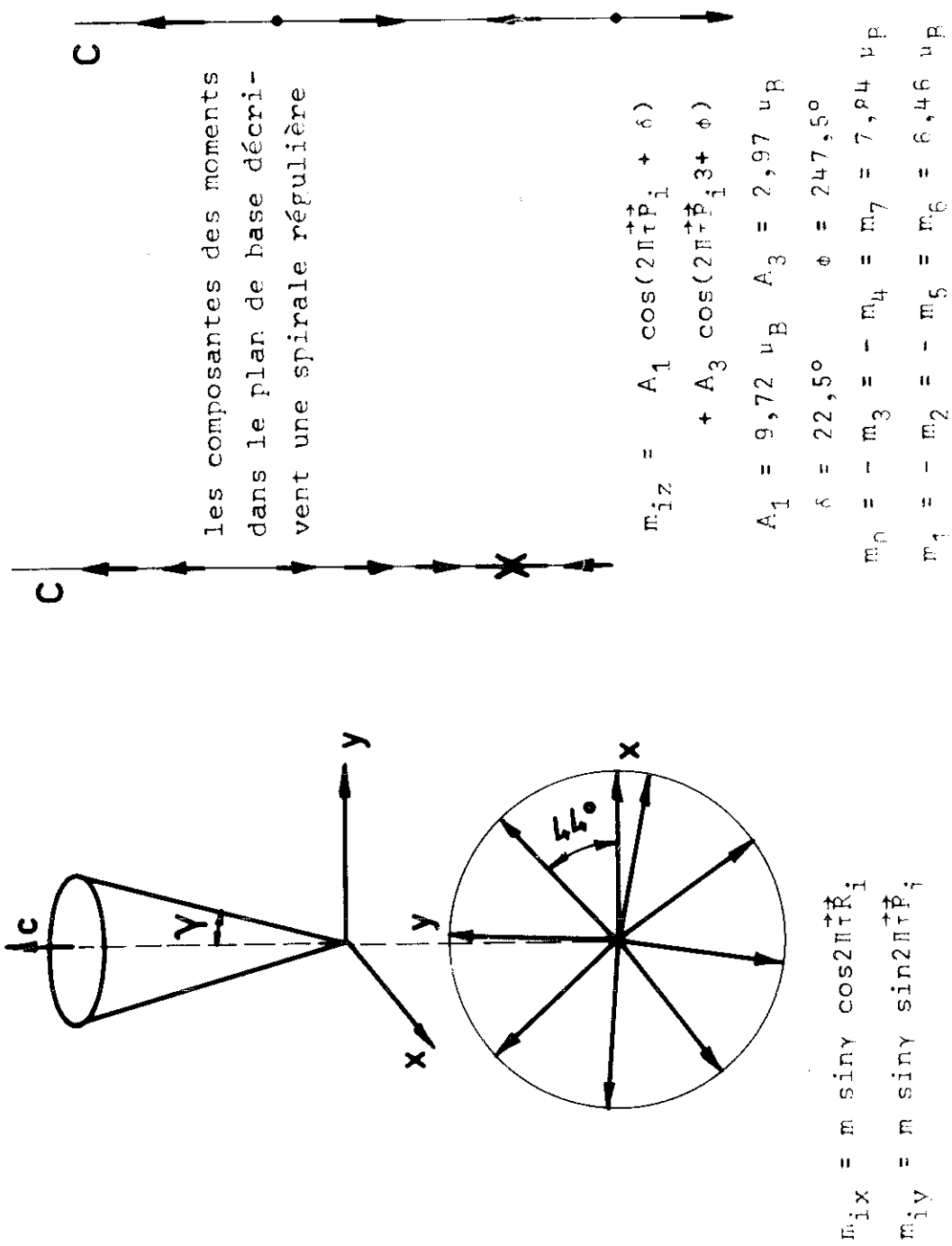
H parallèle à a

Figure 29 : Diagrammes H(T) résumant les processus d'aimantation

6 - Erbiuma - structure magnétique à champ nul

Comme pour l'holmium, décrivons brièvement la structure magnétique en champ nul, qui a été étudiée par diffraction des neutrons par Koehler et ses collaborateurs⁽²²⁾. De la température de Néel à 52°K, les moments, appartenant à un même plan perpendiculaire à l'axe c , ont même direction et même module; il sont dirigés suivant l'axe c . Leurs modules varient sinusoidalement d'un plan à l'autre; dans la gamme de température ci-dessus la longueur d'onde est constante et vaut 3,5 c (c est le paramètre cristallin) (figure 30). De 52 à 20°K, il apparaît une composante ordonnée des moments perpendiculairement à l'axe c , suivant une configuration en hélice. Pour un même plan, la projection des moments sur l'axe c est constante; la variation de cette projection, d'un plan à l'autre, n'est pas purement sinusoidale; il apparaît des harmoniques d'ordre supérieur (figure 30). Pour la zone de température en question, la période de la variation n'est pas commensurable avec le paramètre c ; elle varie entre 3,5 c à 52°K et 4,1 c à 20°K; en outre elle n'a pas les mêmes valeurs en températures décroissantes et en températures croissantes. Toutes ces raisons font que le comportement de l'erbium en champ nul n'est pas très clair dans cette gamme de température. Au-dessous de 20°K, la composante des moments selon l'axe c est la même d'un plan à l'autre. La configuration des projections des moments dans les plans perpendiculaires à l'axe c , est hélicoïdale. L'angle des moments entre plans successifs est indépendant de la température et vaut 44 degrés.

ERBIUM



T = 4,2°K

T = 25°K

T > 52°K

Figure 30 : Configurations à champ nul des moments de Er déterminées par diffraction neutronique

b - propriétés magnétiques suivant l'axe a

Au-dessous de 20°K, quand le champ est appliqué suivant l'axe a , l'erbium a un comportement ferromagnétique (18). Les courbes d'aimantation (M, H_1) présentent la région II uniquement. Avec les champs utilisés, nous n'avons pas pu réaliser l'alignement complet des moments. De 20°K à la température d'ordre, l'erbium a un comportement héliomagnétique (figure 31). Il n'existe qu'un seul champ critique H_c . Nul à 20°K, H_c augmente régulièrement avec la température, passe par un maximum (22 400 Oe) à 67°K, puis tend rapidement vers zéro (figure 32a). De 20 à 55°K, pour des champs supérieurs à H_c , les courbes d'aimantation présentent la région II uniquement. Par extrapolation à champ interne nul de la région II, on peut déterminer la composante ferromagnétique M_c suivant l'axe a . Pour les températures inférieures à 35°K, la variation thermique $M_c(T)$ est bien représentée par la relation suivante :

$$M_c(T) = M_{c0} [1 - 3,44 \cdot 10^{-5} T^2] , \quad (10)$$

avec $M_{c0} = 8,15 \pm 0,03 \mu_B$. La comparaison de M_{c0} et de la valeur théorique $gJ = 9 \mu_B$ de l'ion Er^{3+} , nous donne le demi angle au sommet γ du cône d'aimantation (figure 30); γ vaut 27 degrés.

c - propriétés magnétiques suivant l'axe a

Dans le plan de base, l'axe a est de plus facile aimantation que l'axe b (figures 33 et 34). Dans le domaine de températures où il existe une composante ordonnée des moments dans le plan de base, l'erbium, selon l'axe a , présente un caractère métamagnétique (figure 33). Au-dessous de 17°K, il existe deux champs critiques H_{c1} et H_{c2} . Entre H_{c1} et H_{c2} , les courbes d'aimantation présentent un

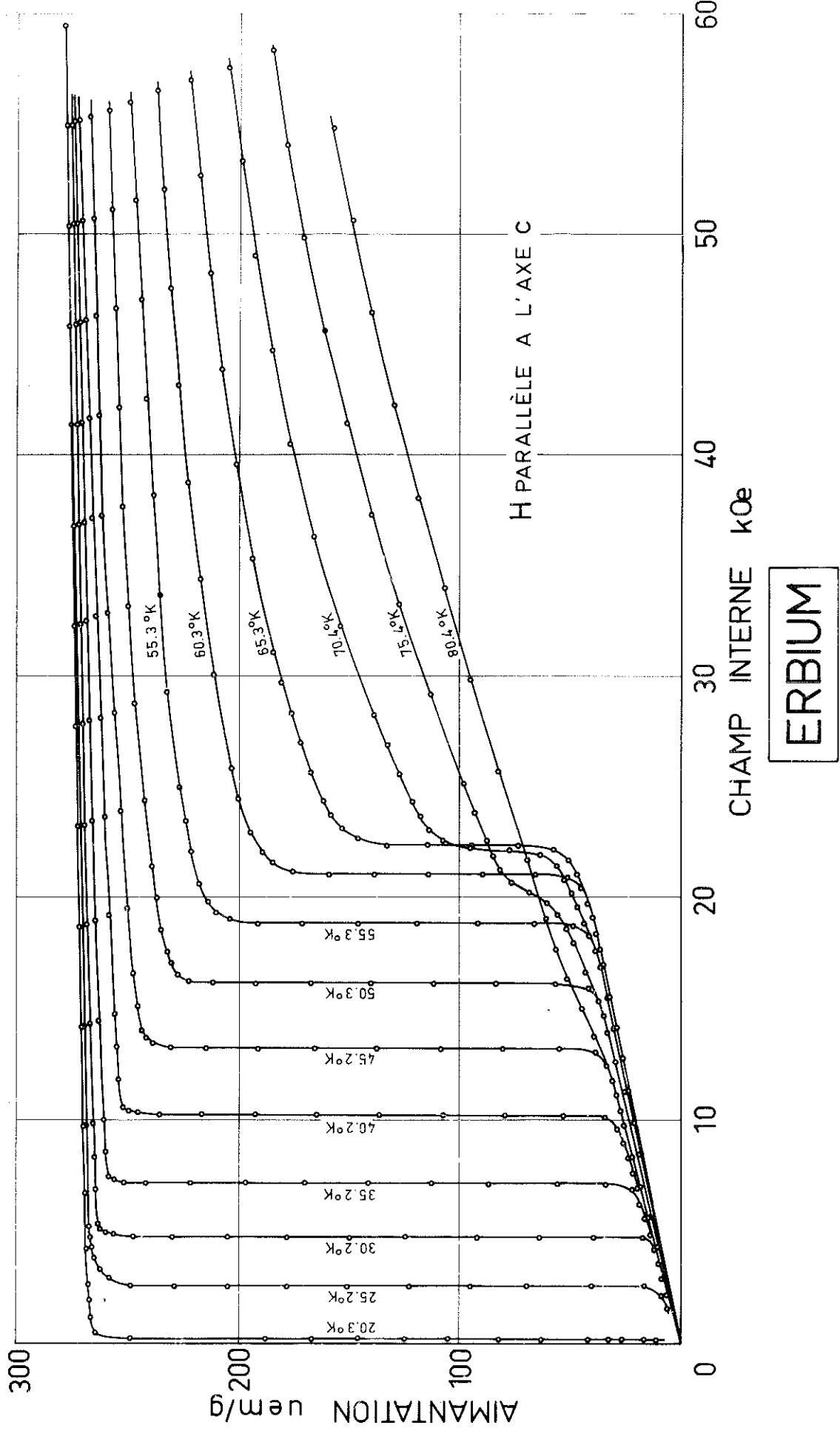
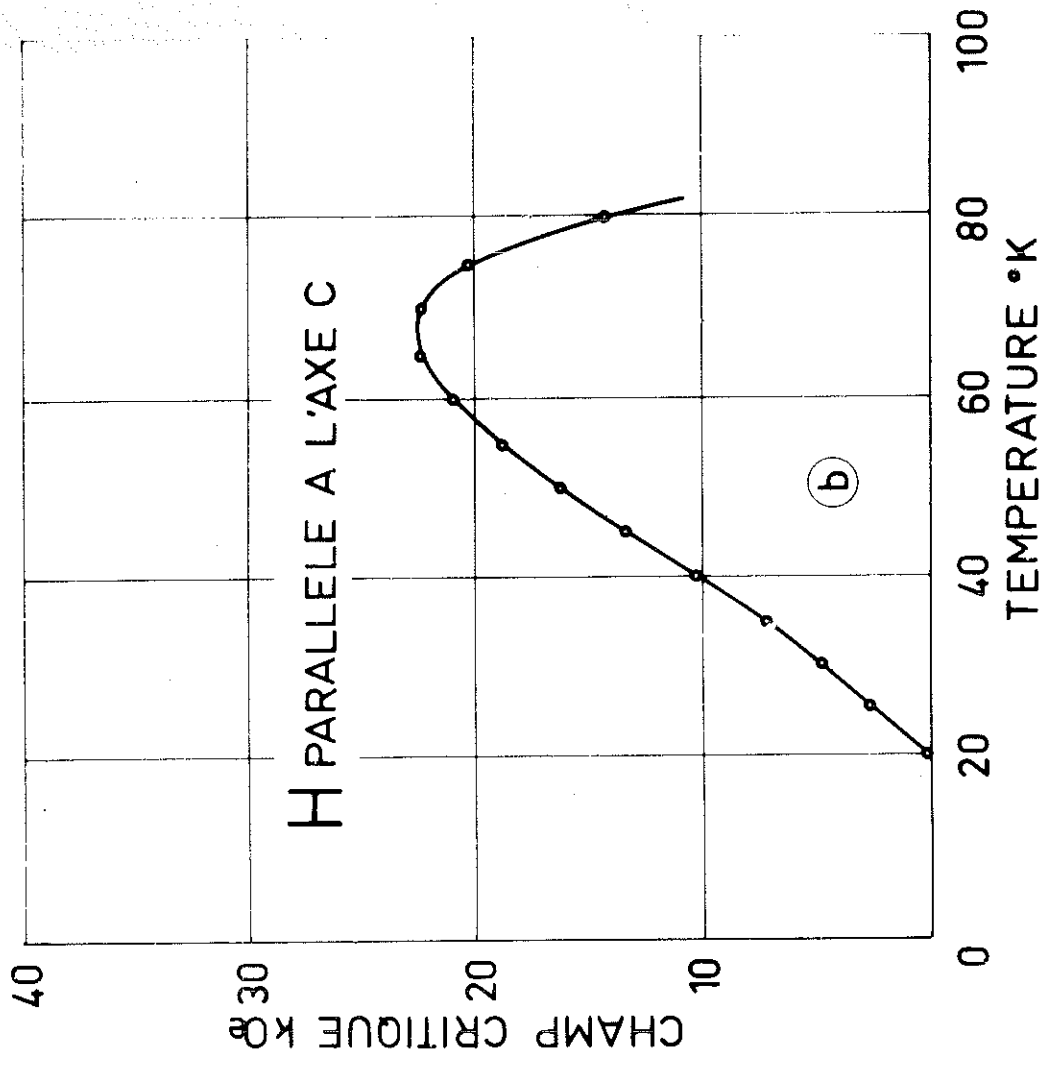
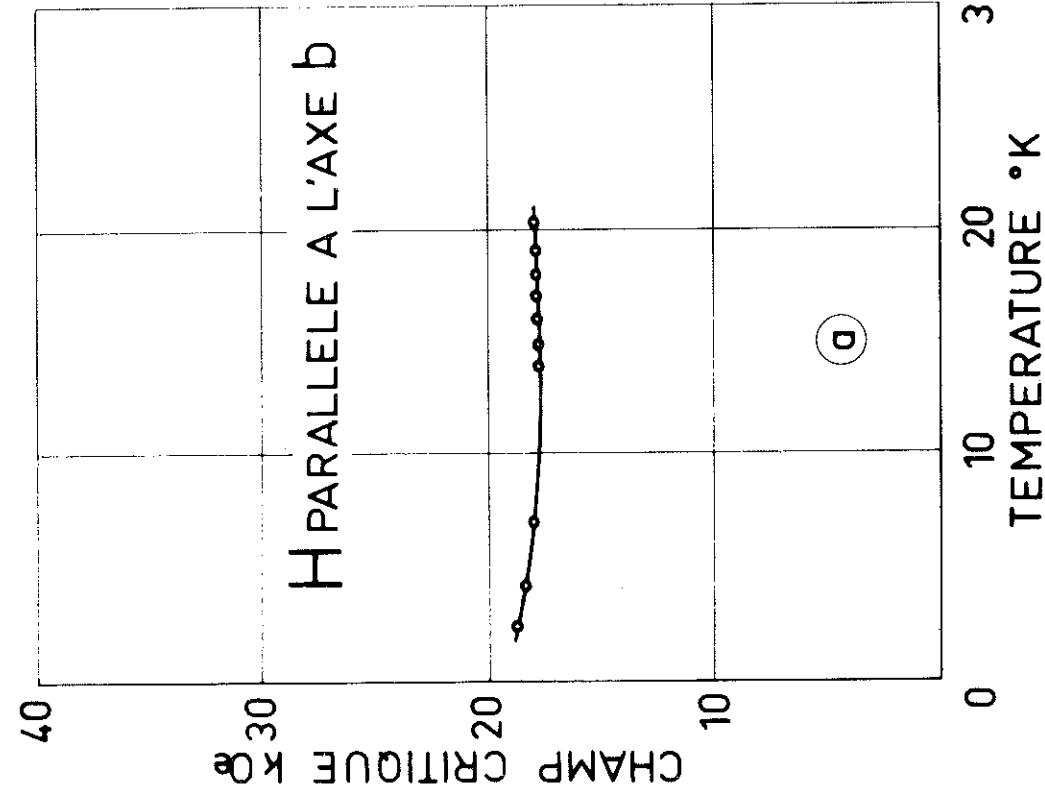


Figure 31 : Réseau d'isothermes de l'erbium (axe c)



ERBIUM

Figure 32 : Variations thermiques des champs critiques de l'erbium

passer vers 115 uem/g. Pour des champs juste supérieurs à H_{c2} , l'aimantation prend une valeur de 145 uem/g; elle croît ensuite régulièrement avec le champ. H_{c1} et H_{c2} varient peu avec la température; ils valent respectivement 16,5 kOe et 30 kOe environ.

De 17 à 35°K, les transitions induites par le champ sont moins nettes. H_{c1} décroît de 16 500 Oe à 17°K jusqu'à 10 000 Oe environ à 30°K. Par contre H_{c2} croît de 30 000 Oe à 17°K jusqu'à 42 000 Oe environ à 35°K. Au-dessus de 35°K, la variation de l'aimantation avec le champ est monotone.

d - propriétés magnétiques suivant l'axe b

Selon l'axe b (axe de difficile aimantation), le comportement de l'erbium est également métamagnétique (figure 34). Au-dessous de 17°K, contrairement à l'axe a , il n'existe qu'un seul champ critique H_c qui varie peu avec la température; H_c vaut 18 000 Oe à 2,3°K et 17 500 Oe à 17°K. Pour des champs légèrement supérieurs à H_c , l'aimantation vaut environ 110 uem/g; elle croît ensuite régulièrement en champs intenses. De 17 à 25°K, le champ critique varie rapidement avec la température; à 25°K il vaut 42 000 Oe. Au-dessus de 25°K, l'aimantation varie de façon monotone avec le champ appliqué.

La température de Néel a pu être observée seulement quand le champ était appliqué suivant l'axe a . Comme pour le dysprosium et l'holmium, la température pour laquelle la susceptibilité est maximale dépend de la valeur du champ nécessaire pour mesurer cette susceptibilité. Par extrapolation en champ nul, la température de Néel vaut $86 \pm 0,2^\circ\text{K}$.

