



HAL
open science

Mise en évidence, sur le composé Dy₃, Al₂, d'un nouveau processus d'aimantation particulier aux substances ferromagnétiques à forte anisotropie

Bernard Barbara

► To cite this version:

Bernard Barbara. Mise en évidence, sur le composé Dy₃, Al₂, d'un nouveau processus d'aimantation particulier aux substances ferromagnétiques à forte anisotropie. Physique [physics]. Université scientifique et médical de Grenoble, 1972. Français. NNT: . tel-03372869

HAL Id: tel-03372869

<https://theses.hal.science/tel-03372869>

Submitted on 11 Oct 2021

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.

THESES

1972/DS

T0338

présentées à

L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
DE GRENOBLE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

BERNARD BARBARA

1^{re} THESE

**MISE EN EVIDENCE, SUR LE COMPOSE $Dy_3 Al_2$, D'UN
NOUVEAU PROCESSUS D'AIMANTATION PARTICULIER AUX
SUBSTANCES FERROMAGNETIQUES A FORTE ANISOTROPIE**

2^e THESE

PROPOSITIONS DONNEES PAR LA FACULTE

soutenues le 1^{er} juin 1972 devant la commission d'examen

MM. L. NÉEL

Président

C. BÈCLE
R. LEMAIRE
R. PAUTHENET
M. SOUTIF

} *Examineurs*

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Magnétisme de Grenoble.

J'exprime ma respectueuse gratitude à Monsieur le Professeur Néel, Membre de l'Institut, Prix Nobel, Directeur du Laboratoire, pour m'avoir accueilli dans son Laboratoire, pour l'intérêt et les fructueuses suggestions qu'il a portés à cette étude, et pour l'honneur qu'il me fait en présidant ce jury.

Monsieur le Professeur Soutif, Président de l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble a bien voulu accepter de venir juger ce travail ; qu'il me soit permis de l'en remercier.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur Pauthenet, Directeur du Service National des Champs Intenses de Grenoble, pour avoir mis à ma disposition les moyens expérimentaux du Laboratoire des champs forts.

Ce fut pour moi un plaisir que de trouver auprès de Monsieur Bècle, Maître de Conférences à Saint-Nazaire, une collaboration aussi amicale qu'efficace.

Monsieur Lemaire, Maître de Recherche au Centre National de la Recherche Scientifique, a assuré la direction de ce travail. Il m'est particulièrement agréable de lui adresser mes vifs remerciements pour l'aide et les conseils qu'il n'a cessé de me prodiguer.

C'est avec une même pensée amicale que je remercie tous mes camarades du laboratoires, chercheurs et techniciens qui ont contribué à l'accomplissement de ce travail : en particulier, Messieurs Tissot, Geynet et Siegfried.

Je remercie les techniciens du Service de Diffraction Neutronique pour l'accueil amical qu'ils m'ont réservé.

Mademoiselle Menéroud a assuré avec rapidité et compétence la dactylographie du manuscrit ; je l'en remercie vivement.

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

Les hypothèses du champ moléculaire et du champ structural ont été émises par P. Weiss dès le début de ce siècle. Quelques décennies plus tard, Heisenberg trouvait l'origine du champ moléculaire dans une interaction liée à l'indiscernabilité des électrons, appelée interaction d'échange. Van Vleck montra par la suite que le couplage spin-orbite dans le champ électrique créé par les ions du cristal, rend compte du champ structural, appelé depuis champ d'anisotropie.

Jusqu'à ces dernières années, les matériaux magnétiques étudiés étaient principalement formés de fer, de cobalt ou de nickel. Le champ moléculaire dû aux interactions entre les couches électroniques 3d peu localisées est très important, tandis que le champ d'anisotropie est petit, le faible couplage spin-orbite entraînant le blocage presque total du moment orbital. Le rapport du champ moléculaire au champ d'anisotropie est très élevé et les structures magnétiques sont généralement collinéaires. Les parois entre domaines ferromagnétiques, dont l'épaisseur dépend du compromis entre les interactions d'échange et l'anisotropie magnétocristalline, s'étendent sur plusieurs centaines de distances interatomiques ; elles se déplacent facilement sous l'effet d'un champ magnétique faible.

La première partie de l'étude que nous présentons porte sur les propriétés magnétiques des alliages T_3Al_2 où T représente un élément de terres rares de la seconde série. Dans ce cas le champ d'anisotropie est beaucoup plus élevé que celui des matériaux à base d'éléments 3d ; le champ d'échange est au contraire beaucoup plus faible. Cette situation se rencontre également avec le dysprosium métallique et avec de nombreux alliages de terres rares tels que TGa, DyZn, TNi, TCoNi. Les

Interactions d'échange entre les atomes de terres rares sont faibles car elles s'effectuent principalement par l'intermédiaire des électrons de conduction ; en effet la couche 4f, responsable du magnétisme de ces éléments, est profonde et de faible extension spatiale. La valeur très élevée du champ d'anisotropie est due à un couplage spin-orbite important. Les moments magnétiques sont étroitement liés aux directions cristallographiques ; les structures magnétiques peuvent être non colinéaires du seul fait de l'anisotropie magnétocristalline. Les parois entre domaines magnétiques sont étroites ; l'effet d'un champ magnétique sur de telles parois conduit à un processus d'aimantation original. Nous avons mis en évidence pour la première fois ces nouvelles propriétés sur le composé Dy_3Al_2 .

Après un aperçu historique des propriétés cristallographiques et magnétiques des alliages de terres rares avec l'aluminium, nous décrivons dans une première partie les propriétés cristallographiques et magnétiques des composés T_3Al_2 . L'étude de Dy_3Al_2 a été effectuée sur un monocristal, les structures magnétiques de Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2 ont été déterminées par diffraction neutronique.

La seconde partie est consacrée à la mise en évidence du processus d'aimantation particulier associé à des parois étroites. Nous traitons les conditions de stabilité des parois étroites et nous comparons le champ coercitif propre à ces parois au champ coercitif mesuré.

Dans une troisième partie nous étudions l'influence des parois étroites sur les différentes propriétés magnétiques des substances ferromagnétiques fortement anisotropes.

HISTORIQUE

Nous rappelons ici les principales études métallurgiques, cristallographiques et magnétiques effectuées sur les alliages de terres rares avec l'aluminium ; nous faisons ensuite le point sur l'étude des parois entre domaines magnétiques dans les composés ferromagnétiques à forte anisotropie magnétocristalline.

1 - PROPRIETES METALLURGIQUES ET CRISTALLOGRAPHIQUES

Buschow et Van Vucht⁽¹⁾ ont publié en 1965 les premiers diagrammes d'état entre les métaux de terres rares et l'aluminium. Sept composés intermétalliques apparaissent avec les terres rares de la première série et cinq avec celles de la seconde. Nous avons représenté à titre d'exemple (figures 1 et 2) les systèmes néodyme-aluminium et erbium-aluminium. La phase de Laves TAl_2 , isotype de $MgCu_2$, (Vernick et Geller, 1960⁽²⁾) a une fusion congruente ; les autres composés se forment par réactions péritectiques. La phase T_3Al_{11} , qui existe seulement pour les terres rares légères, présente deux variétés cristallographiques : une forme quadratique à haute température et une forme orthorhombique à basse température (Buschow, 1965⁽³⁾). Du lanthane au gadolinium, les composés TAl_3 ont la structure hexagonale de type $SnNi_3$; pour les terres rares de plus petit rayon atomique, ils sont cubiques de type $AuCu_3$ (Buschow et Van Vucht, 1964⁽⁴⁾). La structure des composés TAl est du type $CeAl$ du lanthane au praséodyme, et du type $DyAl$ du praséodyme au thulium. Ces deux types de structures ne diffèrent que par l'arrangement des mêmes motifs : chaînes d'aluminium, et prismes trigonaux, dont les sommets sont occupés par des atomes de terres rares (Bècle et Lemaire, 1967^(5,6)).

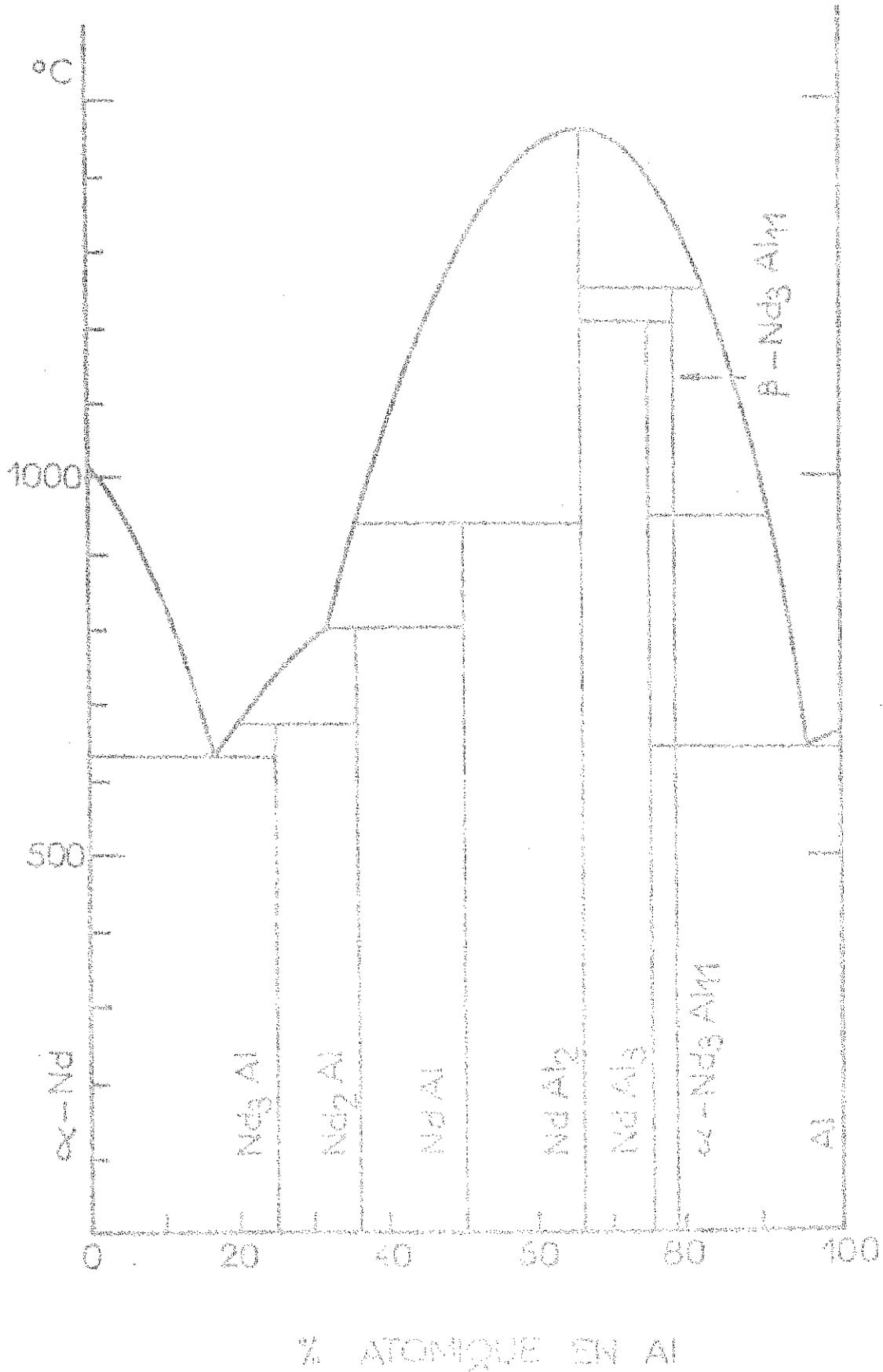


Figure 1 : Diagramme d'etat du systeme neodyme-aluminium.

Figure 2.

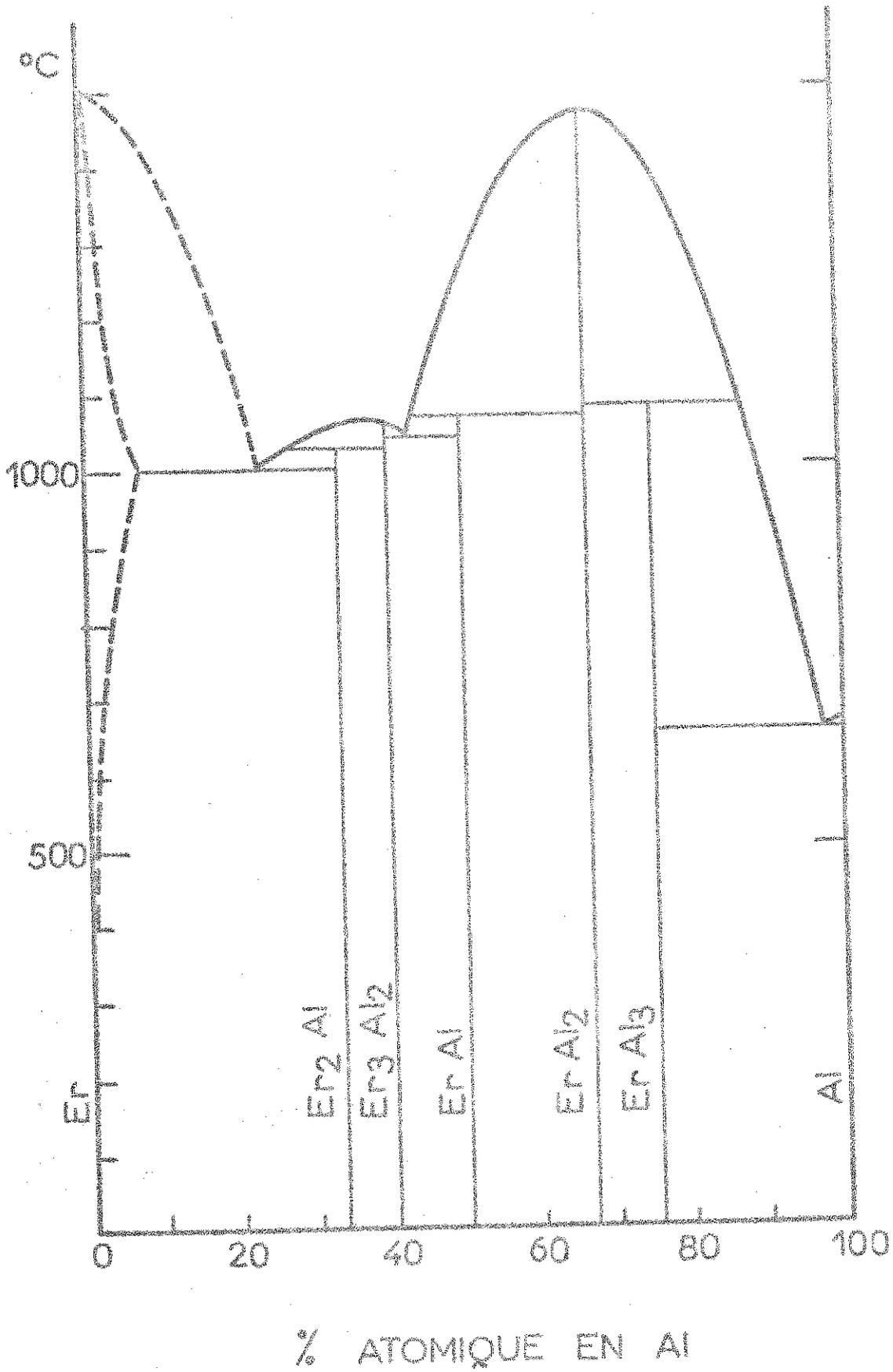


Figure 2 : Diagramme d'état du système erbium-aluminium.

La phase T_3Al_2 est quadratique et n'existe qu'avec les terres rares de la seconde séquence. Les composés T_2Al sont orthorhombiques de type $SnNi_2$ (Buschow et van der Goot⁽⁷⁾). Les composés T_3Al présentent à haute température une forme cubique, de type $AuCu_3$ et à basse température une forme hexagonale, de type $SnNi_3$ (Buschow et van Vucht, 1967⁽⁸⁾).

2 - PROPRIETES MAGNETIQUES

Les séries de composés TAl_2 , TAl_3 et TAl ont fait l'objet de nombreuses études magnétiques. Les composés TAl_2 sont ferromagnétiques, leurs températures de Curie sont comprises entre 5 et 170 K (Williams, Wernick, Nesbitt et Sherwood, 1962⁽⁹⁾). L'ordre ferromagnétique a été vérifié sur $NdAl_2$ et $DyAl_2$ par diffraction neutronique (Nereson, Olsen et Arnold, 1966⁽¹⁰⁾).

Les composés $GdAl_3$, $TbAl_3$, $DyAl_3$ et $HoAl_3$ sont antiferromagnétiques ; $ErAl_3$ est ferromagnétique. Les autres composés TAl_3 ne sont pas ordonnés à 4,2 K (Buschow et Fast, 1966⁽¹¹⁾).

Les composés équiatomiques TAl ont été étudiés par Bècle (Thèse, 1968⁽¹²⁾). Leurs propriétés ne présentent aucune continuité d'un métal de terre rare à l'autre. $NdAl$ et $TbAl$ sont antiferromagnétiques jusqu'à des champs atteignant 80 kOe. $GdAl$, $DyAl$, $ErAl$, et $TmAl$ sont métamagnétiques. Les structures magnétiques des composés TAl , déduites de mesures de diffraction neutronique, ne sont pas colinéaires, et sont étroitement liées à l'arrangement des prismes trigonaux ; ces résultats mettent en évidence la forte anisotropie magnétocristalline de ces composés (Bècle, Lemaire et Paccard, 1970⁽¹³⁾).

Les propriétés magnétiques des composés T_3Al_2 font l'objet de ce mémoire. Durant ce travail, Buschow⁽¹⁴⁾ a publié une étude magnétique du composé Dy_3Al_2 . Il observe un comportement ferromagnétique pour toute température inférieure à la température de Curie (105 K). Nous n'observons ce comportement que si l'échantillon a été au préalable refroidi sous champ. Aux températures inférieures à 20 K, la courbe de première aimantation présente une transition de type métamagnétique avec une forte hystérèse.

3 - PAROIS ENTRE DOMAINES MAGNETIQUES DANS LES COMPOSES

FERROMAGNETIQUES A FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE

Dès 1963, Trammell⁽¹⁵⁾, en étudiant les effets d'un champ cristallin cubique sur les ions terres rares a remarqué qu'une forte anisotropie magnétocristalline pourrait créer des parois très étroites entre domaines magnétiques, dans lesquelles l'aimantation spontanée basculerait brusquement. En 1970, dans un article où il discute de l'origine du champ coercitif des matériaux ferromagnétiques, Zijlstra⁽¹⁶⁾ a prévu l'existence d'une coercivité intrinsèque pour un matériau fortement anisotrope. A la même époque, nous avons mis en évidence dans les composés ferromagnétiques à forte anisotropie, un nouveau processus d'aimantation dû à des parois étroites entre domaines magnétiques⁽¹⁷⁾. En 1971, Egami et Graham⁽¹⁸⁾ ont attribué à l'existence de telles parois le champ seuil observé à basse température sur le dysprosium, et ont fait l'analogie entre la barrière de potentiel qui s'oppose au mouvement des parois et la force de Peirls nécessaire pour déplacer une dislocation. La même année, dans un article où il calcule le champ seuil associé à une paroi étroite, Zijlstra⁽¹⁹⁾ a noté la similitude entre les parois des matériaux ferromagnétiques très anisotropes et celles des matériaux ferroélectriques. Récemment Taylor⁽²⁰⁾ a publié une étude en champs pulsés, du composé DyNiCo qui présente des parois étroites ; il observe une décroissance du champ coercitif avec la vitesse d'application du champ. Ces résultats ne sont cependant pas utilisables, les pertes très importantes par hystérésis ayant été totalement négligées. Egami⁽²¹⁾ a observé le même phénomène sur le dysprosium ; la valeur, peu élevée du champ coercitif n'entraîne que de faibles pertes par hystérésis. Il n'a cependant pas pu mettre en évidence la loi reliant le champ coercitif à la vitesse d'application du champ extérieur.

PREMIERE PARTIE

ETUDE CRISTALLOGRAPHIQUE ET MAGNETIQUE

DES COMPOSES T_3Al_2

C H A P I T R E I

PREPARATION - STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE

Les échantillons polycristallins ont été préparés dans un four à lévitation puis recuits plusieurs jours sous hélium. Nous avons contrôlé leur pureté à l'aide de rayons X par la méthode de Debye et Scherrer. Un monocristal de Dy_3Al_2 a été préparé par la méthode de Bridgman, puis orienté aux rayons X par la méthode de Laue. La détermination exacte de la structure cristallographique a été réalisée à l'aide de la diffraction des rayons X et des neutrons.

1 - METHODES EXPERIMENTALES - PREPARATION

Les composés Ho_3Al_2 et Er_3Al_2 ont une fusion congruente. Les autres composés T_3Al_2 se forment par réactions péritectiques dans un intervalle de températures de 10 à 20 degrés seulement. L'obtention de composés exempts de toute autre phase nécessite des recuits à 950°C, qui sont d'autant plus efficaces que la taille des grains est petite. Seule une trempe rapide à partir de la fusion satisfait cette condition.

Les constituants de pureté 99,99 % pour l'aluminium et 99,9 % pour les terres rares sont fondus par lévitation sous atmosphère d'hélium dans un four à induction haute fréquence. Cette méthode évite tout contact entre l'alliage en fusion et un creuset et permet d'obtenir une trempe brutale. Lorsque la bobine de lévitation est alimentée par un courant haute fréquence (500 kHz), l'échantillon est le siège de courants de Foucault ; leur interaction avec le champ non uniforme de la bobine produit des forces électromagnétiques qui contrebalancent

la pesanteur et produisent un brassage très efficace qui rend le liquide parfaitement homogène. La trempe dans une lingotière de cuivre bloque les différentes transformations péritectiques. La solidification s'effectue par nucléation d'une multitude de microcristallites de très faibles dimensions et non par le grossissement de certains d'entre eux. Les alliages obtenus sont recuits sous hélium pendant 24 heures, dans un four à résistance ; le parcours quadratique moyen, déduit du coefficient de diffusion, est comparable à la taille moyenne des cristallites ; les atomes peuvent diffuser entre des grains de phases différentes dans des temps relativement corrects. La pureté des composés obtenus est contrôlée par la méthode de Debye et Scherrer.

A la température ambiante, les intensités diffractées par les rayons X ou les neutrons ont été mesurées afin d'affiner la structure cristallographique ; un compteur explore le plan équatorial de la sphère d'Ewald, en tournant autour d'un axe passant par l'échantillon. Pour l'étude aux rayons X, nous avons utilisé la radiation K_{α} du cuivre ($\lambda = 1,54051 \text{ \AA}$), pour l'étude aux neutrons $\lambda = 1,125 \text{ \AA}$. Les calculs nécessaires à l'affinement simultané des positions atomiques et des facteurs d'agitation thermique individuels ont été effectués sur la calculatrice CAE 510 du Laboratoire à l'aide des programmes établis par Bassi⁽²²⁾.

Nous avons préparé un monocristal de Dy_3Al_2 par la méthode de Bridgman. Celle-ci consiste à déplacer lentement la zone en fusion de l'échantillon placé dans un creuset d'alumine recristallisée dont l'extrémité inférieure est conique ; un germe unique, formé dans la pointe du creuset, peut se développer. La solidification est alors atteinte par grossissement du germe initial et non par nucléation. Nous avons obtenu un barreau monocristallin de 3 cm de hauteur ; la température de la zone fondue était de 1100°C et la vitesse de translation de 1 cm/heure.

2 - STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE

a - Affinement de la structure du composé Tb_3Al_2

La structure cristalline de Tb_3Al_2 a été étudiée à partir des intensités diffractées par un échantillon polycristallin. La maille cristallographique est quadratique avec les paramètres :

$$a = 8,283 \text{ \AA},$$

$$c = 7,581 \text{ \AA}.$$

Nous avons observé la règle d'existence $h = 0$, $k+l = 2n$, qui est caractéristique des groupes d'espace $P4_2nm$, $P\bar{4}n_2$ et $P4_2/mnm$. La structure de Tb_3Al_2 isotype de Hf_3Al_2 appartient au groupe $P4_2nm$; les atomes de terres rares se répartissent suivant trois sites : $4b(1)$, $4c(2)$, $4c(3)$, ceux d'aluminium suivant deux sites : $4c(1)$ et $4c(2)$ (tableau 1-1). L'affinement aboutit aux coordonnées atomiques portées sur le tableau 1-2. Ces valeurs sont en très bon accord avec celles observées par Baenziger et Hegenbarth⁽²³⁾ dans le composé Gd_3Al_2 . Les facteurs de confiance, $R = \frac{\sum |I_o - I_c|}{\sum |I_c|}$, obtenus par les rayons X et les neutrons sont respectivement de $R = 7,9 \%$ et $R = 3,2 \%$.

T A B L E A U 1-1

Positions atomiques relatives aux sites 4c et 4b

<u>Site 4b</u>	$(0, \frac{1}{2}, z)$; $(\frac{1}{2}, 0, z)$; $(0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}+z)$; $(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}+z)$
<u>Site 4c</u>	(x, x, z) ; (\bar{x}, \bar{x}, z) ; $(\frac{1}{2}+x, \frac{1}{2}-x, \frac{1}{2}+z)$; $(\frac{1}{2}-x, \frac{1}{2}+x, \frac{1}{2}+z)$

T A B L E A U 1-2

Coordonnées atomiques et facteurs de température de la structure du composé Tb_3Al_2 décrite dans le groupe d'espace $P4_2nm$

Atomes	Positions	x	y	z	$B(\text{Å}^2)$
Tb(1)	4b	0	$\frac{1}{2}$	0,500	0,6
Tb(2)	4c	0,152	0,152	0,250	0,6
Tb(3)	4c	0,205	0,205	0,725	0,6
Al(1)	4c	0,377	0,377	0,031	1,0
Al(2)	4c	0,396	0,396	0,439	1,0

Dans les tableaux 1-3 et 1-4, nous comparons les valeurs des intensités diffractées aux rayons X et aux neutrons à celles calculées après le dernier cycle d'affinement. Les distances interatomiques sont portées dans le tableau 1-5.

Le facteur de confiance obtenu sur le composé Dy_3Al_2 étudié par diffraction neutronique à la température ambiante est $R = 3,6 \%$ en utilisant les positions atomiques déterminées précédemment.

Les composés T_3Al_2 ont tous la même structure cristalline. Les paramètres de la maille décroissent du gadolinium au thulium conformément à la propriété de contraction des lanthanides (tableau 1-6).

T A B L E A U 1-3

Intensités calculées et observées d'un échantillon
polycristallin de Tb_3Al_2 (radiation du cuivre)

h k l	θ_c	I_c	I_o	h k l	θ_c	I_c	I_o
1 1 0	7,595	2	2	2 2 3	23,84	3	n.o.
1 0 1	7,950	1	n.o.	0 0 4	24,07	40	38
1 1 1	9,600	2	1	3 3 1	24,15		
2 0 0	10,75	0	n.o.	3 0 3	24,51	16	18
0 0 2	11,77	3	3	4 2 0	24,70		
2 1 0	12,06	28	32	3 1 3	25,17	19	21
2 1 1	13,44	0	n.o.	4 0 2	25,18		
1 1 2	14,06	33	31	1 1 4	25,40	2	n.o.
2 2 0	15,32	41	39	4 2 1	25,50	0	n.o.
2 0 2	16,05	119	121	4 1 2	25,83	51	49
2 2 1	16,45	13	14	3 3 2	26,47	89	95
2 1 2	16,97	101	97	2 0 4	26,66		
3 1 0	17,17	89	91	3 2 3	27,06	3	n.o.
3 0 1	17,35			2 1 4	27,27	36	39
3 1 1	18,20	35	34	4 2 2	27,70	30	27
1 0 3	18,65	7	5	4 3 0	27,83	1	n.o.
1 1 3	19,46	7	7	5 1 0	28,43	55	58
2 2 2	19,50	2	n.o.	5 0 1	28,55		
3 2 0	19,68	4	3	4 3 1	28,55	62	59
3 2 1	20,60	4	3	2 2 4	29,08		
2 1 3	21,74	0	n.o.	5 1 1	29,13	16	14
4 0 0	21,93	0	n.o.	4 1 3	29,50		
4 1 0	22,64	38	41	3 3 3	30,04	3	n.o.
3 2 2	23,18	1	n.o.	3 1 4	30,24	83	79
3 3 0	23,35	3	n.o.	5 2 0	30,19		
4 1 1	23,47	8	9	4 3 2	30,62	19	24

R = 7,87 %

T A B L E A U 1-4

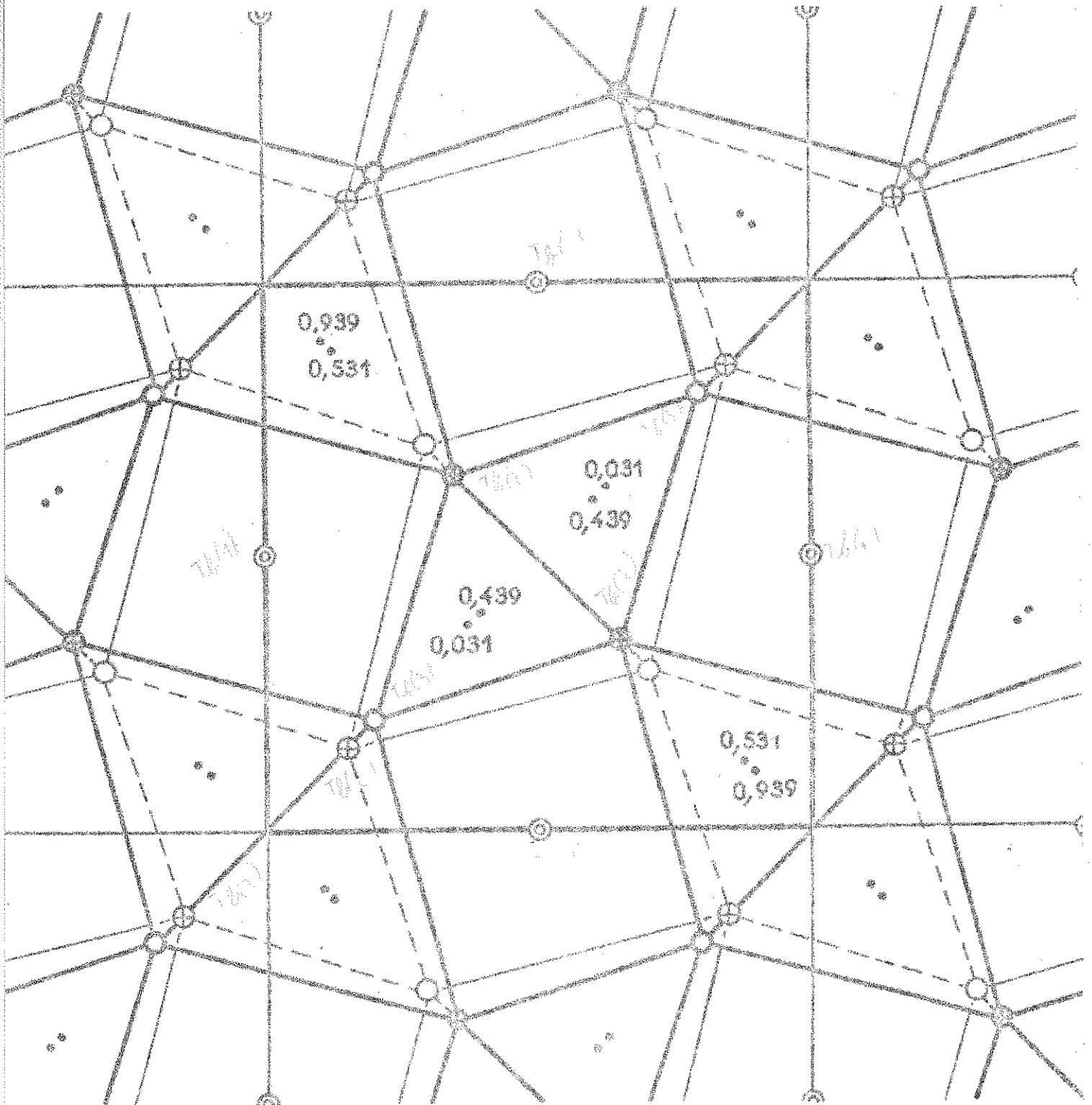
Intensités nucléaires calculées et observées sur Tb_3Al_2
(neutrons $\lambda = 1,125 \text{ \AA}$)

h k l	θ_c	I_c		I_o
1 1 0	5,52	0,1	} 0,9	n.o.
1 0 1	5,81	0,8		
1 1 1	6,96	1,9		n.o.
2 0 0	7,83	0,1		n.o.
0 0 2	8,55	1,2	} 36,3	28,4
2 1 0	8,77	35,1		
2 1 1	9,78	1,9		n.o.
1 1 2	10,22	70,1		63,5
2 2 0	11,10	122,8		130,1
2 0 2	11,64	362,5		365,8
2 2 1	11,93	51,3	} 813,6	827,6
2 1 2	12,31	438,0		
3 1 0	12,45	318,8		
3 0 1	12,56	5,5		
3 1 1	13,13	139,2		129,7
1 0 3	13,48	49,1		32,5

T A B L E A U 1-5

Distances interatomiques dans Tb_3Al_2

Atomes	Voisins	Nombre de voisins	Distance
Tb(1)	Tb(1)	2	3,78
Tb(1)	Tb(2)	4	3,66
Tb(1)	Tb(3)	2	3,42
Tb(1)	Tb(3)	2	3,62
Tb(1)	Al(1)	2	4,83
Tb(1)	Al(1)	2	3,28
Tb(1)	Al(2)	2	3,41
Tb(1)	Al(2)	2	4,74
Tb(2)	Tb(2)	1	3,55
Tb(2)	Tb(3)	1	3,65
Tb(2)	Tb(3)	1	4,02
Tb(2)	Tb(3)	2	4,72
Tb(2)	Tb(3)	2	3,88
Tb(2)	Al(1)	1	3,10
Tb(2)	Al(1)	2	3,12
Tb(2)	Al(2)	1	3,19
Tb(2)	Al(2)	2	3,19
Tb(3)	Tb(3)	1	4,79
Tb(3)	Al(1)	1	3,06
Tb(3)	Al(1)	2	3,15
Tb(3)	Al(2)	1	3,11
Tb(3)	Al(2)	2	3,13
Al(1)	Al(1)	1	2,87
Al(1)	Al(2)	1	3,09
Al(2)	Al(2)	1	2,43
Prisme I			
Al(1)	Tb(2)	1	3,10
Al(1)	Tb(2)	2	3,12
Al(1)	Tb(3)	1	3,06
Al(1)	Tb(3)	2	3,15
Prisme II			
Al(2)	Tb(2)	1	3,19
Al(2)	Tb(2)	2	3,19
Al(2)	Tb(3)	1	3,11
Al(2)	Tb(3)	2	3,13



- ⊗ 0,750 ⊕ 0,250 ⊙ 0,500
- 0,725 ○ 0,225

Figure I-2 : Projection sur le plan (001) de la structure des composés T_3Al_2 .

