

THESE

présentée par

Férial TERKI

POUR OBTENIR LE TITRE DE DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I
SPÉCIALITÉ PHYSIQUE

**NOUVELLE APPROCHE DANS L'ETUDE DES
TRANSITIONS DE PHASE MAGNETIQUE PAR
MESURE DE LA DERIVEE DE LA RESISTANCE
PAR RAPPORT A LA TEMPERATURE :
ETUDE D'UN MONOCRISTAL D'ERBIUM.**

DATE DE SOUTENANCE : le 24 février 1993

COMPOSITION DU JURY : **B. COQBLIN** (Président)
J. CHAUSSY
Ph. GANDIT
J. L. ROBERT
N. SCHOPOHL
M. VALLADE

THESE PREPAREE AU SEIN DU CENTRE DE RECHERCHES SUR LES TRES BASSES TEMPERATURES
- CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE -
(Laboratoire associé à l'Université Joseph Fourier-Grenoble)

*à mes parents, mon frère,
et Dalil.*

REMERCIEMENTS

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures. Je suis reconnaissante à Messieurs J. FLOUQUET et P. MONCEAU, directeurs successifs de ce laboratoire, de m' y avoir accueillie.

J'exprime mes remerciements à Monsieur B. COQBLIN, directeur de recherche au CNRS, pour l'honneur qu'il me fait en présidant ce jury. Je remercie également Messieurs les professeurs J.L. ROBERT et M. VALLADE d'avoir bien voulu faire partie de cette commission d'examen.

Ce sujet a été proposé et suivi par J. CHAUSSY, je lui suis vivement reconnaissante pour son optimisme et son enthousiasme qui m'ont permis de travailler dans de bonnes conditions.

Je tiens à témoigner ma reconnaissance à Ph. GANDIT qui a dirigé ce travail. Au cours de ces trois années et demi (y compris le stage de DEA), j'ai pu apprécier son dynamisme et son état d'esprit qui m'ont permis de surmonter les difficultés auxquelles j'ai été confrontée. Son support moral ainsi que la confiance qu'il a témoignée à mon égard, m'ont été d'un soutien précieux.

Durant les premières années, R. RAMMAL a assuré le lien entre l'expérience et la théorie, motivant ainsi ma démarche scientifique. Il m'a communiqué sa conception de la recherche, comme étant un défi permanent pour se surpasser. Je lui exprime ma plus grande considération.

J'ai pu profiter lors de cette dernière année de l'intérêt manifesté à ce travail, par N. SCHOPOHL. Je le remercie pour son aide théorique, facilitant la compréhension des résultats.

A. SULPICE a réalisé avec rapidité et soin les mesures d'aimantation. Je tiens à le remercier pour son aide.

J'exprime ma reconnaissance à mes professeurs de DEA et en particulier à B. CASTAING, J.B. ROBERT et M. PAPOULAR qui m'ont aidée à prendre conscience de mes capacités et m'ont poussée à persévérer dans ce domaine.

Je suis consciente que ce travail n'aurait pu se concrétiser sans l'aide précieuse de tout le personnel technique du laboratoire et en particulier de P. LEJAY pour la qualité de l'échantillon, G. BATTUZ pour les traitements thermiques, J.L. BRET et J.P. FAURE pour l'électronique, ainsi que P. BROSSE-MARON, J. GENESTE et B. PICOT pour la réalisation du dispositif expérimental.

Mes remerciements vont aussi à D. DEVILLERS qui a assuré avec beaucoup d'efficacité et de patience la frappe de ce manuscrit, et à Messieurs B. PICHAND et M. JAUDON du service de reprographie qui ont imprimé les exemplaires avec beaucoup de rapidité.

Je tiens également à remercier Messieurs J.L GENICON, F. GLASSER, B. HEBRAL et K. PROTASOV de l'Université Joseph Fourier qui ont accepté de bonne grâce des permutations d'horaires d'enseignement afin de me faciliter la rédaction de cette thèse.

