

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE GRENOBLE

pour obtenir le grade

DOCTEUR D'UNIVERSITE

par

Mitsuru UEHARA

SUJET

Contribution à l'étude de la
coercivité des composés

SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

Soutenue le 26 juin 1975 devant la commission d'Examen

M. L. NÉEL

Président

MM. B. BARBARA

J.C. BARBIER

H. LEMAIRE

Mme C. MINIER

Examineurs

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

M. Michel SOUTIF : Président
M. Gabriel CAU : Vice-président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BEAUDOING André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BEZES Henri	Pathologie chirurgicale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BRAVARD Yves	Géographie
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARLIER Georges	Biologie végétale
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Clinique Oto-Rhino-Laryngologique
	CHATEAU Robert	Thérapeutique (Neurologie)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DELORMAS Pierre	Pneumo-Physiologie
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphillographie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique

MM.	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	JANIN Bernard	Géographie
	KAHANE André	Physique générale
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Mlle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MICOUD Max	Clinique maladies infectieuses
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	MULLER Jean Michel	Thérapeutique (néphrologie)
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	RINALDI Renaud	Physique
	DE ROUGEMONT Jacques	Neuro-chirurgie
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SIBILLE Robert	Construction mécanique
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLANT François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	CHEEKE John	Thermodynamique
	COPPENS Philip	Physique
	CORCOS Gilles	Mécanique
	CRABBE Pierre	CERMO
	GILLESPIE John	I.S.N.
	ROKAFELLAR Ralph	Mathématiques appliquées

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mlle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	BELORIZKY Eile	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BILLET Jean	Géographie
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BRUGEL Lucien	Energétique
	CONTE René	Physique
	DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GAUTRON René	Chimie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Méd. Préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	JOLY Jean-René	Mathématiques pures
	JULLIEN Pierre	Mathématiques appliquées
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	KUHN Gérard	Physique
	LOISEAUX Jean	Physique nucléaire
	LUU-DUC-Cuong	Chimie Organique
	MAYNARD Roger	Physique du solide
	PELMONT Jean	Biochimie
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
Mlle	PIERY Yvette	Physiologie animale
MM.	RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	RICHARD Lucien	Biologie végétale
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM.	VIALON Pierre	Géologie
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	ARMAND Gilbert	Géographie
	ARMAND Yves	Chimie
	BARGE Michel	Neurochirurgie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Héliène	Pharmacodynamique
M.	BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHARDON Michel	Géographie
	CHERADAME Hervé	Chimie papetière
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)

MM.	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CORDONNIER Daniel	Néphrologie
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	CYROT Michel	Physique du solide
	DELOBEL Claude	M.I.A.G.
	DENIS Bernard	Cardiologie
	DOUCE Roland	Physiologie végétale
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures
	GAUTIER Robert	Chirurgie générale
	GENSAC Pierre	Botanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROS Yves	Physique (stag.)
	GUITTON Jacques	Chimie
	HICTER Pierre	Chimie
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	KOLODIE Lucien	Hématologie
	KRAKOWIAK Sacha	Mathématiques appliquées
Mme	LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM.	LEROY Philippe	Mathématiques
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
Mme	MINIER Colette	Physique
MM.	NEGRE Robert	Mécanique
	NEMOZ Alain	Thermodynamique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PERRET Jean	Neurologie
	PHÉLIP Xavier	Rhumatologie
	RACHAIL Michel	Médecine Interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RAMBAUD Pierre	Pédiatrie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Bactériologie
MM.	ROBERT Jean Bernard	Chimie-Physique
	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	SHOM Jean Claude	Chimie Générale
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VROUSOS Constantin	Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	COLE Antony	Sciences nucléaires
	FORELL César	Mécanique
	MOORSANI Kishin	Physique

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

MM.	BOST Michel	Pédiatrie
	CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
	FAURE Gilbert	Urologie
	MALLION Jean Michel	Médecine du travail
	ROCHAT Jacques	Hygiène et hydrologie

Fait à Saint Martin d'Hères, OCTOBRE 1974 .

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

Président : M. Louis NEEL
Vice-Présidents : MM. Jean BENOIT
Lucien BONNETAIN

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité
BESSON Jean	Electrochimie
BLOCH Daniel	Physique du solide
BONNETAIN Lucien	Chimie Minérale
BONNIER Etienne	Electrochimie et Electrometallurgie
BRISSENEAU Pierre	Physique du solide
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
COUMES André	Radioélectricité
FELICI Noël	Electrostatique
LESPINARD Georges	Mécanique
MOREAU René	Mécanique
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Physique du solide
PERRET René	Servomécanisme
POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
SILBER Robert	Mécanique des Fluides

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. RABINS Michaël	Automatique
ROUXEL Roland	Automatique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BLIMAN Samuel	Electronique
COHEN Joseph	Electrotechnique
DURAND Francis	Métallurgie
FOULARD Claude	Automatique
LANCIA Roland	Electronique
VEILLON Gérard	Informatique fondamentale et appliquée
ZADWORY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
BOUVARD Maurice	Génie mécanique
CHARTIER Germain	Electronique
GUYOT Pierre	Chimie Minérale
IVANES Marcel	Electrotechnique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du solide
LACOURME Jean-Louis	Géophysique
MORET Roger	Electrotechnique Nucléaire
ROBERT François	Analyse numérique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Informatique fondamentale et appliquée
Mme SAUCIER Gabrièle	Informatique fondamentale et appliquée

CHARGE DE FONCTIONS DE MAITRE DE CONFERENCES

MM. ANCEAU François	Mathématiques Appliquées
PIERRARD Jean-Marie	Hydraulique

.../...

CHERCHEURS DU C.N.R.S.

M. FRUCHART Robert	Directeur de recherche
M. ANSARA Ibrahim	Maître de recherche
M. DRIDLE Jean	Maître de recherche
M. MATHIEU Jean-Claude	Maître de recherche
M. MUNIER Jacques	Maître de recherche

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 de Magnétisme, pour m'avoir accueilli au Laboratoire de Magnétisme, et pour l'honneur qu'il me fait en présidant le jury de cette thèse.

Je remercie Monsieur Barbier, Professeur à l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble, d'avoir accepté de faire partie du jury.

Je suis également très sensible à la présence de Monsieur H. Lemaire, Directeur de la SERMAG, qui a suivi avec intérêt cette étude.

Je remercie Madame Minier, Professeur à l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble, d'avoir accepté de juger ce travail.

Monsieur Barbara, Chargé de Recherches au C.N.R.S., a assuré la direction de cette étude. 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.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Monsieur R. Lemaire, Maître de Recherches au C.N.R.S. pour m'avoir accueilli dans son groupe et pour les discussions qu'il a constamment suscitées et qui m'ont beaucoup appris.

Je remercie Monsieur Nishida, Chercheur à l'Institut National de Recherches des Métaux à Tokyo, pour qui tout problème de cristallogénèse est passionnant. Une part importante de ce travail n'aurait pas été possible sans cette collaboration.

C'est avec une même pensée amicale que je remercie tous mes camarades du Laboratoire qui ont contribué à l'accomplissement de ce travail.

Monsieur Tissot a bien voulu se charger de la partie graphique de ce Mémoire. Mademoiselle Menérout a assuré avec rapidité et compétence la dactylographie du manuscrit ; je l'en remercie vivement.

INTRODUCTION

Les composés binaires TCo_5 et les composés ternaires isotypes, où T représente une terre rare, ont été intensivement étudiés depuis une dizaine d'années.

Les premiers travaux⁽¹⁻³⁾ sur ces matériaux ont montré que le couplage des moments de cobalt et de terre rare est ferromagnétique avec les terres rares de la première séquence et ferrimagnétique avec celles de la deuxième séquence ; cette propriété résulte d'un couplage antiparallèle entre les spins de terre rare et de cobalt. Les fortes corrélations entre électrons 3d imposent, comme dans le cobalt métallique, une polarisation négative des électrons de conduction⁽⁴⁾ ; l'interaction de contact entre ces derniers et ceux de la couche 4f est donc positive dans ce type de composés.

Les températures de Curie des alliages de ces composés sont très élevées, de l'ordre de 1000 K, tandis que leurs aimantations spontanées ne sont importantes que si la terre rare alliée appartient à la première séquence. En outre leur anisotropie magnétocristalline, de l'ordre de 10^8 erg/cm^3 à la température ambiante^(3,5,6), dépasse largement celle de la plupart des composés actuellement connus. Depuis 1967, date à laquelle Strnat et al⁽⁷⁾ ont fabriqué les premiers aimants permanents à base de SmCo_5 ou de YCo_5 , réduits en poudre de 20 μ environ, la technique d'élaboration de ces aimants permanents n'a cessé de se perfectionner^(8,9) : pour une aimantation rémanente de 850 u.e.m./ cm^3 environ les champs coercitifs atteignent actuellement avec SmCo_5 des valeurs de l'ordre de 20 kOe, ce qui correspond à un produit énergétique maximum de 20 MGOe. Par la mesure du cycle d'hystérésis d'une particule de quelques microns de SmCo_5 Becker⁽¹⁰⁾ a montré clairement que le paradoxe de Brown résulte ici de la nucléation de domaines d'aimantation antiparallèles au champ appliqué.

Dans les composés de type SmCo_5 l'épaisseur des parois entre domaines magnétiques est de l'ordre d'une dizaine de distances interatomiques ; comme dans tous les composés à forte anisotropie magnétocristalline la coercivité doit résulter d'un phénomène de nucléation au niveau de défauts de faible anisotropie. Ces derniers sont d'autant plus actifs que leurs dimensions sont voisines de l'épaisseur des parois (environ 50 Å pour SmCo_5). Si les matériaux présentent en outre des inhomogénéités structurales se traduisant par des gradients d'échange, il doit apparaître aussi une coercivité résultant du piégeage des parois. Différentes interprétations ont été données qui expliquent la coercivité de SmCo_5 par des mécanismes de nucléation ou d'accrochage⁽¹⁰⁻¹⁴⁾ ; cependant l'accord entre les variations thermiques du champ coercitif calculées dans ces modèles et celles mesurées est faible.

Nesbitt et al⁽¹⁵⁾, et indépendamment, Tawara et Senno⁽¹⁶⁾ ont essayé d'accroître la coercivité de SmCo_5 et de CeCo_5 à l'état massif par substitution d'une partie des atomes de cobalt par des atomes de cuivre. Ce type d'approche élimine les problèmes de broyage des poudres et la détérioration de ces dernières au contact de l'air. Afin d'étudier le processus de renversement de l'aimantation dans ces composés nous avons élaboré des échantillons monocristallins de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$.

Après le premier chapitre relatif aux méthodes d'élaboration et à l'étude cristallographique des composés ternaires $\text{SmCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ nous présentons dans le chapitre II les propriétés magnétiques des monocristaux de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ et précisons le rôle de l'anisotropie dans ces composés. Le chapitre III est consacré à la visualisation des domaines magnétiques dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ par effet Kerr. Enfin dans le chapitre IV nous étudions le traînage magnétique au voisinage du champ coercitif dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ et discutons de l'origine de la coercivité dans les matériaux à base de SmCo_5 .

CHAPITRE I

PREPARATION - STRUCTURE CRISTALLINE

1 - PREPARATION DES ECHANTILLONS

La pureté des éléments constituant les alliages est de 99,9 % pour le samarium, de 99,99 % pour le cobalt et de 99,999 % pour le cuivre. Les échantillons polycristallins ont été préparés dans un four à arc sous atmosphère d'argon ; afin de s'assurer d'une bonne homogénéité, chaque bouton allié a été refondu plusieurs fois. Les échantillons obtenus, enveloppés dans une capsule de tantale, ont été recuits sous vide à 800°C pendant 24 heures. Nous avons contrôlé l'unicité de la phase TCO_5 à l'aide d'un diffractomètre à rayons X.

Nous avons préparé des monocristaux de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ par la méthode de Bridgman. Celle-ci consiste à déplacer lentement la zone fondue de l'échantillon placé dans un creuset de nitrure de bore 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. Nous avons obtenu un barreau monocristallin de 2 cm de hauteur : la température de la zone fondue était de 1400°C et la vitesse de translation de 0,8 cm/h. En raison du refroidissement lent associé à la préparation du monocristal, l'étude magnétique de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ correspond approximativement à celle d'un échantillon recuit à 400 K pendant 4 heures, c'est-à-dire à un échantillon présentant une forte coercivité associée à un traitement de revenu⁽¹⁷⁾.

2 - PROPRIÉTÉS CRISTALLOGRAPHIQUES

La structure cristalline des alliages TCo_5 est hexagonale ; elle a été déterminée par J.H. Wernick et S. Geller⁽¹⁸⁾, et S.E. Haszko⁽¹⁹⁾. Ces composés, qui appartiennent au groupe d'espace $P6/mmm$, sont isomorphes de CaCu_5 (figure 1) ; la terre rare T est en position 1a, tandis que les atomes de cobalt et de cuivre se répartissent sur les deux sites 2c et 3g (tableau 1). Les variations des paramètres de réseau des alliages $\text{SmCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ trempés, ou recuits, sont portés sur la figure 2 en fonction de x. Les paramètres de SmCo_5 recuit sont en bon accord avec ceux donnés par Haszko⁽¹⁹⁾. Pour les échantillons trempés, a et c varient linéairement avec x tandis que la variation du paramètre c présente une discontinuité pour $x = 2$. Ce résultat peut s'interpréter par des substitutions préférentielles des atomes de cuivre, plus gros, aux atomes de cobalt appartenant au site 3g ; en effet la couche à laquelle appartient le site 3g est moins compact que celle relative au site 2c. Des résultats analogues ont été mis en évidence par diffraction neutronique sur des composés ternaires thorium-métaux de transition. En particulier, lorsqu'on remplace du cobalt par du fer dans ThCo_5 ^(20,21), le fer, plus gros, occupe préférentiellement les positions 3g.

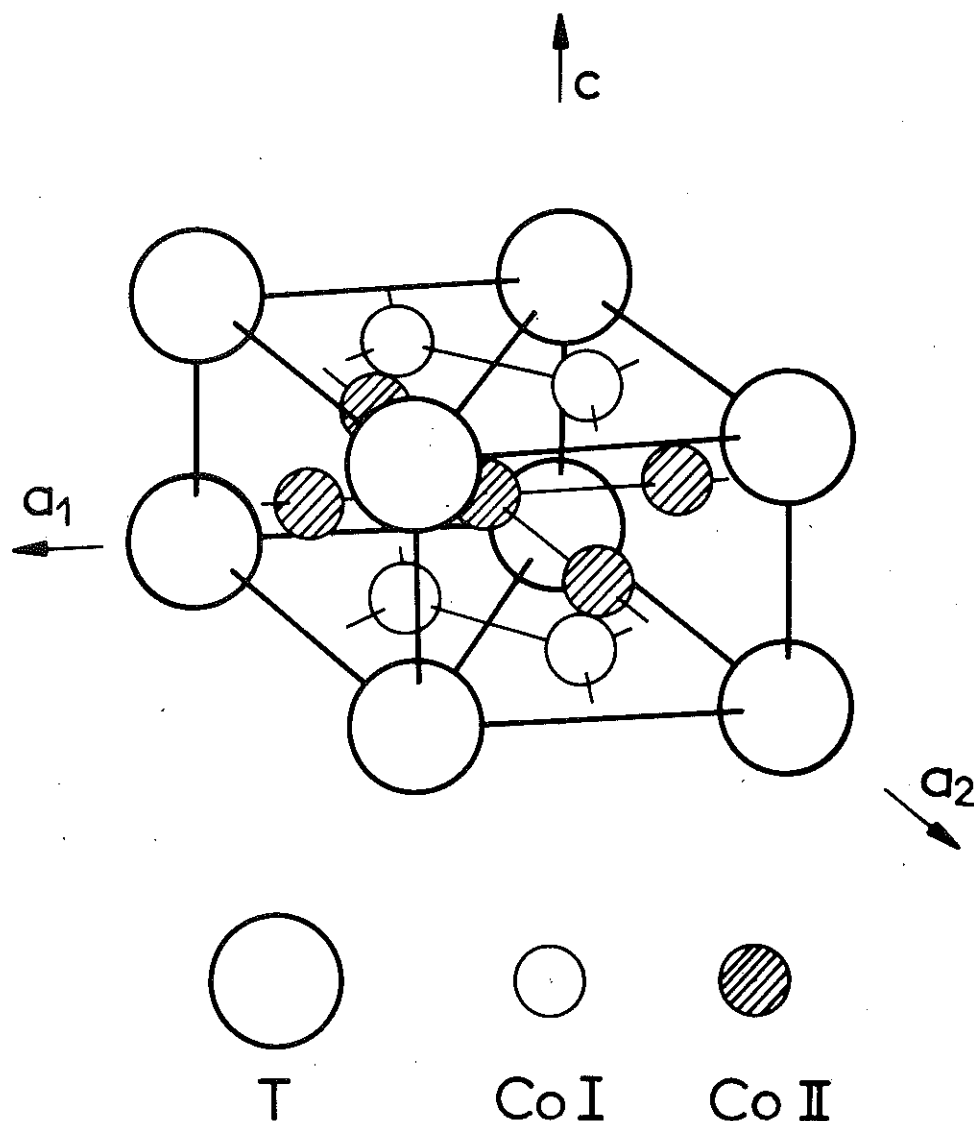


Figure 1 : Structure du composé TCo_5 .

T A B L E A U 1

Positions atomiques relatives aux sites 1a, 2c et 3g

<u>Site 1a(T)</u>	$(0, 0, 0)$
<u>Site 2c (CoI)</u>	$(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, 0) ; (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, 0)$
<u>Site 3g (CoII)</u>	$(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}) ; (0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) ; (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$

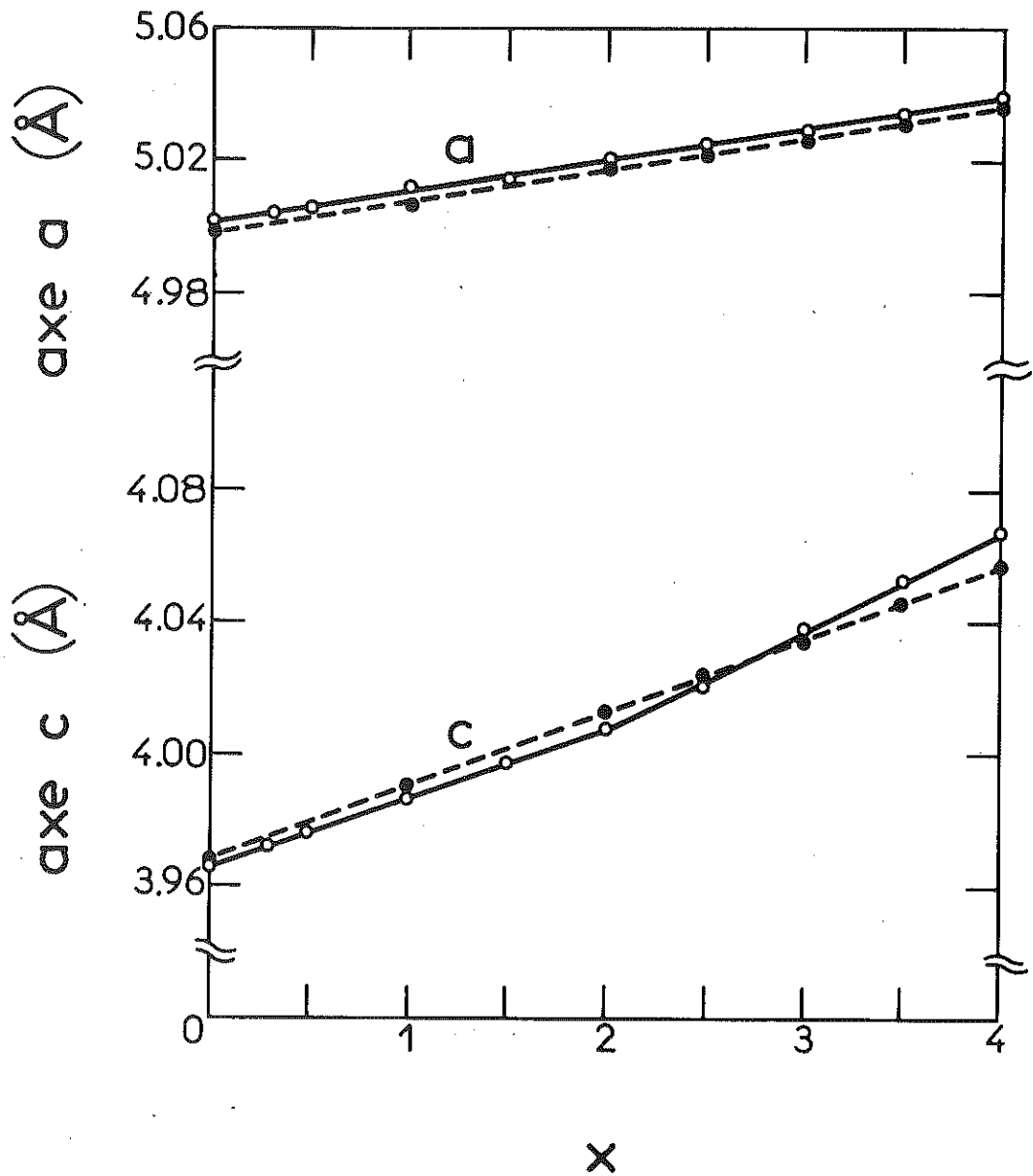


Figure 2 : Paramètres cristallins des composés $\text{SmCo}_{5-x}\text{Cu}_x$.
(--- : trempé ; — recuit à 800°C).

C H A P I T R E . II

ETUDE MAGNETOSTATIQUE DES MONOCRISTAUX DE SmCo_5 ET DE $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

1 - METHODE DE MESURE

1-1 - Mesures d'aimantation dans des champs inférieurs à 27 kOe

Nous avons effectué les mesures d'aimantation par la méthode d'extraction axiale proposée par P. Weiss⁽²²⁾, sur un électroaimant fournissant des champs atteignant 27 kOe. Cet électroaimant est percé axialement afin de permettre l'introduction d'un doigt de cryostat.

La température de l'échantillon peut varier entre 1,7 K et la température ambiante grâce à un échangeur thermique constitué de deux tubes cylindriques coaxiaux, en acier inoxydable. Le tube extérieur, en contact direct avec le liquide cryogénique, constitue la source froide : le tube intérieur sur lequel est bobiné un enroulement chauffant constitue la source chaude. Un système de régulation électronique permet de stabiliser la température à 0,2 degré près ; celle-ci est déterminée par la mesure de la résistance d'une thermosonde de platine ($T > 20$ K) ou de carbone ($T < 20$ K).

L'échantillon à étudier est extrait du centre d'un système de bobines reliées à un galvanomètre balistique dont la déviation, corrigée de l'effet d'images magnétiques, est proportionnelle à l'aimantation. La constante de proportionnalité a été déterminée par comparaison avec l'aimantation spontanée d'un monocristal de nickel.

1-2 - Mesures d'aimantation dans des champs atteignant 150 kOe

Les mesures d'aimantation en champs forts ont été effectuées sur l'appareillage du Service National des Champs Intenses de Grenoble⁽²³⁾. Le champ magnétique est créé par une bobine sans fer du type Bitter pouvant produire un champ de 150 kOe dans un diamètre utile de 50 mm avec une puissance de 5 MW. L'aimantation de la bobine s'effectue au moyen de deux redresseurs statiques à thyristors dont le courant est stabilisé à $\pm 5.10^{-6}$. La puissance dissipée dans le circuit est évacuée à l'aide d'un échangeur de température et d'un circuit d'eau industrielle.

Les aimantations sont mesurées par extraction axiale de l'échantillon entre deux bobines de mesure enroulées en sens inverse et placées à l'intérieur du cryostat. Afin de faire varier la température de l'échantillon entre 1,7 K et 300 K, on utilise un vase cryogénique et un échangeur thermique analogues à celui que nous avons décrit précédemment. Dans des champs de l'ordre de 150 kOe, la magnétorésistance de la sonde de platine est très élevée à basse température ; elle ne devient négligeable qu'au-dessus de 100 K. Pour les températures inférieures à 100 K nous avons utilisé une sonde de carbone.

2 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

2-1 - Composé SmCo_5

Nous avons étudié sur une bille de 2 mm de diamètre, l'aimantation d'un monocristal de SmCo_5 lorsque le champ est appliqué selon les principales directions cristallographiques. Nous avons porté sur la figure 3 le cycle d'hystérésis du monocristal de SmCo_5 mesuré à 300 K lorsque le champ appliqué est parallèle à la direction de facile aimantation : l'axe c. La courbe d'aimantation initiale mesurée en champ faible, est une droite dont la pente est égale à l'inverse du coefficient de champ démagnétisant. La saturation est obtenue dès que le champ appliqué atteint la valeur du champ démagnétisant ; en champ intense, se superpose à l'aimantation une très faible susceptibilité. L'aimantation spontanée définie par extrapolation de la courbe d'aimantation en champ interne nul est de $7,98 \pm 0,05 \mu_B$ par formule à 300 K, et de $8,46 \pm 0,05 \mu_B$ par formule

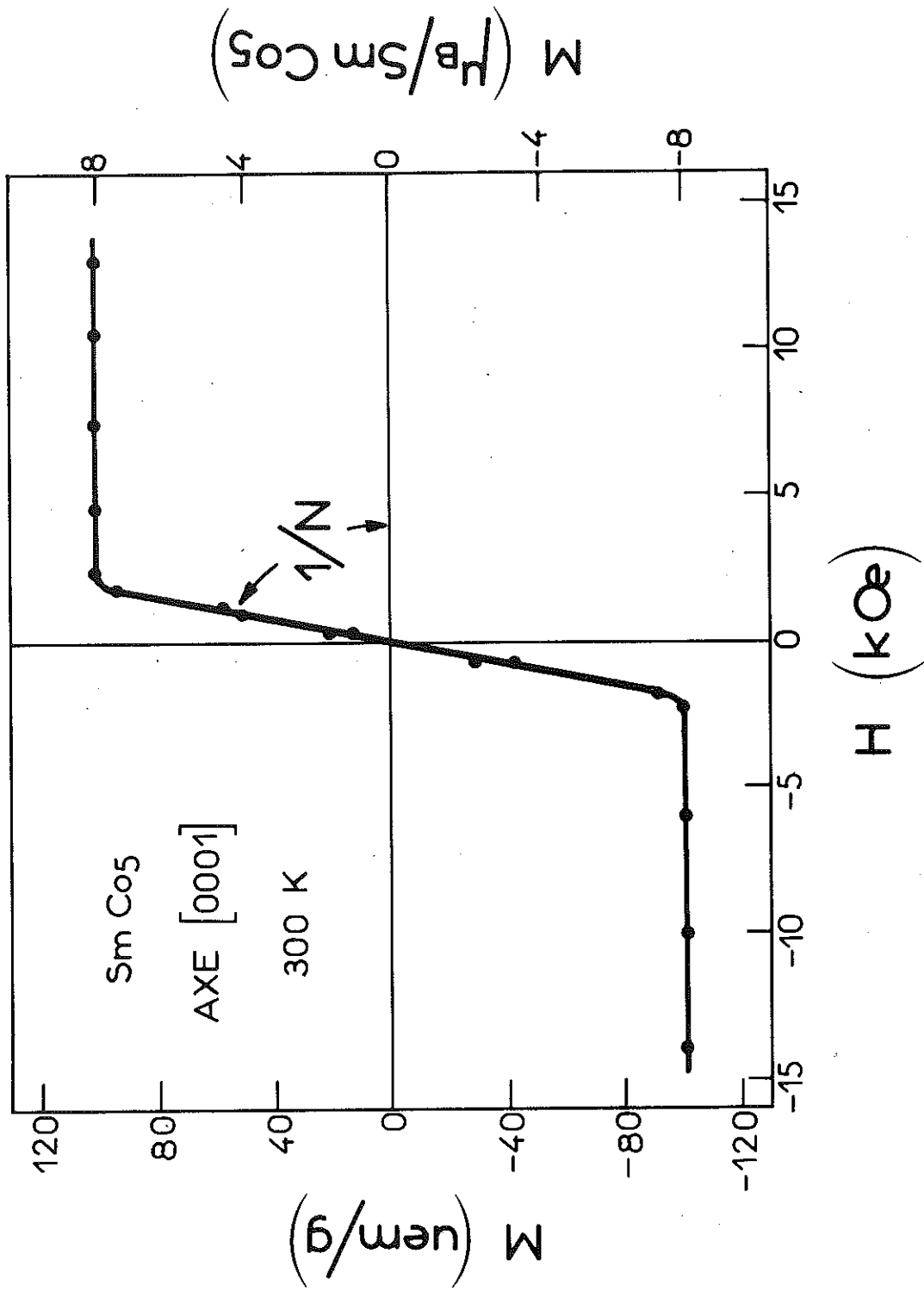


Figure 3 : Courbe de première aimantation et cycle d'hystérésis de SmCo_5 mesurés selon l'axe c à 300 K.

à 4,2 K (figure 4). En champ décroissant nous n'observons que très peu d'hystérésis, le champ coercitif est inférieur à une centaine d'Oersteds ; il reste de cet ordre même à très basse température. Nous avons porté sur la figure 5 la variation thermique entre 4,2 et 300 K de l'aimantation spontanée précédemment définie.

Les variations de l'aimantation mesurées selon les directions $[11\bar{2}0]$ et $[10\bar{1}0]$ sont représentées figure 6. Pour des températures comprises entre 4,2 K et 300 K et un champ inférieur à 150 kOe l'aimantation varie linéairement avec le champ et croît avec la température ; toute évaluation de l'énergie d'anisotropie à l'aide de ces mesures sera directement reliée à la valeur d'un champ d'anisotropie effective H_a . Ce champ correspond à l'intersection des droites obtenues par extrapolation des courbes d'aimantation mesurées selon les directions de facile et de difficile aimantation. Nous avons porté sur la figure 7 sa variation thermique : il décroît de manière monotone entre 4,2 et 300 K.

2-2 - Composé $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

Nous avons effectué des mesures d'aimantation sur une bille monocristalline de 2 mm de diamètre. Les courbes de première aimantation obtenues à 4,2 K, 60 K et 300 K selon l'axe de facile aimantation $[0001]$ sont présentées sur la figure 8. A la température de l'hélium liquide l'aimantation varie peu et linéairement jusqu'à un champ seuil H_g de 35 kOe. Ce champ seuil H_g est défini par l'intersection de la tangente d'inflexion avec la droite représentant la variation de l'aimantation initiale. Sa variation thermique est portée dans l'encart de la figure 8 ; à 300 K, H_g ne vaut plus que 3 kOe. Les variations isothermes de l'aimantation pour les champs supérieurs aux champs seuils dépendent fortement de la température. Au voisinage de la température ambiante, la variation de l'aimantation avec le champ immédiatement supérieur au champ seuil est linéaire et correspond à un accroissement de $1,7 \cdot 10^{-2}$ u.e.m./g/Oe ; cette valeur est environ trois fois plus petite que celle de l'inverse du coefficient de champ démagnétisant. A basse température cette variation est encore beaucoup plus faible : l'aimantation croît lentement lorsque le champ est supérieur au champ seuil (35 kOe à 4,2 K) : en particulier la saturation n'est pas encore atteinte sous 130 kOe. Nous avons observé des variations de l'aimantation dans le temps dès que le

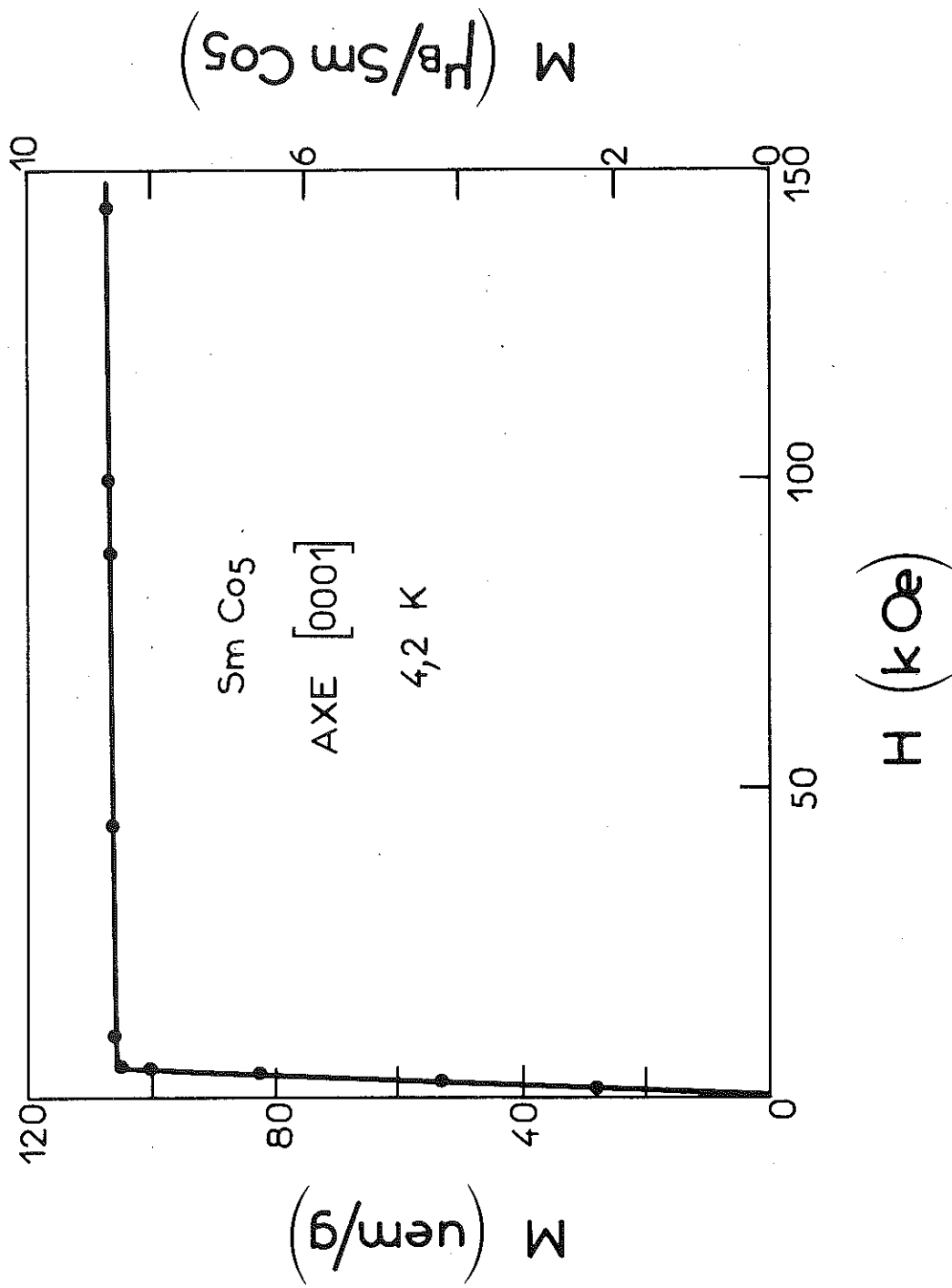


Figure 4 : Courbe de première aimantation de SmCo₅ mesurée selon l'axe c à 4,2 K.