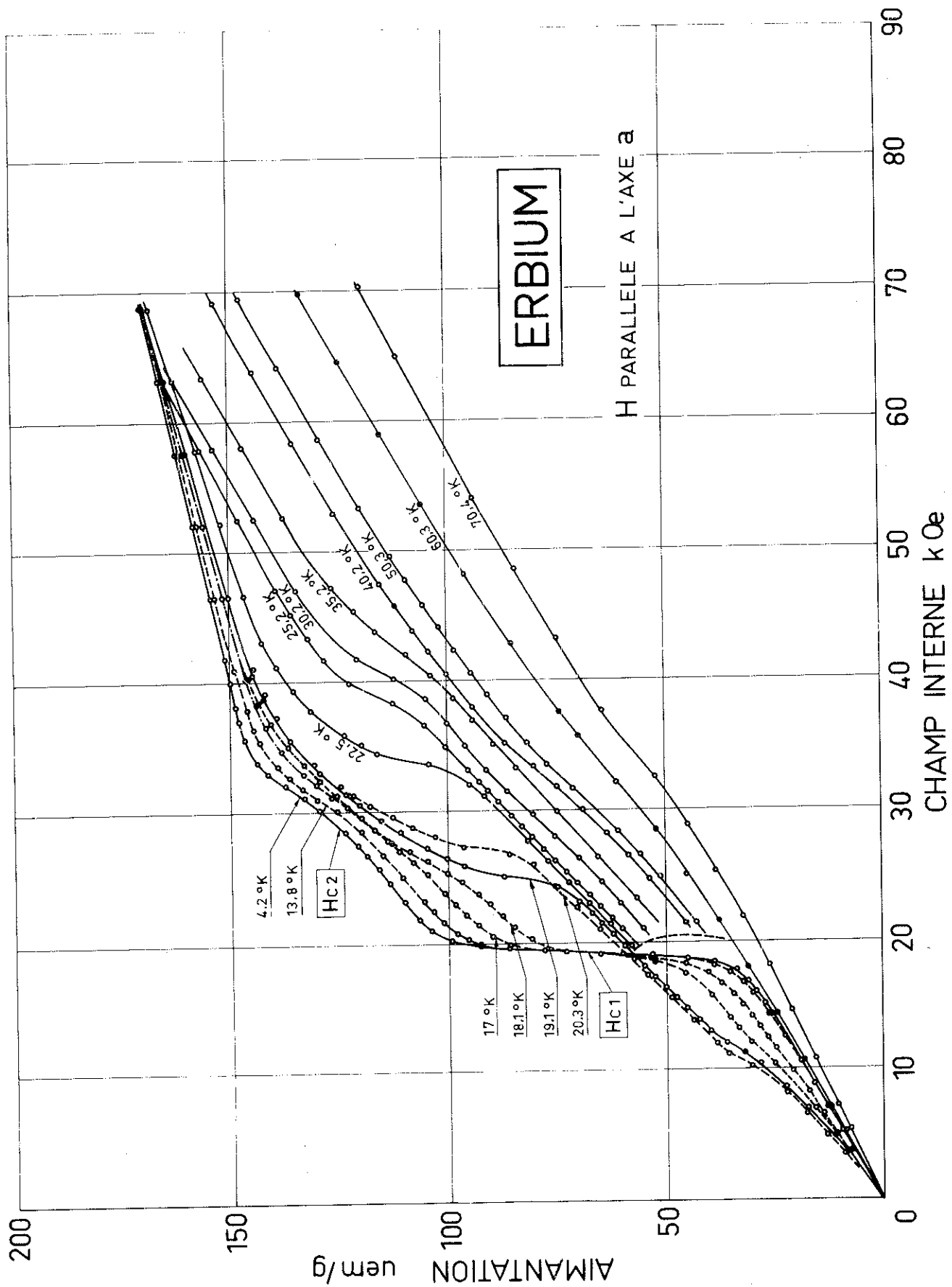


Figure 33 : Réseau d'isothermes de l'erbium (axe α)

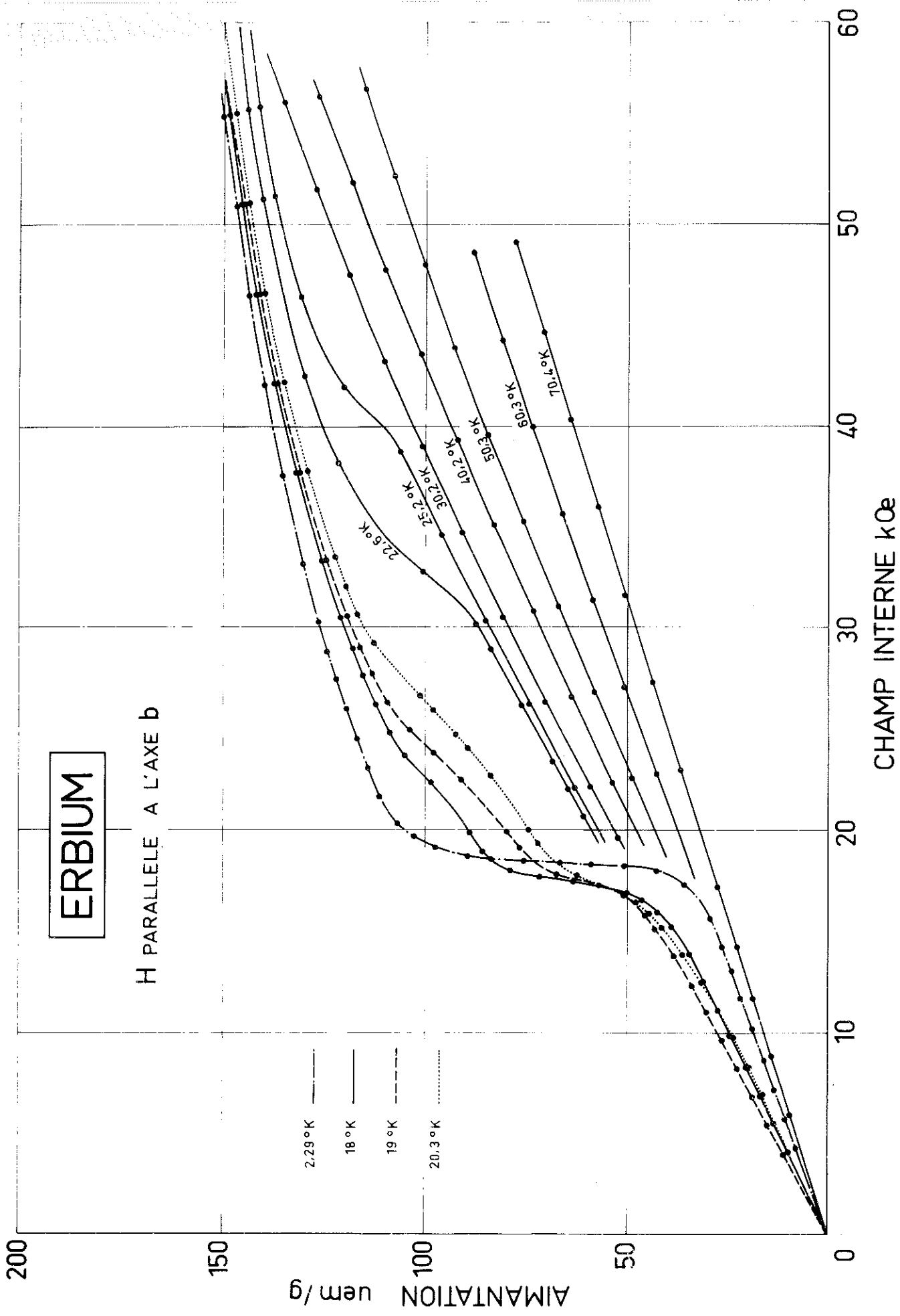


Figure 34 : Réseau d'isothermes de l'erbium (axe b)

La susceptibilité paramagnétique suit une loi de Curie - Weiss. Les températures de Curie varient entre $T_{pa} = 33^\circ\text{K}$ quand le champ est suivant l'axe a , et $T_{pc} = 63^\circ\text{K}$ quand il est appliqué selon l'axe c . Aucune anisotropie des points de Curie n'a été observée dans le plan de base. La valeur du moment paramagnétique, $9,8 \mu_B$, est à comparer à la valeur théorique, $9,6 \mu_B$ de l'ion libre Er^{3+} .

e - processus d'aimantation

Pour l'erbium, au-dessous de 17°K , le mécanisme d'aimantation dans le plan de base est analogue à celui de l'holmium dans le plan de base au-dessus de 20°K . En champ nul, nous avons vu que les moments sont dirigés suivant les génératrices d'un cône d'axe c , d'angle au sommet 2γ ($2\gamma = 54$ degrés). Nous supposons que l'angle γ à $20\ 000\ \text{Oe}$ est peu différent de sa valeur à champ nul. D'autre part n'ayant pu mesurer l'aimantation à saturation absolue, nous prendrons pour celle-ci la valeur théorique, $M_{so} = gJ$ soit $306\ \text{uem/g}$.

Selon l'axe a (axe de facile aimantation dans le plan de base) l'aimantation après le deuxième champ critique H_{c2} , atteint la valeur $145\ \text{uem/g}$ qui diffère peu de $M_{so} \sin\gamma = 139\ \text{uem/g}$. Les moments sont toujours sur un cône d'angle au sommet 2γ , mais leurs projections sur le plan de base sont dirigées ferromagnétiquement suivant l'axe a . Pour les champs compris entre H_{c1} et H_{c2} , les courbes d'aimantation présentent un palier qui correspond à une structure intermédiaire de type "fan structure".

Selon l'axe b , l'aimantation vaut $110\ \text{uem/g}$ après l'unique champ critique, valeur qui correspond à $M_{so} \sin\gamma \cos \pi/6$ soit $119\ \text{uem/g}$. L'anisotropie dans le plan

de base empêche, pour des champs faibles (19 000 Oe), l'alignement complet des projections des moments dans le plan de base; celles-ci sont dirigées suivant les deux axes α proches voisins de l'axe b étudié. Pour les températures comprises entre 17 et 52°K, le comportement magnétique de l'erbium dans le plan de base est difficile à expliquer par les seules mesures magnétiques; ceci est normal vu la complexité de la structure magnétique en champ nul.

C H A P I T R E I I I

PROPRIETES LIEES A L'AIMANTATION SPONTANEE DANS LES TERRES RARES

1 - L'interaction d'échange s-f

Les métaux de terres rares peuvent être considérés comme un ensemble d'ions trivalents localisés et environnés d'une mer d'électrons de conduction. La couche 4f des terres rares est généralement incomplète; elle est la principale responsable du magnétisme de ces éléments. Pour les électrons 4f, le couplage spin - orbite (1500 cm^{-1}) est beaucoup plus grand que les perturbations dues au champ cristallin ($200 \text{ à } 300 \text{ cm}^{-1}$). On considérera par la suite que le moment cinétique total J est un bon nombre quantique. Pour les terres rares de la seconde série, J prend la valeur maximale $L + S$ et l'aimantation à saturation absolue exprimée en nombre de magnétons de Bohr, est égale à gJ ; g étant le facteur de Landé.

Pour les éléments de la seconde série, Kasuya⁽³⁹⁾ a évalué les effets du champ cristallin sur l'aimantation à saturation absolue; la réduction $\frac{\Delta M_{SO}}{M_{SO}}$ ainsi calculée est maximale pour le terbium; elle vaut $1,6 \cdot 10^{-3}$; nous la négligerons par la suite.

Pour toutes les terres rares que nous avons étudiées, nous avons observé que la valeur expérimentale de l'aimantation à saturation absolue M_{SO} est plus grande que la valeur théorique gJ (tableau 2). On attribue cet excès ΔM à la polarisation des électrons de conduction^(40,42). Le mécanisme d'interaction d'échange entre les ions trivalents se fait par l'intermédiaire de la bande de conduction. L'interaction d'échange entre le spin \vec{s}_j d'un ion trivalent localisé en \vec{R}_j et le spin \vec{s}_i d'un électron de conduction à

la position \vec{r}_i , est une interaction de contact, dite interaction s-f, qui peut être mise sous la forme d'un couplage d'Heisenberg :

$$\sum_{i,j} I \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j \delta(\vec{r}_i - \vec{r}_j); \quad (11)$$

I est l'énergie d'échange ion - électron de conduction par cm^3 .

En première approximation, si on adopte pour les électrons de conduction un modèle d'électrons libres, l'interaction d'échange entre les spins \vec{s}_m et \vec{s}_n des deux ions situés en \vec{R}_m et \vec{R}_n est donnée par :

$$\mathcal{H} = \sum_{m,n} J(\vec{R}_m - \vec{R}_n) \vec{s}_m \cdot \vec{s}_n; \quad (12)$$

$J(\vec{R})$ est la fonction oscillante de Rudermann - Kittel (39,40,41).

Quand les spins des ions trivalents sont alignés ferromagnétiquement suivant une direction Oz, l'effet de l'interaction s-f sur la bande de conduction peut être représenté par un champ équivalent proportionnel à l'aimantation M_z intrinsèque des ions trivalents :

$$H_e = \frac{I}{2\mu_B N} \sum_j S_{jz} = \frac{I}{2} \frac{M_z (g - 1)}{N\mu_B^2 g}; \quad (13)$$

μ_B est le magnéton de Bohr et N le nombre d'atomes par cm^3 . H_e agit sur la bande de conduction comme le ferait un champ extérieur. Si χ_p est la susceptibilité de Pauli, l'aimantation m_z résultant de la polarisation des électrons de conduction a pour expression :

$$m_z = \chi_p H_e \text{ avec } \chi_p = 2\mu_B^2 N_o(E_f)$$

$$\text{soit } m_z = I M_z \frac{N_o(E_f)}{N} \frac{(g - 1)}{g} (1 - \alpha); \quad (14)$$

$N_0(E_f)$ est la densité d'états au niveau de Fermi par cm^3 . Le facteur $(1 - \alpha)$ tient compte de la variation de cette densité d'états avec l'énergie autour de E_f ; $(1 - \alpha)$ peut être évalué expérimentalement à l'aide de la variation thermique de la susceptibilité des terres rares non magnétiques (43,44,45); $(1 - \alpha)$ est de l'ordre de 0,7 à 0,8.

Expérimentalement (tableau 2), la valeur de la température de Curie dépend de la direction du champ appliqué. La température de Curie moyenne a pour expression

$T_p \text{ moy} = \frac{1}{3} T_{p//c} + \frac{2}{3} T_{p\perp c}$; elle peut être exprimée en fonction de I et $N_0(E_f)$ sous la forme :

$$T_p \text{ moy} = (g - 1)^2 \frac{J(J + 1)}{3k_b} \frac{N_0(E_f)}{N} \frac{I^2}{2}. \quad (15)$$

A partir de nos valeurs expérimentales de m_z et $T_p \text{ moy}$, nous avons calculé I et $N_0(E_f)$ (tableau 2). En première approximation, pour les éléments de terres rares de la seconde série, ces grandeurs sont indépendantes du numéro atomique de l'élément. L'erbium ne figure pas dans ce tableau parce que les moments sont disposés sur un cône et que l'anisotropie magnétocristalline empêche de réaliser l'alignement complet des moments.

En utilisant les résultats expérimentaux sur les anomalies optiques (46,47) qui apparaissent avec l'ordre magnétique dans le dysprosium et l'holmium, Freeman et al (48) ont montré également, que I est indépendant du numéro atomique des éléments.

$N_0(E_f)$ peut être évalué à l'aide de la contribution électronique ($C_{el} = \gamma T$) à la chaleur spécifique à basses températures. Le terme γ est pratiquement constant pour toutes

T A B L E A U 2

	M_{so} μB	g_J μB	$T_{p,moy}$ $^{\circ}K$	I 10^{-14} erg	$N_o(E_f)$ $10^{34} \text{ erg}^{-1} \text{ cm}^{-3}$	$\chi_{ms} (^{\circ}K)$ 10^6 uem/g	T_{ordre} $^{\circ}K$	$T_{p,c}$ $^{\circ}K$	$T_{p//c}$ $^{\circ}K$
gadolinium	7,39	7	317	9,65	5,4	45	291		
terbium	9,28	9	217	10,4	5	52	227,5	236	181
dysprosium	10,4	10	148	9,6	5,9	32	180	167	109
holmium	10,22	10	86	9,4	5,8	63	131,5	91,5	75

les terres rares^(49,50,51). La valeur de $N_0(E_f)$: $7.10^{34} \text{erg}^{-1} \text{cm}^{-3}$, ainsi calculée, est en accord avec les valeurs du tableau 2. On peut également calculer $N_0(E_f)$ au moyen de la susceptibilité à basse température des terres rares non magnétiques (Y, La)^(43,45) : $N_0(E_f) = 7.10^{34} \text{erg}^{-1} \text{cm}^{-3}$.

Le modèle des électrons libres pour la bande de conduction conduit à une valeur de $N_0(E_f) = 1,16.10^{34} \text{erg}^{-1} \text{cm}^{-3}$, nettement plus faible que les différentes déterminations expérimentales. Kasuya⁽³⁹⁾ a obtenu théoriquement des valeurs de $N_0(E_f)$ comparables aux valeurs expérimentales, en prenant pour les électrons de conduction, un modèle d'électrons presque libre.

2 - Susceptibilité superposée

Dans la limite de l'erreur expérimentale, nous avons observé, pour les terres rares de la seconde série, une augmentation régulière de l'aimantation, lorsque le champ varie de 20 à 80 kOe selon la direction de facile aimantation. L'erbium fait exception; l'augmentation d'aimantation est beaucoup plus importante que dans les autres éléments; elle est attribuée à un effet de l'anisotropie magnétocristalline. Pour une température finie, l'application d'un champ magnétique compense partiellement le désordre dû à l'agitation thermique des moments magnétiques des ions trivalents. L'augmentation résultante d'aimantation a été calculée dans le modèle du champ moléculaire à l'aide du calculateur CAE 510; elle a été retranchée des valeurs expérimentales de l'aimantation. La contribution diamagnétique ($\chi_{\text{diam}} \sim 2.10^{-7}$ uem/g) peut être négligée. Pour une température finie, compte tenu de cette correction, la variation de l'aimantation est quasi linéaire avec le champ; nous pouvons définir une susceptibilité χ_{ms} superposée à l'état ferromagnétique.

En première approximation χ_{ms} est indépendante de la température entre 0°K et les deux tiers de la température d'ordre (figures 10 et 35). D'autre part, les valeurs moyennes de χ_{ms} sont à peu près les mêmes pour les différents monocristaux étudiés : $50 \cdot 10^{-6}$ uem/g, (tableau 2).

Le paramagnétisme dû aux électrons de conduction a été évalué en tenant compte du paramagnétisme de Pauli et du diamagnétisme de Landau; la susceptibilité résultante a pour expression :

$$\chi_{conduction} = \frac{4}{3} \mu_B^2 N_0(E_f);$$

elle a été calculée à l'aide de la valeur expérimentale de la densité d'états $N_0(E_f) = 7 \cdot 10^{34} \text{ erg}^{-1} \text{ cm}^{-3}$; elle vaut $1 \cdot 10^{-6}$ uem/g. Il semble difficile d'expliquer la différence d'ordre de grandeur entre χ_{ms} et $\chi_{conduction}$ par le paramagnétisme des couches internes ou par des effets de corrélation propres à la bande de conduction.

Afin de connaître de manière plus précise le comportement de ces monocristaux en champs intenses, nous avons utilisé l'appareillage de Rebouillat⁽⁵²⁾ qui permet de mesurer les aimantations à 4,2°K dans un champ de 55 kOe avec une précision relative $\frac{\Delta M}{M} = 10^{-5}$. A cette température, l'effet du désordre thermique des moments est négligeable. Pour les monocristaux étudiés, nous avons constaté que la variation de l'aimantation entre 20 kOe et 55 kOe n'était pas tout à fait linéaire; il existe une légère courbure vers l'axe des champs. Nous avons observé une augmentation moyenne de l'aimantation en très bon accord avec l'augmentation mesurée sur notre appareillage. Il se peut que nos échantillons soient légèrement écroulés en surface et présentent partiellement, en champs intenses, le même comportement qu'un polycristal. Il se peut aussi qu'il existe des contraintes internes dans l'échantillon.

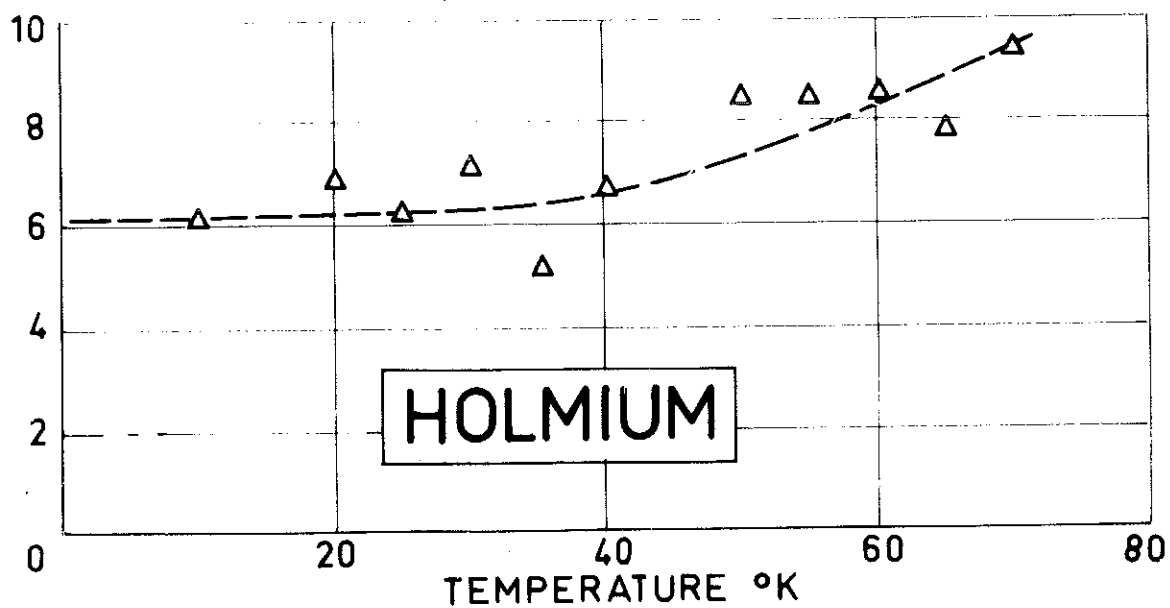
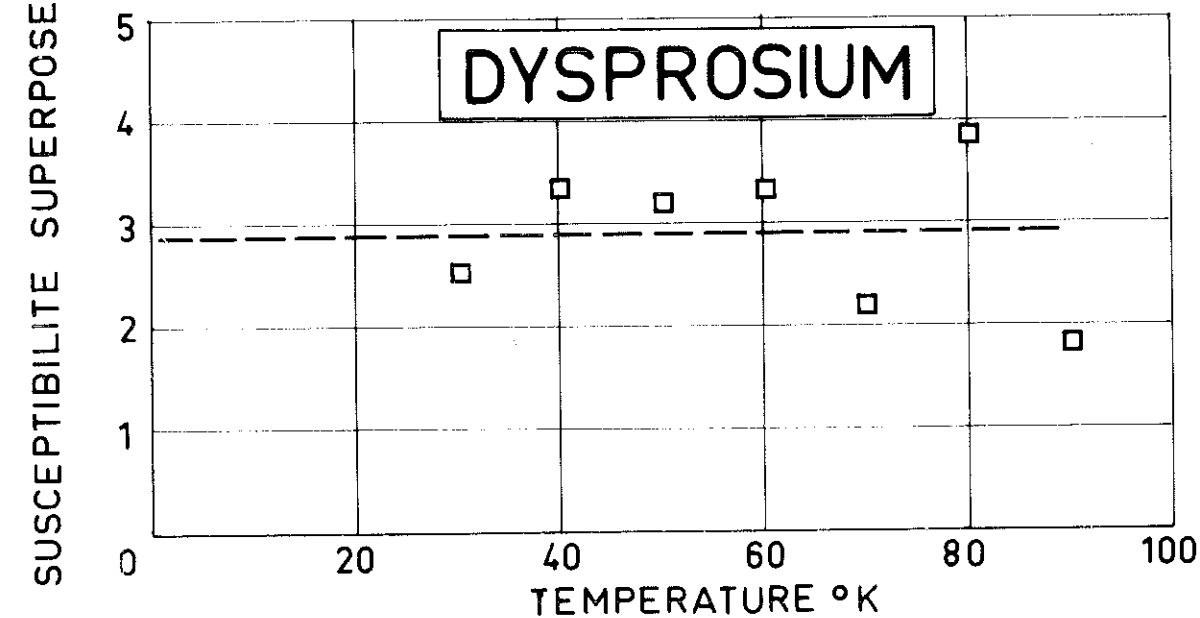
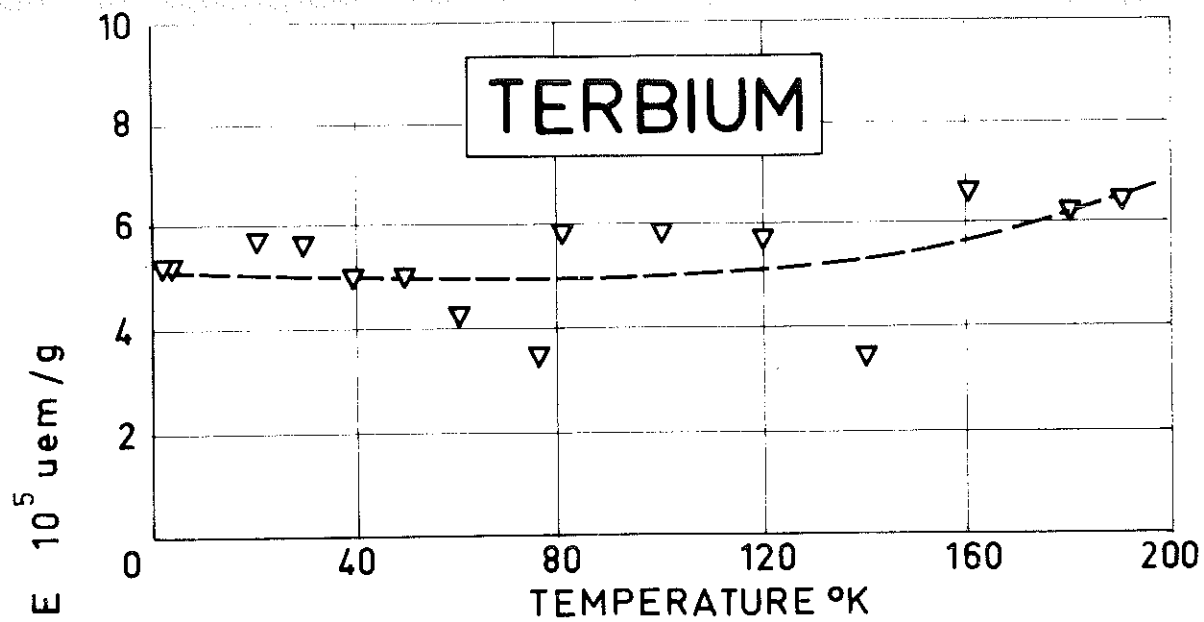


Figure 35 : Susceptibilités superposées

3 - Variation thermique de l'aimantation spontanée

Pour tous les éléments de terres rares que nous avons étudiés, la variation expérimentale de l'aimantation spontanée $M_s(T)$ avec la température est bien représentée par une loi linéaire avec le carré de la température. La théorie des ondes de spin prévoit que la variation thermique de l'aimantation spontanée d'un ferromagnétique isotrope suit une loi en $T^{3/2}$. Pour expliquer cette différence, on peut tenir compte de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline⁽⁵³⁾, qui est très importante dans les terres rares (cf. chapitre IV); cela conduit à une expression en $T^{3/2}$ corrigée par un facteur dépendant exponentiellement de l'inverse de la température :

$$M_{so} - M_s(T) = \text{constante } T^{3/2} \exp\left(-\frac{\sqrt{K_1^1 K_6^1}}{kT}\right); \quad (16)$$

K_1^1 est le terme prépondérant de l'énergie d'anisotropie hors du plan de base;

K_6 représente l'anisotropie dans le plan de base.