Je remercie enfin l'ensemble du personnel du laboratoire pour l'accueil amical et l'aide efficace qu'il m'a témoignés en toutes circonstances.

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : TECHNIQUE EXPERIMENTALE	7
I - PRINCIPE DE LA MESURE.....	9
II- SYSTEME DE DETECTION.....	10
III - PROCEDURE EXPERIMENTALE	12
III.1 - Mesure de la résistance de l'échantillon $R_e(T)$	14
III.2 -Mesure de la variation de la résistance induite par une modulation de température dR_e/dT	14
IV - ETUDE DETAILLEE DES DIFFERENTS ECHANGES THERMIQUES EN REGIME ALTERNATIF	15
IV.1 - Porte-échantillon de conductivité infinie.....	15
IV.2 - Porte-échantillon de conductivité finie	26
V - THERMOMETRIE	34
V.1 - Mesure de température.....	35
V.2 - Etalonnage des thermomètres	36
V.3 - Choix des thermomètres de mesure	39
V.3.1 Thermomètres en platine évaporé	39
V.3.2 - Thermomètres NbN évaporé	42
V.3.3 - Comparaison.....	42
VI - CHOIX DE LA FREQUENCE DE TRAVAIL	44
VII - ECHANTILLON.....	44
VII.1 - Elaboration et orientation	44
VII.2 - Découpe et traitement thermique	45
VIII - CONSTANTES DE TEMPS THERMIQUES DU SYSTEME	46
VIII.1 - Estimations numériques	46
VIII.2 - Choix de la fuite thermique	47
VIII.3 - Vérification des oscillations de température	48
IX - DISPOSITIF EXPERIMENTAL	51
IX.1 - Cryostat.....	52
IX.2 - Electronique.....	53
IX.2.1 - Mise en équation du système	54
IX.2.2 - Condition d'adaptation optimale	55
IX.3 - Performances.....	58
IX.3.1 Mesure du Bruit et sensibilité.....	58
IX.4 - Champ magnétique	60

CHAPITRE II : GENERALITES SUR LES TERRES RARES.....	63
I - GENERALITES	65
II - RESISTIVITE DES METAUX DE TERRES RARES.....	66
III - HAMILTONIEN D'INTERACTION S-F	67
IV - EFFET DES CORRELATIONS A COURTE DISTANCE.....	71
V - ANALOGIE ENTRE LES ANOMALIES DE LA CHALEUR SPECIFIQUE ET CELLES DE LA RESISTIVITE MAGNETIQUE	72
CHAPITRE III : ETUDE DE L'ERBIUM EN CHAMP NUL	75
I - INTRODUCTION.....	77
II - PROPRIETES MAGNETIQUES DE L'ERBIUM.....	77
III - RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	79
III.1 - Premiers tests	79
III.2 - Mesure de la résistance du deuxième échantillon entre 4 et 300 K	80
III.3 - Mesure de la dérivée de la résistance par rapport à la température.....	82
IV - ANALYSE DES RESULTATS.....	84
IV.1 - Introduction.....	84
IV.2 - Modèle théorique utilisé.....	84
IV.3 Procédure retenue pour l'analyse des résultats expérimentaux obtenus	86
IV.3.1 - Comparaison entre les mesures de chaleur spécifique et celles de dR/dT	86
IV.3.2 - Détermination du T_N dans la région paramagnétique	87
IV.3.3 - Loin de la région critique $T \ll T_N$	89
IV.3.4 - Le régime critique	91
V - CONCLUSION	95