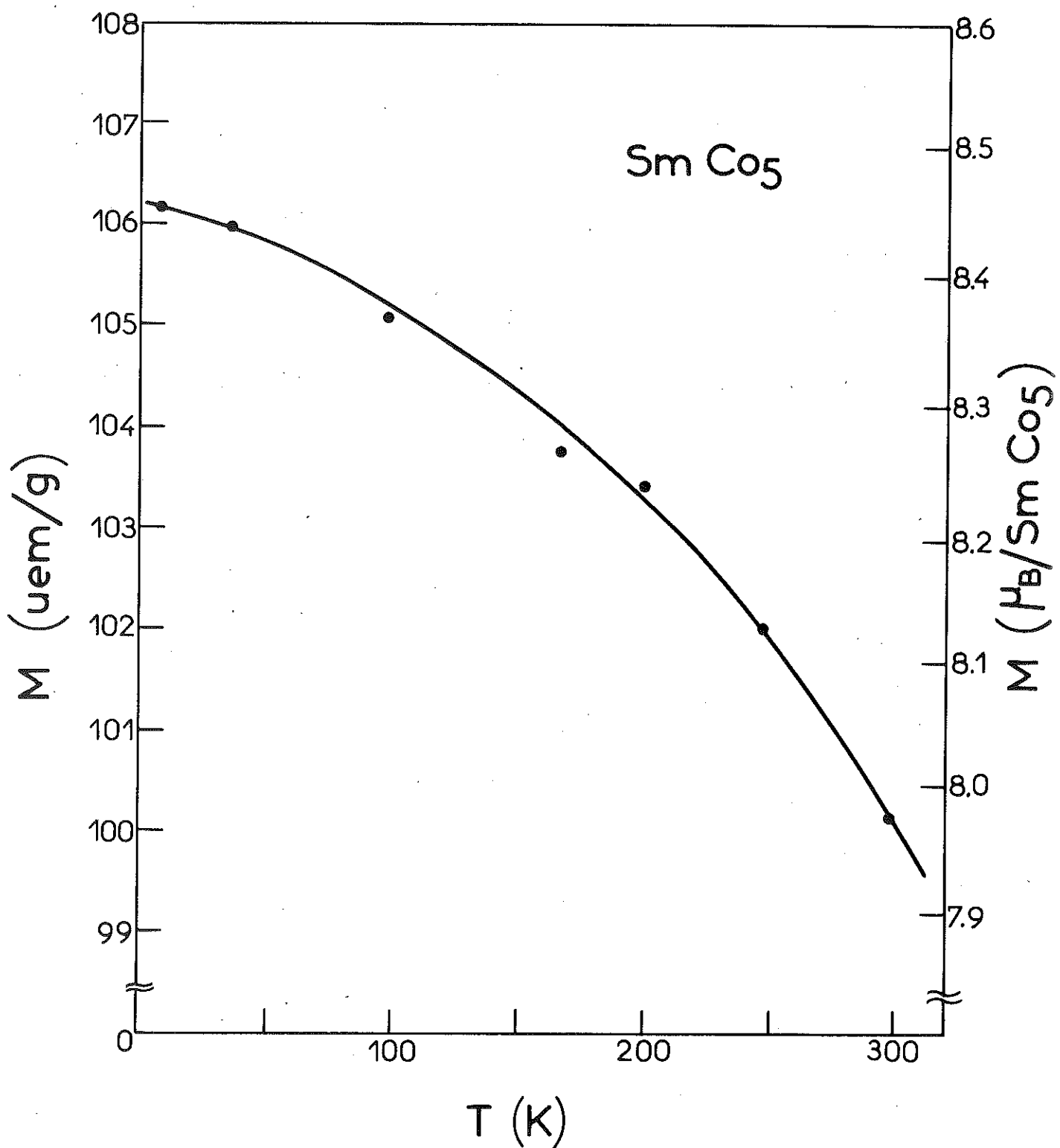


Figure 5 : Variation thermique de l'aimantation spontanée de SmCo_5 .

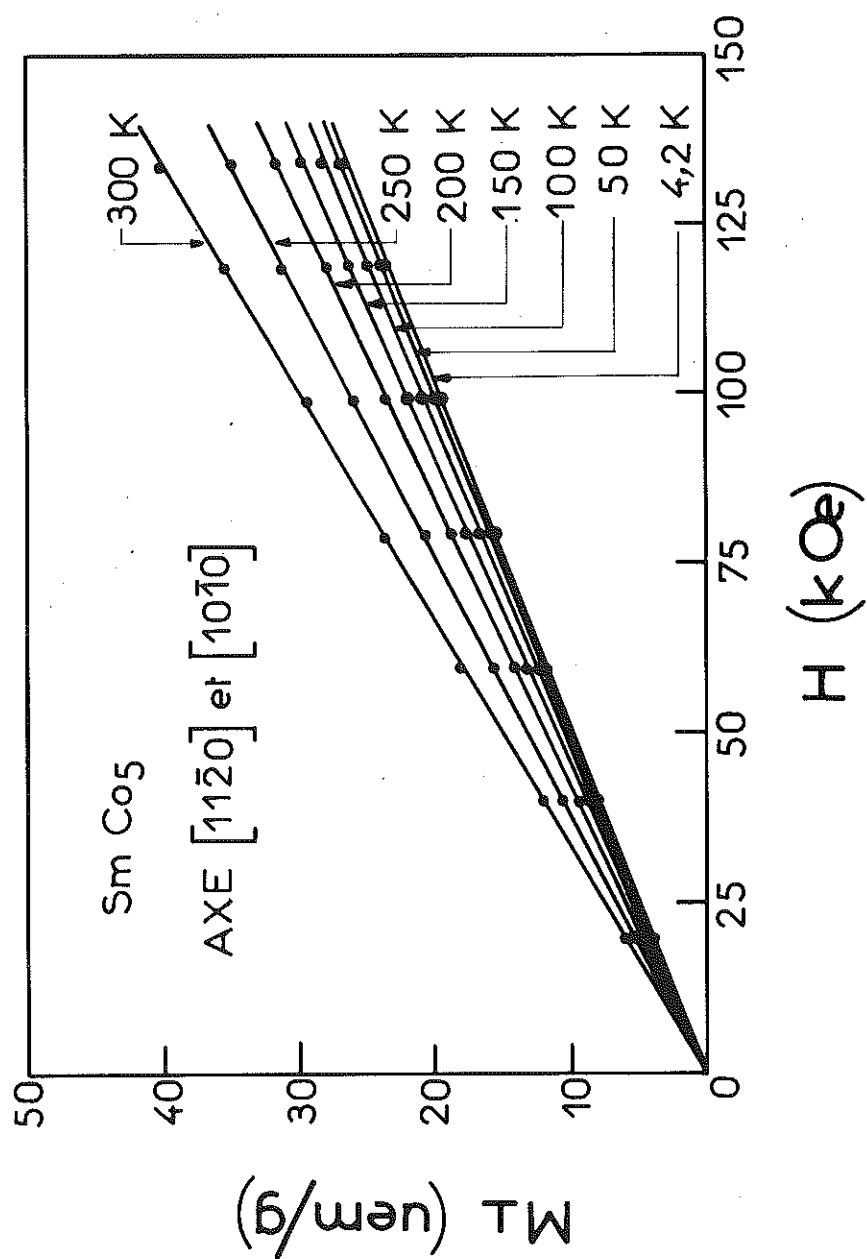


Figure 6 : Variation de l'aimantation de SmCo₅ avec un champ appliqué selon les directions $[11\bar{2}0]$ et $[10\bar{1}0]$.

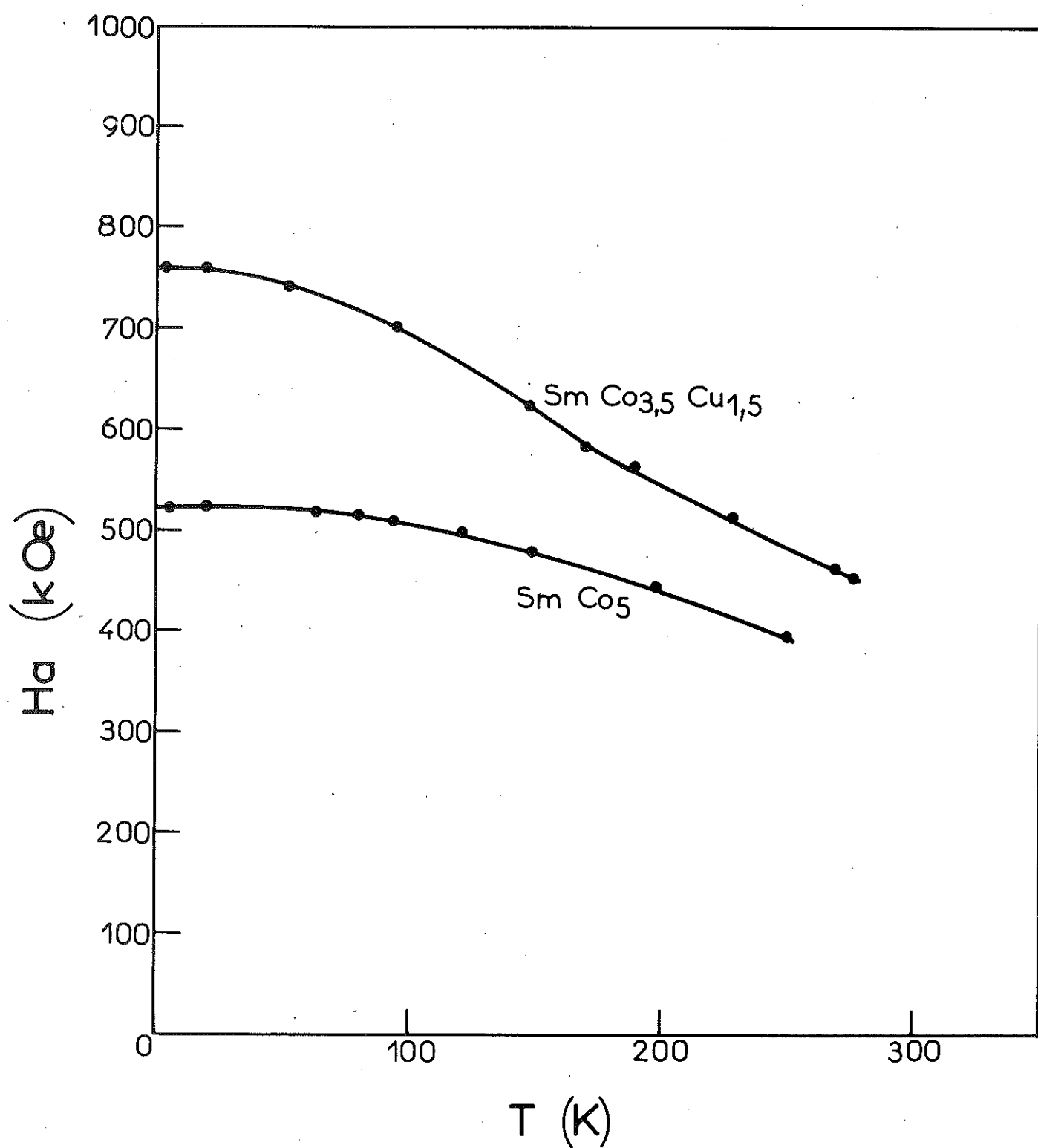


Figure 7 : Variation thermique des champs d'anisotropie effective de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3.5}\text{Cu}_{1.5}$.

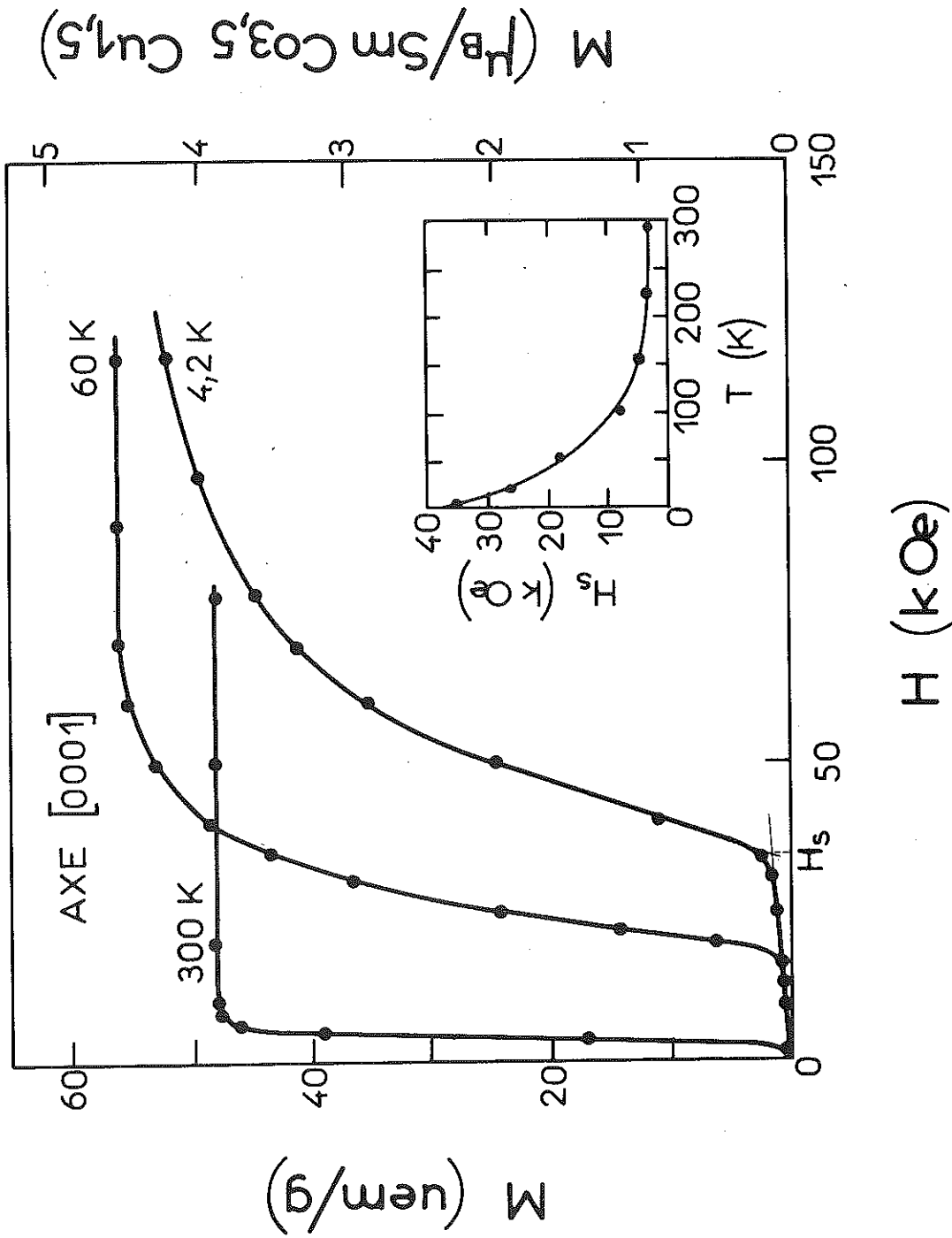


Figure 8 : Courbes de première aimantation de $\text{SmCo}_{3.5}\text{Cu}_{1.5}$ mesurées selon l'axe de facile aimantation à 4,2 K, 60 K et 300 K.
Variation thermique du champ seuil.

champ appliqué devient supérieur au champ seuil. A titre d'exemple lorsque le champ appliqué est de 50 kOe à 60 K l'aimantation mesurée ne se stabilise qu'au bout de plusieurs heures. A la température ambiante ce phénomène de traînage n'est observé que pour des champs compris entre 3 et 7 kOe. Sur la figure 9 nous avons porté la variation thermique de l'aimantation de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ obtenue par refroidissement sous un champ de 100 kOe de l'échantillon depuis la température ambiante jusqu'à 4,2 K ; en raison de la très faible susceptibilité superposée nous assimilerons cette variation à celle de l'aimantation spontanée. Lorsque l'échantillon a été soumis à un champ supérieur au champ seuil il apparaît en champ décroissant une très forte hystérésis ; l'aimantation rémanente, aux erreurs de mesure près, est égale à l'aimantation spontanée (figure 10). Lorsque le champ magnétique est inversé, l'aimantation reste constante ; elle décroît brusquement pour un champ H_N , mais cette décroissance s'atténue lorsque le champ augmente. Le champ coercitif H_C , pour lequel l'aimantation s'annule vaut à 4,2 K, 35 kOe ; cette valeur est égale à celle du champ seuil H_s observée sur la courbe de première aimantation. Lorsque le champ appliqué est de 130 kOe, l'aimantation vaut 95 % de l'aimantation à saturation. Le cycle d'hystérésis est pratiquement symétrique ; les faibles écarts observés sont seulement dus à la saturation incomplète après inversion du champ magnétique. Lorsque la température augmente l'hystérésis observée décroît rapidement (figures 11 à 14) ; nous avons porté sur la figure 15 les variations thermiques des champs critiques H_N et H_C . Lorsque le champ appliqué est proche de H_N ou de H_C nous avons observé des effets de traînage magnétique analogues à ceux observés dans le voisinage du champ seuil H_s .

Lorsque le champ est appliqué selon une direction $[11\bar{2}0]$, figure 16, l'aimantation varie linéairement avec une pente très faible (10 u.e.m./g pour un champ de 135 kOe à la température de 4,2 K). Cette pente augmente avec la température. Nous n'avons pu déceler d'écart appréciable entre les mesures d'aimantation effectuées selon les directions $[11\bar{2}0]$ et $[10\bar{1}0]$. Comme dans le paragraphe 2-1 nous avons déterminé la variation thermique du champ d'anisotropie effective H_a (figure 7). Lorsque la température augmente, H_a décroît plus rapidement que dans le cas de SmCo_5 ; cependant à 0 K le champ d'anisotropie effective de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ est de 50 % plus grand que celui de SmCo_5 .

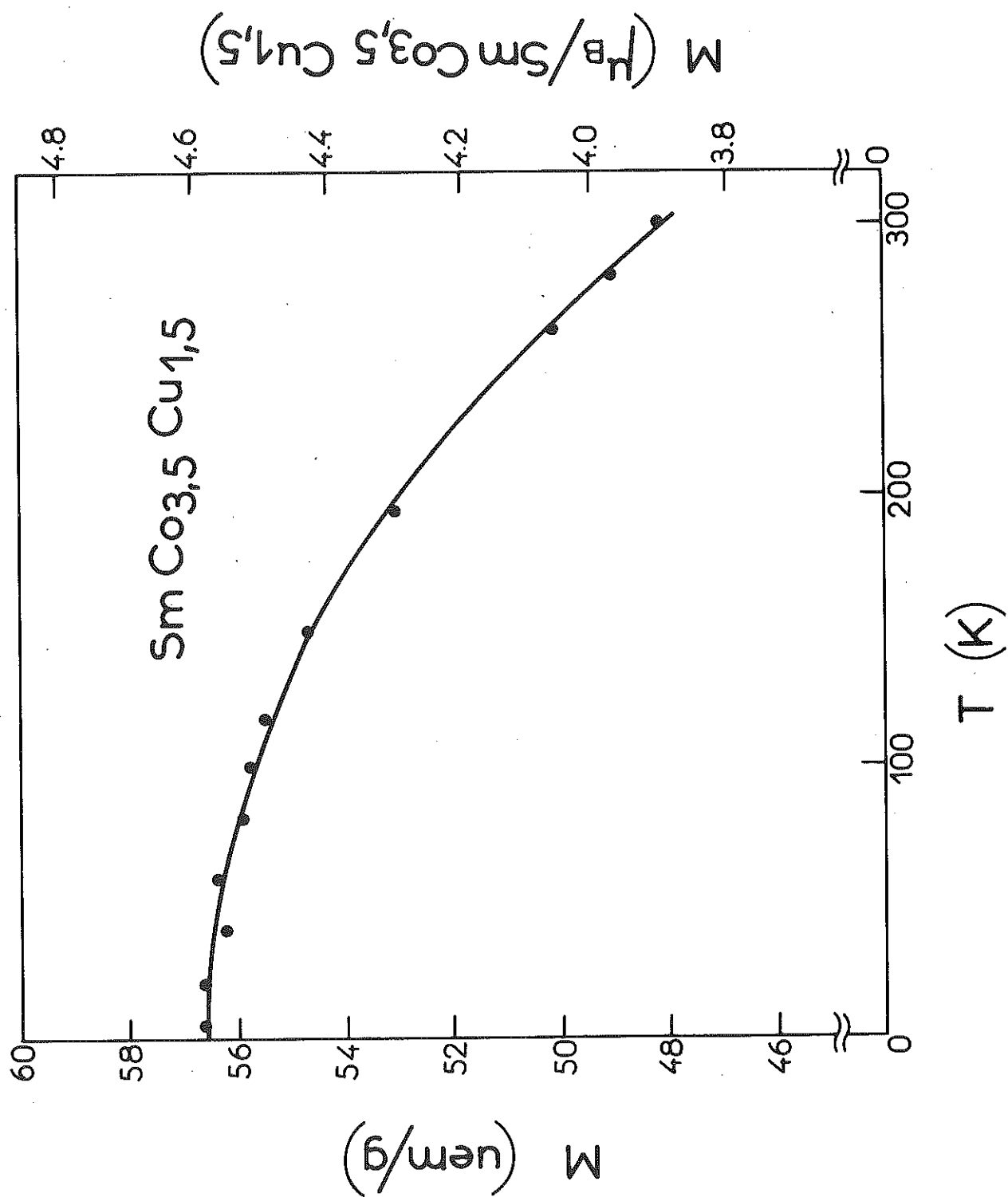


Figure 9 : Variation thermique de l'aimantation spontanée de SmCo_{3,5}Cu_{1,5}.

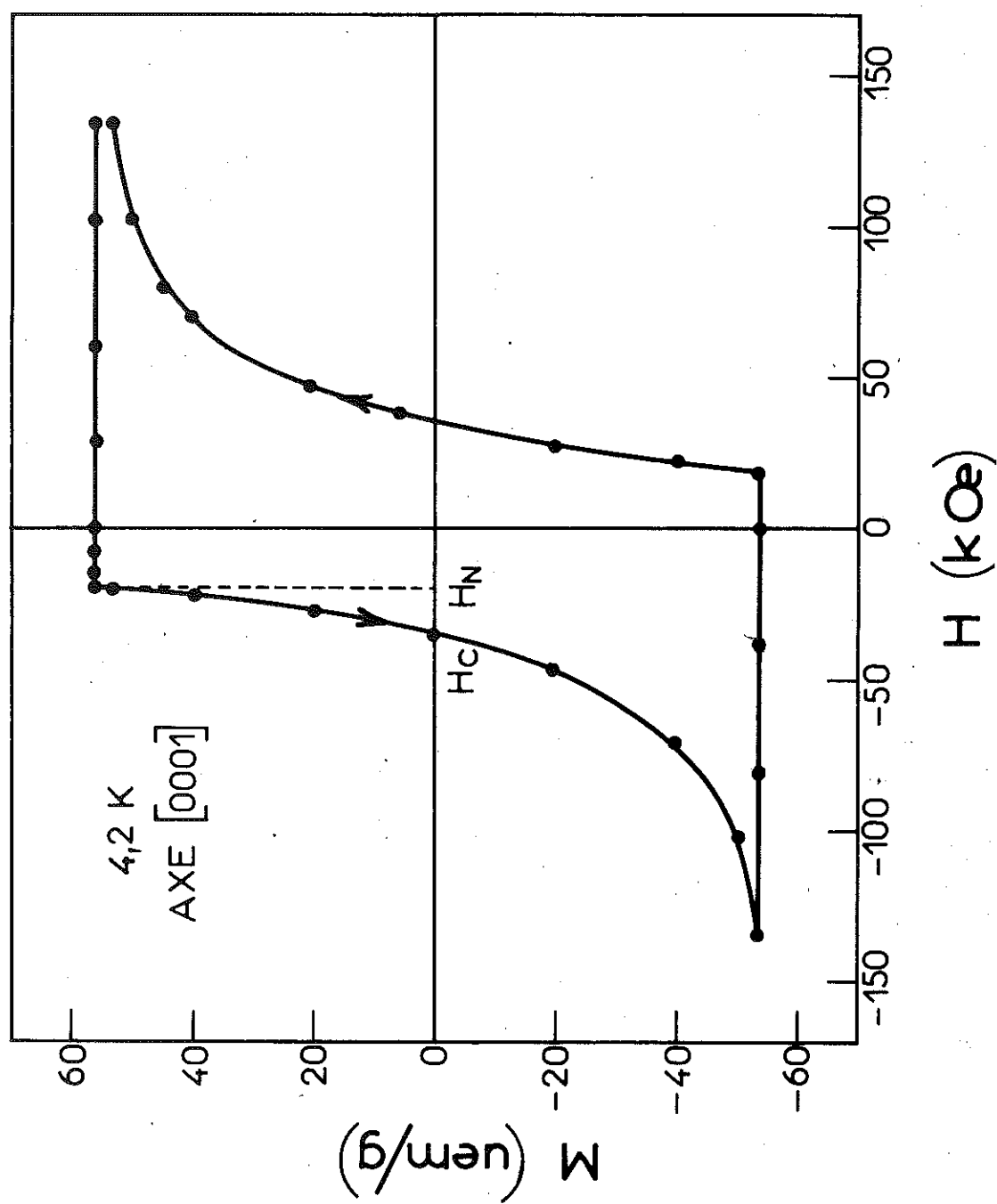


Figure 10 : Cycle d'hystérésis de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ mesuré selon l'axe c à 4,2 K.

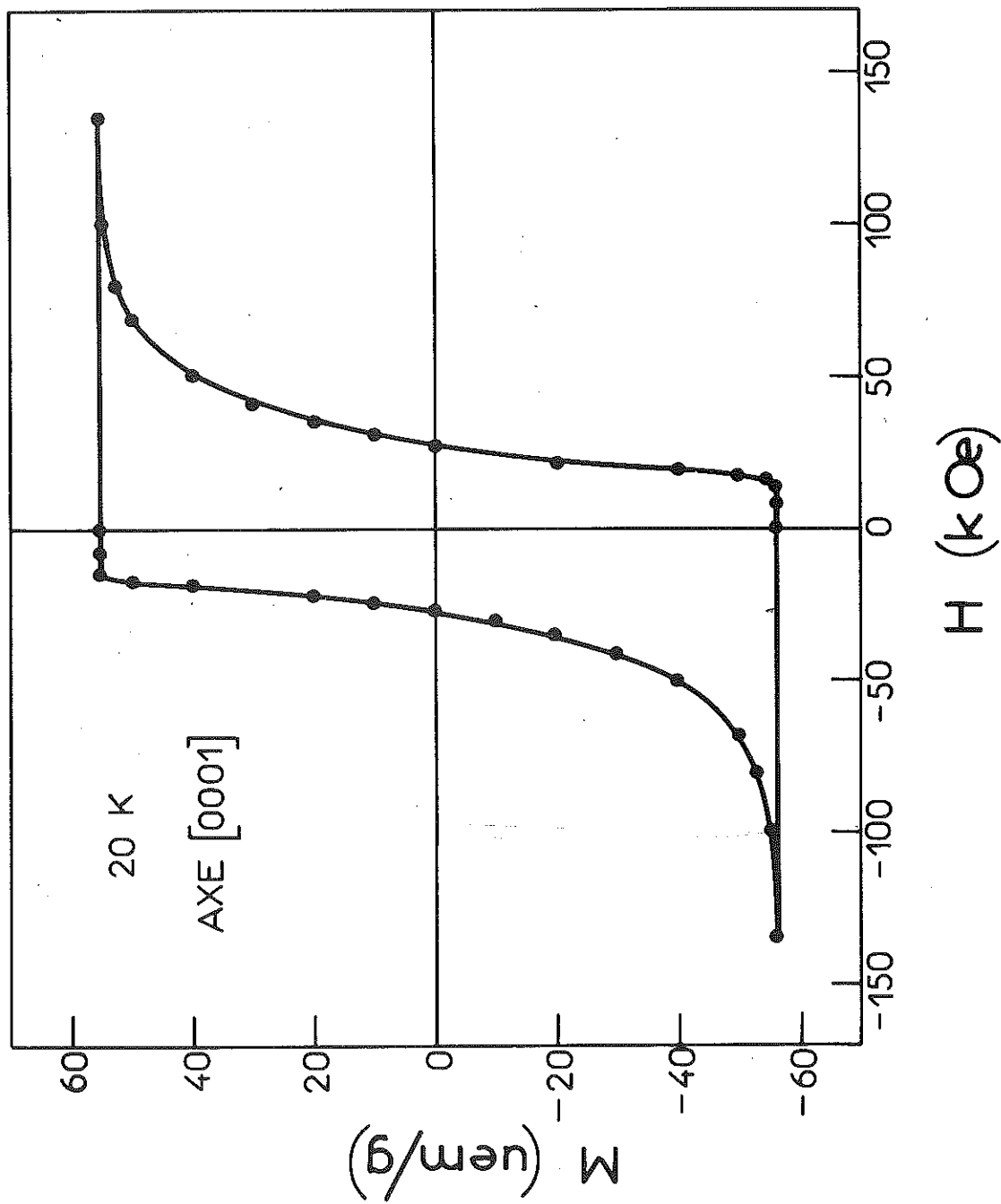


Figure 11 : Cycle d'hystérésis de $\text{SmCo}_{3.5}\text{Cu}_{1.5}$ mesuré selon l'axe c à 20 K.

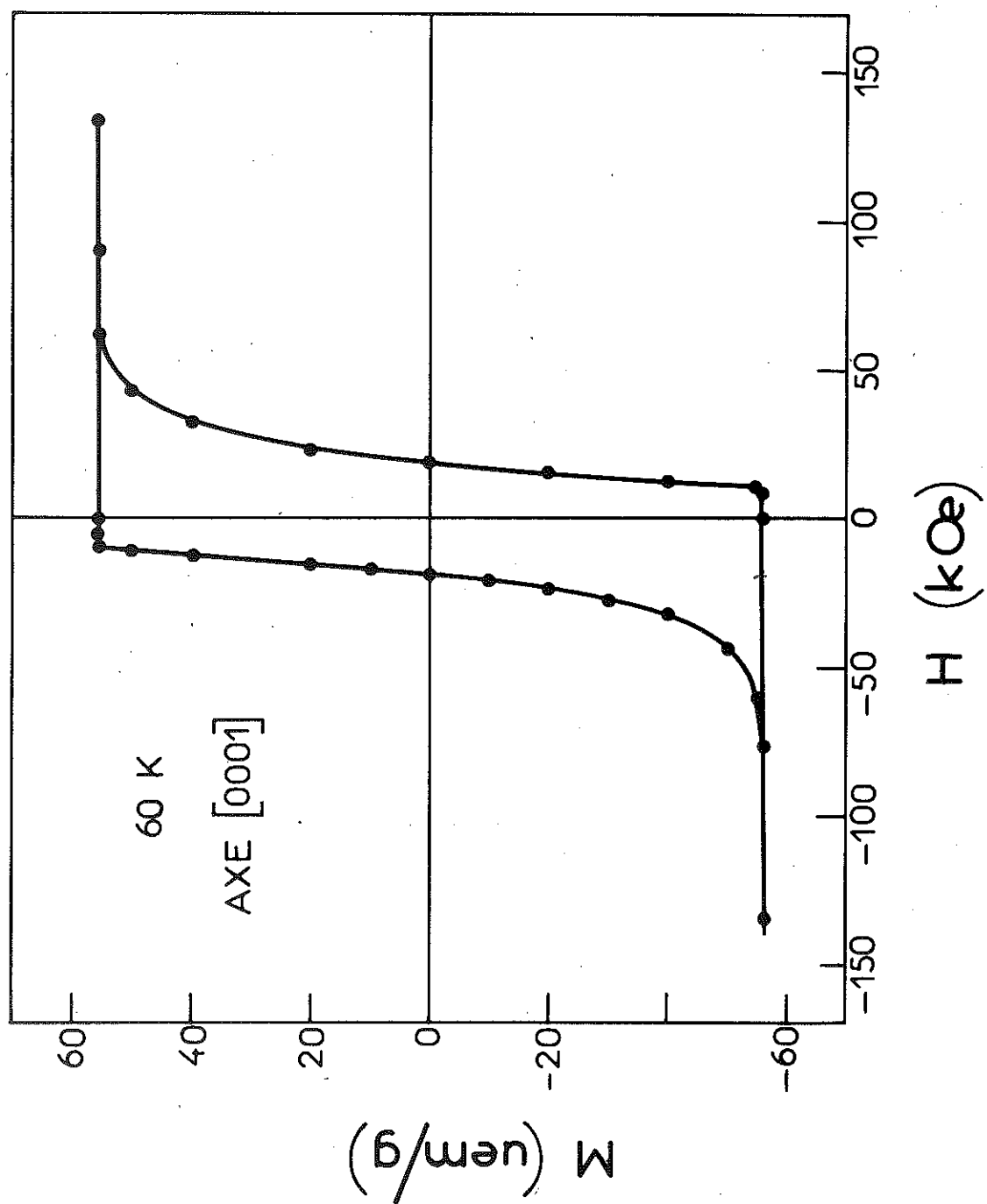


Figure 12 : Cycle d'hystérésis de $\text{SmCo}_{3.5}\text{Cu}_{1.5}$ mesuré selon l'axe c à 60 K.