Sur les figures 36a, 36b, 36c, nous avons porté pour le terbium, le dysprosium et l'holmium, respectivement la variation expérimentale $M_s(T)$ en fonction du second membre de la relation (16); les valeurs de K_1^1 et K_6 sont les valeurs que nous avons déterminées expérimentalement à chaque température (cf. chapitre IV). L'accord entre l'expérience et la relation (16) semble satisfaisant. Il faudrait également tenir compte des effets magnétostrictifs, ajoutant en particulier à l'énergie d'anisotropie du cristal non déformé, K_6 , l'énergie associée aux effets magnétostrictifs du deuxième ordre de symétrie hexagonale qui se développent dans le plan de base (cf. chapitre IV).

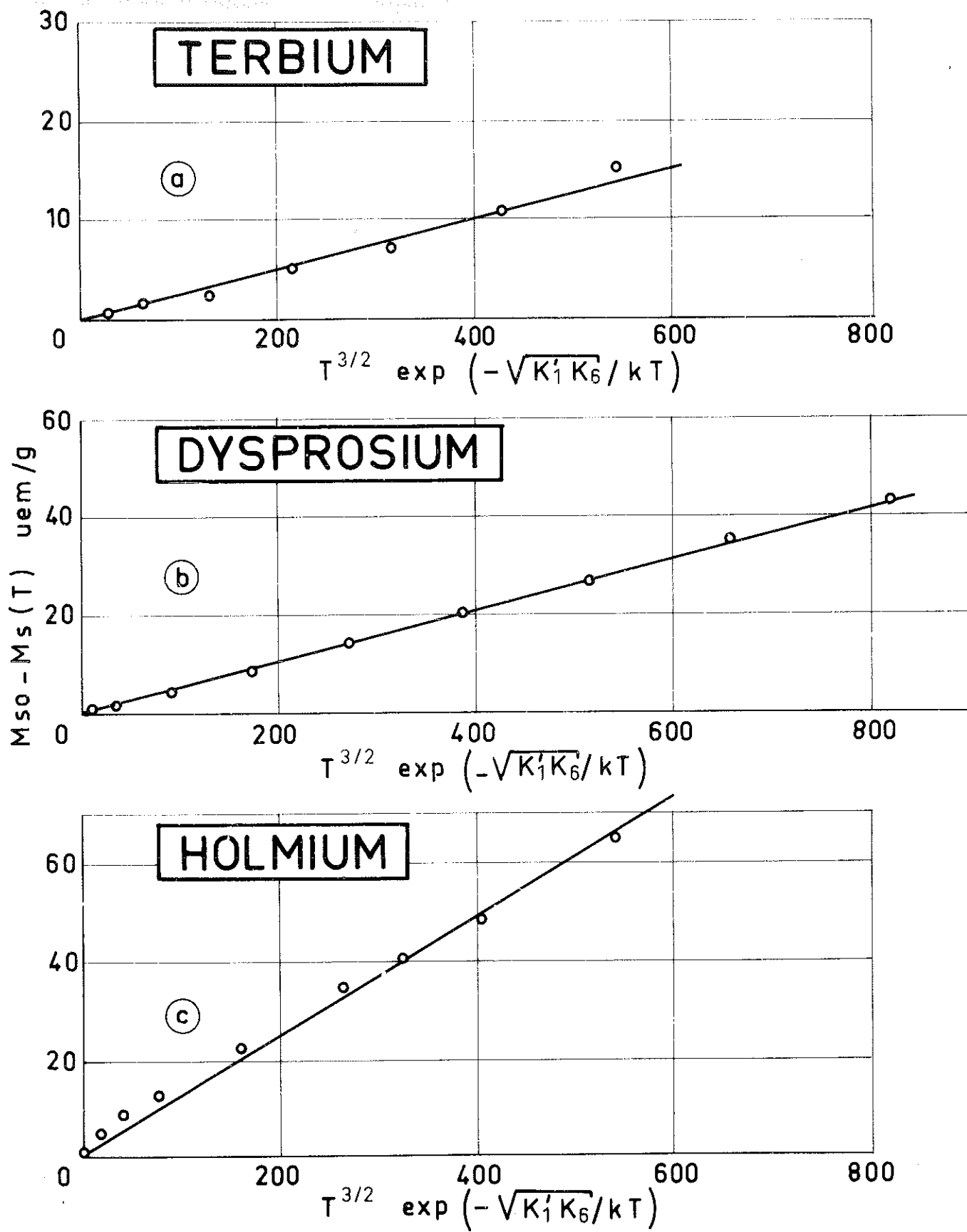


Figure 36 : Variations thermiques de l'aimantation spontanée

Remarquons qu'un apport fini d'énergie est nécessaire même pour exciter une onde de spin de grande longueur d'onde, quand il existe dans le cristal une direction préférentielle d'aimantation due à l'anisotropie magnétocristalline. Le facteur exponentiel de l'expression (16) est lié à ce fait.

Pour le gadolinium, la variation thermique de l'aimantation spontanée ne suit également pas la loi de Bloch en $T^{3/2}$; cependant, le gadolinium ayant un moment orbital nul, est très peu anisotrope en comparaison des autres terres rares; le facteur exponentiel dans la relation (16) calculé avec nos valeurs expérimentales de K_1' et celles de K_6 déterminées par Clark⁽³⁰⁾, vaut 0,995 à 4,2°K; il ne peut pas rendre compte des écarts entre la théorie et l'expérience. Kasuya⁽³⁹⁾, à partir de la forme spéciale de la surface de Fermi des terres rares, a proposé un modèle où la relation de dispersion $\omega(k)$, pour les magnons de vecteur d'onde \vec{k} , est linéaire en k pour les faibles valeurs de celui-ci; une telle relation de dispersion conduit à une variation de $M_s(T)$ linéaire avec le carré de la température,

$$M_s(T) = M_s(0) \left[1 - AT^2 \right]. \quad (17)$$

Si la précision sur les valeurs expérimentales n'est pas suffisante pour trancher entre les relations (16) et (17), elle est en revanche suffisante, pour affirmer que les terres rares de la seconde série ne suivent pas la loi de Bloch en $T^{3/2}$.

C H A P I T R E I V

A N I S O T R O P I E

1 - Détermination expérimentale des constantes d'anisotropie

Ecrivons, pour un cristal de symétrie hexagonale, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline W_a sous la forme :

$$W_a = K_1' \cos^2 \theta + K_2' \cos^4 \theta + K_3' \cos^6 \theta + K_6 \sin^6 \theta \cos^6 \phi \quad (18)$$

θ est l'angle du vecteur aimantation par rapport à l'axe c , ϕ l'angle de sa projection sur le plan de base par rapport à l'axe a . Les indices primes sont utilisés pour différencier les coefficients d'anisotropie de ceux définis dans l'expression (4).

Dans les terres rares, les effets du champ cristallin contribuent de manière prépondérante à l'énergie d'anisotropie; il est préférable d'exprimer cette énergie en fonction des polynômes de Legendre d'indices pairs

$$W_a = V_2^0 P_2(\cos \theta) + V_4^0 P_4(\cos \theta) + V_6^0 P_6(\cos \theta) + V_6^6 \sin^6 \theta \cos^6 \phi$$

(19).

Les coefficients V_l^n sont directement proportionnels aux coefficients U_l^n du champ cristallin. Par identification des deux expressions (18) et (19) de W_a , on établit des relations linéaires entre les coefficients K_l' et V_l^n . La théorie des phases de domaines élémentaires permet d'établir les équations théoriques des courbes d'aimantation; quand le champ est dirigé suivant les axes de symétrie du cristal, les équations s'expriment simplement en fonction des coefficients K_l' .

Prenons pour exemple le terbium à basses températures ($T < 140^\circ\text{K}$), le champ étant appliqué dans le plan de base suivant l'axe a (axe de difficile aimantation) (figure 14). A champ nul, l'échantillon est divisé en phases de domaines dont les aimantations sont dirigées suivant les axes b . Dans la région I, les variations de l'aimantation sont dues aux déplacements de parois des domaines. Ce processus se poursuit jusqu'à un champ H_a pour lequel l'échantillon ne comprend plus que deux phases de domaines dont les aimantations sont suivant les deux axes b proches voisins de l'axe a que l'on étudie. Dans la région II, pour des champs supérieurs à H_a , la variation de l'aimantation résulte de la rotation des vecteurs aimantation des deux domaines vers le champ extérieur.

Pour une température donnée, l'équation théorique $M(H)$ des courbes d'aimantation dans la région II, est obtenue par minimisation de l'énergie totale, somme des énergies d'anisotropie, de champ extérieur, du champ démagnétisant :

$$(H_e - NdM)d M_s = 12V_6^6 \beta(4\beta^2 - 1)(4\beta^2 - 3) ; \quad (20)$$

β est le rapport M/M_s . L'alignement complet des moments (région III), est réalisé pour un champ fini quand le champ extérieur est appliqué suivant un axe cristallographique. Dans le cas ci-dessus, le champ H_b qui sépare les régions II et III, a pour valeur :

$$H_b = \frac{Nd^2 M_s^2(T) + 36V_6^6}{d M_s(T)} . \quad (21)$$

Quand le champ est dirigé suivant l'axe c , on obtient par le même procédé l'équation théorique $M(H)$; elle dépend linéairement des coefficients K_1' , K_2' et K_3' .

$$\frac{H}{Md} = N + \frac{2K_1'}{(dM_s)^2} + 4K_2' \frac{(dM)^2}{(dM_s)^4} + 6K_3' \frac{(dM)^4}{(dM_s)^6} . \quad (22)$$

T A B L E A U 3

Constantes d'anisotropie du terbium

$$K_2^I = \frac{35}{8} V_4^0$$

$$K_1^I = \frac{3}{2} V_2^0 - \frac{15}{4} V_4^0$$

$$1 \mu_B = 35,2 \text{ uem/g}$$

temp. °K	M_s	K_1^I	K_2^I	V_2^0	V_4^0	V_6^0
	uem/g	10^8 erg/cm^3	10^8 erg/cm^3	10^8 erg/cm^3	10^7 erg/cm^3	10^6 erg/cm^3
1,7	326,2	6,7	2,01	5,6	4,6	1,85
4,2	326,5	6,6	2,01	5,5	4,6	1,81
13,8	325,9	6,9	2,01	5,7	4,6	1,78
20,3	325	7	1,93	5,7	4,4	1,69
30,2	324	6,8	1,93	5,6	4,4	
40,3	321,4	6,6	1,66	5,3	3,8	1,49
50,3	318,4	6,5	1,49	5,2	3,4	1,38
60,3	315,4	6,1	1,31	4,8	3	1,2
70,4	311,2	5,8	1,31	4,6	3	1,02
77,4	306,5	5,7	1,27	4,5	2,9	1,01
90,4	302	5,4	0,92	4,1	2,1	0,73
100,6	294,5	5	0,79	3,8	1,8	0,56
110,6	290,3	4,8	0,57	3,5	1,3	
120,7	286,1	4,4	0,44	3,2	1	0,32
130,7	275,2	3,9	0,39	2,8	0,9	
140,7	269	3,5	0,35	2,5	0,8	0,17
150,8	258,6	3,2	0,31	2,3	0,7	
160,9	251,1	2,9	0,18	2	0,4	
170,9	239	2,5	0,18	1,7	0,4	
181	227,6	2,1	0,13	1,5	0,3	
191,2	214,6	1,7	0,09	1,2	0,2	
201,2	198,5	1,5	0,044	1	0,1	
211,3	184	1,2		0,8		
221,3	162,6					

T A B L E A U 4

Constantes d'anisotropie du dysprosium

$$K_2^I = \frac{35}{8} V_4^O$$

$$K_1^I = \frac{3}{2} V_2^O - \frac{15}{4} V_4^O$$

$$1 \mu_B = 34,4 \text{ uem/g}$$

temp. °K	M _S (T)	K ₁ ^I	-K ₂ ^I	-V ₂ ^O	V ₄ ^O	V ₆ ⁶
	uem/g	10 ⁸ erg/cm ³	10 ⁸ erg/cm ³	10 ⁸ erg/cm ³	10 ⁷ erg/cm ³	10 ⁶ erg/cm ³
1,7	357,5	10,9	2,6	5,8	5,9	10,9
4,2	357,2	10,8	2,6	5,7	5,9	11
10	357,2					10,6
13,8	356,9	10	2,05	5,5	4,7	
20,3	356,7	10,1	2,3	5,4	5,2	8,4
30,4	354,2	9,7	2,05	5,3	4,7	7,6
40,2	349,9	9,3	1,9	5,1	4,3	6,4
50,3	344,4	8,7	1,6	4,9	3,7	4,85
55,3	342,1					4,22
60,3	338,3	8,2	1,4	4,7	3,1	3,68
65,3	336					3,02
70,4	331,5	8,2	1,3	4,7	3	2,44
72,9	330,5					2,09
75,4	328,3					1,95
77,4	327	6,9	0,88	4,1	2	2,04
80,4	323,4					1,44
85,5	320					1,12
90,5	315,4	5,7	0,57	3,5	1,3	0,875
95,5	310,5					0,614
100,6	304,6	5,3	0,4	3,3	0,92	0,493
105,6	300					0,533
110,6	294,4	4,6	0,26	2,9	0,6	
120,7	283	4,4	0,27	2,8	0,61	
130,9	268,8	3,4	0,05	2,24	0,11	
140,8	250,6	2,8	0,04	1,84	0,09	
150,9	232,4	2,2	0,03	1,44	0,06	
160,9	207,6	1,7		1,12		

Constantes d'anisotropie de l'holmium

$$K_2' = \frac{35}{8} V_4^O \quad K_1' = \frac{3}{2} V_2^O - \frac{15}{4} V_4^O \quad 1 \mu_B = 33,9 \text{ uem/g}$$

Température °K	M_s (T) uem/g	K_1' 10^8 erg/cm^3	K_2' 10^8 erg/cm^3	V_2^O 10^8 erg/cm^3	V_4^O 10^8 erg/cm^3	Température °K	M_s (T) uem/g	V_6^O 10^6 erg/cm^3
1,8	346,2	12,9	7,7	4,16	1,77	1,68	346,2	22,1
2,61	345,7	12,9	7,7	4,15	1,77	4,2	346	24,7
3,5	346	12,7	7,7	4,12	1,75	8	345,3	25,4
6	345,8	12,6	7,6	4,09	1,73	12,7	343,8	22
8	345,3	12,4	7,4	4,02	1,7	13,8	343,3	21,4
10	342,3	12,2	7,3	3,98	1,67	17	341,9	21,2
12	344	12,2	7,25	3,97	1,66	20,3	340	20,9
14,2	343,2	12,1	7,15	3,96	1,64	25,2	336,1	17,5
15,9	342,4	12	7,1	3,93	1,62	30,2	332,8	13,8
18	341,3	11,8	6,95	3,91	1,59	35,2	328,9	10,5
20,3	340	10,6	6,05	3,61	1,38	40,2	320,8	9,8
25,2	336,1	10,2	5,8	3,49	1,32	45,3	313,2	8,2
30,2	332,8	9	4,85	3,19	1,11	50,3	308	6,8
39,3	322,6	6,33	2,95	2,48	0,68	55,3	303,4	6,5
48,4	310,4	4,3	1,60	1,94	0,37	60,3	296,3	5,5
53,5	304,5	3,4	0,95	1,68	0,22	65,4	289,3	4,7
60,3	296,3	3,3	1	1,60	0,23	70,4	280	4,4
70,4	280	2,1	0,25	1,22	0,06	75,4	271	3,8
77,4	268	1,8	0,09	1,14	0,02			

Pour le terbium, le dysprosium et l'holmium, quand le champ est suivant l'axe c , la variation expérimentale de $\frac{H}{Md}$ est quasi linéaire en fonction du carré de l'aimantation; l'ordonnée à l'origine est définie par K_1^i et la pente par K_2^i ; le terme en M^4 dans (22) est très petit; il a été impossible de déterminer K_3^i et par suite le coefficient V_6^0 .

La région II des courbes d'aimantation, décrite théoriquement soit par l'équation (20) soit par (22), comprend un grand nombre de points expérimentaux. Nous avons utilisé une méthode de moindres carrés pondérés, pour déterminer les coefficients K_1^i et par suite les coefficients V_1^n .

2 - Valeurs des coefficients V_1^n à 0°K

a - résultats expérimentaux

Les coefficients K_1^i et V_1^n à différentes températures pour le terbium, le dysprosium et l'holmium, ont été portés respectivement dans les tableaux 3, 4, et 5. Les valeurs à 0°K de V_2^0 , V_4^0 et V_6^0 pour ces mêmes éléments sont obtenus par extrapolation; elles ont été portées dans le tableau 6.

Nous évaluons la précision sur les coefficients K_1^i , K_2^i et K_6^i à $\frac{\Delta K_1^i}{K_1^i} = 15 \%$, $\frac{\Delta K_2^i}{K_2^i} = 25 \%$ et $\frac{\Delta K_6^i}{K_6^i} = \frac{\Delta V_6^0}{V_6^0} = 10 \%$.

T A B L E A U 6

	$V_2^0 \cdot 10^{-8} \text{ erg/cm}^3$	$V_4^0 \cdot 10^{-7} \text{ erg/cm}^3$	$V_6^0 \cdot 10^{-6} \text{ erg/cm}^3$
Gadolinium	- 0,013 ± 0,003	0,069 ± 0,017	- 0,00637 *
Terbium	5,65 ± 1,1	4,6 ± 1,2	1,85 ± 0,18
Dysprosium	5,5 ± 1,1	- 5,4 ± 1,4	- 11 ± 1,1
Holmium	4,16 ± 1,1	17,7 ± 4,5	27 ± 2,7

* valeur de Graham (30).

Les valeurs de V_2^0 (0°K) pour le terbium et le dysprosium sont presque identiques. Elles sont en bon accord avec celles déterminées par Clark⁽⁵⁴⁾, par une méthode de couple ($V_2^0 \text{ Tb} = V_2^0 \text{ Dy} = 5,5 \cdot 10^8 \text{ erg/cm}^3$).

La valeur de V_6^0 (0°K) pour le terbium ($1,85 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$) est en accord avec celle évaluée par Clark et autres ($2,4 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$) à partir des mesures de la magnétostriction dans le plan de base⁽⁵⁴⁾.

b - comparaison avec les paramètres du champ cristallin

Le modèle des charges ponctuelles permet d'exprimer les coefficients du champ cristallin en fonction des paramètres microscopiques qui caractérisent d'une part le réseau cristallin (c , a) et d'autre part les orbites de la couche magnétique $4f$ ($\langle r_{4f}^2 \rangle$: valeur moyenne du carré du rayon des orbites $4f$)⁽³⁹⁾, en particulier

$$U_2^0 = A_2 \langle r_{4f}^2 \rangle (1,636 - \frac{c}{a}) \alpha J(J - \frac{1}{2}); \quad (23)$$

J est le module du moment cinétique total; α est le coefficient de proportionnalité de l'opérateur équivalent de Stevens d'ordre deux dans la multiplicité J ⁽⁵⁵⁾; A_2 dépend peu de la terre rare considérée.

Nous avons déjà signalé que les coefficients V_1^n à 0°K sont proportionnels aux coefficients du champ cristallin U_1^n . Dans l'expression (23), le facteur $A_2 \langle r_{4f}^2 \rangle$ est difficile à évaluer; il dépend peu de la terre rare étudiée. Aussi, nous comparons les coefficients théoriques U_2^0 et expérimentaux $V_2^0(0^\circ\text{K})$ du dysprosium et de l'holmium à ceux du terbium pris comme référence. Nous avons respectivement pour le dysprosium

$$\frac{U_2^0 \text{ Tb}}{U_2^0 \text{ Dy}} = 0,896 \text{ et } \frac{V_2^0(0^\circ\text{K}) \text{ Tb}}{V_2^0(0^\circ\text{K}) \text{ Dy}} = 1,03$$

pour l'holmium $\frac{\psi_2^0 \text{ Tb}}{\psi_2^0 \text{ Ho}} = 2,1$ et $\frac{V_2^0(0^\circ\text{K}) \text{ Tb}}{V_2^0(0^\circ\text{K}) \text{ Ho}} = 1,45.$

Si l'accord est bon entre le dysprosium et le terbium, il l'est moins entre l'holmium et le terbium.