T A B L E A U 1-6

Paramètres cristallins des composés T_3Al_2

Composés	a	c
Gd_3Al_2	8,34	7,59
Tb_3Al_2	8,28	7,58
Dy_3Al_2	8,20	7,51
Ho_3Al_2	8,15	7,48
Er_3Al_2	8,10	7,47
Tm_3Al_2	8,07	7,47

b - Description et discussion de la structure

La structure de ces composés peut être décrite par des chaînes d'atomes de terres rares (site 4b) et des chaînes de prismes trigonaux dont les sommets sont occupés par des atomes de terres rares (sites 4c(2) et 4c(3)) et les centres par des atomes d'aluminium. L'axe de ces motifs est parallèle à l'axe c de la maille. Nous avons représenté (figure 1-1) la perspective de la structure et (figure 1-2) sa projection sur le plan (001).

La stabilité de cet édifice s'explique par de simples considérations stériques ; les atomes de terres rares forment le squelette et ceux d'aluminium, plus petits, se placent aux centres des prismes qui sont en fait légèrement déformés ; deux types de prismes alternent le long de l'axe c (figure 1-1).

CHAPITRE II

ETUDE MAGNETOSTATIQUE DES COMPOSES T_3Al_2

1 - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Nous avons effectué les mesures d'aimantations sur un électro-aimant, par la méthode d'extraction axiale proposée par P. Weiss⁽²⁴⁾ et précédemment décrite^(24,25), dans des champs compris entre 0 et 24 kOe. L'échantillon à étudier est fixé à l'extrémité d'une tige placée à l'intérieur d'un cryostat. L'aimantation est proportionnelle à la déviation d'un galvanomètre balistique lors de l'extraction de l'échantillon d'un système de bobines de mesures. Cette déviation doit être corrigée de l'effet d'images magnétiques. La température peut varier entre 1,5 K et la température ambiante ; elle est déterminée soit par mesure de la pression sur un bain d'hélium liquide soit par la valeur d'une résistance de platine ou de carbone.

Ces champs s'étant avérés, dans certains cas, insuffisants, nous avons utilisé des champs atteignant 80 kOe, produits par une bobine sans fer⁽²⁶⁾ du type Wood ; celle-ci est constituée de quatre enroulements en spirales, en série. Les spires sont isolées par un fil de nylon très fin. L'eau de refroidissement circule entre les spires. La bobine fournit un champ maximum de 80 kOe lorsqu'elle est parcourue par un courant de 5 kA. La génératrice l'alimentant fournit alors une puissance de 1,7 MW. Le champ est uniforme à 1 % près sur une longueur de 22 mm ; ce faible gradient permet l'extraction de l'échantillon entre deux bobines de mesure identiques et enroulées en sens inverse.

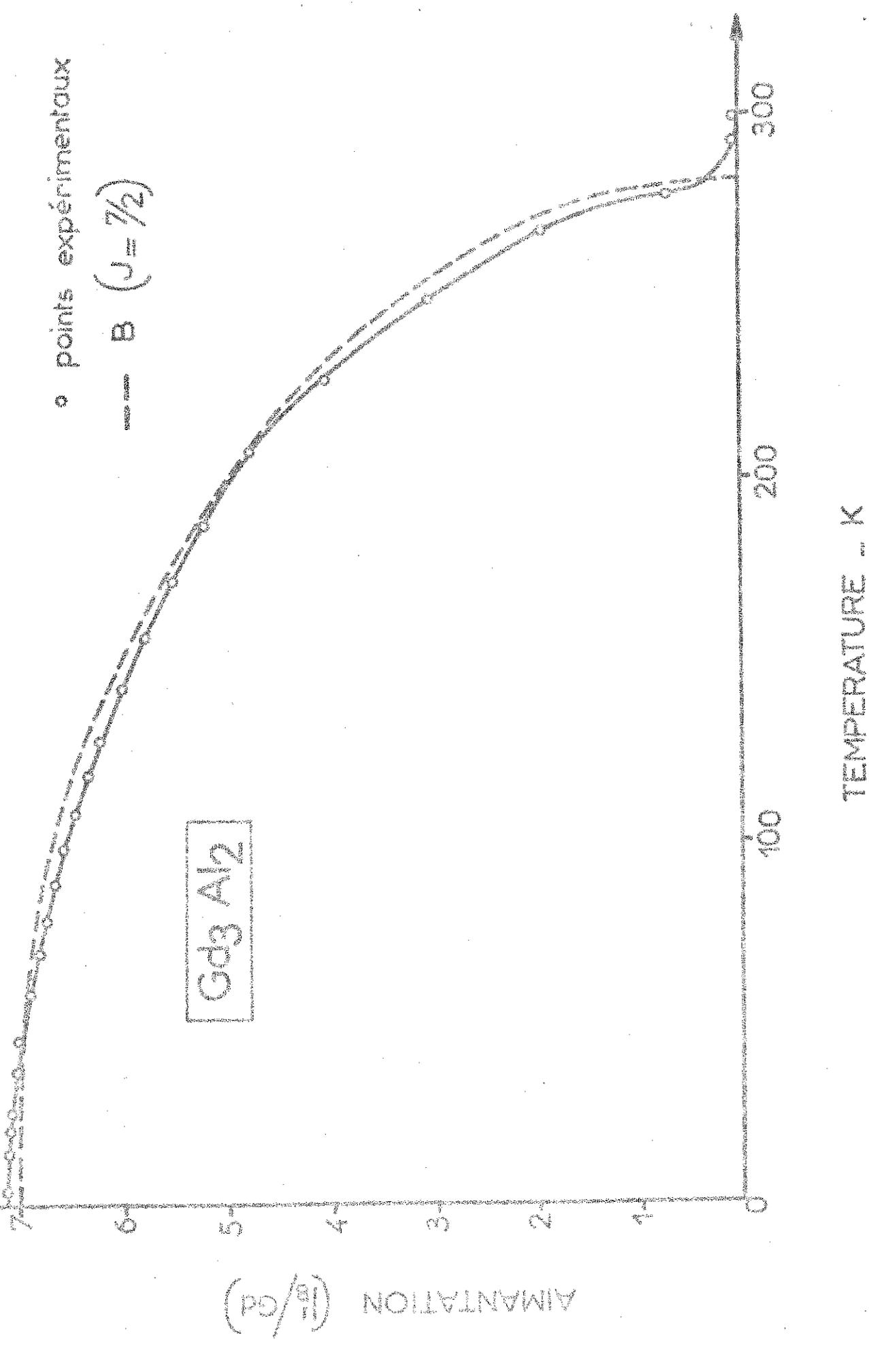


Figure II-1 : Variation thermique de l'aimantation spontanée de Gd₃Al₂.

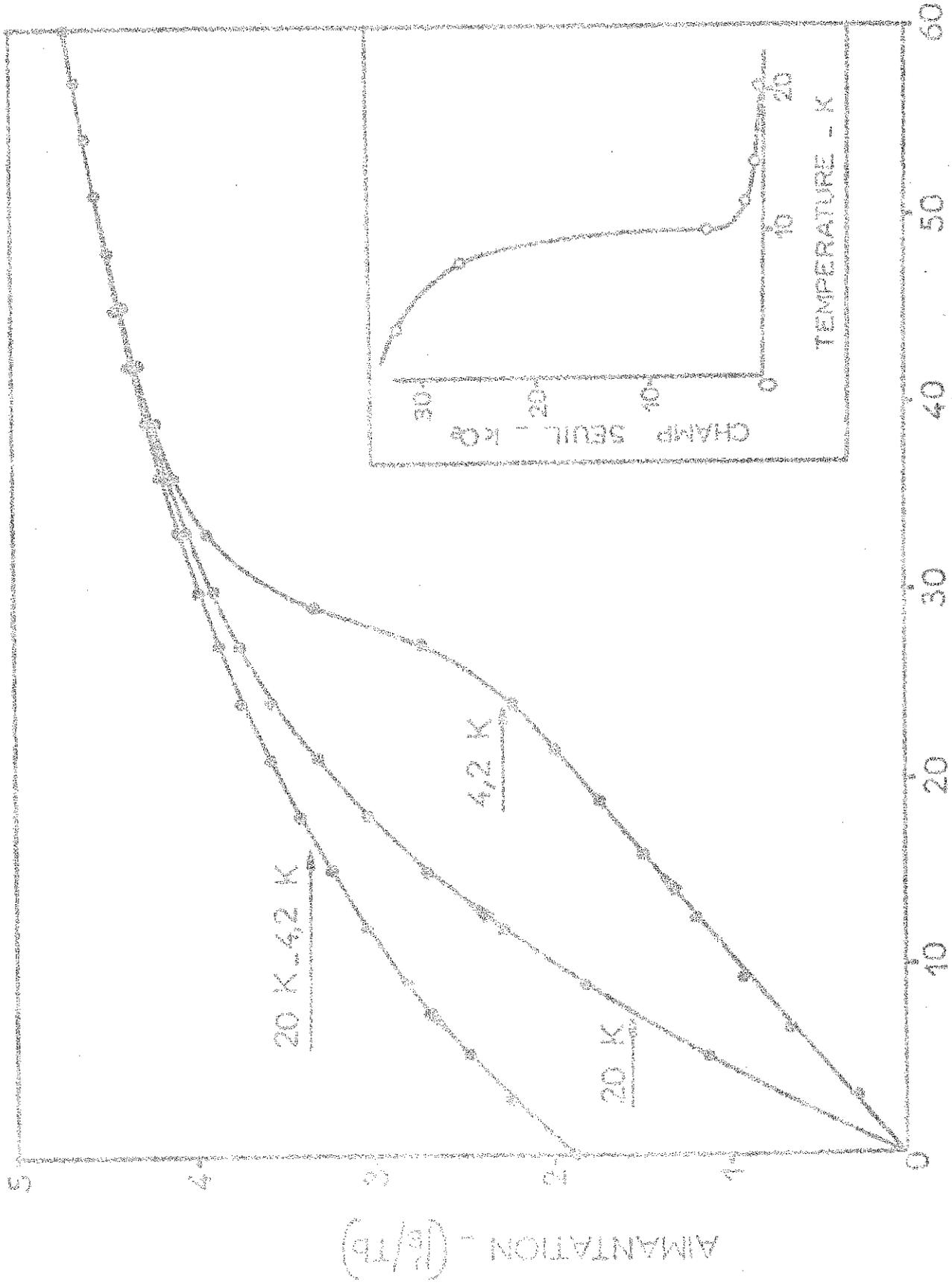


Figure II-2 : Aimantation et champ critique du composé Tb_3Al_5 .
CHAMP APPLIQUE - kOe

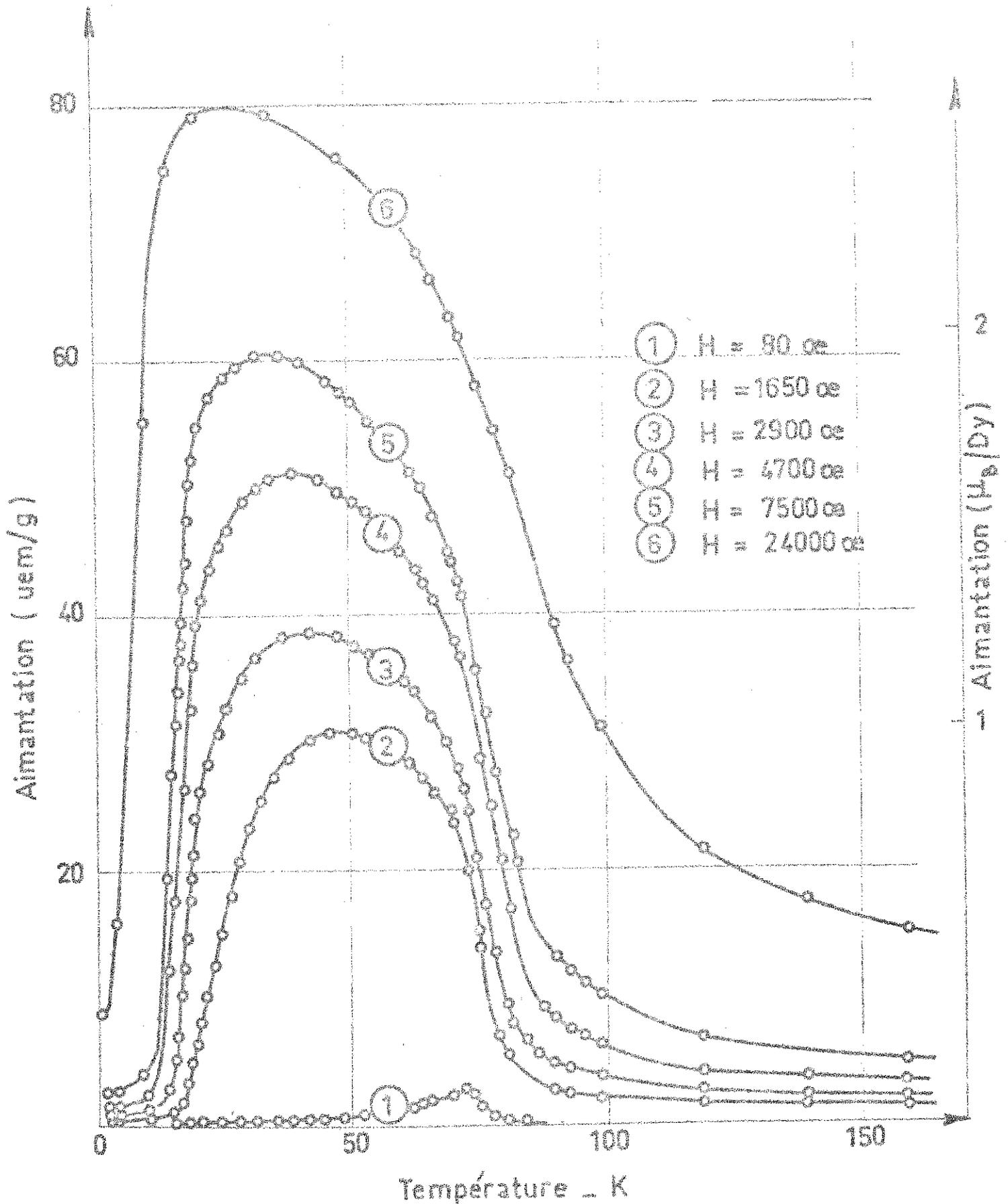


Figure II-3 : Aimantation du composé Dy_3Al_2 mesurée par températures croissantes.

Au-dessus de la température ambiante, nous avons déterminé les susceptibilités magnétiques à l'aide d'une balance de translation du type Foex et Forrer⁽²⁷⁾.

2 - ETUDE MAGNETOSTATIQUE DES COMPOSES POLYCRISTALLINS T_3Al_2

a - Mesures dans le domaine ordonné

Le composé Gd_3Al_2 est ferromagnétique ; la variation thermique de son aimantation spontanée est en bon accord avec celle déduite de la fonction de Brillouin $B_{7/2}$ (figure 11-1). Son aimantation à saturation absolue est de $7,15 \mu_B$ par atome de gadolinium, sa température de Curie θ_c est 282 K, le champ moléculaire moyen au niveau d'un atome de gadolinium est de 1300 kOe à 0 K. Ces valeurs sont très voisines de celles du gadolinium métallique⁽²⁸⁾ ($7,12 \mu_B$, 289 K et 1400 kOe).

Entre 10 et 190 K, les variations isothermes de l'aimantation du composé Tb_3Al_2 avec le champ mettent en évidence un fort ferromagnétisme (figure 11-2) ; l'aimantation rémanente s'annule à 190 K. Lorsque la température décroît en-dessous de 10 K, l'aimantation mesurée à champ constant diminue. En particulier à 4,2 K la courbe d'aimantation présente un caractère métamagnétique : en champ faible, l'aimantation varie linéairement avec le champ, avec une susceptibilité élevée. A partir d'un champ seuil H_s d'environ 30 kOe, elle croît brusquement pour atteindre sa valeur à 20 K. En champ décroissant, les courbes d'aimantation à 20 et 4,2 K sont pratiquement confondues. Le champ seuil décroît rapidement entre 4 et 5 K, il s'annule de manière évanescente vers 10 K, température de transition en champ nul (figure 11-2).

Le comportement du composé Dy_3Al_2 est semblable à celui du composé Tb_3Al_2 . L'aimantation mesurée sous champ constant (figure 11-3) est faible aux basses températures. A partir d'une température critique fonction du champ appliqué, elle croît brusquement et passe par un maximum avant de décroître. A 4,2 K, Dy_3Al_2 (figure 11-4) présente en champ faible une aimantation linéaire avec le champ ; à partir d'un champ seuil de 21 kOe,

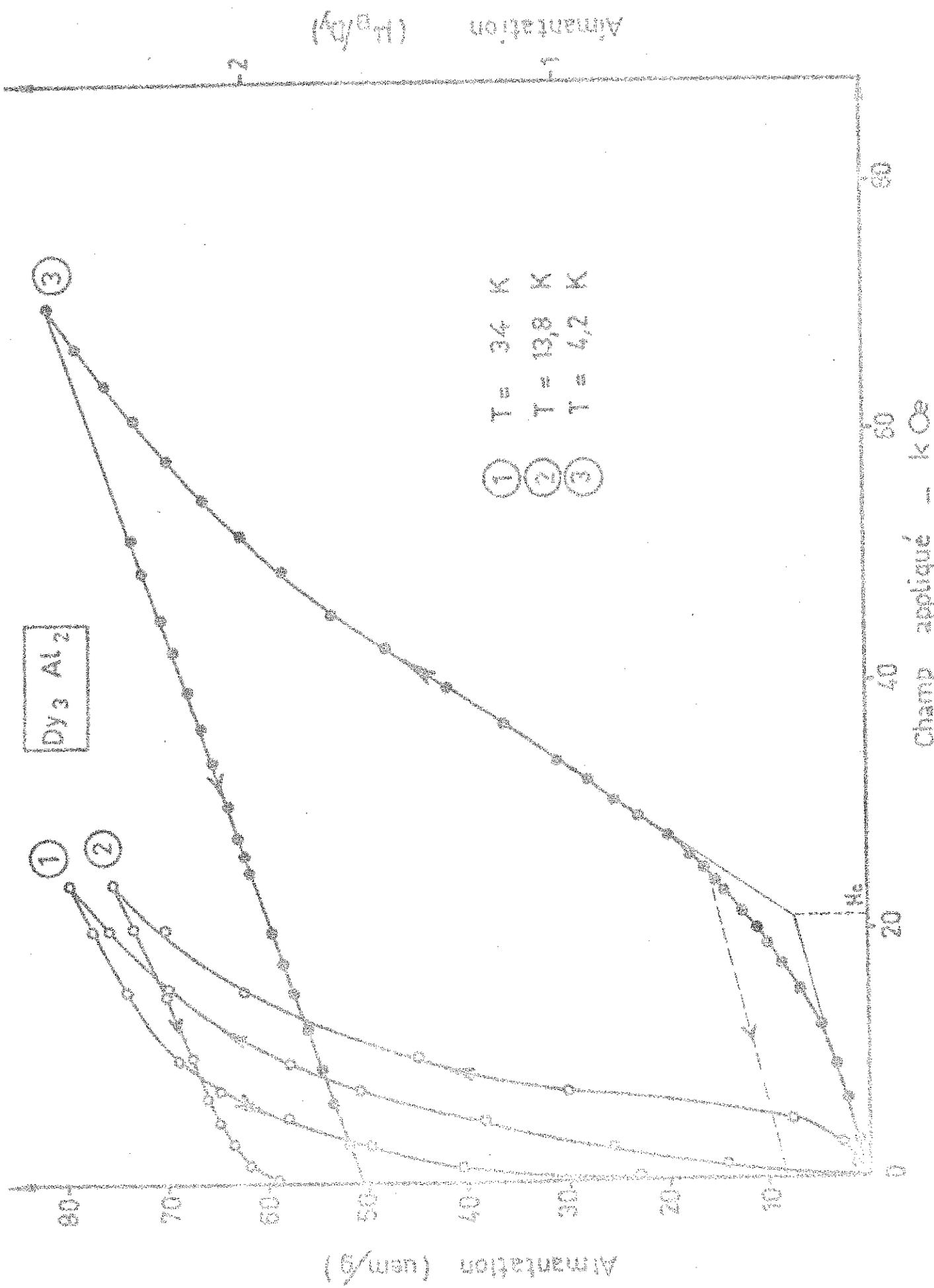


Figure II-4 : Variation de l'alimentation du composé Dy₃Al₂ en fonction du champ appliqué.

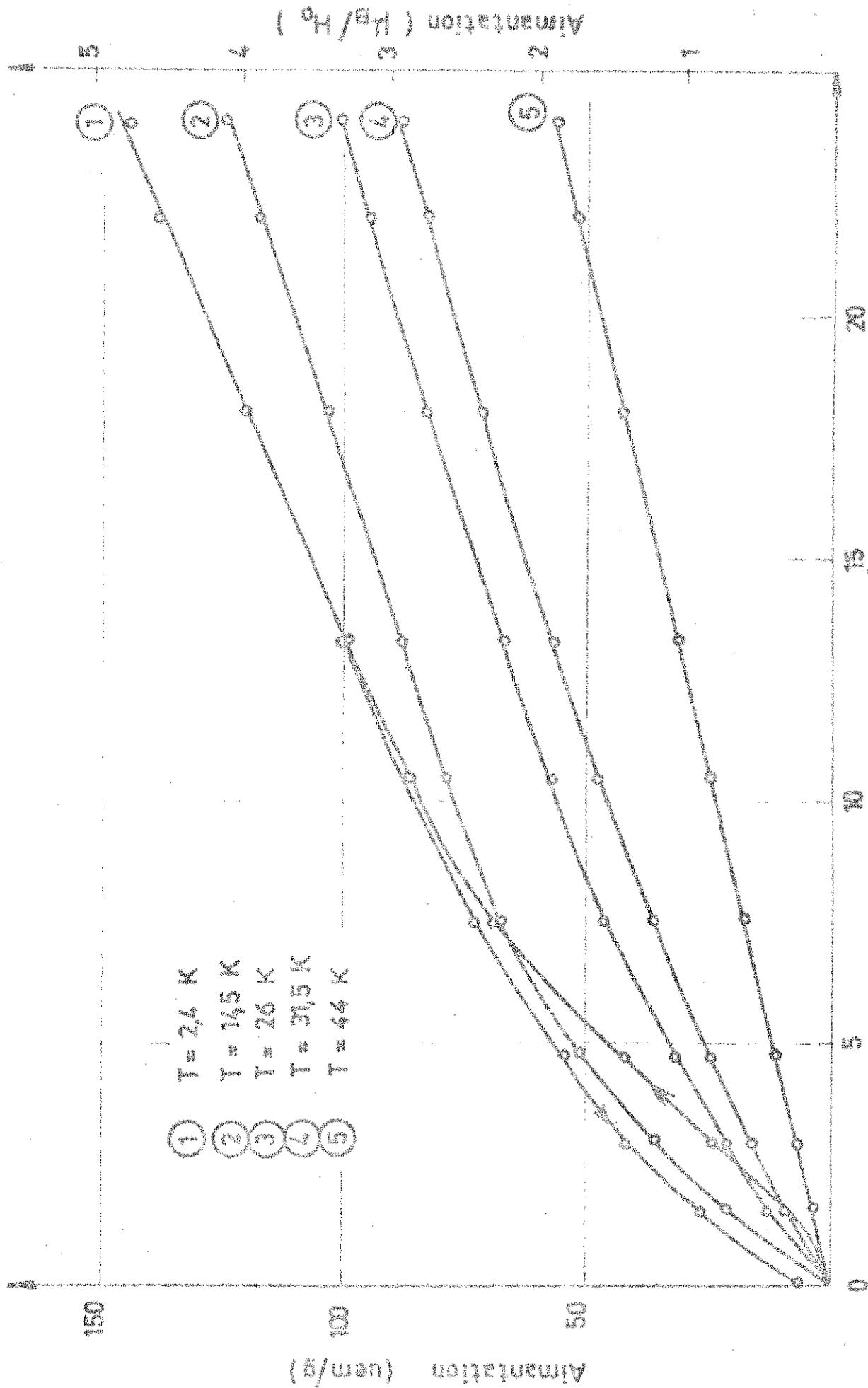


Figure II-5 : Alimantation du composé Ho_3Al_2 .

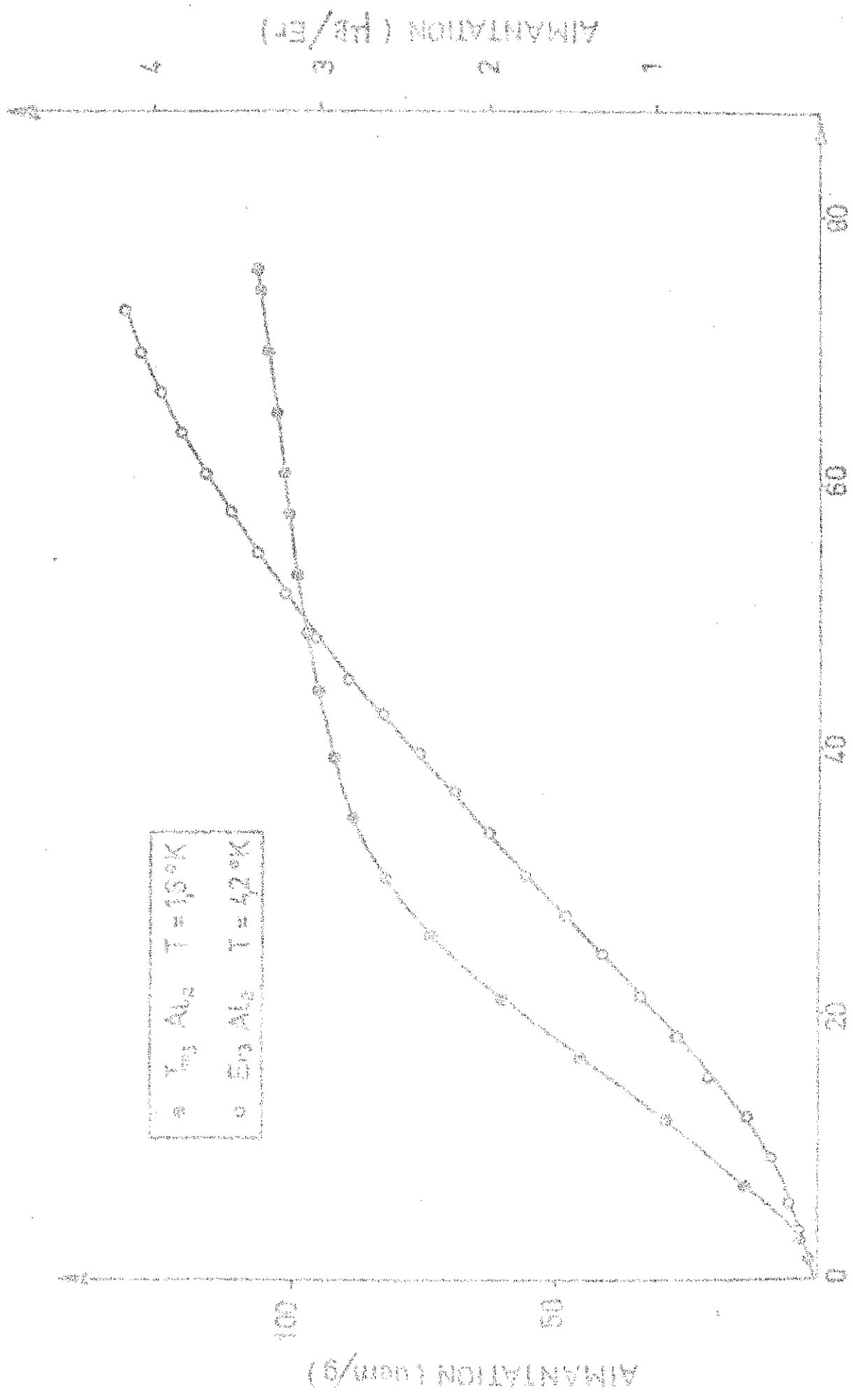


FIGURE II-6 : Aimantation des composés Er_3Al_5 et Tm_3Al_5 .
 Champ appliqué - kOe

L'aimantation croît rapidement et atteint $2,6 \mu_B$ par atome de dysprosium sous 70 kOe. En champ décroissant la variation de l'aimantation est linéaire ; la susceptibilité correspondante est sensiblement égale à la susceptibilité initiale observée dans les champs faibles. A 34 K, le composé Dy_3Al_2 a un comportement typiquement ferromagnétique (figure 11-4) ; l'aimantation rémanente décroît lorsque la température croît et s'annule à la température de Curie ferromagnétique dont la valeur dépend du traitement thermique et de l'écart à la stœchiométrie. Celle-ci peut atteindre 76 K lorsque l'échantillon trempé est déficitaire en dysprosium ; la valeur mesurée la plus élevée (106 K) correspond à un échantillon recuit huit jours à $950^\circ C$.

La variation du champ seuil avec la température permet de définir une température de transition en champ nul de 20 K. Aux températures supérieures à 20 K le composé Dy_3Al_2 présente un caractère ferromagnétique ; aux températures inférieures à 20 K, si le champ est inférieur au champ critique, il a le comportement d'un antiferromagnétique.

Ho_3Al_2 a un comportement magnétique semblable, bien que moins marqué ; à 4,2 K le champ seuil n'est que de 1 kOe (figure 11-5). Ces trois composés sont ferromagnétiques entre leur température de Curie θ_C et une température de transition θ_T (tableau 11-1) ; en-dessous de cette température, ils ont le comportement caractéristique d'un métamagnétique à très forte anisotropie.

Contrairement aux composés précédents, Er_3Al_2 et Tm_3Al_2 , ne présentent pas d'aimantation spontanée en champ faible, quelle que soit la température. En-dessous de leur température de Néel, 9 K pour Er_3Al_2 , 3 K pour Tm_3Al_2 , ils sont métamagnétiques (figure 11-6), mais les variations isothermes de leurs aimantations n'ont pas d'hystérésis en champ. L'anisotropie magnéto-cristalline de ces derniers composés doit être plus faible.

Figure II-7.