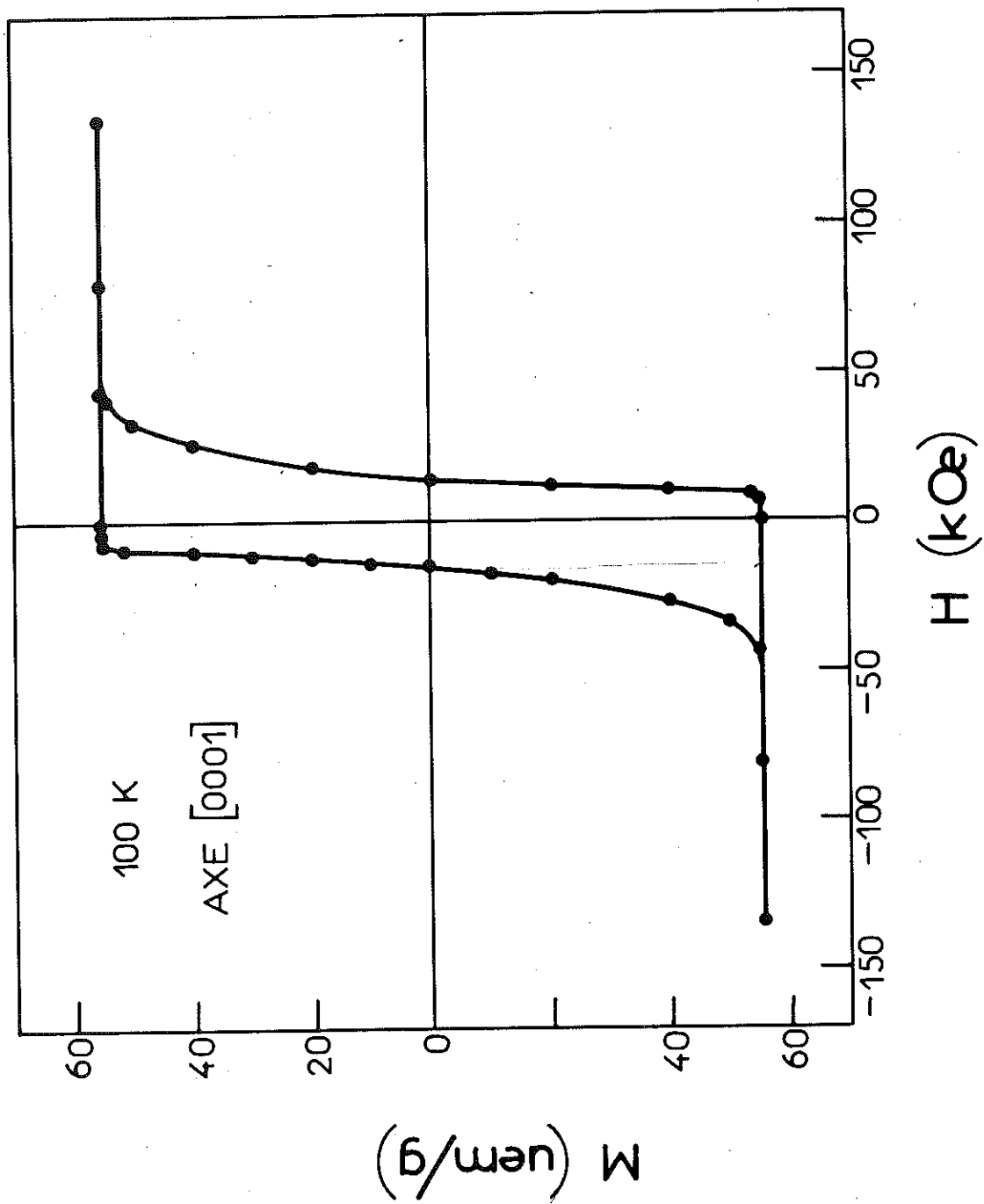


Figure 13 : Cycle d'hystérésis de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ mesuré selon l'axe c à 100 K.

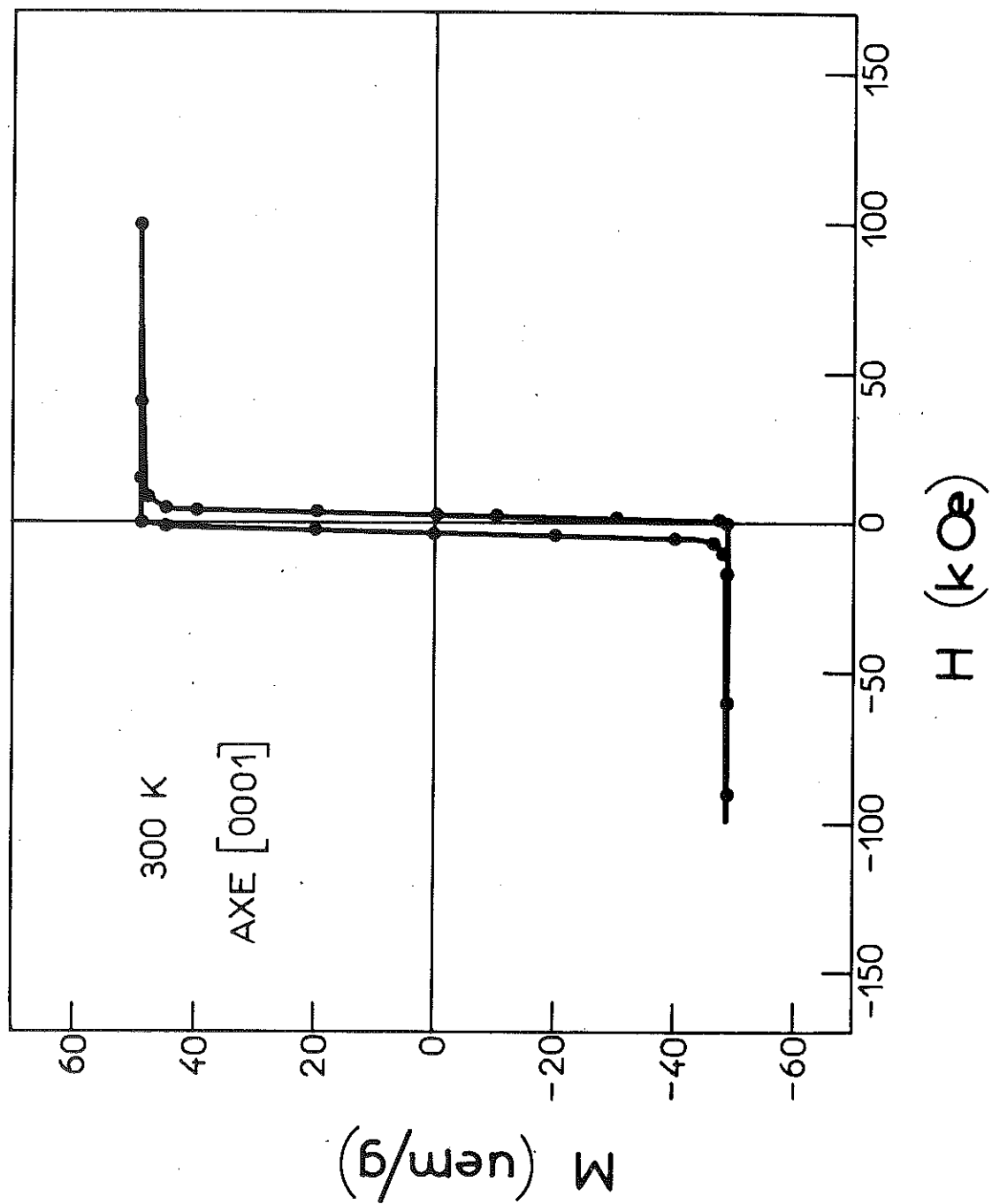


Figure 14 : Cycle d'hystérésis de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ mesuré selon l'axe c à 300 K.

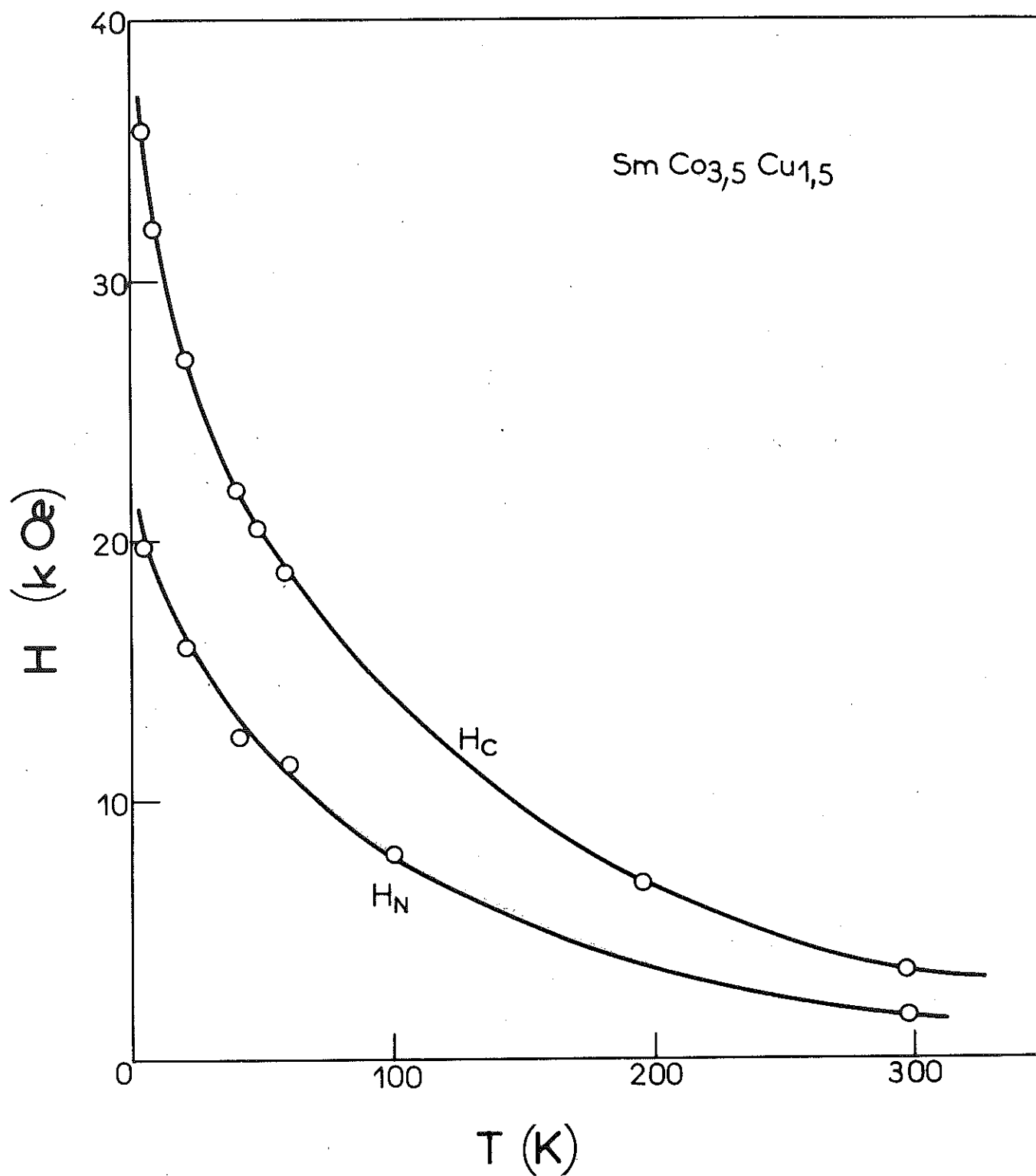


Figure 15 : Variation thermique du champ de nucléation et du champ coercitif de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$.

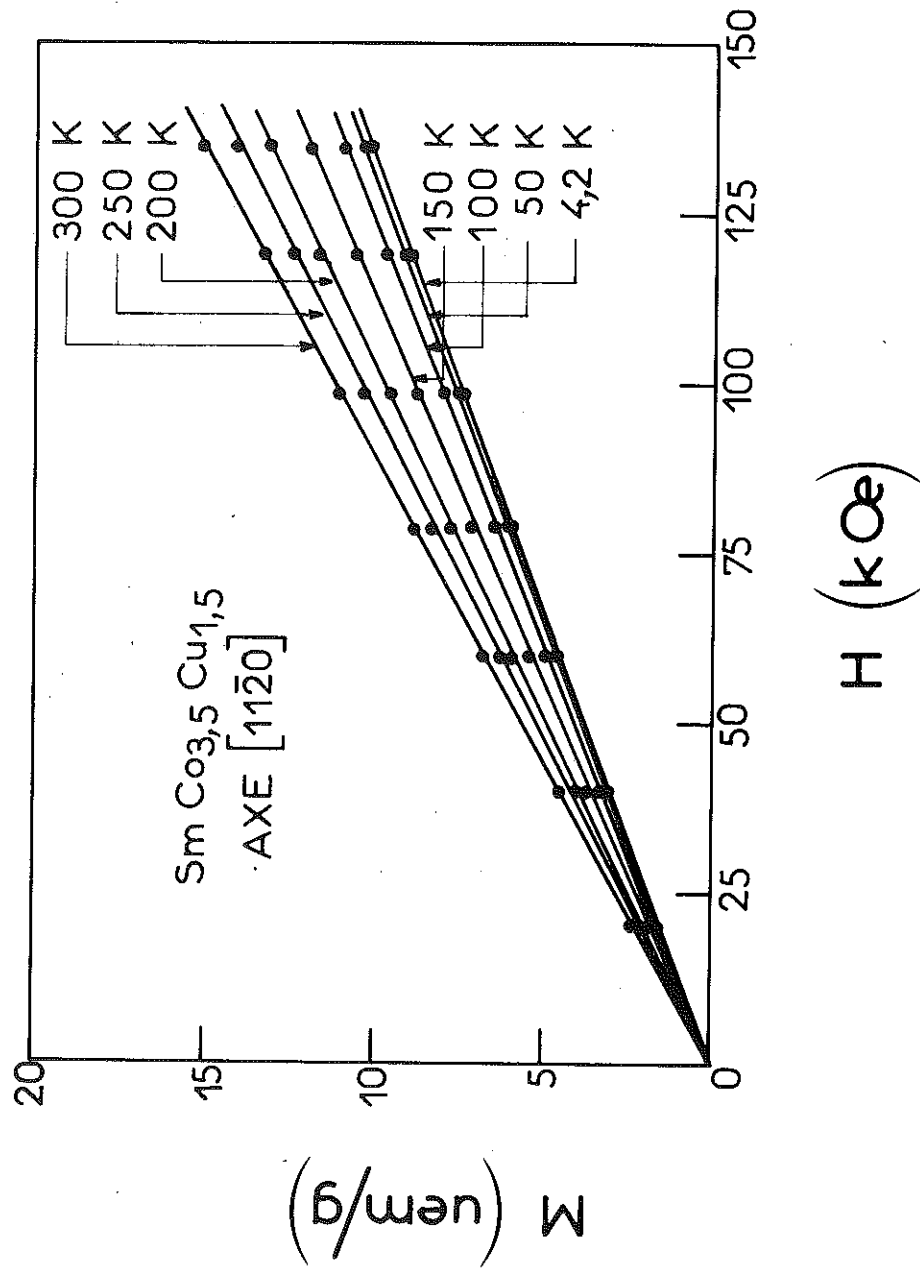


Figure 16 : Variation de l'aimantation de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ avec un champ appliqué selon $[11\bar{2}0]$.

3 - AIMANTATION SPONTANEE DES COMPOSES SmCo_5 ET $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

3-1 - Aimantation à saturation absolue de SmCo_5

La variation thermique de l'aimantation et la détermination des structures magnétiques par diffraction neutronique ont précisé le comportement ferrimagnétique de ces composés TCo_5 avec les terres rares de la deuxième séquence et le comportement ferromagnétique de ceux avec les terres rares de la première séquence. Dans les deux cas le couplage entre les spins des atomes de terre rare et du cobalt est antiparallèle^(1,24,25). En outre, l'aimantation à saturation absolue des atomes de terre rare est toujours voisine de celle de l'ion libre. Nous supposons que le moment du samarium dans SmCo_5 est parallèle au moment du cobalt, bien que ce résultat n'ait pu être vérifié expérimentalement en raison de la très faible valeur du moment du samarium et de la forte absorption des neutrons par le samarium.

Dans les composés T-Co le moment du cobalt dépend du nombre d'électrons de conduction en raison du transfert des électrons $5d^1$ et $6s^2$ de la terre rare vers la bande $3d$ non remplie du cobalt⁽²⁶⁻²⁸⁾. Pour une même concentration en électrons de conduction il dépend également de la nature des atomes de terre rare alliés : un moment supplémentaire est induit sur le cobalt par les interactions dues aux atomes de terre rare, en première approximation proportionnelles au spin de la terre rare alliée. Ce moment supplémentaire ΔM peut être déduit en première approximation des aimantations à saturation absolue de GdCo_5 et YCo_5 pour lesquels l'aimantation de la terre rare est bien connue :

$$\Delta M = \left[M_{\text{Co}}(\text{GdCo}_5) - M_{\text{Co}}(\text{YCo}_5) \right] \times \frac{S(\text{T})}{S(\text{Gd})} \quad (1)$$

Le moment du cobalt dans SmCo_5 s'écrit :

$$M_{\text{Co}}(\text{SmCo}_5) = M_{\text{Co}}(\text{YCo}_5) + \Delta M \quad (2)$$

Dans ces expressions, $S(\text{Sm})$ et $S(\text{Gd})$ représentent les spins du samarium et du gadolinium.

Si en première approximation le moment magnétique du cobalt dans SmCo_5 est pris égal à $1,6 \mu_B$ (valeur déduite des mesures d'aimantation sur un monocristal de YCo_5 dont la composition a été vérifiée par une étude de diffraction neutronique⁽²⁹⁾), la valeur du moment de

samarium est de $0,6 \mu_B$. Cette valeur est proche de celle $g_J = 0,72 \mu_B$, correspondant au multiplet fondamental $J = 5/2$ de l'ion Sm^{3+} ; en raison des erreurs d'expérience il n'est pas possible d'évaluer la valeur du moment induit ΔM .

3-2 - Aimantation à saturation absolue de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

La valeur de l'aimantation à saturation absolue par formule de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ déduite des mesures d'aimantation est $M(\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}) = 4,57 \mu_B$. En supposant que le moment du samarium à 0 K, $M_{\text{Sm}} = 0,6 \mu_B$, n'est pas affecté par la présence des atomes de cuivre on obtient une valeur du moment magnétique du cobalt dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ de $1,1 \mu_B$. Cette réduction du moment du cobalt par rapport à celui dans SmCo_5 est due à l'augmentation de la concentration en électrons de conduction (0,25 électron supplémentaire par atome de cobalt dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$).

Récemment Brouha et Buschow⁽³⁰⁾ ont mesuré la variation de l'aimantation de $\text{LaCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ en fonction de la concentration x en atomes de cuivre (figure 17). Pour $x = 1,5$ en particulier, $M_{\text{Co}}(\text{LaCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}) = 0,9 \mu_B$; cette valeur est légèrement inférieure à celle de $M_{\text{Co}}(\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}) = 1,1 \mu_B$. Dans ces alliages, la concentration en électrons de conduction est plus importante que dans SmCo_5 , et, comme dans les alliages binaires de même concentration en électrons de conduction, les interactions créées par les atomes de terre rare peuvent induire un moment supplémentaire sur les atomes de cobalt. Ce moment supplémentaire, déduit de la comparaison des aimantations à saturation absolue des composés $\text{LaCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ et $\text{GdCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ ⁽³¹⁾, est de $0,3 \mu_B$ pour $x = 3,5$. Dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ on obtient un moment supplémentaire de $1,1 - 0,9 = 0,2 \mu_B$.

3-3 - Evaluation des coefficients de champ moléculaire et variation thermique de l'aimantation du sous-réseau de samarium dans SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

Une première approche pour déterminer les coefficients de champ moléculaire agissant sur les moments de samarium consiste à étudier les variations thermiques des aimantations des composés TbCo_5 et DyCo_5 qui présentent un point de compensation^(27,32).

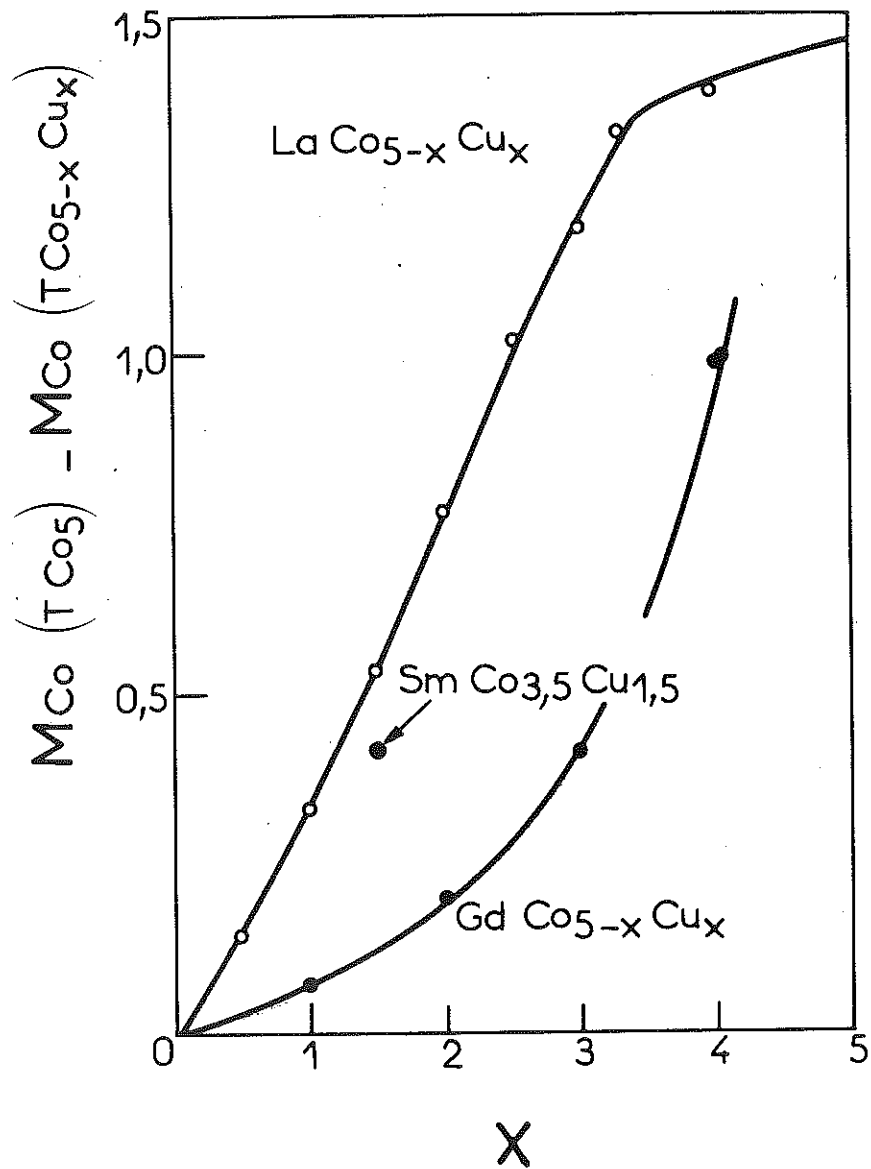


Figure 17 : Variation du moment du cobalt dans les composés $\text{LaCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ ⁽³⁰⁾, $\text{GdCo}_{5-x}\text{Cu}_x$ ⁽³¹⁾ et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ en fonction de la concentration de cuivre.

Dans ces composés les interactions Co-Co sont prépondérantes ; en effet , leurs températures de Curie sont de l'ordre de 1000 K quelle que soit la terre rare alliée, tandis que les interactions entre terres rares correspondent à des températures de Curie de quelques dizaines de Kelvin⁽³⁾ comme le montre l'étude des composés isomorphes TNi_5 dans lesquels le nickel n'est pas magnétique.

L'aimantation $m_{T.R}$ des atomes de terre rare à une température T, dépend du compromis entre l'énergie d'interaction terre rare-cobalt représentée par le champ moléculaire $H_m^{Co} = NM_{Co}$ et l'énergie d'agitation thermique ; ce qui peut être représenté par une fonction de Brillouin :

$$m_{T.R} = m_{T.R}^0 B_J \left(\frac{NM_{Co} \times m_{T.R}^0}{kT} \right) \quad (3)$$

Au point de compensation T_c (99 K pour $TbCo_5$ et 93 K pour $DyCo_5$), les aimantations des sous-réseaux de terre rare et de cobalt sont en valeur absolue égales $m_{T.R} = 5m_{Co}$. Le champ moléculaire créé par les atomes de cobalt sur les atomes de terre rare s'obtient par la relation :

$$H_m^{Co} = NM_{Co} = \frac{kT_c}{m_{T.R}^0} \times B_J^{-1} \left(\frac{5m_{Co}^0}{m_{T.R}^0} \right) \quad (4)$$

A la température de compensation l'aimantation du cobalt est pratiquement saturée. La valeur du champ moléculaire déduite peut alors être considérée comme étant égale à celle à 0 K. En prenant pour $TbCo_5$: $T_c = 99$ K, $m_{Co} = 1,6 \mu_B$, $m_{T.R} = gJ\mu_B = 9 \mu_B$, on obtient $H_m^{Co} = 1000 \pm 100$ kOe.

La valeur du champ d'échange agissant sur le spin de la terre rare $H_{ec}^{Co} = \frac{g}{g-1} H_m^{Co}$ correspondant au champ moléculaire H_m^{Co} est de 3000 ± 300 kOe ; g représente le facteur de Landé de l'ion Tb^{3+} . En procédant de la même manière avec $DyCo_5$, on obtient $H_{ec}^{Co} = 3200 \pm 300$ kOe. Dans $SmCo_5$ le champ moléculaire agissant sur les moments de samarium est de 10 MOe, si l'on prend un champ d'échange de 3000 kOe. Le champ moléculaire dû aux atomes de samarium et agissant sur les moments des atomes de cobalt est :

$$H_m^{\text{Sm}} = 10(\text{MOe}) \times \frac{M_{\text{Sm}}(T=0)}{M_{\text{Co}}} \approx 0,9 \text{ MOe} \quad (5)$$

Le coefficient de champ moléculaire N , qui caractérise les interactions entre les spins de samarium et de cobalt dans SmCo_5 , vaut $1,27 \text{ MOe}/\mu_B$.

Tant que l'on peut négliger les interactions Sm-Sm, c'est-à-dire pour des températures supérieures à environ 10 K, le sous-réseau de samarium est paramagnétique ; il est soumis au champ moléculaire résultant des interactions terres rares-cobalt. Comme pour TbCo_5 et DyCo_5 , la variation de l'aimantation du sous-réseau de samarium m_{Sm} peut être calculée à partir d'une fonction de Brillouin :

$$m_{\text{Sm}} = m_{\text{Sm}}^0 B_{5/2} \left(\frac{NM_{\text{Co}} m_{\text{Sm}}^0}{kT} \right) \quad (6)$$

En première approximation, on prend ici pour m_{Sm}^0 l'aimantation correspondant au multiplet fondamental $J = 5/2$, soit $m_{\text{Sm}}^0 = 0,72 \mu_B$; la variation thermique du champ moléculaire NM_{Co} est déduite de celle de l'aimantation de YCo_5 . Nous avons comparé sur la figure 18 la variation relative $m_{\text{Sm}}/m_{\text{Sm}}^0$ obtenue pour $N = 1,27 \text{ MOe}/\mu_B$, avec celle déduite de la différence des aimantations spontanées de SmCo_5 et de YCo_5 ⁽³³⁾ effectuée jusqu'à 300 K.

Afin de déterminer la variation thermique de l'aimantation du sous-réseau de samarium dans le composé $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$, dont la température de Curie est voisine de 700 K, il est nécessaire de connaître celle du sous-réseau de cobalt. Nous l'avons déduite de celle de YCo_5 par une simple affinité dont le rapport est celui des températures de Curie. Un coefficient de champ moléculaire $N = 1,27 \text{ MOe}/\mu_B$ conduit à une variation thermique de l'aimantation du samarium plus rapide que celle observée ; un meilleur accord avec l'expérience est obtenu pour $N \approx 2,2 \text{ MOe}/\mu_B$ (figure 19).

En conclusion, il apparaît que les interactions terre rare-cobalt augmentent avec le nombre d'électrons de conduction.

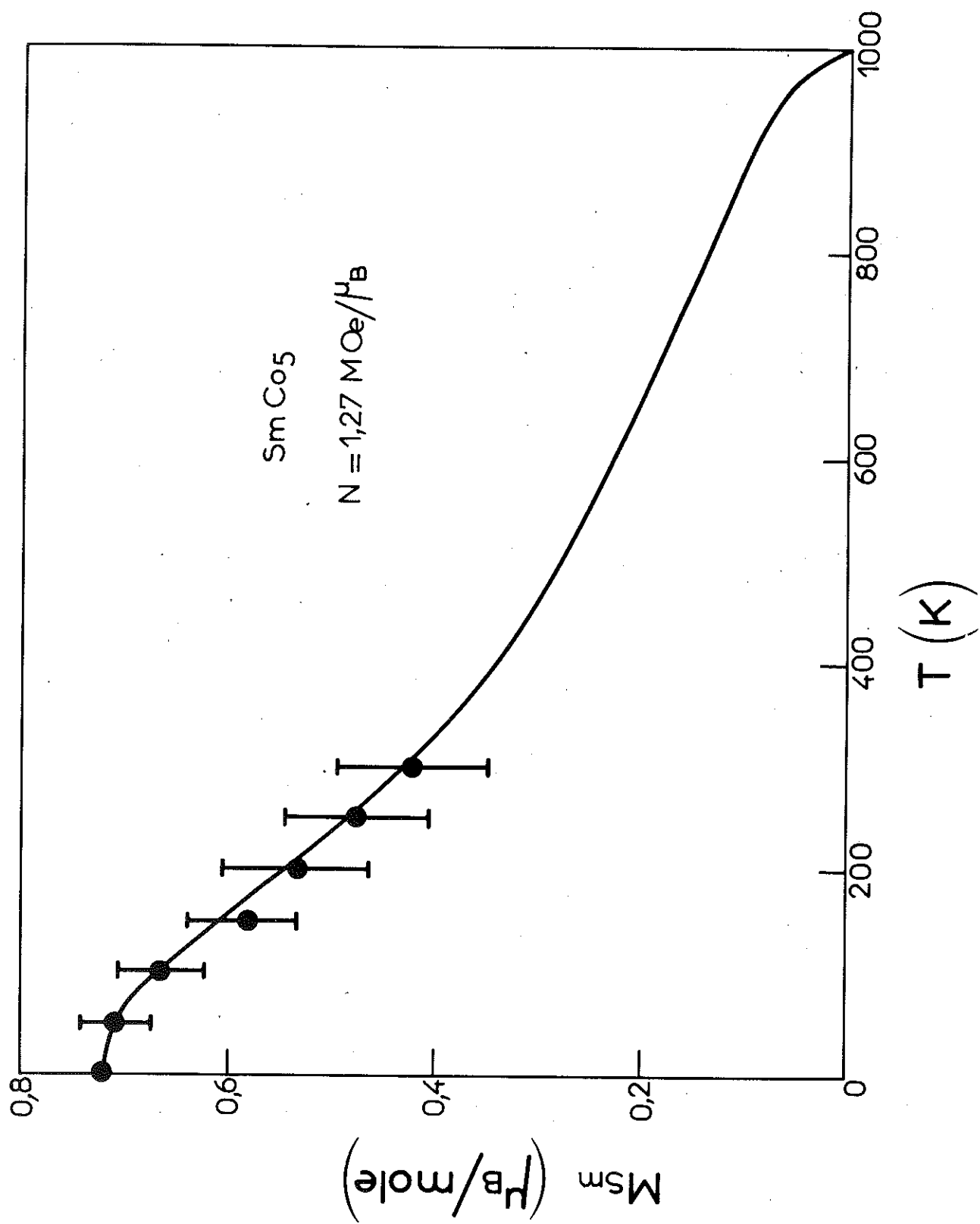


Figure 18 : Variation thermique du moment du samarium dans le composé SmCo₅.
(● : points expérimentaux ; — : $B_{J=5/2}$).

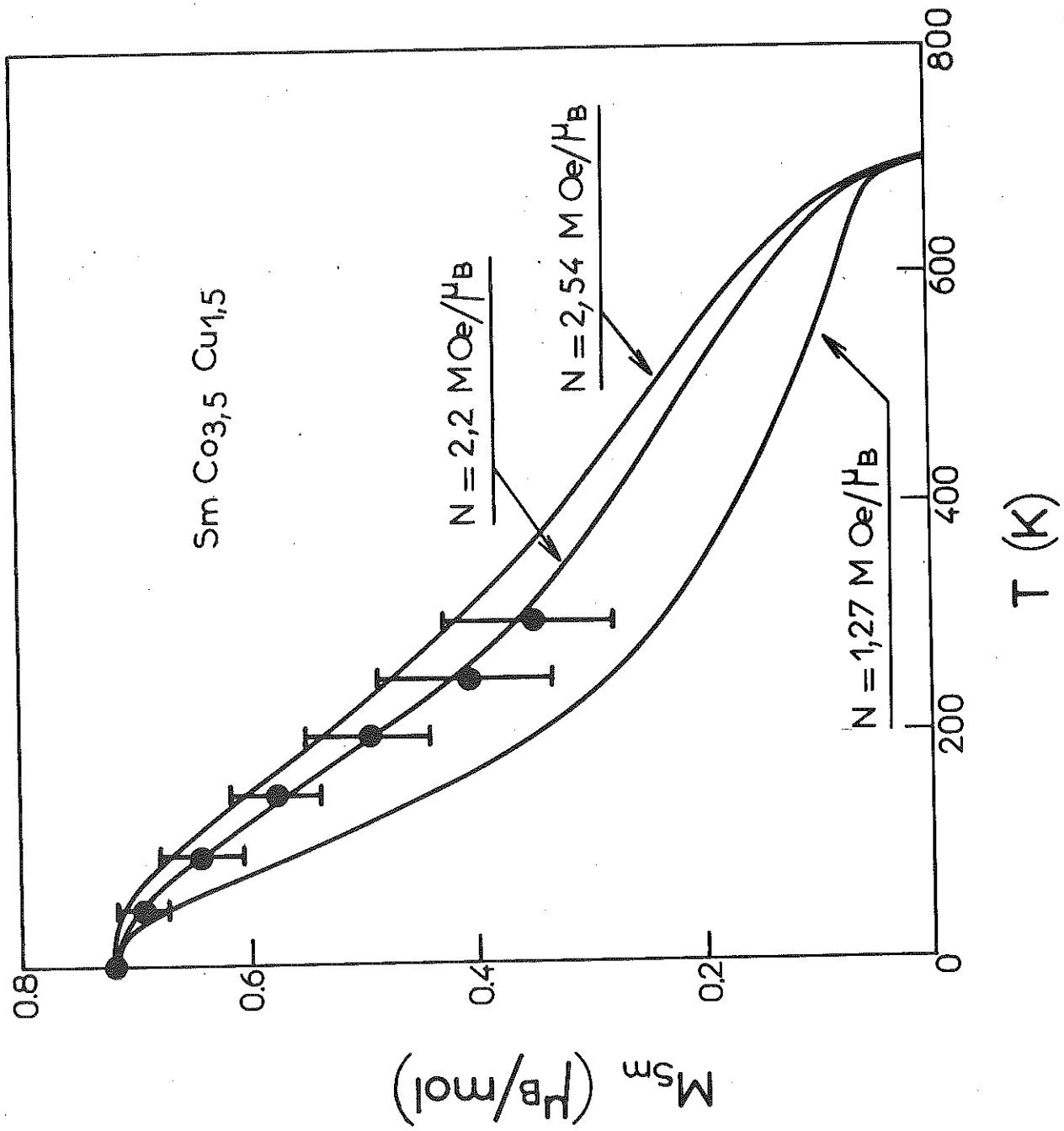


Figure 19 : Variation thermique du moment du samarium dans le composé $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$.
(● : points expérimentaux ; — : $B_J = 5/2$).