CHAPITRE IV : ETUDE DE L'ERBIUM SOUS CHAMP	99
I - INTRODUCTION	101
II - MESURE DE LA RESISTANCE SOUS CHAMP MAGNETIQUE	101
III - MESURE DE $\frac{dR}{dT}$	104
IV - MESURE D'AIMANTATION	108
IV.1 - Courbes de variation d'aimantation en fonction de la température	108
IV.1.1 - Pour les faibles champs : 0,5 - 2 T :	108
IV.1.2 - Pour les forts champs :	110
IV.2 - Mesure d'aimantation en fonction du champ	110
IV.2.1 - Région "basse température": 2-60 K :	110
IV.2.2 - Région haute température :	112
V - ANALYSE DES COURBES D'AIMANTATION	112
V.1 - En régime paramagnétique	112
V.2 - En régime critique	113
VI - ETUDE COMPARATIVE AVEC LES MESURES DE $\frac{dR}{dT}$	115
VI.1 - Ligne de transition para-phase ordonnée magnétiquement	115
VI.2 - Ligne de transition "ferro"- antiferromagnétique modulée selon c	115
VI.3 - Ligne antiferromagnétique modulée selon l'axe c - antiferro hélicoïdal	115
VI.4 - Ligne antiferro hélicoïdale-ferro conique	115
VI.5 - Ligne para-ferromagnétique en champ fort	116
VI.6 - Diagramme de Phase	117
VII - ANALYSE DE DR/DT SOUS CHAMP :	117
VII.1 - Prédications théoriques et interprétation des résultats	117
VII.2 - Analyse de dR/dT dans la région paramagnétique :	121
VIII- CONCLUSION	123
CONCLUSION	125
PUBLICATIONS	131
BIBLIOGRAPHIE	133

INTRODUCTION

L'effet d'une transition de phase magnétique sur les propriétés de transport est un phénomène qui a toujours suscité beaucoup d'intérêt. Du point de vue théorique, le problème a été abordé par De Gennes et Friedel (1958) [21], puis par Fischer et Langer (1968) [26], enfin plus récemment par Alexander, Helman et Balberg (de 1976 à 1978) [51], Malmström et Geldart (1980) [55]. Il ressort de ces travaux que, lors d'une transition ferro-paramagnétique ou antiferro-paramagnétique, la dérivée de la résistance par rapport à la température, au voisinage des températures critiques, a le même comportement que la chaleur spécifique. Il existe ainsi un lien étroit, au voisinage des transitions magnétiques, entre une propriété thermodynamique (C_v) et une propriété de transport ($\frac{dR}{dT}$). Et, de ce fait, l'exposant critique ($\psi-1$) de ($\frac{dR}{dT}$) est égal à α , exposant critique de (C_v), ψ étant l'exposant critique de $R(T)$. Loin de la température de Néel, on s'attend à observer l'exposant 1/2 de la théorie du champ moyen pour $\frac{dR}{dT}$.

De nombreuses études expérimentales sur des ferromagnétiques (nickel) Craig *et al.* (1967) [60], Connelly *et al.* (1971) [79] et O. Kallbäck (1982) [62], sur les éléments de terres rares (Dy), Amitin *et al.* (1970) [30], Rao *et al.* (1973) [29], O. Kallbäck *et al.* (1987) [31], (Ho) Singh et Geldart (1976) [32], (Gd) D.S. Simon et Salamon (1974) [34], (Tb) Hegland *et al.* (1963) [71], ou d'autres composés de terre rare, ont confirmé les caractères généraux énoncés, mais néanmoins il subsiste des difficultés, à savoir :

- l'exposant critique α au-dessus de T_N est-il identique à α' celui au-dessous de T_N ?,
- l'ambiguïté concernant le choix du T_N : est-ce le minimum de $\frac{dR}{dT}$ ou le point d'inflexion de $\frac{dR}{dT}$?,
- l'obtention de valeurs différentes de α pour un même antiferromagnétique, selon la procédure d'analyse utilisée pour traiter les données expérimentales, a-t-elle un sens physique ?

Ces constatations nous ont motivés pour mener une étude approfondie et plus précise du comportement critique au voisinage de T_N , en utilisant une technique de mesure qui permet d'accéder directement à la dérivée de la résistance par rapport à la température ($\frac{dR}{dT}$). Bien que $\frac{dR}{dT}$ soit une quantité anisotrope, sa partie singulière nous permet d'accéder aux exposants thermodynamiques de la chaleur spécifique.