Comparons nos valeurs expérimentales de V_6^6 à 0°K avec le coefficient du champ cristallin ψ_6^6 déduit du modèle des charges ponctuelles

$$\psi_6^6 = A_6^6 \langle r_{4f}^6 \rangle \left[2,52 - 0,815 \left(1,633 - \frac{c}{a} \right) \right] \eta F_6(J), \quad (24)$$

$$\text{avec } F_6(J) = \frac{J}{16} \left[16J^5 - 120J^4 + 340J^3 - 450J^2 + 274J - 60 \right]. \quad (25).$$

Dans (24), η est le coefficient de proportionnalité de l'opérateur équivalent de Stevens d'ordre six dans la multiplicité J ; $\langle r_{4f}^6 \rangle$ est la valeur moyenne de la puissance 6 du rayon des orbitales 4f. Pour la même raison que celle citée ci-dessus, nous comparons les rapports des coefficients ψ_6^6 et ceux des coefficients $V_6^6(0^\circ\text{K})$, en prenant toujours le terbium comme référence. Nous avons respectivement

$$\text{pour le dysprosium } \frac{\psi_6^6 \text{ Tb}}{\psi_6^6 \text{ Dy}} = 0,201 \quad \frac{V_6^6(0^\circ\text{K}) \text{ Tb}}{V_6^6(0^\circ\text{K}) \text{ Dy}} = 0,168$$

$$\text{pour l'holmium } \frac{\psi_6^6 \text{ Tb}}{\psi_6^6 \text{ Ho}} = 0,101 \quad \frac{V_6^6(0^\circ\text{K}) \text{ Tb}}{V_6^6(0^\circ\text{K}) \text{ Ho}} = 0,0685$$

Les valeurs expérimentales et les coefficients du champ cristallin sont dans des rapports du même ordre de grandeur. Il semble difficile que l'accord soit meilleur; la magnétostriction dans le plan de base joue un rôle important, en particulier pour le terbium (cf. chapitre IV § 4-a).

3 - Variation thermique des coefficients V_l^n

a - rappel de la théorie

Les variations expérimentales de V_2^0 , V_4^0 et V_6^0 avec la température, ont été portées respectivement pour le terbium sur les figures 37, 38, pour le dysprosium, 39, 40 et pour l'holmium 41, 42. Les coefficients V_l^n décroissent avec la température; leur variation est d'autant plus rapide que l'indice l est grand.

Dans les métaux de terres rares, les couches 4f responsables du magnétisme de ces éléments, sont suffisamment éloignées les unes des autres pour que l'on puisse décrire l'anisotropie magnétocristalline à l'aide du modèle à un ion. Chaque moment individuel a une densité d'énergie qui dépend de sa direction

$$\varepsilon(\vec{J}) = \varepsilon_0 + \sum_l V_l(0^\circ\text{K}) Q_l(\vec{J}). \quad (26)$$

$Q_l(\vec{J})$ est un polynôme de degré l des composantes de \vec{J} , dont la forme est dictée par la symétrie du cristal; il est commode d'exprimer $Q_l(\vec{J})$ à l'aide d'une combinaison d'harmoniques sphériques $Y_l^n(\vec{J})$. Callen et Callen⁽⁵⁶⁾ en utilisant les propriétés de ces fonctions et en prenant pour axe des z , la direction de l'aimantation moyenne de vecteur unitaire $\vec{\alpha}$, ont montré que

$$\frac{V_l(T)}{V_l(0^\circ\text{K})} = \frac{\langle Y_l^0(\vec{J}) \rangle_T}{\langle Y_l^0(\vec{J}) \rangle_{0^\circ\text{K}}} \quad (27)$$

Pour calculer la valeur moyenne

$$\langle Y_l^0(\vec{J}) \rangle_T = \int_{-1}^{+1} Y_l^0(\cos \theta) \rho(\cos \theta) d(\cos \theta) \quad (28)$$

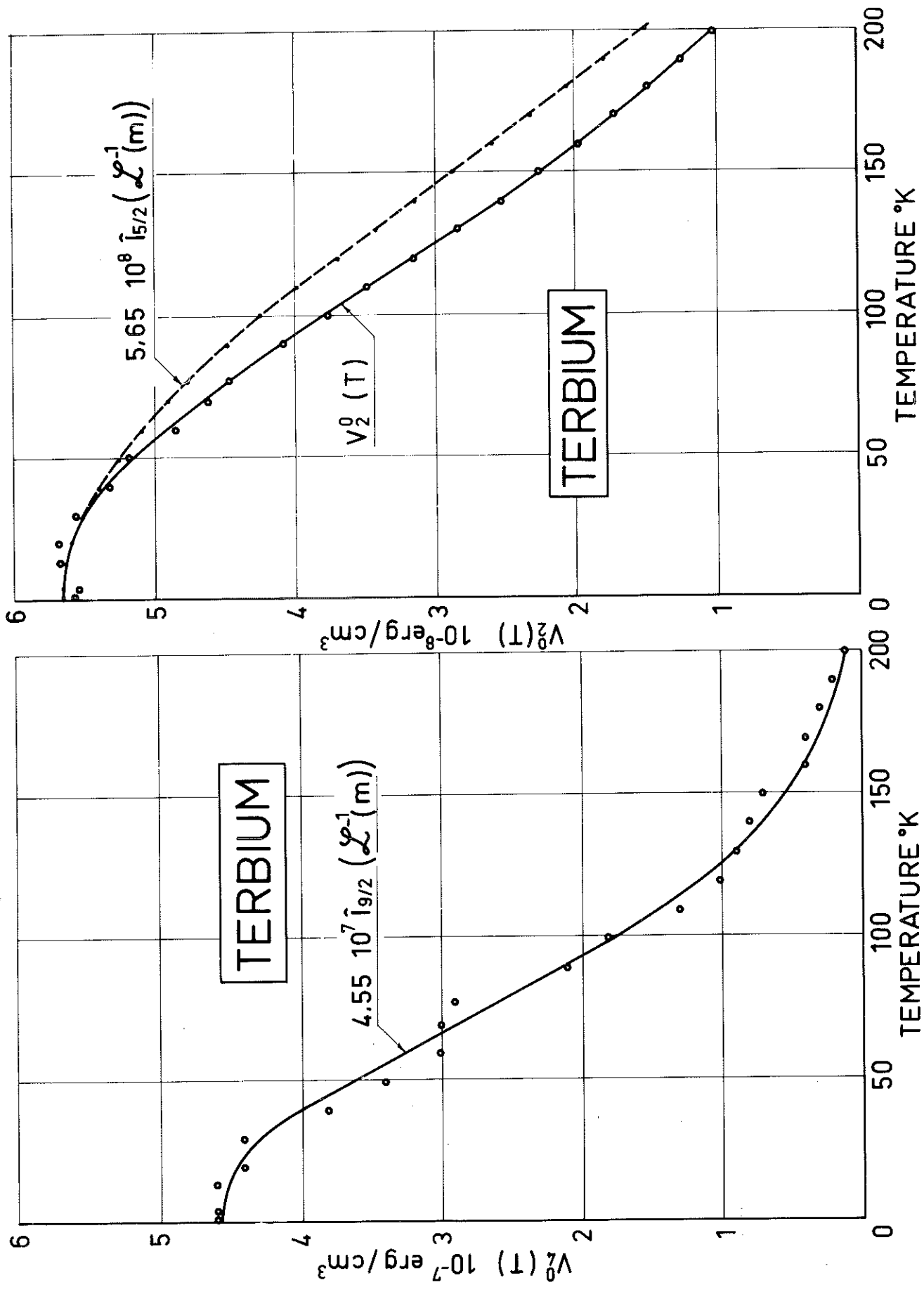


Figure 37 : Variation thermique de V_2^0 et V_4^0 du terbium

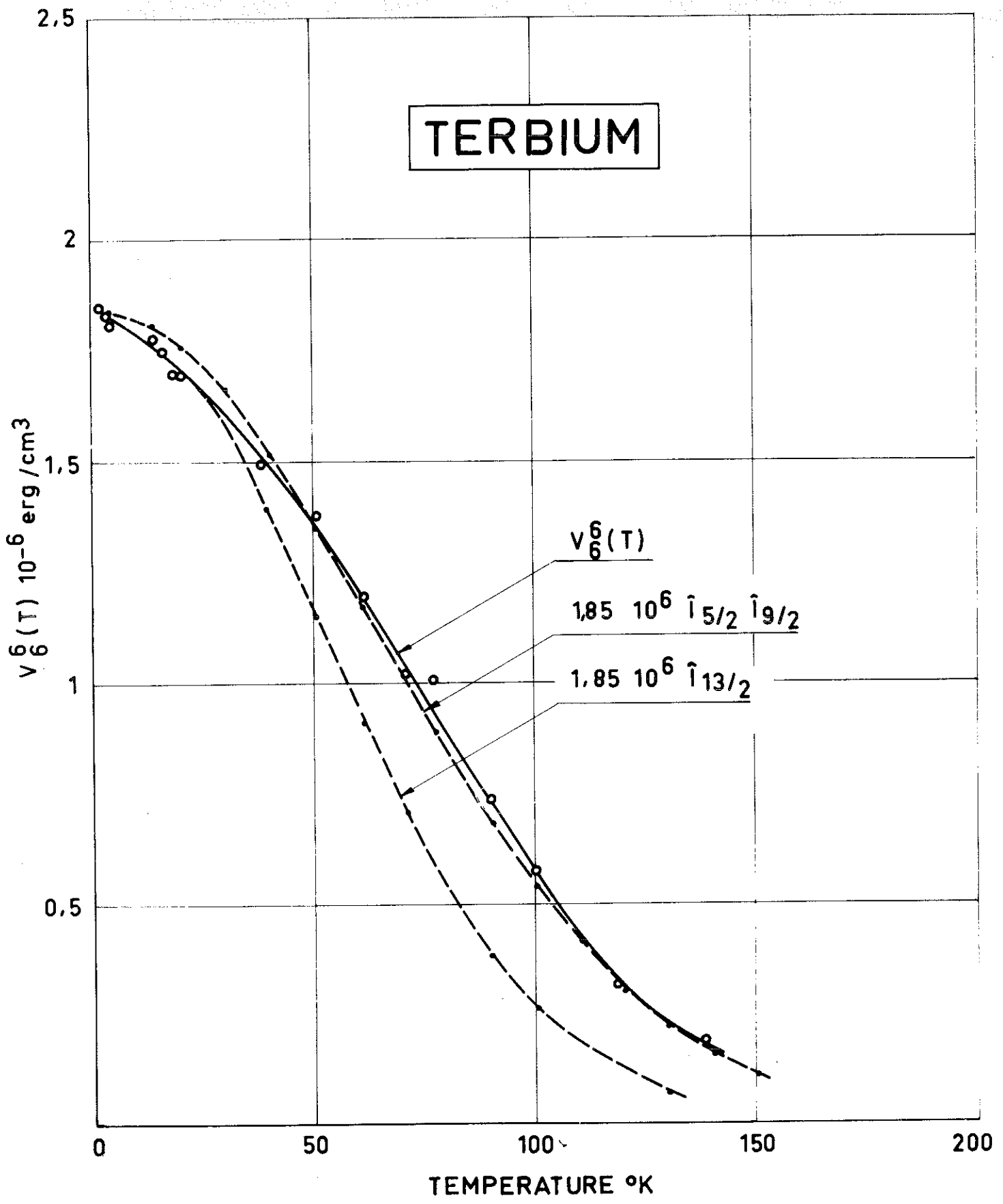


Figure 38 : Variation thermique de V_6^6 du terbium

il est nécessaire de connaître à la température T , la probabilité $\rho(\cos \theta)$ de l'état dans lequel $\frac{\vec{J} \cdot \vec{\alpha}}{|\vec{J}|} = \cos \theta$. Callen et Shtrickman⁽⁵⁷⁾ ont montré que $\rho(\cos \theta)$ pour la plupart des modèles statistiques, est une fonction exponentielle de $\cos \theta$:

$$\rho(\cos \theta) = \exp(X \cos \theta) / \int_{-1}^1 \exp(X \cos \theta) d(\cos \theta), \quad (29)$$

X peut être une fonction quelconque de la température. Remarquons que le modèle de champ moléculaire est un cas particulier où $X = \frac{\langle \cos \theta \rangle}{k_B T}$. En utilisant (27) et (28), on aboutit à la relation

$$\frac{V_1^0(T)}{V_1^0(0)} = \frac{I_{l+1/2}[\mathcal{L}^{-1}(m)]}{I_{1/2}[\mathcal{L}^{-1}(m)]} = \hat{I}_{l+1/2}[\mathcal{L}^{-1}(m)] \quad (30)$$

$I_{l+1/2}$ est la fonction de Bessel hyperbolique d'indice l ; m l'aimantation relative $\frac{M_s(T)}{M_s(0)}$ et \mathcal{L}^{-1} l'inverse de la fonction de Langevin.

Nous avons utilisé nos valeurs expérimentales de $M_s(T)$ pour calculer les valeurs théoriques de $V_l(T)$ dans l'équation (30). Une erreur même très petite sur $M_s(T)$ entraîne une erreur importante non seulement sur la valeur expérimentale de $V_l(T)$ (cf. équations 20-22), mais aussi sur sa détermination théorique (équation 30). Cette erreur est d'autant plus importante que l'indice l de $V_l(T)$ est élevé ($l = 4, 6$).

il est nécessaire de connaître à la température T , la probabilité $\rho(\cos \theta)$ de l'état dans lequel $\frac{\vec{J} \cdot \vec{\alpha}}{|\vec{J}|} = \cos \theta$. Callen et Shtrickman⁽⁵⁷⁾ ont montré que $\rho(\cos \theta)$ pour la plupart des modèles statistiques, est une fonction exponentielle de $\cos \theta$:

$$\rho(\cos \theta) = \exp(X \cos \theta) / \int_{-1}^1 \exp(X \cos \theta) d(\cos \theta), \quad (29)$$

X peut être une fonction quelconque de la température. Remarquons que le modèle de champ moléculaire est un cas particulier où $X = \frac{\langle \cos \theta \rangle}{k_B T}$. En utilisant (27) et (28), on aboutit à la relation

$$\frac{V_l^0(T)}{V_l^0(0)} = \frac{I_{l+1/2}[\mathcal{L}^{-1}(m)]}{I_{1/2}[\mathcal{L}^{-1}(m)]} = \hat{I}_{l+1/2}[\mathcal{L}^{-1}(m)] \quad (30)$$

$I_{l+1/2}$ est la fonction de Bessel hyperbolique d'indice l ; m l'aimantation relative $\frac{M_s(T)}{M_s(0)}$ et \mathcal{L}^{-1} l'inverse de la fonction de Langevin.

Nous avons utilisé nos valeurs expérimentales de $M_s(T)$ pour calculer les valeurs théoriques de $V_l(T)$ dans l'équation (30). Une erreur même très petite sur $M_s(T)$ entraîne une erreur importante non seulement sur la valeur expérimentale de $V_l(T)$ (cf. équations 20-22), mais aussi sur sa détermination théorique (équation 30). Cette erreur est d'autant plus importante que l'indice l de $V_l(T)$ est élevé ($l = 4, 6$).

b - dysprosium

Pour le dysprosium, les variations expérimentales des coefficients V_2^0 , V_4^0 et V_6^6 avec la température, ont été portées respectivement sur les figures 39 et 40; nous y avons porté également les variations théoriques de ces coefficients $V_2^0(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{5/2}$, $V_4^0 \hat{I}_{9/2}$ et $V_6^6 \hat{I}_{13/2}$. Pour les températures supérieures à 50°K , les valeurs expérimentales de $V_6^6(T)$ déterminées à partir des valeurs du champ H_b (cf. équation 21) ont été également représentées sur la figure 40. L'accord entre les variations thermiques expérimentales et théoriques de $V_2^0(T)$ et $V_4^0(T)$ est surtout satisfaisant à basses températures ($T < 80^\circ\text{K}$). Quant au coefficient $V_6^6(T)$, l'accord est très bon pour toutes les températures.

c - holmium

Nous avons représenté sur les figures 41 et 42 les variations thermiques expérimentales de V_2^0 , V_4^0 et V_6^6 et les variations théoriques de ces coefficients $V_2^0(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{5/2}$, $V_4^0(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{9/2}$ et $V_6^6(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{13/2}$. Pour les coefficients V_2^0 et V_4^0 l'accord est correct pour les températures inférieures à 20°K . Nous rappelons que nous avons négligé le coefficient V_6^0 dans le calcul de V_2^0 et V_4^0 à partir des constantes d'anisotropie. Cette hypothèse justifiée pour le terbium et le dysprosium semble l'être moins pour l'holmium. Cela expliquerait que, dans le cas de l'holmium, l'accord entre l'expérience et la théorie soit meilleur pour V_4^0 que pour V_2^0 ; en effet si on néglige V_6^0 l'erreur sur V_4^0 est plus faible que celle sur V_2^0 .

Pour le coefficient V_6^6 l'accord est satisfaisant pour les températures inférieures à 35°K . L'écart à haute température (T compris entre 35 et 70°K) peut provenir du manque de précision dans la détermination de $M_s(T)$, mais aussi de la réduction du domaine de validité de l'équation (20).

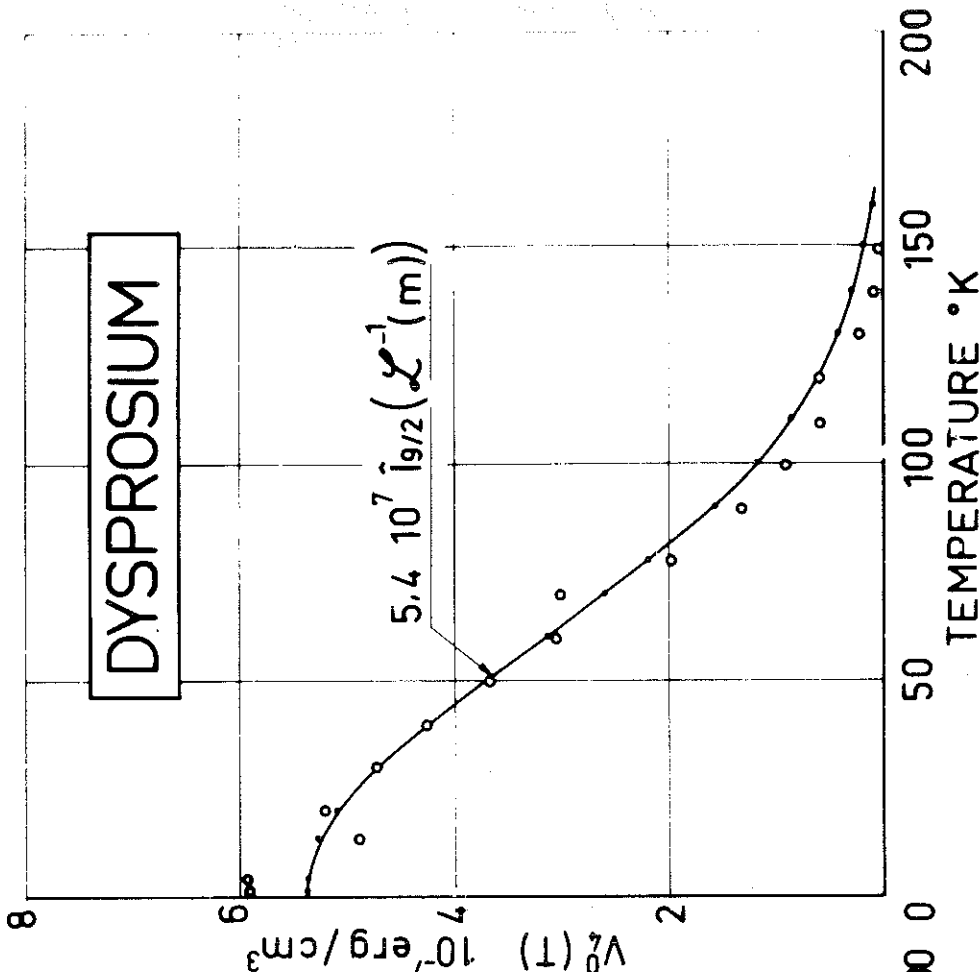
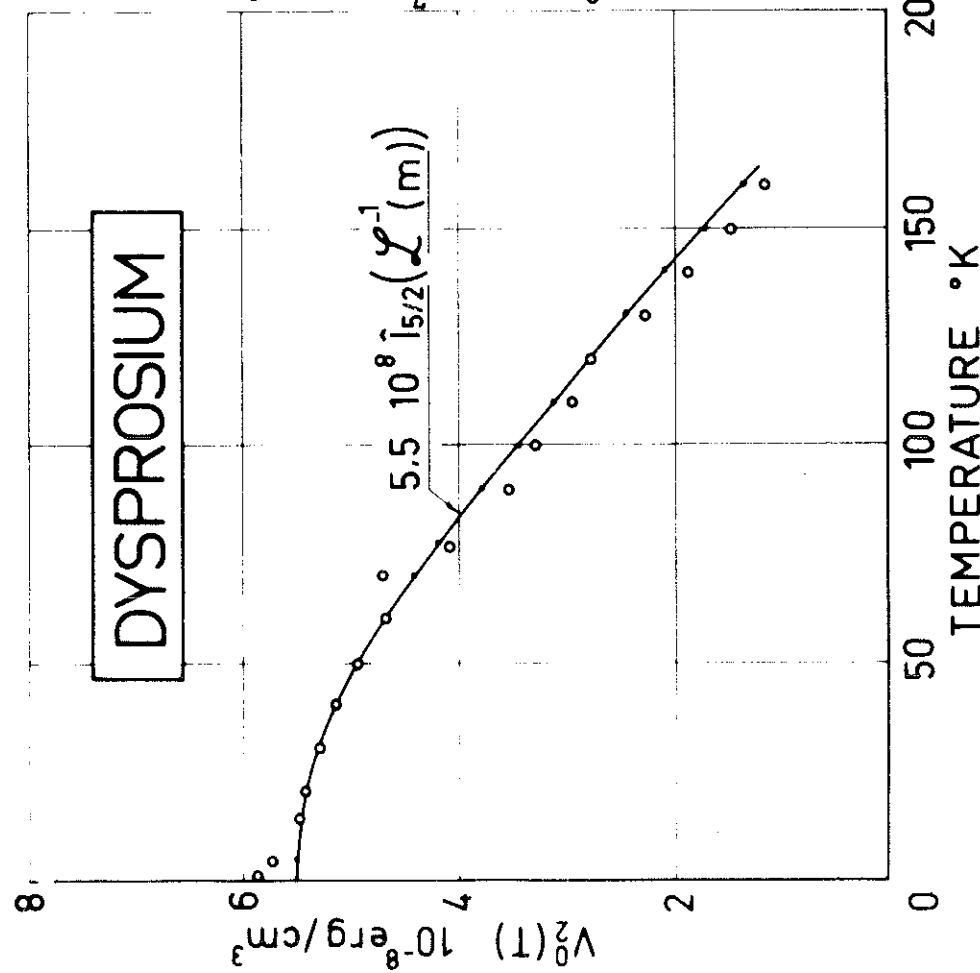