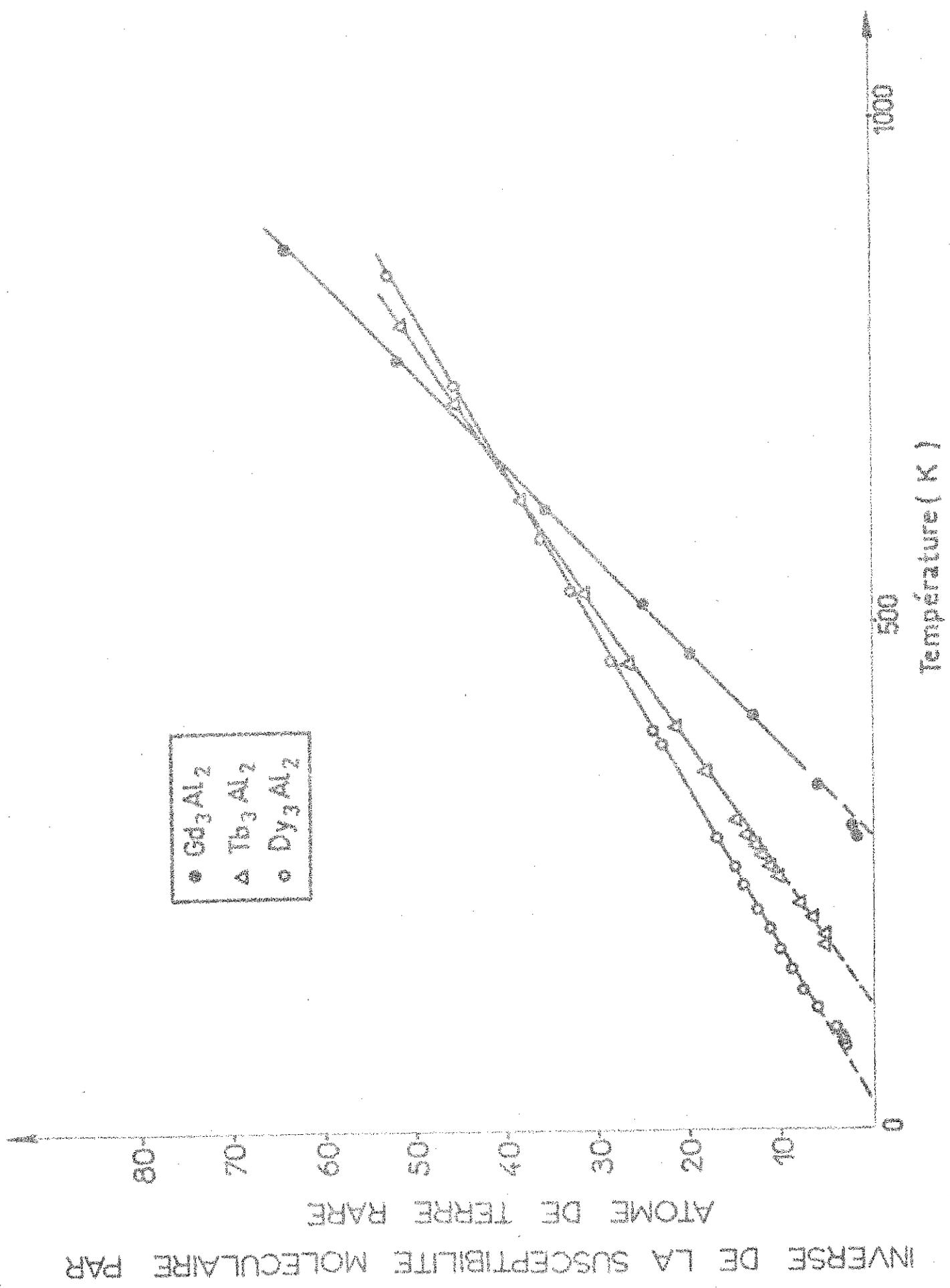


Figure II-7 : Variation thermique de l'inverse de la susceptibilité de Gd₃Al₂, Dy₃Al₂, Tb₃Al₂.

INVERSE DE LA SUSCEPTIBILITE MOLECULAIRE

PAR ATOME DE TERRE RARE

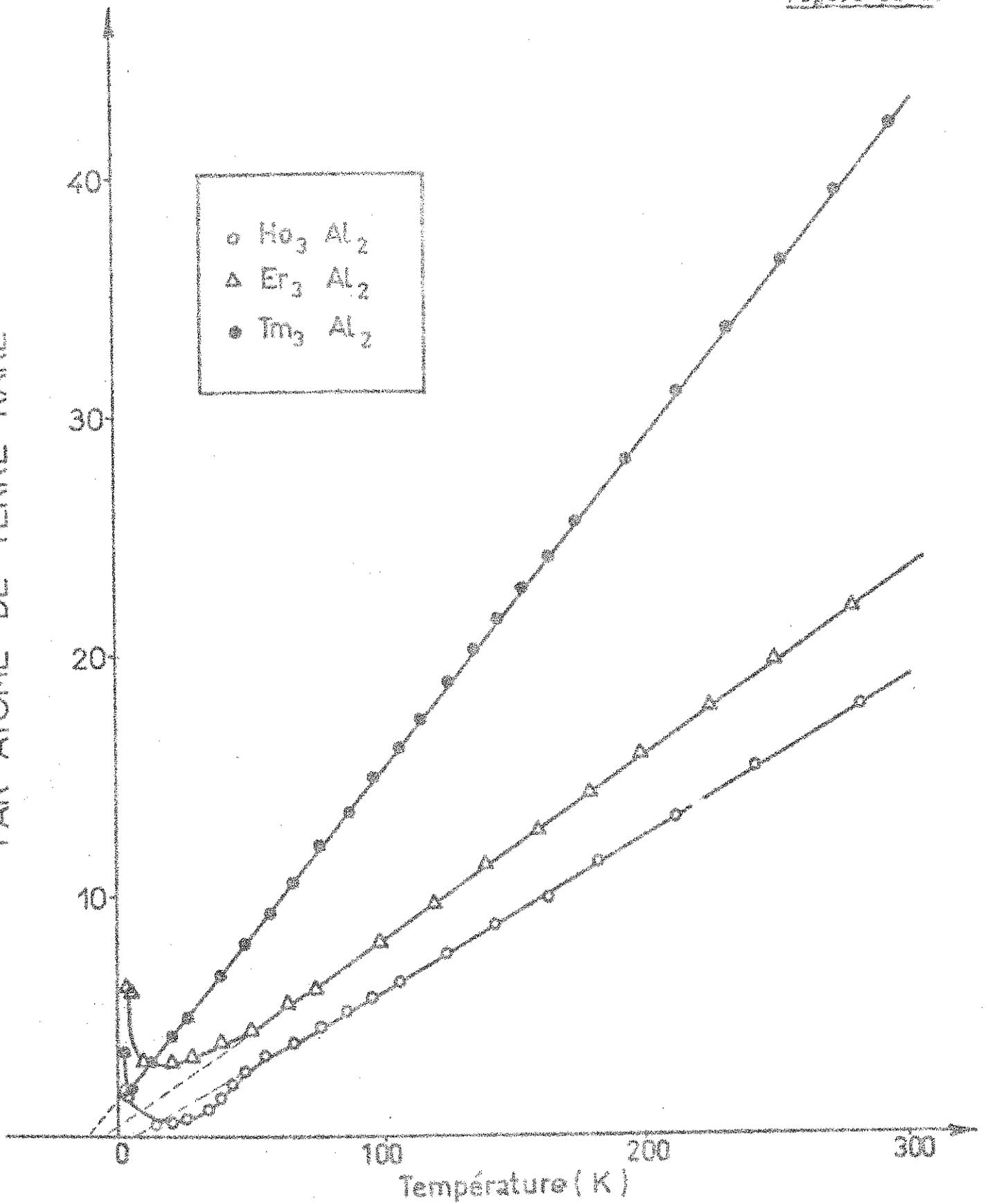


Figure II-8 : Variation thermique de l'inverse de la susceptibilité de Ho_3Al_2 , Er_3Al_2 et Tm_3Al_2 .

T A B L E A U 11-1

Résultats expérimentaux pour les composés T_3Al_2

Composés	θ_N (K)	θ_+ (K)	θ_c (K)	θ_p (K)	m_e (mesuré)	m_c (Hund)
Gd_3Al_2	-	-	282	285	8,3	7,94
Tb_3Al_2	-	10	190	125	10,1	9,72
Dy_3Al_2	-	20	76	31	11,2	10,64
Ho_3Al_2	-	11	33	10	11,1	10,60
Er_3Al_2	9	-	-	- 3	10,1	9,58
Tm_3Al_2	3	-	-	- 10	7,8	7,56

b - Etude de la susceptibilité des composés T_3Al_2 dans le domaine paramagnétique

A haute température, la variation de l'inverse de la susceptibilité des composés T_3Al_2 suit une loi de Curie-Weiss (figure 11-7 et figure 11-8). Nous avons observé que les températures de Curie paramagnétiques dépendent de la texture de l'échantillon massif étudié, donc de la direction cristallographique suivant laquelle est effectuée la mesure. Pour cette raison, les échantillons ont tous été trempés après fusion, dans une même lingotière, et taillés de façon à ce qu'ils présentent une texture d'orientation semblable. Les températures de Curie mesurées sont portées tableau 11-1. Les constantes de Curie ramenées à un atome de terre rare conduisent pour tous les composés à des moments effectifs légèrement supérieurs à ceux des ions libres correspondants, calculés en utilisant la règle de Hund (tableau 11-1). Le rapport du moment mesuré au moment calculé est sensiblement constant pour toute la série et vaut environ 1,04. Des valeurs de

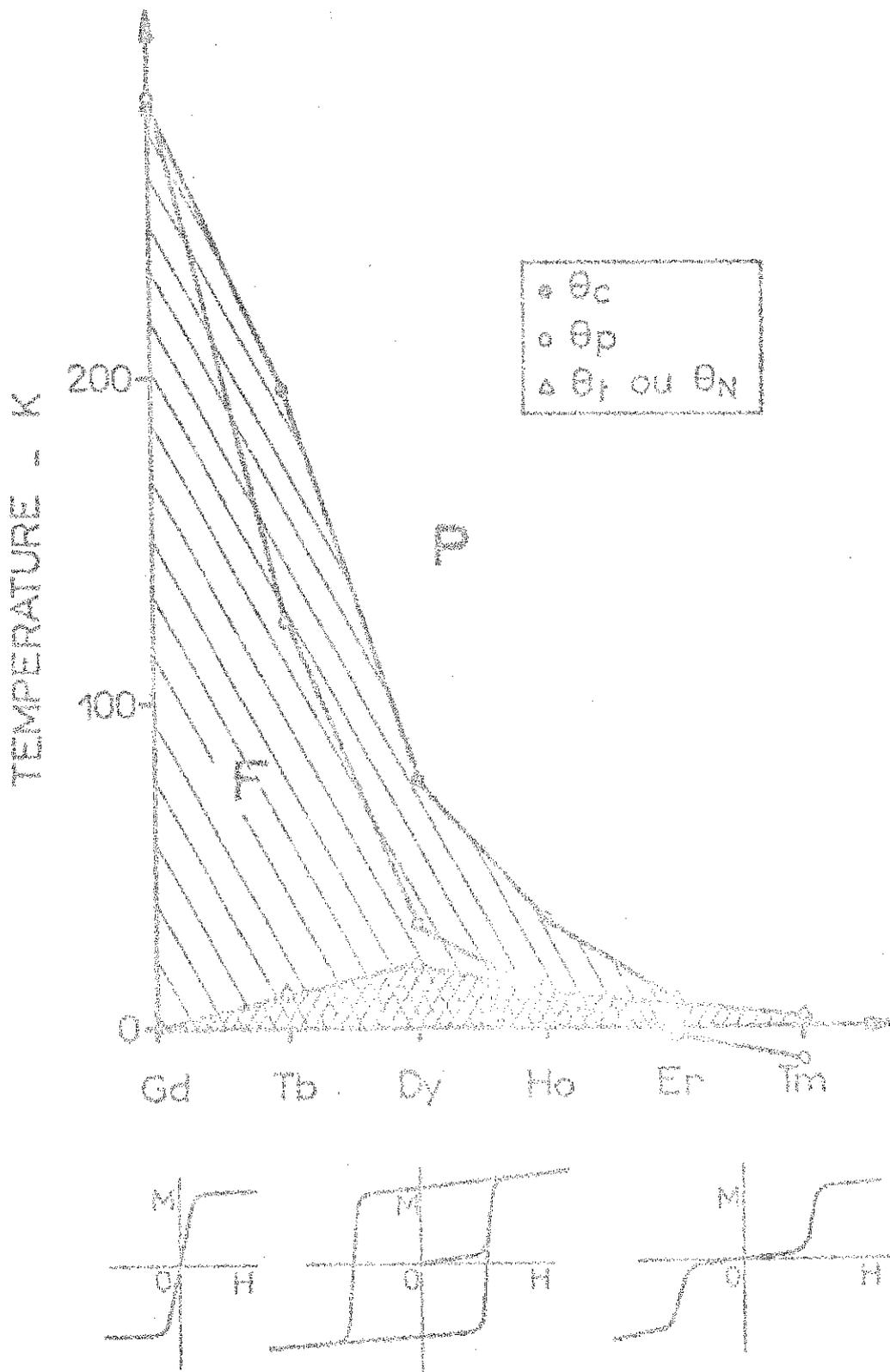


Figure II-9 : Variation des températures de Curie et de transition en fonction du remplissage de la couche 4f.

moments effectifs des atomes de terres rares supérieures à celles des ions libres T^{3+} ont déjà été observées dans des alliages du gadolinium avec l'argent⁽²⁹⁾, le cadmium⁽²⁹⁾, l'or⁽²⁹⁾, l'indium⁽²⁹⁾, le cuivre⁽²⁹⁾, l'yttrium⁽³⁰⁾, le lanthane⁽³⁰⁾. Ces résultats s'interprètent par une contribution des électrons de conduction à la valeur du moment. L'origine de cette contribution relativement importante semble liée aux interactions d'échange entre les électrons de conduction eux-mêmes, plutôt qu'à la polarisation due aux interactions du type Rudermann-Kittel.

c - Discussion

La comparaison des aimantations à saturation absolue et des températures de Curie du gadolinium métallique et du gadolinium dans Gd_3Al_2 montre que dans les composés T_3Al_2 , les interactions magnétiques dépendent davantage du nombre des électrons de conduction que de la concentration en atomes de terre rare ; en effet, l'aluminium comme les terres rares, en général, apporte trois électrons de conduction à la structure de bande du composé.

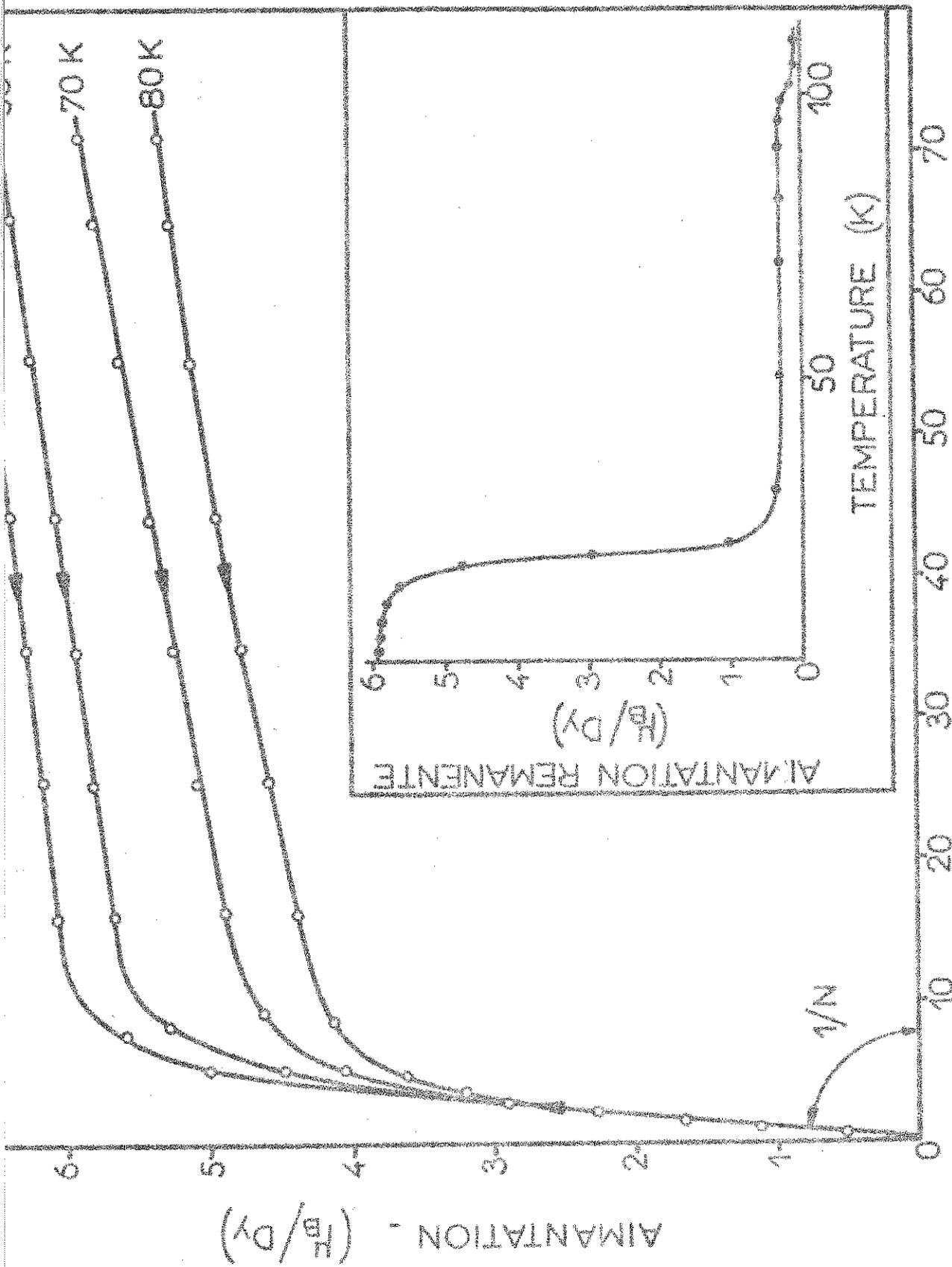
Sur la figure 11-9, nous avons représenté la variation des températures de Curie ferromagnétiques θ_c et paramagnétiques θ_p , ainsi que celle des températures de Néel θ_N et de transition θ_+ en fonction du numéro atomique de la terre rare alliée. Selon la température, il existe trois domaines différents : un domaine paramagnétique (non hachuré), un domaine ferromagnétique (hachuré) et un domaine particulier (quadrillé) ayant à la fois un caractère ferromagnétique et antiferromagnétique. Dans ce dernier intervalle les courbes de première aimantation sont caractéristiques d'un comportement métamagnétique, mais les variations isothermes de l'aimantation obtenues en champ décroissant indiquent qu'un ordre magnétique à forte aimantation spontanée peut être stable en champ nul. L'intervalle $\theta_c - \theta_+$ du domaine ferromagnétique diminue rapidement lorsque le remplissage de la bande 4f de l'atome de terre rare allié augmente ; il s'annule pour le composé Er_3Al_2 . Pour tous les composés présentant un tel domaine ferromagnétique, la température de Curie paramagnétique est positive, pour les autres elle est négative. Le gadolinium se trouvant dans un état S, le composé Gd_3Al_2 reste ferromagnétique à basse température. Avec les

autres terres rares, les effets du champ cristallin liés à la valeur élevée du moment orbital, conduisent à une forte anisotropie magnétocristalline : dans le domaine ferromagnétique, les composés ont une aimantation qu'un champ de 70 kOe ne suffit pas à saturer. Le comportement particulier observé sur les composés Tb_3Al_2 , Dy_3Al_2 et Ho_3Al_2 à basse température peut s'expliquer par cette forte anisotropie. La configuration des moments induite par le champ serait stabilisée en champ nul par l'anisotropie malgré la forte aimantation spontanée de ces composés.

3 - ETUDE MAGNETIQUE DU COMPOSE MONOCRISTALLIN Dy_3Al_2

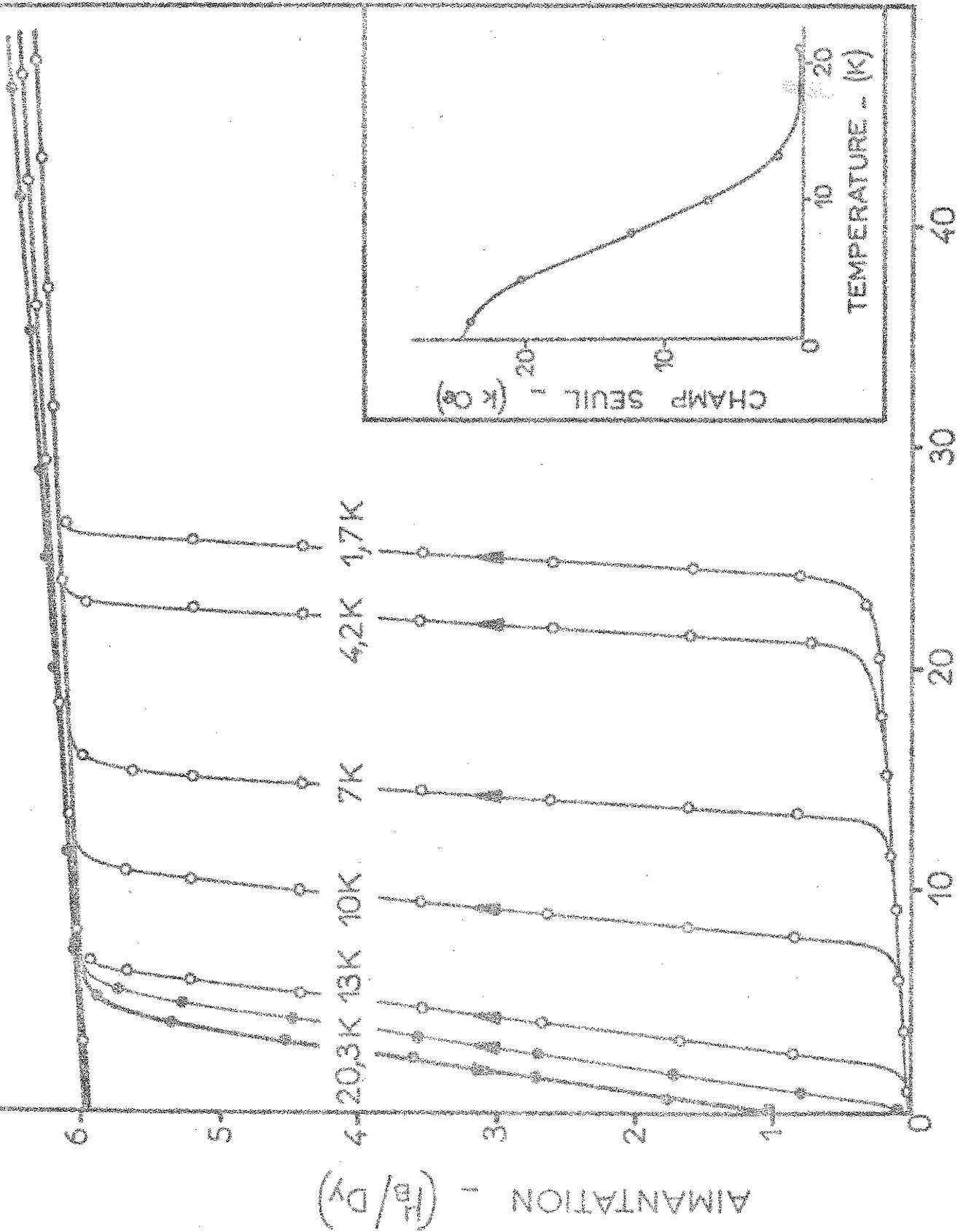
a - Mesures dans le domaine ordonné

Nous avons étudié sur une bille monocristalline de 3 mm de diamètre l'aimantation suivant les principales directions cristallographiques. Pour des températures comprises entre 20 K et la température de Curie, l'aimantation suivant l'axe c présente un cycle d'hystérésis très étroit (figures 11-10 et 11-12). En champ faible la courbe de première aimantation est une droite de pente égale à l'inverse du coefficient de champ démagnétisant, c'est-à-dire $3/4 \mu \text{ u.e.m. cm}^{-3} \text{ Oe}^{-1}$; pour des champs supérieurs au champ démagnétisant, un terme d'aimantation variant linéairement avec le champ se superpose à l'aimantation spontanée (figure 11-10). En-dessous de 20 K nous avons retrouvé les propriétés particulières observées sur l'échantillon polycristallin (figure 11-11). A 4,2 K le cycle d'hystérésis s'élargit et le champ coercitif atteint 21 kOe (figure 11-12). La courbe de première aimantation ne ressemble plus à celle d'un matériau ferromagnétique ; l'aimantation varie peu et linéairement jusqu'à un champ seuil, voisin du champ coercitif à partir duquel elle augmente brusquement. Le champ seuil décroît rapidement lorsque la température croît jusqu'à 10 K puis s'annule de manière évanescence vers 20 K. La susceptibilité déterminée en champ faible sur la courbe de première aimantation est égale à la susceptibilité superposée mesurée dans les champs supérieurs à 25 kOe. L'aimantation rémanente (figure 11-10) décroît très brusquement à 20 K mais ne s'annule qu'à 105 K, température de Curie du composé.



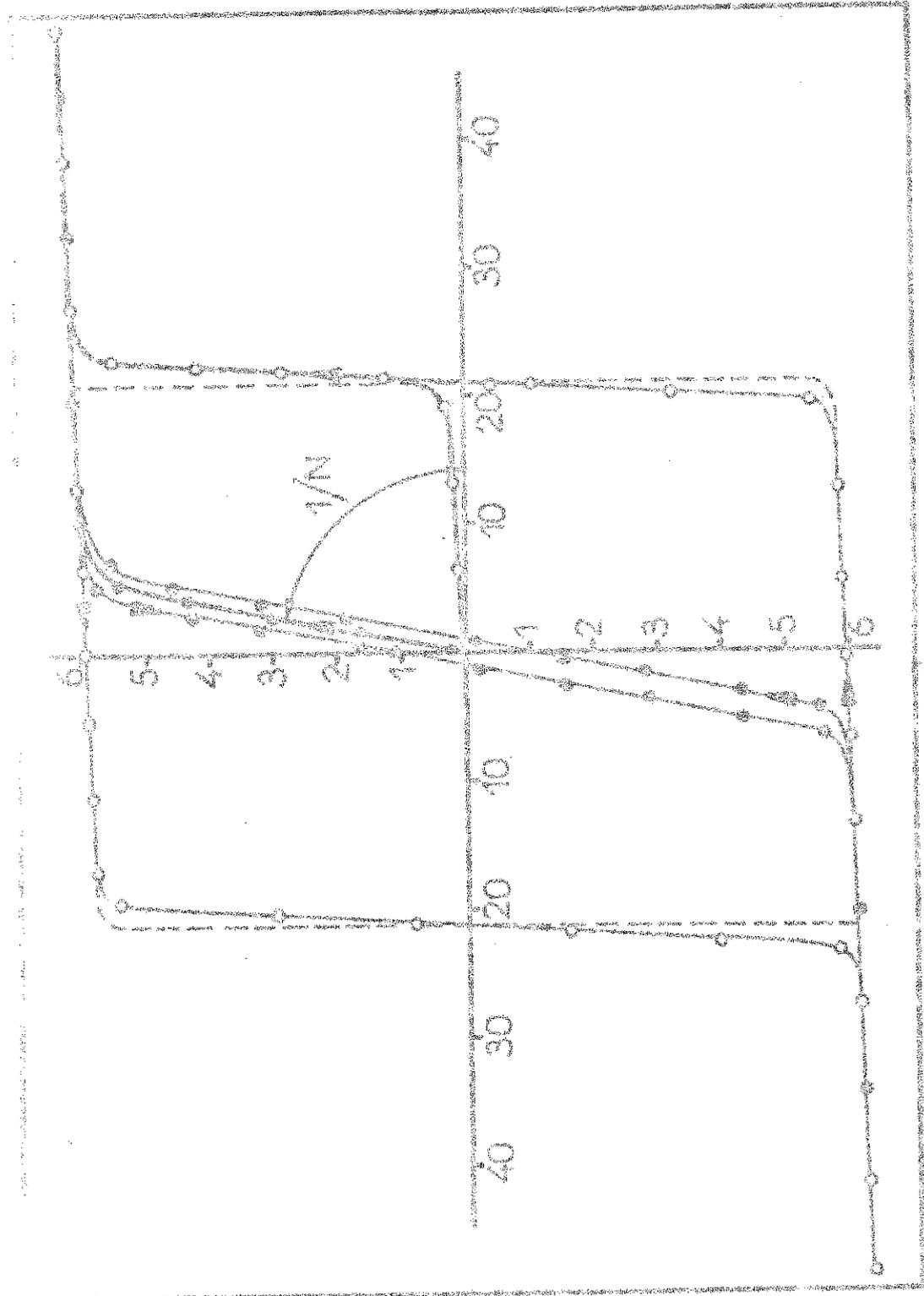
CHAMP APPLIQUE - kOe

Figure II-10 : Aimantation de Dy_3Al_2 mesurée suivant l'axe c. Variation thermique de l'aimantation rémanente.



CHAMP APPLIQUE - kOe

Figure II-11: Aimantation de Dy_3Al_2 mesurée suivant l'axe c. Variation thermique du champ seuil.

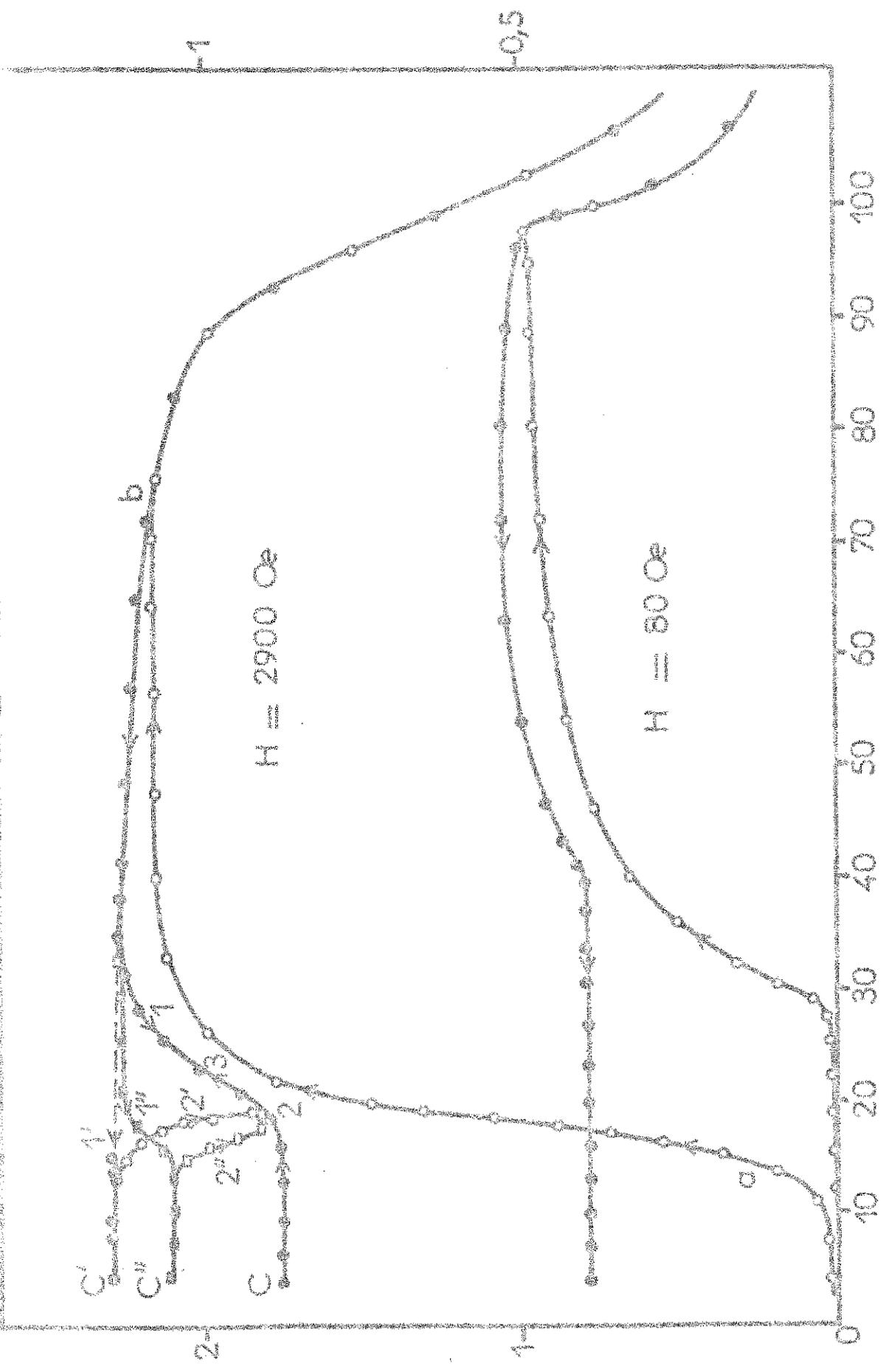


CHAMP MAGNETIQUE APPLIQUE - kOe

Figures 11-12 : Courbes de premiere aimantation et cycles d'hysteresis de Dy₂Al₂ mesurés selon l'axe a à 4.2 et 20 K.

AIMANTATION - (H/dy)

AIMANTATION SOUS 80 Oe - (H/D)



AIMANTATION SOUS 2900 Oe - (H/D)

Figure II-13 : Aimantation de Dy_3Al_2 mesurée selon l'axe c par températures croissantes et décroissantes.