Nous avons choisi d'étudier le comportement magnétique de l'erbium, élément riche en transitions de phase magnétiques. Cet élément de terre rare a été étudié récemment [P. de V. de Plessis *et al.* (1988) [40]], du point de vue des phénomènes de transport et, antérieurement, par des mesures de chaleur spécifique [Skochdopole *et al.* (1960) [41]]. Cependant, il n'a pas fait l'objet d'une étude complémentaire après l'apparition de cette nouvelle approche théorique.

Dans le premier chapitre de ce mémoire, nous décrivons le principe de mesure. Nous exposons en détail tous les problèmes rencontrés et la façon dont ils ont été résolus pour satisfaire la mise au point d'une nouvelle technique de mesure d'une grande sensibilité.

Le second chapitre donne un aperçu sur les propriétés magnétiques des terres rares et expose le modèle théorique prédit et les améliorations successives qui ont permis d'établir un lien entre une propriété thermodynamique, telle que la chaleur spécifique, et $\frac{dR}{dT}$ au voisinage d'une transition magnétique.

Dans le troisième chapitre, nous étudions le comportement d'un monocristal d'erbium orienté selon l'axe de facile aimantation. Nous nous sommes intéressés à la transition antiferro-paramagnétique en champ nul. Nous avons mis l'accent sur l'importance de la procédure d'analyse qui permet la détermination des exposants critiques pour ce type de transition magnétique. En outre, nous avons montré que cette technique expérimentale performante permettait d'obtenir, sur un système a priori bien connu, des résultats qui n'étaient pas attendus.

Vu la sensibilité du dispositif de mesure, nous avons décidé d'étendre notre technique pour étudier l'influence du champ magnétique sur les différentes transitions. Les résultats obtenus nous permettent de présenter une nouvelle investigation dans la détermination d'un diagramme de phase détaillé (H-T), à partir de mesures résistives sur le même monocristal d'erbium. Nous avons mis en évidence l'existence d'une phase ordonnée (ferro- ou antiferromagnétique ?), qui prend naissance pour un champ d'environ 2 T jusqu'à 2,6 T. C'est, à notre connaissance, la première fois qu'un tel ordre magnétique est nettement observé par des mesures de transport. De récentes mesures de neutrons sous champ ont confirmé la présence de cette phase ordonnée, ce qui prouve bien la sensibilité de la quantité $\frac{dR}{dT}$ lors d'un arrangement de spins magnétiques. Nous avons également effectué des

Introduction

mesures d'aimantation en fonction du champ magnétique et de la température pour vérifier les lignes de transition obtenues par les mesures de $\frac{dR}{dT}$ sous champ. Nous présentons une première analyse des courbes de $\frac{dR}{dT}$ sous champ magnétique, selon le même modèle théorique. Ces différents points sont développés dans le chapitre 4.

CHAPITRE I

TECHNIQUE EXPERIMENTALE

I - PRINCIPE DE LA MESURE

Il consiste à détecter la réponse de la résistance d'un échantillon soumis à une petite oscillation de température.

Imaginons un échantillon maintenu à une température régulée T , et polarisé par un courant continu I_{dc} . Il apparaît à ses bornes une tension continue :

$$V_{dc} = R_e(T) I_{dc}$$

où $R_e(T)$ représente la résistance de l'échantillon en fonction de la température.

Si on fait osciller la température d'une amplitude ΔT_{ac} , il se superpose à la tension continue une tension alternative ΔV_{ac} proportionnelle à la variation de la résistance $\Delta R_e(T)$. La tension additionnelle s'écrit :

$$\Delta V_{ac} = \Delta R_e(T) I_{dc}$$

La tension globale qui apparaît aux bornes de l'échantillon est :

$$V_{dc} + \Delta V_{ac} = R_e(T) I_{dc} + \Delta R_e(T) I_{dc}$$

Dans le cas où la résistance de l'échantillon ne présente pas d'hystérésis en température et possède donc une courbe résistive complètement réversible en température, nous pouvons écrire,

$$\frac{\Delta R_e(T)}{\Delta T_{ac}} = \frac{1}{I_{dc}} \frac{\Delta V_{ac}}{\Delta T_{ac}}$$

Connaissant la valeur du courant de polarisation I_{dc} , mesurant la tension ΔV_{ac} et l'oscillation thermique créée ΔT_{ac} , nous déduisons directement le rapport $\frac{\Delta R_e(T)}{\Delta T_{ac}}$.