Figure 39 : Variation thermique de V_2^0 et V_4^0 du dysprosium

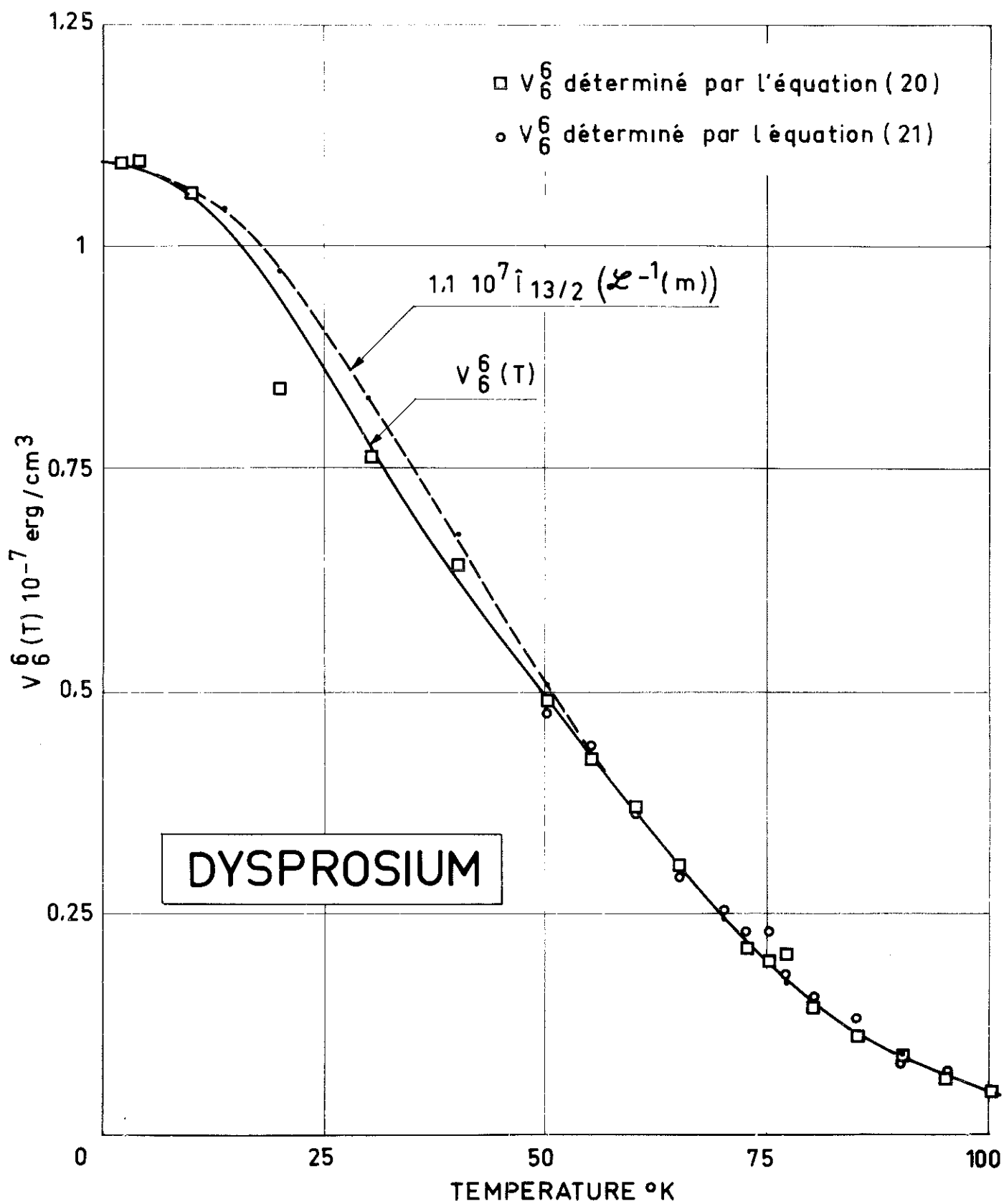


Figure 40 : Variation thermique de V_6^6 du dysprosium

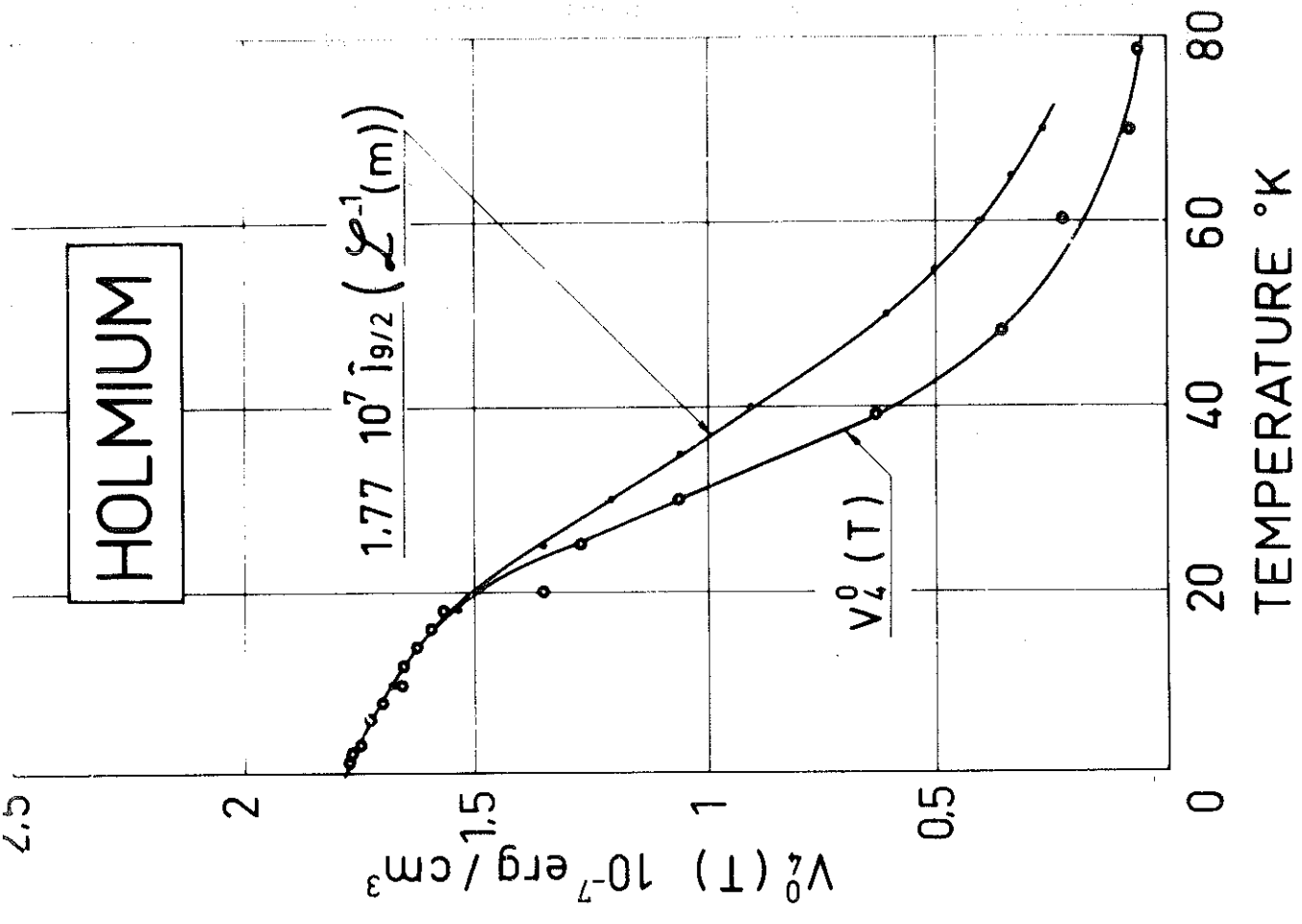
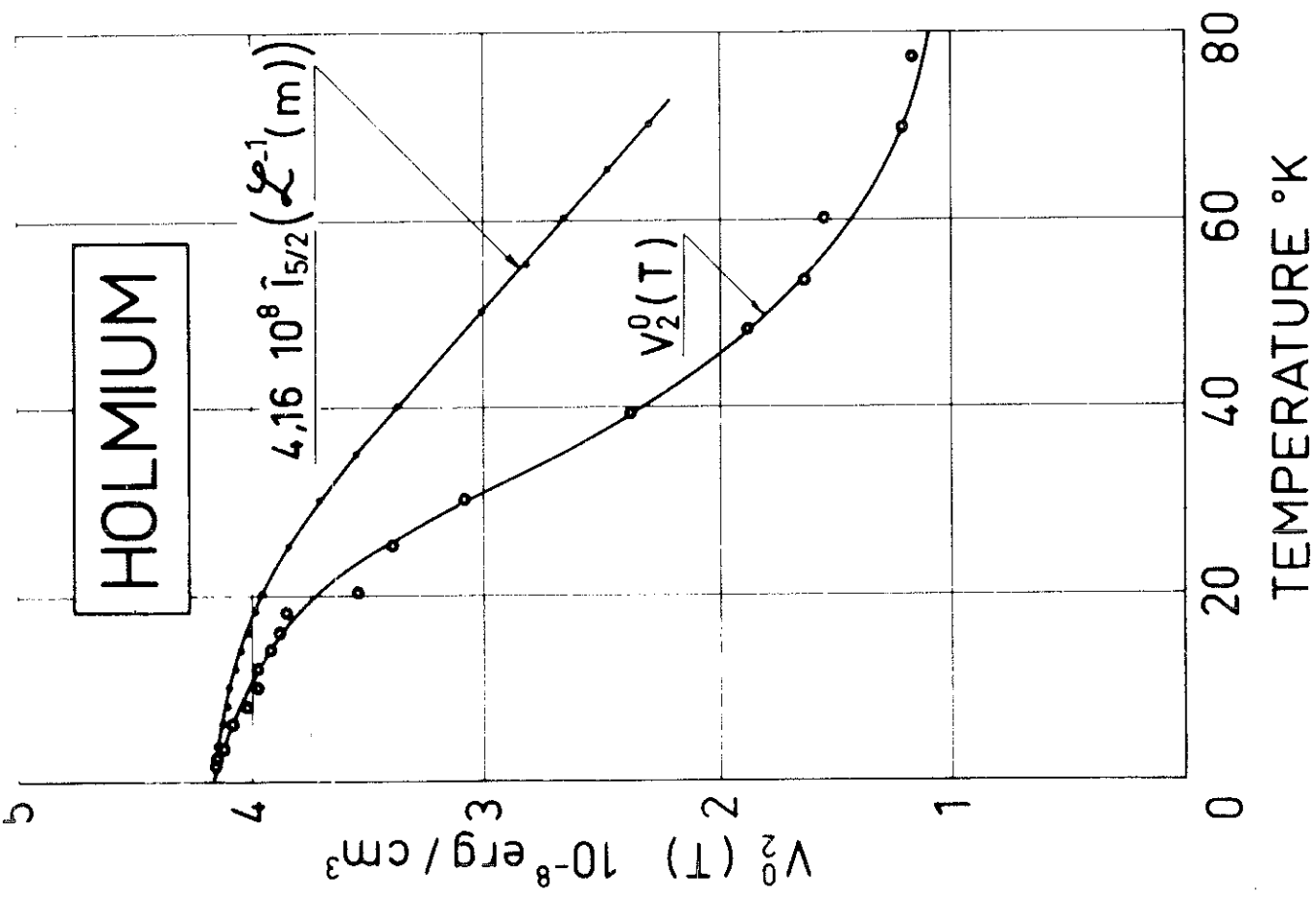


Figure 41 : Variation thermique de V_2^0 et V_4^0 de l'holmium

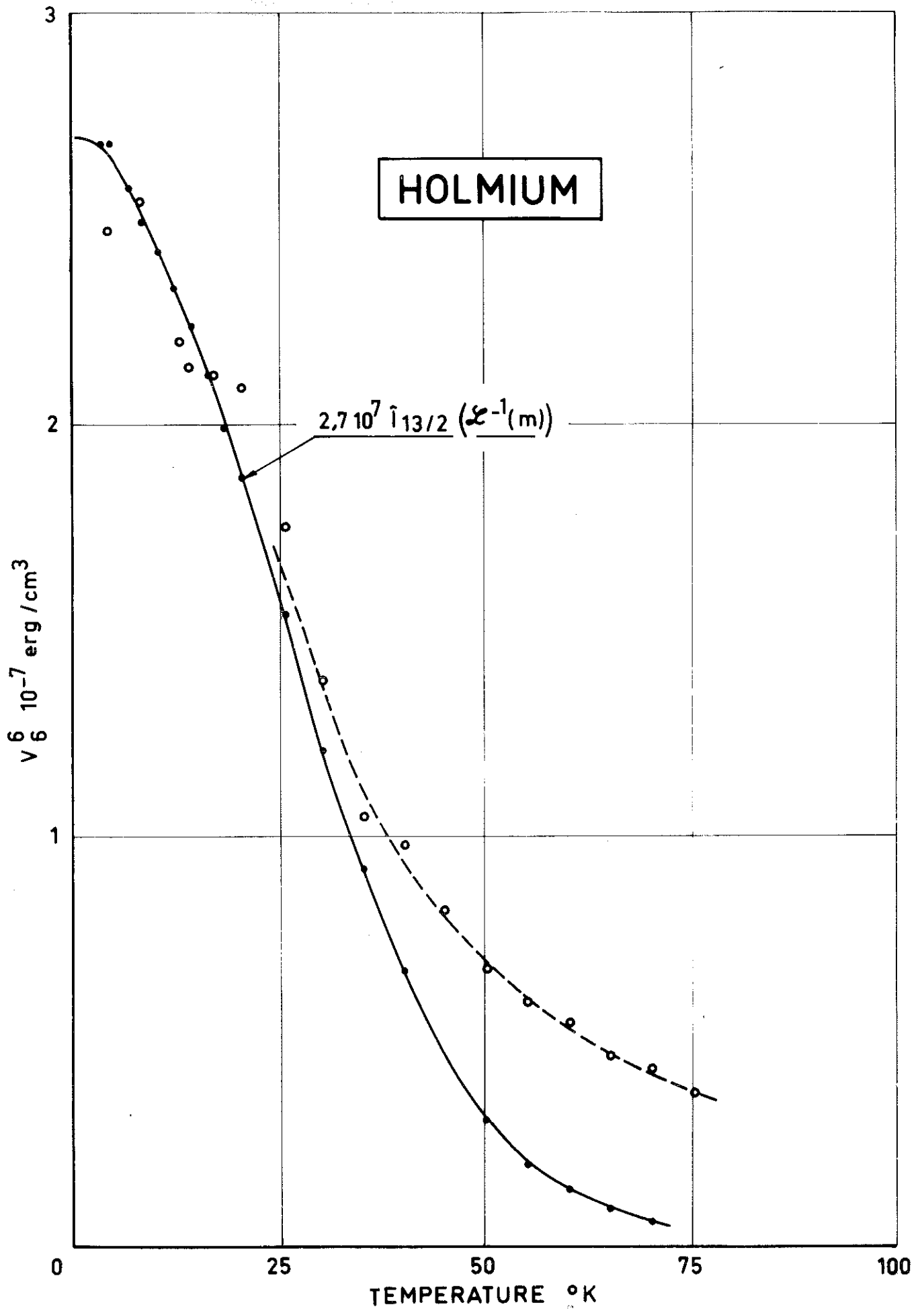


Figure 12 - Variation thermique de V_6 de l'holmium

d - terbium

Nous avons représenté sur la figure 37, les variations thermiques expérimentales des coefficients V_2^0 et V_4^0 du terbium, ainsi que les variations théoriques $V_2^0 \hat{I}_{5/2}$ et $V_4^0 \hat{I}_{9/2}$ de ces mêmes coefficients. Pour les températures supérieures à 50°K, il existe un écart systématique entre les déterminations théoriques et expérimentales de $V_2^0(T)$.

Le coefficient V_6^6 du terbium a été déterminé à toutes les températures soit à partir de l'équation (20) soit à partir des valeurs du champ H_b (équation 21). Sur la figure 38 nous avons porté les valeurs expérimentales de V_6^6 ainsi que la variation théorique $V_6^6(0^\circ K) \hat{I}_{13/2}$. L'accord est médiocre entre l'expérience et cette loi théorique.

4 - Influence de la magnétostriction

a - influence de la magnétostriction lorsque le champ est appliqué dans le plan de base

Un meilleur accord entre la variation thermique expérimentale de V_6^6 et la loi déduite du modèle à un ion est obtenu en tenant compte des effets de magnétostriction. Ceci est particulièrement sensible pour le terbium.

Pour les trois éléments étudiés (terbium, dysprosium et holmium), la valeur élevée de l'anisotropie uniaxiale impose que les moments soient localisés dans le plan de base; la détermination de V_6^6 nécessite que le champ extérieur soit appliqué dans le plan de base où l'effet de la magnétostriction n'est pas négligeable. Avec Callen et Callen⁽⁵⁸⁾ nous repérons le cristal par trois axes orthogonaux, l'axe 1 étant suivant l'axe a et l'axe 3 suivant l'axe c . Quand l'aimantation est dans une direction de cosinus directeurs :

$\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3 = 0$, il apparaît dans la direction ($\beta_1, \beta_2, \beta_3 = 0$) une déformation du cristal $\frac{\Delta l}{l}$ qui a pour expression :

$$\left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{\beta_1, \beta_2} = A \left[2\alpha_1 \alpha_2 \beta_1 + (\alpha_1^2 - \alpha_2^2) \beta_2 \right]^2 + \frac{\lambda^\gamma}{2} \left[(\alpha_1 \beta_1 + \alpha_2 \beta_2)^2 - (\alpha_1 \beta_2 - \alpha_2 \beta_1)^2 \right] + D \quad (31)$$

A, λ^γ et D sont les coefficients de magnétostriction.

L'énergie E_{ms} de magnétostriction est l'énergie totale dépendant des déformations; elle comprend deux termes : E_e la contribution élastique et E_m la contribution magnéto-élastique. L'énergie de magnétostriction dans le plan de base $E_{ms(\text{base})}$ est la somme de deux termes, l'un de symétrie cylindrique $E_{ms \text{ cyl}} = -\frac{1}{8} [c^\gamma (\lambda^\gamma)^2]$, l'autre de symétrie hexagonale $E_{ms \text{ hex}} = \frac{1}{4} c^\gamma \lambda^\gamma A \cos 6\phi$; ϕ est l'angle entre le vecteur aimantation et l'axe a ; $c^\gamma/2$ est la différence $c_{11} - c_{12}$ des modules élastiques. Le coefficient λ^γ représente la distorsion de la symétrie circulaire du plan de base quand la direction de l'aimantation varie dans ce plan; λ^γ est associé aux effets magnétostrictifs du premier ordre. En revanche, A est associé aux effets magnétostrictifs du second ordre.

Dans l'équation (20), pour tenir compte des effets magnétostrictifs, nous remplaçons l'énergie d'anisotropie du cristal non déformé $V_6^6(T)$ par la somme $L_6(T) = V_6^6(T) + \frac{1}{4} c^\gamma \lambda^\gamma A$. Les valeurs de c^γ à 300°K ont été déterminées pour le dysprosium et le gadolinium par Fisher et Dever^(59a). Nous estimons la valeur de c^γ du terbium par extrapolation; nous supposons en outre que c^γ ne varie pas avec la température.

Pour le terbium c^Y vaut $0,89 \cdot 10^{12} \text{ erg/cm}^3$. Rhyne et Legvold⁽⁶⁰⁾ ont mesuré les coefficients λ^Y et A à toutes les températures à l'aide de jauges de contrainte. La variation thermique de λ^Y suit la loi $\lambda^Y(T) = \lambda^Y(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{5/2}$; celle de A suit la loi $A(T) = A(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{9/2}$; ces variations sont en accord avec les prédictions théoriques de Callen et Callen⁽⁵⁸⁾. La variation théorique de $L_6(T)$ est donnée par la relation suivante :

$$L_6(T) = V_6^6(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{13/2} + \frac{1}{4} c^Y \lambda^Y(0^\circ\text{K}) A(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{5/2} \hat{I}_{9/2}. \quad (32)$$

Nous constatons sur la figure 38 que la loi en $\hat{I}_{5/2} \hat{I}_{9/2}$ rend mieux compte de la variation expérimentale que la loi en $\hat{I}_{13/2}$. La contribution des termes magnétostrictifs de symétrie hexagonale à l'énergie totale d'anisotropie est certainement prépondérante dans le terbium par rapport à la contribution de l'anisotropie magnétocristalline du cristal non déformé⁽⁶¹⁾. Ce fait est confirmé par la valeur de $\frac{1}{4} c^Y \lambda^Y A$ à 0°K : $3,2 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$ (60).

Pour le dysprosium nous ne connaissons pas la valeur expérimentale de $E_{ms \text{ hex}}$; en effet seule la valeur de λ^Y a pu être déterminée ($\lambda^Y(0^\circ\text{K}) = 8,4 \cdot 10^{-3}$); elle est du même ordre de grandeur que $\lambda^Y(0^\circ\text{K})$ pour le terbium^(62,63,64). En supposant que $E_{ms \text{ hex}}$ à 0°K ait la même valeur pour le dysprosium et le terbium ($3,2 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$), nous pouvons penser que $E_{ms \text{ hex}}$ contribue faiblement à l'énergie totale d'anisotropie de symétrie hexagonale à 0°K ($11 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$). Cela explique pour cet élément le bon accord entre l'expérience et la loi $V_6^6(T) = V_6^6(0^\circ\text{K}) \hat{I}_{13/2}$ (figure 40).

Pour l'holmium, nous ne connaissons pas la valeur de $E_{ms \text{ hex}}$. Ce qui a été dit pour le dysprosium ci-dessus est encore plus valable pour l'holmium; en effet l'énergie totale d'anisotropie de symétrie hexagonale à 0°K de l'holmium vaut $27 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$.

b - influence de la magnétostriction lorsque le champ est hors du plan de base

Pour établir l'équation (22) nous avons minimisé par rapport à l'angle θ , la somme des énergies dans le champ extérieur et du champ démagnétisant, E_H , et d'anisotropie du cristal non déformé, E_{cc} . Nous ajouterons un quatrième terme, représentant l'énergie de magnétostriction E_{ms} , somme de l'énergie élastique E_e et de l'énergie d'interaction magnétoélastique E_m , qui rend compte du couplage des spins aux déformations du cristal.

Nous suivrons le traitement général de la magnétostriction de Callen et Callen⁽⁵⁸⁾; nous ne tiendrons compte que des effets magnétoélastiques du premier ordre.