4 - ENERGIE D'ANISOTROPIE EFFECTIVE DANS SmCo_5 ET $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

4-1 - Détermination de l'énergie d'anisotropie effective

En raison de la très forte anisotropie des composés étudiés les mesures d'aimantation sur monocristaux dans les champs actuellement disponibles au S.N.C.I. ($H \leq 150$ kOe) ne permettent qu'une détermination du champ d'anisotropie H_a défini au paragraphe (2-1). En effet, la dépendance angulaire de l'énergie libre pour un cristal de symétrie hexagonale présentant un seul type d'atomes magnétiques peut s'écrire sous la forme phénoménologique :

$$F = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^6 \theta + K_4 \sin^6 \theta \cos 6\varphi \quad (7)$$

où θ est l'angle entre l'aimantation et l'axe c, et φ l'angle de la projection de l'aimantation dans le plan de base avec l'un des axes a de ce plan. K_1 , K_2 , K_3 et K_4 sont des constantes d'anisotropie d'ordre 2, 4, 6 que l'on suppose varier seulement avec la température. La minimisation de l'énergie d'anisotropie, et de l'énergie potentielle due au champ magnétique donne :

$$\frac{2K_1}{M_s} + \frac{4K_2}{M_s} \times \left(\frac{M_{//}}{M_s} \right)^2 + \dots = \frac{H}{\left(\frac{M_{//}}{M_s} \right)} \quad (8)$$

où H représente le champ appliqué dans le plan de base et $M_{//}$ la composante de l'aimantation qui lui est parallèle. L'axe de facile aimantation est l'axe c. Les variations de l'aimantation mesurée dans un champ perpendiculaire à cet axe c étant linéaires et indépendantes de la direction dans le plan de base, seule la détermination de K_1 est possible. Les termes d'anisotropie d'ordres supérieurs devraient introduire une courbure dans les courbes d'aimantation, la mesure de K_2 par exemple nécessiterait l'application d'un champ au moins d'un ordre de grandeur supérieur à celui disponible actuellement.

Les composés étudiés comprennent plusieurs types d'atomes magnétiques qui se décomposent en deux sous-réseaux couplés entre eux par des interactions d'échange : au champ d'anisotropie mesuré H_a correspond une énergie d'anisotropie effective $K_e = \frac{M_s H_a}{2}$ déterminée par l'aire comprise entre les courbes d'aimantation obtenues selon les directions de facile et de difficile aimantation. Cette

énergie ne dépend pas uniquement de l'anisotropie magnétocristalline. En raison de l'existence des deux sous-réseaux, elle est aussi fonction des interactions d'échange entre ces sous-réseaux.

Nous avons porté sur la figure 20 les variations thermiques des énergies d'anisotropie effective K_e et K'_e respectivement de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$. Des mesures analogues ont déjà été effectuées sur SmCo_5 dans différents laboratoires⁽³⁴⁻³⁶⁾ ; cependant les mesures antérieures diffèrent les unes des autres (de 15 % dans le meilleur des cas) ; notre détermination est en très bon accord avec celle de Klein et al⁽³⁵⁾. La valeur de K_e extrapolée à 0 K est de 21% supérieure à celle de K'_e . Lorsque la température augmente ces grandeurs diminuent mais leur différence reste sensiblement constante jusqu'à 300 K.

4-2 - Origine de l'anisotropie effective de SmCo_5

Lorsque le champ est appliqué dans une direction perpendiculaire à l'axe de facile aimantation les moments de samarium et de cobalt s'écartent de cette direction. La composante de l'aimantation totale qui est parallèle au champ, c'est-à-dire l'aimantation mesurée, dépend non seulement de l'énergie d'anisotropie des sous-réseaux de samarium et de cobalt mais aussi de l'énergie d'échange entre ces sous-réseaux (figure 21). La contribution de chacun de ces termes à l'énergie d'anisotropie mesurée, c'est-à-dire à l'énergie d'anisotropie effective peut être évaluée en écrivant l'équilibre du système dans un champ H :

$$K_{\text{Sm}} \sin 2\alpha_{\text{Sm}} - N M_{\text{Co}} M_{\text{Sm}} \sin(\alpha_{\text{Co}} - \alpha_{\text{Sm}}) - M_{\text{Sm}} H \cos \alpha_{\text{Sm}} = 0 \quad (9)$$

$$K_{\text{Co}} \sin 2\alpha_{\text{Co}} - N M_{\text{Sm}} M_{\text{Co}} \sin(\alpha_{\text{Sm}} - \alpha_{\text{Co}}) - M_{\text{Co}} H \cos \alpha_{\text{Co}} = 0$$

A l'intérieur d'un même sous-réseau K, M et α représentent respectivement l'énergie d'anisotropie magnétocristalline, le module et l'angle de l'aimantation totale avec l'axe c ; N représente le coefficient de champ moléculaire entre les sous-réseaux de samarium et de cobalt. D'après la valeur des aimantations mesurées dans un champ de 150 kOe les angles α_{Sm} et α_{Co} doivent être inférieures à 10° ; on peut donc linéariser le système précédent, l'aimantation mesurée s'écrit :

$$M_{//} = \alpha_{\text{Co}} M_{\text{Co}} + \alpha_{\text{Sm}} M_{\text{Sm}} \quad (10)$$

avec

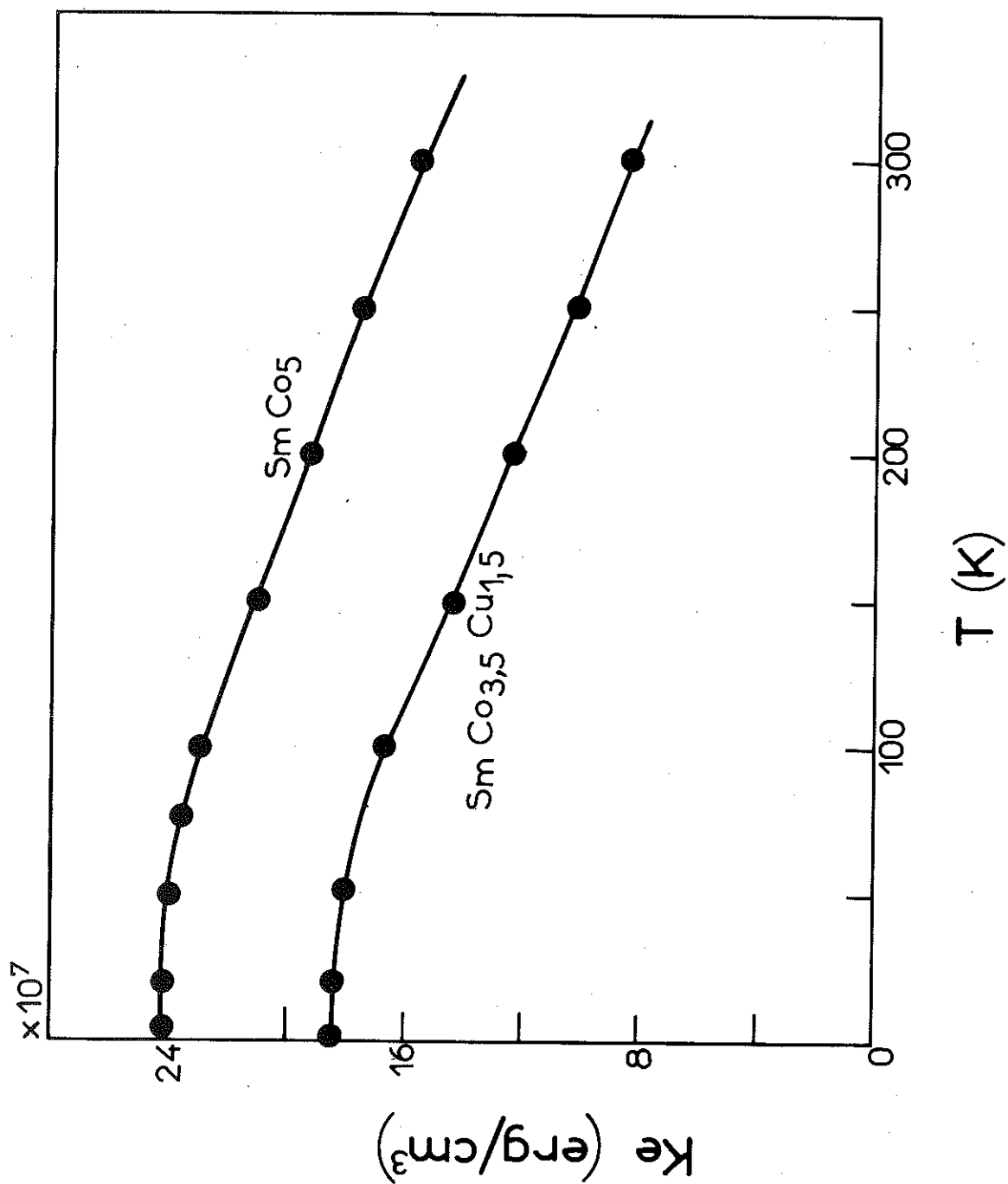


Figure 20 : Variation thermique de l'énergie d'anisotropie effective de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$.

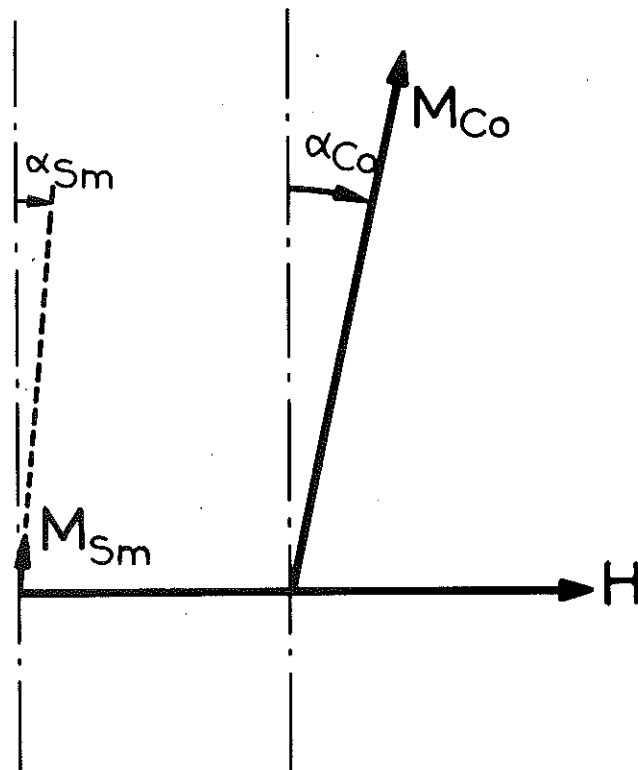


Figure 21 : Effet d'un champ H sur les moments de samarium et de cobalt dans $SmCo_5$ et $SmCo_{3.5}Cu_{1.5}$.

$$\alpha_{\text{Sm}} = \frac{(H_a^{\text{Co}} + H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}})H}{H_a^{\text{Sm}} \cdot H_a^{\text{Co}} + H_a^{\text{Sm}} \cdot H_m^{\text{Sm}} + H_a^{\text{Co}} \cdot H_m^{\text{Co}}} \quad (11)$$

$$\alpha_{\text{Co}} = \frac{(H_a^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}})H}{H_a^{\text{Sm}} \cdot H_a^{\text{Co}} + H_a^{\text{Sm}} \cdot H_m^{\text{Sm}} + H_a^{\text{Co}} \cdot H_m^{\text{Co}}}$$

et $H_a^{\text{Sm}} = 2K_{\text{Sm}}/M_{\text{Sm}}$, $H_a^{\text{Co}} = 2K_{\text{Co}}/M_{\text{Co}}$, $H_m^{\text{Co}} = NM_{\text{Co}}$, $H_m^{\text{Sm}} = NM_{\text{Sm}}$.

Le champ d'anisotropie mesuré est un champ effectif H_a tel que :

$$\frac{M_{\text{Sm}} + M_{\text{Co}}}{H_a} = \frac{M_{\text{Sm}}(H_a^{\text{Co}} + H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}}) + M_{\text{Co}}(H_a^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}})}{(H_a^{\text{Sm}} \cdot H_a^{\text{Co}} + H_a^{\text{Sm}} \cdot H_m^{\text{Sm}} + H_a^{\text{Co}} \cdot H_m^{\text{Co}})} \quad (12)$$

$(M_{\text{Sm}} + M_{\text{Co}})/H_a$ est la moyenne harmonique, pondérée par les valeurs de M_{Sm} et M_{Co} , des champs d'anisotropie effective agissant sur les sous-réseaux de samarium et de cobalt :

$$H_a(\text{Co}) = \frac{H_a^{\text{Sm}} \cdot H_a^{\text{Co}} + H_a^{\text{Sm}} \cdot H_m^{\text{Sm}} + H_a^{\text{Co}} \cdot H_m^{\text{Co}}}{H_a^{\text{Co}} + H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}}} \quad (13)$$

et

$$H_a(\text{Sm}) = \frac{H_a^{\text{Sm}} \cdot H_a^{\text{Co}} + H_a^{\text{Sm}} \cdot H_m^{\text{Sm}} + H_a^{\text{Co}} \cdot H_m^{\text{Co}}}{H_a^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}}} \quad (14)$$

H_a ne représente la somme des énergies d'anisotropie du samarium et du cobalt que si l'on suppose $H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}} \gg H_a^{\text{Sm}}$ et $H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}} \gg H_a^{\text{Co}}$. Dans le cas de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ cette hypothèse simplificatrice n'est pas vérifiée bien qu'elle soit habituellement utilisée (37,38). En effet, le champ d'anisotropie du sous-réseau de samarium est du même ordre de grandeur que la somme $H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}}$. A titre d'exemple, les variations des aimantations de deux sous-réseaux A et B sont portées sur la figure 22 en fonction d'un champ appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, pour différentes valeurs du coefficient de champ moléculaire N. Pour $N = 0$ les deux sous-réseaux sont découplés. Pour un échange infini leurs aimantations restent parallèles ; le champ d'anisotropie effective mesuré est alors égal aux champs effectifs agissant sur chacun des deux sous-réseaux. Pour $N = 1,27 \text{ MOe}/\mu_B$, ce qui est le cas dans SmCo_5 , la rotation du sous-réseau de cobalt est plus rapide que celle du sous-réseau de

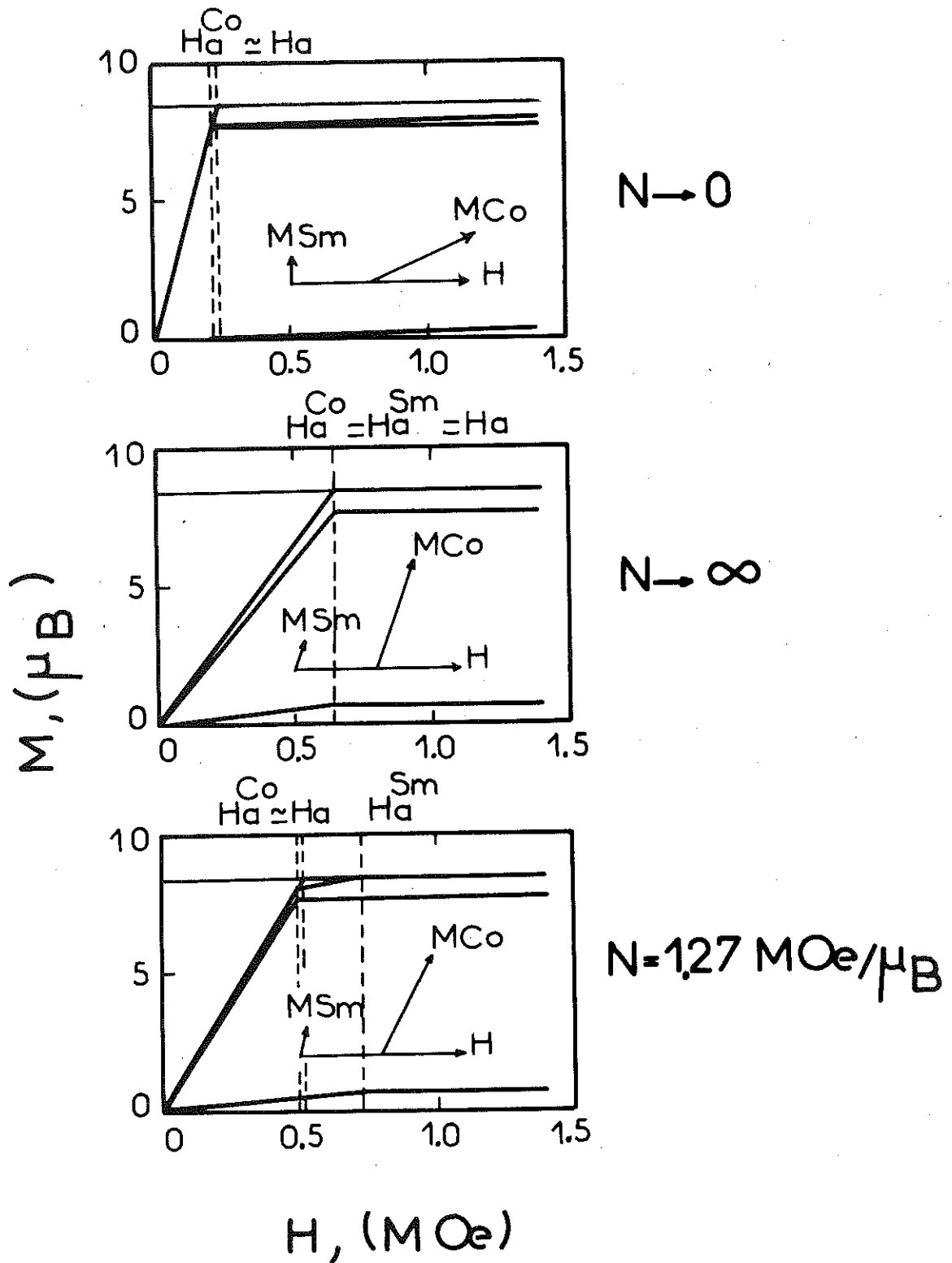


Figure 22 : Variation de l'aimantation des sous-réseaux de samarium et de cobalt en fonction d'un champ perpendiculaire ($\longrightarrow$) ou parallèle ($\longrightarrow$) à l'axe c pour différentes valeurs du coefficient de champ moléculaire.

samarium ; le champ d'anisotropie effective mesuré est voisin du champ d'anisotropie effective agissant sur le sous-réseau de cobalt.

Le champ d'anisotropie associé au sous-réseau de cobalt peut être évalué à partir des mesures effectuées sur YCo_5 (33,39). On obtient $H_a^{\text{Co}} = 0.22 \text{ MOe}$ à 0 K. Le champ d'anisotropie effective mesuré dans SmCo_5 (525 kOe) est largement supérieur à cette valeur ; l'anisotropie associée au sous-réseau de samarium est donc plus grande que celle, associée à celui du cobalt : le champ d'anisotropie effective mesuré constitue une limite inférieure pour le champ d'anisotropie du sous-réseau de samarium. En tenant compte des notations précédentes on a :

$$H_a^{\text{Sm}} > 525 \text{ (kOe)} \frac{M(\text{SmCo}_5)}{M_{\text{Sm}}} = 6,25 \text{ MOe} \quad (15)$$

Ce champ est comparable à la somme $H_m^{\text{Sm}} + H_m^{\text{Co}} = 10,9 \text{ MOe}$. L'approximation habituelle $N \rightarrow \infty$ n'est pas justifiée. Le champ d'anisotropie mesuré représente donc une énergie d'anisotropie effective où interviennent pour une part sensiblement égale, l'énergie d'anisotropie associée au sous-réseau de samarium et l'énergie d'échange entre les sous-réseaux de samarium et de cobalt. En utilisant les valeurs numériques à 4,2 K, que nous avons évaluées ci-dessus, les moments de cobalt et de samarium tournent respectivement d'un angle $\alpha_{\text{Co}} \approx 11^\circ$ et $\alpha_{\text{Sm}} \approx 8^\circ$ lorsque le champ appliqué est de 100 kOe.

4-3 - Evaluation de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo_5

Le champ d'anisotropie associé au sous-réseau de samarium peut être déduit pour chaque température de l'expression (12) écrite sous la forme :

$$H_a^{\text{Sm}} = \frac{H_a M_{\text{Sm}} H_a^{\text{Co}} + N(M_{\text{Sm}} + M_{\text{Co}})^2 - N M_{\text{Co}} (M_{\text{Sm}} + M_{\text{Co}}) H_a^{\text{Co}}}{H_a^{\text{Co}} (M_{\text{Sm}} + M_{\text{Co}}) + N M_{\text{Sm}} (M_{\text{Sm}} + M_{\text{Co}}) - H_a M_{\text{Co}}} \quad (16)$$

En effet, la variation thermique de chacun des termes de cette expression peut être soit directement déterminée ($H_a(T)$, figure 7), soit évaluée de manière indirecte ; c'est le cas pour le champ d'anisotropie du sous-réseau de cobalt qui peut être déterminé à partir de la variation thermique de l'énergie d'anisotropie de LaCo_5 (36) ou de YCo_5 (33,39) (figure 23). Dans le paragraphe 3-3, nous

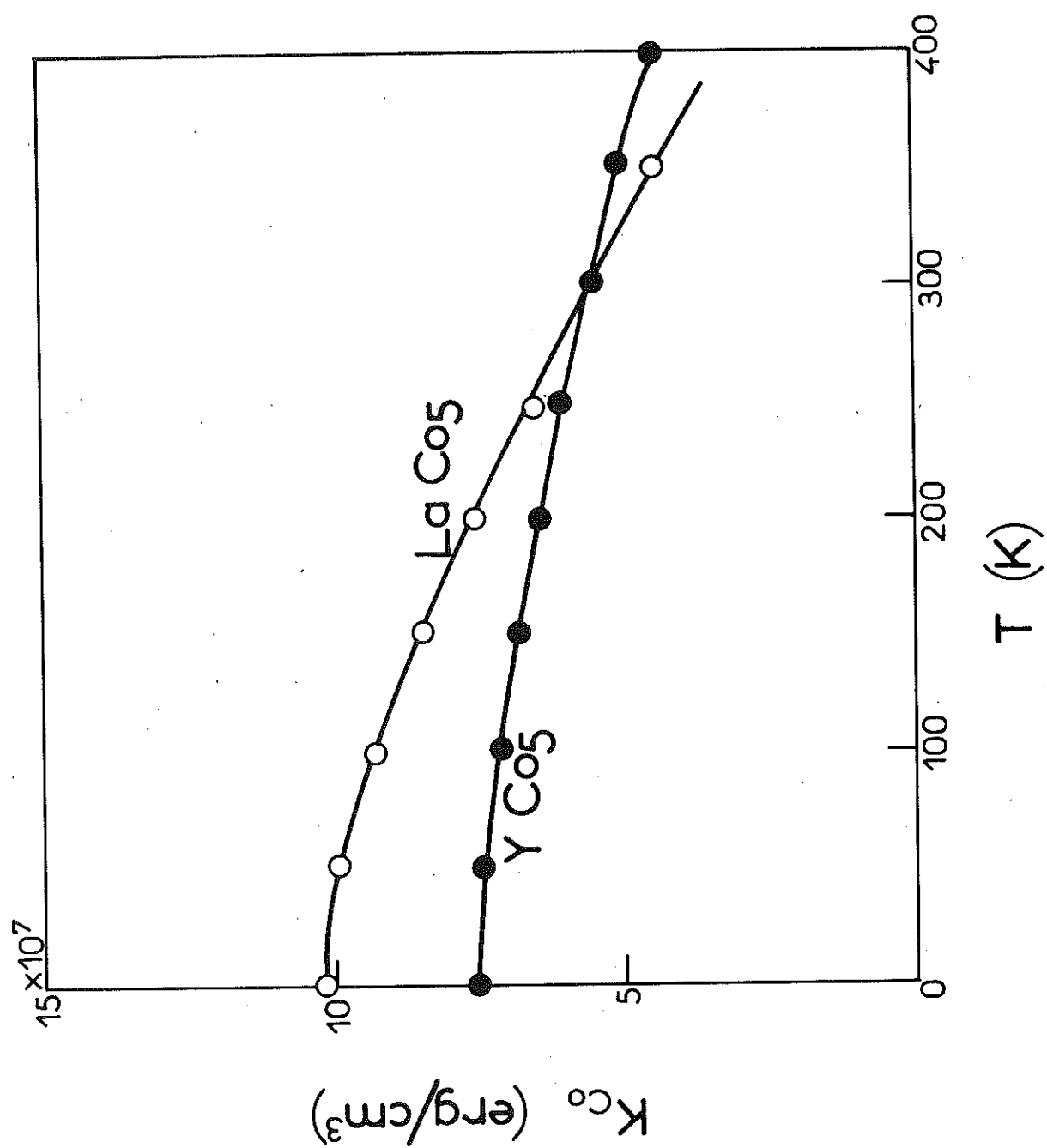


Figure 23 : Variations thermiques de l'énergie d'anisotropie dans $LaCo_5$ et YCo_5 (références 33, 36, 39).

avons déterminé le coefficient de champ moléculaire N entre les sous-réseaux de samarium et de cobalt ainsi que les variations thermiques de l'aimantation des sous-réseaux de samarium et de cobalt. La figure 24 représente les variations thermiques de l'énergie d'anisotropie $K_{Sm} = \frac{H_a^{Sm} M_{Sm}}{2}$ du sous-réseau de samarium lorsque l'anisotropie du sous-réseau de cobalt est déduite soit de YCo_5 soit de $LaCo_5$. On constate que les valeurs obtenues dépendent fortement de la valeur de l'anisotropie du sous-réseau de cobalt; selon que l'on utilise les résultats déduits de $LaCo_5$ ou de YCo_5 , K_{Sm} à 0 K varie de 20 %. Ce résultat découle de la relation $\Delta K_{Sm} \approx -3\Delta K_{Co}$ obtenue par différentiation de l'expression (16) ; toute modification de l'énergie d'anisotropie du cobalt se répercute sur celle du samarium avec un coefficient d'amplification voisin de 3. Ce résultat peut expliquer les écarts entre les différentes déterminations de l'énergie d'anisotropie du samarium ; en effet, l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de cobalt varie fortement avec de faibles écarts à la stœchiométrie⁽⁴⁰⁾.

4-4 - Evaluation de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$

A l'aide de l'expression (16), on peut aussi évaluer l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans le composé $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$. Nous avons montré dans le paragraphe 3-3 que le coefficient de champ moléculaire qui traduit les interactions cobalt-samarium est augmenté par l'introduction de cuivre (figure 19). Le champ moléculaire agissant sur les moments de samarium, proportionnel à l'aimantation du sous-réseau de cobalt, est approximativement de 20 % plus faible dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ que dans $SmCo_5$. Nous avons alors étudié l'influence du champ moléculaire sur la détermination de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium. La variation thermique du champ moléculaire a été obtenue de la même manière que pour le composé $SmCo_5$ (4-3). Le champ d'anisotropie du sous-réseau de cobalt dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ doit être du même ordre de grandeur que celui dans $SmCo_5$; il est difficile de le connaître avec précision, car il n'existe pas de mesure d'anisotropie sur le composé $YCo_{3,5}Cu_{1,5}$; nous avons donné à ce champ quelques valeurs voisines de celle du champ d'anisotropie du sous-réseau de cobalt dans $SmCo_5$; la valeur de l'anisotropie du sous-réseau de samarium dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ dépend de celle attribuée au champ d'anisotropie du cobalt H_a^{Co} : à une

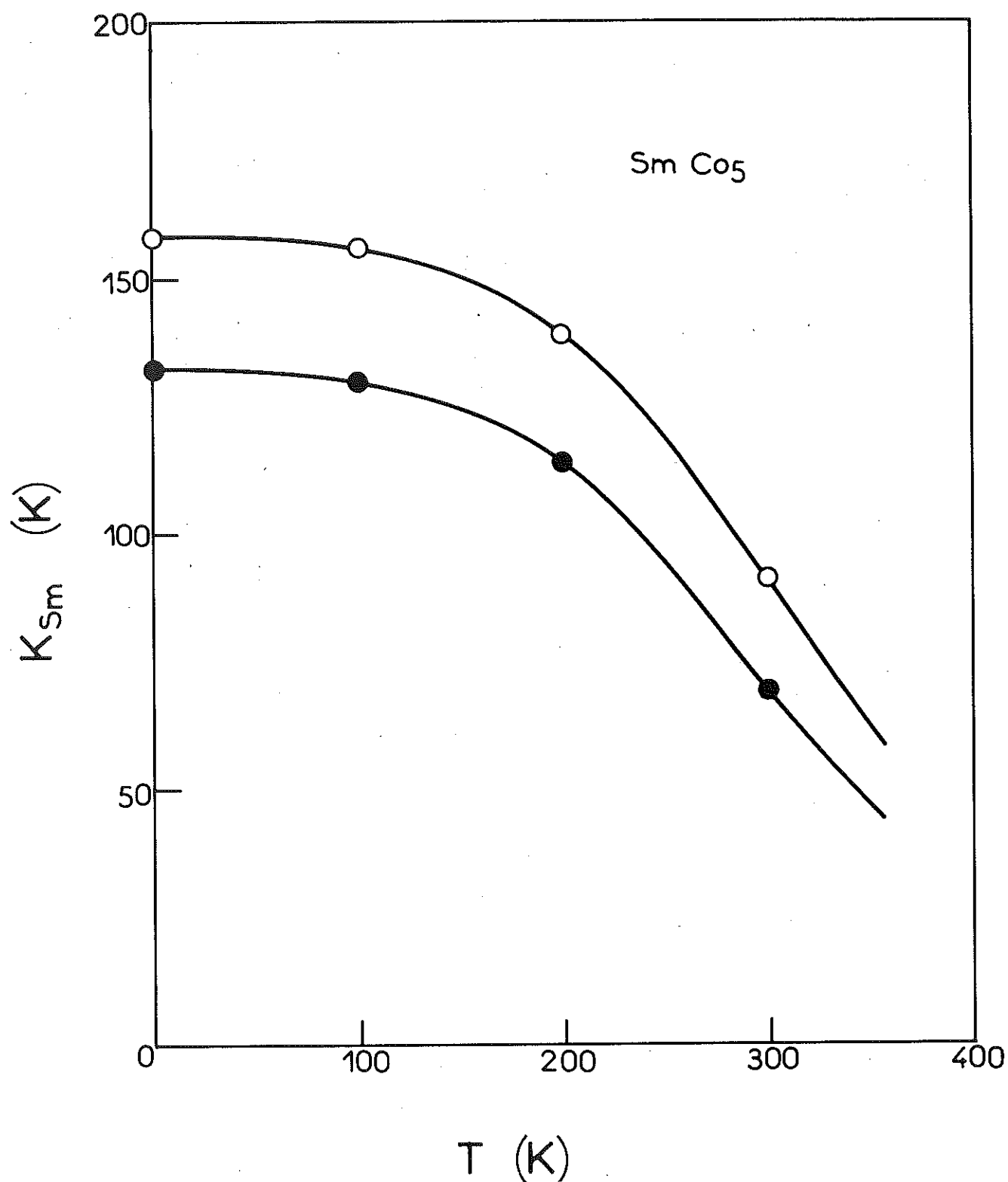


Figure 24 : Variations thermiques de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo₅
 (◯ : avec $H_a^{Co} = H_a(YCo_5)$; ● : avec $H_a^{Co} = H_a(LaCo_5)$)

diminution de H_a^{Co} de 30 % correspond une augmentation de H_a^{Sm} de 25 % (figure 25). La valeur du champ moléculaire H_m^{Co} influe aussi fortement sur celle de K_{Sm} ; en particulier, si l'on attribue à N successivement les valeurs 2,54 MOe/ μ_B et 1,27 MOe/ μ_B , l'anisotropie du samarium K_{Sm} se trouve accrue de 30 %. Cependant pour des valeurs de N compatibles avec la variation thermique du sous-réseau de samarium, $2 \leq N \leq 2,5$ (figure 19), K_{Sm} varie peu. La valeur de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium est environ de 30 % plus petite dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ que dans $SmCo_5$ (figure 26).

4-5 - Comparaison des résultats expérimentaux avec un calcul de champ cristallin

La très forte anisotropie du samarium dans $SmCo_5$ et dans $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ est due aux effets conjugués d'un champ cristallin et d'un champ moléculaire élevés agissant sur l'ion Sm^{3+} . Le champ cristallin, qui dérive d'un potentiel cristallin de symétrie hexagonale, décompose le multiplet fondamental $J = 5/2$ en trois doublets, dont la dégénérescence est levée par le champ moléculaire. Cependant l'écart relativement faible de 1400 K entre ce multiplet $J = 5/2$ et le premier excité $J = 7/2$ impose la prise en considération de ce dernier. L'hamiltonien général s'écrit alors :

$$\mathcal{H} = \lambda \vec{L} \vec{S} + \sum_{1m} B_1^m U_1^m + 2\mu_B \vec{S} \vec{H}_{ec}^{Co} \quad (17)$$

Le premier terme représente le couplage spin-orbite. Le second décrit le champ cristallin ; les U_1^m sont définis par :

$$U_1^m = \left(\frac{4\pi}{21 + 1} \right)^{1/2} Y_1^m(\theta, \varphi) \quad (18)$$

tandis que les B_1^m sont reliés aux paramètres de champ cristallin A_1^m par la relation : $B_1^m = N_1^m \langle r^1 \rangle A_1^m$. Les facteurs de norme N_1^m et les intégrales radiales $\langle r^1 \rangle$ sont tabulés⁽⁴¹⁾ tandis que les A_1^m peuvent éventuellement être calculés par la méthode des charges ponctuelles :

$$A_1^m = (-1)^{m+1} \frac{4\pi}{21 + 1} e^2 K_1^m \sum_i \frac{Z_i}{R_i^{1+1}} Y_1^m(\theta_i, \varphi_i) \quad (19)$$

Z_i et R_i représentent la charge et la distance du $i^{\text{ème}}$ ion par rapport à l'origine ; les K_1^m sont tabulés⁽⁴²⁾ et les Y_1^m sont des harmoniques sphériques des angles polaires θ_i et φ_i relatifs à R_i .