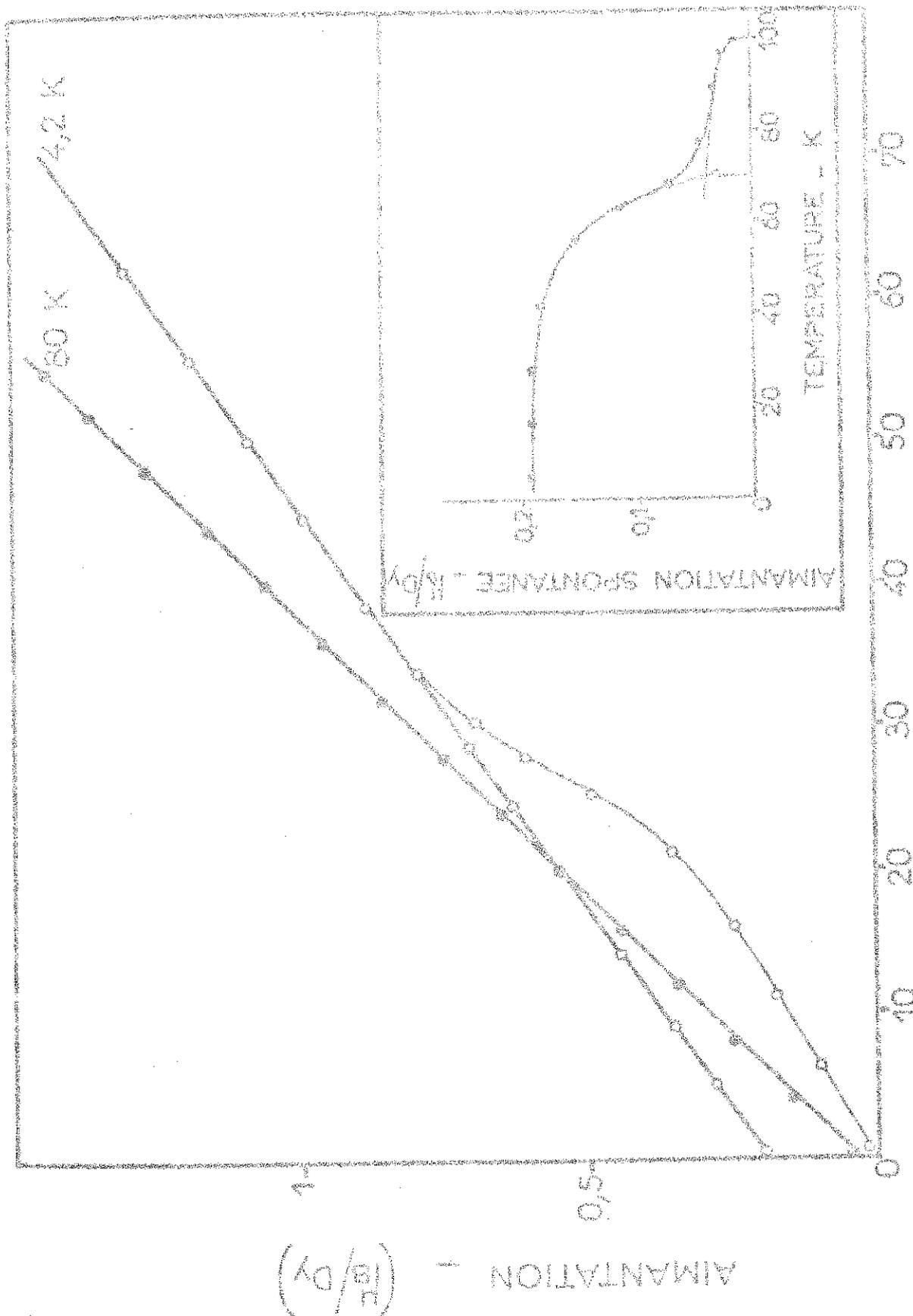
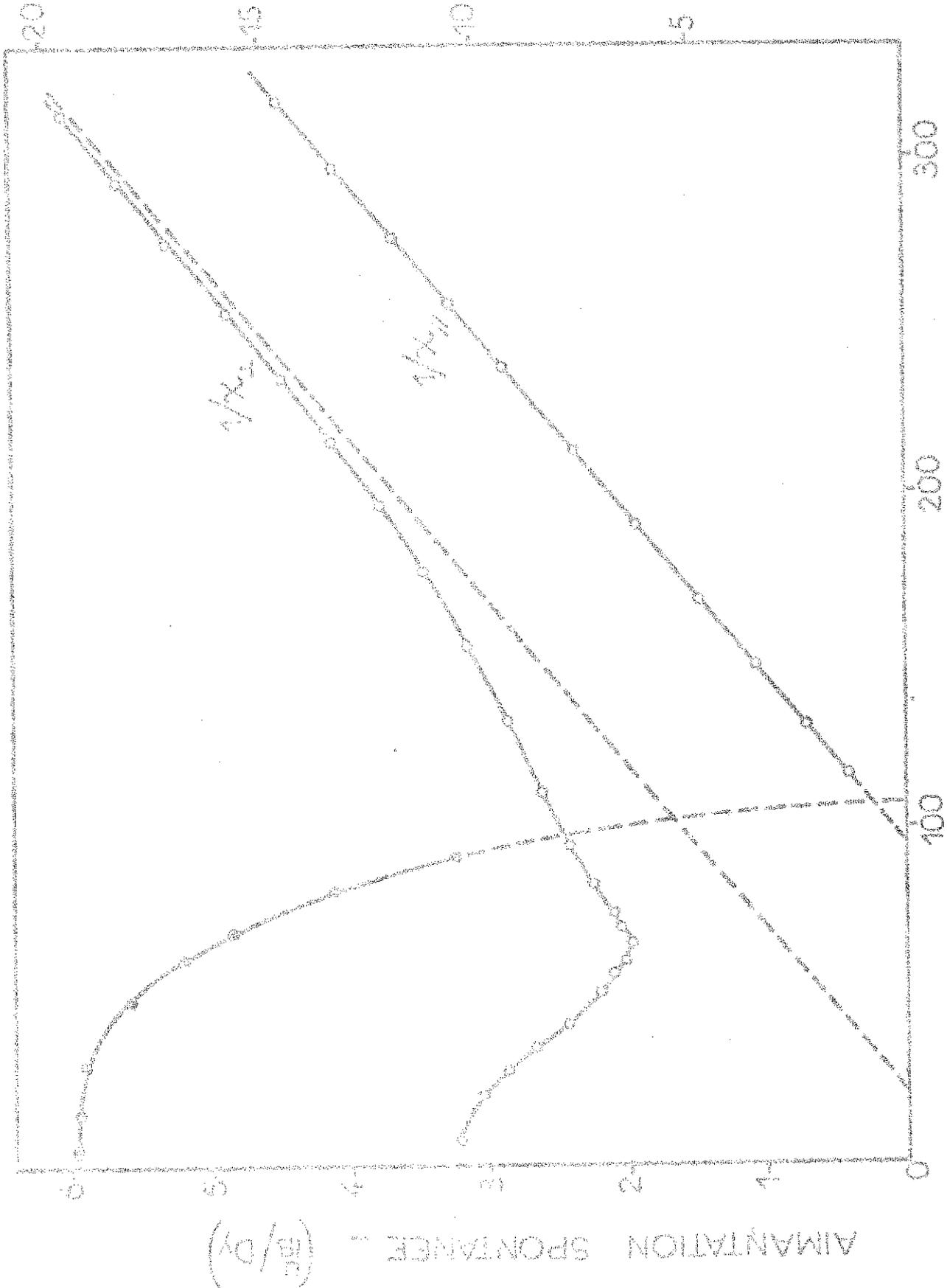


Figure II-14 : Aimantation de Dy_3Al_2 mesurée suivant l'axe d. Variation thermique de l'aimantation spontanée.

INVERSE DE LA SUSCEPTIBILITE MOLECULAIRE
PAR ATOME DE DYSPROSIUM



TEMPERATURE --- K

Figure II-15 : Variation thermique de l'inverse des susceptibilités moléculaires parallèles et perpendiculaire de Dy_2Al_3 . Variation thermique de l'aimantation spontanée mesurée selon l'axe c.

Nous avons représenté (figure 11-13) la variation thermique de l'aimantation dans des champs de 80 Oe et 2900 Oe. L'échantillon refroidi hors du champ présente à 4,2 K une faible aimantation qui croît brusquement à partir d'une température critique θ_+ fonction du champ (courbe ab). Pour des champs de 80 Oe et 2900 Oe, θ_+ vaut respectivement 30 et 20 K. En température décroissante l'aimantation acquise est presque totalement conservée ; on observe cependant une viscosité aux températures voisines de θ_+ . Lorsque la température décroît lentement (0,5° par minute), l'aimantation diminue au passage de θ_+ (courbe b 12c). Si l'échantillon est refroidi brusquement de 40 à 4,2 K, aucune diminution de l'aimantation n'est observée (courbe b1'c'). La courbe b1''c'' est obtenue pour une vitesse de refroidissement de 4° par minute. Si après avoir induit l'aimantation en c, c', ou c'' on élève la température, les aimantations tendent vers une même valeur à la température critique ; les variations obtenues sont alors représentées par les courbes c23b, c'2'3b et c''2''3b.

Selon les axes de difficile aimantation [100] ou [110], une très faible aimantation spontanée, environ 3 % de l'aimantation mesurée selon l'axe *c* subsiste (figure 11-14). Sa variation thermique n'est pas monotone : elle diminue brusquement au voisinage de 65 K, température définie par l'intersection des deux tangentes d'inflexion, et elle s'annule à 105 K, température de Curie. Un défaut d'orientation du cristal ou sa mosaïque (15°) peuvent expliquer l'aimantation spontanée résiduelle observée entre 65 et 105 K. L'inverse de la susceptibilité perpendiculaire passe par un minimum à 65 K, qui semble associé à la variation particulière de l'aimantation spontanée observée (figure 11-15).

b - Mesure dans le domaine paramagnétique

Nous avons représenté (figure 11-15) la variation thermique de l'inverse de la susceptibilité moléculaire mesurée parallèlement et perpendiculairement à l'axe *c*. Les susceptibilités parallèle $1/X_{//}$ et perpendiculaire $1/X_{\perp}$ obéissent à la loi de Curie-Weiss, pour les températures respectivement supérieures à 105 et 200 K. Les températures de Curie paramagnétiques qu'elles

définissent sont $\theta_{//} = 95$ K et $\theta_{\perp} = 20$ K. La valeur du moment effectif est égale suivant les deux directions ($11,1 \mu_B$) et, est en accord avec celle mesurée sur un échantillon polycristallin ($11,2 \mu_B$).

c - Discussion

L'écart entre les températures de Curie paramagnétiques $\theta_{//}$ et θ_{\perp} confirme le caractère fortement anisotrope de Dy_3Al_2 , déjà observé sur les variations isothermes de l'aimantation d'un échantillon polycristallin et sur celles mesurées suivant les différents axes cristallographiques du monocristal. Ces mesures permettent d'évaluer à 450 kOe environ le champ d'anisotropie. Le champ coercitif et l'aimantation rémanente sont généralement associés à une anisotropie élevée ; le champ seuil et le champ coercitif toujours voisins décroissent brutalement vers 20 K en même temps que l'aimantation rémanente ; la transition de type métamagnétique observée sur Dy_3Al_2 est donc probablement liée à la forte anisotropie magnétocristalline de ce composé.

La valeur peu élevée de l'aimantation spontanée mesurée à 4,2 K suivant l'axe de facile aimantation ($5,95 \mu_B/Dy$) et la susceptibilité superposée à cette aimantation, indiquent que la structure magnétique des moments est non colinéaire à basse température. Le minimum de $1/\chi_{\perp}$ à 65 K s'expliquerait alors par l'apparition d'une composante antiferromagnétique dans le plan de base.

La variation thermique de l'inverse de la susceptibilité paramagnétique $1/\chi_{//}$ mesurée selon l'axe *c* de facile aimantation est linéaire. Le champ moléculaire et les coefficients du potentiel cristallin selon cet axe, au niveau de chaque atome, sont donc pratiquement indépendants du site cristallographique occupé. Au contraire, l'écart à la loi de Curie-Weiss de l'inverse de la susceptibilité perpendiculaire $1/\chi_{\perp}$ peut s'interpréter par des coefficients différents du potentiel cristallin du plan de base selon que les atomes de dysprosium occupent le site 4b ou les sites 4c.

C H A P I T R E I I I

ETUDE PAR DIFFRACTION NEUTRONIQUE DES COMPOSES Tb_3Al_2 ET Dy_3Al_2

Nous avons déterminé les structures magnétiques des composés Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2 par diffraction de neutrons monochromatiques non polarisés ($\lambda = 1,125 \text{ \AA}$ et $\lambda = 1,11 \text{ \AA}$) sur des échantillons polycristallins. Les mesures ont été réalisées au Laboratoire de Diffraction Neutronique du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

1 - METHODE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans la diffraction cohérente des neutrons, deux processus élémentaires interviennent : la diffusion nucléaire qui permet de situer les atomes dans la maille et la diffusion magnétique due aux interactions entre le moment magnétique du neutron et le moment magnétique d'un atome. Après corrections des facteurs de Lorentz et de Debye, les intensités des raies diffractées par un échantillon polycristallin à une température inférieure à la température d'ordre magnétique sont, pour des neutrons non polarisés, de la forme :

$$I = I_N + I_M$$

L'intensité nucléaire I_N vaut :

$$I_N = p |F_N|^2$$

p est la multiplicité du plan réflecteur considéré et F_N le facteur de structure nucléaire ;

$$F_N = \sum_j b_j \exp 2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}_j,$$

avec b_j = longueur de Fermi de l'atome en r_j

\vec{h} = le vecteur de diffusion du plan (hkl).

L'intensité magnétique I_M diffractée par le plan réticulaire (hkl) s'écrit :

$$I_M = \vec{F}_M \cdot \vec{F}_M^* - d^2 (\vec{h} \cdot \vec{F}_M) (\vec{h} \cdot \vec{F}_M^*),$$

d représente la distance inter-réticulaire relative aux plans (hkl), F_M est le facteur de structure magnétique.

$$\vec{F}_M = 0,27 \cdot 10^{-12} \sum \vec{m}_j f_j \exp 2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}_j,$$

\vec{m}_j et f_j sont respectivement le moment en magnétons de Bohr et le facteur de forme de l'atome en \vec{r}_j .

Dans le cas d'une configuration colinéaire de moments magnétiques, ces expressions deviennent pour une famille de plans réticulaires de multiplicité p :

$$I_M = p \langle q^2 \rangle |F_M|^2$$

$$F_M = 0,27 \cdot 10^{-12} \sum m_j f_j \exp 2\pi i \vec{h} \cdot \vec{r}_j,$$

avec $m_j = \pm |\vec{m}_j|$

$q^2 = \sin^2 \alpha$ où α est l'angle du vecteur de diffusion avec la direction des moments magnétiques ; $\langle q^2 \rangle$ est la moyenne des $\sin^2 \alpha$ relative aux plans (hkl).

A toute température supérieure à la température d'ordre magnétique les intensités diffractées sont de la forme :

$$I = I_N.$$

La diffusion magnétique n'est pas observée en raison de l'incohérence des ondes élémentaires diffractées par chaque moment magnétique.

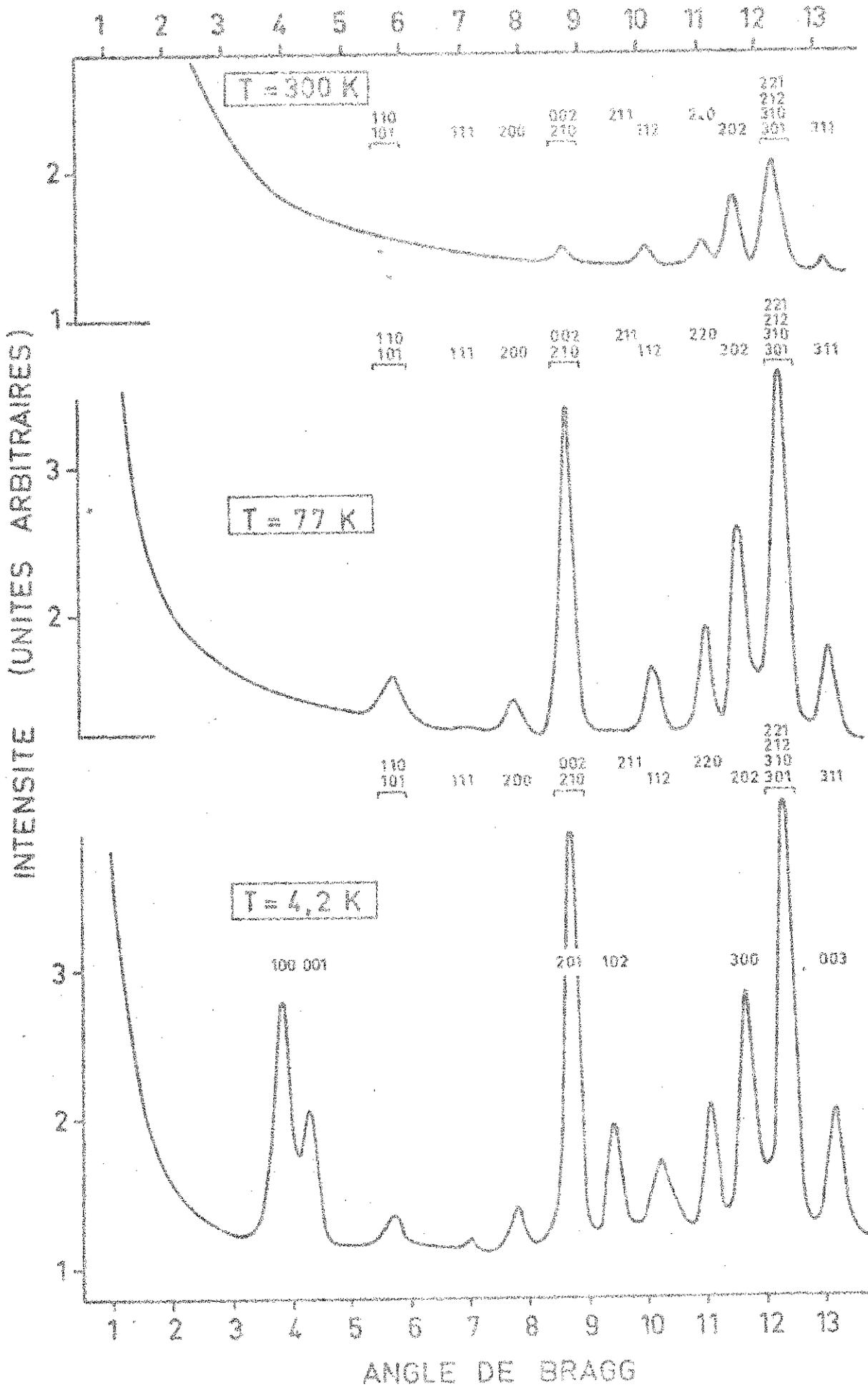


Figure III-1 : Diagramme de diffraction neutronique, du composé Tb_3Al_2 .

Figure III-2.

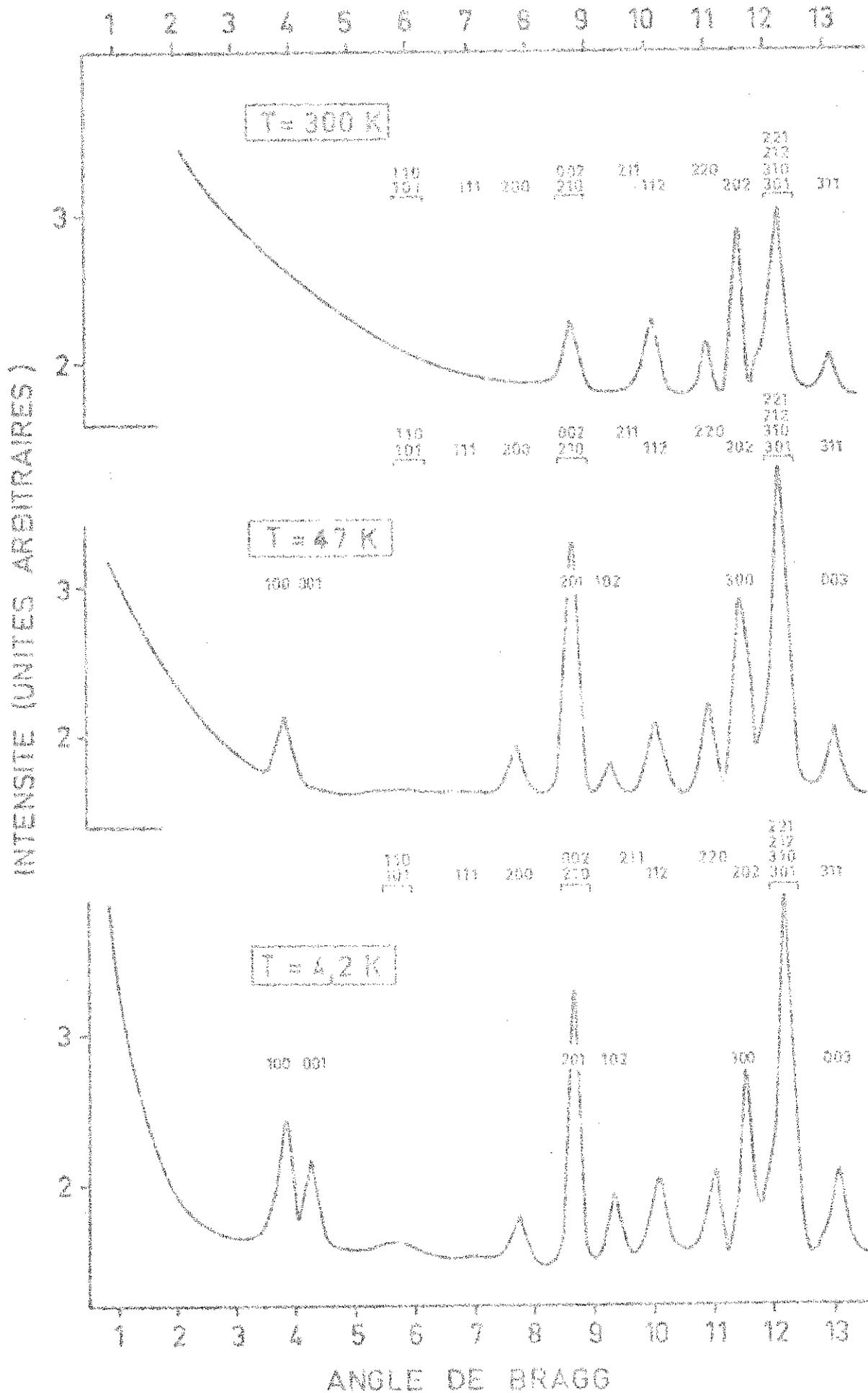


Figure III-2 : Diagramme de diffraction neutronique du composé Dy_3Al_2 .

Nous avons enregistré les diagrammes de diffraction neutronique des composés Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2 respectivement à 300 K, 77 K, 4,2 K et 300 K, 77 K, 47 K, 4,2 K (figures III-1 et III-2). Afin d'atténuer l'absorption nous avons dilué l'échantillon de Dy_3Al_2 dans de la poudre d'aluminium de diamètre inférieur à 5 μ . Le coefficient d'absorption obtenu est $\mu R = 1$.

Les intensités des raies observées à la température ambiante s'interprètent par la diffusion nucléaire cohérente des neutrons (tableaux I-4 et III-1). Nous utilisons les longueurs de diffusion suivantes : $b_{Tb} = 0,76 \cdot 10^{-12}$ cm, $b_{Dy} = 1,69 \cdot 10^{-12}$ cm et $b_{Al} = 0,35 \cdot 10^{-12}$ cm. A 77K, température inférieure aux températures de Curie des composés étudiés (190 K pour Tb_3Al_2 et 92 K pour Dy_3Al_2), la diffusion magnétique cohérente des neutrons entraîne une très forte augmentation de l'intensité des raies observées à 300 K.

Les diagrammes enregistrés à 4,2 K et 47 K sont semblables ; en plus de l'augmentation de l'intensité des raies de diffraction caractéristiques du groupe $P4_2nm$, on observe des raies interdites 100, 001, 102, et 003. La maille magnétique reste identique à la maille cristallographique.

2 - RECHERCHE DES CONFIGURATIONS MAGNETIQUES COMPATIBLES AVEC LA SYMETRIE DU CRISTAL

Le principe de la méthode macroscopique introduite par Naish et Turov⁽³¹⁾ et développée par Bertaut⁽³²⁾ consiste à déterminer les configurations magnétiques compatibles avec la symétrie cristalline ; ces configurations sont décrites par les vecteurs de base V_Γ des représentations irréductibles Γ du groupe cristallographique. Dans une telle représentation, à l'élément de symétrie α est associé un caractère, noté $\chi_{(\alpha)}^\Gamma$. La technique de l'opérateur de projection permet de construire le vecteur de base $V_\Gamma = \sum_{\alpha} \chi_{(\alpha)}^\Gamma \alpha(m_1)$. La sommation est étendue à tous les éléments de symétrie du groupe cristallographique ; m_1 représente un des moments dans la maille considérée.

T A B L E A U III-1

Intensités nucléaires calculées et observées sur Dy_3Al_2
(neutrons $\lambda = 1,11 \text{ \AA}$)

h k l	θ_c	I_c		I_o
1 1 0	5,51	19,6	} 29,7	36
1 0 1	5,76	10,1		
1 1 1	6,96	14,1		20
2 0 0	7,81	0,9		1
0 0 2	8,49	38,9	} 463,1	390
2 1 0	8,74	424,2		
2 1 1	9,72	5,3		5
1 1 2	10,14	545,4		552
2 2 0	11,08	540,0		452
2 0 2	11,57	1627,7		1696
2 2 1	11,88	133,7	} 3229,8	3297
2 1 2	12,23	1697,1		
3 1 0	12,40	1383,4		
3 0 1	12,52	15,6		
3 1 1	13,13	426,6		435

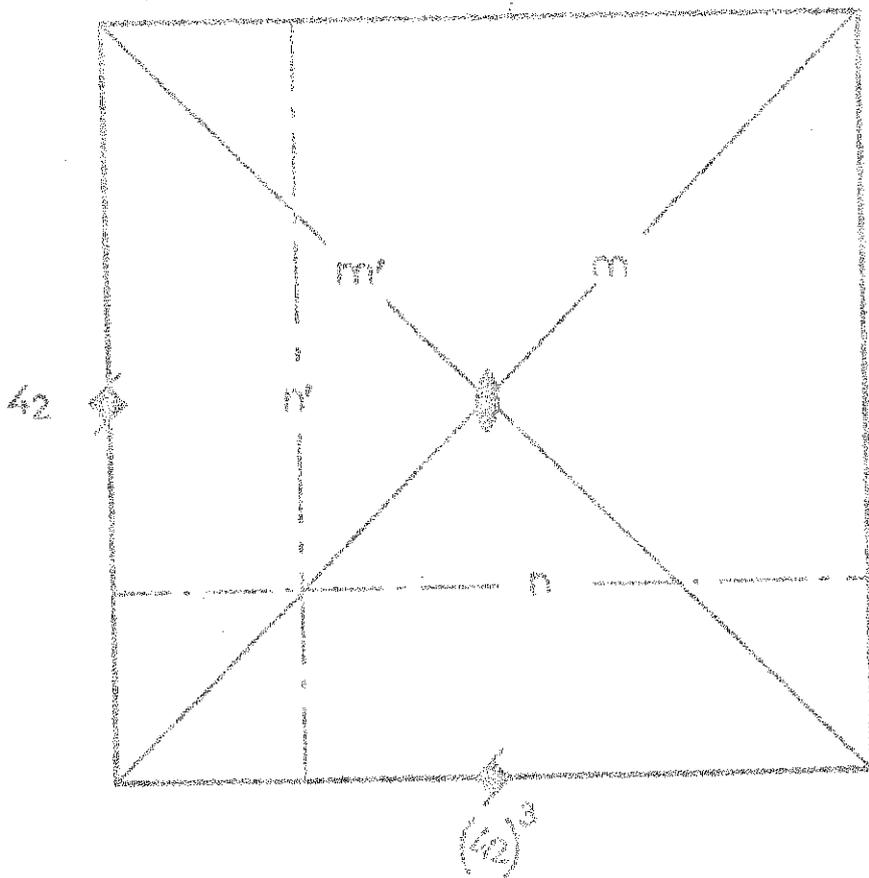


Figure III-3 : Positions des éléments de symétrie.

Dans les composés T_3Al_2 , les moments magnétiques sont portés par les douze atomes de terres rares de la maille, répartis en trois sites (tableau I-1). Les huit opérations de symétrie du groupe $P4_2nm$ sont représentées sur la figure III-3. La table de multiplication de ces opérations (tableau III-2), permet de classer les éléments conjugués en cinq sous-ensembles ou classes : m et m' , n et n' , 4_2 et $(4_2)^3$, 2 , et l'élément identité e . Le groupe considéré présente donc cinq représentations irréductibles. La somme des carrés des dimensions de chaque représentation étant égale à l'ordre du groupe, quatre d'entre elles sont unidimensionnelles, la cinquième est à deux dimensions. L'ensemble des cinq représentations est donné dans le tableau III-3. Les transformations des moments magnétiques, considérés comme des vecteurs axiaux, à travers les huit éléments du groupe sont décrits dans le tableau III-4. Les configurations magnétiques associées à chaque représentation irréductible sont indiquées sur le tableau III-5. Elles s'expriment à l'aide des quatre vecteurs \vec{f} , \vec{g} , \vec{c} , \vec{a} , correspondant respectivement aux arrangements colinéaires $(++++)$, $(+--+)$, $(++--)$ et $(+---)$ des moments magnétiques.

3 - DETERMINATION DE LA STRUCTURE MAGNETIQUE DE Tb_3Al_2 ET Dy_3Al_2

Les diagrammes de diffraction neutronique de ces deux composés sont semblables, et nous les discuterons simultanément.

A 77 K, les règles d'extinction du groupe $P4_2nm$ sont conservées. Les moments magnétiques des atomes d'un même site sont parallèles. La forte intensité de la raie 210 met en évidence le couplage ferromagnétique de tous les atomes entre eux. L'axe de facile aimantation est l'axe quaternaire. Nous avons utilisé les facteurs de forme proposés par Steinsvoll et al⁽³³⁾ pour le terbium, par Nereson et al⁽³⁴⁾ pour le dysprosium. Le meilleur accord entre les intensités calculées et observées (tableaux III-6 et III-7) est obtenu lorsque les moments des atomes du site 4b sont inférieurs à ceux du site 4c (tableau III-8). Les facteurs de confiance sont $R = 6 \%$ pour Tb_3Al_2 et $R = 10,4 \%$ pour Dy_3Al_2 .

T A B L E A U III-2

Table de multiplication des éléments du groupe $P4_2nm$

	e	$(4_2)^2$	n	n'	m	m'	$(4_2)^3$	4_2
e	e	$(4_2)^2$	n	n'	m	m'	$(4_2)^3$	4_2
$(4_2)^2$	$(4_2)^2$	e	n'	n	m'	m	4_2	$(4_2)^3$
n	n	n'	e	$(4_2)^2$	4_2	$(4_2)^3$	m'	m
n'	n'	n	$(4_2)^2$	e	$(4_2)^3$	4_2	m	m'
m	m	m'	$(4_2)^3$	4_2	e	$(4_2)^2$	n	n'
m'	m'	m	4_2	$(4_2)^3$	$(4_2)^2$	e	n'	n
4_2	4_2	$(4_2)^3$	m'	m	n	n'	e	$(4_2)^2$
$(4_2)^3$	$(4_2)^3$	4_2	m	m'	n'	n	$(4_2)^2$	e

T A B L E A U III-3

Représentations irréductibles du groupe $P4_2nm$.