Les déformations ϵ_{ij} appropriées à la symétrie hexagonale s'expriment en fonction des déformations usuelles rapportées à des axes orthogonaux définis plus haut par les relations suivantes :

$$\begin{aligned} \epsilon^{\alpha 1} &= \epsilon_{11} + \epsilon_{22} + \epsilon_{33} & \epsilon_1^{\gamma} &= \frac{1}{2}(\epsilon_{11} - \epsilon_{22}) & \epsilon_1^{\epsilon} &= \epsilon_{23} \\ \epsilon^{\alpha 2} &= \frac{1}{3} [2\epsilon_{33} - \epsilon_{11} - \epsilon_{22}] & \epsilon_2^{\gamma} &= \epsilon_{12} & \epsilon_2^{\epsilon} &= \epsilon_{31} \end{aligned} \quad (33)$$

Nous rappelons la définition des déformations usuelles. Si $\vec{\rho}$ est le déplacement d'un point par rapport à sa position d'équilibre, la déformation ϵ_{ij} a pour expression :

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left[\frac{\partial \rho_i}{\partial r_j} + \frac{\partial \rho_j}{\partial r_i} \right] \quad \text{avec } (i, j = 1, 2, 3).$$

L'énergie élastique a pour expression :

$$E_e = \frac{1}{2} c_1^\alpha (\epsilon^{\alpha 1})^2 + \frac{1}{2} c_2^\alpha (\epsilon^{\alpha 2})^2 + c_{12}^\alpha \epsilon^{\alpha 1} \epsilon^{\alpha 2} \quad (35)$$

$$+ \frac{1}{2} c^\gamma \left[(\epsilon_1^\gamma)^2 + (\epsilon_2^\gamma)^2 \right] + \frac{1}{2} c^\epsilon \left[(\epsilon_1^\epsilon)^2 + (\epsilon_2^\epsilon)^2 \right]$$

Les coefficients élastiques utilisés ci-dessus sont reliés aux modules élastiques classiques par :

$$c_1^\alpha = \frac{1}{9} (2c_{11} + 2c_{12} + 4c_{13} + c_{33}) \quad c^\gamma = 2(c_{11} - c_{12})$$

$$c_2^\alpha = \frac{1}{2} (c_{11} + c_{12} - 4c_{13} + 2c_{33}) \quad c^\epsilon = 4c_{44}$$

$$c_{12}^\alpha = \frac{1}{3} (-c_{11} - c_{12} + c_{13} + c_{33}) \quad (36)$$

L'énergie magnétoélastique E_m est de la forme :

$$- E_m = B_1^{\alpha 0} \epsilon^{\alpha 1} + B_2^{\alpha 0} \epsilon^{\alpha 2} + B_1^{\alpha 2} \epsilon^{\alpha 1} (\alpha_3^2 - \frac{1}{3})$$

$$+ B_2^{\alpha 2} \epsilon^{\alpha 2} (\alpha_3^2 - \frac{1}{3}) + B^{\gamma 2} \epsilon_1^\gamma \frac{1}{2} (\alpha_1^2 - \alpha_2^2) + B^{\gamma 2} \epsilon_2^\gamma \alpha_2 \alpha_2$$

$$+ B^{\epsilon 2} \epsilon_1^\epsilon \alpha_2 \alpha_3 + B^{\epsilon 2} \epsilon_2^\epsilon \alpha_1 \alpha_3 \quad (37)$$

Les constantes $B_n^{\mu 1}$ sont liées aux coefficients de magnétostriction phénoménologiques; en particulier si on ne tient compte que des termes magnétoélastiques à un ion, on a

$$B^{\gamma 2} = c^\gamma \lambda^\gamma \quad \text{et} \quad B^{\epsilon 2} = c^\epsilon \lambda^\epsilon .$$

Les valeurs des déformations à l'équilibre pour une aimantation donnée sont obtenues en minimisant l'énergie totale dépendant des déformations $E_{ms} = E_e + E_m$ par rapport à chacune des déformations :

$$\epsilon^{\alpha 1} = \lambda_{11}^{\alpha} + \lambda_{12}^{\alpha} \frac{\sqrt{3}}{2} (\alpha_3^2 - \frac{1}{3}) \quad \epsilon_1^{\gamma} = \frac{\lambda^{\gamma}}{2} [\alpha_1^2 - \alpha_2^2] \quad \epsilon_1^{\epsilon} = \lambda^{\epsilon} \alpha_2 \alpha_3$$

$$\epsilon^{\alpha 2} = \lambda_{21}^{\alpha} + \lambda_{22}^{\alpha} \frac{\sqrt{3}}{2} (\alpha_3^2 - \frac{1}{3}) \quad \epsilon_2^{\gamma} = \lambda^{\gamma} \alpha_1 \alpha_2 \quad \epsilon_2^{\epsilon} = \lambda^{\epsilon} \alpha_1 \alpha_3$$

(38)

Examinons la contribution magnétostrictive à la première constante d'anisotropie K_1' . L'énergie d'anisotropie E_{cc} due au champ cristallin du cristal non déformé dépend explicitement de θ sous la forme $\cos^2 \theta [3/2 V_2^0 - 15/4 V_4^0]$, θ est l'angle entre le vecteur aimantation et l'axe c . Seul le terme E_m dans l'énergie de magnétostriction E_{ms} dépend explicitement de θ . Minimisons l'énergie totale $E = E_H + E_{cc} + E_{ms}$ par rapport à θ .

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = \frac{\partial E_H}{\partial \theta} + \frac{\partial E_{cc}}{\partial \theta} + \frac{\partial E_m}{\partial \theta} + \frac{\partial E_e}{\partial \theta};$$

$$\frac{\partial E_e}{\partial \theta} = 0;$$

$$\frac{\partial E_{cc}}{\partial \theta} = 2 \sin \theta \cos \theta \left[\frac{3}{2} V_2^0 - \frac{15}{4} V_4^0 \right];$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_m}{\partial \theta} = 2 \sin \theta \cos \theta & \left[B_1^{\alpha 2} (\lambda_{11}^{\alpha} - \frac{\lambda_{12}^{\alpha}}{2\sqrt{3}}) + B_2^{\alpha 2} (\lambda_{21}^{\alpha} - \frac{\lambda_{22}^{\alpha}}{2\sqrt{3}}) \right. \\ & \left. + \frac{\sqrt{3}}{2} \cos^2 \theta (B_1^{\alpha 2} \lambda_{12}^{\alpha} + B_1^{\alpha 2} \lambda_{22}^{\alpha}) \right] \\ & + \sin \theta \cos \theta c^{\epsilon} (\lambda^{\epsilon})^2 (1 - \cos^2 \theta); \end{aligned}$$

K_1^i est le facteur de $2 \sin \theta \cos \theta$ dans l'expression de $\frac{\partial E}{\partial \theta}$

$$K_1^i = \frac{3}{2} V_2^0 - \frac{5}{4} V_4^0 + B + \frac{c^E}{2} (\lambda^E)^2 \quad (40)$$

$$\text{avec } B = B_1^{\alpha 2} \left(\lambda_{11}^\alpha - \frac{\lambda_{12}^\alpha}{2\sqrt{3}} \right) + B_2^{\alpha 2} \left(\lambda_{21}^\alpha - \frac{\lambda_{22}^\alpha}{2\sqrt{3}} \right)$$

B provient des termes qui ne dépendent pas de θ , des déformations $\epsilon^{\alpha 1}$, $\epsilon^{\alpha 2}$. Ces termes correspondent à l'anomalie de longueur magnétique en champ nul. V_2^0 et V_4^0 dépendent des paramètres cristallins c et a du cristal non déformé. On peut remplacer $\frac{3}{2} V_2^0 - \frac{5}{4} V_4^0 + B$ par $\frac{3}{2} V_2^{i0} - \frac{5}{4} V_4^{i0}$, V_2^{i0} et V_4^{i0} étant calculés avec les valeurs réelles à champ nul des paramètres c et a (23b).

En revanche $c^E (\lambda^E)^2$ provient des déformations ϵ_1^E , ϵ_2^E qui dépendent de l'angle θ et par suite de la valeur du champ. On ne peut pas inclure $c^E (\lambda^E)^2$ dans V_2^0 par le biais des anomalies magnétiques de longueur à champ nul. $c^E (\lambda^E)^2$ contrairement à B intervient explicitement dans la valeur K_1^i .

Sur la figure 43 nous avons représenté les quatre modes possibles de magnétostriction; ils correspondent aux trois représentations irréductibles du système hexagonal repérées par les lettres α , γ , ϵ . Nous voyons que seul le quatrième mode (ϵ) peut contribuer en première approximation à l'anisotropie.

Nous n'avons pas d'informations expérimentales dans le domaine magnétique ordonné sur le terme λ^E . P. de V. Du Plessis a mesuré λ^E pour le terbium dans le domaine paramagnétique (74). La variation thermique expérimentale est en accord avec la loi théorique en $\hat{I}_{5/2}$. On peut extrapoler les valeurs

expérimentales de λ^ϵ à 0°K ; $\lambda^\epsilon(0^\circ\text{K})$ ainsi obtenu vaut $20 \cdot 10^{-3}$, c^ϵ vaut $0,8 \cdot 10^{12} \text{ erg/cm}^3$; le terme $c^\epsilon (\lambda^\epsilon)^2$ à 0°K aurait pour valeur $4 \cdot 10^8 \text{ erg/cm}^3$. Ceci est loin d'être négligeable devant les valeurs de $V_2^0(0^\circ\text{K})$.

Nous noterons enfin que la variation thermique théorique de $c^\epsilon (\lambda^\epsilon)^2$ est une loi en $(\hat{I}_{5/2})^2$ différente de la loi en $\hat{I}_{5/2}$ pour V_2^0 . La magnétostriction pourrait peut être expliquer les écarts constatés entre nos variations expérimentales et les lois prédites par le modèle à un ion.

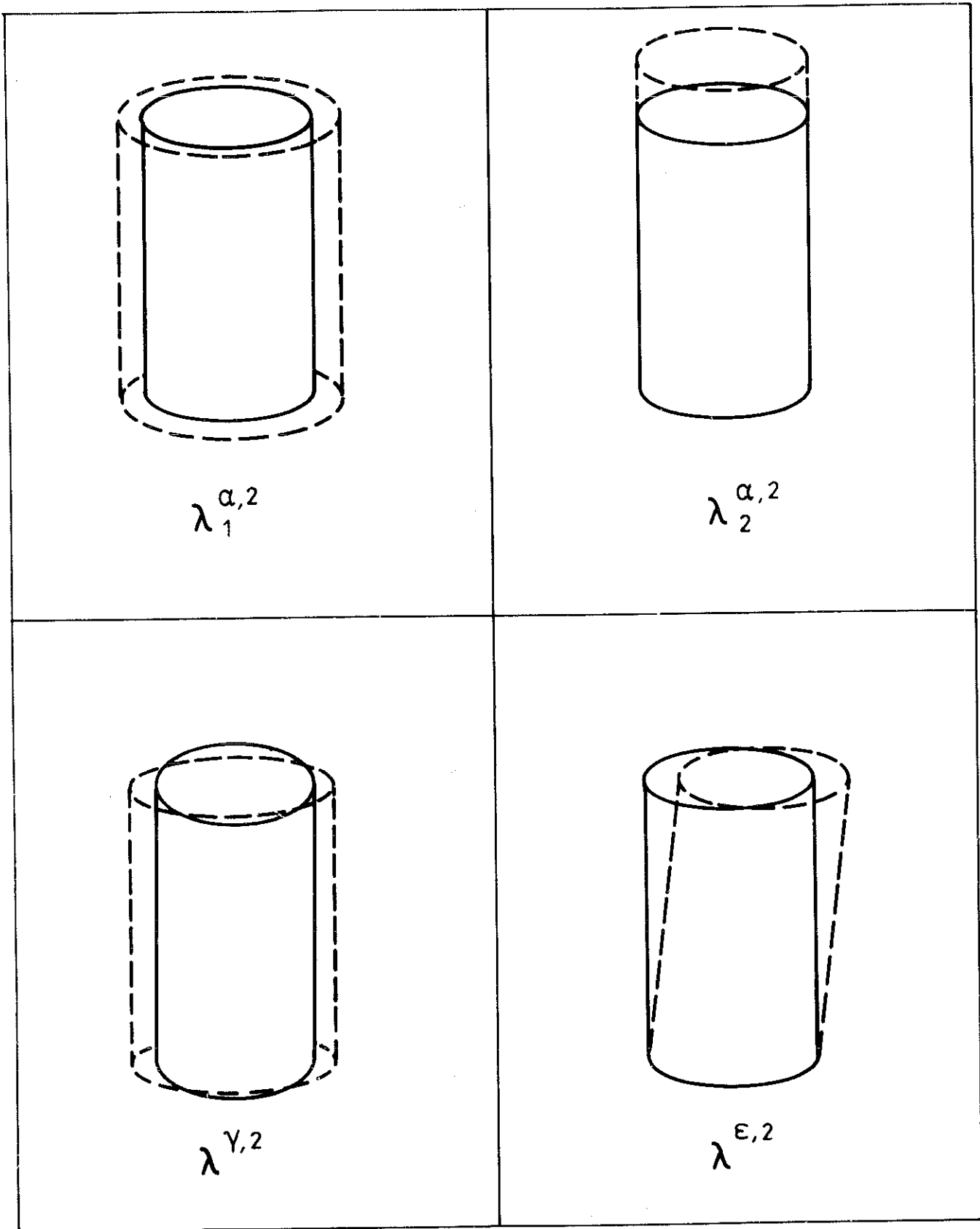


Figure 43 : Différents modes de magnétostriction pour la symétrie hexagonale

C H A P I T R E V

PHENOMENES MAGNETOELASTIQUES LIES AUX TRANSITIONS

ANTIFERRO - FERROMAGNETIQUES

1 - Détermination des coefficients d'échange

a - énergie dans l'état hélimagnétique

Nous avons vu (chapitre I!) que l'interaction d'échange entre deux spins \vec{S}_n et \vec{S}_m localisés respectivement en \vec{R}_n et \vec{R}_m , avait en première approximation la forme simple d'un couplage d'Heisenberg :

$$E_{mn} = - J(\vec{R}_m - \vec{R}_n) \vec{S}_m \cdot \vec{S}_n \quad (41)$$

L'énergie d'échange par cm^3 de substance a pour expression (65)

$$E_m = - NJ(q) m^2 S^2 \quad (42)$$

N est le nombre d'atomes par cm^3 ; $m = \frac{M_s(T)}{M_{so}}$ est l'aimantation relative; S est le module du spin de la substance; J(q) est la transformée de Fourier de $J(\vec{R}_m - \vec{R}_n)$:

$$J(q) = \sum_{n,m} J(\vec{R}_n - \vec{R}_m) \cos \left[\vec{q} \cdot (\vec{R}_n - \vec{R}_m) \right] \quad (43)$$

La formule (42) est valable pour l'ordre magnétique hélicoïdal. Ce dernier type d'ordre existe pour le terbium entre 220°K et T_N , pour le dysprosium entre 89°K et T_N et pour l'holmium entre 20°K et T_N . Le vecteur \vec{q} est alors parallèle à l'axe c du cristal et son module définit le pas de l'hélice. Les moments magnétiques, dans les plans perpendiculaires à l'axe c, sont parallèles entre eux. Nous pouvons sommer les

interactions magnétiques dans chaque plan n , ce qui conduit à l'expression suivante pour l'énergie magnétique :

$$E_m = - \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2} 2A_n (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_{i+n}) \text{ avec } A_n = \sum_i J(\vec{R}_i - \vec{R}_{i+n}) \quad (44)$$

Dans toute la suite, nous limiterons la somme précédente à $n = 2$ c'est-à-dire aux plans premiers et seconds voisins :

$$J(q) = A_0 + 2A_1 \cos \alpha + 2A_2 \cos 2\alpha \quad (45)$$

$$\text{avec } \alpha = \frac{qc}{2}.$$

La valeur à l'équilibre de q et par suite celle de l'angle α entre les moments de deux plans successifs en absence de champ extérieur est déterminée par la condition d'équilibre $\frac{\partial J(q)}{\partial q} = 0$, soit

$$\cos \frac{qc}{2} = \cos \alpha = - \frac{A_1}{4A_2}. \quad (46)$$

L'énergie totale dans l'état héli magnétique est la somme de l'énergie d'échange et de l'énergie élastique E_e . L'énergie d'anisotropie et l'énergie de magnétostriction dans le plan de base ont en effet dans cet état une valeur moyenne nulle,

$$E_{\text{Héli}} = - N m^2 s^2 \left[A_0 + 2A_1 \cos \alpha + 2A_2 \cos 2\alpha \right] + E_e \quad (47)$$

b - énergie dans l'état ferromagnétique

Expérimentalement un faible champ extérieur (inférieur à 25 kOe) est suffisant pour transformer l'ordre héli magnétique en un ordre ferromagnétique. Supposons que le champ soit appliqué parallèlement au plan de base et selon une direction de facile aimantation de ce plan. L'énergie totale

E_F dans l'état ferromagnétique est la somme de l'énergie d'échange, de l'énergie dans le champ extérieur, de l'énergie élastique E'_e , de l'énergie d'anisotropie $E_{anis} = -V_6^6(T)$ et de l'énergie magnétostrictive basale $E_{msb} = -\frac{1}{8}c^{\gamma} (\lambda^{\gamma})^2$ (cf. Chapitre IV 4-a)

$$E_{Ferro} = -N m^2 s^2 \left[A_0 + 2A_1^i + 2A_2^i \right] - m M_{so} d H + E_{anis} + E_{msb} + E'_e \quad (48)$$

La transition induite par le champ est accompagnée d'une augmentation $e'_{cc} = \frac{\Delta c}{c}$ du paramètre c . Les coefficients A_1 , A_2 et l'énergie élastique dépendent du paramètre c et sont par suite modifiés lors de la transition induite.

c - détermination expérimentale de A_0 , A_1 et A_2

Au voisinage immédiat de la température de Néel, les énergies d'anisotropie et de magnétostriction dans le plan de base sont nulles en première approximation. Il en est de même de e'_{cc} (équation 58). Quand le champ atteint la valeur H_c du champ critique on a l'égalité $E_{ferro} = E_{héli}$. Lorsque T tend vers T_N , cette égalité conduit à la relation

$$\frac{A_1}{k} = \frac{M_{so} d}{k N S^2} \left(\frac{H_c}{m} \right)_{T \rightarrow T_N} \frac{\cos \alpha_N}{(1 - \cos \alpha_N)^2} \quad (49)$$

α_N est la valeur de α pour $T = T_N$. Nous remarquons dans (49) que H_c tend vers zéro comme m quand T tend vers T_N . Expérimentalement nous avons déterminé le rapport $\frac{H_c}{m}$ à des températures comprises entre $T_N - 10^\circ K$ et T_N . α varie peu avec T pour des températures comprises dans l'intervalle ci-dessus.

D'autre part dans le modèle du champ moléculaire utilisé, la température de Curie paramagnétique moyenne a pour expression :

$$k T_{p_{moy}} = \frac{2}{3} (g - 1)^2 J(J + 1)(A_0 + 2A_1 + 2A_2) \quad (50)$$

A l'aide de la formule précédente et des 2 équations (46) et (49), nous avons calculé les valeurs de A_0 , A_1 , A_2 pour le terbium, le dysprosium et l'holmium (tableau 8), en utilisant nos valeurs expérimentales de $\left(\frac{H_c}{m}\right)_{T \rightarrow T_N}$, $T_{p_{moy}}$ et les valeurs de α_N de la littérature^(19,20,21).

2 - Susceptibilité Initiale

Dans le domaine hélimagnétique, un champ faible (inférieur à $H_c/3$) appliqué dans le plan de base déforme peu l'hélice formée par les moments. On montre que la susceptibilité initiale χ_{ini} des courbes d'aimantation est directement liée aux coefficients A_1 et A_2 par la relation (66).

$$\chi_{ini} = \frac{M}{H} = \frac{M_{so}^2}{S^2 [2J(q) - J(2q) - J(0)]} \quad (51)$$

Nous supposons que, dans tout le domaine hélimagnétique, A_1 et A_2 satisfont la relation $\cos \alpha = \frac{-A_1}{4A_2}$; en utilisant (45) on obtient :

$$A_2 = \frac{-M_{so}^2}{8S^2 \chi_{ini} (1 - \cos \alpha)(1 - \cos \alpha \cos 2\alpha)} \quad (52)$$

Pour le dysprosium et l'holmium, nous avons calculé A_2 en portant dans l'équation (52) les valeurs de α ^(20,21) et nos valeurs expérimentales de M_{so} et $\chi_{ini}(T)$. Nous constatons que pour l'holmium et le dysprosium A_2 est à peu près indépen-

dant de la température. Les valeurs de A_2 ainsi calculées (tableau 7) sont en bon accord avec celles déterminées au chapitre précédent (tableau 8). Pour le terbium nous n'avons pas pu obtenir la valeur de A_2 par cette méthode car le champ critique est très faible (au maximum 225 Oe) et par suite la mesure de χ_{in} est mal aisée.

3 - Anomalies magnétiques de longueur

a - expressions théoriques des anomalies de longueur

En champ faible, l'ordre hélimagnétique est peu perturbé; l'énergie libre G_{heli} par unité de volume peut s'écrire :

$$G_{heli} = E_e + NJ(q) m^2 s^2 - NkT \log \sum_{u=-J}^J \exp \frac{u}{kT} \left[g \mu_B H + 2J(q)(g - 1)S \right]; \quad (53)$$

L'énergie élastique E_e a pour expression

$$E_e = \frac{1}{2} c_{33} e_{cc}^2 + 2c_{13} e_{cc} e_{aa} + (c_{11} + c_{12}) e_{aa}^2 \quad (54)$$

La déformation e_{cc} s'identifie à l'augmentation du paramètre c par rapport à sa valeur c_0 à $0^\circ K$ en absence d'ordre magnétique : $e_{cc} = \frac{c - c_0}{c_0}$; il en est de même pour la déformation $e_{aa} = \frac{a - a_0}{a_0}$. Les coefficients e_{ij} sont les modules élastiques appropriés pour un cristal de symétrie hexagonale; ils ont été déterminés expérimentalement par Fisher et Dever⁽⁵⁹⁾ (cf. Chapitre IV, § 4-a).