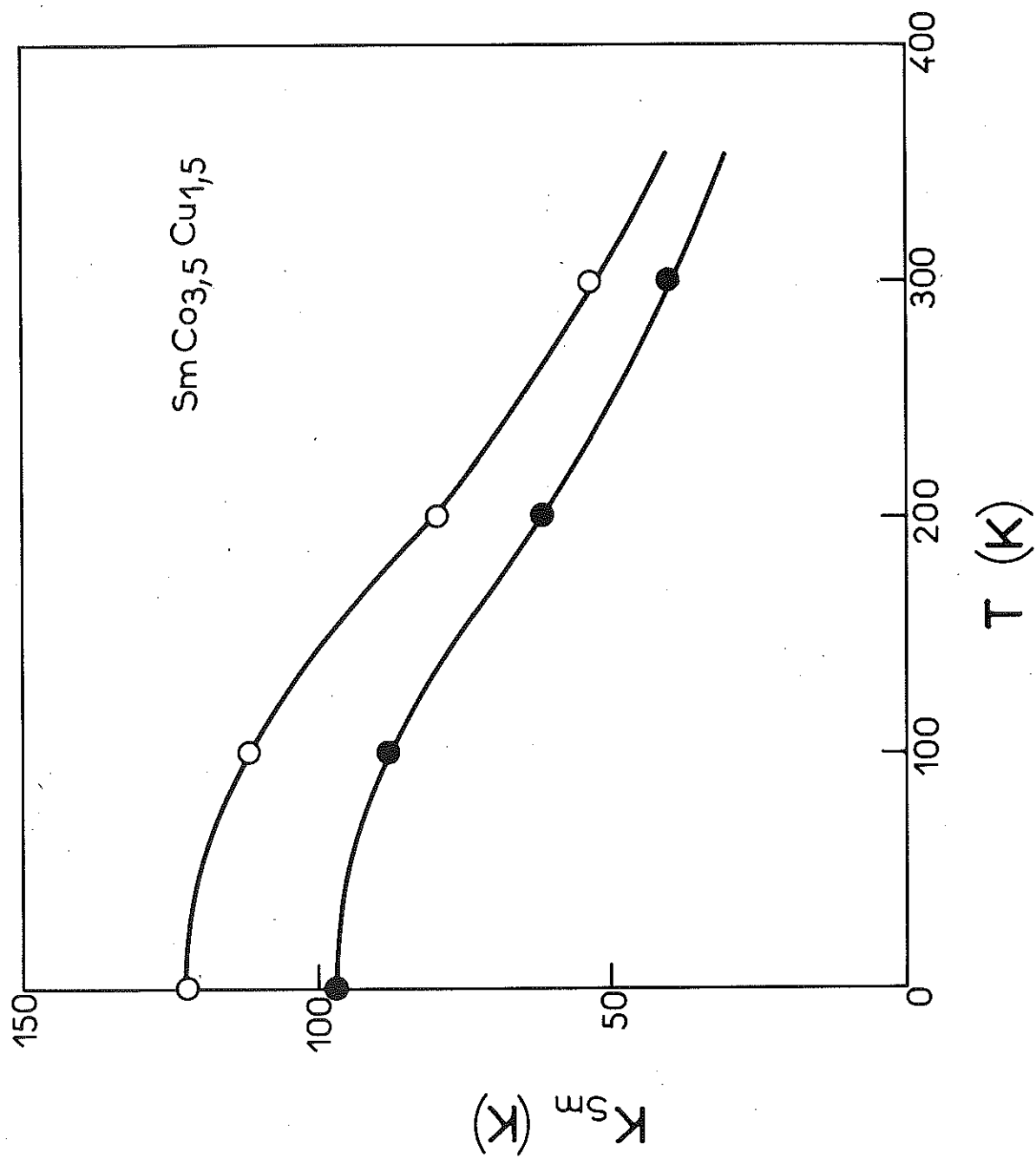


Figure 25 : Variations thermiques de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo_{3,5}Cu_{1,5}. (O : avec $H_a^{Co} = H_a(YCo_5)$; ● : avec $H_a^{Co} = H_a(LaCo_5)$).

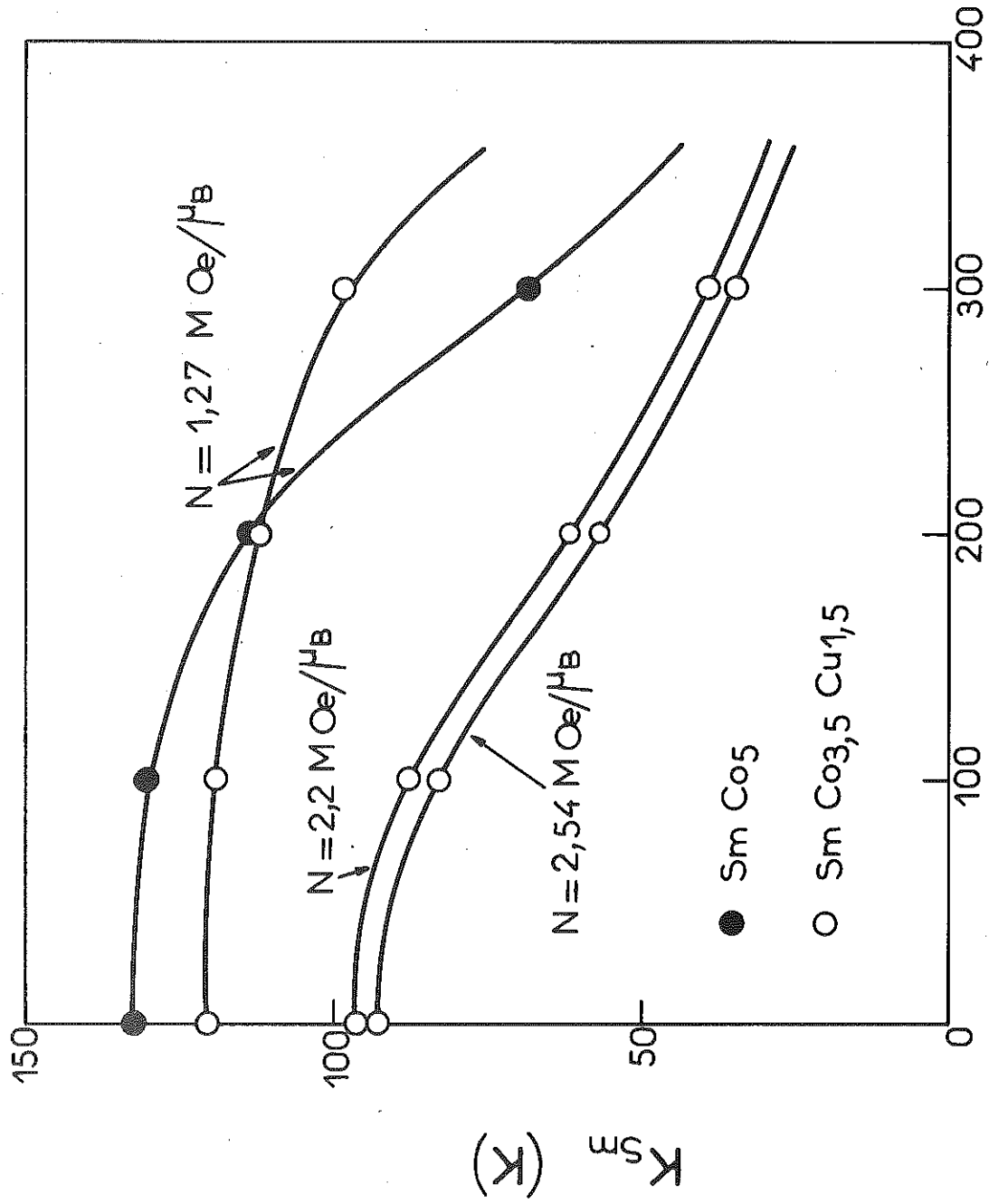


Figure 26 : Variations thermiques de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans $SmCo_5$ et $SmCo_{3,5}Cu_{1,5}$ pour quelques valeurs du coefficient de champ moléculaire N .

Récemment Sankar et al⁽³⁷⁾, et Buschow et al⁽³⁸⁾ ont évalué les paramètres de champ cristallin de SmCo_5 par la méthode des charges ponctuelles en se limitant aux deux premiers voisins samarium (alignés selon l'axe c) et aux six seconds voisins samarium (dans le plan (0001)) ; en utilisant les coefficients d'écrantage $r_2 = 0,5$, $r_4 = 0,1$ et $r_6 = 0,05$ estimés par Burns⁽⁴³⁾ ils obtiennent :

$$B_2^0 \approx -16,8 \text{ K} ; \quad B_4^0 \approx -0,05 ; \quad B_6^0 \approx 0,$$

et diagonalisent l'hamiltonien (17) pour un champ d'échange $H_{ec}^{\text{Co}} = 3000 \text{ kOe}$ parallèle ou perpendiculaire à l'axe c. La différence d'énergie libre ΔF correspondant à ces deux situations est très peu sensible aux valeurs de B_4^0 et de B_6^0 . On en déduit que l'aire comprise entre les courbes d'aimantation mesurées selon les directions de facile et de difficile aimantation ne dépend que très peu de la contribution des coefficients B_4^0 et B_6^0 aux constantes K_1, K_2, K_3, K_4 . En raison de la proximité des multiplets $J = 7/2$ et $J = 5/2$ l'obtention de relations rigoureuses entre les constantes K_n et les coefficients B_l^m n'est pas immédiate. Cependant une évaluation grossière de l'ordre de grandeur de cette contribution peut être obtenue si l'on suppose que le champ moléculaire est suffisamment élevé pour que l'état fondamental de l'ion Sm^{3+} diffère peu de l'état pur $|J_z = 5/2\rangle$. On obtient au zéro absolu :

$$\begin{aligned} K_1 &= -\frac{3}{2} n_2^0 B_2^0 - \frac{100}{8} n_4^0 B_4^0 \\ K_2 &= \frac{35}{8} n_4^0 B_4^0 \\ K_3 &= 0 \end{aligned} \quad (20)$$

où n_l^m sont des constantes de normalisation des harmoniques sphériques. D'où :

$$\begin{aligned} K_1 &\approx -\frac{3}{2} n_2^0 B_2^0 \\ K_2 &\approx K_3 = 0 \end{aligned} \quad (21)$$

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline du sous-réseau de samarium peut donc être représentée par la seule constante d'anisotropie d'ordre deux K_{Sm} . En utilisant les résultats des calculs de champ cristallin^(37,38) nous comparons les variations thermiques expérimentales de K_{Sm} avec celles calculées. Nous avons tracé sur la

figure 27 la variation de l'énergie libre ΔF en fonction du paramètre de champ cristallin B_2^0 pour les deux valeurs du champ d'échange correspondant à SmCo_5 (3000 kOe) et à $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ (2350 kOe). La comparaison avec les valeurs expérimentales à 0 K indique que la valeur de B_2^0 est dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ légèrement inférieure à celle dans SmCo_5 . En utilisant les résultats du calcul de champ cristallin^(37,38) nous comparons sur les figures 28 et 29 les variations thermiques expérimentales de l'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ avec celles calculées. Le coefficient de champ cristallin obtenu est très voisin de celui calculé par la méthode des charges ponctuelles.

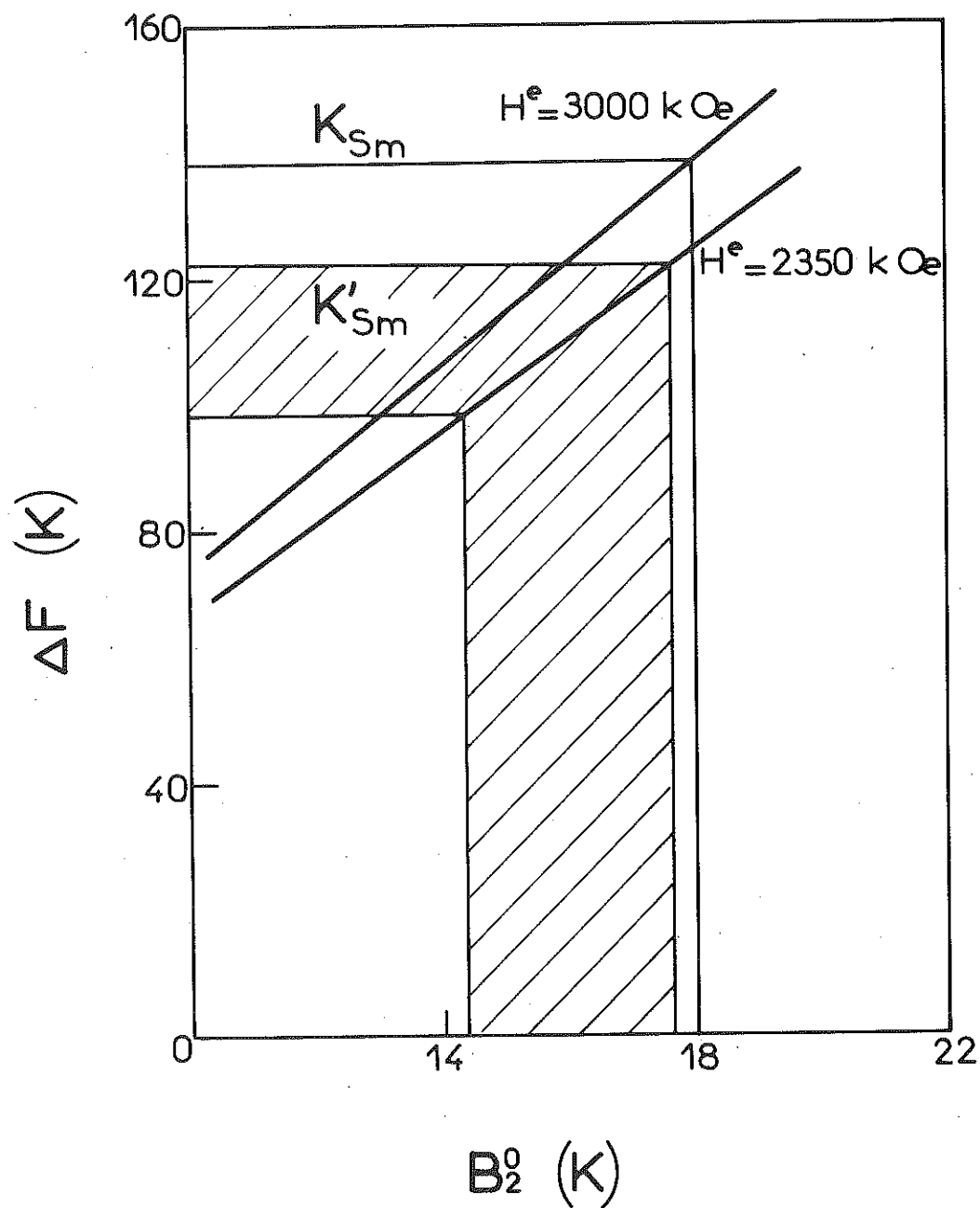


Figure 27 : Variation de la différence d'énergie libre ΔF en fonction du paramètre de champ cristallin B_2^0 dans SmCo_5 ($H_{ec} = 3000 \text{ kOe}$) et dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ ($H_{ec} = 2350 \text{ kOe}$).

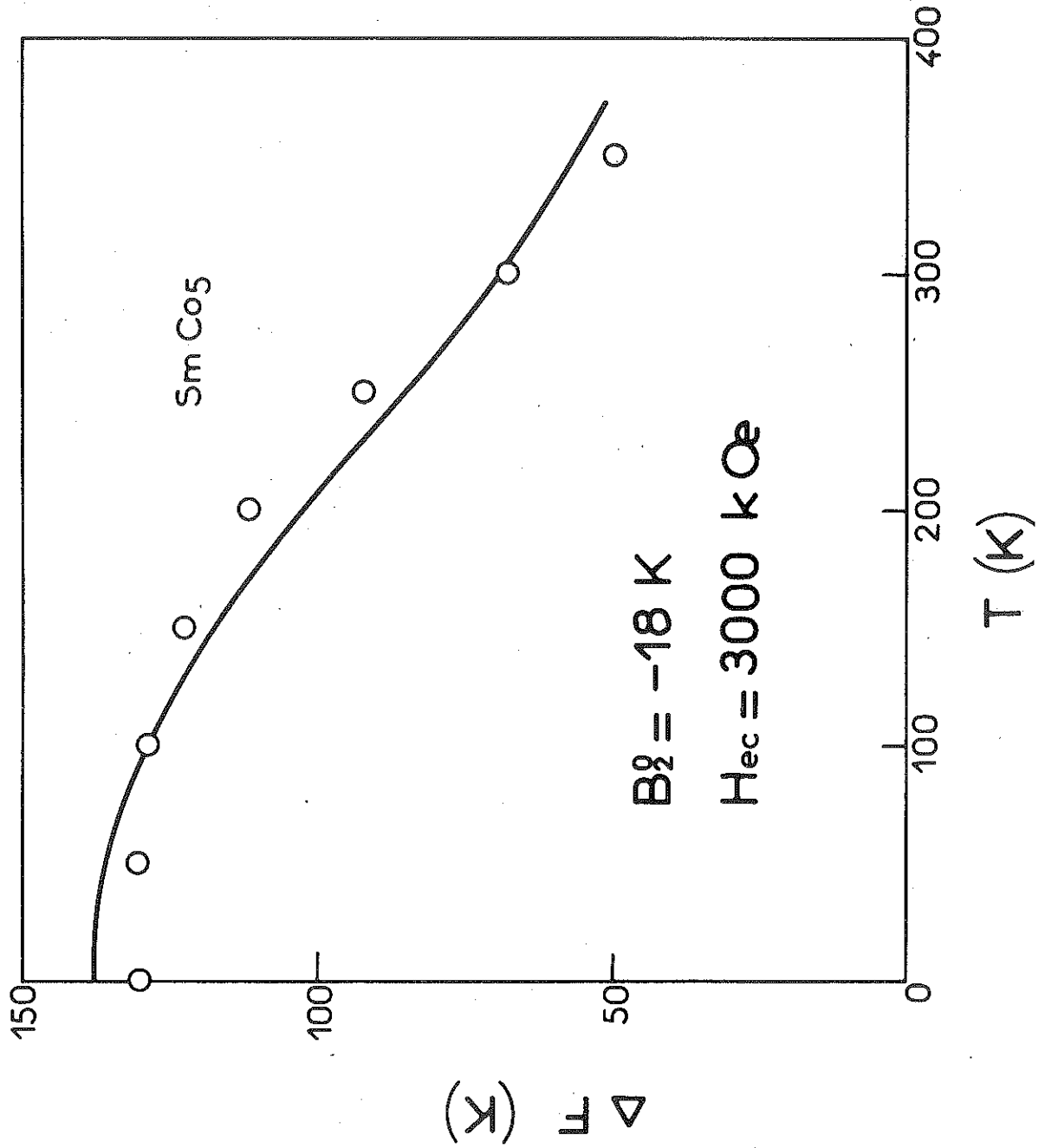


Figure 28 : Variation thermique de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo_5 obtenue expérimentalement (o) et par le calcul pour $B_2 = -18 \text{ K}$ et $H_{ec} = 3000 \text{ kOe}$ (—).

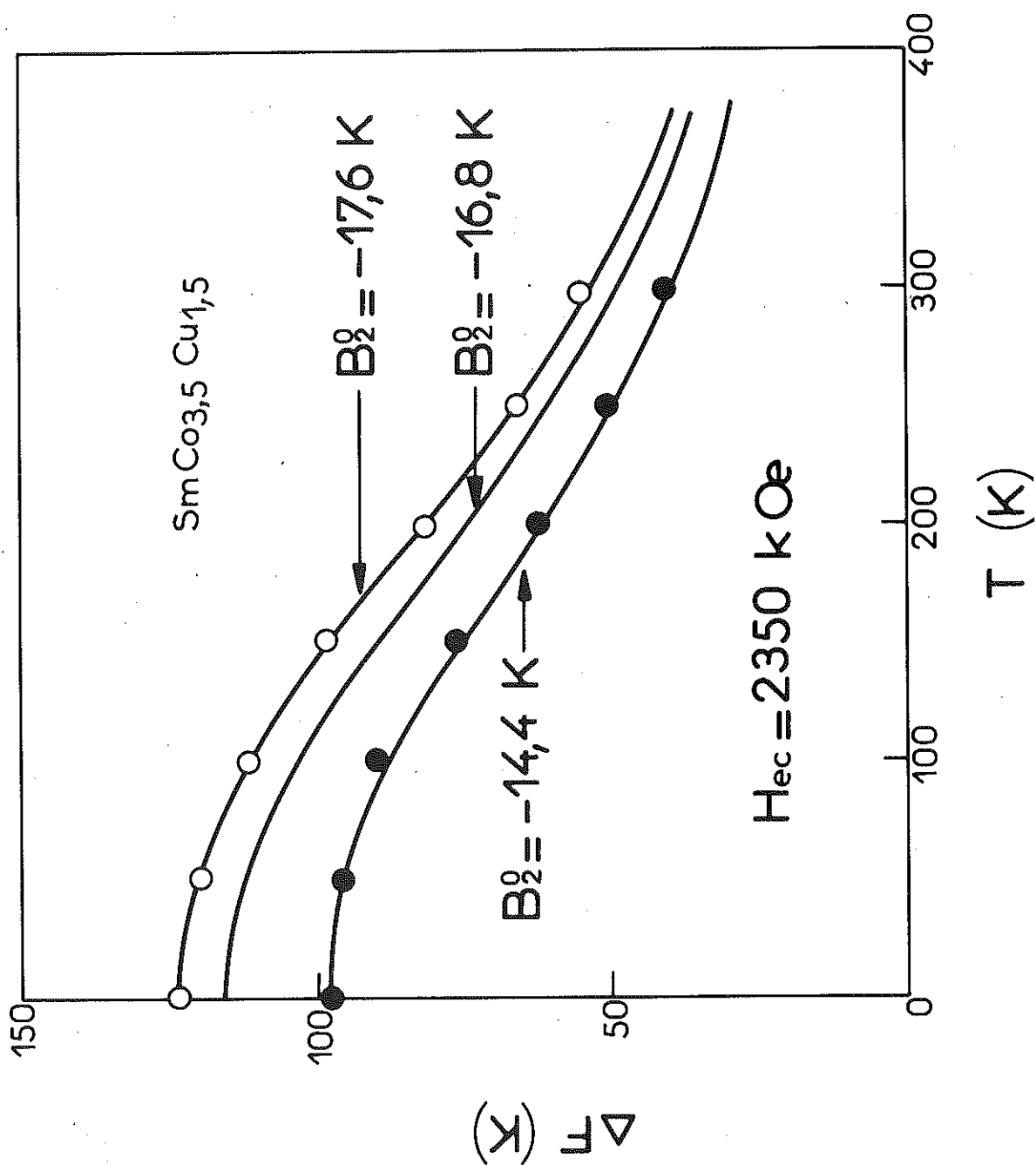


Figure 29 : Variation thermique de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo_{3,5}Cu_{1,5} obtenue expérimentalement (○ : avec $H_{Co}^a = H_a(YCo_5)$ et ● avec $H_{Co}^a = H_a(LaCo_5)$) et par le calcul (pour quelques valeurs de B_2^0 et $H_{ec} = 2350 \text{ kOe}$).

CHAPITRE III

OBSERVATION DES DOMAINES MAGNETIQUES DANS $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$

1 - METHODE EXPERIMENTALE

Les domaines élémentaires de Weiss ont été visualisés dans le composé $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ à l'aide de l'effet Kerr. Si un faisceau de lumière polarisée selon un plan parallèle ou perpendiculaire au plan d'incidence illumine la surface d'un monocristal aimanté, la lumière réfléchie sera en général polarisée elliptiquement. Ce phénomène est connu comme étant l'effet Kerr. Le degré d'ellipticité est faible et peut être considéré comme une rotation du plan de polarisation de la lumière au cours de la réflexion. Lorsque les vecteurs aimantation à la surface des domaines sont orientés antiparallèlement, la rotation correspondante du plan de polarisation change de sens. La lumière analysée conduit à une visualisation des domaines qui apparaissent alternativement clairs ou sombres. Bien que le contraste, lié à la différence angulaire des plans de polarisation de la lumière réfléchie, soit généralement faible, cette méthode a l'avantage d'être directe.

Nous avons utilisé un microscope à illumination verticale comprenant deux éléments polariseurs. Les échantillons utilisés sont des monocristaux de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ qui ont été polis à la pâte de diamant suivant un plan perpendiculaire à l'axe c de facile aimantation. La rotation de Kerr particulièrement importante ici donne un bon contraste. Les échantillons ont été observés après avoir été soumis à des champs fournis par un électro aimant pouvant atteindre 20 kOe.

2 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous avons porté sur la figure 30 la courbe de première aimantation et le cycle d'hystérésis mesurés selon l'axe c d'un monocristal de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ à 300 K. Les points A, B, C, D, E, F, figurent les différents états d'aimantation de l'échantillon lors de l'observation des domaines élémentaires. L'évolution de ces domaines superficiels, pour des champs croissant de 0 à 15 kOe, est portée sur la figure 31. Les régions claires ou sombres représentent des domaines d'aimantation opposée, c'est-à-dire d'aimantation dirigée vers l'extérieur ou l'intérieur de la surface d'observation. Lorsque l'échantillon n'a jamais été aimanté (figure 31A), les domaines clairs et sombres, de dimensions relativement modestes ($1,5 \mu$), s'enchevêtrent les uns dans les autres. La structure en domaines, représentée sur la figure 31B, a été obtenue après application d'un champ de 3 kOe. Il n'apparaît pas de modification sensible par rapport au cas précédent ; les photographies sont pratiquement superposables. Lorsque l'échantillon a été soumis à un champ supérieur au champ critique $H_s = 3 \text{ kOe}$, observé sur la courbe de première aimantation ($H = 4 \text{ kOe}$ sur la figure 31C), la structure en domaines est modifiée. Les domaines clairs et sombres grossissent simultanément ; cependant, l'extension de ces derniers est plus rapide. La comparaison des figures 31D et 31E montre une accentuation de ce processus ; le grossissement apparent des domaines clairs résultant de la réunion de plusieurs domaines de même type. Cependant, pour des champs supérieurs à 8 kOe environ les domaines d'aimantation antiparallèle au champ se retrécissent pour disparaître après application d'un champ de 15 kOe (figure 31F).

L'échantillon saturé reste monodomaine même en champ nul (figure 32G). Pour un champ de 500 Oe, des domaines filiformes se nucléent brusquement ; la distance moyenne entre ces domaines est de l'ordre de quelques dizaines de microns alors que leur épaisseur est de l'ordre du micron (figure 32H). Ces domaines croissent avec le champ tandis que d'autres domaines se nucléent (figure 32I). Pour un champ de 2,5 kOe, voisin du champ coercitif, les domaines d'aimantation antiparallèle ou parallèle au champ appliqué sont presque égaux. Leurs dimensions correspondent approximativement à la moitié des distances entre zones de nucléation ; elles sont beaucoup plus importantes que celles des domaines d'un échantillon vierge. En champ plus élevé, l'échantillon tend à se saturer (figure 32K et 32L).

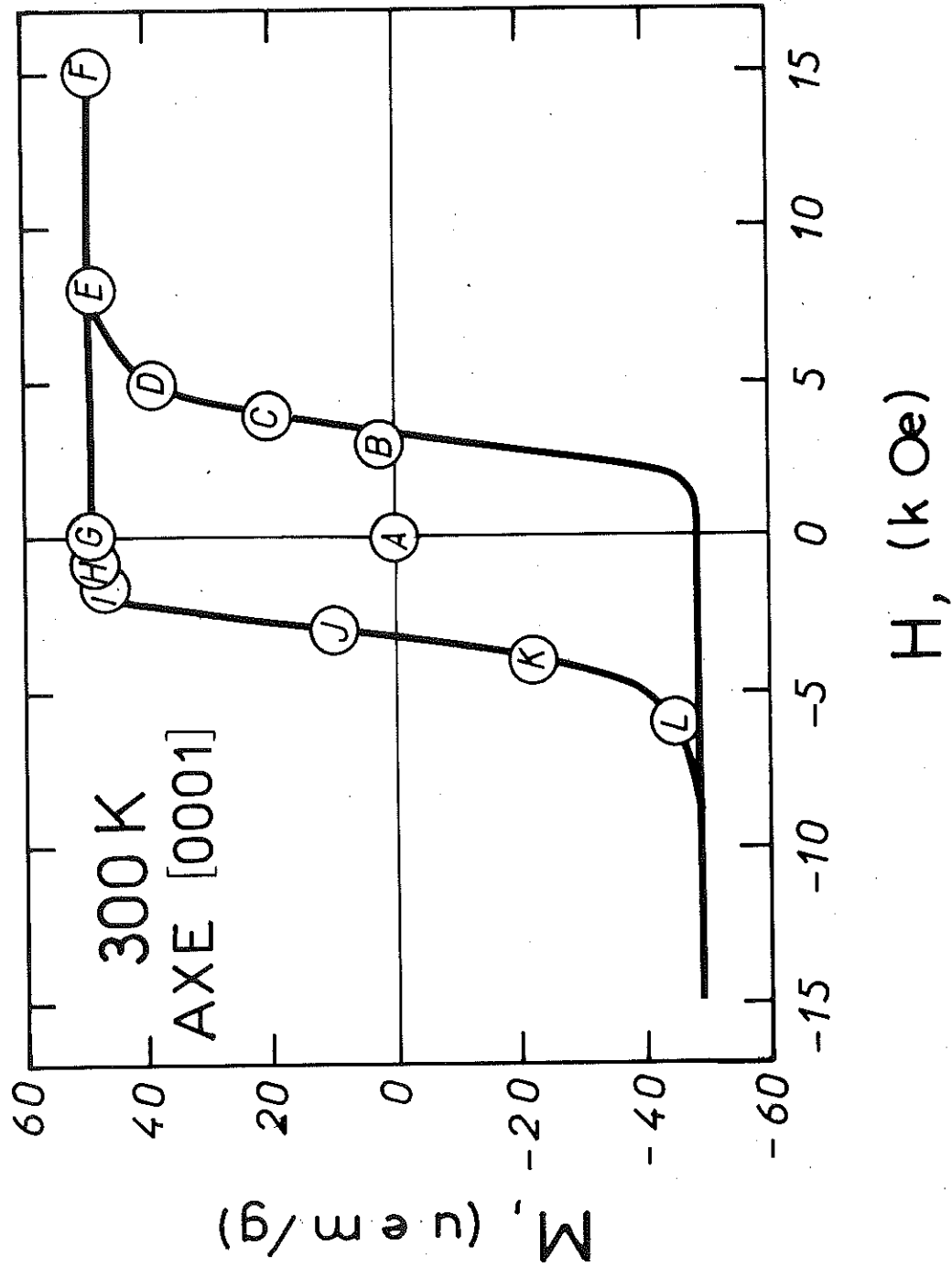


Figure 30 : Courbe de première aimantation et cycle d'hystérésis de $\text{SmCo}_{3.5}\text{Cu}_{1.5}$ mesurés selon l'axe c à 300 K . Les lettres correspondent aux différents états d'aimantation visualisés par effet Kerr (figures 31 et 32).

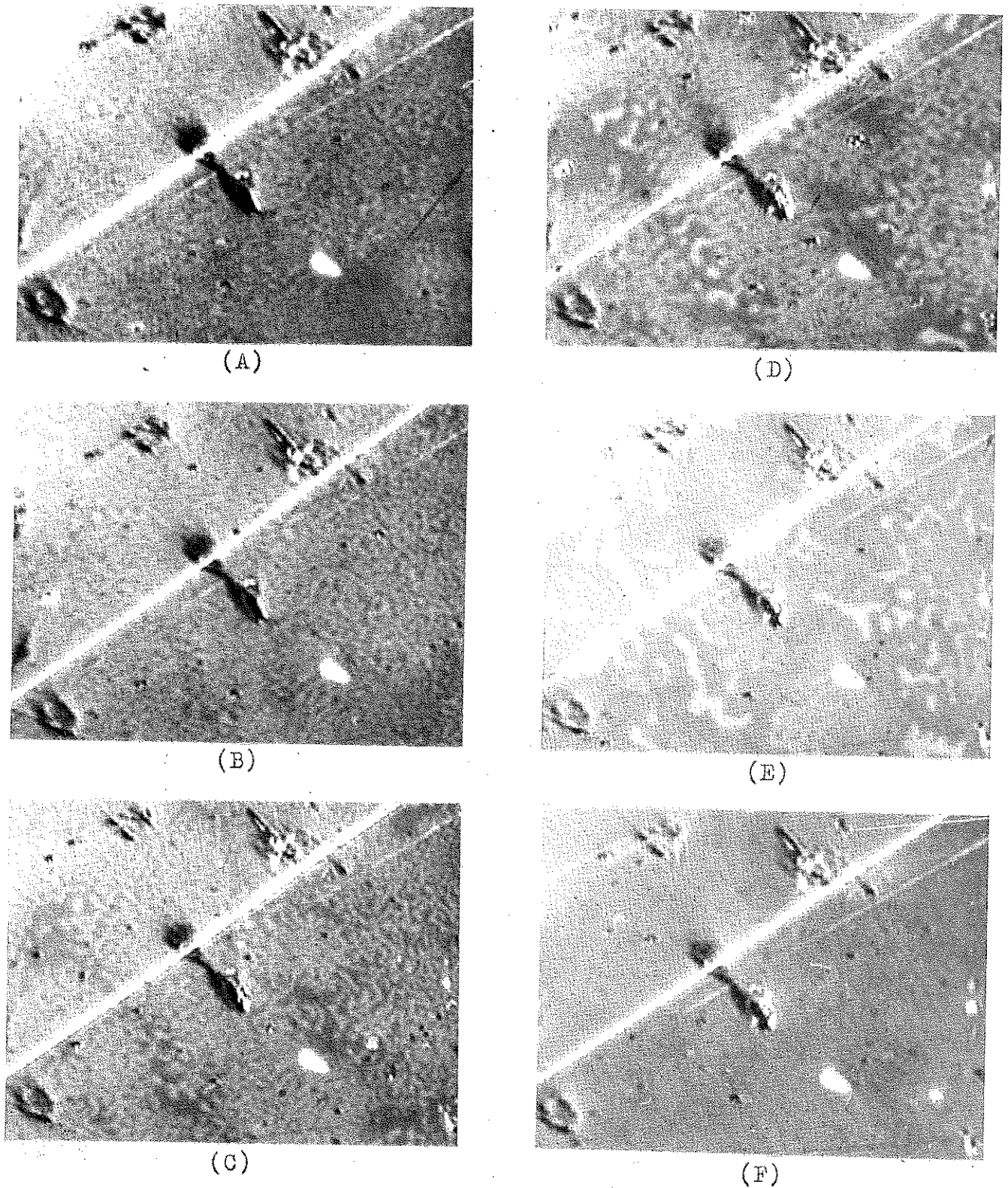
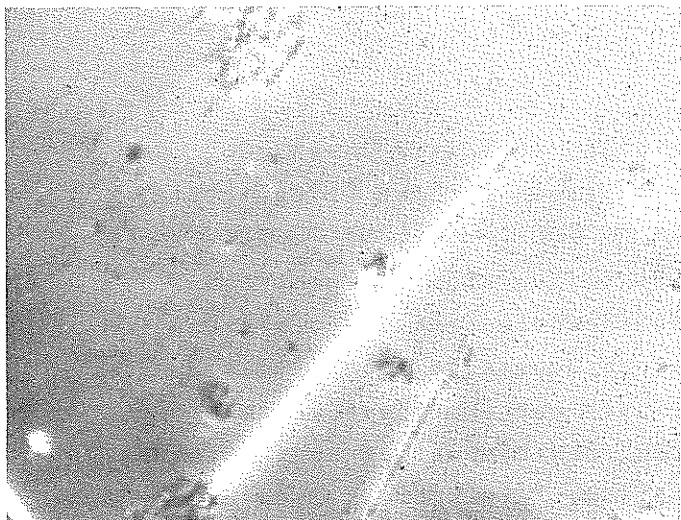
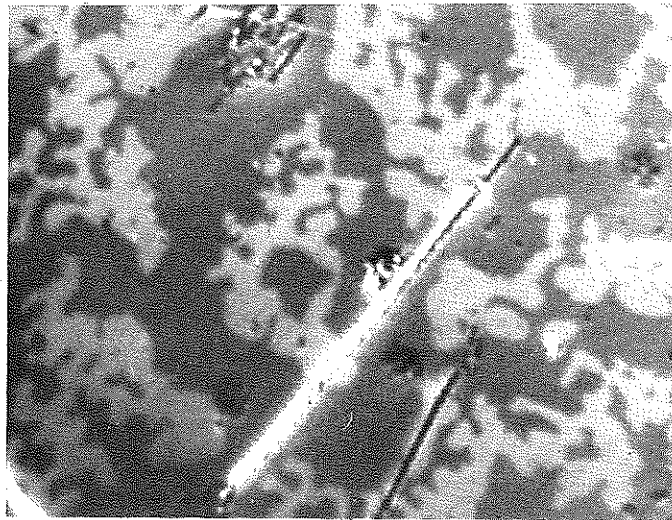


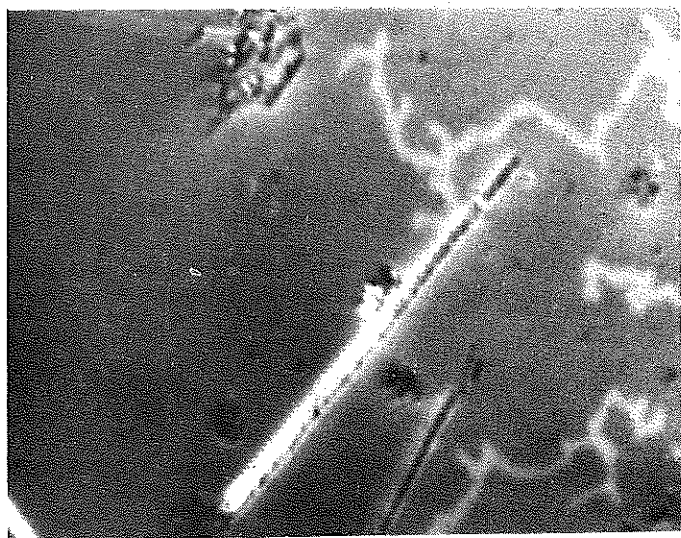
Figure 31 : Observation des domaines magnétiques de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ dans le plan (0001) pour les différents états d'aimantation indiqués figure 30.