éléments représen- tations	e	m	m'	$(4_2)^2$	4_2	$(4_2)^3$	n'	n
Γ_1	1	1	1	1	1	1	1	1
Γ_2	1	-1	-1	1	-1	-1	1	1
Γ_3	1	-1	-1	1	1	1	-1	-1
Γ_4	1	1	1	1	-1	-1	-1	-1
Γ_5	$\begin{bmatrix} 1 & . \\ . & 1 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} . & 1 \\ 1 & . \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} . & -1 \\ -1 & . \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} -1 & . \\ . & -1 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} . & -1 \\ 1 & . \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} . & 1 \\ -1 & . \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} -1 & . \\ . & 1 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 & . \\ . & -1 \end{bmatrix}$

T A B L E A U 111-4

Transformation des moments des atomes en positions 4c et 4b
à travers les éléments de symétrie du groupe $P4_2nm$

éléments moments	e	$(4_2)^2$	n	n'	m	m'	$(4_2)^3$	4_2	
4c {	m_{1x}	m_{1x}	$-m_{2x}$	$-m_{3x}$	m_{4x}	$-m_{1y}$	m_{2y}	$-m_{3y}$	m_{4y}
	m_{1y}	m_{1y}	$-m_{2y}$	m_{3y}	$-m_{4y}$	$-m_{1x}$	m_{2x}	m_{3x}	$-m_{4x}$
	m_{1z}	m_{1z}	m_{2z}	$-m_{3z}$	$-m_{4z}$	$-m_{1z}$	$-m_{2z}$	m_{3z}	m_{4z}
4b {	m_{1x}	m_{1x}	$-m_{1x}$	$-m_{4x}$	m_{4x}	$-m_{2y}$	m_{2y}	$-m_{3y}$	m_{3y}
	m_{1y}	m_{1y}	$-m_{1y}$	m_{4y}	$-m_{4y}$	$-m_{2x}$	m_{2x}	m_{3x}	$-m_{3x}$
	m_{1z}	m_{1z}	m_{1z}	$-m_{4z}$	$-m_{4z}$	$-m_{2z}$	$-m_{2z}$	m_{3z}	m_{3z}

T A B L E A U III-5

Configurations magnétiques associées à chaque représentation
irréductible du groupe $P4_2nm$

représentations	site 4c	site 4b
Γ_1	$A_x \quad -G_y \quad -$	$- \quad - \quad G_z$
Γ_2	$A_x \quad +G_y \quad C_z$	$- \quad - \quad C_z$
Γ_3	$G_x \quad +A_y \quad F_z$	$- \quad - \quad F_z$
Γ_4	$G_x \quad -A_y \quad -$	$- \quad - \quad A_z$
Γ_5	$\begin{bmatrix} C_x & \pm & F_y \\ C_y & \pm & F_x \end{bmatrix} \quad \begin{bmatrix} A_z \\ -G_z \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \sigma_y^{23} \pm \delta_x^{14} \\ \sigma_x^{14} \pm \delta_y^{23} \end{bmatrix} \quad \begin{bmatrix} \sigma_y^{14} \pm \delta_x^{23} \\ \sigma_x^{23} \pm \delta_y^{14} \end{bmatrix} \quad -$

$$\sigma^{14} = m_1 + m_4$$

$$\delta^{14} = m_1 - m_4$$

$$\sigma^{23} = m_2 + m_3$$

$$\delta^{23} = m_2 - m_3$$

T A B L E A U III-B

Intensités magnétiques calculées et observées sur Tb_3Al_2

77 K

h	k	l	θ	I_{obs}	I_{calc}	$(I_{\text{M}} - I_{\text{m}})_{\text{calc}}$	I_{obs}	I_{calc}	$(I_{\text{M}} - I_{\text{m}})_{\text{calc}}$	I_{obs}
1	0	0	3.92	0	0.0	0.0	0	0	133.2	136
0	0	1	4.34	0	0.0	0.0	0	0	64.0	60
1	1	0	5.52	0.1	15.3	40.7	0.1	0.1	25.5	30
0	1	1	6.36	1.9	23.8		0.9	0.9	16.4	13
2	0	0	7.82	0.1	20.5	26.5	0.1	1.9	24.5	88
0	0	2	8.55	1.2	31.5	61.7	1.2	0.1	75.6	1127
2	1	0	8.77	35.3	627.9	667.9	35.3	35.3	1127.3	458
0	0	1	8.85	0.0	0.0	0.0	0	0	42.8	273
1	1	1	9.59	0.0	0.0	0.0	0	0	340.7	551
1	1	2	9.78	2.0	2.3	4.3	2.0	2.0	117.6	1161
2	0	2	10.22	71.2	152.1	223.3	71.2	71.2	155.2	3078
0	2	0	11.00	126.5	754.4	590.9	126.5	126.5	322.1	470.8
2	0	2	11.68	374.8	545.1	1019.9	374.8	374.8	524.3	3078
0	0	0	11.78	0.0	0.0	0.0	0	0	76.0	653
2	1	0	11.92	53.7	149.8		53.7	53.7	106.9	470.8
0	1	2	12.51	957.5	698.1	2532.7	457.6	457.6	1388.4	653
2	1	0	12.45	332.0	620.9	1683.4	332.3	332.3	605.0	3078
0	0	1	12.56	5.7	23.6		5.7	5.7	5.1	470.8
0	0	3	13.10	0	0.0	517.9	0	0	426.6	653
0	1	1	13.17	145.7	517.9		145.7	145.7	44.0	653

T A B L E A U III

Intensités magnétiques calculées et observées sur U_3Al_2

M A I	θ	4,2 K			47 K			77 K		
		I _{calc}	(I _N · I _M) _{calc}	I _{obs}	I _{calc}	(I _N · I _M) _{calc}	I _{obs}	I _{calc}	(I _N · I _M) _{calc}	I _{obs}
1 0 0	3,89	219,7	216,1	103,2	108,2	0	0	0	0	n.o.
0 0 1	4,23	182,6	182,6	0,0	0,0	n.o.	0	0	0	n.o.
1 1 0	5,31	20,0	30,1	0,0	13,3	0	0	0	0	0
1 1 1	5,76	10,1	59,3	13,0	43,0	0	0	0	0	0
1 1 1	6,95	38,5	32,7	38,3	29,3	n.o.	0	0	0	0
2 0 0	7,81	176,2	177,1	122,1	121,0	188	0	0	0	0
0 0 2	8,42	0,0	1760,0	0,0	1507,0	1660	0	0	0	0
2 1 0	8,74	470,1	1320,3	1033,0	1031,8	1560	0	0	0	0
0 1 0	8,99	120,6	675,8	0,0	304,0	0	0	0	0	0
1 0 2	9,35	534,1	891,3	300,5	300,0	300	0	0	0	0
2 1 1	9,72	847,7	606,1	3,0	591,9	0	0	0	0	0
1 1 2	10,14	30,3	806,4	89,7	805,0	0	0	0	0	0
1 2 0	11,06	250,4	406,6	279,0	405,0	0	0	0	0	0
2 0 2	11,57	607,3	7206,1	446,8	7205,4	2000	0	0	0	0
0 0 0	11,76	118,7	528,7	0,0	224,4	0	0	0	0	0
2 2 1	11,88	134,4	104,4	81,9	103,8	0	0	0	0	0
2 1 2	12,23	1585,3	2317,3	1231,3	2305,6	4700	0	0	0	0
2 1 0	12,40	576,5	5649,4	216,2	5648,6	0	0	0	0	0
0 0 1	12,62	6,1	1065,2	0,0	1065,2	0	0	0	0	0
0 0 2	12,78	178,1	619,9	0,0	619,9	0	0	0	0	0
0 0 3	13,13	643,6	1065,2	446,3	1065,2	0	0	0	0	0

T A B L E A U III-8

Modules et angles avec l'axe c des moments des atomes en positions 4c et 4b pour Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2

Composés températures	Dy_3Al_2	Tb_3Al_2
77 K	$m_{4c} = 3,7 \mu_B$ $\varphi_{4c} = 0$ $m_{4b} = 2,5 \mu_B$ $\varphi_{4b} = 0$	$m_{4c} = 8,1 \mu_B$ $\varphi_{4c} = 0$ $m_{4b} = 5,2 \mu_B$ $\varphi_{4b} = 0$
47 K	$m_{4c} = 7,5 \mu_B$ $\varphi_{4c} = 0$ $m_{4b} = 7,5 \mu_B$ $\varphi_{4b} = 65^\circ$	
4,2 K	$m_{4c} = 8,7 \mu_B$ $\varphi_{4c} = 30^\circ$ $m_{4b} = 8,7 \mu_B$ $\varphi_{4b} = 75^\circ$	$m_{4c} = 8,4 \mu_B$ $\varphi_{4c} = 18^\circ$ $m_{4b} = 8,4 \mu_B$ $\varphi_{4b} = 55^\circ$

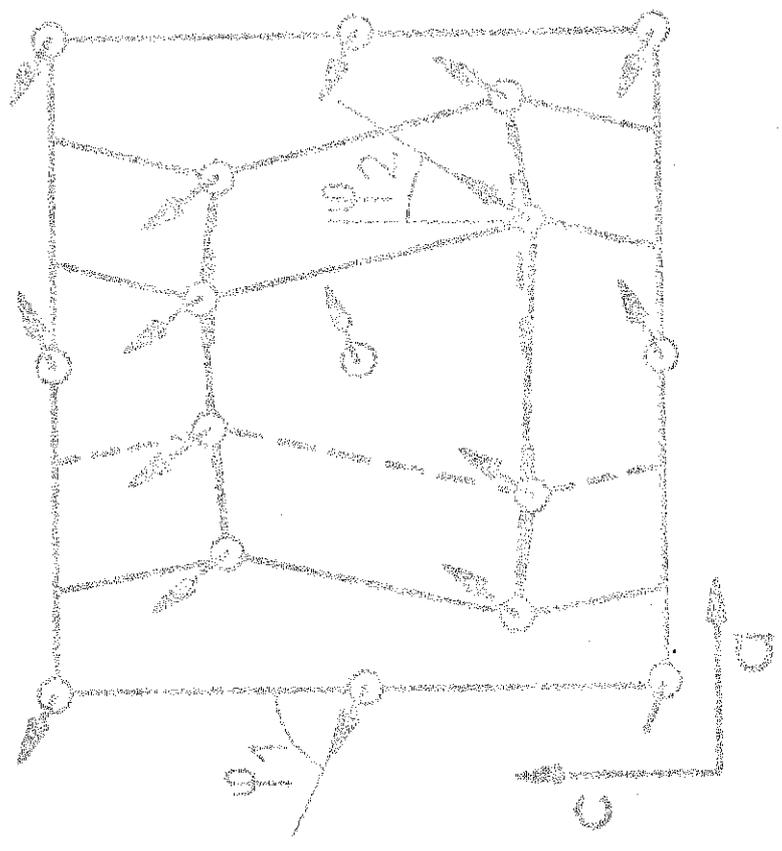
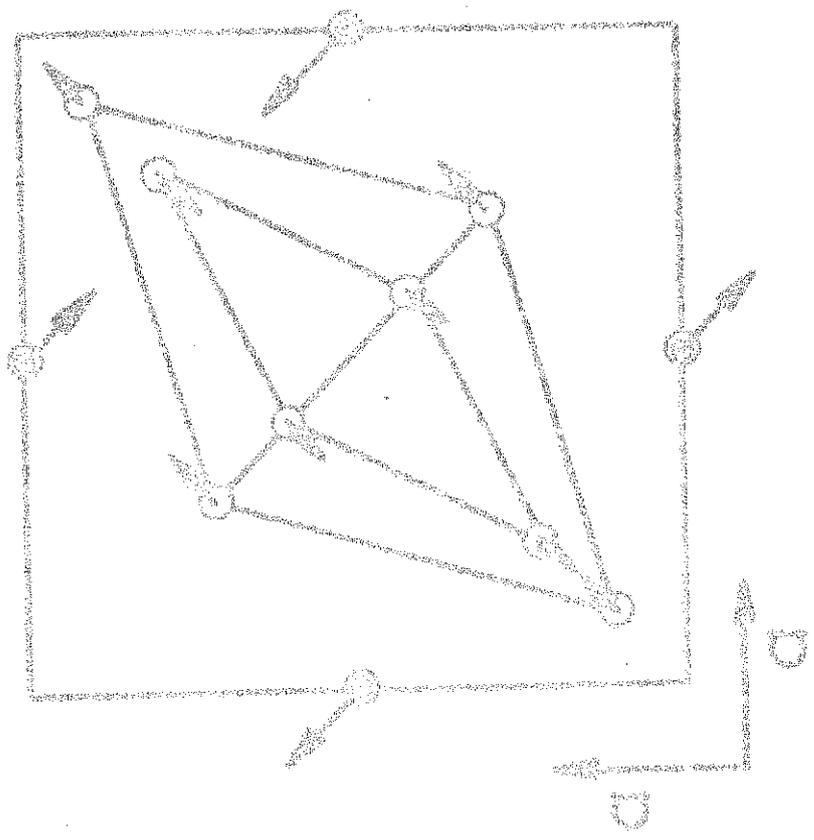


Figure III-4 : Structure magnétique des composés Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2 .

A 47 K et 4,2 K l'augmentation de l'intensité des raies caractéristiques du groupe $P_{4,2nm}$ est analogue à celle observée à 77 K ; la structure magnétique possède une composante ferromagnétique parallèle à l'axe c . Les raies de surstructure sont caractéristiques d'une configuration antiferromagnétique. A ces températures la structure magnétique n'est donc pas colinéaire. La raie 001 est caractéristique d'un arrangement C_x ou C_y des moments des sites 4c, les raies 100 et 102, d'un arrangement G_x ou G_y des moments du site 4b. L'arrangement de la composante antiferromagnétique dans le plan de base est donc complexe. L'intensité de la raie 102 montre que la composante antiferromagnétique du site 4b doit être perpendiculaire à celle du site 4c. Le meilleur facteur de véracité ($R = 5,5 \%$ pour Tb_3Al_2 à 4,2 K ; $R = 9,5 \%$ et $R = 4,7 \%$ pour Dy_3Al_2 à 47 K et 4,2 K) est obtenu pour la structure représentée sur la figure III-4. Cependant, l'intensité des raies dépend peu de l'orientation, par rapport aux axes cristallographiques, des composantes antiferromagnétiques du plan de base ; seule une étude de diffraction neutronique sur l'échantillon monocristallin permettrait de la déterminer avec précision. Les moments des atomes de terres rares sont caractérisés par leurs modules m et les angles ψ qu'ils font avec l'axe Oz (tableau III-8). Dans les tableaux III-6 et III-7 nous comparons les intensités calculées à l'aide de ces valeurs aux intensités observées.

4 - DISCUSSION

La structure magnétique des composés étudiés se modifie progressivement avec la température. Au voisinage du point de Curie les moments sont tous parallèles entre eux ; le composé présente une forte aimantation spontanée. A plus basses températures, les moments s'écartent régulièrement de l'axe c lorsque la température décroît. Pour Dy_3Al_2 , les moments magnétiques du site 4b ne sont plus colinéaires à des températures inférieures à 65 K ; cette dernière correspond au minimum de l'inverse de la susceptibilité perpendiculaire (figure II-15). Les moments magnétiques des atomes des sites 4c s'écartent de l'axe c aux températures inférieures à 14 K seulement. Aucune modification de la structure n'est observée au passage de la température

critique $\theta_+ = 20$ K. Ces résultats semblent en contradiction avec les mesures d'aimantation. En effet, en-dessous de 20 K, pour un échantillon refroidi en dehors du champ la variation isotherme de l'aimantation est analogue à celle d'un composé antiferromagnétique. Pour s'assurer de cette contradiction, nous avons montré qu'aucune structure antiferromagnétique, c'est-à-dire aucun arrangement de moments ayant une résultante nulle ne peut rendre compte des intensités observées (annexe I). Le composé est ferromagnétique ; il présente une aimantation spontanée. Seul un processus d'aimantation original peut rendre compte des courbes de première aimantation observées en-dessous de θ_+ ; jusqu'à présent, de telles courbes étaient considérées comme caractéristiques de composés métamagnétiques. Ce processus d'aimantation est dû à des parois de domaines d'un type nouveau qui restent figées tant que le champ appliqué est inférieur au champ seuil.

Dans les composés étudiés, si la structure magnétique est colinéaire, elle appartient à la représentation irréductible Γ_3 . Afin de représenter l'ordre non colinéaire observé à basse température on doit associer aux vecteurs de base de la représentation Γ_3 ceux de la représentation Γ_5 . Pour rester invariante à travers les opérations de symétrie de la structure cristallographique, l'énergie magnétique ne peut pas s'exprimer seulement par une forme quadratique de l'aimantation en raison de la très forte anisotropie magnétocristalline dont les termes du quatrième ordre ne sont pas négligeables.

DEUXIEME PARTIE

PROCESSUS D'AIMANTATION PARTICULIER AUX COMPOSES FERROMAGNETIQUES

A FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE

CHAPITRE I

ETUDE DES PAROIS ENTRE DOMAINES MAGNETIQUES DES COMPOSES A FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE

Certains composés ferromagnétiques ou ferrimagnétiques $\text{Fe}_3\text{MnTm}^{(36)}$, $\text{Dy}_4\text{Co}_3^{(37)}$, $\text{DyCo}_2^{(38)}$, $\text{DyNiCo}^{(39)}$, $\text{Tb}_3\text{Co}^{(40)}$, $\text{TbNi}^{(41)}$ ont, comme Dy_3Al_2 , des comportements magnétiques différents à basses températures suivant qu'ils sont ou non refroidis sous champ. Dans le premier cas, ils présentent une forte aimantation rémanente ; dans le second, l'aimantation sans champ est nulle, elle croît ensuite faiblement jusqu'à un certain champ seuil à partir duquel elle augmente rapidement avant de se saturer progressivement. Un tel comportement résulte d'un processus d'aimantation particulier associé à des parois entre domaines magnétiques qui restent figées tant que le champ appliqué est inférieur au champ seuil.

1 - NOTION DE PAROIS DE BLOCH

Une paroi de Bloch sépare deux domaines dont les directions d'aimantation diffèrent afin de minimiser l'énergie magnéto-statique. Elle consiste en une rotation de moments magnétiques au autour d'un axe perpendiculaire au plan de la paroi (figure 1-1-a) Les interactions d'échange conduisent à une énergie de parois minimale lorsque les angles entre moments consécutifs sont les plus petits possibles, c'est-à-dire lorsque la paroi est répartie sur un grand nombre d'atomes. De nombreux moments sont alors proches de la direction de difficile aimantation ; l'épaisseur

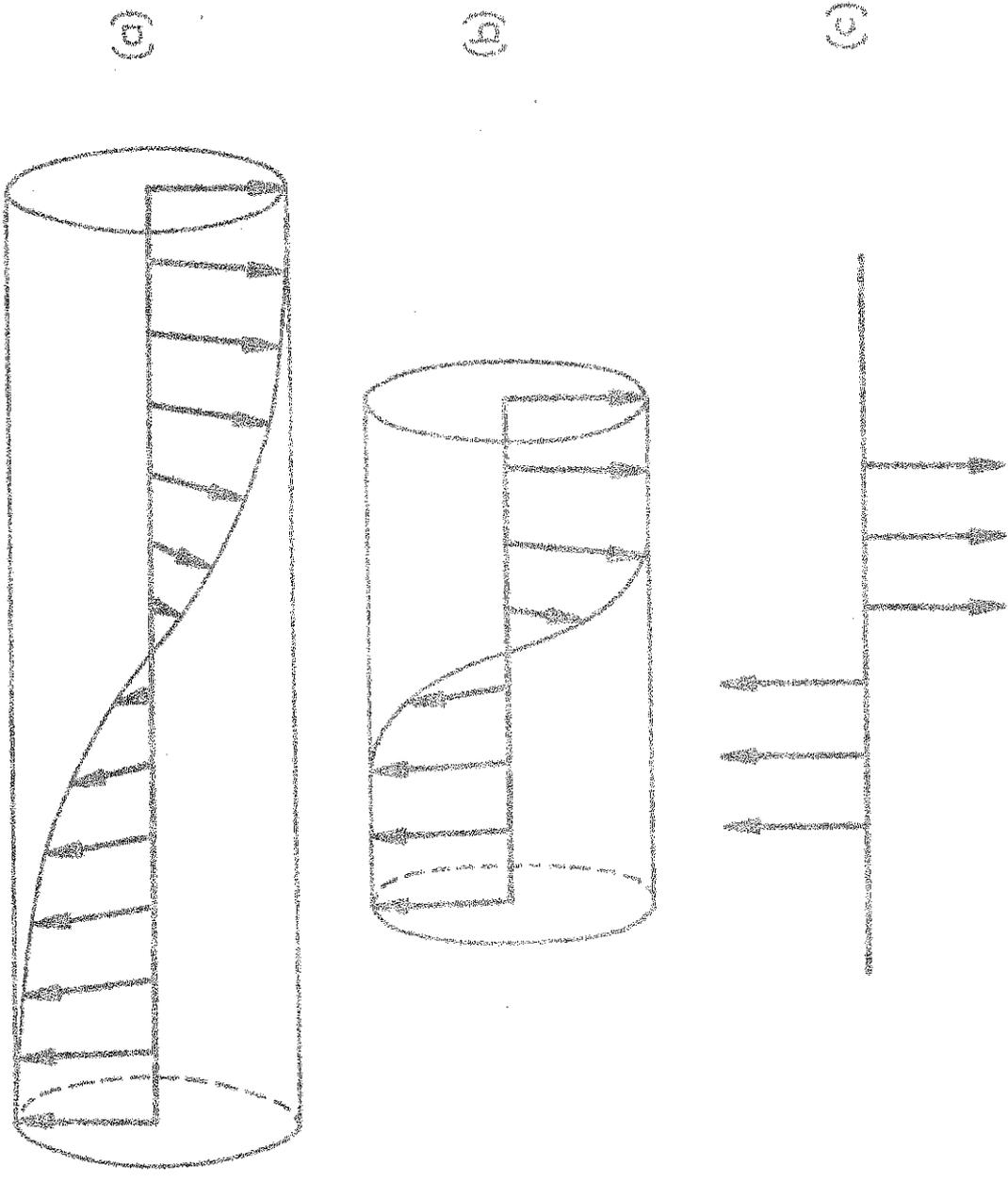


Figure I-1 : (a) peroi s'étendant sur un grand nombre de distances interatomiques.
(b) peroi s'étendant sur quelques distances interatomiques.
(c) peroi s'étendant sur une seule distance interatomique.

d'une paroi de Bloch est déterminée par le compromis entre l'énergie d'échange qui tend à l'augmenter et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline qui tend à la diminuer. A titre d'exemple les épaisseurs de parois dans le nickel, le fer et le cobalt sont de 690 Å, 480 Å et 160 Å ; dans ces matériaux le rapport de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline à l'énergie d'échange est très faible : il vaut $16,2 \cdot 10^{-5}$ pour le nickel, $35 \cdot 10^{-5}$ pour le fer et $330 \cdot 10^{-5}$ pour le cobalt. L'approximation de calcul qui consiste à assimiler une paroi de Bloch à un continuum de moments magnétiques est alors justifiée.

2 - NOTION DE PAROI ETROITE

Certains composés récents et notamment les alliages à base de terres rares, présentent une énergie d'anisotropie magnétocristalline très élevée et une température d'ordre basse. Le rapport de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline à l'énergie d'échange est alors beaucoup plus élevé que dans les composés ferromagnétiques usuels et peut atteindre l'unité. Afin de minimiser l'énergie magnétocristalline emmagasinée, les parois entre domaines magnétiques sont étroites ; elles s'étendent sur quelques distances interatomiques seulement et présentent une discontinuité de l'aimantation en leur centre (figure 1-1-b). Si l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est suffisamment élevée devant l'énergie d'échange la paroi ne s'étend que sur une seule distance interatomique (figure 1-1-c). De telles parois sont figées par l'anisotropie magnétocristalline jusqu'à ce que le champ provoque le renversement de l'aimantation des atomes proches de la paroi. Au contraire les parois de Bloch se déplacent librement sous l'effet du champ. Au cours de leur mouvement, si la moitié des moments s'écartent de l'axe de facile aimantation, l'autre moitié s'en rapproche ; le bilan énergétique est d'autant plus faible que la paroi est peu étalée, le mouvement n'est alors freiné que par les défauts du cristal.

3 - STABILITE D'UNE PAROI ETROITE DANS UN COMPOSE UNIAXE

Une paroi étroite est formé d'un nombre limité de moments magnétiques faisant entre eux des angles importants. Le modèle de paroi quasi-continue utilisé pour le calcul de l'énergie des parois de Bloch n'est plus applicable. Il est nécessaire de tenir compte du caractère discret des moments magnétiques.

Pour discuter de la stabilité des parois étroites à 0 K, nous considérons un réseau d'atomes magnétiques cubique simple, de paramètre a , soumis à une anisotropie uniaxe. Nous attribuons à chaque moment magnétique \vec{m}_n un même module M_0 et un degré de liberté θ_n correspondant à son angle avec l'axe de facile aimantation dans le plan de la paroi.

Dans une hypothèse simplificatrice, nous ne considérons que les interactions d'échange ferromagnétiques entre atomes premiers voisins. L'énergie d'échange emmagasinée dans la paroi, résultant de l'arrangement des moments \vec{m}_n et \vec{m}_{n+1} , s'exprime par :

$$2WM_0^2 \left[1 - \cos(\theta_{n+1} - \theta_n) \right].$$

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline par atome est :

$$KM_0^2 \sin^2 \theta_n.$$

L'énergie de paroi associée au moment \vec{m}_n (figure 1-2) s'écrit :

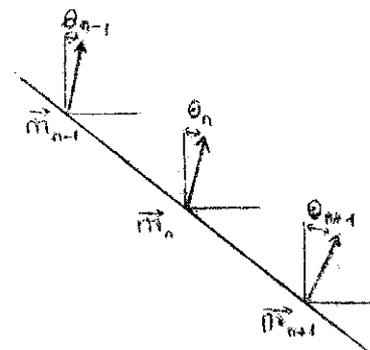


Figure 1-2

$$\gamma_n = KM_0^2 \sin^2 \theta_n + 2WM_0^2 \left[1 - \frac{\cos(\theta_{n+1} - \theta_n) + \cos(\theta_{n-1} - \theta_n)}{2} \right].$$

L'énergie superficielle de la paroi est égale à :

$$\gamma_p = \frac{1}{a^2} \sum_{n=1}^{2N} \gamma_n,$$

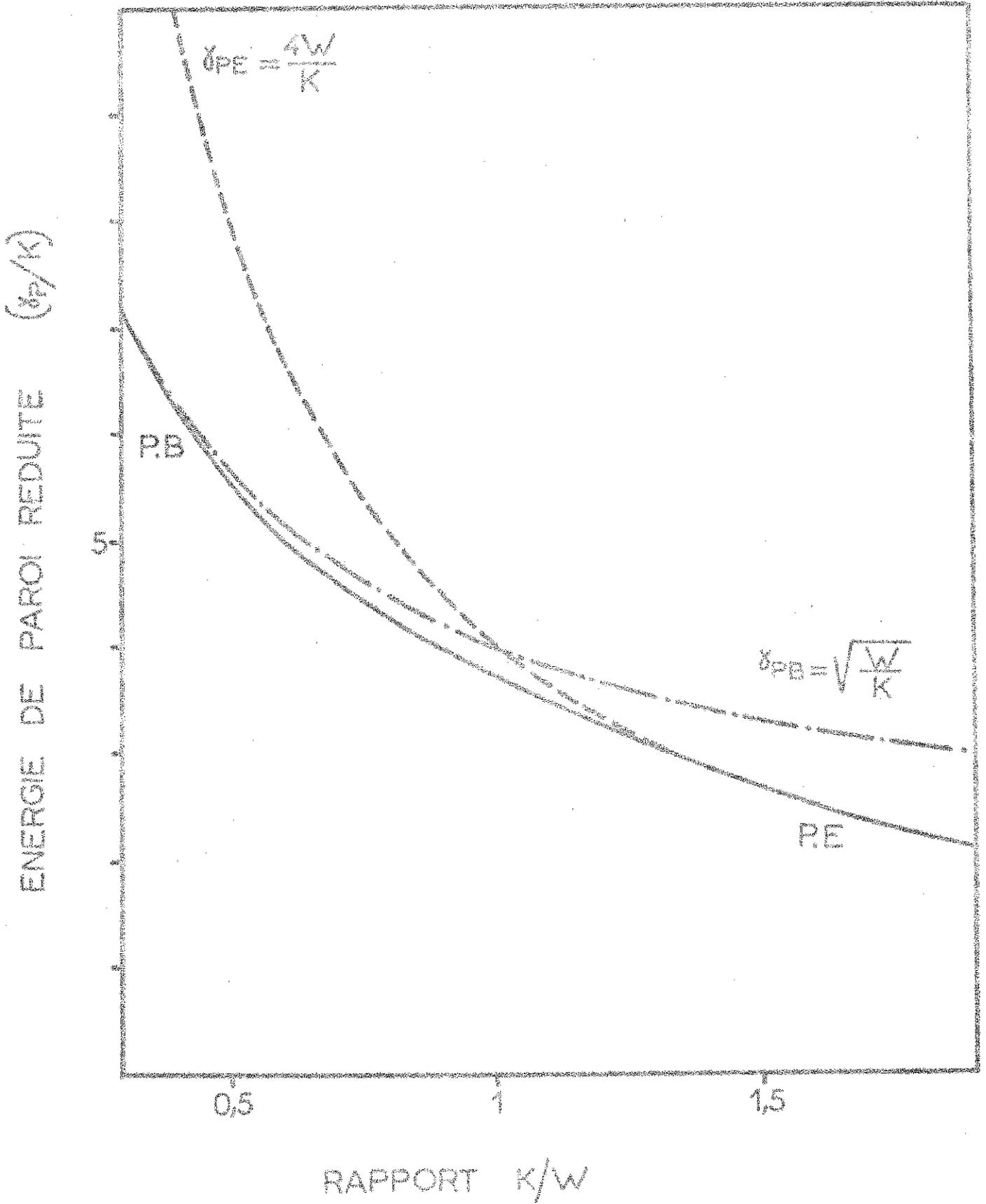


Figure I-4 : Energie de paroi en fonction de K/W .

où $2N$ est le nombre de moments magnétiques de la paroi.

La configuration de la paroi est obtenue par minimisation de cette énergie par rapport à chacun des degrés de liberté :

$$\frac{\partial \gamma_p}{\partial \theta_n} = 0 \quad \text{pour } n = 1, 2, \dots, 2N.$$

Ces conditions d'équilibre s'écrivent :

$$\frac{K}{2W} \sin 2\theta_n - \left[\sin(\theta_{n+1} - \theta_n) + \sin(\theta_{n-1} - \theta_n) \right] = 0,$$

avec $n = 1, 2, \dots, 2N$.

La résolution numérique de ce système de $2N$ équations donne pour chaque valeur du rapport K/W le nombre entier $2N$ et les angles θ_n (annexe II).

A titre d'exemple, nous avons représenté (figure I-3) la configuration de la paroi pour quelques valeurs du rapport K/W . Lorsque ce rapport vaut 0,5, 1 et 1,25 l'énergie de chacune de ces parois est $2,75 WM_0^2/a^2$, $3,75 WM_0^2/a^2$ et $3,94 WM_0^2/a^2$. Lorsque le rapport K/W tend vers l'infini l'énergie de paroi tend vers $4 WM_0^2/a^2$, énergie d'une paroi réduite au retournement de l'aimantation sur une seule distance interatomique. Lorsque le rapport K/W tend vers zéro l'énergie de paroi tend vers $4M_0^2 \sqrt{WK}/a^2$, valeur obtenue pour l'énergie d'une paroi de Bloch lorsqu'elle est calculée en considérant une rotation continue de l'aimantation. Nous avons porté, figure I-4, la valeur de l'énergie de paroi (en prenant pour unité le coefficient K d'anisotropie magnétocristalline) en fonction du rapport K/W .

Dans le domaine de stabilité des parois étroites l'épaisseur de paroi δ/a , tend vers l'unité quand K/W croît. L'épaisseur d'une paroi de Bloch est $\delta/a = q \cdot \sqrt{W/K}$, q étant généralement pris égal à 4. Afin d'obtenir la variation de δ/a en fonction du rapport K/W , il est nécessaire de définir précisément l'épaisseur d'une paroi étroite.

Soit $\Delta\theta$ la discontinuité angulaire de l'aimantation au centre d'une paroi de Bloch :

$$\Delta\theta = \sqrt{\frac{K}{W}}$$

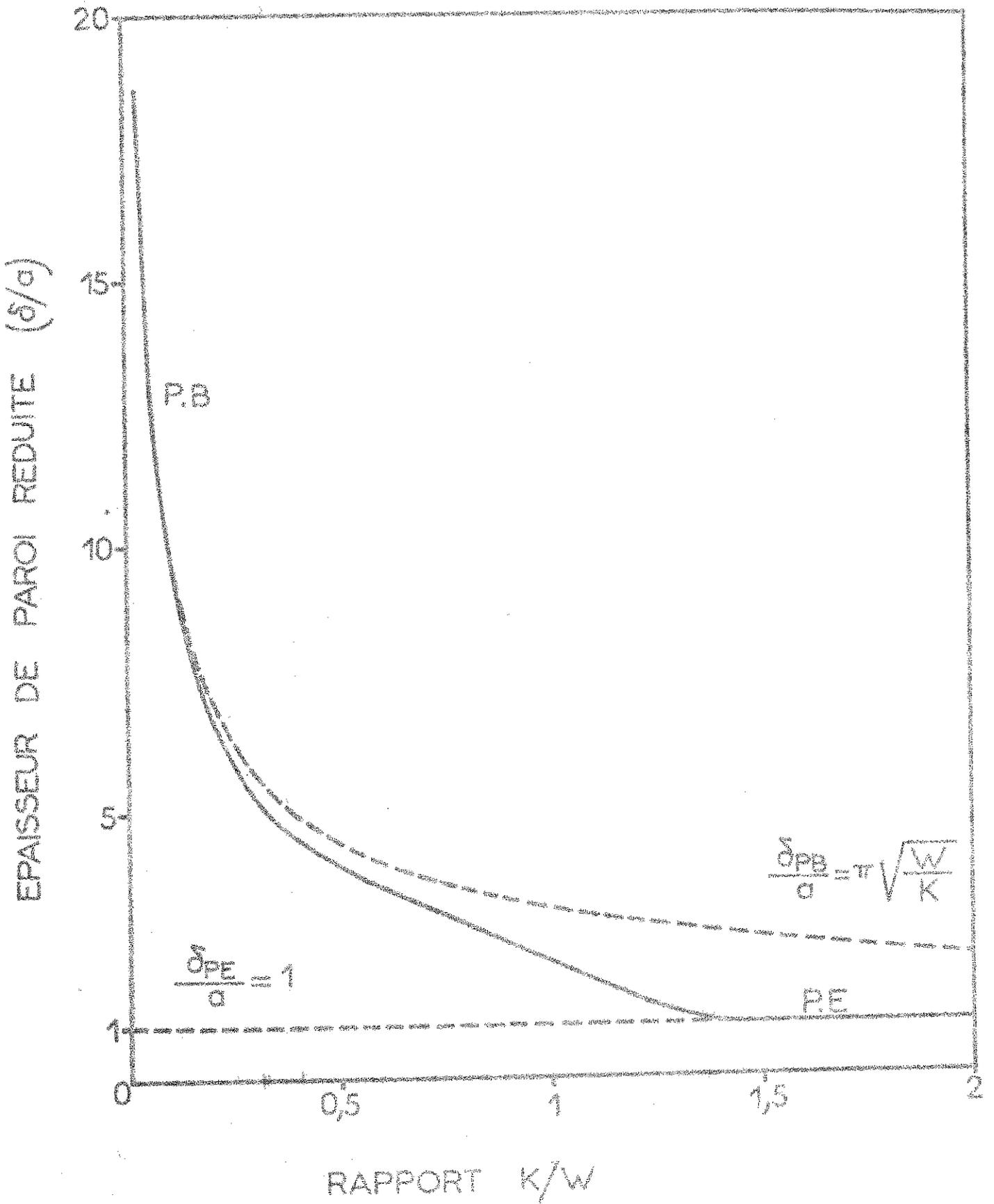


Figure I-5 : Epaisseur de la paroi en fonction de K/W .