L'intérêt de cette technique est de mesurer directement la variation de la résistance induite par une oscillation de température et d'en déduire la quantité $\frac{dR_e(T)}{dT}$. Pour obtenir le plus d'informations possibles et ne pas masquer les

phénomènes physiques qui peuvent apparaître, il faut veiller à ce que la modulation thermique créée soit aussi faible que possible. Dans ce cas, sur un intervalle de température suffisamment petit ΔT , on peut considérer que la variation de la résistance de l'échantillon est linéaire et écrire la relation suivante :

$$\frac{dR_e(T)}{dT} = \lim_{\Delta T \rightarrow 0} \frac{\Delta R_e(T)}{\Delta T}$$

Ainsi, pour un échantillon, dont la résistance $R_e(T)$ ne "se souvient pas" du chemin thermique suivi, soumis à une excitation extérieure ΔT faible, la réponse de l'échantillon $\Delta R_e(T)$ à cette oscillation ΔT peut être remplacée par sa différentielle $dR_e(T)$ par rapport à dT au sens mathématique du terme. Nous pouvons donc écrire :

$$\Delta V_{ac} = \Delta R_e(T) I_{dc} = \frac{dR_e(T)}{dT} \Delta T_{ac} I_{dc}$$

ou encore :

$$\frac{\Delta R_e(T)}{\Delta T_{ac}} = \frac{dR_e(T)}{dT} = \frac{1}{I_{dc}} \frac{\Delta V_{ac}}{\Delta T_{ac}}$$

Nous insistons sur le fait que cette relation n'est valable que pour un échantillon qui possède une courbe résistive complètement réversible et qui est soumis à une petite modulation de température.

II- SYSTEME DE DETECTION

Le premier montage auquel on peut penser est le suivant :

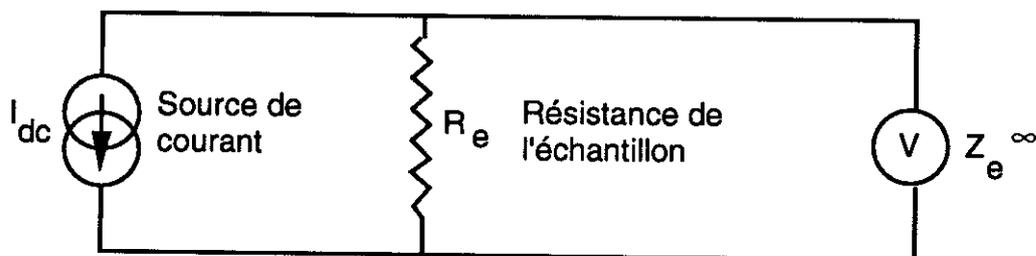


Figure I.1

où l'échantillon de résistance R_e est placé en parallèle avec un voltmètre idéal d'impédance infinie, de sorte que le courant de polarisation ne traverse que la résistance de l'échantillon. Le système de détection que nous utilisons est constitué d'un préamplificateur et d'une détection synchrone. L'étage d'entrée du préamplificateur est constitué d'un transistor à effet de champ (FET) qui présente une grande impédance d'entrée à basses fréquences. Dans notre cas, l'impédance de source est très faible devant l'impédance d'adaptation du FET (impédance qui optimise le rapport signal sur bruit) (§ IX.2). Il est donc nécessaire d'adapter l'impédance en utilisant un transformateur. Le schéma électrique est représenté dans la figure I.2.