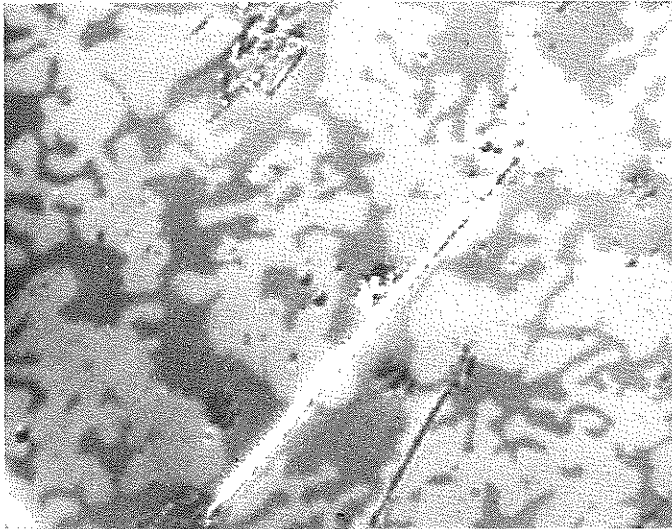
(G)



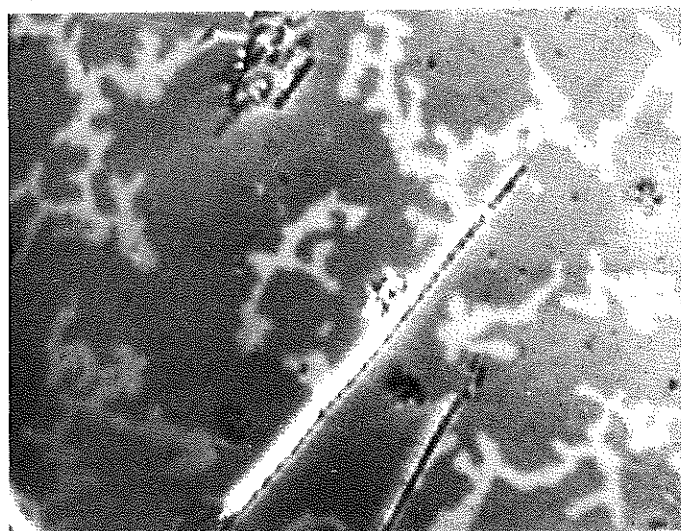
(J)



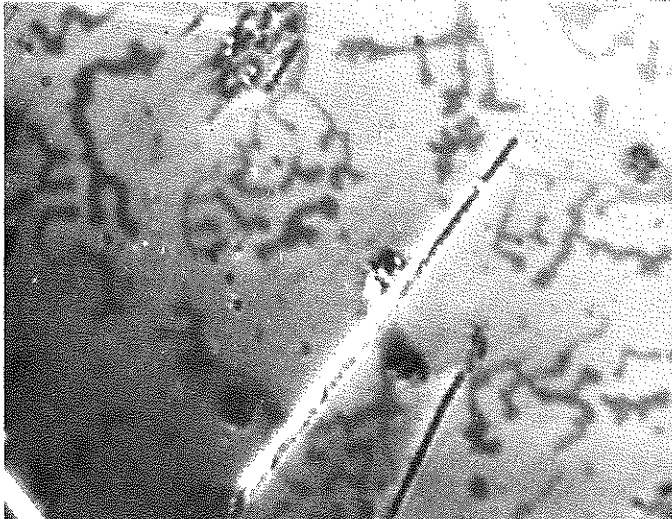
(H)



(K)



(I)



(L)

100 μ

Figure 32 : Observation des domaines magnétiques de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ dans le plan (0001) pour les différents états d'aimantation indiqués figure 30.

En conclusion, la valeur du champ coercitif dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ résulte essentiellement du piégeage des parois par les irrégularités du matériau dont l'existence a été démontrées par des études de microscopie électronique^(44,45) et des mesures récentes de diffraction des neutrons aux petits angles⁽⁴⁶⁾. Ces irrégularités proviennent d'une ségrégation des atomes de cuivre par rapport aux atomes de cobalt lors du traitement de revenu. L'échantillon massif est décomposé en zones de concentration en cuivre différentes dont les dimensions sont voisines de 100 Å. Le piégeage des parois résulte des diminutions locales de l'échange associées aux fortes concentrations en cuivre ; en effet, dans ces zones, la dimension et l'énergie de paroi diminuent. Les irrégularités macroscopiques du contour des domaines reflètent les irrégularités des zones de ségrégation.

CHAPITRE IV

ETUDE DU TRAINAGE MAGNETIQUE DANS LE COMPOSE $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$.

VARIATION THERMIQUE DU CHAMP COERCITIF DES ALLIAGES DE TYPE TCO_5

1 - METHODE EXPERIMENTALE

Les mesures ont été effectuées sur un monocristal de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ orienté selon l'axe de facile aimantation $|0001|$, pour des températures comprises entre 4,2 et 300 K et des champs magnétiques inférieurs à 150 kOe. Après saturation de l'échantillon, le champ, inversé, est stabilisé à l'instant $t = 0$, à une valeur proche de celle du champ coercitif. L'aimantation continue alors de décroître avec le temps ; nous avons effectué des mesures dans des intervalles de temps compris entre $t_1 = 10$ secondes et $t_2 = 10^4$ secondes environ. Le champ appliqué étant voisin du champ coercitif, l'aimantation s'annule ; cet état ($M = 0$) est pris pour référence. Les énergies d'activation E pour chaque valeur du champ appliqué sont du même ordre de grandeur que l'énergie thermique. Nous avons également effectué quelques mesures de traînage pour des champs appliqués plus faibles, de façon que l'énergie d'activation correspondant au retournement de l'aimantation soit plus élevée. L'aimantation décroît aussi avec le temps, mais pratiquement, il n'est plus possible de désaimanter l'échantillon. En conséquence, les temps de relaxation considérés sont de l'ordre de quelques minutes et correspondent à une énergie d'activation moyenne $\bar{E}$ bien définie. Le temps de relaxation moyen $\bar{\tau}$ est tel que $t_1 \lesssim \bar{\tau} \lesssim t_2$, tandis que l'énergie d'activation moyenne $\bar{E}$ est telle que :

$$\log \frac{t_1}{\tau_0} < \frac{\bar{E}}{kT} < \log \frac{t_2}{\tau_0} \quad (22)$$

avec $\tau_0 \approx 10^{-11}$ secondes on obtient :

$$12 < \frac{\bar{E}}{kT} < 15 \quad (23)$$

Ce qui justifie l'interprétation des résultats expérimentaux à l'aide d'une loi du type :

$$\frac{1}{M} \frac{dM}{dt} = \frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} e^{-\bar{E}/kT} \quad (24)$$

la valeur de τ_0 n'est que très légèrement perturbée par cette approximation.

2 - VARIATION LOGARITHMIQUE DE L'AIMANTATION EN FONCTION DU TEMPS

Pour une température et un champ donnés, nous avons observé une variation de l'aimantation en $\log t$ (figures 33, 34 et 35) ; en première approximation on peut considérer que la fonction de distribution des temps de relaxation $g(\tau)$ est égale à $g(\bar{\tau})$, pour $\tau_1 < t < \tau_2$ avec $\tau_2 \gg t_2$, et $\tau_1 \ll t_1$, et est nulle à l'extérieur de cet intervalle ; (τ_1 et τ_2 sont tels que $\int_{\tau_1}^{\tau_2} g(\bar{\tau}) \frac{d\tau}{\tau} = 1$, soit $g(\bar{\tau}) = 1/\log \tau_2/\tau_1$). Les temps de coupure τ_1 et τ_2 correspondent à des énergies d'activation suffisamment différentes de celles correspondant à la valeur du champ appliqué, voisin de H_c , pour ne pas intervenir dans la mesure. En utilisant le formalisme habituel du traînage magnétique^(47,48) on obtient :

$$\frac{M(t)}{M_s} = g(\bar{\tau}) [c - \log t] \quad (25)$$

où c est une constante.

Lorsque l'on modifie la température T , pour un champ donné, il se produit un décalage de l'ensemble des temps de relaxation car :

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{E(H)}{kT}} \quad (26)$$

Les mesures sont effectuées au voisinage du champ coercitif, donc avec des temps de relaxation indépendants de la température. La

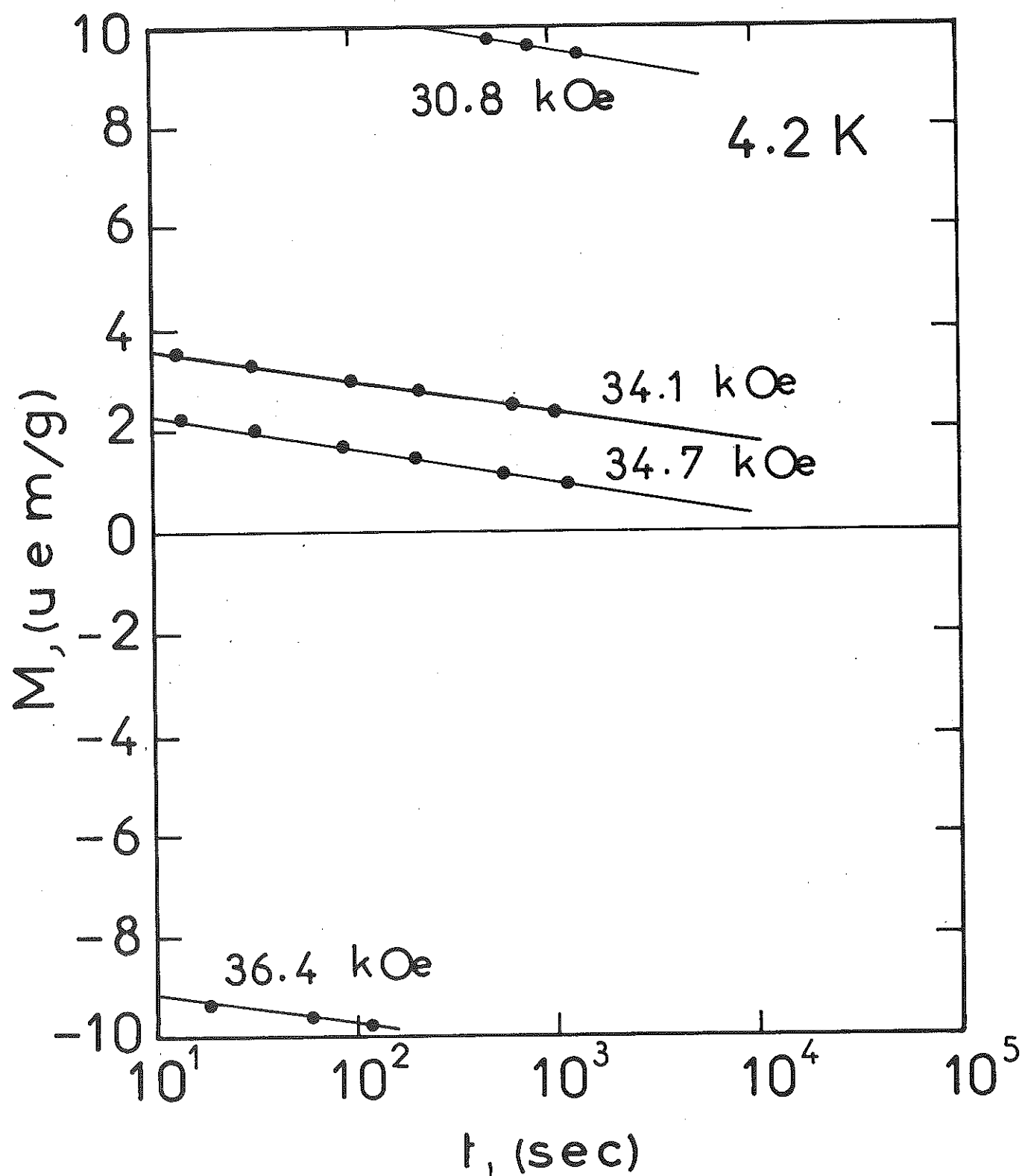


Figure 33 : Variation de l'aimantation en fonction de $\log t$ à 4,2 K.

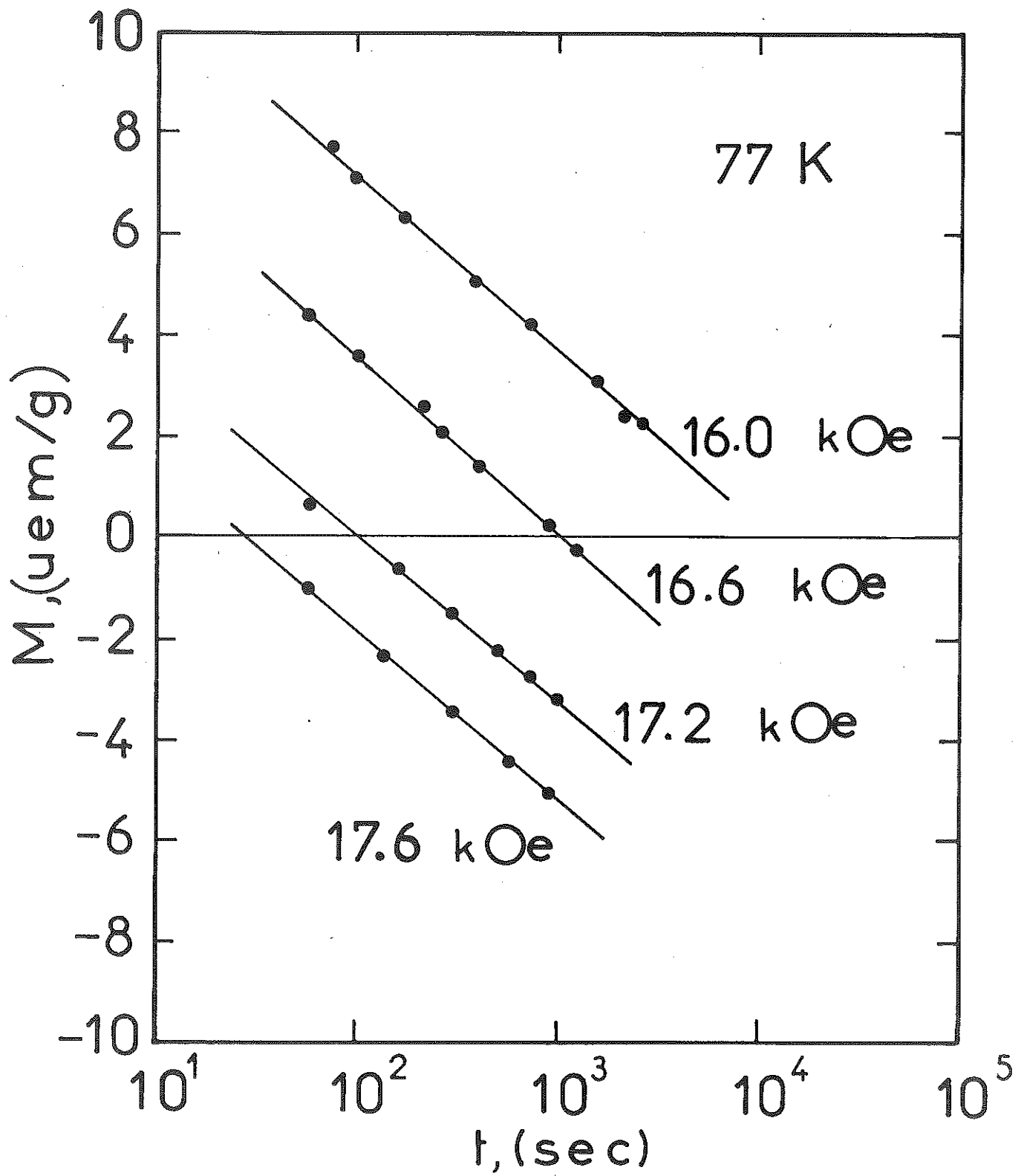


Figure 34 : Variation de l'aimantation en fonction de $\log t$ à 77 K.

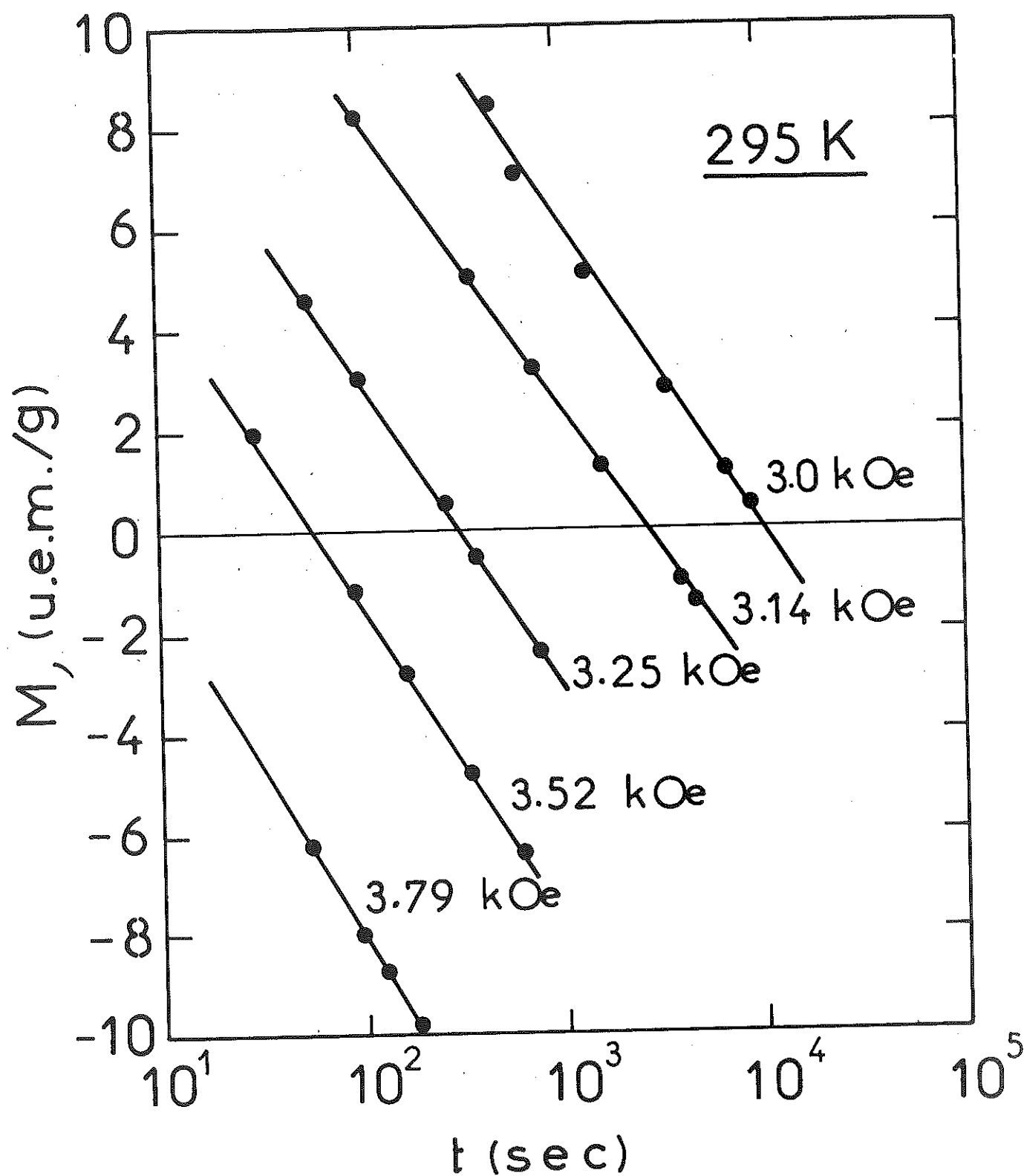


Figure 35 : Variation de l'aimantation en fonction de $\log t$ à 300 K.

relation 26 montre que, pour une température donnée, la fonction de distribution $f(E)$ des énergies d'activation est rigide-ment liée à celle des temps de relaxation, donc :

$$\frac{g(\tau)}{\tau} d\tau = f(E) dE \quad (27)$$

compte-tenu de (26) et (27), on obtient :

$$g(\tau) = kT f(\bar{E}) \quad (28)$$

D'après l'expression (25), la constante de traînage S a pour forme :

$$S = \frac{1}{M_s} \frac{dM(t)}{d \log t} = kT f(\bar{E}) \quad (29)$$

Pour une même température les rapports observés de S/kT dépendent peu du champ appliqué, c'est-à-dire de $\bar{E}$: les variations d'énergie d'activation induites, au voisinage de l'état désaimanté, par des variations de champ nécessairement faibles sont insuffisantes pour donner lieu à un déplacement appréciable sur la courbe $f(E)$. Cependant, grâce à des mesures allant de 4,2 à 300 K nous avons pu faire varier les énergies d'activation de 45 à 4500 K environ (relation 22).

3 - EXPRESSION EN FONCTION DU CHAMP DU TAUX D'ACCROISSEMENT DE L'AIMANTATION

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué antiparallèlement à l'aimantation rémanente d'un matériau anisotrope coercitif il y a tout d'abord nucléation de domaines magnétiques, notamment au niveau d'inhomogénéités structurales qui diminuent localement l'anisotropie.

Considérons le cas idéal d'un noyau de forme cylindrique de hauteur e et de rayon R . Les interactions de la paroi avec les inhomogénéités du matériau peuvent être traduites par la variation de l'énergie γ de la paroi en fonction de sa position R . L'énergie du système s'écrit $E/e = - 2\pi R^2 M H + 2\pi R \gamma$. La paroi est en équilibre pour :

$$R = \frac{\gamma}{M H - \frac{d\gamma}{dR}} \quad (30)$$

Deux cas extrêmes sont à envisager :

a - Paroi de faible courbure

M.H tend vers $\frac{d\gamma}{dR}$; la position d'équilibre et le champ de propagation d'une paroi plane sont uniquement fonction du gradient de l'énergie de paroi. Le volume balayé avant d'atteindre le champ de propagation, ou volume d'activation, dépend de la forme de la barrière de potentiel ; dans le cas où celle-ci s'exprime par $\gamma(R) = \alpha R^2 - \beta R^3$, Néel⁽⁴⁹⁾ a montré que le volume d'activation est proportionnel à $(H_p - H)^{3/2}$, où H_p représente le champ de propagation de la paroi ; avec des barrières de potentiel ayant des formes différentes, on obtient des expressions analogues où la valeur de l'exposant est toujours positive. A l'énergie d'activation $E = MHV$ correspond alors une loi de traînage du type :

$$\frac{1}{2M} \cdot \frac{dM}{dt} = \frac{1}{\tau_0} e^{\frac{-c(H_p - H)^{\beta}}{kT}} \quad (31)$$

où c est une constante. L'étude expérimentale du traînage ne permettant que la détermination du signe de l'exposant, la loi de traînage, pour des parois de faible courbure, a pour expression :

$$\frac{1}{2M} \cdot \frac{dM}{dt} = \frac{1}{\tau_0} e^{\frac{-c(H_p - H)}{kT}} \quad (32)$$

b - Paroi de forte courbure

Le rayon de courbure R est faible, $MH \gg \frac{d\gamma}{dR}$. Le rayon critique pour lequel le déplacement de la paroi devient irréversible est, en première approximation, $R = \gamma/MH$. Au volume d'activation $V = (\gamma/MH)^2$ il est associée une énergie d'activation $E = \pi\epsilon\gamma^2/MH$. La loi de traînage a pour expression :

$$\frac{1}{2M} \cdot \frac{dM}{dt} = \frac{1}{\tau_0} e^{-\frac{c}{HkT}} \quad (33)$$

Si la section du cylindre n'est plus circulaire l'exposant de H dans cette expression peut être différent de l'unité, mais il reste positif. Une loi de ce type a été observée pour les composés à parois étroites⁽⁵⁰⁾.

L'observation des domaines magnétiques à la température ambiante dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ (chapitre III) suggère l'existence d'un grand nombre d'éléments de parois à forte courbure : d'autre part elle montre le rôle très important que joue la nucléation. Dans ces conditions et compte-tenu de ce qui précède la loi de traînage dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ doit être du type :

$$\frac{1}{2M} \frac{dM}{dt} = \frac{1}{\tau_0} e^{-\frac{\pi e \gamma^2}{kT} \left(\frac{1}{MH} \right)} \quad (34)$$

4 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Pour chaque température, l'aimantation varie linéairement avec le logarithme du temps. A titre d'exemple, nous avons porté sur les figures 33, 34 et 35 les courbes $M = f(\log t)$ obtenues à 4,2, 77 et 300 K. Les pentes de ces courbes varient fortement avec la température, mais dépendent peu du champ appliqué. Elles permettent de déterminer la valeur du taux relatif d'accroissement de l'aimantation par unité de temps $\frac{1}{2M} \frac{dM}{dt}$ que l'on assimile à une fréquence n correspondant au temps de relaxation moyen $\bar{\tau} \left(\frac{1}{2M} \frac{dM}{dt} = n = \frac{1}{\bar{\tau}} \right)$. Au voisinage de l'état de référence considéré ($M = 0$), le champ démagnétisant est négligeable devant le champ coercitif. Nous avons porté sur les figures 36 et 37, pour chaque température, la variation de $\log n$ en fonction du champ H ou de son inverse $1/H$. Dans les deux cas, les portions de courbes obtenues sont des droites : cependant leur extrapolation linéaire en champs élevés donne lieu, soit à un réseau disparate de droites (figure 36), soit au contraire à un réseau de droites concourantes en un point dont l'abscisse correspond à un champ $H_0 = 41,7 \text{ kOe}$ et l'ordonnée à une fréquence $n_0 = 10^{11} \text{ sec}^{-1}$. Cette dernière valeur étant du même ordre de grandeur que la fréquence de relaxation de l'aimantation dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$, la variation de $\log n$ inversement proportionnelle au champ magnétique est plus cohérente.

Nous avons porté sur la figure 38 la variation de $\frac{d \ln(n_0/n)}{d(1/H)}$ en fonction de l'inverse de la température $1/T$. La linéarité obtenue entre 50 K et 300 K justifie une loi d'activation thermique dans cette gamme de températures. La figure 39 représente la variation thermique de l'énergie d'activation :

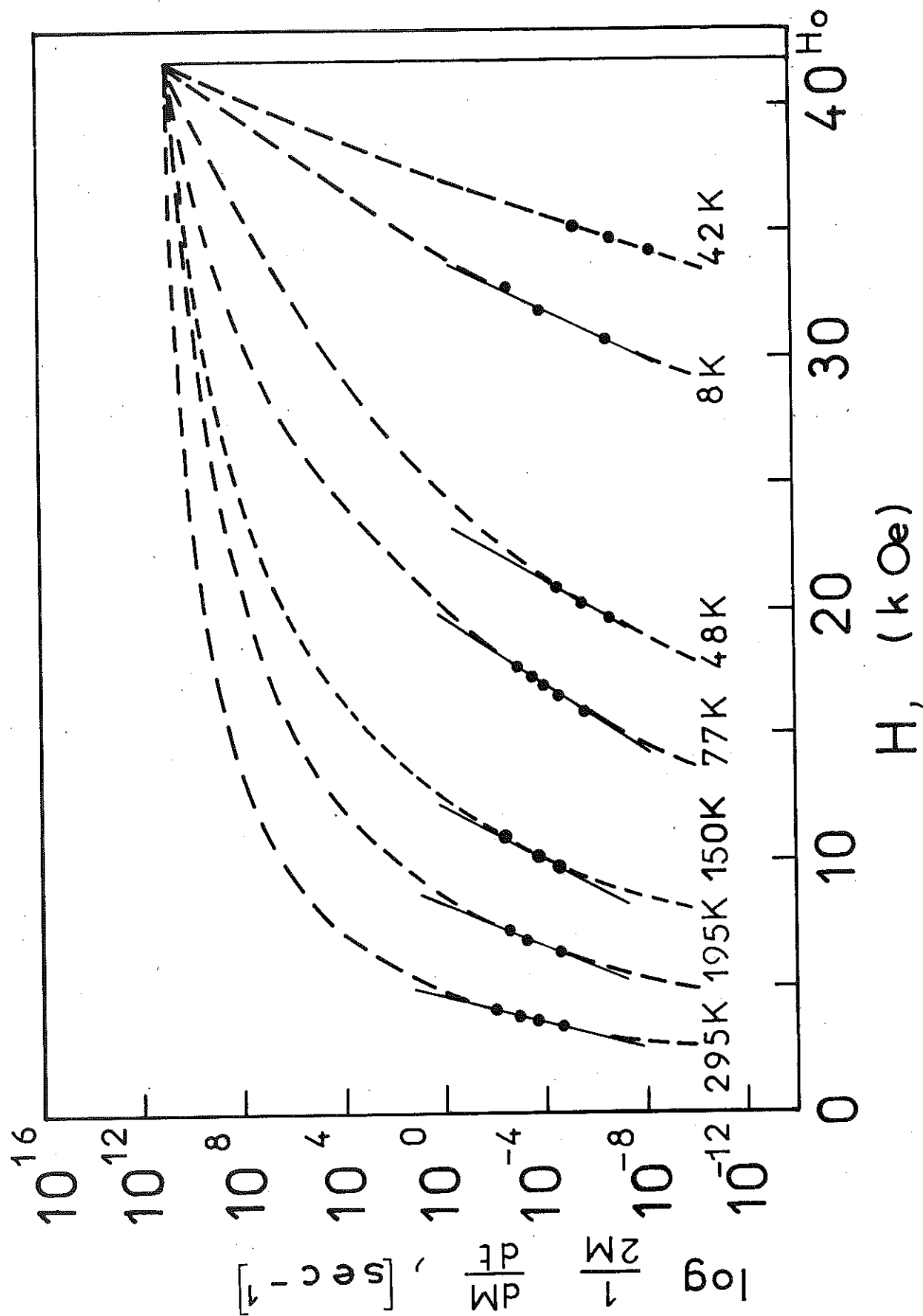


Figure 36 : Taux relatif d'accroissement de l'aimantation en fonction de H (les courbes en pointillés figurent une dépendance en $1/H$).

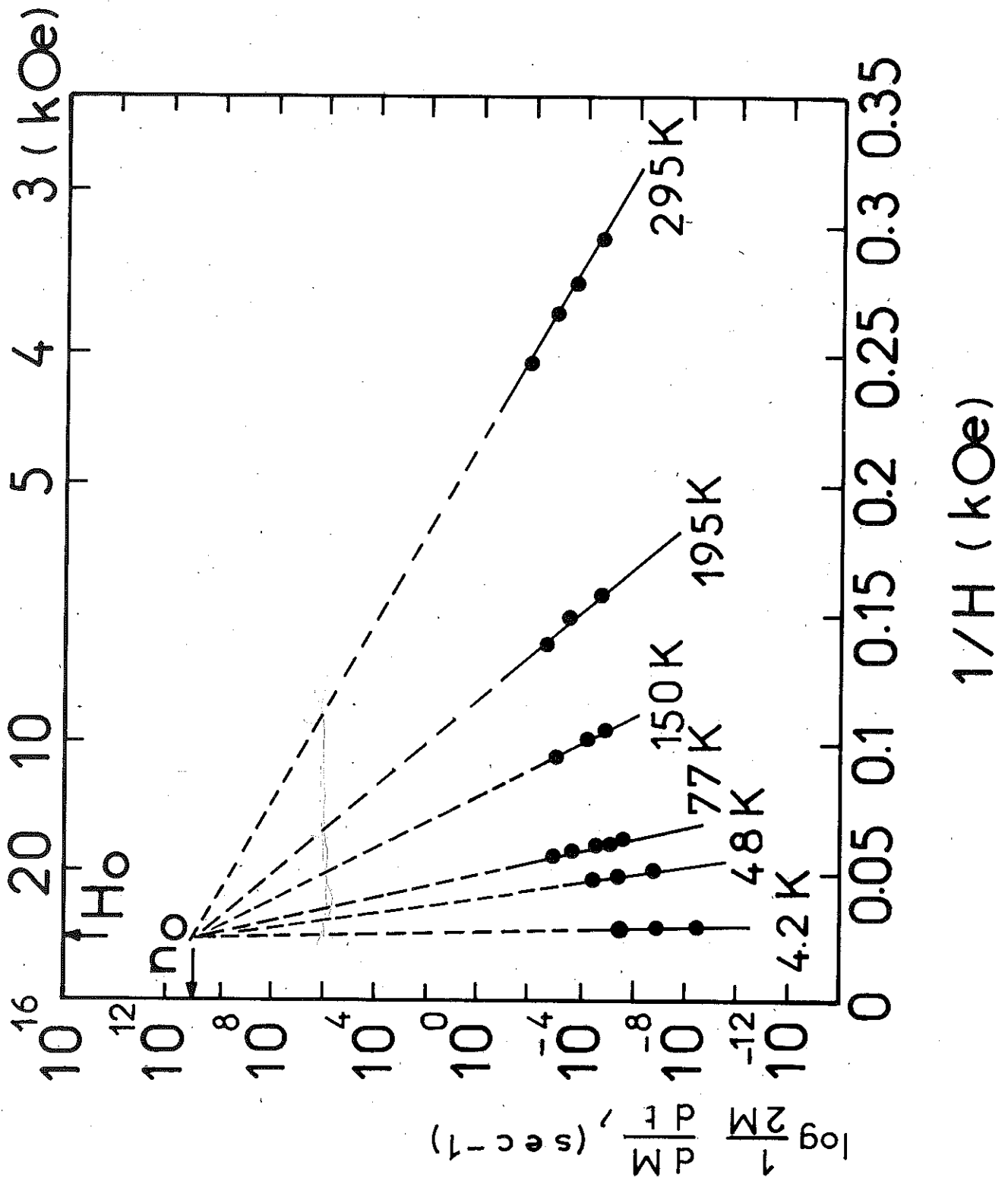


Figure 37 : Taux relatif d'accroissement de l'aimantation en fonction de $1/H$.