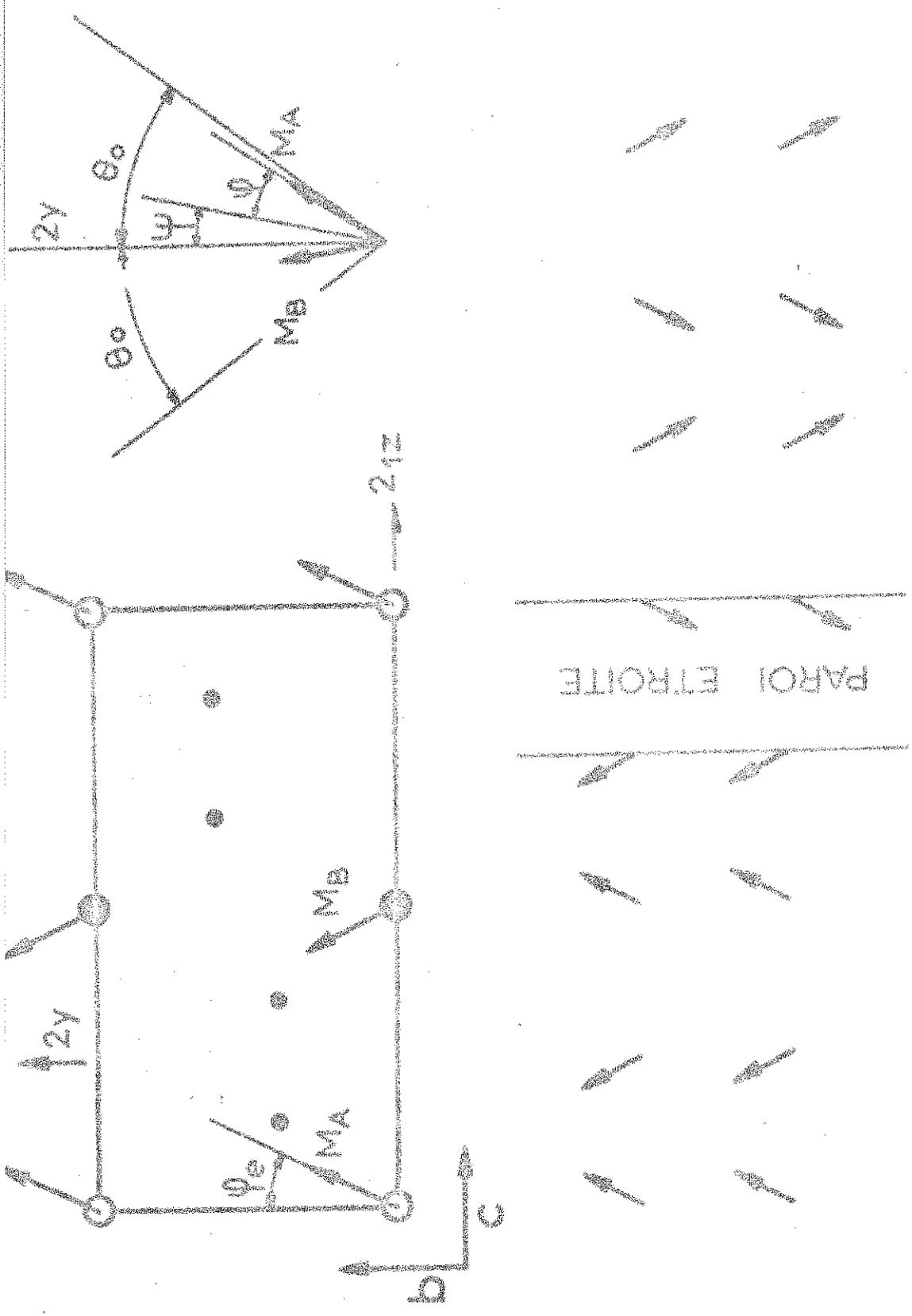


Figure 1-6 : Structure magnétique $P2'2'1'$, utilisée comme modèle. Les grands cercles représentent les atomes magnétiques, les petits cercles représentent les atomes non magnétiques. Schéma d'une paroi-étroite.

L'épaisseur de la paroi s'écrit :

$$\delta/a = q/\Delta\theta.$$

Si la paroi se s'étend que sur une seule distance interatomique : $\Delta\theta = \pi$, $\delta/a = 1$; q doit donc être égal à π . L'épaisseur d'une paroi est alors définie par :

$$\delta/a = \pi/\Delta\theta.$$

La discontinuité angulaire au centre d'une paroi d'épaisseur $\delta = na$ est $\Delta\theta = \pi/n$.

Lorsque $\Delta\theta$ est suffisamment petit, le modèle continu est valable

$$\frac{\delta}{a} = \pi \sqrt{\frac{W}{K}}.$$

La figure 1-5 représente la variation de l'épaisseur d'une paroi calculée en fonction du rapport K/W à partir de la discontinuité angulaire au centre de la paroi. Les courbes en trait discontinu représentent les fonctions $\delta/a = \pi \sqrt{W/K}$, et $\delta/a = 1$. Pour K/W voisin de 1,3 la paroi ne s'étend plus que sur une seule distance interatomique.

4 - STABILITE D'UNE PAROI ETROITE DANS UN COMPOSE NON COLINEAIRE

Les composés Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2 ont des structures cristallographiques trop complexes pour envisager l'étude détaillée de leur processus d'aimantation. Considérons un matériau plus simple ayant un réseau cubique d'atomes magnétiques placés dans une symétrie $P222_1$ d'atomes non magnétiques afin qu'ils soient soumis comme les atomes de terres rares précédents à des interactions fortement anisotropes. Selon la nature et l'importance relative de ces interactions, la configuration des moments peut être non collinéaire (figure 1-6). L'aimantation spontanée du composé provenant de la résultante non nulle des moments lui donne un caractère ferromagnétique. Lorsque la stabilité de cette structure magnétique résulte d'un compromis entre des interactions d'échange isotropes et une anisotropie à un ion, les atomes magné-

tiques se répartissent en deux sous-réseaux A et B car leurs environnements se déduisent l'un de l'autre par l'axe z_1 et ne sont pas cristallographiquement équivalents. Les axes de facile aimantation de chaque sous-réseau se correspondent à travers l'axe z_2 avec lequel ils font un angle $\pm \theta_0$.

En raison de la symétrie cubique du réseau des atomes magnétiques et de la configuration des moments considérés, les termes d'énergie dipolaire présentent un caractère isotrope et peuvent être intégrés dans les termes d'échange en modifiant convenablement la valeur du coefficient W . Pour déterminer la position des moments à l'équilibre nous exprimons l'énergie E_1 d'un couple AB rapportée à un atome par :

$$2E_1 = -4WM_0^2 \cos 2\varphi + KM_0^2 \left[\sin^2(\theta_0 - \varphi + \psi) + \sin^2(\theta_0 - \varphi - \psi) \right]$$

où 2φ est l'angle entre les moments M_A et M_B , ψ l'angle de la résultante de ces moments avec l'axe z_2 . Cette énergie est minimale pour :

$$\operatorname{tg} 2\varphi = K \sin 2\theta_0 \cos 2\psi / (4W + K \cos 2\theta_0 \cos 2\psi).$$

La position d'équilibre définie par φ_e est obtenue pour $\psi = 0$.

Energie des parois de Bloch

En utilisant la méthode proposée par Moriya, nous déterminons l'énergie d'anisotropie effective $E(\psi)$ dans le plan du couple AB à partir des deux relations précédentes.

$$2E(\psi) = M_0^2 (\sqrt{f(\psi=0)} - \sqrt{f(\psi)}) = 2M_0^2 K(\psi)$$

$$\text{avec } f(\psi) = 16W^2 + 8WK \cos 2\theta_0 \cos 2\psi + K^2 \cos^2 2\psi.$$

L'énergie emmagasinée dans une paroi de Bloch est minimum lorsque cette paroi est perpendiculaire à l'axe Ox de plus difficile aimantation. Cette énergie γ_B rapportée à 1 cm^2 de paroi est la

somme des énergies d'anisotropie γ_a et d'échange γ_e

$$a^3 \gamma_a = \int_{-\infty}^{+\infty} K(\Psi) M_0^2 dx.$$

Par unité de surface l'énergie d'échange emmagasinée sur une distance interatomique est $WM_0^2(\Delta\psi^2 + \Delta\Psi^2)/a^2$, ce qui conduit à :

$$a\gamma_e = \int_{-\infty}^{+\infty} WM_0^2 \dot{\Psi}_x^2 (1 + g^2(\Psi)) dx,$$

avec $g(\Psi) f(\Psi) = 4WK \sin 2\theta_0 \sin 2\Psi$.

En introduisant un coefficient d'échange effectif

$$W(\Psi) = W(1 + g^2(\Psi))$$

$$a\gamma_e = \int_{-\infty}^{+\infty} W(\Psi) M_0^2 \dot{\Psi}_x^2 dx.$$

A un accroissement $\delta\Psi$ correspond :

$$a^3 \delta\gamma_B = \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\dot{E}(\Psi) \delta\Psi + a^2 WM_0^2 \delta\dot{\Psi}_x^2 + a^2 WM_0^2 \delta(g(\Psi) \dot{\Psi}_x)^2 \right] dx.$$

Après intégration par partie, l'énergie de paroi est minimum si

$$\dot{E}(\Psi) - 2a^2 WM_0^2 \left[\ddot{\Psi}_x (g^2(\Psi) + 1) + g(\Psi) \dot{g}(\Psi)_{\Psi} \dot{\Psi}_x^2 \right] = 0.$$

Par intégration on obtient :

$$\dot{\Psi}_x = \sqrt{E(\Psi)/WM_0^2 a^2 (g^2(\Psi) + 1)} = \frac{1}{a} \sqrt{\frac{K(\Psi)}{W(\Psi)}}.$$

L'énergie par unité de surface de paroi s'écrit :

$$a^2 \gamma_B = 4 \int_0^{\pi/2} \sqrt{WM_0^2 E(\Psi) [1 + g^2(\Psi)]} d\Psi.$$

En fonction des énergies d'échange et d'anisotropie effectives l'énergie de paroi s'écrit :

$$a^2 \gamma_B = 4 M_0^2 \int_0^{\pi/2} \sqrt{W(\Psi) K(\Psi)} d\Psi.$$

Lorsque les axes de facile aimantation des sous-réseaux A et B sont confondus ($\theta_0 = 0$), on retrouve l'énergie superficielle de paroi d'un cristal uniaxe

$$a^2 \gamma_B = 4 M_0^2 \sqrt{WK}.$$

Energie des parois étroites

Le couplage d'échange entre les deux sous-réseaux A et B, puisque proportionnel à $\cos 2\varphi_e$ dépend du compromis entre les interactions d'échange et l'anisotropie, et peut devenir très faible devant cette dernière. Dans ce cas la configuration en domaines s'établit à l'aide de parois étroites, le renversement de l'aimantation de chaque sous-réseau s'effectuant sur une seule distance interatomique (figure 1-6). Ces parois, perpendiculaires aux parois de Bloch précédemment décrites, conservent la composante normale de l'aimantation. Les moments magnétiques de part et d'autre de la paroi subissent un réarrangement sur plusieurs distances interatomiques pour minimiser l'énergie superficielle de paroi. L'angle limite θ_c que font les deux moments du centre de la paroi avec l'axe b est supérieur à θ_0 ; il est défini en première approximation par la relation :

$$\sin 2(\theta_c - \theta_0) = \frac{W}{K} \sin \frac{\theta_0 - \varphi_e}{2} \cos \frac{3\theta_0 + \varphi_e}{2}.$$

L'importance du réarrangement est limitée, la valeur du rapport K/W associée à l'angle φ_e étant toujours supérieure à 1. Nous le négligeons dans le calcul de l'énergie superficielle γ_E des parois étroites

$$a^2 \gamma_E = 4 M_0^2 W \cos 2\varphi_e.$$

La stabilité des parois étroites ($\gamma_E < \gamma_B$) dépend de la valeur de θ_0 et de celle du rapport K/W (figure 1-7-a). Un calcul analogue conduit au résultat de la figure 1-7-b lorsque les interactions entre les deux sous-réseaux sont négatives.

En attribuant, dans Dy_3Al_2 , au site 4c un axe de facile aimantation parallèle à l'axe c et au site 4b, un axe de facile aimantation parallèle au plan de base, $2\theta_0 = 90^\circ$. L'angle d'équilibre $2\varphi_e$, déterminé à 4,2 K par diffraction neutronique, est de 45° . A la précision des mesures, on peut considérer que les moments sont symétriques par rapport aux bissectrices des axes d'anisotropie. Le rapport K/W qui en résulte est 4 ; les parois, d'après le calcul précédent s'étendent sur une seule distance interatomique.

C H A P I T R E I I

CHAMP COERCITIF PROPRE AUX MATERIAUX A
FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE

Les parois étroites ne sont déplacées que par des champs très élevés. Les cycles d'hystérésis sont alors très larges (chapitre 1-2) ; la détermination du champ coercitif, propre à ces parois, résulte de l'étude de leur propagation.

1 - COMPOSE UNIAXE

Considérons une paroi à 0 K, dans un réseau cubique simple de paramètre a , d'atomes magnétiques soumis à une anisotropie uniaxe. Sa configuration, symétrique en champ nul (chapitre 1-3), est perturbée par un champ magnétique extérieur, \vec{H} , dont l'énergie de couplage avec le moment \vec{m}_n est :

$$\gamma_n(H) = M_0 H (1 - \cos \theta_n)$$

L'énergie totale par cm^2 de paroi s'écrit :

$$\gamma_T = \gamma_p + \sum_{n=1}^{2N} \gamma_n(H)$$

La configuration d'équilibre est obtenue par minimisation de γ_T :

$$\frac{\partial \gamma_T}{\partial n} = 0 \quad \text{pour } n = 1, 2, \dots, 2N,$$

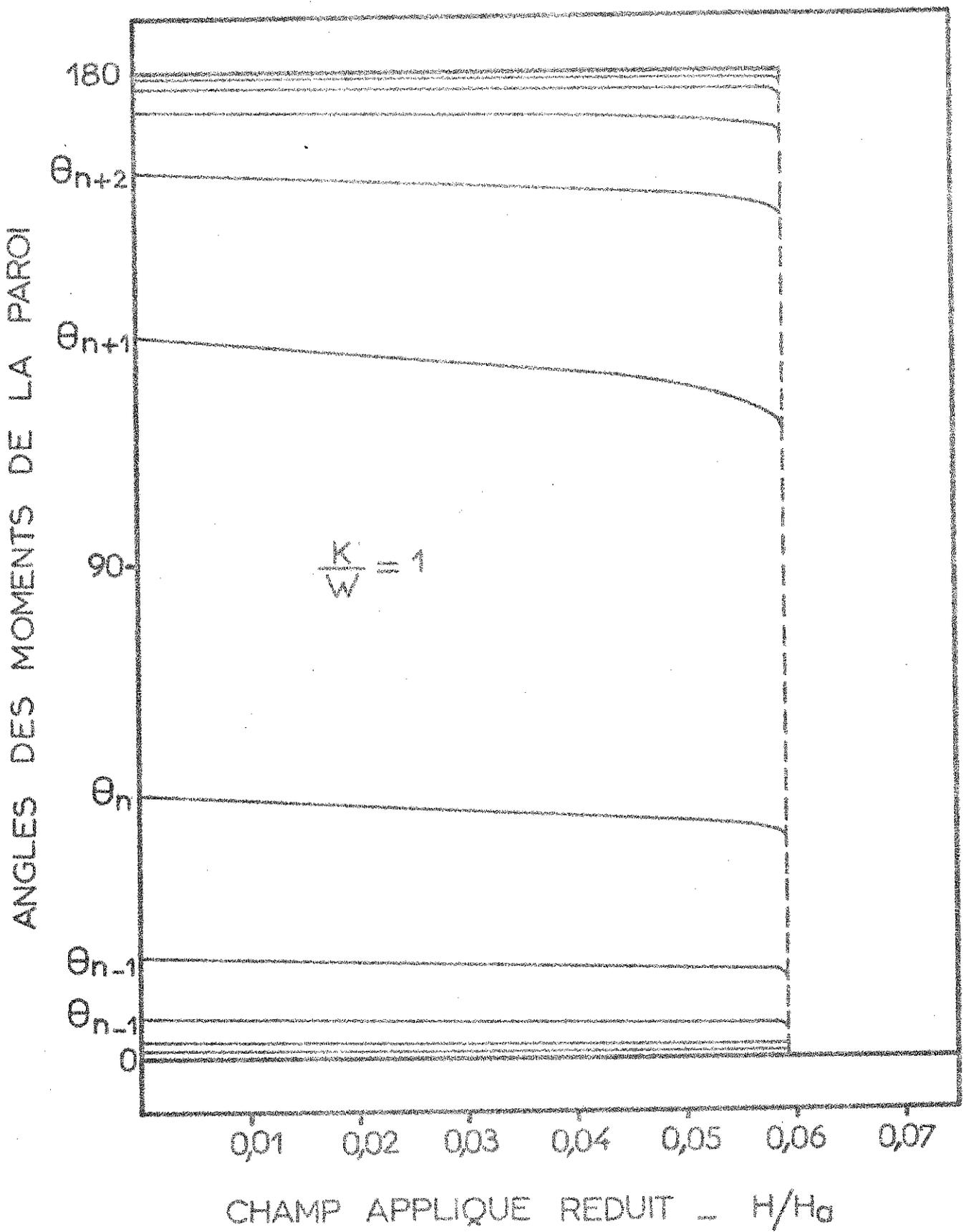


Figure II-1 : Déformation de la paroi par le champ.
 Champ propre.

CHAMP COERCITIF PROPRE REDUIT (H_p/H_A)

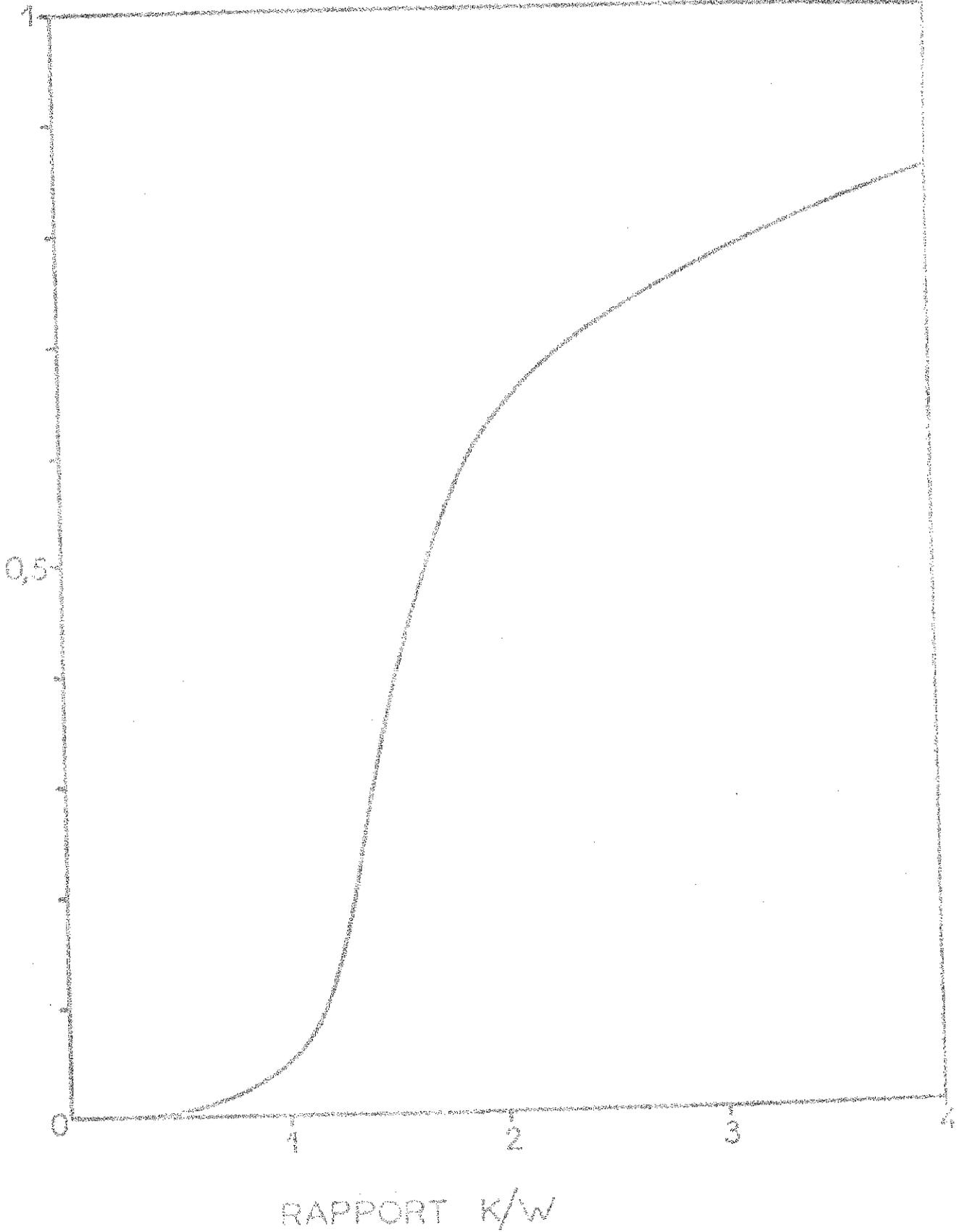


Figure II-2 : Variation du champ propre en fonction du rapport K/W.

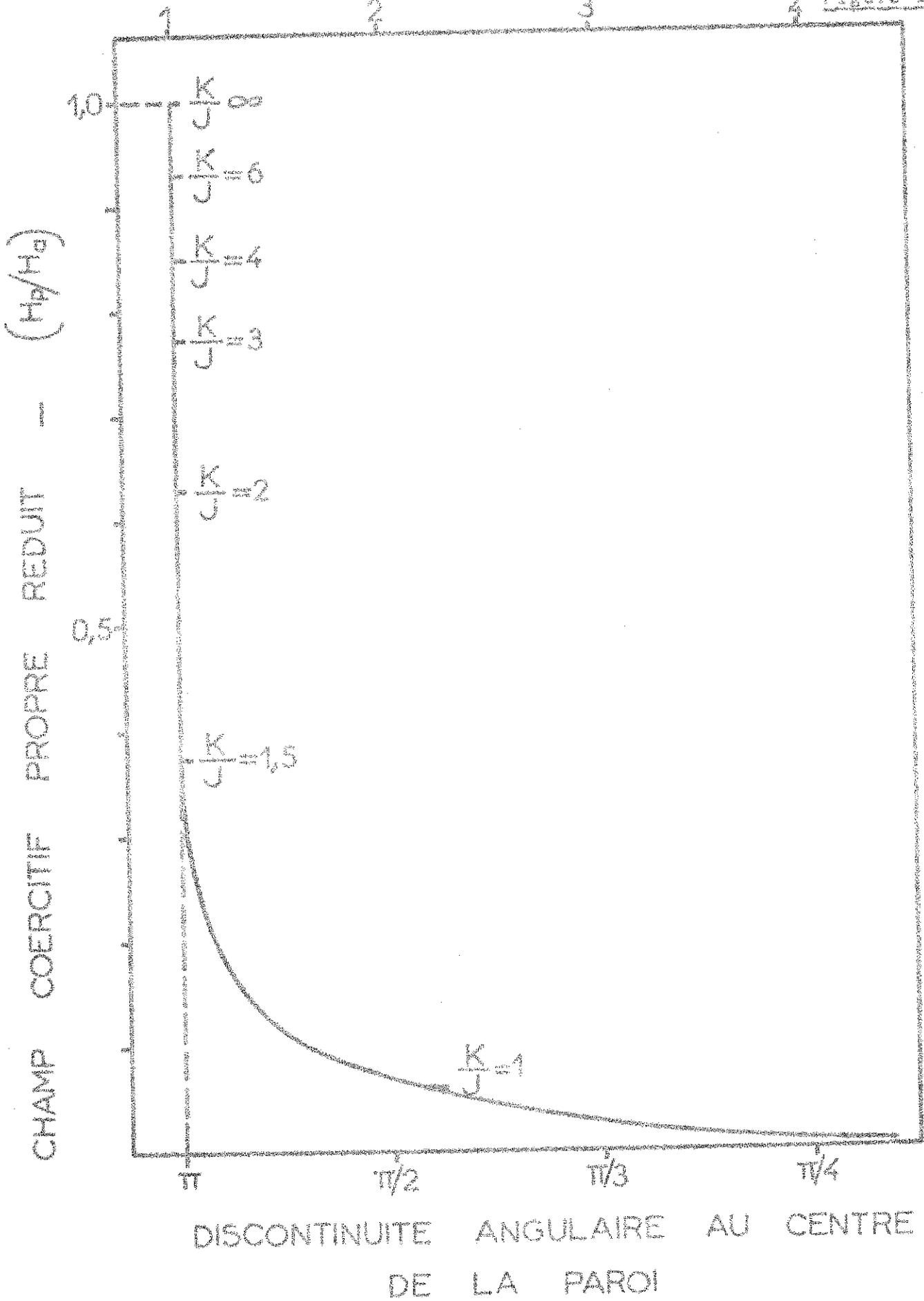


Figure II-3 : Variation du champ propre en fonction de la discontinuité angulaire au centre de la paroi ou de l'épaisseur de la paroi.

$$\text{soit } \sin 2\theta_n - \frac{2W}{K} \left[\sin(\theta_{n+1} - \theta_n) + \sin(\theta_{n-1} - \theta_n) \right] + \frac{H}{KM_0} \sin \theta_n = 0$$

pour $n = 1, 2, \dots, 2N$.

Nous avons résolu numériquement ce système de $2N$ équations (annexe II). Pour chaque valeur des rapports K/W et H/H_A , les angles θ_n caractérisent la structure de la paroi, H_A étant égal à $2KM_0$; comme nous ne considérons que le terme d'ordre deux de l'anisotropie, H_A correspond à la définition habituelle du champ d'anisotropie. Pour H/H_A supérieur à une valeur critique fonction du rapport K/W , le système de $2N$ équations n'admet plus que la solution banale $\theta_n = 0$ pour tout n ; cette solution traduit l'instabilité de la paroi lorsque le couple créé par le champ magnétique est trop élevé. Le champ critique ainsi défini est responsable de la coercivité du matériau considéré, sa valeur ne dépend que du rapport K/W ; nous le dénommons champ coercitif propre. A titre d'exemple, nous avons porté sur la figure 11-1 la variation des angles θ_n en fonction du champ réduit H/H_A , pour une paroi caractérisée par $K/W = 1$. Dans des champs inférieurs à $H_p = 0,059 H_A$, les moments sont faiblement écartés par le champ de leurs positions d'équilibre; dans des champs supérieurs à H_p , tous les moments sont parallèles au champ.

La variation du champ coercitif propre est représentée en fonction du rapport K/W sur la figure 11-2, et en fonction de la discontinuité angulaire au centre de la paroi sur la figure 11-3. Pour des valeurs faibles du rapport K/W le champ coercitif propre est pratiquement nul, la paroi de type Bloch est très large. Lorsque le rapport K/W est élevé, le champ coercitif propre tend vers le champ d'anisotropie, la paroi est alors étroite et ne s'étend plus que sur une seule distance interatomique. Dès que la paroi s'étend sur plus de trois ou quatre distances interatomiques, le champ coercitif propre devient très faible.

2 - COMPOSE NON COLINEAIRE

Considérons un réseau cubique d'atomes magnétiques répartis en deux sous-réseaux dont les axes de facile aimantation se correspondent à travers un axe d'ordre 2 (l'axe $2y$ sur la figure 1-6). Le compromis entre les interactions d'échange et l'anisotropie à un ion (chapitre 1-3) donne lieu à une configuration non colinéaire des moments de chaque sous-réseau (figure 1-6). Pour un angle $\theta_0 = 45^\circ$, et un rapport $K/W = 1$, l'angle d'équilibre φ_e vaut 7° (en général, dans les structures magnétiques non colinéaires de composés intermétalliques à base de terres rares, l'angle d'équilibre est supérieur à 7° , le rapport K/W est donc supérieur à l'unité). Le réarrangement des moments magnétiques de part et d'autre du centre de la paroi est peu important ; nous n'en tiendrons pas compte ; le champ coercitif intrinsèque est alors égal au champ qu'il faut appliquer pour vaincre l'anisotropie effective (chapitre 1-3).

L'action d'un champ appliqué antiparallèlement à la résultante de l'aimantation d'un couple A, B s'étudie en minimisant l'énergie du couple :

$$2E_2 = 2E_1 + 2MH \cos \varphi \cos \psi.$$

L'expression de l'énergie en champ nul E_1 est donnée au chapitre 1-3.

Les positions d'équilibres sont obtenues lorsque :

$$\frac{\partial E_2}{\partial \varphi} = 0 \quad \text{et} \quad \frac{\partial E_2}{\partial \psi} = 0.$$

L'équilibre devient instable si

$$\frac{d\psi}{d\varphi} = -1 \quad \text{ou} \quad \frac{d\psi}{d\varphi} = - \frac{\partial E / \partial \varphi}{\partial E / \partial \psi}.$$

Le champ coercitif propre est celui pour lequel l'aimantation atteint la première des positions instables liée aux variables φ ou ψ .

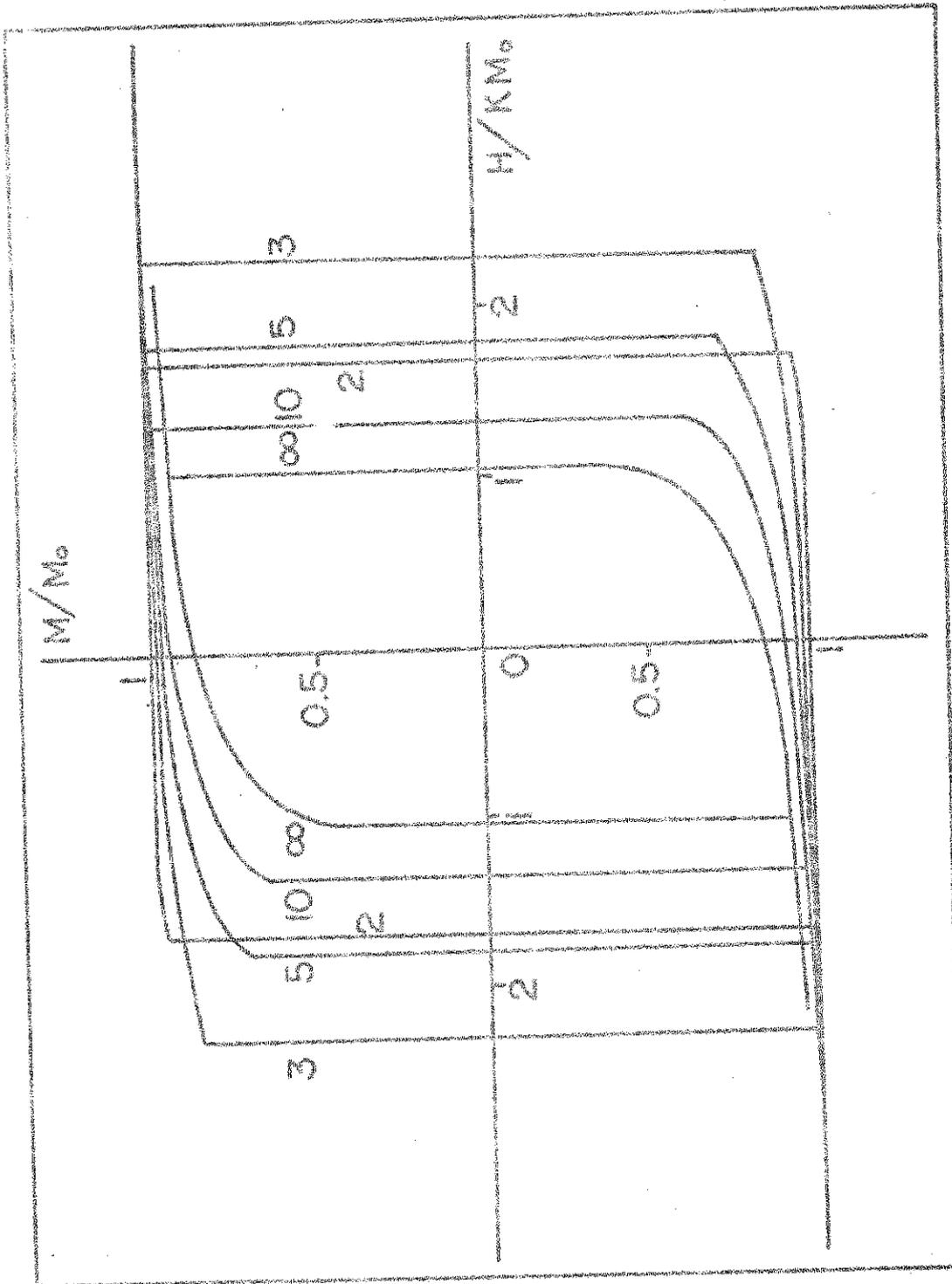


Figure II-4 : Cycles calculés pour $\theta_0 = 30^\circ$ et $K/W = 2, 3, 5, 10, \infty$.