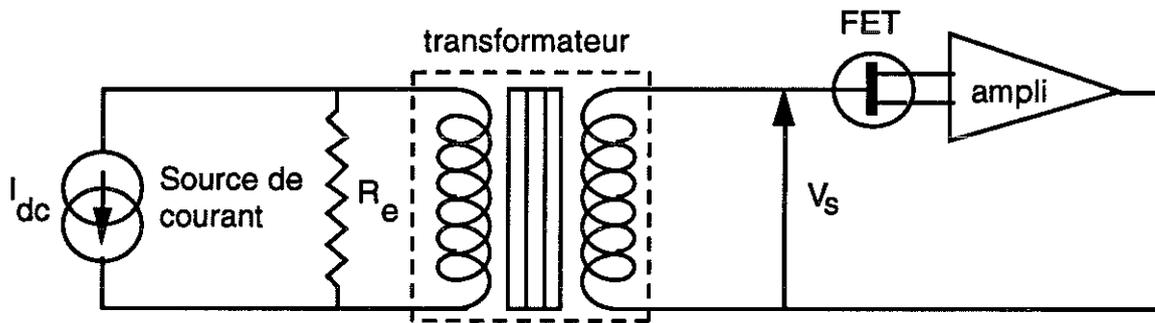


Figure I.2

Le transformateur de rapport de transformation (n) n'est pas parfait et peut être remplacé par le schéma équivalent, ramené au secondaire, suivant :

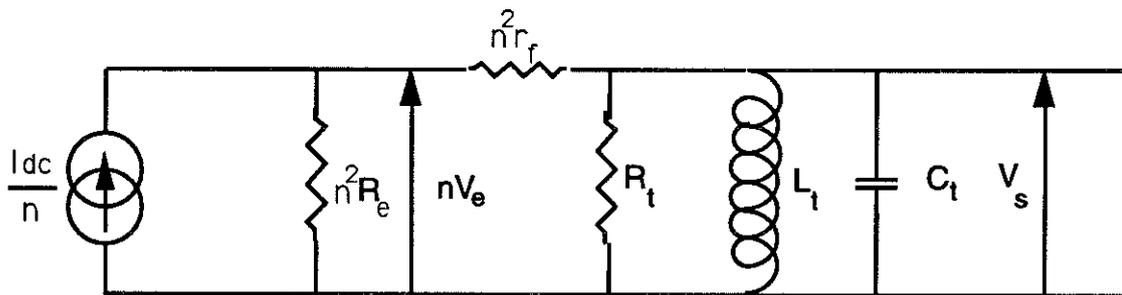


Figure I.3

- L_t : Inductance de l'enroulement secondaire
- C_t : Capacité des enroulements
- R_t : Résistance qui représente les diverses pertes du transformateur (hystérésis, courants de Foucault, pertes dans le noyau...)
- n^2R_e : Résistance de l'échantillon ramenée au secondaire.
- n^2r_f : Résistance du primaire ramenée au secondaire (fils, résistances de contact)

L'impédance d'entrée Z_{ea} du préamplificateur est très élevée. On peut donc la considérer comme infinie. Dans cette représentation du montage, nous avons négligé l'inductance de fuite et la résistance ohmique du secondaire du transformateur ; nous reviendrons sur ces considérations dans le schéma électrique que nous avons retenu. Calculons l'impédance d'entrée du système. Vue de l'entrée, celle-ci est équivalente à une résistance en parallèle avec une capacité et une inductance, le tout en série avec une résistance n^2r_f .

$$Z_e = \frac{R_t L_t \omega j}{L_t \omega j + R_t (1 - L_t C \omega^2)} + n^2 r_f$$

Ce circuit présente une impédance d'entrée élevée ($Z_{e\ ac} \approx R_t \approx$ qq dizaine de $M\Omega$) pour les signaux alternatifs à la fréquence de résonance, et faible pour les signaux continus ($Z_{e\ dc} \approx n^2 r_f$).