Nous supposons qu'en première approximation $J(q)$ ne dépend que de q et des paramètres cristallins a et c . Développons $J(q, a, c)$ au premier ordre en fonction de e_{cc} et e_{aa} ; en tenant compte que $\frac{\partial J}{\partial q} = 0$ à l'équilibre, il vient :

$$J(q(a, c), a, c) = J(q(a_0, c_0), a_0, c_0) + \frac{\partial J}{\partial q} a_0 e_{aa} + \frac{\partial J}{\partial q} c_0 e_{cc} \quad (55)$$

Lee^(67,68) a proposé un modèle dit à une dimension où l'on suppose que l'énergie d'échange ne varie qu'avec le paramètre c ; en conséquence $\frac{\partial J}{\partial a} = 0$. Ce modèle permet de bien rendre compte de quelques propriétés magnétoélastiques des terres rares.

Afin d'évaluer la variation anormale $e_{cc}^{\text{héli}}$ en champ nul du paramètre c ; dans le domaine héli magnétique, nous minimisons l'énergie libre $G_{\text{héli}}$ par rapport à e_{cc} , e_{aa} et m :

$$e_{cc}^{\text{héli}} = \frac{2 N m^2 s^2}{c_{33} - 2c_{13}^2 / (c_{11} + c_{12})} \left[\frac{\partial A_1}{\partial \log c} \cos \alpha + \frac{\partial A_2}{\partial \log c} \cos 2\alpha \right] \quad (56)$$

Considérons maintenant l'état ferromagnétique induit par le champ extérieur. Nous devons tenir compte de l'énergie d'anisotropie $V_6^6(T)$ et de l'énergie de magnétostriction de symétrie cylindrique dans le plan de base. Nous supposons que l'on peut représenter les variations thermiques de ces deux termes respectivement par les deux expressions

$V_6^6(T) = V_6^6(0) M^{21}$ et $\lambda^Y(T) = \lambda^Y(0) M^3$; ceci constitue une bonne approximation surtout à basse température (cf. chapitre IV § 3). L'énergie libre G_{ferro} a pour expression

$$G_{\text{ferro}} = E_e + NJ(0) m^2 s^2 + \frac{1}{8} c^\gamma (\lambda_o^\gamma)^2 m^6 + V_6^6(0) m^{21} \\ - NkT \log \sum_{o=-j}^j \exp \frac{u}{kT} \left[g\mu_B \mu H + 2J(0)(g-1) S_m \right] \quad (57)$$

L'énergie d'échange est toujours très grande devant l'énergie d'anisotropie et de magnétostriction dans le plan de base; aussi nous n'avons pas introduit ces dernières dans l'expression de l'entropie.

Dans l'hypothèse du modèle à une dimension, en minimisant e_{ferro} par rapport à e_{cc} , e_{aa} et m , nous obtenons l'augmentation $e_{cc_{\text{ferro}}}$ du paramètre c dans l'état ferromagnétique par rapport à l'état non magnétique :

$$e_{cc_{\text{ferro}}} = \frac{2 N m^2 s^2}{c_{33} - 2c_{13}^2 / (c_{11} + c_{12})} \left[\frac{\partial A_1}{\partial \log c} + \frac{\partial A_2}{\partial \log c} \right] \quad (58) \\ \left[1 + \frac{3}{4} \frac{c^\gamma (\lambda_o^\gamma)^2}{4 N s^2 J(0)(g-1)} m^4 + \frac{21 V_6^6(0)}{N s^2 J(0)(g-1)} m^{19} \right]$$

Dans notre calcul, nous avons dissocié les modes de magnétostriction (α) et (γ) (figure 43). Le mode (ϵ) n'intervient pas car le champ est appliqué dans le plan de base. Nous avons évalué directement les déformations relatives au mode (α) de magnétostriction en minimisant la somme de l'énergie d'échange et de la partie relative au mode (α) de l'énergie élastique. Dans l'hypothèse du modèle à une dimension, on détermine directement la déformation e_{cc}^α ; on en déduit e_{aa}^α par des considérations purement élastiques; pour être complet il faudrait ajouter la contribution e_{aa}^γ du mode (γ). Expérimentalement, on a surtout des informations sur e_{cc} .

T A B L E A U 7

Holmium

Température	χ_{ini}	$- A_2/k$	$\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c}$	$\frac{\partial A_2/k}{\partial \log c}$
°K	10^{-6}uem/g	°K/atome	°K/atome	°K/atome
30,2	3634	15	232	
40,2	2985	16,4	217	45,2
50,3	2643	16,7	208	1
60,3	2290	17,6	204	28,3
70,4	2115	16,4	215	46
80,4	2012	15	211	54,5
90,6	1865	14,2	211	60,4
100,6	1810	13	227	30,2

Dysprosium

Température	χ_{ini}	$- A_2/k$
°K	10^{-6}uem/g	°K/atome
110,6	5150	12,6
120,7	4530	12,1
130,8	3480	12,5
140,8	3200	11
150,9	2910	9,7

b - comparaison avec l'expérienceb-1 - Holmium

Pour l'holmium, les valeurs expérimentales de $e_{cc\text{héll}}$ et $e_{cc\text{ferro}}$ ont été déterminées à l'aide de jauges de contrainte⁽⁶⁹⁾. On peut évaluer la dilatation thermique normale dans le domaine magnétique ordonné par extrapolation de la dilatation thermique dans le domaine paramagnétique. La connaissance de $e_{cc\text{héll}}$ et $e_{cc\text{ferro}}$ permet de résoudre le système des deux équations (56) et (58).

En utilisant nos valeurs expérimentales de m et de $V_6^6(T)$ ainsi que la valeur de $\lambda^Y(0^\circ\text{K})$ ⁽⁶⁹⁾ nous avons évalué $\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c}$ et $\frac{\partial A_2/k}{\partial \log c}$. En première approximation, ces grandeurs sont indépendantes de la température et valent respectivement 215°K et 40°K (tableau 7).

Les grandeurs $\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c}$ et $\frac{\partial A_2/k}{\partial \log c}$ peuvent être également évaluées au moyen de la variation de la température d'ordre avec la pression. Bartholin et Bloch ont montré expérimentalement que, pour le gadolinium, le terbium et le dysprosium, $\frac{\partial A_2/k}{\partial \log c}$ était petit devant $\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c}$ (24), fait qui semble être confirmé pour l'holmium, par les valeurs déterminées plus haut. Actuellement pour l'holmium, seules des mesures de $\frac{dT_N}{dp}$ sur des échantillons polycristallins ont été faites. En supposant que $\frac{\partial A_2/k}{\partial \log c} = 0^\circ\text{K}$, la valeur expérimentale de $\frac{dT_N}{dp}$ conduit à $\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c} = 146^\circ\text{K}$ ⁽⁷⁰⁾.

b-2 - Dysprosium

Pour le dysprosium, Darnell et al⁽⁷¹⁾ ont mesuré directement par rayons X, le paramètre c entre 4, 2°K et

300°K; en l'absence de champ. Ces mesures nous permettent de déterminer $e_{cc\text{héll}}$ entre 180°K et 89°K; la dilatation thermique normale a été évaluée de la même manière que pour l'holmium. A 89°K le dysprosium présente une transition hélimagnétique-ferromagnétique à champ nul (figure 22a), accompagnée d'une brusque augmentation du paramètre c. Nous connaissons ainsi $e_{cc\text{ferro}}$ à 89°K. Dans le domaine hélimagnétique, deux mesures seulement de $e_{cc\text{ferro}}$, par jauge de contrainte, ont été faites à 95°K et 100°K.

Par suite du manque d'information expérimentale sur $e_{cc\text{ferro}}$, nous avons préféré partir des valeurs de

$$\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c} = 75^\circ\text{K} \text{ et } \frac{\partial A_2/k}{\partial \log c} = 0^\circ\text{K} \text{ déterminées au moyen de } \frac{dT_N(24)}{dp}$$

pour évaluer $e_{cc\text{héll}}$ et $e_{cc\text{ferro}}$ à l'aide des deux équations (56) et (58). La variation thermique de $e_{cc\text{héll}}$ ainsi calculée est en bon accord avec les mesures par rayons X; en particulier à 89°K la valeur de $e_{cc\text{héll}}$ mesurée est de $4,76 \cdot 10^{-3}$ et celle calculée est $4,24 \cdot 10^{-3}$.

Nous avons utilisé nos valeurs expérimentales de $V_6^6(T)$ et la valeur $\lambda^Y(0) = 8,5 \cdot 10^{-3}$ (64) pour calculer $e_{cc\text{ferro}}$. A 89°K l'accord avec l'expérience est médiocre; en effet $(e_{cc\text{ferro}} - e_{cc\text{héll}})$ vaut expérimentalement $0,96 \cdot 10^{-3}$ tandis que la valeur calculée est égale à $0,75 \cdot 10^{-3}$.

b-3 - Terbium

Pour le terbium l'ordre hélimagnétique n'existe que dans une zone restreinte de températures entre 220°K et la température de Néel : 228°K. Il est difficile d'utiliser les valeurs expérimentales de $e_{cc\text{héll}}$, déterminées à l'aide de jauges de contrainte.

4 - Variation de l'angle d'hélimagnétisme avec la pression

En utilisant les techniques de diffraction neutronique, Shirane et autres⁽⁷²⁾ ont mesuré la variation de l'angle d'hélimagnétisme du terbium et de l'holmium avec la pression à la température de Néel. Plaçons-nous dans l'hypothèse du modèle à une dimension de Lee et dérivons les deux membres de la relation (46) par rapport au paramètre c ,

$$T = T_N \begin{cases} \frac{d \log \cos \alpha}{d \log c} = \frac{k}{A_1} \frac{d A_1/k}{d \log c} & (59) \\ \frac{d \log \cos \alpha}{d \log c} = \frac{\alpha \operatorname{tg} \alpha}{K_{//}} \frac{1}{\alpha} \frac{d \alpha}{d p} & (60) \end{cases}$$

p est la pression hydrostatique $K_{//} = -\frac{1}{c} \frac{dc}{dp}$ la compressibilité linéaire que l'on évalue à partir des coefficients élastiques c_{ij} ⁽⁵⁹⁾. $K_{//}$ vaut pour le terbium $0,835 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{erg}$ et pour l'holmium : $0,806 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{erg}$. Comme nous l'avons vu plus haut, on peut évaluer $\frac{d A_1/k}{d \log c}$ à partir de $\frac{dT_N}{dp}$. Connaissant $\left(\frac{1}{\alpha} \frac{d \alpha}{d p}\right)_{T=T_N}$, nous avons calculé A_1/k , pour le terbium : $24,5^\circ\text{K}$ et pour l'holmium : 84°K (tableau 8). Les valeurs de A_1/k ainsi déterminées sont du même ordre de grandeur que les valeurs déterminées à l'aide soit du champ critique (cf. chapitre V § 1) soit de la susceptibilité initiale (cf. chapitre V § 2).

5 - Variation thermique du champ critique H_c

a - expression théorique de la variation thermique de H_c

Afin de discuter de la transition induite par le champ, il faudrait comparer les énergies libres des deux états

Nous supposons avec Elliott⁽⁷³⁾ que m reste inchangée au cours de la transition et nous comparerons seulement les énergies de l'état héli magnétique (47) et de l'état ferromagnétique (48) quand le champ appliqué est égal au champ critique H_c . Cela permet de déterminer la variation thermique théorique de H_c :

$$H_c \frac{M_{so}^d}{m} = NS^2 A_1 \frac{(1 - \cos \alpha)^2}{\cos \alpha} + \frac{1}{m^2} \left[E_{anis} + E_{ms_b} + \Delta E_{éch} + \Delta E_{élast} \right] \quad (61)$$

Nous avons supposé que A_1 et A_2 étaient liés par la relation $\cos \alpha = \frac{A_1}{4 A_2}$. $\Delta E_{éch}$ et $\Delta E_{élast}$ sont respectivement les variations de l'énergie d'échange et de l'énergie élastique avec l'augmentation du paramètre c qui accompagne la transition.

$$\text{Posons } e_{cc_{ferro}} - e_{cc_{héli}} = e'_{cc} \text{ et}$$

$$\beta = c_{33} - \frac{2c_{13}^2}{(c_{11} + c_{12})},$$

$$\Delta E_{éch} = - 2N m^2 S^2 \left(\frac{\partial A_1}{\partial \log c} + \frac{\partial A_2}{\partial \log c} \right) e'_{cc} \quad (62)$$

$$\Delta E_{élast} = \frac{1}{2} \beta \left(e_{cc_{ferro}}^2 - e_{cc_{héli}}^2 \right) \quad (63)$$

Soit ΔE la somme $\Delta E_{éch} + \Delta E_{élast}$, en remplaçant $e_{cc_{ferro}}$ et $e_{cc_{héli}}$ par leurs expressions dans les relations (62) et (63) ΔE a en première approximation la forme simple

$$\Delta E = - \frac{1}{2} \beta (e'_{cc})^2. \quad (64)$$

Dans l'équation (61) le premier terme du membre de droite est largement prépondérant. Il est préférable de considérer la somme

$$\Delta = \frac{-1}{m^2} \left[E_{\text{ani}_b} + E_{\text{ms}_b} + \Delta E \right] \quad (65)$$

comme un terme correctif de la différence

$$\Delta U = N S^2 A_1 \frac{(1 - \cos \alpha)^2}{\cos \alpha} - H_c \frac{M_{\text{so}}^d}{m} . \quad (66)$$

Pour chaque température, nous avons calculé ΔU avec nos valeurs expérimentales de H_c et m , et les valeurs de α déterminées par Koehler et al^(19, 20, 21). Nous avons utilisé les valeurs de A_1 du tableau 8. Δ a été également évalué à partir des valeurs expérimentales.

b - variation de H_c pour le terbium

Pour le terbium, le domaine d'existence de l'ordre hélimagnétique est restreint (220°K - 228°K). A ces températures élevées l'anisotropie dans le plan de base est très faible ($V_6^6(220^\circ\text{K})$ de l'ordre de $5,9 \cdot 10^2 \text{ erg/cm}^3$). Nous avons évalué e'_{cc} à l'aide de (56) et (58) en prenant $\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c} = 75^\circ\text{K}$ et $\frac{\partial A_1/k}{\partial \log c} = 0^\circ\text{K}$. A 220°K e'_{cc} vaut $0,077 \cdot 10^{-3}$; l'énergie $\frac{1}{2} \beta (e'_{\text{cc}})^2$ correspondante vaut $0,0019 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$.

Par contre $\frac{1}{8} c \gamma \lambda \gamma^2$ à 220°K vaut $0,109 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$. Nous avons donc porté sur la figure 44, la variation de ΔU et celle de $\Delta = \frac{c \gamma \lambda \gamma^2}{8m^2}$ avec la température. L'accord est médiocre. Il faut remarquer que pour des températures si proches de la température d'ordre, le modèle du champ moléculaire que nous utilisons, n'est pas très approprié; nous ne pouvons en attendre que des ordres de grandeur.

TERBIUM

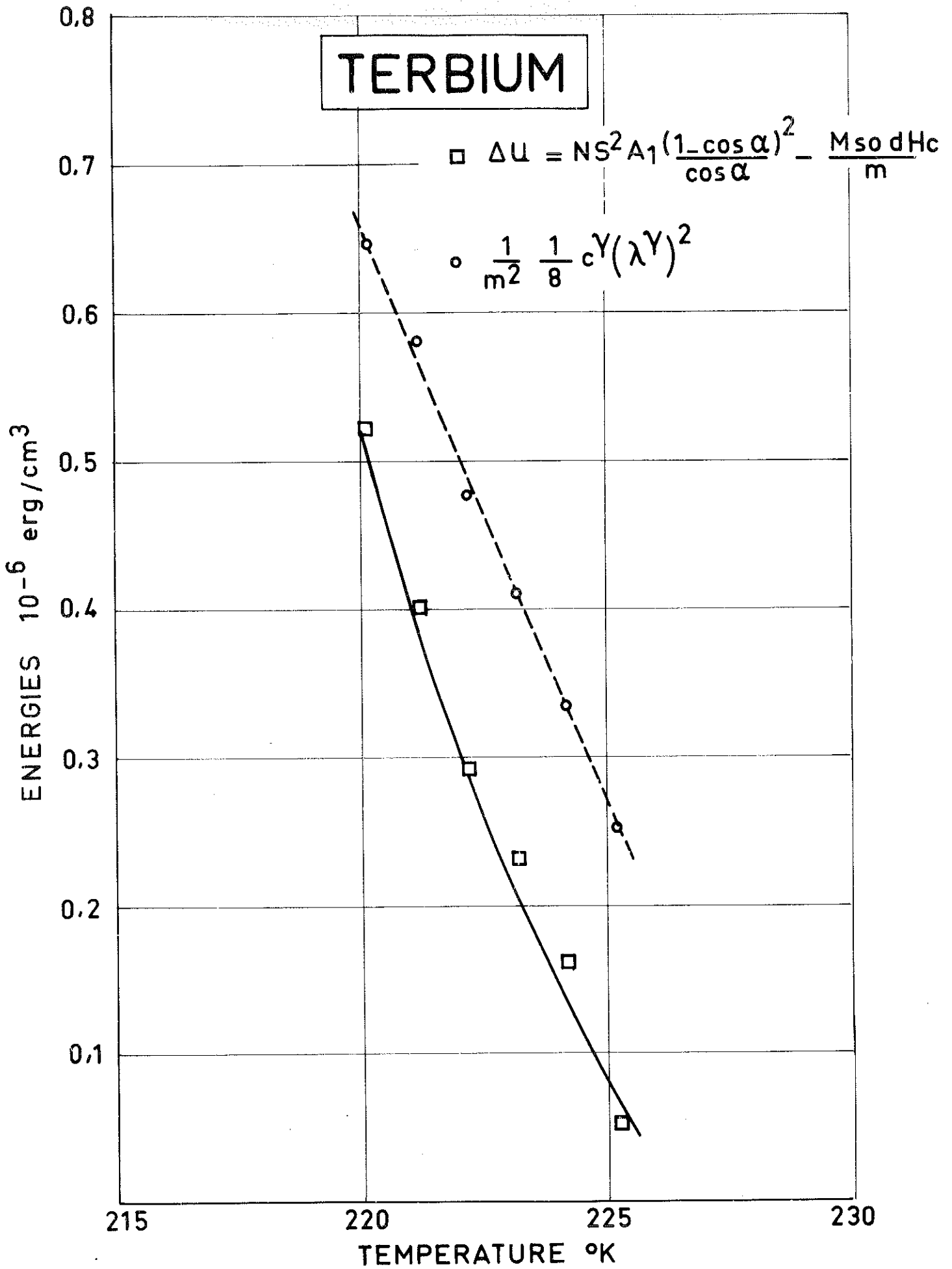


Figure 14 : Variation thermique de λ et ΔU du terbium

c - variation de H_c pour le dysprosium

Pour le dysprosium, l'ordre héli magnétique existe dans une large région de températures (89°K à 180°K). Nous avons tenu compte de tous les termes dans l'expression de Δ . Comme nous avons vu plus haut, nous avons calculé e'_{cc} à l'aide des formules (56) et (58).

Dans l'expression de Δ nous avons utilisé nos valeurs expérimentales de $V_6^6(0^\circ\text{K})$ et de m . Remarquons que l'influence de l'anisotropie V_6^6 dans Δ n'est sensible que pour les températures inférieures à 110°K. Sur la figure 45 nous avons tracé les variations thermiques de Δ et ΔU . Nous constatons que l'accord est très satisfaisant malgré certains écarts au-dessus de 160°K qui peuvent être attribués à la fois au manque de précision dans la détermination du champ critique et à la validité du modèle utilisé.

d - variation de H_c pour l'holmium

Pour l'holmium, nous avons restreint notre étude entre 20° et 130°K, car il apparaît au-dessous de 20°K une composante ferromagnétique le long de l'axe c . Nous connaissons expérimentalement tous les termes de Δ . Contrairement au dysprosium, le terme prépondérant est l'anisotropie dans le plan de base. Par exemple à 20°K, $V_6^6(20^\circ\text{K}) = 19,5 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$, $\frac{1}{8} c^{\gamma} (\lambda^{\gamma})^2 = 0,73 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$ et $\frac{1}{2} \beta (e'_{cc})^2 = 1,98 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$. sur la figure 46 nous avons tracé les variations de Δ et ΔU . Nous constatons le très bon accord pour les températures inférieures à 75°K. Nous n'avons pas calculé Δ au-dessus de 75°K car nous n'avons pu déterminer l'anisotropie basale au-dessus de cette température.