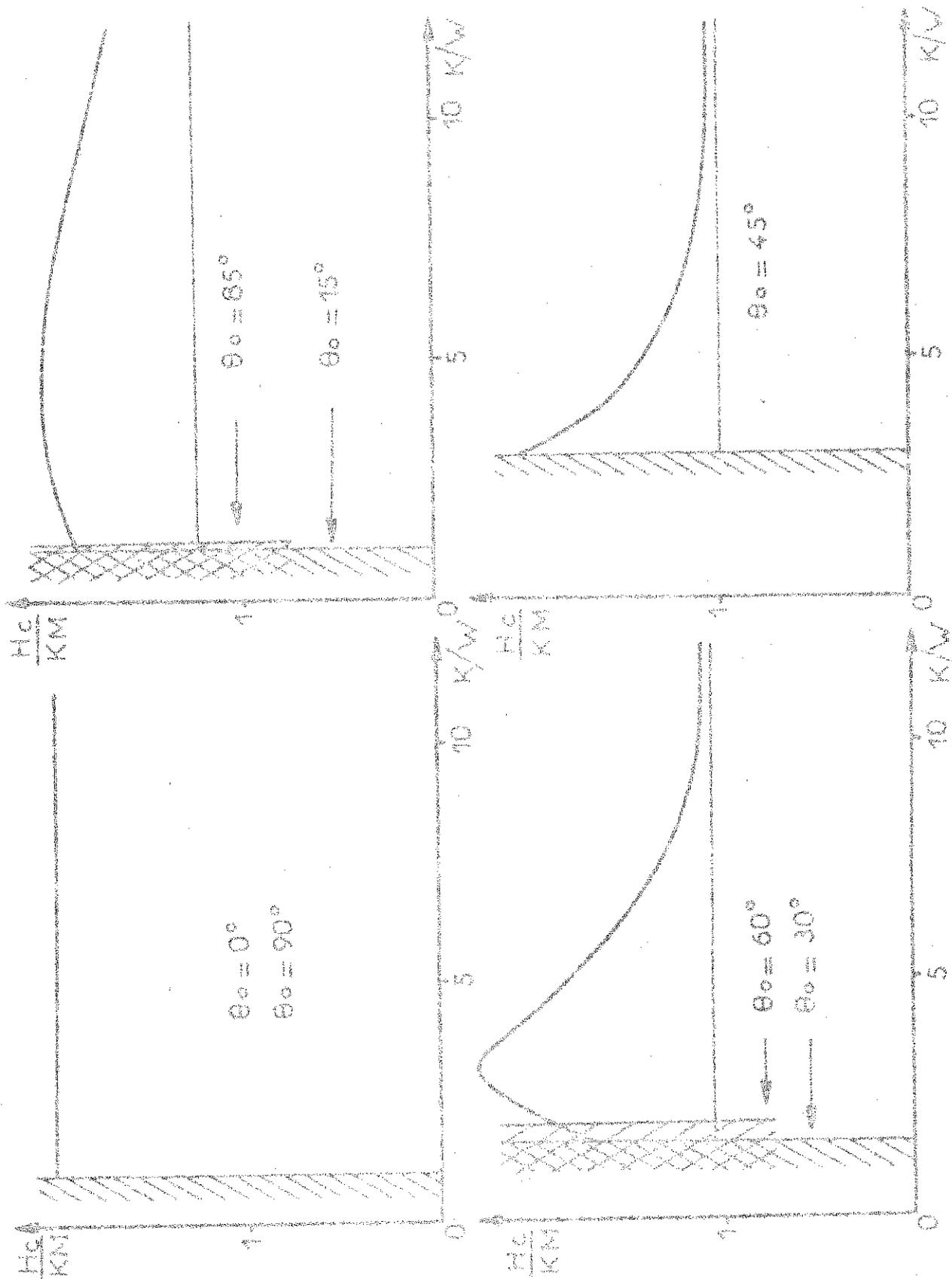


FIGURE II-5 : Variation du champ coefficient en fonction du rapport K/W pour différentes valeurs de θ_0 .

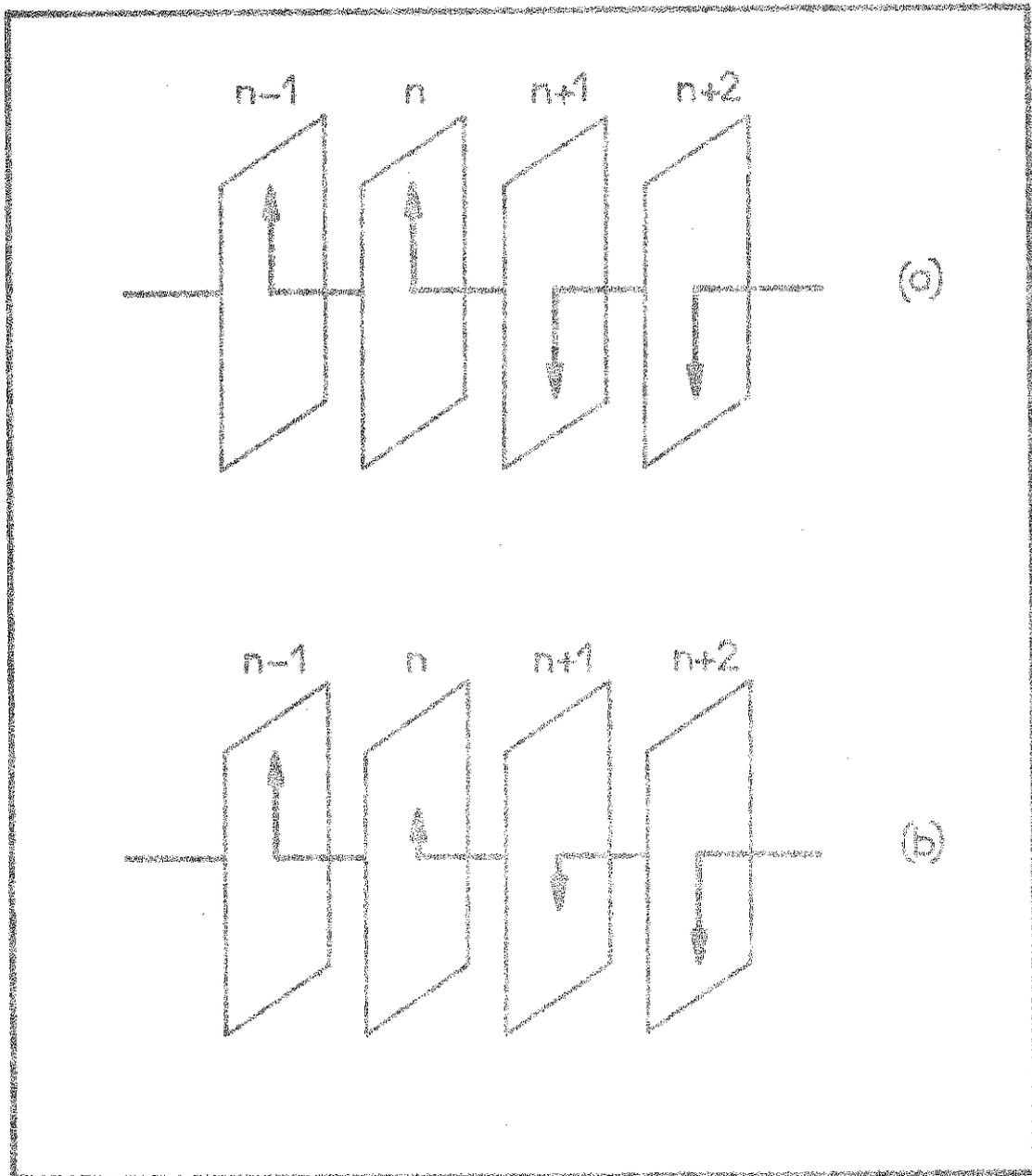


FIGURA II-6 : (a) estado estacionario a $T = 0$ K
 (b) estado estacionario a $T > 0$ K.

Nous avons porté sur la figure 11-4 les cycles d'hystérésis calculés lorsque le champ est appliqué parallèlement à l'aimantation spontanée pour $\theta_0 = 30^\circ$ et $K/W = 2, 3, 5, 10, \infty$. La figure 11-5 montre la variation du champ coercitif propre avec le rapport K/W pour quelques valeurs de l'angle θ_0 .

3 - DISCUSSION

Le calcul précédent du champ coercitif propre est fait dans l'approximation d'une paroi plane à 0 K ; l'aimantation de chaque plan est saturée. A une température supérieure à 0 K le module de l'aimantation du $n^{\text{ième}}$ plan est fonction du champ moléculaire auquel il est soumis. Sur le plan n , le plus proche du centre d'une paroi étroite (figure 11-6-a), le champ moléculaire dû aux plans voisins $n+1$ et $n-1$ s'annule. L'alignement des moments dans le plan n résulte seulement des interactions d'échange à l'intérieur de ce plan ; son aimantation peut être très faible. Nous avons représenté sur la figure 11-6-b, une paroi étroite à une température $T > 0$ K ; un réarrangement des modules des moments magnétique se produit. Cependant cet effet est peu important car les parois étroites ne sont stables qu'à basse température, lorsque le rapport T/θ_c est inférieur à environ $1/3$. Les champs coercitifs mesurés sur les composés ayant des parois étroites sont cependant beaucoup plus faibles que les champs coercitifs propres calculés. Pour Dy_3Al_2 à 4,2 K l'angle d'équilibre $2\theta_e$ entre les moments des sites 4c et 4b est de 45° , si $2\theta_0$ est égal à 90° . Il lui correspond une valeur minimale du rapport K/W égale à 4. Le champ coercitif propre est donc de l'ordre du champ d'anisotropie qui est voisin de 450 kOe, or le champ coercitif mesuré est de 21 kOe. La propagation des parois étroites ne régit donc pas le processus d'aimantation. Le renversement de l'aimantation doit être provoqué par la nucléation de nouveaux domaines (chapitre III).

CHAPITRE III

INFLUENCE DES PAROIS ETROITES SUR LES PROPRIETES MAGNETIQUES

DES COMPOSES A FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE

Le processus d'aimantation particulier mis en évidence sur le composé Dy_3Al_2 résulte de la valeur élevée du champ coercitif attaché aux parois étroites. Ces parois conduisent à d'autres propriétés magnétiques inhabituelles, en champs statiques comme en champs dynamiques.

1 - PROPRIETES MAGNETIQUES SOUS CHAMPS STATIQUES

a - Variation thermique de l'aimantation en température croissante (1re partie figures 11-3 et 11-13)

Un matériau magnétique refroidi en champ nul est divisé en domaines élémentaires séparés par des parois. Nous avons vu que celles-ci sont étroites lorsque l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est supérieure à l'énergie d'échange. Dans un champ inférieur au champ coercitif, les parois restent figées, l'aimantation totale est nulle. Le champ coercitif, fonction de l'anisotropie diminue lorsque la température augmente. A une certaine température sa valeur atteint celle du champ appliqué, les parois peuvent se déplacer. L'aimantation totale augmente alors rapidement avec la température et tend vers la valeur qui conduit à un champ démagnétisant égal au champ appliqué.

b - Variation thermique de l'aimantation en températures décroissantes (1re partie, figure 11-13)

A une température supérieure à la température critique θ_+ , l'aimantation du composé résulte de la configuration d'équilibre des parois de Bloch soumises au champ magnétique \vec{H} . Lorsque la température décroît, l'épaisseur de paroi diminue, le champ coercitif croît ; lorsqu'il atteint la valeur du champ appliqué, les parois se figent. L'aimantation précédemment acquise par déplacement des parois de Bloch est conservée même après suppression du champ appliqué.

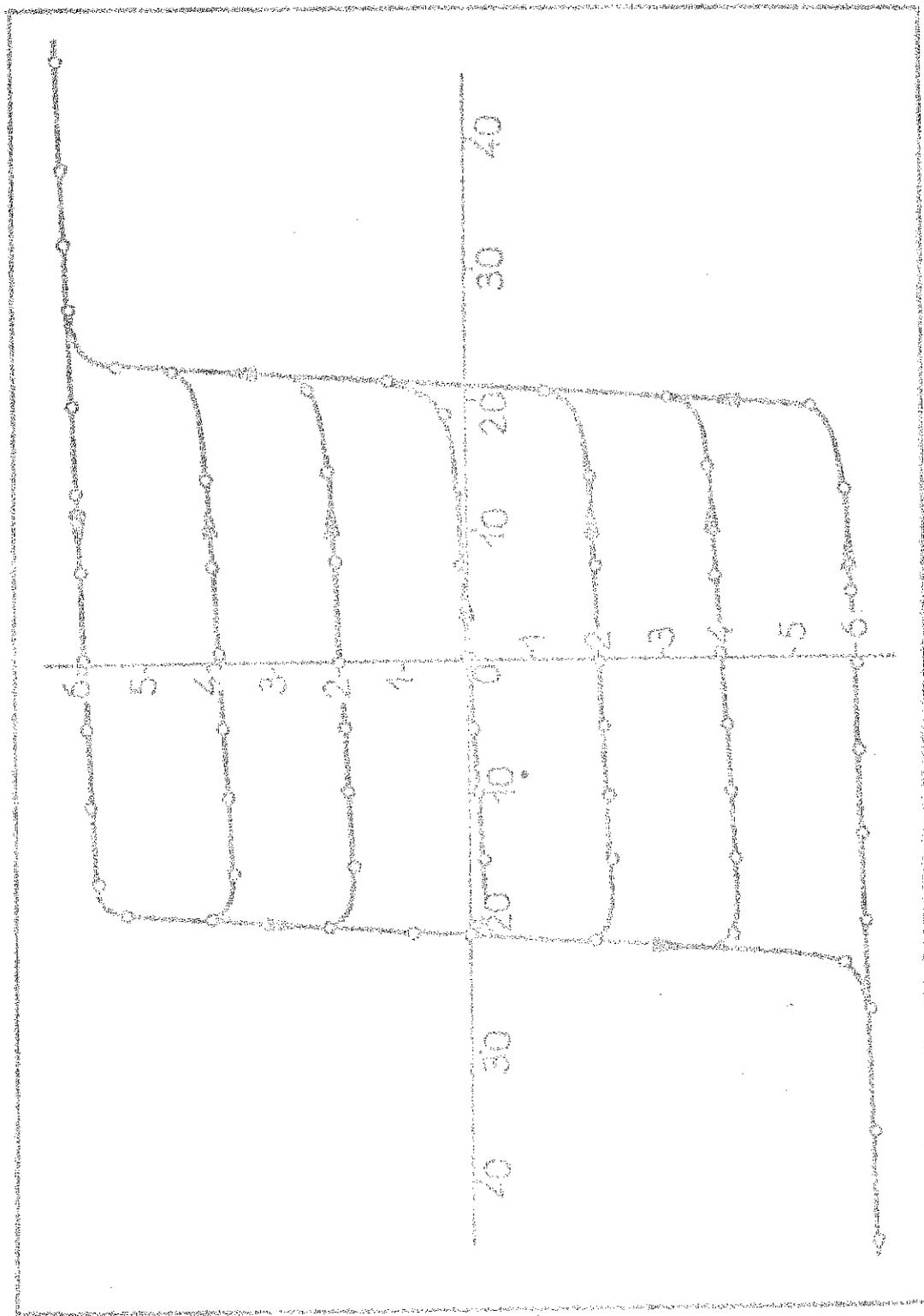
Au cours du refroidissement, l'augmentation du champ coercitif se traduit cependant par une diminution de l'aimantation au voisinage de θ_+ . Considérons un échantillon uniaxe divisé en domaines élémentaires séparés par des parois étroites de champ coercitif H_c . Soient V et $V_0 - V$ les volumes des domaines orientés parallèlement et antiparallèlement au champ \vec{H} appliqué suivant l'axe de facile aimantation. Si N est le coefficient de champ démagnétisant de l'échantillon, la variation d'énergie liée à une variation ΔV du volume V s'écrit :

$$\Delta E = 2M_s H_c \Delta V - 2M_s H \Delta V + \frac{1}{2} N(2V - V_0) 4M_s^2 \Delta V.$$

A l'équilibre :

$$H - NM = H_c.$$

Le champ interne est égal au champ coercitif ; lorsque la température diminue il doit augmenter comme ce dernier. Il en résulte une diminution de l'aimantation mesurée M , qui devrait conduire à une aimantation nulle dès que $H_c = H$. Cependant une viscosité liée aux déplacements des parois ne permet pas d'atteindre l'équilibre pour les températures inférieures à θ_+ . Si la température est suffisamment élevée les parois se déplacent rapidement et la diminution d'aimantation est quasiment instantanée. La diminution de l'aimantation observée ΔM n'est



AIMANTATION - (10¹⁹/Dy)

CHAMP MAGNETIQUE APPLIQUE - kOe

Figure III-1 : Cycle et cycles mineurs de Dy_2Al_2 à 4.2 K mesurés suivant l'axe C.

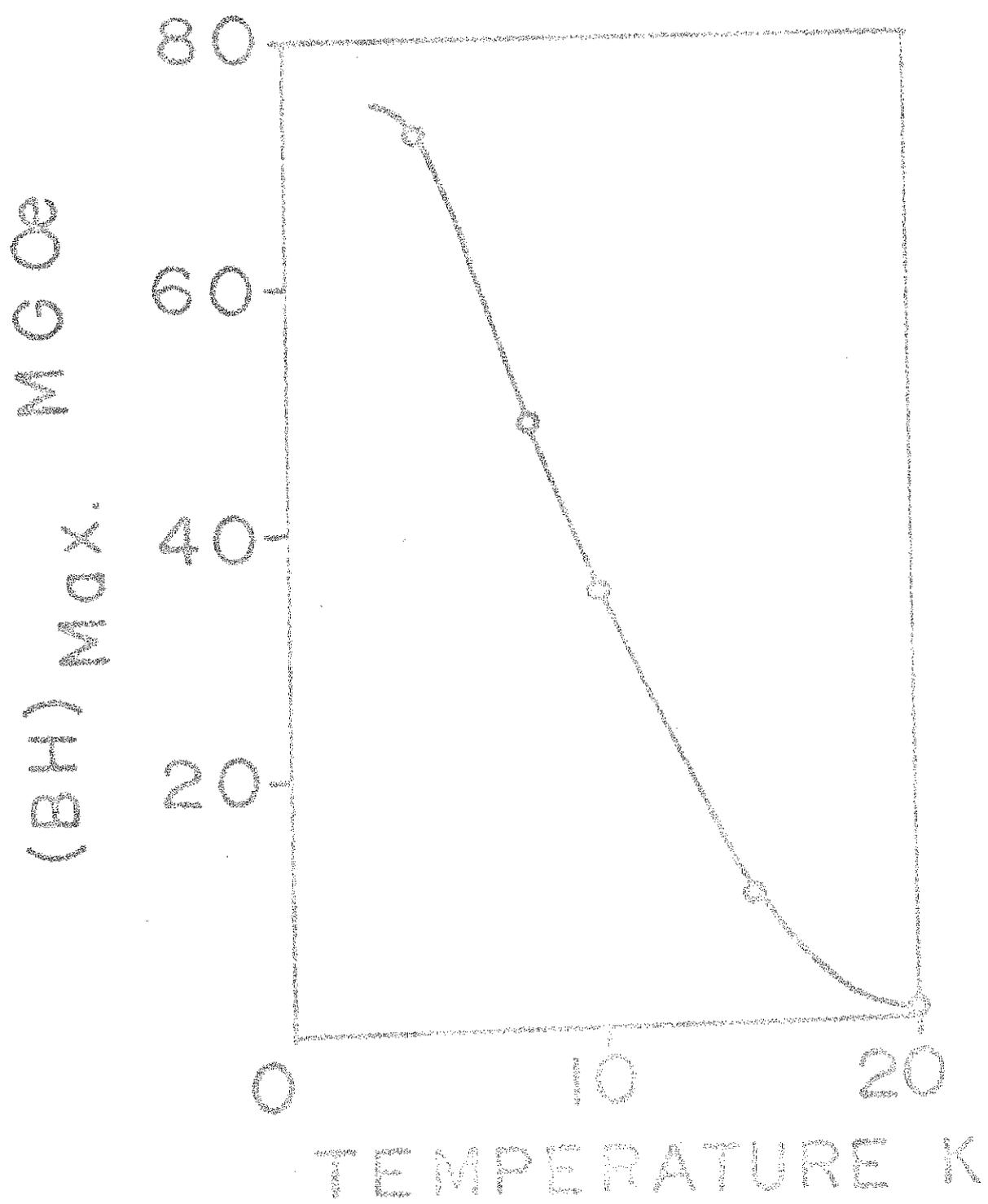


Figure III-2 : Variation thermique du produit énergétique maximum de Dy_3Al_2 suivant l'axe c.

qu'une fraction de l'aimantation $M = H/N$. Lorsque les parois sont bloquées, le système est hors d'équilibre et a emmagasiné une énergie magnétostatique exédentaire $\frac{N}{2} (M - \Delta M)^2$. Cette énergie est restituée dès que les parois deviennent mobiles et peut provoquer, si la variation thermique de l'aimantation est lente, une nouvelle diminution de l'aimantation au voisinage de θ_+ .

c - Application aux aimants permanents

La qualité essentielle d'un aimant permanent réside dans la coexistence d'une aimantation rémanente et d'un champ coercitif élevés. La valeur maximale de ce dernier est celle du champ d'anisotropie. On s'en rapproche habituellement par des moyens artificiels tels que le broyage du matériau en fines particules. Un matériau dont les parois, étroites, sont figées, présente naturellement un champ coercitif élevé. L'aimantation ne peut varier que si le champ appliqué est supérieur au champ coercitif ; les cycles mineurs se réduisent à des droites de pente très faible (figure III-1). Cependant, le champ coercitif décroît rapidement lorsque la température augmente ; l'aimantation rémanente s'annule à une température voisine de θ_+ . Les propriétés intrinsèques d'aimant permanent disparaissent (1re partie, figure II-10).

Le produit énergétique maximum de Dy_3Al_2 à 4,2 K est $(BH)_{\max} = 73$ MGOe. En raison de la valeur élevée du champ coercitif aucun effet de forme ne peut limiter son utilisation. Cependant, la variation thermique de l'énergie d'anisotropie entraîne une décroissance rapide du produit énergétique qui s'annule à θ_+ (figure III-2). Pour d'autres composés de telles propriétés associées aux parois étroites peuvent être trouvées dans un domaine de températures plus étendu.

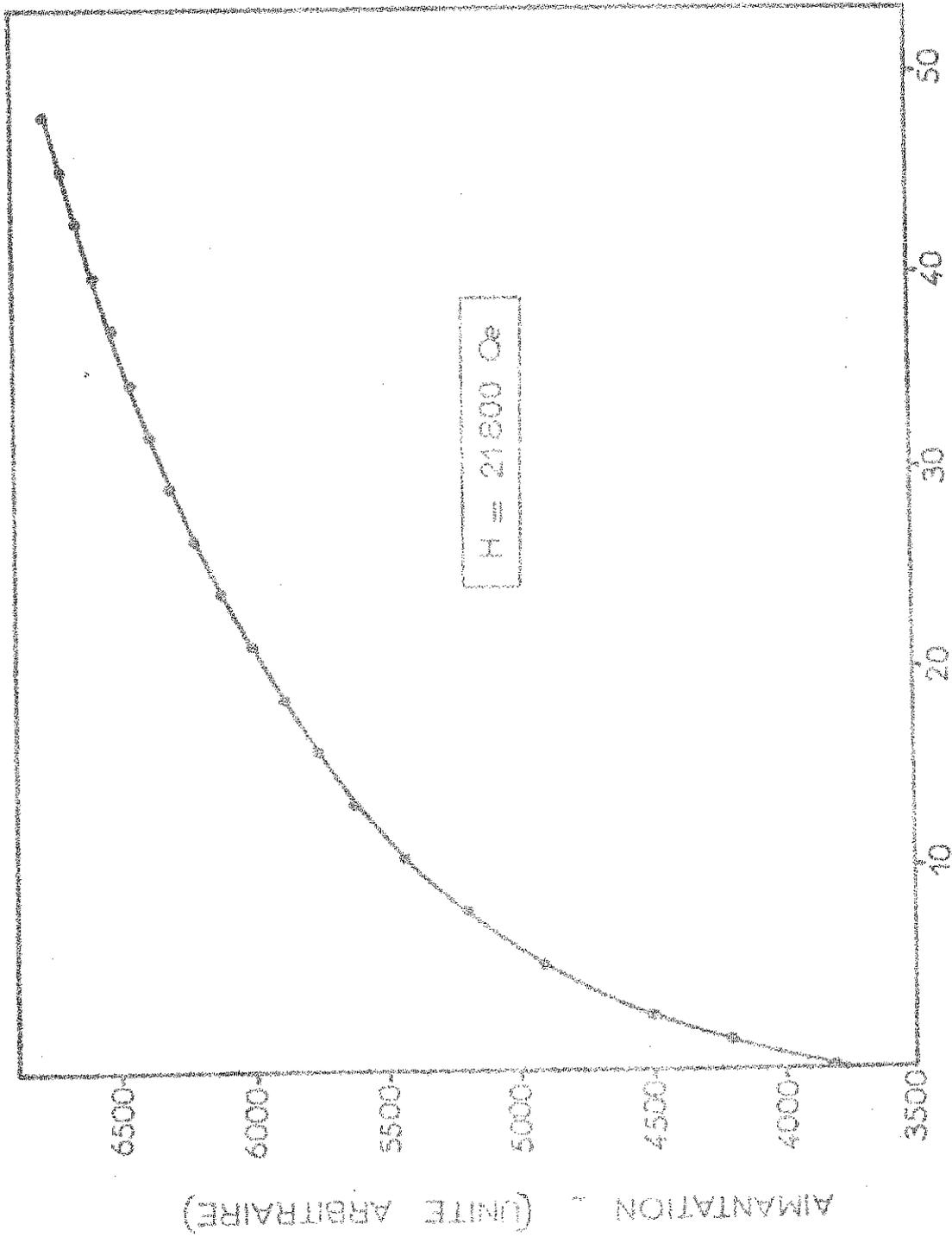


Figure III-3 : Variation de l'aimantation de Dy_3Al_2 mesurée au cours du temps à 4,2 K selon l'axe c.

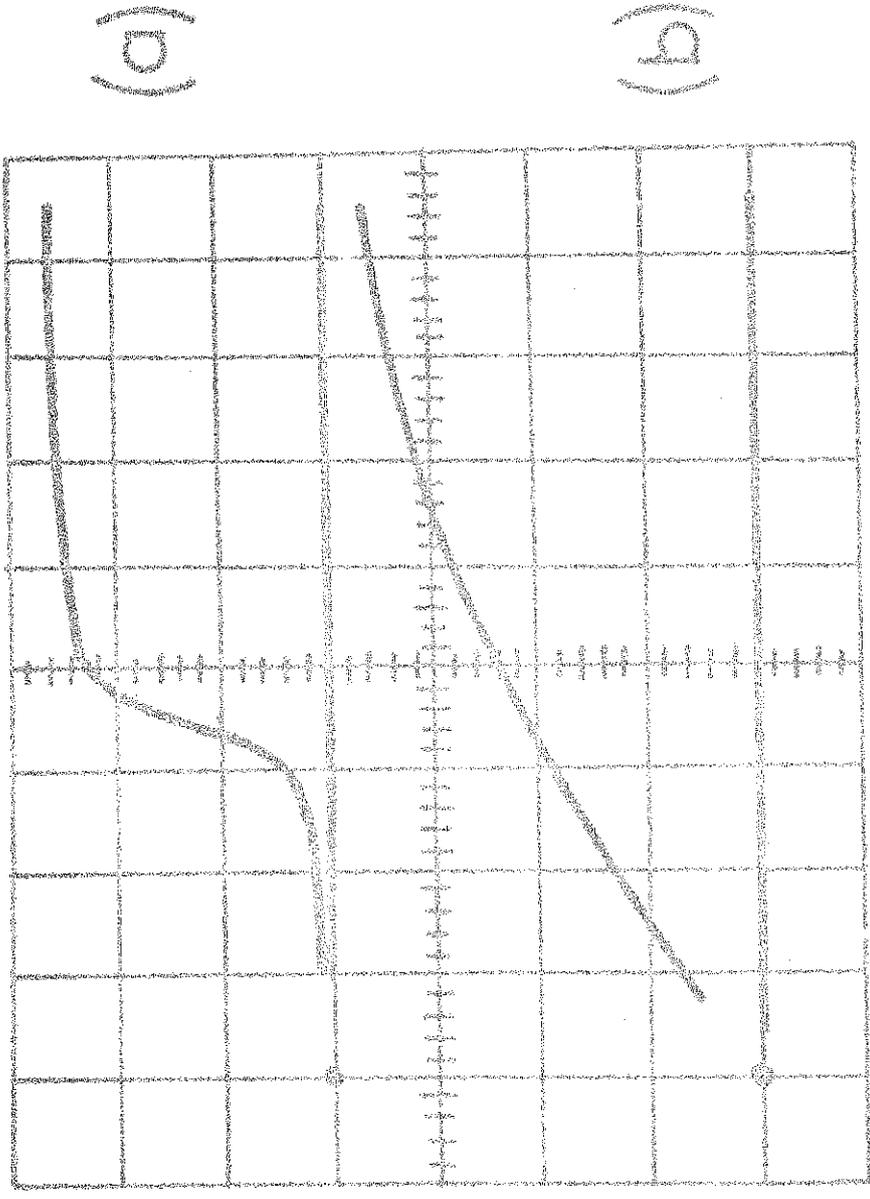


FIGURE III-4 : Etude en champs puisés.
 (a) Variation de l'orientation en fonction du temps.
 (b) Variation du champ appliqué en fonction du temps.

2 - PROPRIETES MAGNETIQUES SOUS CHAMPS DYNAMIQUES

a - Méthodes expérimentales

Le champ coercitif mesuré est très inférieur au champ coercitif propre calculé (1re partie, chapitre II et 2e partie, chapitre II) ; sa valeur dépend cependant de la vitesse à laquelle la mesure est effectuée. Nous avons mesuré le taux d'accroissement de l'aimantation, au voisinage du champ seuil, en fonction d'un champ variant de 0,1 à 10 Oe/sec, et de 10^7 à 10^9 Oe/sec.

Dans le premier cas, le champ extérieur, fourni par une bobine supraconductrice, est maintenu constant. Le champ interne décroît en fonction du temps en raison de l'augmentation de l'aimantation. Des mesures très précises de l'aimantation (résolution de 10^{-5}) en fonction du temps (figure III-3) donnent le taux d'accroissement de l'aimantation ΔM pendant le temps Δt en fonction du champ interne.

Dans le second cas, nous avons utilisé des champs pulsés. Les figures III-4-a et III-4-b montrent la variation de l'aimantation et du champ appliqué en fonction du temps. Dans les champs faibles dM/dt reste inférieur à dH/dt ; à l'instant critique t_s où le champ appliqué est égal au champ seuil H_s , dM/dt croît brusquement et devient supérieur à dH/dt . Dans un intervalle de temps très petit autour de t_s , dM/dt est égal à dH/dt . La détermination de dM/dt se réduit à celle de dH/dt au voisinage immédiat du champ seuil. La mesure est ainsi effectuée avant que le cycle d'hystérésis ne soit décrit. L'échantillon n'a pas encore subi l'échauffement qui en résulte ; en effet, cinq cycles décrits dans un intervalle de 10^{-3} secondes sont suffisants pour porter l'échantillon à une température supérieure à la température critique θ_+ . L'influence des courants de Foucault est négligeable dans la gamme des vitesses utilisées ; les résultats obtenus sur un échantillon polycristallin dont les grains ont un diamètre moyen de 100 μ sont identiques à ceux obtenus sur un monocristal sphérique de 3 mm de diamètre.