III - PROCEDURE EXPERIMENTALE

Nous constatons que ce type de montage ne convient pas aux mesures envisagées. En effet, le courant continu de polarisation va se partager entre l'échantillon et le transformateur (Figure I.2), ce qui conduit à une erreur sur la valeur du courant qui traverse effectivement l'échantillon. D'autre part, ce cas de figure est d'autant moins souhaitable que le courant continu risque d'aimanter le noyau, de le saturer, modifiant ainsi ses caractéristiques et limitant ses performances. Pour pallier ce problème, nous avons utilisé le schéma électrique suivant (Figure I.4).

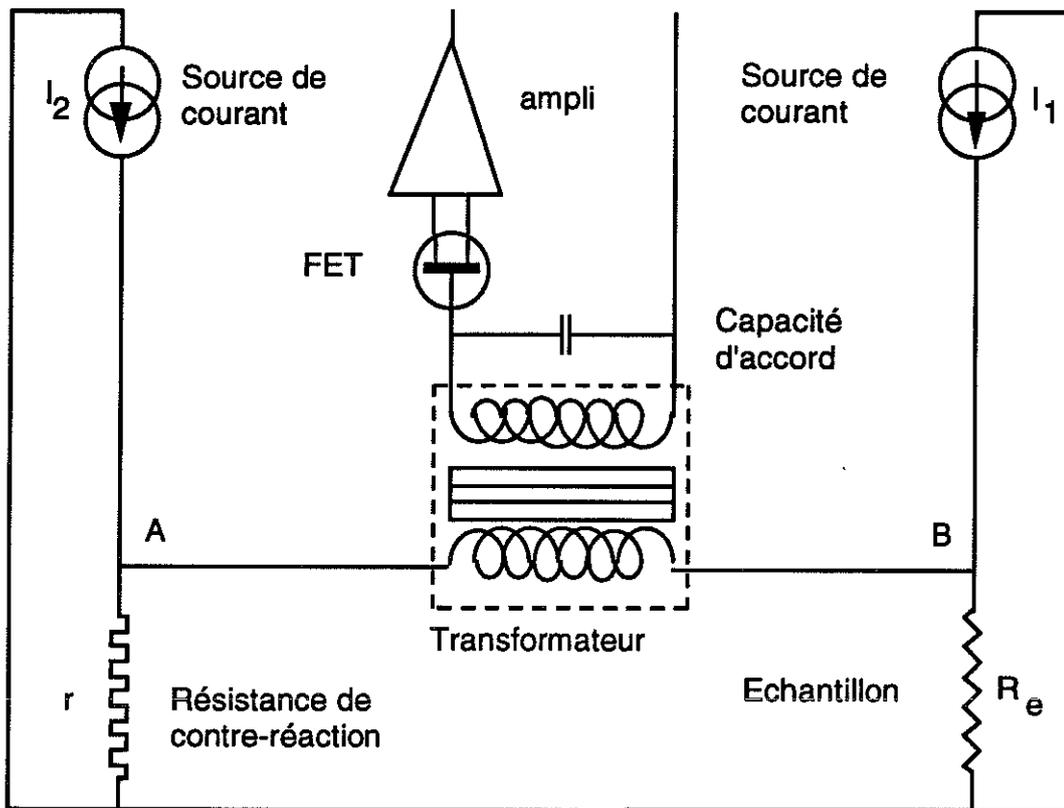


Figure I.4

Nous avons placé dans le circuit une résistance dite de contre-réaction r . Ainsi, nous pouvons, en injectant un courant I_2 à travers cette résistance étalon, contrebalancer la tension qui apparaît aux bornes de l'échantillon polarisé par un courant I_1 . Les deux noeuds A et B du circuit étant au même potentiel, la tension aux bornes du transformateur est nulle. De ce fait, on est sûr qu'aucun courant continu ne risque de traverser le transformateur et de changer ses caractéristiques. Avec un tel dispositif, le courant parcourant l'échantillon est parfaitement connu. Ainsi, à chaque température régulée T , la résistance de l'échantillon variant, il faut rétablir l'équilibre du pont en adaptant la valeur du courant I_2 suivant la relation :

$$rI_2 = R_e(T)I_1,$$

ce qui suggère que, pour accéder à la quantité $\frac{dR}{dT}$, il faut connaître au préalable la valeur du courant de polarisation I_2 et donc par déduction la valeur de la résistance de l'échantillon qui rétablit l'équilibre à chaque température.