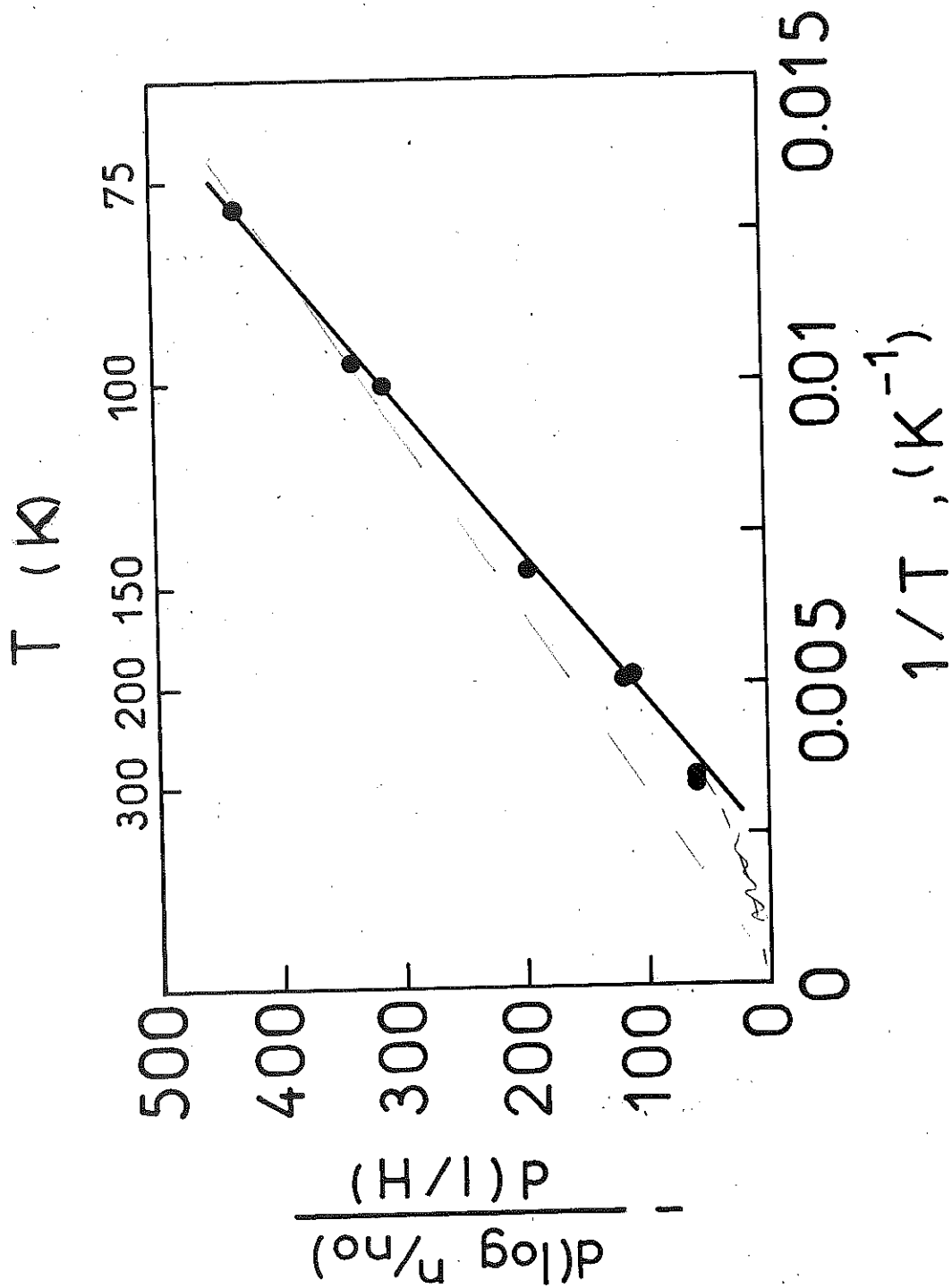


Figure 38 : Variation de $\frac{d \log(n_0/n)}{d(1/H)}$ en fonction de $1/T$.

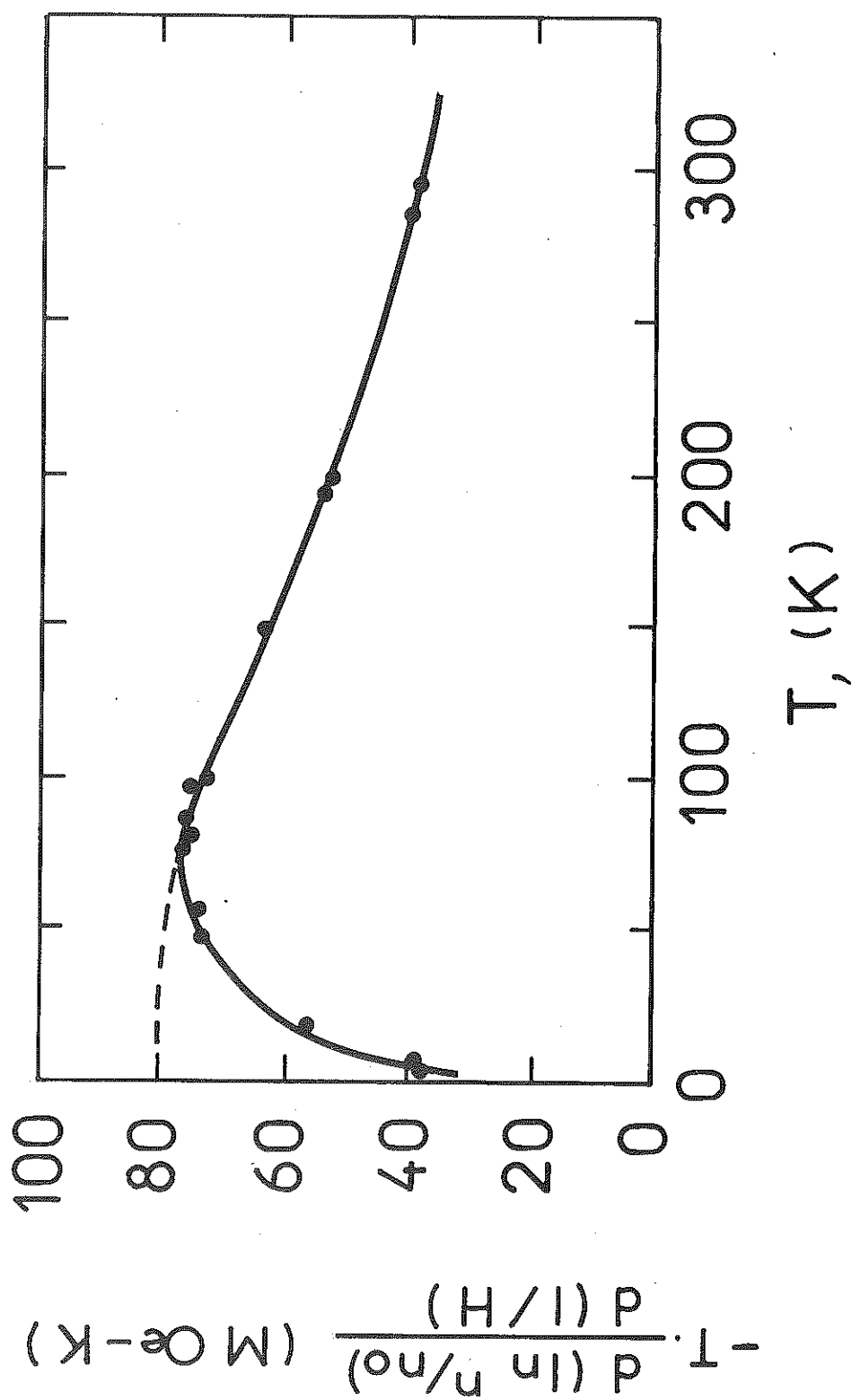


Figure 39 : Variation de $T \cdot \frac{d(\ln n_0/n)}{d(l/H)}$ en fonction de T.

$$E = T \frac{d(\log n_o/n)}{d(1/H)} \quad (35)$$

Lorsque la température augmente, cette grandeur croît rapidement, passe par un maximum vers 50 K, puis diminue lentement aux températures plus élevées. Cette décroissance pouvant résulter de la variation thermique de l'énergie d'anisotropie et de l'aimantation spontanée, nous avons porté sur la figure 40 la variation de l'énergie d'activation thermique E en fonction du produit $K_e N M_s$ de l'énergie d'anisotropie effective K_e par le champ moléculaire $N M_s$. La linéarité obtenue dans la gamme de températures comprises entre 50 et 300 K conduit à la loi empirique :

$$\frac{1}{2M} \frac{dM}{dt} = n = n_o \exp - \frac{0,25 K_e N M_s}{kT} \left(\frac{1}{H} - \frac{1}{H_o} \right) \quad (36)$$

L'énergie d'activation s'écrit :

$$E = 0,25 K_e N M_s \left(\frac{1}{H} - \frac{1}{H_o} \right) \quad (37)$$

Nous avons porté à titre d'exemple sur les figures 41 et 42 les variations de l'énergie d'activation E en fonction du champ appliqué et de son inverse. En comparant l'expression (37) à celle (34) obtenue au paragraphe précédent, on constate que le produit $0,25 K_e N M_s^2$ représente le carré de l'énergie moyenne de paroi dans le matériau ; c'est-à-dire une valeur moyenne de l'énergie d'interaction des parois avec les défauts au niveau d'un volume d'activation V.

L'énergie d'anisotropie étant exprimée en degrés Kelvin par maille, le coefficient phénoménologique 0,25 intervenant dans l'énergie d'activation a la dimension d'un volume, le volume d'activation V. L'énergie d'activation s'écrit alors :

$$E = \alpha K_e N M_s \cdot V \cdot \left(\frac{1}{H} - \frac{1}{H_o} \right) \quad (38)$$

avec $\alpha \cdot V = 0,25$ maille. Le coefficient α permet de chiffrer en moyenne la modification des énergies d'échange et d'anisotropie au niveau des défauts actifs pour les temps de mesure considérés. Dans des conditions de mesure données, on peut déterminer seulement le produit $K_e \cdot \alpha N M_s^2 V$: à chaque valeur du champ moléculaire perturbé $\alpha N M_s$, on peut associer une valeur du volume d'activation V (figure 43). Si le matériau était parfaitement homogène α serait égal à l'unité.

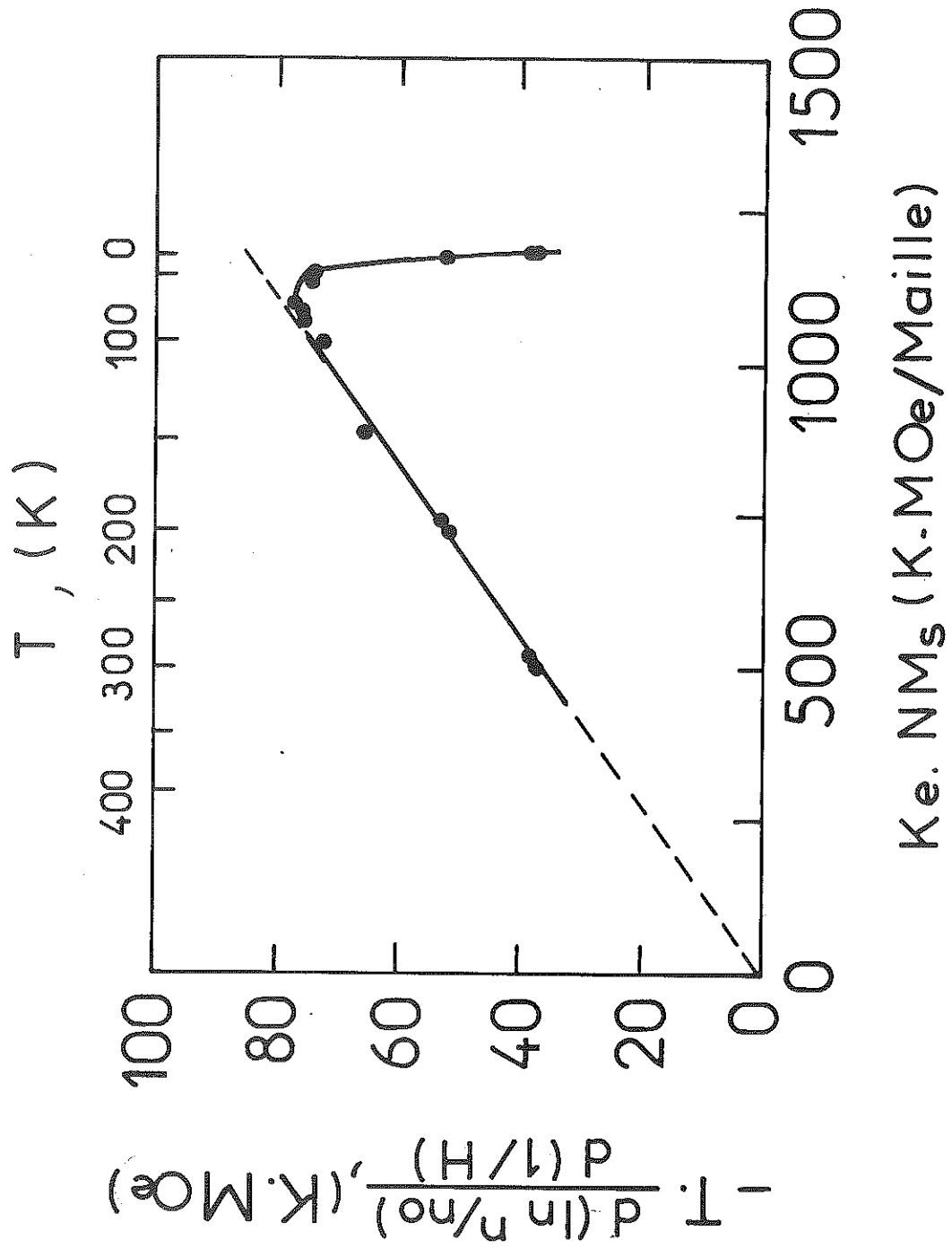


Figure 40 : Variation de $T \frac{d \ln(n_o/n)}{d(1/H)}$ en fonction de $Ke N M_s$.

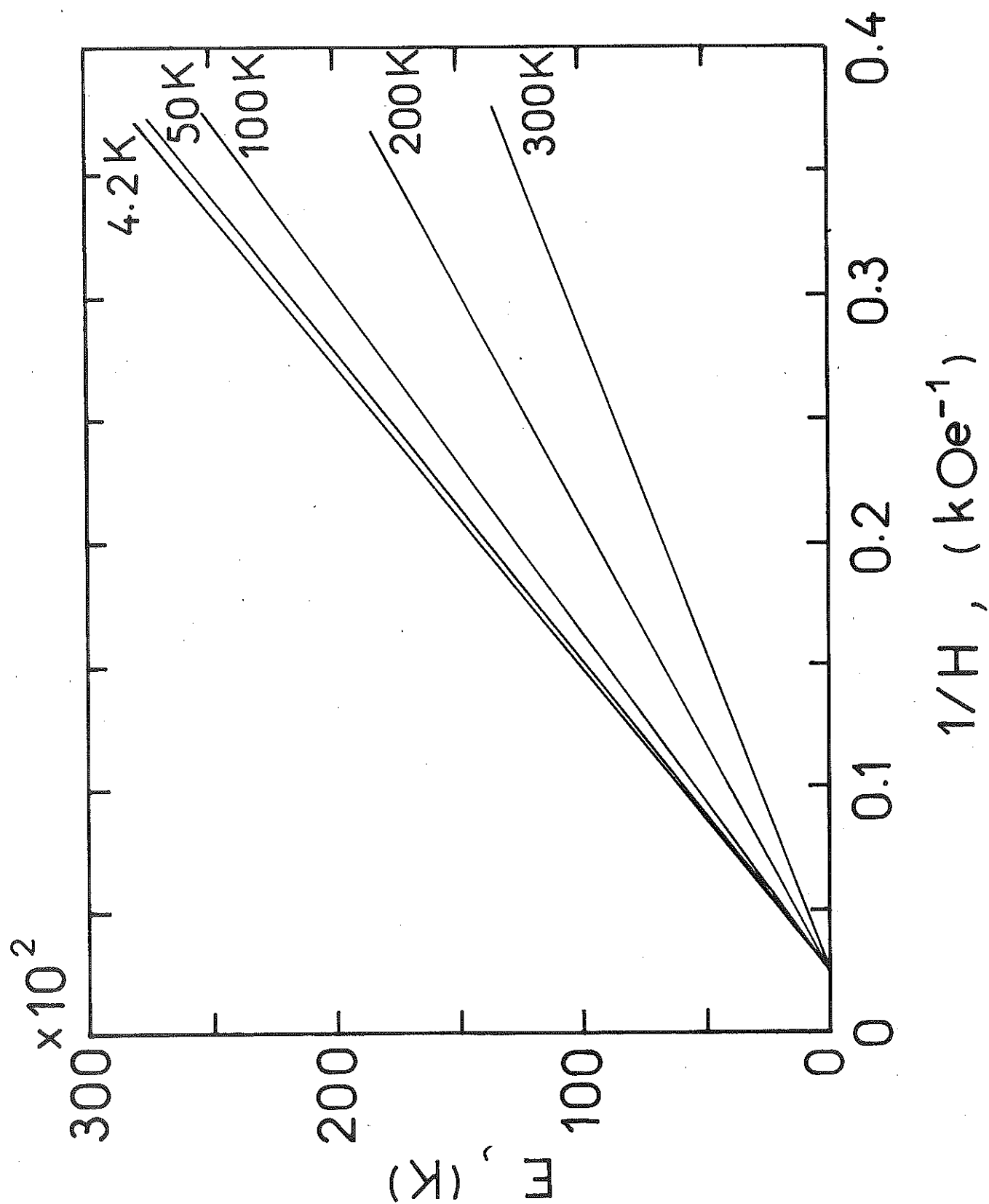


Figure 41 : Energie d'activation en fonction de $1/H$ pour différentes températures.

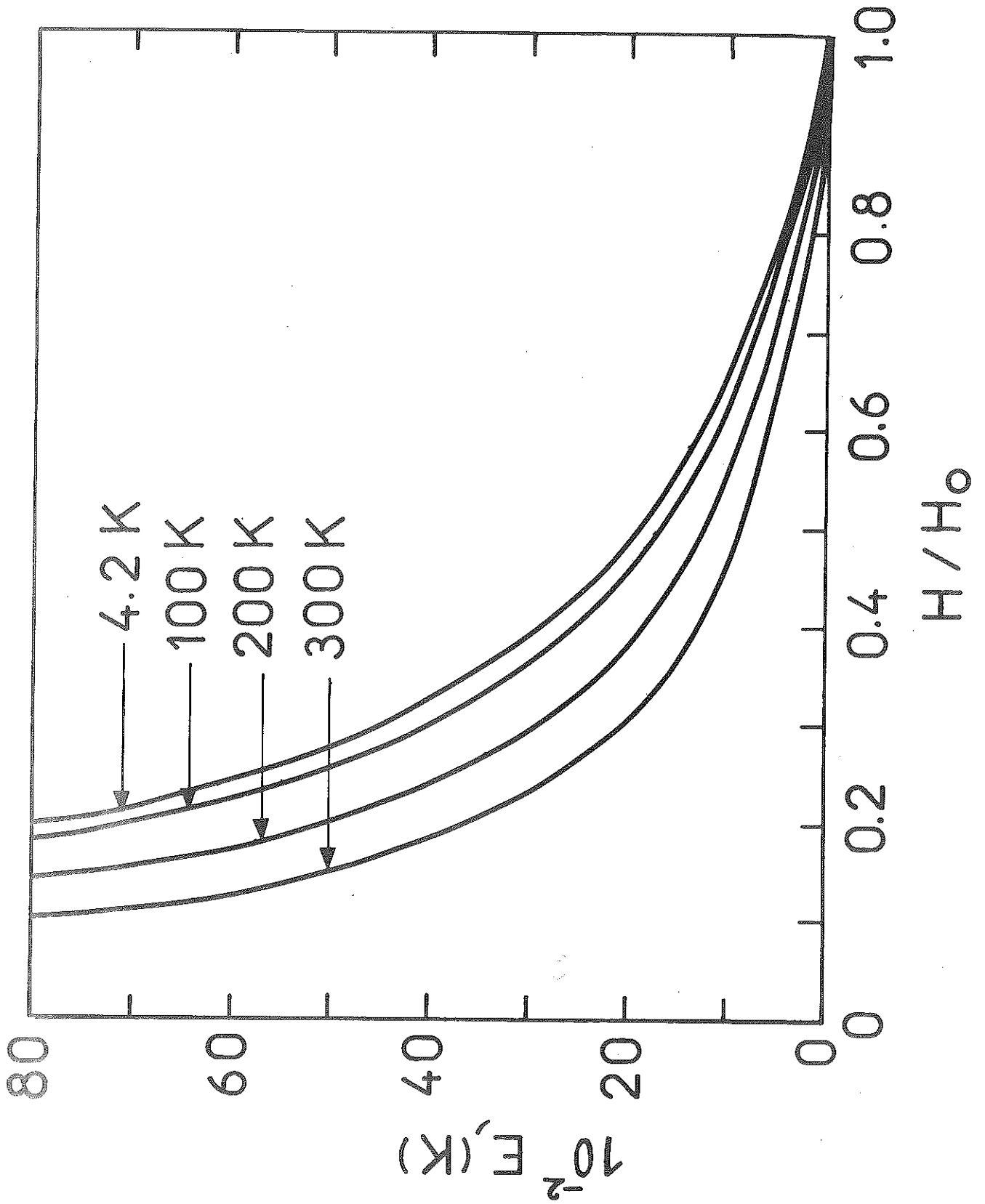


Figure 42 : Energie d'activation en fonction de H pour différentes températures.

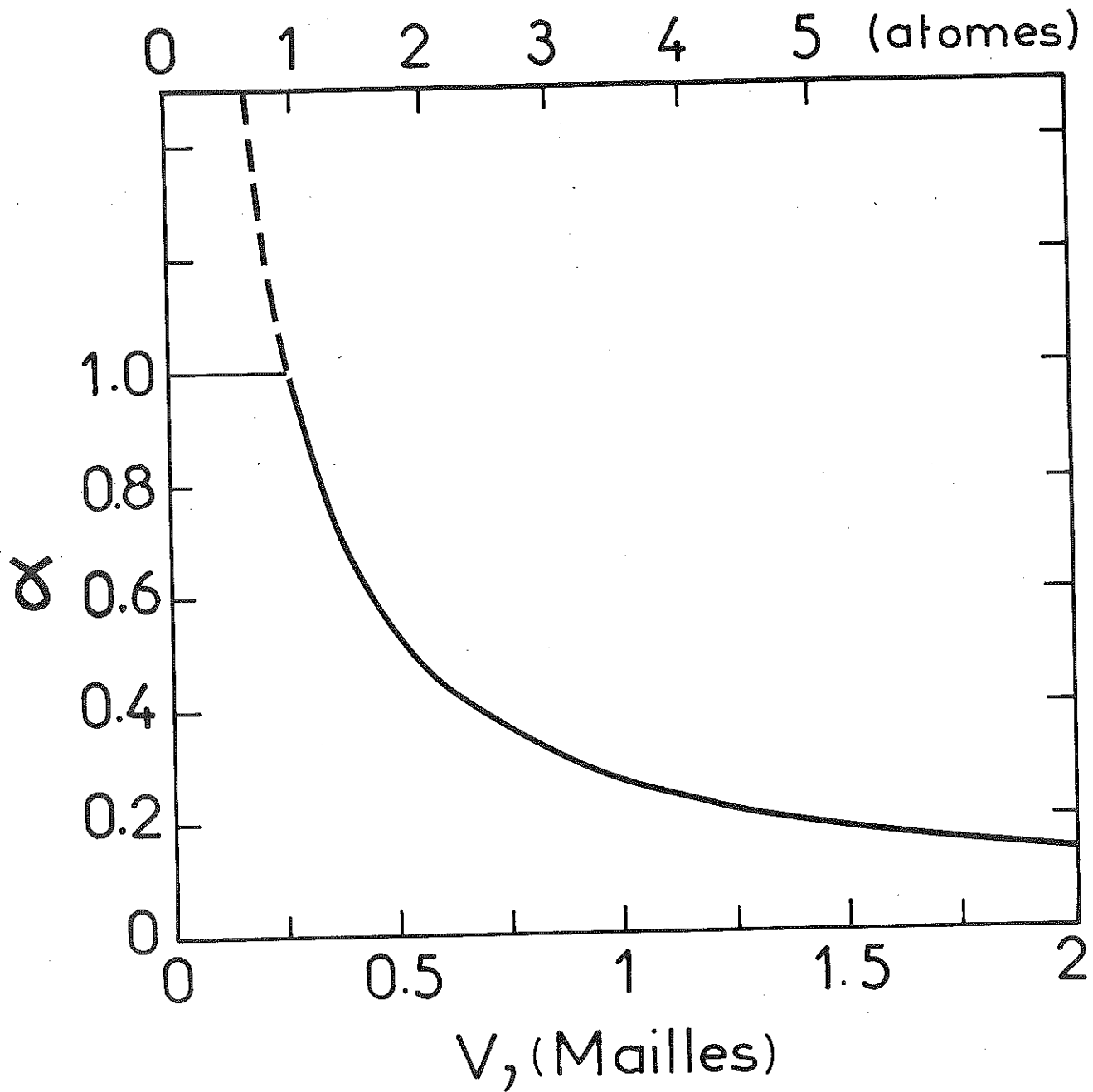


Figure 43 : Corrélation entre les deux paramètres α et V .

5 - ORIGINE DU TRAINAGE OBSERVE AUX BASSES TEMPERATURES

Au-dessous de 50 K, si l'on utilise une loi d'activation thermique, le volume d'activation déduit des résultats expérimentaux semble décroître rapidement avec la température (figure 44) ; cette variation n'est qu'apparente car le traînage thermique devenant faible aux basses températures, la contribution au retournement de l'aimantation, due à des effets quantiques, devient prépondérante. En supposant que le volume d'activation d'origine thermique soit indépendant de la température, on peut évaluer pour chaque température la contribution des effets quantiques. Un comportement analogue est observé dans le déplacement des parois ferroélectriques ou le mouvement des dislocations⁽⁵¹⁻⁵³⁾. Par analogie avec la propagation des dislocations, Egami^(54,55) a attribué le franchissement, à basse température, de la barrière de potentiel qui s'oppose au déplacement des parois dans les matériaux très anisotropes à un effet Tunnel quantique. En raison de la valeur élevée du champ moléculaire dans le composé de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ le nombre de moments magnétiques concernés dans chaque passage est plus important. L'anomalie à basse température observée dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ peut résulter des fluctuations quantiques des moments magnétiques et de la barrière de potentiel au zéro absolu. En effet, ces dernières conduisent à une diminution constante E_0 de la hauteur de la barrière de potentiel qui devient égale à $E - E_0$. L'énergie d'activation thermique précédemment définie E étant une fonction du champ et de la température, il correspond à chaque température un champ tel que la barrière de potentiel effective $E - E_0$ s'annule ; ce champ est le champ coercitif pour la température considérée. Les variations thermiques du champ coercitif aux basses températures, associées à chaque valeur de E_0 , sont déterminées graphiquement (figure 45). Pour une valeur de $E_0 = 300$ K, on retrouve la variation thermique du champ coercitif mesurée entre 4,2 et 50 K (encart de la figure 46). A cette énergie de vibration correspond une fréquence moyenne de 10^{13} Hz. La correction apportée par E_0 devient petite au-dessous de 100 K, comme l'indique la variation thermique de $(E - E_0)/E$ (figure 47).

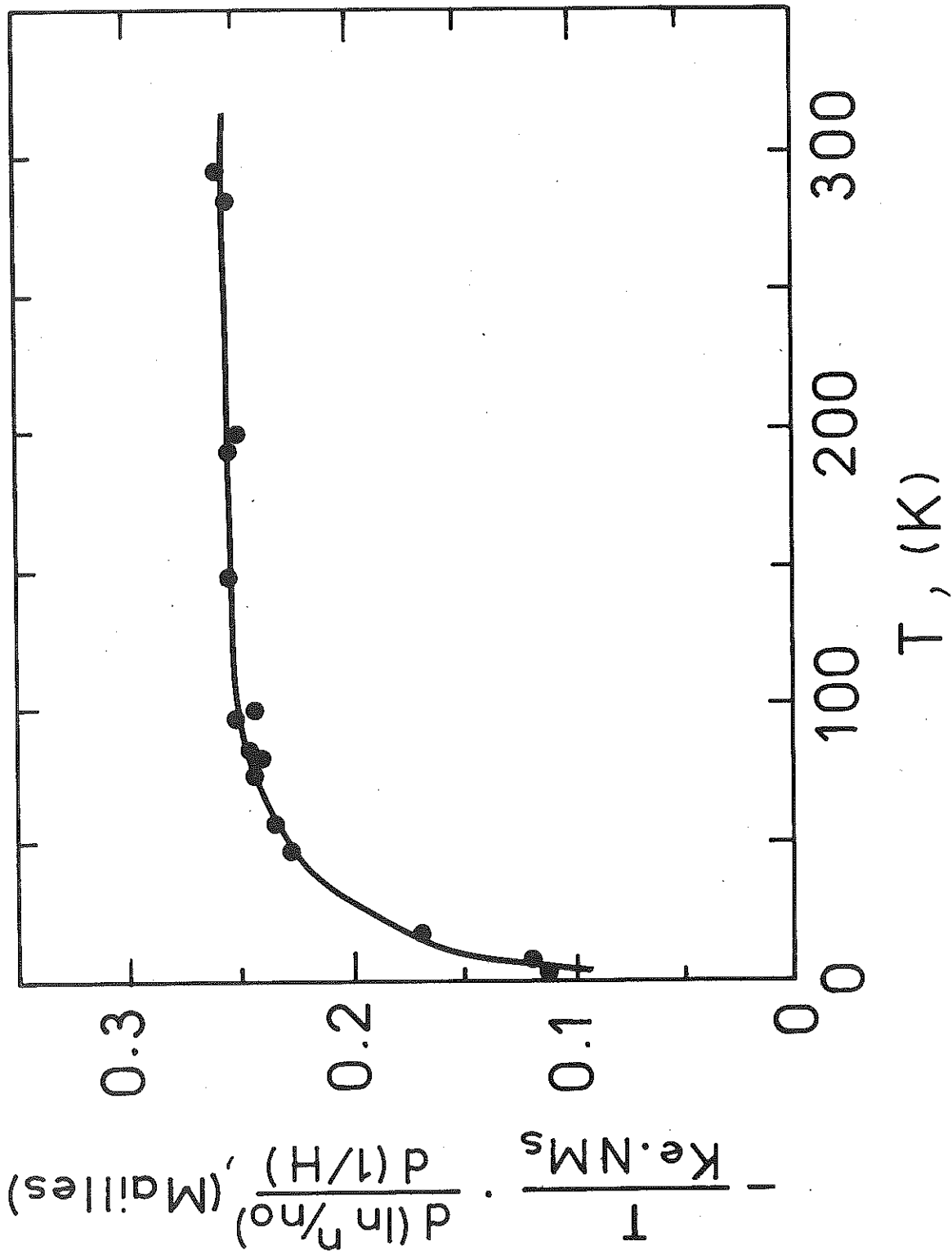


Figure 44 : Volume d'activation apparent en fonction de la température.

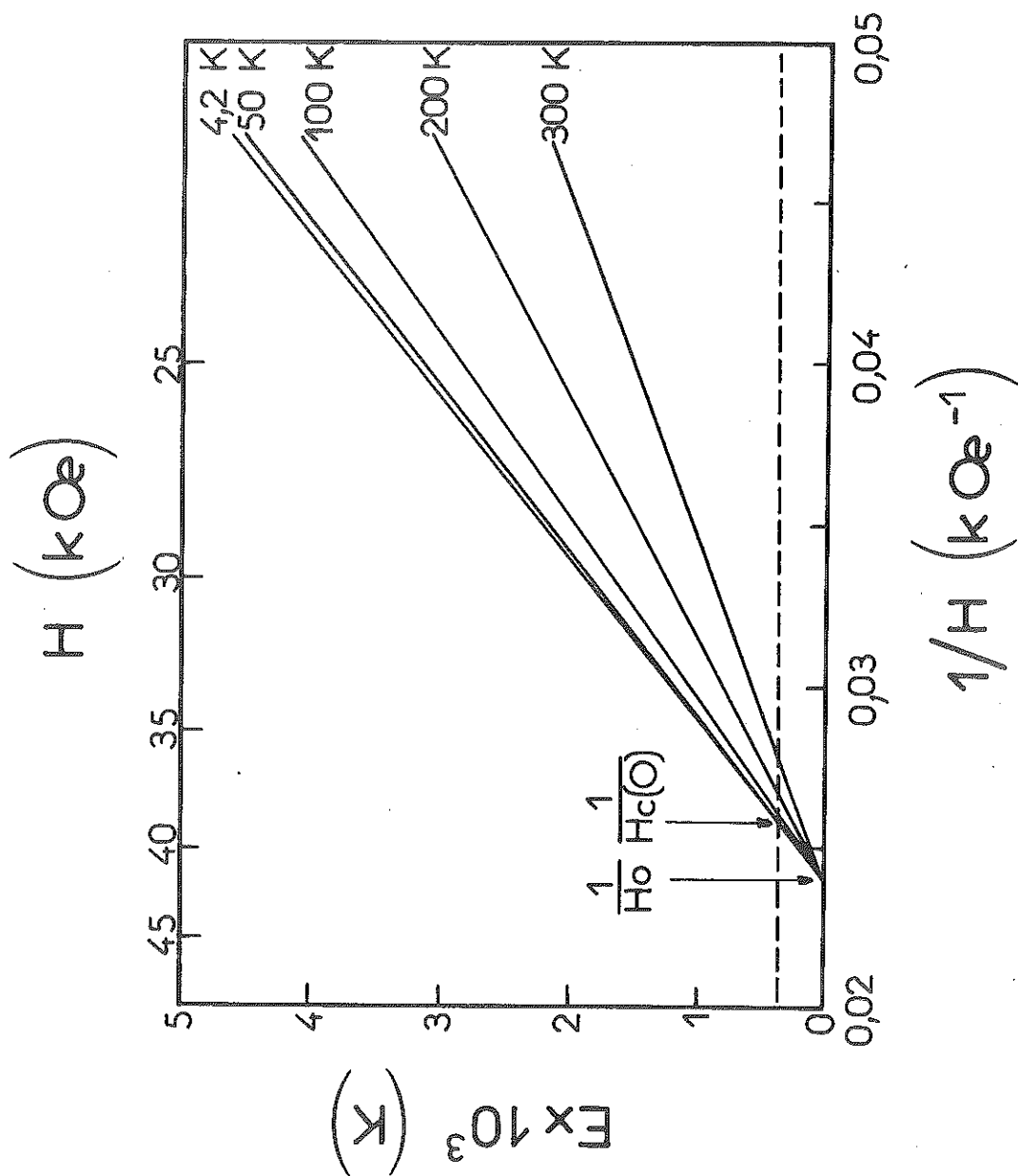


Figure 45 : Comparaison des énergies d'activation d'origine thermique (E) et quantique (E_0). Les points d'intersection donnent la valeur du champ coercitif pour chaque température.