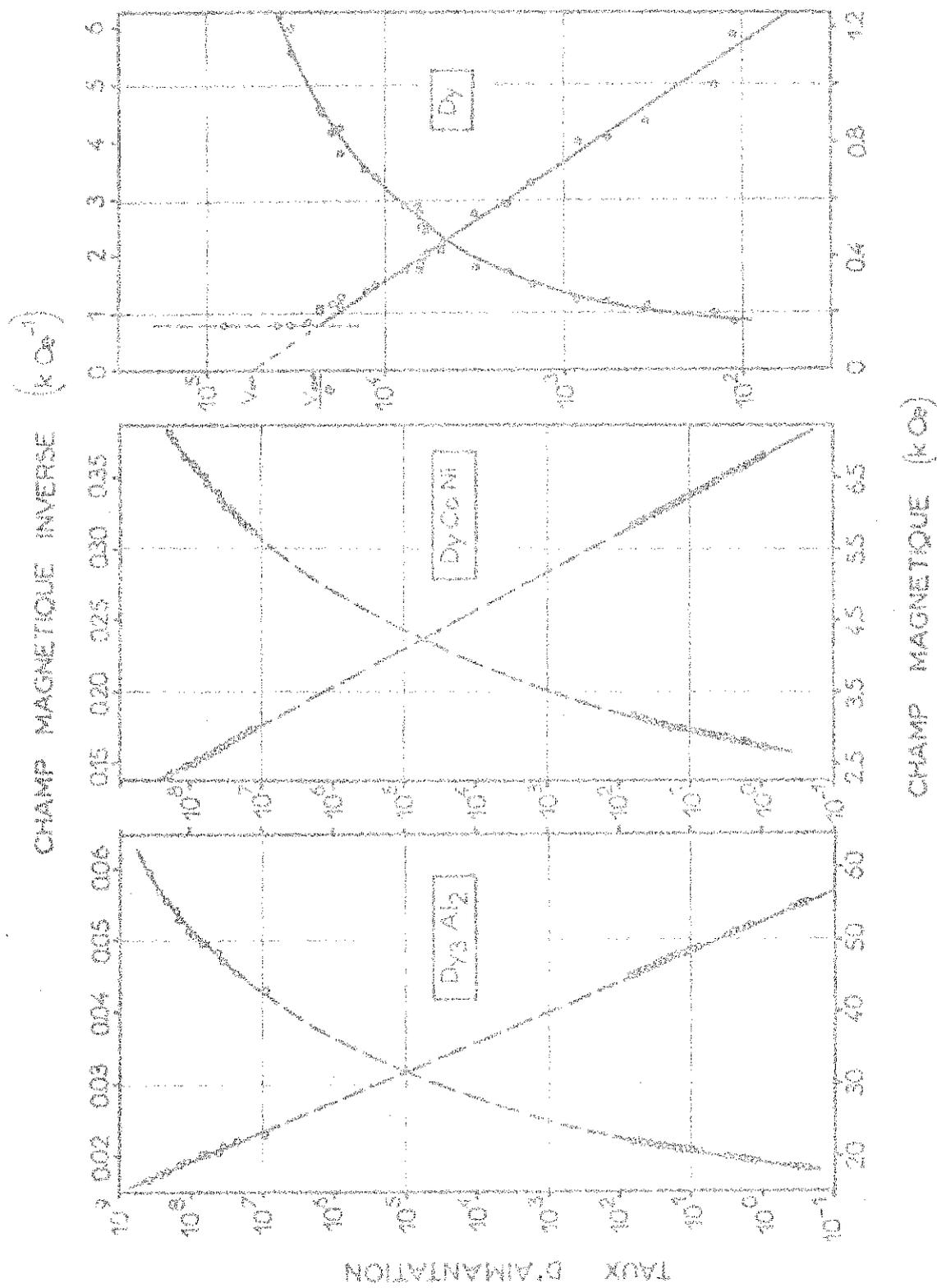


Figure III-5 : Variation logarithmique du taux d'aimantation en fonction du champ inverse et de son inverse pour Dy_3Al_2 , $DyCoNi$ et Dy à 4,2 K.

b - Résultats expérimentaux et discussion

Les deux méthodes de mesure mettent en évidence la similitude des comportements dynamiques des composés Dy_3Al_2 et $DyCoNi$ qui présentent tous deux des parois étroites à 4,2 K. Nous avons porté sur la figure III-5 le logarithme du taux d'augmentation de l'aimantation v en fonction du champ interne H ou de son inverse $1/H$. Les courbes $\log v = f(H)$ présentent une courbure négative très marquée alors que les courbes $\log v = f(1/H)$ sont des droites. Les résultats expérimentaux à 4,2 K peuvent s'exprimer par la loi empirique :

$$v = v_{\infty} \exp\left(-\frac{H_0}{H}\right),$$

où v_{∞} et H_0 sont des constantes se déduisant de la variation linéaire précédente.

En utilisant les résultats expérimentaux obtenus à 4,2 K par Egami⁽²¹⁾ sur le dysprosium, nous avons constaté que ce métal suit la même loi que les deux composés précédents (figure III-5). A partir d'un champ $H_0 = 1,1$ kOe, le taux d'augmentation de l'aimantation devient très grand ; l'échantillon devient monodomaine ; la valeur du champ coercitif propre du dysprosium calculée par Egami⁽²¹⁾ : $H_p = 1,1$ kOe, est en bon accord avec ce résultat. Les valeurs de H_0 déduites des courbes de la figure III-5 sont respectivement de 1,1 kOe, 85 kOe et 550 kOe pour Dy , $DyCoNi$ et Dy_3Al_2 . La valeur de 550 kOe représente approximativement le champ coercitif propre de Dy_3Al_2 qui est égal à son champ d'anisotropie (chapitre II). Le coefficient H_0 semble donc étroitement lié à la valeur du champ coercitif propre.

Des lois exponentielles analogues ont été observées dans l'étude du retournement des domaines ferroélectriques sous l'effet d'un champ électrique^(42,43) et dans celle du déplacement des dislocations dans leur plan de glissement sous l'effet d'une contrainte de cisaillement^(44,45). Zijlstra⁽¹⁹⁾ a remarqué la ressemblance entre les parois étroites d'un ferromagnétique

très anisotrope et celles d'un ferroélectrique, tandis que Egami⁽²¹⁾ a comparé la barrière de potentiel qui s'oppose au déplacement d'une paroi étroite au potentiel de Peierls relatif aux dislocations. Ces lois ont été interprétées par un mécanisme de nucléation thermiquement activée. Pour les composés étudiés le phénomène ne peut être entièrement expliqué par un tel mécanisme car il a lieu à très basse température.

Le champ seuil et le champ coercitif observés n'ont pas de signification physique bien définie, leurs valeurs résultent d'un compromis entre la vitesse d'application du champ et celle d'un processus de nucléation. Cependant, d'après la loi empirique mise en évidence, le champ coercitif observé est proportionnel au champ propre.

C O N C L U S I O N

L'étude des propriétés magnétiques des composés T_3Al_2 nous a permis de mettre en évidence un nouveau processus d'aimantation associé à des parois étroites entre domaines magnétiques. Ces propriétés, caractéristiques des matériaux ferromagnétiques à forte anisotropie magnétocristalline, sont générales. Elles conduisent en particulier à une meilleure compréhension du magnétisme des composés à base de terres rares.

Dans une première partie nous avons montré que les propriétés magnétiques des composés T_3Al_2 évoluent avec le remplissage de la couche 4f ; il existe trois comportements différents : Gd_3Al_2 est ferromagnétique ; Tb_3Al_2 , Dy_3Al_2 et Ho_3Al_2 ont un caractère à la fois ferromagnétique et antiferromagnétique ; Er_3Al_2 et Tm_3Al_2 sont antiferromagnétiques. Tous ces composés à l'exception de Gd_3Al_2 présentent une très forte anisotropie magnétocristalline que nous avons étudiée sur le monocristal de Dy_3Al_2 . Les structures magnétiques obtenues par diffraction neutronique sont non colinéaires et résultent d'un compromis entre les énergies d'échange et d'anisotropie ; les directions de facile aimantation dépendent du site cristallographique occupé par les atomes de terres rares. Pour rendre compte des intensités observées, l'arrangement des moments doit présenter une résultante ferromagnétique. Ce résultat nous a conduit à expliquer les variations isothermes de l'aimantation par un processus d'aimantation original.

Dans une seconde partie nous étudions ce processus d'aimantation. Les parois entre domaines sont étroites et figées par une anisotropie magnétocristalline très élevée. Nous avons calculé pour une substance uniaxe la configuration et l'énergie de ces parois en fonction du rapport de l'énergie magnétocristalline à l'énergie d'échange. Afin de déterminer le critère de stabilité d'une paroi étroite, dans un modèle à deux axes d'anisotropie coplanaires, nous avons déterminé la configuration et l'énergie d'une paroi de Bloch dans les matériaux ferromagnétiques non colinéaires. Le calcul du champ propre, associé aux parois étroites, en fonction du rapport de l'énergie magnétocristalline à l'énergie d'échange montre qu'une coercivité importante existe dès que ce rapport est voisin de l'unité. La valeur du champ propre varie très rapidement avec l'épaisseur de paroi. Elle est pratiquement nulle pour des épaisseurs de parois supérieures à quatre distances interatomiques ; dès que la paroi s'étend sur une seule distance interatomique, elle atteint des valeurs comparables à celle du champ d'anisotropie.

Dans une substance ferromagnétique, les parois s'amin-
cissent de plus en plus lorsque l'énergie d'anisotropie magnéto-
cristalline croît ; il en résulte un freinage intrinsèque qui
s'oppose à leur déplacement. En raison de cette viscosité, des
anomalies de la variation thermique de l'aimantation sont obser-
vées lorsque le champ appliqué est inférieur au champ démagné-
tisant. En utilisant des champs statiques et des champs pulsés,
nous avons mesuré le taux d'accroissement de l'aimantation
 $v = dM/dt$ en fonction du champ H dans plusieurs composés qui
présentent des parois étroites. Les résultats expérimentaux
suivent la loi empirique $v = v_{\infty} \exp(-H_0/H)$. Cette loi est ana-
logue à celle qui régit le renversement des domaines dans les
ferroélectriques ou le mouvement des dislocations. Elle s'inter-
prète par un phénomène de nucléation.

ANNEXE I

DIFFRACTION NEUTRONIQUE

Existence d'une composante ferromagnétique dans la
structure de Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2

Le facteur de structure magnétique \vec{F} s'écrit :

$$\vec{F} = \vec{F}_1 + \vec{F}_2 + \vec{F}_3 \quad (1)$$

$\vec{F}_1, \vec{F}_2, \vec{F}_3$ étant des facteurs de structure relatifs au site 4b et à chacun des sites 4c.

Soient $\vec{m}_1, \vec{m}_2, \vec{m}_3, \vec{m}_4$ les moments magnétiques portés par les atomes des sites 4c ou 4b pris dans l'ordre des Tables Internationales de Crystallographie⁽³⁵⁾.

Posons pour le site 4b (1) :

$$\vec{m}_1 + \vec{m}_2 = \vec{E}_1 ; \vec{m}_3 + \vec{m}_4 = \vec{E}'_1$$

$$\vec{m}_1 - \vec{m}_2 = \vec{D}_1 ; \vec{m}_3 - \vec{m}_4 = \vec{D}'_1$$

Nous définissons de la même manière les vecteurs $\vec{E}_2, \vec{E}'_2; \vec{D}_2, \vec{D}'_2$ pour les sites 4c (2) et $\vec{E}_3, \vec{E}'_3, \vec{D}_3, \vec{D}'_3$ pour le site 4c(3)

$$\vec{F}_1 = \frac{1}{2} \left[(-1)^k + (-1)^h \right] \left[\vec{E}'_1 + (-1)^l \vec{E}_1 \right] + \frac{1}{2} \left[(-1)^k - (-1)^h \right] \left[\vec{D}'_1 + (-1)^l \vec{D}_1 \right] \quad (2)$$

$$\vec{F}_2 = e^{2i\pi lz_2} \left[\vec{E}_2 \cos 2\pi(h+k)x_2 + (-1)^{h+k+l} \vec{E}'_2 \cos 2\pi(h-k)x_2 \right. \\ \left. + i \vec{D}_2 \sin 2\pi(h+k)x_2 + i (-1)^{h+k+l} \vec{D}'_2 \sin 2\pi(h-k)x_2 \right] \quad (3)$$

On obtient \vec{F}_3 en remplaçant les indices 2 par 3.

- Application à la raie 211

La relation ① s'exprime pour les différentes multiplis-
cités de la réflexion 211 :

$$\begin{aligned} T \vec{F}_{211} &= -\vec{T} - \vec{U} + i\vec{V} ; & F_{\bar{2}11} &= -T + W + iZ ; \\ \vec{F}_{21\bar{1}} &= -\vec{T} + \vec{U} + i\vec{V} ; & \vec{F}_{\bar{2}1\bar{1}} &= -\vec{T} - \vec{W} + i\vec{Z} ; \\ \vec{F}_{121} &= \vec{T} - \vec{V} + i\vec{Y} ; & \vec{F}_{1\bar{2}1} &= \vec{T} + \vec{X} + i\vec{Z} ; \\ \vec{F}_{12\bar{1}} &= \vec{T} + \vec{V} + i\vec{Y} ; & \vec{F}_{1\bar{2}\bar{1}} &= \vec{T} - \vec{X} + i\vec{Z}. \end{aligned}$$

Dans ces expressions nous avons posé :

$$\vec{T} = \vec{D}_1 - \vec{D}_1'$$

$$\begin{aligned} \vec{U} &= 0,28\vec{D}_2 + 0,82\vec{D}_2' + 0,66\vec{D}_3 - 0,96\vec{D}_3' ; & \vec{X} &= 0,82\vec{D}_2 - 0,28\vec{D}_2' - 0,96\vec{D}_3 - 0,66\vec{D}_3' ; \\ \vec{V} &= 0,28\vec{D}_2 - 0,82\vec{D}_2' + 0,66\vec{D}_3 + 0,96\vec{D}_3' ; & \vec{Y} &= -0,96\vec{E}_2 + 0,57\vec{E}_2' + 0,75\vec{E}_3 - 0,27\vec{E}_3' ; \\ \vec{W} &= 0,82\vec{D}_2 + 0,28\vec{D}_2' - 0,96\vec{D}_3 + 0,66\vec{D}_3' ; & \vec{Z} &= 0,57\vec{E}_2 - 0,96\vec{E}_2' - 0,27\vec{E}_3 + 0,75\vec{E}_3'. \end{aligned}$$

La raie 211 n'est pas observée, le facteur de structure $\vec{F}_{\{211\}}$ relatif à chacune des huit réflexions est soit parallèle au vecteur de diffusion $[hkl]$ soit nul :

1re possibilité :

$$\begin{aligned} \vec{Y} // \vec{T} + \vec{U} // [211] ; & \vec{Z} // \vec{T} - \vec{W} // [\bar{2}11] ; \\ \vec{Y} // \vec{T} - \vec{U} // [21\bar{1}] ; & \vec{Z} // \vec{T} + \vec{W} // [\bar{2}1\bar{1}] ; \\ \vec{Y} // \vec{T} - \vec{V} // [121] ; & \vec{Z} // \vec{T} + \vec{X} // [1\bar{2}1] ; \\ \vec{Y} // \vec{T} + \vec{V} // [12\bar{1}] ; & \vec{Z} // \vec{T} - \vec{X} // [1\bar{2}\bar{1}] ; \end{aligned}$$

ces relations géométriques ne peuvent être simultanément satisfaites

2e possibilité :

$$\begin{aligned} \vec{T} + \vec{U} = 0 ; \vec{T} - \vec{U} = 0 ; \vec{T} - \vec{V} = 0 ; \vec{T} + \vec{V} = 0 ; \vec{Y} = 0 ; \\ \vec{T} - \vec{W} = 0 ; \vec{T} + \vec{W} = 0 ; \vec{T} + \vec{X} = 0 ; \vec{T} - \vec{X} = 0 ; \vec{Z} = 0 ; \end{aligned}$$

soit :

$$\boxed{\vec{D}_1 = \vec{D}_1'} \quad (4) \quad \boxed{\vec{D}_2 = \vec{D}_2' = \vec{D}_3 = \vec{D}_3' = 0} \quad (5)$$

- Application à la raie 111

$$\begin{aligned} \vec{F}_{111} &= \vec{r} + \vec{U} + i\vec{Y} & ; & \quad \vec{F}_{\bar{1}\bar{1}\bar{1}} = \vec{r} + \vec{V} + i\vec{Z} ; \\ \vec{F}_{11\bar{1}} &= \vec{r} - \vec{U} - i\vec{Y} & ; & \quad \vec{F}_{1\bar{1}\bar{1}} = \vec{r} - \vec{V} - i\vec{Z} ; \end{aligned}$$

où

$$\vec{r} = \vec{E}_1 - \vec{E}_1' ;$$

$$\vec{U} = 0,94\vec{D}_2 - 0,53\vec{D}_3 ; \quad \vec{Y} = 0,34\vec{E}_2 + \vec{E}_2' - 0,85\vec{E}_3 - \vec{E}_3' ;$$

$$\vec{V} = 0,94\vec{D}_2' - 0,53\vec{D}_3' ; \quad \vec{Z} = \vec{E}_2 + 0,34\vec{E}_2' - \vec{E}_3 - 0,85\vec{E}_3'.$$

Les différents vecteurs $\vec{F}_{\{111\}}$ ne peuvent être parallèles aux différents vecteurs de diffusion $[111]$.

D'où :

$$\vec{r} + \vec{U} = 0 ; \quad \vec{r} + \vec{V} = 0 ; \quad \vec{Y} = 0 ;$$

$$\vec{r} - \vec{U} = 0 ; \quad \vec{r} - \vec{V} = 0 ; \quad \vec{Z} = 0 ;$$

Compte-tenu de (5) on obtient :

$$\boxed{\vec{E}_1 = \vec{E}_1' = 0} \quad (6) \quad \boxed{\vec{E}_2 + \vec{E}_2' \parallel \vec{E}_3 + \vec{E}_3'} \quad (7)$$

- Application à la raie 112

$$\vec{F}_{112} = 0,34 \vec{E}_2 - \vec{E}_2' + 0,85\vec{E}_3 - \vec{E}_3'$$

$$\vec{F}_{11\bar{2}} = 0,34\vec{E}_2 - \vec{E}_2' + 0,85\vec{E}_3 - \vec{E}_3'$$

$$\vec{F}_{1\bar{1}2} = -\vec{E}_2 + 0,34\vec{E}_2' - \vec{E}_3 + 0,85\vec{E}_3'$$

$$\vec{F}_{1\bar{1}\bar{2}} = -\vec{E}_2 + 0,34\vec{E}_2' - \vec{E}_3 + 0,85\vec{E}_3'.$$

Cette raie n'est pas observée ; comme $\vec{F}_{112} = \vec{F}_{11\bar{2}}$, il est impossible d'avoir $\vec{F}_{112} \parallel [112]$ et $\vec{F}_{11\bar{2}} \parallel [11\bar{2}]$ D'où :

$$\vec{E}_2 + \vec{E}_3 \parallel \vec{E}_2' + \vec{E}_3' \quad (8)$$

- Application à la raie 210

$$\begin{aligned} \vec{F}_{210} &= 2\vec{D}_1 + \vec{U} & ; & & \vec{F}_{120} &= -2\vec{D}_1 + \vec{U} ; \\ \vec{F}_{2\bar{1}0} &= 2\vec{D}_1 - \vec{V} & ; & & \vec{F}_{1\bar{2}0} &= -2\vec{D}_1 - \vec{V} ; \end{aligned}$$

où :

$$\begin{aligned} \vec{U} &= 0,96\vec{E}_2 + 0,57\vec{E}_2' + 0,75\vec{E}_3 + 0,27\vec{E}_3' ; \\ \vec{V} &= 0,57\vec{E}_2 + 0,96\vec{E}_2' + 0,27\vec{E}_3 + 0,75\vec{E}_3' ; \end{aligned}$$

la partie magnétique de l'intensité de la raie 210 est très importante ; elle ne s'explique que si les différents facteurs de structure ont un module maximum et sont parallèles à l'axe c . Les relations (7) et (8) montrent que les modules des vecteurs \vec{U} et \vec{V} doivent être maximum ;

soit : $\boxed{\vec{E}_2 // \vec{E}_2' // \vec{E}_3 // \vec{E}_3'}$.

Une forte résultante ferromagnétique doit donc exister sur les 2 sites 4c.

ANNEXE II

P A R O I S

I - Détermination de la configuration et de l'énergie d'une paroi en champ nul

Il s'agit de résoudre le système de $2N$ équations établi au chapitre I de la 2e partie :

$$\frac{K}{2W} \sin 2\theta_n - \left[\sin(\theta_{n+1} - \theta_n) + \sin(\theta_{n-1} - \theta_n) \right] = 0 ; n=1, 2, \dots, 2N \quad (1)$$

ces équations s'écrivent :

$$\theta_{n+1} = \theta_n + \text{Arc sin} \left[\frac{K}{2W} \sin 2\theta_n - \sin(\theta_{n-1} - \theta_n) \right] ; n=1, 2, \dots, 2N \quad (2)$$

La connaissance de θ_{n+1} nécessite celle de θ_n et θ_{n-1} . L'angle θ_3 est calculé à partir des angles θ_1 et θ_2 . Le calcul est ensuite effectué de proche en proche. La valeur de θ_1 est arbitraire ; il est nécessaire de trouver une relation entre θ_1 et θ_2 .

Solution littérale du système linéarisé proposé par M. NéeI

Lorsque les angles θ sont petits, l'équation (1) s'écrit :

$$2\theta_n - \frac{2W}{K} \left[\theta_{n+1} + \theta_{n-1} - 2\theta_n \right] = 0$$

soit $\rho\theta_n = \theta_{n+1} + \theta_{n-1} \quad (3)$

avec : $\rho = 2 + \frac{K}{W}$

La solution de cette équation linéaire (3) est du type :

$$\theta_n = \theta_0 e^{n\psi} \quad \text{avec } \psi = \text{Arg ch } \frac{\rho}{2}. \quad (4)$$

Les différents angles θ_n forment une progression géométrique de raison e^ψ .

Relation entre θ_1 et θ_2

θ_1 et θ_2 définissent le début de la paroi, ils sont petits donc solutions de l'équation (3) :

$$\theta_2 = \theta_1 e^{\psi} \quad (5)$$

A l'autre extrémité de la paroi les moments \vec{m}_{2N} et \vec{m}_{2N-1} , symétriques de \vec{m}_1 et \vec{m}_2 sont liés par une relation analogue :

$$\Pi - \theta_{2N-1} = (\Pi - \theta_{2N})e^{\psi} \quad (6)$$

Energie superficielle de paroi

L'énergie de paroi est obtenue en substituant numériquement les différentes valeurs des angles θ_n dans l'expression de l'énergie :

$$\frac{\gamma_p}{K} = \frac{M_o^2}{a^2} \sum_{n=1}^{2N} \sin^2 \theta_n + \frac{2W}{K} \left[1 - \frac{\cos(\theta_{n+1} - \theta_n) + \cos(\theta_{n-1} - \theta_n)}{2} \right] \quad (7)$$

II - Détermination de la configuration de la paroi sous champ.

Calcul du champ propre

Le système de 2N équations :

$$\sin 2\theta_n - \frac{2W}{K} \left[\sin(\theta_{n+1} - \theta_n) + \sin(\theta_{n-1} - \theta_n) \right] + \frac{H}{KM_o} \sin \theta_n = 0 ; n=1, 2, \dots, 2N$$

(8)

Se résoud comme le précédent de proche en proche. Il faut aussi connaître une relation reliant θ_2 à θ_1 .

Solution littérale de l'équation linéarisée

Lorsque les angles θ sont petits, l'équation (8) s'écrit :

$$2\theta_n - \frac{2W}{K} (\theta_{n+1} + \theta_{n-1} - 2\theta_n) + \frac{H}{KM_o} \theta_n = 0$$

Les relations entre θ_1 et θ_2 et entre θ_{2N} et θ_{2N+1} sont les mêmes qu'en champ nul, seule la raison de la progression est modifiée :

$$\psi' = \text{Arg ch } \frac{\rho'}{2} \quad \text{avec} \quad \rho' = 2 + \frac{2KM_0 + H}{2WM_0}$$

Connaissant θ_1 et θ_2 les équations (8) donnent θ_3 puis $\theta_4 \dots$ enfin θ_{2N} . La configuration d'une paroi caractérisée par le rapport K/W est obtenue pour chaque valeur au champ réduit H/H_A . Dès que le champ devient supérieur ou égal à une valeur critique, H_p/H_A , la seule solution du système est la solution banale $\theta_n = 0$ pour $n = 1, 2, \dots, 2N$. H_p est le champ de propagation de la paroi considérée.

REFERENCES

Historique

- 1 - K.H.J. BUSCHOW et J.H.N. VAN VUCHT
Zeitschrift für Metallkunde, 56, (1965), 9.
- 2 - J.H. WERNICK et S. GELLER
Trans. of the Metall. Society of AIME, 218, (1960), 866.
- 3 - K.H.J. BUSCHOW
Philips Research Reports, 20, (1965), 64.
- 4 - J.H.N. VAN VUCHT et K.H.J. BUSCHOW
Philips Research Reports, 196, (1964), 319.
- 5 - C. BECLE et R. LEMAIRE
C. R. Acad. Sc. Paris, 264, (1967), 543.
- 6 - C. BECLE et R. LEMAIRE
C. R. Acad. Sc. Paris, 264, (1967), 887.
- 7 - K.H.J. BUSCHOW et A.S. VAN DER GOOT
J. Less Comm. Metals, 24, (1971), 117.
- 8 - K.H.J. BUSCHOW et J.H.N. VAN VUCHT
Philips Research Reports, 22, (1967), 233.
- 9 - H.J. WILLIAMS, J.H. WERNICK, E.A. NESBITT et R.C. SHERWOOD
J. Phys. Society of Japan, 17, Suppl. B1, (1962), 91.
- 10 - N. NERESON, C. OLSEN et G. ARNOLD
J. Appl. Phys., 37, (1966), 4575.
- 11 - K.H.J. BUSCHOW et J.F. FAST
Zeitschrift für Physikalische Chemie Bd, 50, (1966), 1.

- 12 - C. BECLE
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, (1968).
- 13 - C. BECLE, R. LEMAIRE et D. PACCARD
J. Appl. Phys., 41, (1970), 855.
- 14 - K.H.J. BUSCHOW
Phys. Lett., 29A, (1969), 12.
- 15 - G.T. TRAMMELL
Phys. Rev., 131, (1963), 932.
- 16 - H. ZIJLSTRA
I.E.E.E. Trans. on Magn., 6, (1970), 179.
- 17 - B. BARBARA, C. BECLE, R. LEMAIRE et D. PACCARD
C. R. Acad. Sc. Paris, 271, (1970), 880.
- 18 - T. EGAMI et C.D. GRAHAM Jr.
J. Appl. Phys., 42, (1971), 1299.
- 19 - J.J. VAN DER BROEK et H. ZIJLSTRA
I.E.E.E. Trans. on Magn., 7, (1971), 226.
- 20 - K.N.R. TAYLOR
Phys. Lett., 35A, (1971), 153.
- 21 - T. EGAMI
American Inst. of Phys., Proceedings of the 17th Conference
on Magnetism and Magnetic Materials, (1971).

Première partie

Chapitre I

- 22 - G. BASSI
Thèse de 3e Cycle, Université de Grenoble, (1966).
- 23 - N.C. BAENZIGER et J.J. HEGENBARTH
Acta Cryst., 17, (1964), 620.

Chapitre II

- 24 - P. WEISS
J. de Phys., 4, (1905), 473.
- 25 - G. RIMET
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, (1960).
- 26 - R. BOISSIER, F. BRICHANT, J. GOYER, J. FOURNIER, R. RICQUE,
J.L. FERON, R. PAUTHENET et J.C. PICOCHÉ
Les champs magnétiques intenses, leur production et leurs
applications, Ed. du C.N.R.S., Paris, 15, quai A. France,
(1967), 83.
- 27 - G. FOEX et R. FORRER
J. de Phys. et le Rad., 7, (1926), 180.
- 28 - M. GRIFFEL, S. LEGVOLD et F. SPEDDING
Phys. Rev., 120, (1961), 741.
- 29 - K. SCHKIZAWA et K. YASUKOCHI
J. of the Phys. Society of Japan, 21, (1966), 684.
- 30 - W.C. THOBURN, S. LEGVOLD et F. SPEDDING
Phys. Rev., 110, (1958), 1298.

Chapitre III

- 31 - V.Y. NAISH et Y.A. TUROV
Fiz. Metal Metalloved, 11, (1961), 321.
- 32 - E.F. BERTAUT
Acta Cryst., 24, (1968), 217.
- 33 - O. STEINSVOLL et C. SHIRANE
Phys. Rev., 161, (1967), 499.
- 34 - N. NERESON, C. OLSEN et G. ARNOLD
J. Appl. Phys., 37, (1966), 4575.
- 35 - International Tables for X-Ray Crystallography,
Birmingham, Kynoch Press, (1962).

Deuxième partieChapitre I

- 36 - H.J. WILLIAMS, R.C. SHERWOOD, J.H. WERNICK et E.A. NESBITT
J. Appl. Phys., 35, (1966), 1032.
- 37 - C. BERTHET-COLOMINAS, J. LAFOREST, R. LEMAIRE, R. PAUTHENET
et J. SCHWEIZER
Cobalt, 39, (1968), 97.
- 38 - D. MELVILLE et K.N.R. TAYLOR
Conférence sur les terres rares et les Actinides,
Durham, Angleterre, (1971).
- 39 - B. BARBARA et D. GIGNOUX
C. R. Acad. Sc. Paris, 274, (1972), 319.
- 40 - J.L. FERON, D. GIGNOUX, R. LEMAIRE et D. PACCARD
Colloque Intern. du C.N.R.S. sur les Eléments des terres
rares, Paris-Grenoble, II, 75, (1969).
- 41 - D. GIGNOUX
Communication privée.

Chapitre III

- 42 - W.J. MERZ
Phys. Rev., 95, (1954), 690.
- 43 - R.C. MILLER et G. WEINREICH
Phys. Rev., 117, (1960), 1460.
- 44 - V. CELLI, M. KABLER, T. NINOMIYA et R. THOMSON
Phys. Rev., 131, (1963), 58.
- 45 - J.J. GILMAN
J. Appl. Phys., 36, (1965), 3195.

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>HISTORIQUE</u>	3
<u>1re PARTIE : ETUDE CRISTALLOGRAPHIQUE ET MAGNETIQUE</u> DES COMPOSES T_3Al_2	6
<u>CHAPITRE I : PREPARATION - STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE</u>	7
1 - Méthodes expérimentales - Préparation	7
2 - Structures cristallographiques	9
<u>CHAPITRE II : ETUDE MAGNETOSTATIQUE DES COMPOSES T_3Al_2</u>	15
1 - Techniques expérimentales	15
2 - Etude magnétostatique des composés polycristallins T_3Al_2	16
a - mesures dans le domaine ordonné	16
b - étude de la susceptibilité des composés T_3Al_2 dans le domaine paramagnétique	18
c - discussion	19
3 - Etude magnétique du composé monocristallin Dy_3Al_2	20
a - mesures dans le domaine ordonné	20
b - mesures dans le domaine paramagnétique	21
c - discussion	22

<u>CHAPITRE III</u> : ETUDE PAR DIFFRACTION NEUTRONIQUE DES COMPOSES Tb_3Al_2 ET Dy_3Al_2	23
1 - Méthode et résultats expérimentaux	23
2 - Recherche des configurations magnétiques compatibles avec la symétrie du cristal	25
3 - Détermination de la structure magnétique de Tb_3Al_2 et Dy_3Al_2	27
4 - Discussion	35
<u>2e PARTIE</u> : PROCESSUS D'AIMANTATION PARTICULIER AUX COMPOSES FERROMAGNETIQUES A FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE	37
<u>CHAPITRE I</u> : ETUDE DES PAROIS ENTRE DOMAINES MAGNETIQUES DES COMPOSES A FORTE ANISOTROPIE MAGNETO- CRISTALLINE	38
1 - Notion de paroi de Bloch	38
2 - Notion de paroi étroite	39
3 - Stabilité d'une paroi étroite dans un composé uniaxe	40
4 - Stabilité d'une paroi étroite dans un composé non colinéaire	42
<u>CHAPITRE II</u> : CHAMP COERCITIF PROPRE AUX MATERIAUX A FORTE ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE	47
1 - Composés uniaxes	47
2 - Composés non colinéaires	49
3 - Discussion	50