	Terbium	Dysprosium	Holmium	
A_0/k	12,3°K/at	- 10,5°K/at	36°K/at	calculé avec (50)
A_1/k	12,9°K/at	31,4°K/at	59°K/at	calculé avec (49)
A_2/k	- 3,46°K/at	- 10,5°K/at	-21,6°K/at	calculé avec (46)
A_2/k		- 12 °K/at	- 16°K/at	calculé avec (52)
$\frac{1}{\alpha} \frac{d\alpha}{dp}$	$20 \cdot 10^{-3} \text{ (kbar)}^{-1}$		$1,3 \cdot 10^{-3} \text{ (kbar)}^{-1}$	référence (72)
$\partial A_1/k \partial \log c$	75°K/at		146°K/at	références (24) et (70)
A_1/k	24,5°K/at		84°K/at	calculé avec (59) et (60)
$\partial A_1/k \partial \log c$	75°K/at	75 °K/at	146°K/at	calculé avec $\frac{dT}{dp}$
$\partial A_2/k \partial \log c$	0°K/at	0 °K/at	0°K/at	références (24) et (70)
$\partial A_1/k \partial \log c$			205°K/at	calculé avec (56) et (58)
$\partial A_2/k \partial \log c$			30°K/at	
$\Delta(T = T_c)$	$0,65 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$	$6,6 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$	$22 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$	Δ définie par (65)
$\Delta U(T = T_c)$	$0,51 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$	$7,6 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$	$22 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$	ΔU définie par (66)

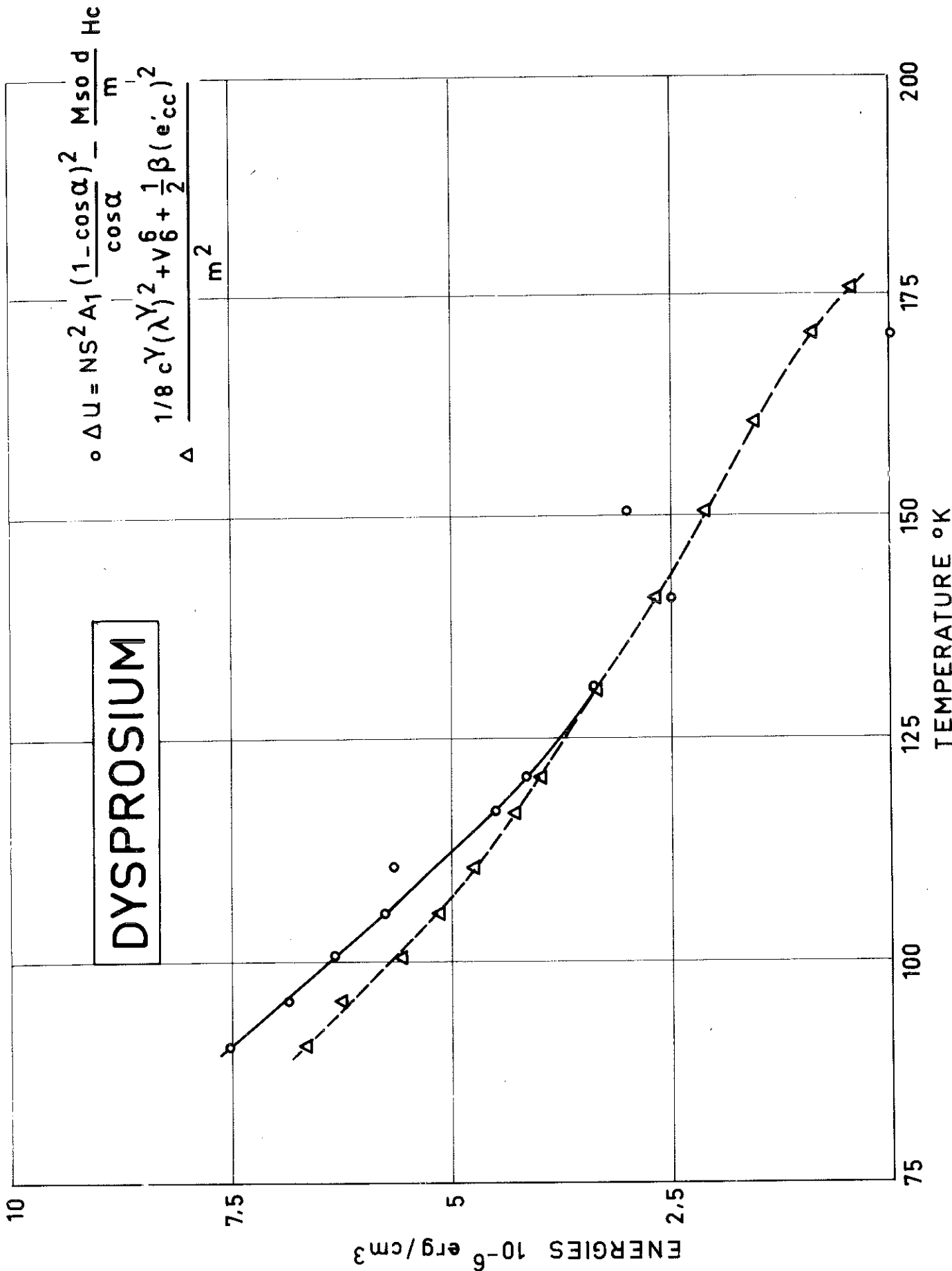


Figure 45 : Variation thermique de Δ et ΔU du dysprosium

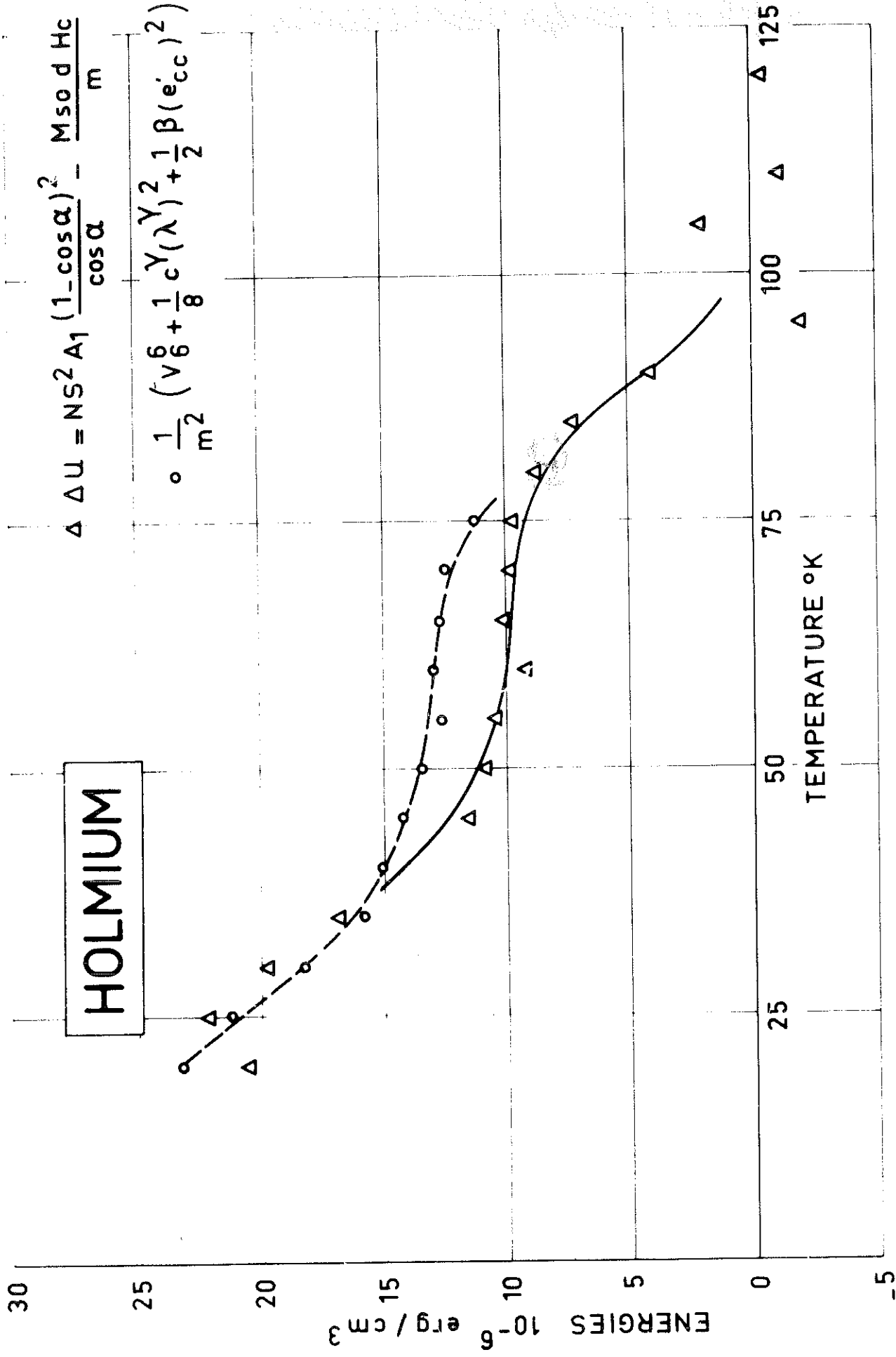


Figure 46 : Variation thermique de Δ et ΔU de l'holmium

e - Importance des différents termes dans les terres rares étudiées

En conclusion, nous avons rendu compte des variations thermiques du champ critique, à l'aide d'expressions faisant intervenir principalement la variation de l'énergie d'échange entre l'état héli magnétique et l'état ferromagnétique et de termes complémentaires comme : l'énergie d'anisotropie, de magnétostriction dans le plan de base et l'énergie élastique. Parmi les termes complémentaires, l'énergie de magnétostriction est prépondérante dans le terbium; l'énergie élastique et magnétostrictive le sont pour le dysprosium; quant à l'holmium la contribution la plus importante est due à l'énergie d'anisotropie.

C O N C L U S I O N

L'ensemble de nos résultats expérimentaux ont permis de préciser les processus d'aimantation des terres rares; ils sont en accord avec les résultats de diffraction neutronique en particulier pour l'holmium et l'erbium. On ne peut pas rendre compte de l'aimantation à saturation par la seule contribution des moments atomiques. L'excès d'aimantation est attribué à la polarisation des électrons de conduction sous l'effet de l'interaction d'échange entre leurs spins et ceux des électrons 4f. Un modèle simple nous a permis d'évaluer cette interaction qui est pratiquement indépendante de la terre rare considérée.

L'application de champs intenses a révélé la présence de termes superposés à l'état ferromagnétique; cependant la qualité de nos monocristaux n'est pas suffisante pour conclure sur l'origine de ces termes. Une étude systématique avec un appareillage plus précis sur des monocristaux de meilleure qualité, permettrait d'analyser le comportement sous champ de la bande de conduction.

Notre étude a mis en évidence l'importance de l'anisotropie dans ces métaux; il semble difficile de la déterminer de façon très précise par une méthode macroscopique à cause des contraintes nécessaires au maintien des échantillons en présence de champ. Le modèle à un ion décrit de façon à peu près satisfaisante la variation thermique des constantes d'anisotropie; ceci est dû au fait que les couches 4f sont très localisées.

Nous avons mis en évidence le rôle important que jouent les effets magnétostrictifs du premier et du second ordre, en particulier sur le terbium. Ces effets n'ont pas la même variation thermique que les effets du champ cristallin. Une meilleure détermination des constantes d'anisotropie en fonction de la température permettrait de distinguer l'importance relative de la magnétostriction et de l'anisotropie due au champ cristallin. Nous avons constaté d'autre part l'effet important de l'anisotropie sur la variation thermique de l'aimantation spontanée.

Nous avons mis en évidence le rôle important des énergies d'anisotropie et de magnétostriction dans le plan de base lors des transitions métamagnétiques. Les anomalies de longueur magnétiques en champ nul ou sous champ sont intimement liées à la variation de l'énergie d'échange avec les paramètres cristallins. En faisant des hypothèses simplificatrices sur cette variation, nous avons évalué, pour l'holmium, son ordre de grandeur qui est en accord avec d'autres déterminations expérimentales et également avec une estimation théorique faite par Tonegawa pour le modèle de Rudermann-Kittel. Une meilleure détermination expérimentale de cette variation permettrait de mieux connaître les mécanismes d'échange. Cela semble être possible en examinant l'effet d'une force appliquée suivant les axes de symétrie du cristal soit sur la température d'ordre soit sur les champs critiques.

B I B L I O G R A P H I E

- 1 - F. BITTER
The National Magnet Laboratory at the Massachusetts Institute of Technology, Brit. J. Appl. Phys., 14 (1963) 759.
- 2 - M. WOOD
The high field magnets at Oxford, Proceedings of the International Conference on high magnetic fields (1961, M.I.T. Press, New York, John Wiley).
- 3 - D. DE KLERK
The coil magnet installation of the Kamerlingh Onnes Laboratory, Proceedings of the International Conference on high magnetic fields (1961, M.I.T. Press, N.Y. John Wiley.)
- 4 - R. FLORENT
Les recherches sur la production des champs intenses au C.E.A.B.I.S.T., n° 77 (1963).
- 5 - R. BOISSIER, F. BRICHANT, J. GOYER, J. FOURNIER, R. RICQUE, J.L. FERON, R. PAUTHENET, J.C.PICOCHÉ
Les champs magnétiques intenses, leur production et leurs applications - Editions du C.N.R.S. Paris, 15, quai Anatole France, (1967) 83.
- 6 - B. TSAI
Rep. Int. Conf. Fund. Part and Low temp. Phys., Cambridge, (1947) vol II, 89.
- 7 - JM. DANIELS
Proc. Phys. Soc., B 66 (1953) 921.

- 8 - J. FOURNIER
Thèse d'Ingénieur-docteur, Université de Grenoble (1966).
- 9 - S. TIMOSHENKO
Elasticité, vol. II, 215.
- 10 - A.A. KUZNETZOW
J. Techn. Phys. U.S.S.R., 30 (1960) 592.
- 11 - P. WEISS
J. Phys. Rad., 4 (1905) 473.
- 12 - D. BLOCH, J.L. FERON, R. GEORGES, I.S. JACOBS
J. Appl. Phys., vol. 38, n° 3 (1967) 1474.
- 13a- G. AUBERT
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, (1966).
- 13b- H.F. STIMSON
Journal of Research of the N.B.S. 65A, (1961) 139.
- 14 - H.E. NIGH, S. LEGVOLD, F.H. SPEDDING
Phys. Rev., 132, (1963) 1092.
- 15 - D.E. HEGLAND, S. LEGVOLD, F.H. SPEDDING
Phys. Rev., 131 (1963) 158.
- 16 - D.R. BEHRENDT, S. LEGVOLD, F.H. SPEDDING
Phys. Rev. 109, (1958) 1544.
- 17 - D.L. STRANDBURG, S. LEGVOLD, F.H. SPEDDING
Phys. Rev., 127 (1962) 2046.
- 18 - R.W. GREEN, S. LEGVOLD, F.H. SPEDDING
Phys. Rev. 122, (1961) 827.
- 19 - W.C. KOEHLER, H.R. CHILD, E.O. WOLLAN, J.W. CABLE
J. Appl. Phys., 34, (1963) 1335.

- 20 - M.K. WILKINSON, W.C. KOEHLER, E.O. WOLLAN, J.W. CABLE
J. Appl. Phys. Suppl. to Vol. 32; (1961) 48S.
- 21 - W.C. KOEHLER, J.W. CABLE, M.K. WILKINSON, E.O. WOLLAN
Phys. Rev., 151 n° 2, (1966) 414.
- 22 - J.W. CABLE, E.O. WOLLAN, W.C. KOEHLER, M.K. WILKINSON
Phys. Rev., 140 N°6 A, (1965) 1896.
- 23a- R. ALEONARD, P. BOUTRON, D. BLOCH
(à paraître).
- 23b- P. BOUTRON
(à paraître).
- 24 - H. BARTHOLIN, D. BLOCH
J. Phys. Chem. Solids, 29, (1968) 1063.
- 25 - F. TROMBE
Ann. Phys. (N.Y.), 7, (1937) 383.
- 26 - C.D. GRAHAM
Final Report AFML TR, 65-253, (1965) 1.
- 27 - J.S. KOUVEL, M.E. FISCHER
Phys. Rev., 136 (1964) 1626.
- 28 - K.P. BELOV, Yu.V. ERGIN, R.Z. LEVITIN, A.V. PED'KO
Soviet. Phys. J.E.T.P., 20, (1965) 1397.
- 29 - W.D. CORNER, W.C. ROE, K.N.R. TAYLOR
Proc. Phys. Soc. (London), 80, (1962) 927.
- 30 - C.D. GRAHAM
J. Appl. Phys., 38, (1967) 1375.
- 31 - L. NEEL
J. Phys. Rad., 5, (1944) 241.

- 32 - L. NEEL
Colloque National du Magnétisme, Strasbourg (juillet 1957).
- 33 - F.J. DARNELL, E.P. MOORE
J. Appl. Phys., 34, (1963) 1337.
- 34 - C.D. GRAHAM
J. Phys. Soc. Japan, 17, (1962) 1310.
- 35 - J.W. CABLE, E.O. WOLLAN
Phys. Rev., 165, (1968) 733.
- 36 - F.J. DARNELL
Phys. Rev., 130, (1963) 1825.
- 37 - V.A. FINKEL, V.V. VOROB'EV
Soviet. Phys. J.E.T.P., 24, (1967) 524.
- 38 - W.C. KOEHLER, J.W. CABLE, H.R. CHILD, M.K. WILKINSON
E.O. WOLLAN
Phys. Rev., 158, (1967) 450.
- 39 - T. KASUYA
Magnetism IIB, Rado G.T. et Suhl H. Edit. Academic
Press, (N.Y., London) (1966).
- 40 - M.A. RUDERMANN, C. KITTEL,
Phys. Rev., 96, (1954) 99.
- 41 - K. YOSIDA
Phys. Rev., 106, (1957) 893.
- 42 - S.H. LIU
Phys. Rev., 123, (1961) 470.
- 43 - J.M. LOCK
Proc. Phys. Soc. (London), B70, (1957) 566.

- 44 - W.E. GARDNER, J. PENFOLD
Phil. Mag., 11, (1965) 549.
- 45 - W.E. GARDNER, J. PENFOLD, M.A. TAYLOR
Proc. Phys. Soc. (London), 85, (1965) 963.
- 46 - B.R. COOPER, R.W. REDINGTON
Phys. Rev. Letters, 14, (1965) 1066.
- 47 - C.C. SCHÜLER
Phys. Rev., 12, (1964) 84.
- 48 - R.E. WATSON, A.J. FREEMAN, J.P. DIMMOCK
Phys. Rev., 167, (1968) 497.
- 49 - O.V. LOUNASMAA
Phys. Rev., 133, (1964) A219; 126, (1962) 1352;
128, (1962) 1136; 129 (1963) 2460.
- 50 - O.V. LOUNASMAA, R.A. GUENTHER,
Phys. Rev., 126, (1962) 1357.
- 51 - O.V. LOUNASMAA, P.R. ROACH
Phys. Rev., 128, (1962) 622.
- 52 - J.P. REBOUILLAT
(à paraître).
- 53 - K. NIIRA
Phys. Rev., 117, (1960) 129.
- 54 - J.J. RHYNE, A.E. CLARK
J. Appl. Phys., 38, (1967) 1379.
- 55 - K.W.H. STEVENS
Proc. Phys. Soc., 65, (1952) 209.
- 56 - H.B. CALLEN, E. CALLEN
J. Phys. Chem. Solids, 27, (1966) 1271.

- 57 - H.B. CALLEN, S. STRIKMAN
Solid St. Commun., 3, (1965) 5.
- 58 - E. CALLEN, H.B. CALLEN
Phys. Rev., 139, (1965) 455.
- 59a- E.S. FISHER, D. DEVER
Trans. Met. Soc., AIME, 239 (1967) 48.
- 59b- M. ROSEN
Phys. Rev., 174 N°2, (1968) 504.
- 60 - J.J. RHYNE, S. LEGVOLD
Phys. Rev., 138, (1965) 507.
- 61 - B.R. COOPER
Phys. Rev., 169, (1968) 281.
- 62 - S. LEGVOLD, J. ALSTAD, J.J. RHYNE
Phys. Rev. Letters, 10, (1963) 509.
- 63 - F.J. DARNELL
Phys. Rev., 132, (1963) 128.
- 64 - A.E. CLARK, B.F. DE SAVAGE, R.M. BOZORTH
Phys. Rev., 138, (1965) 216.
- 65 - R.J. ELLIOTT
Magnetism IIA, G.T. Rado et H. Suhl, Edt. Academic Press
New York, (1965).
- 66 - T. NAGAMIYA, K. NAGATA, Y. KITANO
Prog. Theor. Phys., 27, (1962) 1253.
- 67 - E.W. LEE
Proc. Phys. Soc., 84, (1964) 693.

- 68 - R.G. JORDAN, E.W. LEE
Proc. Phys. Soc., 92, (1967) 1074.
- 69 - J.J. RHYNE, S. LEGVOLD, E.T. RODINE
Phys. Rev., 154, (1967) 266.
- 70 - D. BLOCH
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, (1965).
- 71 - F.J. DARNELL, E.P. MOORE
J. Appl. Phys., 34, (1963) 1337.
- 72 - H. UMEBAYASHI, G. SHIRANE, B.C. FRAZER, W.B. DANIELS
Phys. Rev., 165, (1968) 688.
- 73 - R.J. ELLIOTT
Phys. Rev., 124, (1961) 346.
- 74 - P. de V. DU PLESSIS
Phil. Mag., 18, (1968) 145.
- 75 - T. TONEGAWA
J. Phys. Soc. Japan, 19, (1964) 7.

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I : Appareillage expérimental</u>	3
I - Description de l'installation de production des champs forts	3
1 - Alimentation	3
2 - Circuit hydraulique de refroidissement	4
3 - Bobines	5
a - bobine de Wood	5
b - bobine de Bitter	6
c - efforts électrodynamiques dans les bobines de Bitter	7
4 - Etalonnage en champ	9
II - Description de l'expérience de mesure des aimantations	10
1 - Mesure des aimantations	10
2 - Mesure des températures	15
<u>CHAPITRE II : Résultats expérimentaux</u>	18
1 - Considérations expérimentales	18

	Pages
2 - Gadolinium	20
a - variation de l'aimantation avec le champ et la température	20
b - détermination des constantes d'anisotropie	22
c - cône préférentiel d'aimantation	24
3 - Terbium	25
a - variation de l'aimantation avec le champ et la température	25
4 - Dysprosium	28
a - variation de l'aimantation avec le champ et la température	28
5 - Holmium	31
a - structure magnétique à champ nul	31
b - propriétés magnétiques suivant l'axe <i>b</i>	32
c - propriétés magnétiques suivant l'axe <i>a</i>	33
d - propriétés magnétiques suivant l'axe <i>c</i>	34
e - description des processus d'aimantation	34
6 - Erbium	36
a - structure magnétique à champ nul	36
b - propriétés magnétiques suivant l'axe <i>c</i>	37
c - propriétés magnétiques suivant l'axe <i>a</i>	37
d - propriétés magnétiques suivant l'axe <i>b</i>	38
e - processus d'aimantation	39

<u>CHAPITRE III</u> : Propriétés liées à l'aimantation spontanée dans les terres rares	41
1 - l'interaction d'échange s-f	41
2 - Susceptibilité superposée	44
3 - Variation thermique de l'aimantation spontanée	46
<u>CHAPITRE IV</u> : Anisotropie	48
1 - Détermination expérimentale des constantes d'anisotropie	48
2 - Valeur des coefficients V_1^n à 0°K	50
a - résultats expérimentaux	50
b - comparaison avec les paramètres du champ cristallin	50
3 - Variation thermique des coefficients V_1^n	53
a - rappel de la théorie	53
b - dysprosium	55
c - holmium	55
d - terbium	56
4 - Influence de la magnétostriction	56
a - influence de la magnétostriction lorsque le champ est appliqué dans le plan de base	56
b - influence de la magnétostriction lorsque le champ est appliqué hors du plan de base	59

<u>CHAPITRE V</u> : Phénomènes magnétoélastiques liés aux transitions antiferro-ferromagnétiques	64
1 - Détermination des coefficients d'échange	64
a - énergie dans l'état hélimagnétique	64
b - énergie dans l'état ferromagnétique	65
c - détermination expérimentale de A_0 , A_1 , A_2	66
2 - Susceptibilité initiale	67
3 - Anomalies magnétiques de longueur	68
a - expressions théoriques des anomalies de longueur	68
b - comparaison avec l'expérience	71
b-1 - holmium	71
b-2 - dysprosium	71
b-3 - terbium	72
4 - Variation de l'angle d'hélimagnétisme avec la pression	73
5 - Variation thermique du champ critique H_c	73
a - expression théorique de la variation thermique de H_c	73
b - variation de H_c pour le terbium	75
c - variation de H_c pour le dysprosium	76
d - variation de H_c pour l'holmium	76
e - importance des différents termes dans les terres rares étudiées	77

Pages

CONCLUSION

78

BIBLIOGRAPHIE

80

TABLE DES MATIERES

87