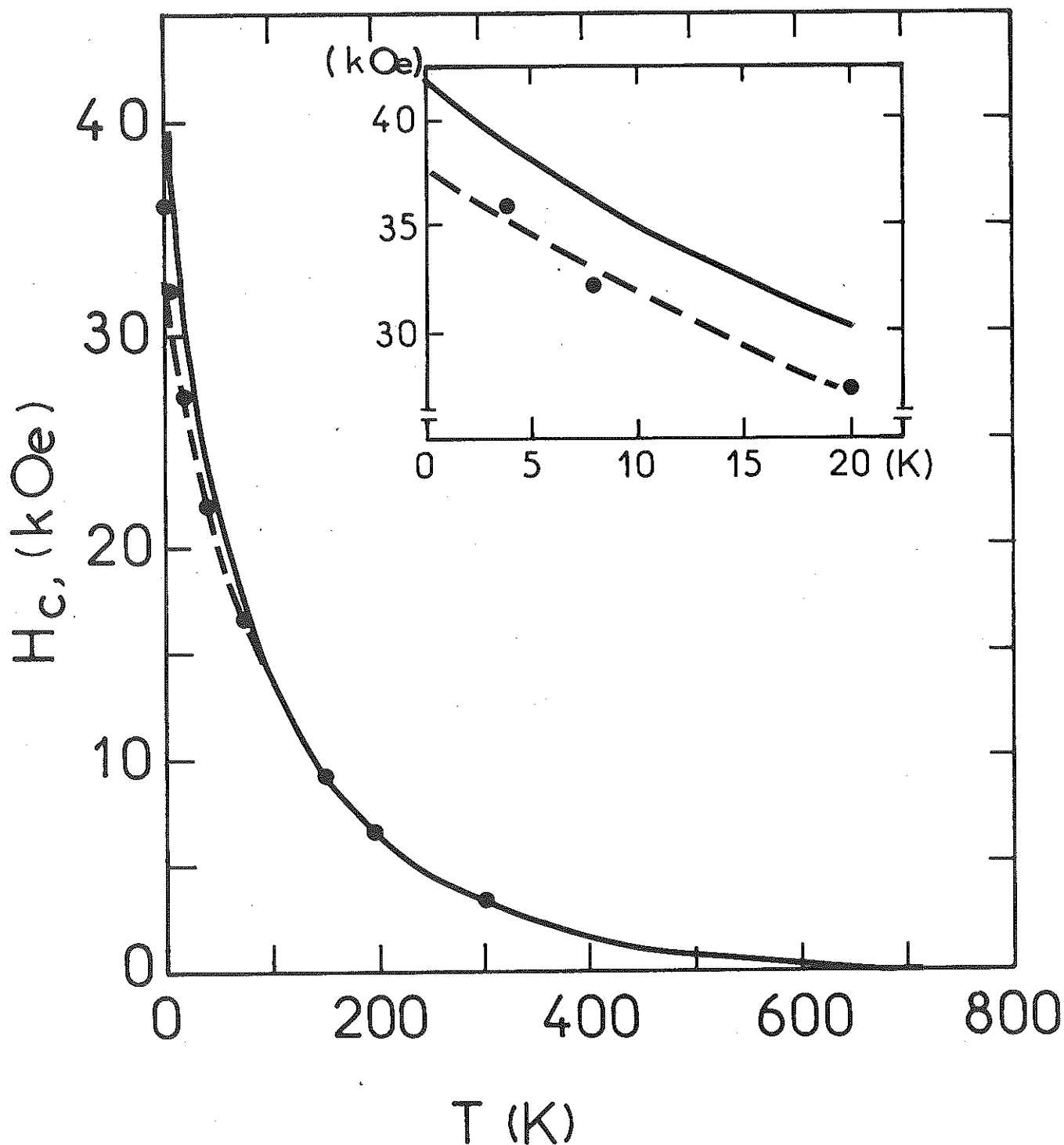


Figure 46 : Variation thermique du champ coercitif de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ monocristallin, déduit de l'expérience ($\bullet$); de la loi d'activation thermique en $1/H$ sans (—) et avec (---) la correction due aux fluctuations quantiques.

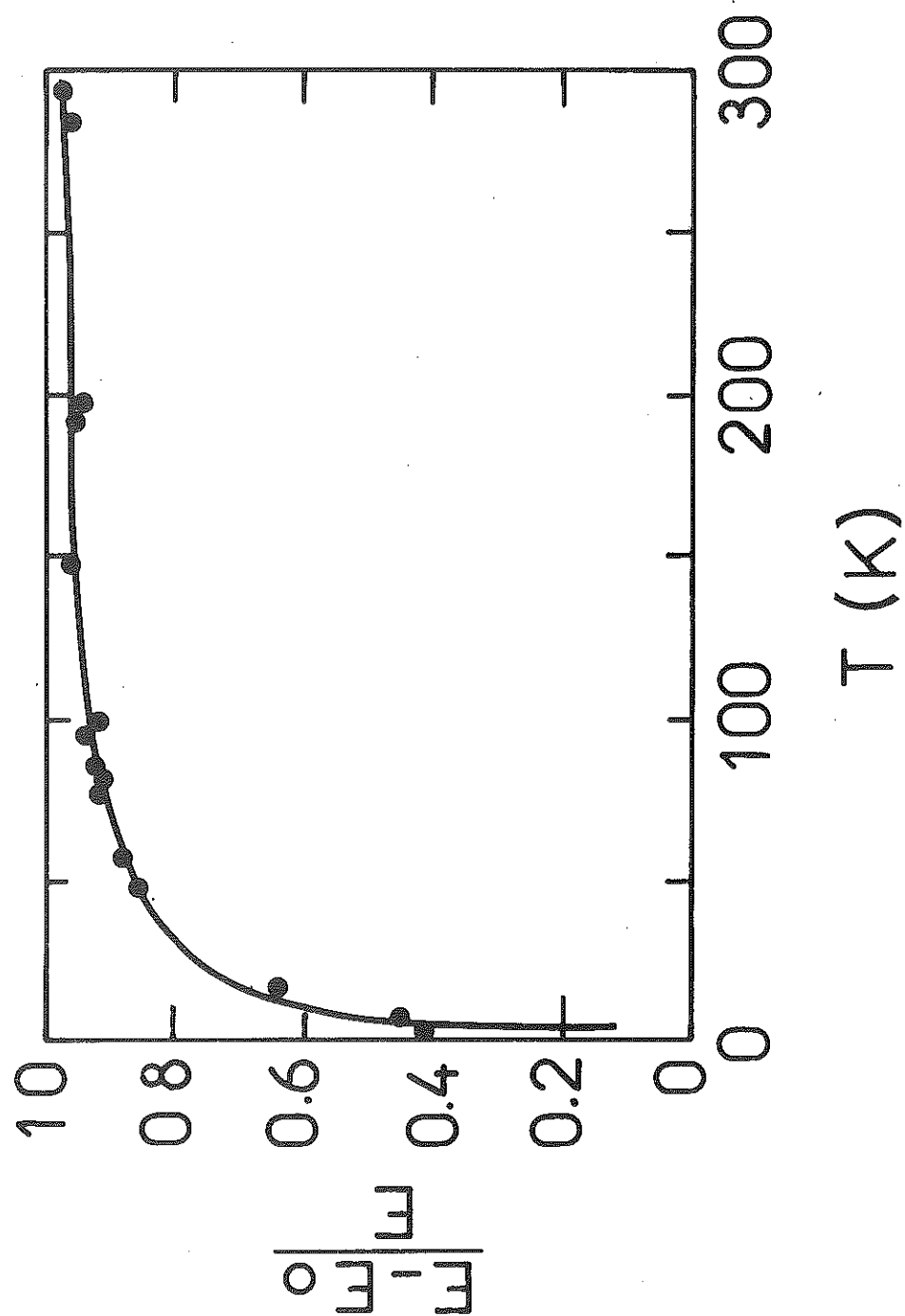


Figure 47 : Variation de $(E - E_0)/E$ en fonction de la température.

6 - VARIATION THERMIQUE DU CHAMP COERCITIF

L'état d'aimantation $M = 0$ est atteint par application d'un champ antiparallèle à l'aimantation. L'existence de ce champ, coercitif, traduit le caractère métastable de l'aimantation qui est à l'origine des effets de traînage ; la valeur du champ coercitif croît avec la vitesse d'application du champ magnétique qui sert à le mesurer.

Dans le paragraphe (4), nous avons pu représenter le traînage observé dans le monocristal $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ par une loi empirique en $1/H$. Les mesures ayant toujours été effectuées au voisinage du champ coercitif, cette loi peut s'écrire :

$$\frac{1}{H_c} = \frac{1}{H_o} + \frac{\ln(n_o/n)}{\alpha V K_e N M_s} \times kT \quad (39)$$

A partir du réseau de droites représentant la variation du traînage en fonction de l'inverse du champ appliqué (figure 37), nous avons déduit une variation thermique du champ coercitif correspondant à celle observée en prenant $\frac{n_o}{n} = 10^{16}$. Les deux variations sont représentées sur la figure 46. En encart, nous avons reporté la variation aux basses températures ; l'accord est moins satisfaisant car l'essentiel du traînage observé n'est plus seulement dû à des phénomènes d'activation thermique.

Les matériaux à base de SmCo_5 ont fait l'objet de très nombreuses études en raison de leurs applications comme aimants permanents. Les variations thermiques du champ coercitif ont été généralement interprétées en termes de variations thermiques des énergies d'échange et d'anisotropie⁽¹²⁻¹⁴⁾ seulement. La loi empirique précédemment définie décrit très bien la variation thermique des champs coercitifs des composés de type TCo_5 . A titre d'exemple nous avons comparé les résultats expérimentaux à ceux déduits de cette loi pour les composés suivants : SmCo_5 monocristallin⁽⁵⁶⁾, SmCo_5 fritté⁽⁹⁾, $\text{CeCo}_{3,5}\text{Fe}_{0,5}\text{Cu}$ ⁽⁵⁷⁾ (figures 48, 49 et 50). L'accord est obtenu par ajustement d'un seul paramètre indépendant de la température :

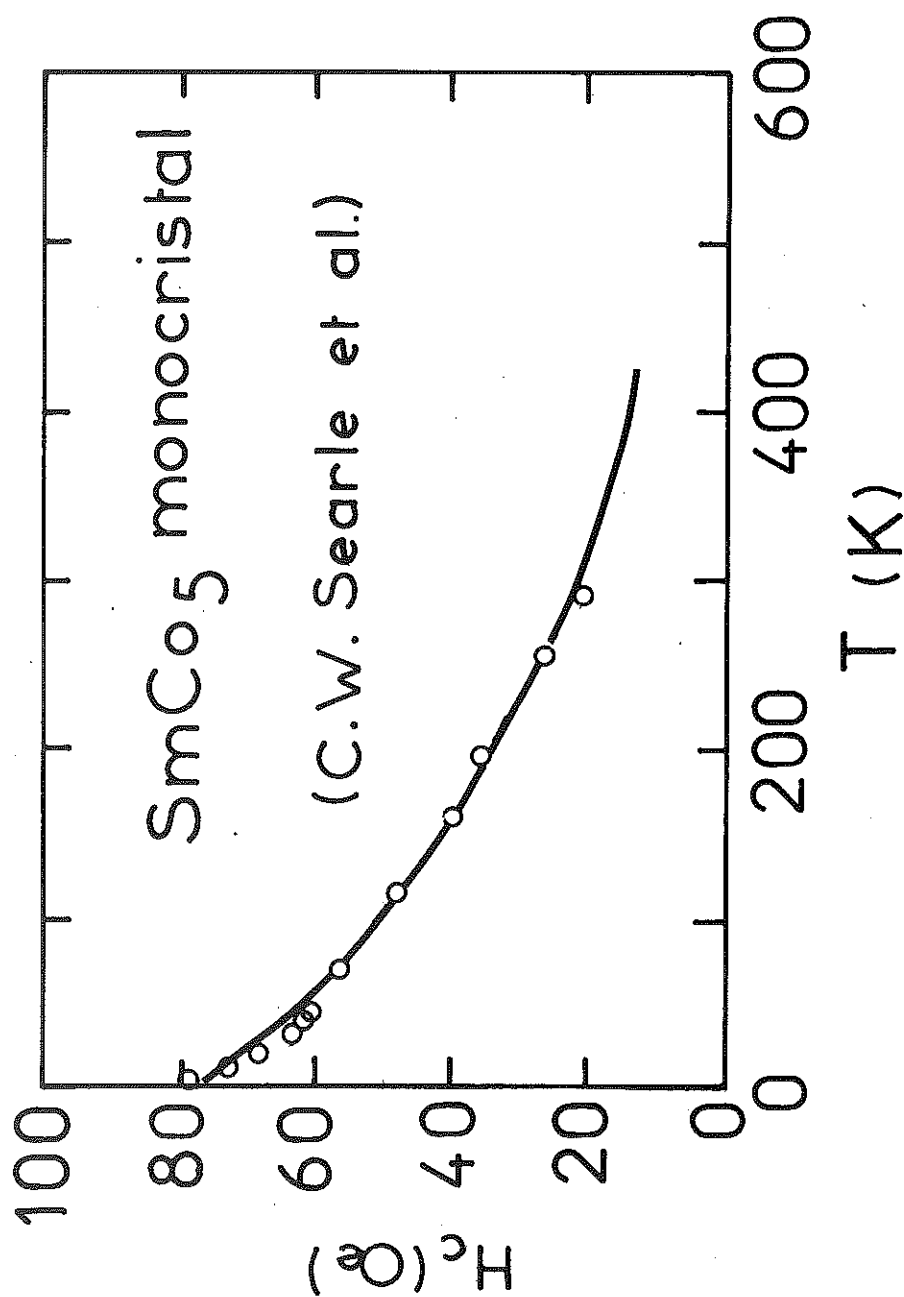


Figure 48 : Variation thermique du champ coercitif de SmCo₅ monocristallin mesuré par Searle et al⁽⁵⁵⁾ (○), ou déduit de la loi d'activation thermique (—).

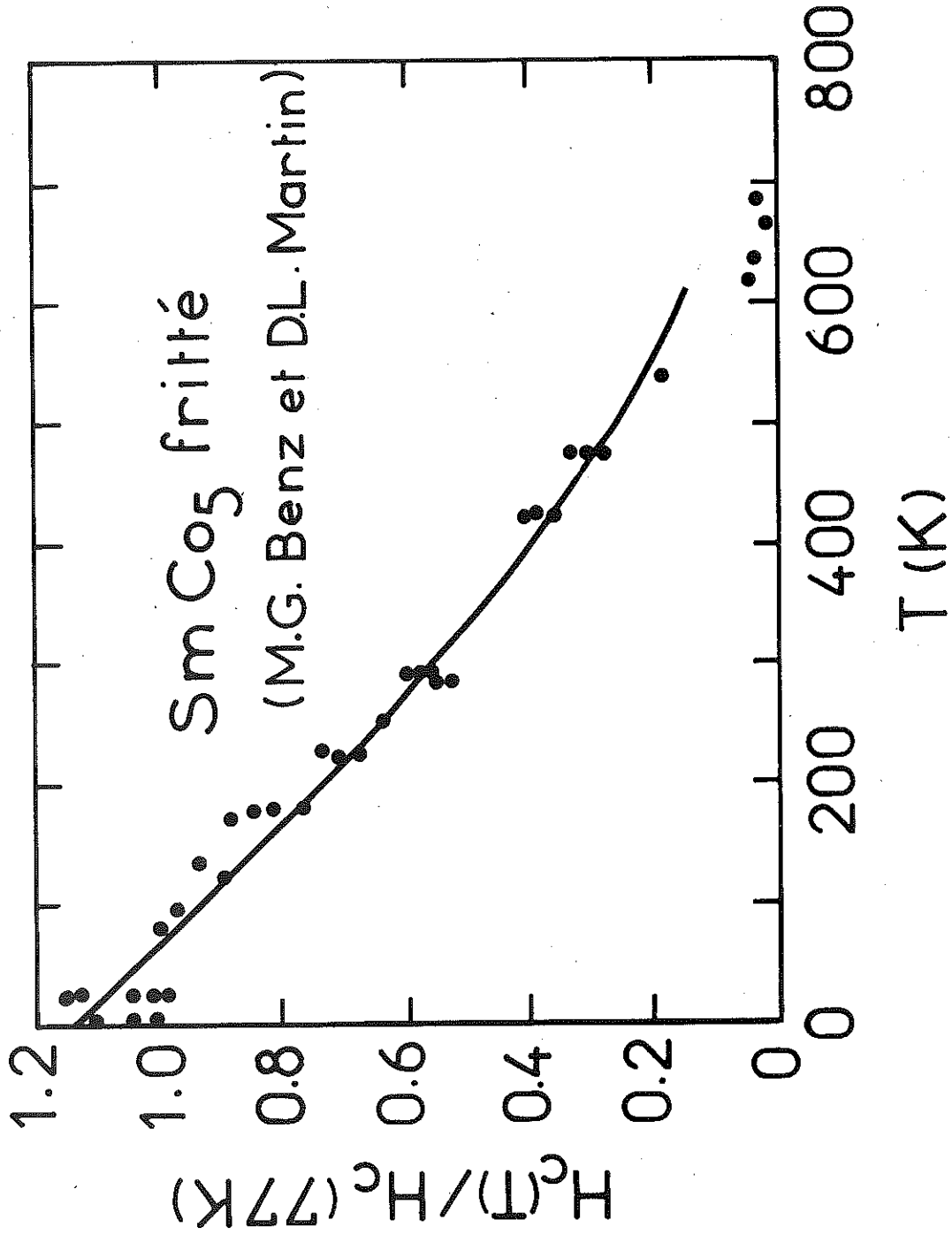


Figure 49 : Variation thermique du champ coercitif de SmCo₅ fritté mesuré par Benz et Martín⁽⁹⁾ (●), ou déduit de la loi d'activation thermique (—).

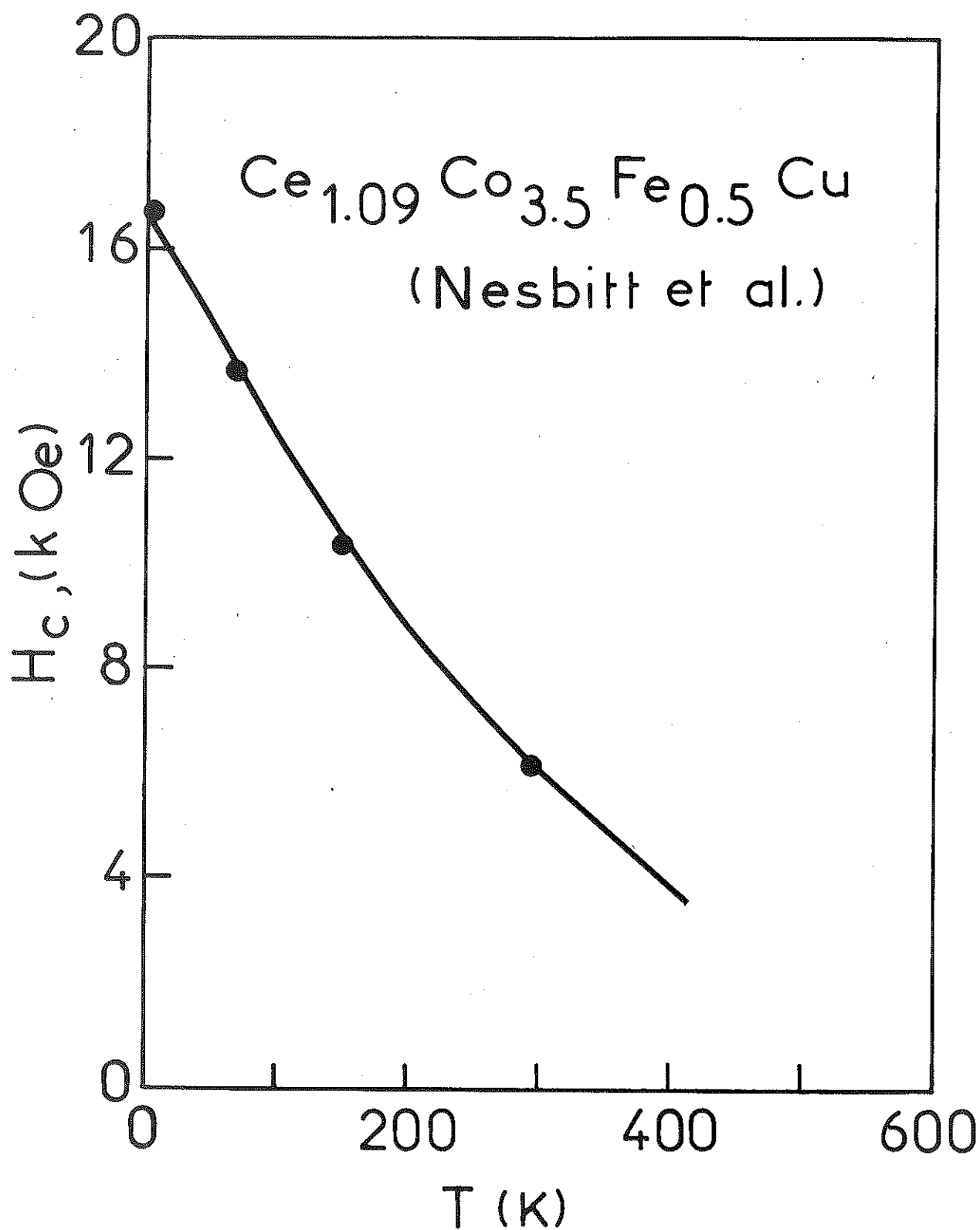


Figure 50 : Variation thermique du champ coercitif de $\text{Ce}_{1.09}\text{Co}_{3.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Cu}$ monocristallin mesuré par Nesbitt et al.⁽⁵⁶⁾ (●), ou déduit de la loi d'activation thermique (—).

$$\frac{1}{\alpha V} \times \ln \frac{n_o}{n} \quad (40)$$

Le terme logarithmique ne dépend que de la vitesse de mesure ; il est, pour des mesures quasi-statiques, de l'ordre de 37. La valeur du coefficient αV caractérise l'interaction des parois avec les défauts du matériau considéré.

CONCLUSION

L'étude des propriétés magnétiques de monocristaux de SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ nous a montré que le moment du cobalt décroît avec le pourcentage de cuivre substitué, en raison du transfert des électrons $5d^1$ et $6s^2$ de la terre rare dans la bande $3d$ non remplie du cobalt. Les variations thermiques de l'aimantation du sous-réseau de samarium obtenues, comparées à une loi de Brillouin, montrent que le champ d'échange qui s'exerce sur les atomes de samarium est de 3000 kOe et 2350 kOe respectivement pour SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$.

L'énergie d'anisotropie effective que nous avons obtenue par les mesures d'aimantation selon les principales directions cristallographiques dépend non seulement des anisotropies locales de chaque sous-réseau mais aussi des interactions magnétiques entre sous-réseaux. La variation thermique de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium permet d'affirmer que les propriétés exceptionnelles du composé SmCo_5 résultent des effets du champ cristallin sur l'ion Sm^{3+} . En effet, les variations calculées à l'aide d'un hamiltonien de champ cristallin sont en accord avec celles mesurées. La diminution de l'anisotropie du samarium dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ comparée à SmCo_5 résulte de la diminution des interactions d'échange sur l'ion Sm^{3+} .

Nous avons observé par effet Kerr polaire le comportement des domaines magnétiques dans le plan (0001) de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$. Le retournement de l'aimantation s'effectue par grossissement lent des domaines magnétiques. La nucléation de domaines est observée dès que le champ antiparallèle à l'aimantation atteint 500 Oe à la température ambiante. La coercivité des composés $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ résulte essentiellement d'un accrochage des parois sur les défauts du réseau

résultant de la ségrégation des atomes de cobalt qui donnent lieu à des diminutions locales des interactions d'échange.

L'étude du traînage magnétique de $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ montre que la variation du taux d'accroissement de l'aimantation obéit à une loi d'activation thermique. L'énergie d'activation s'écrit :

$$E = 0,25 K_e N M_s \left(\frac{1}{H} - \frac{1}{H_0} \right)$$

où K_e est l'énergie d'anisotropie effective, $N M_s$ le champ moléculaire, H_0 le champ coercitif au zéro absolu et H le champ appliqué. Cette expression est interprétée à l'aide d'un modèle simple qui rend compte du processus de nucléation au niveau des défauts. Un écart à la loi d'activation thermique a été observé à basse température. Cet effet peut être expliqué à l'aide d'un modèle basé sur des fluctuations de l'aimantation indépendantes de la température.

La loi empirique précédente décrit avec précision les variations thermiques des champs coercitifs de tous les composés de type TCO_5 .

REFERENCES

- 1 - E.A. NESBITT, J.H. WERNICK et E. CORENZWIT
J. Appl. Phys., 30, 365 (1959).
- 2 - E.A. NESBITT, H.J. WILLIAMS, J.H. WERNICK et R.C. SHERWOOD
J. Appl. Phys., 32, 3425 (1961).
- 3 - E.A. NESBITT, H.J. WILLIAMS, J.H. WERNICK et R.C. SHERWOOD
J. Appl. Phys., 33, 1674 (1962).
- 4 - E. KREN, J. SCHWEIZER et F. TASSET
Phys. Rev., 186, 479 (1969).
- 5 - W.M. HUBBARD, E. ADAMS et J.A. GILFRICH
J. Appl. Phys., 31, 3688 (1960).
- 6 - G. HOFFER et K.J. STRNAT
I.E.E.E. Trans. Mag., 2, 487 (1966).
- 7 - K.J. STRNAT, G. HOFFER, J. OLSON, W. OSTERTAG et J.J. BECKER
J. Appl. Phys., 38, 1001 (1967).
- 8 - D.K. DAS
I.E.E.E. Trans. Mag., 7, 432 (1971).
- 9 - M.G. BENZ et D.L. MARTIN
J. Appl. Phys., 43, 4733 (1972).
- 10 - J.J. BECKER
J. Appl. Phys., 39, 1270 (1968).
- 11 - H. ZIJLSTRA
J. Appl. Phys., 41, 4880 (1970).

- 12 - G.S. KANDAUROVA, A.V. DERYAGIN et A.E. LAGUTIN
Phys. Stat. Sol., 27(a), 429 (1975).
- 13 - V.G. GASS, Y.S. SHUR et A.A. GLAZER
Sov. Phys. Solid Stat., 16, 1108 (1974).
- 14 - H. KRONMULLER et H.R. HILZINGER
Int. J. Magnetism, 5, 27 (1973).
- 15 - E.A. NESBITT, R.H. WILLENS, R.C. SHERWOOD, E. BUEHLER et
J.H. WERNICK
J. Appl. Phys. Lett., 12, 361 (1968).
- 16 - Y. TAWARA et H. SENNO
Japan J. Appl. Phys., 7, 966 (1968).
- 17 - E.A. NESBITT
J. Appl. Phys., 40, 1259 (1969).
- 18 - J.H. WERNICK et S. GELLER
Acta Cryst., 12, 662 (1959).
- 19 - S.E. HASZKO
Trans. AIME, 218, 763 (1960).
- 20 - J. LAFOREST et J.S. SHAH
I.E.E.E. Trans Mag., 9, 217 (1973).
- 21 - J.B.A.A. ELEMANS et K.H.J. BUSCHOW
Phys. Stat. Sol., 24(a), 393 (1974).
- 22 - P. WEISS
J. de Phys., 4, 473 (1905).
- 23 - G. AUBERT, H. BARTHOLIN, D. BLOCH, M. GUILLOT, A. LACAZE,
J. PAUREAU, R. PAUTHENET, J.C. PICOCHÉ, P. RUB, J.C. VALLIER
et A. WAIN TAL
Proc. Int. Conf. Magn., (Moscou) (1973).
- 24 - K. NASSAU, L.V. CHERRY et W.E. WALLACE
J. Phys. Chem. Solids, 16, 131 (1960).
- 25 - L.V. CHERRY et W.E. WALLACE
J. Appl. Phys., 33, 1515 (1962).

- 26 - R. LEMAIRE
Cobalt, 32, 132 (1966).
- 27 - R. LEMAIRE
Cobalt, 33, 201 (1966).
- 28 - R. LEMAIRE, D. PACCARD, R. PAUTHENET et J. SCHWEIZER
J. Appl. Phys., 39, 1092 (1968).
- 29 - F. TASSET
Thèse d'Etat, Université de Grenoble (1975).
- 30 - M. BROUHA et K.H.J. BUSCHOW
Proc. of the 3rd European Conf. on Hard Magnetic Materials
(Amsterdam), 162 (1972).
- 31 - I. SHIDLOVSKY et W.E. WALLACE
J. Sol. Stat. Chem., 3, 510 (1971).
- 32 - H. BARTHOLIN
Thèse de 3e Cycle, Université de Grenoble (1966).
- 33 - W.H.D. FREDERICK et M. HOCH
I.E.E.E. Trans. Mag., 10, 733 (1974).
- 34 - E. TATSUMOTO, T. OKAMOTO, H. FUJII et C. INOUE
J. Phys., 32 C1, 550 (1970).
- 35 - H.P. KLEIN, A. MENTH et R.S. PERKINS
Proc. of the Conf. on Magnetism and Magnetic Materials,
(Boston), 1177 (1973).
- 36 - A.S. YERMALENKO
Proc. Int. Conf. Magn., (Moscou), (1973).
- 37 - S.G. SANKAR, V.U.S. RAO, E. SEGAL, W.E. WALLACE, W.G. FREDERICK
et H.J. GARRETT
Phys. Rev., B11, 435 (1975).
- 38 - K.H.J. BUSCHOW, A.M. VAN DIEPEN et H.W. DE WIJN
Sol. Stat. Comm., 15, 903 (1974).
- 39 - G. HOFFER et K.J. STRNAT
J. Appl. Phys., 38, 1377 (1967).

- 40 - J. DEPORTES, D. GIVORD, R. LEMAIRE, H. NAGAI et Y.T. YANG
J. Less Comm. Metals, à paraître.
- 41 - M.J. WEBER et R.W. BIERIG
Phys. Rev., 134, A1492 (1964).
- 42 - W.E. WALLACE
Rare Earth Intermetallic Compounds (Acad. Press, New York and London, 1973).
- 43 - G. BURNS
J. Chem. Phys., 42, 377 (1965).
- 44 - H.J. LEAMY et M.L. GREEN
I.E.E.E. Trans. Mag., 9, 205 (1973).
- 45 - A. RILEY
J. Less Comm. Metals, 35, 305 (1974).
- 46 - J. LAFOREST
Communication privée.
- 47 - L. NEEL
J. de Phys. et Rad., 11, 49 (1950).
- 48 - S. CHIKAZUMI
Physics of magnetism (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1964).
- 49 - L. NEEL
C. R. Acad. Sc. Paris, 228, 664 (1949).
- 50 - B. BARBARA, G. FILLION, D. GIGNOUX et R. LEMAIRE
Sol. Stat. Comm., 10, 1149 (1972).
- 51 - F.R.U. NABARRO
Theory of Crystal Dislocations (Oxford University Press, New York, 1967).
- 52 - H. SUZUKI
Introduction en Théorie de Dislocation (en japonais)
(AGNE Press Co., Tokyo, 1967).
- 53 - J.A. BALDWIN et F. MILSTEIN
J. Appl. Phys., 45, 4013 (1974).
- 54 - T. EGAMI
Phys. Stat. Sol., 57(b), 211 (1973).

55 - T. EGAMI

Phys. Stat. Sol., 26(a), 157 (1973).

56 - C.W. SEARLE, W.G.D. FREDERICK et H.J. GARRETT

Proc. of the Conf. on Magnetism and Magnetic Materials,
(Denver) 573 (1972).

57 - E.A. NESBITT, G.Y. CHIN, G.W. HULL, R.C. SHERWOOD, M.L. GREEN et
J.H. WERNICK

Proc. of the Conf. on Magnetism and Magnetic Materials,
(Denver) 593 (1972).

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
 <u>CHAPITRE I : PRÉPARATION. STRUCTURE CRISTALLINE</u>	 3
1 - Préparation des échantillons	3
2 - Propriétés cristallographiques	4
 <u>CHAPITRE II : ETUDE MAGNÉTOSTATIQUE DES MONOCRISTAUX</u>	
<u>SmCo₅ et SmCo_{3,5}Cu_{1,5}</u>	7
1 - Méthode de mesure	7
1-1 - Mesures d'aimantation dans des champs inférieurs à 27 kOe	7
1-2 - Mesures d'aimantation dans des champs atteignant 150 kOe	8
2 - Résultats expérimentaux	8
2-1 - Composé SmCo ₅	8
2-2 - Composé SmCo _{3,5} Cu _{1,5}	10
3 - Aimantation spontanée des composés SmCo ₅ et SmCo _{3,5} Cu _{1,5}	25
3-1 - Aimantation à saturation absolue de SmCo ₅	25
3-2 - Aimantation à saturation absolue de SmCo _{3,5} Cu _{1,5}	26
3-3 - Evaluation des coefficients de champ moléculaire et variation thermique de l'aimantation du sous-réseau de samarium dans SmCo ₅ et SmCo _{3,5} Cu _{1,5}	26

4 - Energie d'anisotropie effective dans SmCo_5 et $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$	32
4-1 - Détermination de l'énergie d'anisotropie effective	32
4-2 - Origine de l'anisotropie effective de SmCo_5	33
4-3 - Evaluation de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans SmCo_5	38
4-4 - Evaluation de l'énergie d'anisotropie du sous-réseau de samarium dans $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$	40
4-5 - Comparaison des résultats expérimentaux avec un calcul de champ cristallin	42

CHAPITRE III : OBSERVATION DES DOMAINES MAGNÉTIQUES DANS

$\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$ 51

1 - Méthode expérimentale	51
2 - Résultats expérimentaux	52

CHAPITRE IV : ETUDE DU TRAÎNAGE MAGNÉTIQUE DANS LE

COMPOSÉ $\text{SmCo}_{3,5}\text{Cu}_{1,5}$.

VARIATION THERMIQUE DU CHAMP COERCITIF DES

ALLIAGES DE TYPE TCO_5 57

1 - Méthode expérimentale	57
2 - Variation logarithmique de l'aimantation en fonction du temps	58
3 - Expression en fonction du champ du taux d'accroissement de l'aimantation	62
4 - Résultats expérimentaux	64
5 - Origine du traînage observé en dessous de 50 K	74
6 - Variation thermique du champ coercitif	79

CONCLUSION 85

RÉFÉRENCES 87