III.1 - Mesure de la résistance de l'échantillon $R_e(T)$

Ces mesures sont effectuées en l'absence de modulation de température. L'échantillon est maintenu à une température constante T à l'aide du régulateur P.I.D. Nous injectons simultanément deux courants alternatifs I_{1ac} , I_{2ac} à la fréquence f , à travers l'échantillon et la résistance étalon respectivement. Ces courants sont choisis de sorte que la différence de potentiel aux bornes du transformateur soit nulle. Cette méthode d'équilibre de pont nous permet de connaître parfaitement le courant de polarisation et de s'assurer qu'aucun ne traverse le transformateur. Nous pouvons écrire la relation suivante :

$$R_e(T)I_{1ac} = rI_{2ac}$$

où r est la résistance de contre-réaction ($r = 0,1 \Omega$) et $R_e(T)$ la résistance de l'échantillon. En utilisant cette équation, nous déduisons la valeur de la résistance de l'échantillon $R_e(T)$ pour chaque température réglée T dans l'intervalle de température qui nous intéresse. Notons que cette technique de potentiel nul à l'entrée permet de s'affranchir des éventuelles variations de gain du système de détection.

III.2 - Mesure de la variation de la résistance induite par une modulation de température dR_e/dT

Connaissant la valeur du rapport des courants qui permet d'obtenir l'équilibre du pont, nous injectons maintenant deux courants continus I_{1dc} , I_{2dc} dans le même rapport, à travers l'échantillon et la résistance étalon. La température de l'échantillon est ensuite modulée à la fréquence f à l'aide d'un courant alternatif traversant une résistance de chauffage placée à proximité. Le choix de la valeur de fréquence f de travail est discuté dans le paragraphe (VI). Cette oscillation de température ΔT_{ac} va induire une tension alternative. Il apparaît donc à l'entrée du transformateur une différence de potentiel directement proportionnelle à la réponse de la résistance de l'échantillon à cette modulation thermique ΔT_{ac} . Nous pouvons ainsi accéder directement à la quantité $\frac{dR_e(T)}{dT}$ suivant la relation :

$$\frac{dR_e(T)}{dT} = \frac{V_{ac}}{GI_{1dc} \Delta T_{ac}}$$

où V_{ac} est la tension alternative mesurée via la détection synchrone, I_{dc} le courant continu de polarisation, G le gain de la boucle de mesure et ΔT_{ac} l'amplitude de l'oscillation thermique mesurée par l'autre détection synchrone. Nous reviendrons sur la détermination explicite du gain de la chaîne de détection dans le paragraphe concernant l'électronique.

IV - ETUDE DETAILLEE DES DIFFERENTS ECHANGES THERMIQUES EN REGIME ALTERNATIF [1-4]

Comme nous venons de l'énoncer, l'idée maîtresse de cette approche consiste à détecter la réponse de l'échantillon à une oscillation de température. Il faut néanmoins que cette modulation thermique ne soit pas limitée par les contraintes thermiques telles que les constantes de temps thermiques, les temps de diffusion internes Nous allons développer, dans ce qui va suivre, le bilan thermique du système étudié en régime oscillant. Les différentes hypothèses implicites qui découlent des calculs seront discutées en détail.

IV.1 - Porte-échantillon de conductivité infinie

Pour simplifier les calculs thermiques, nous allons modéliser le système. Dans un premier temps, nous allons considérer le cas idéal, puis nous allons adapter au fur et à mesure la solution obtenue pour se rapprocher du cas réel, tel qu'il est réalisé concrètement.

Soit le système présenté dans la figure I.5. Un porte-échantillon de capacité calorifique C_p , à la température T_p , est couplé, d'une part au bain d'hélium de température T_b , d'autre part à un échantillon de capacité calorifique C_e , par l'intermédiaire des conductances thermiques K_b et K_c respectivement.

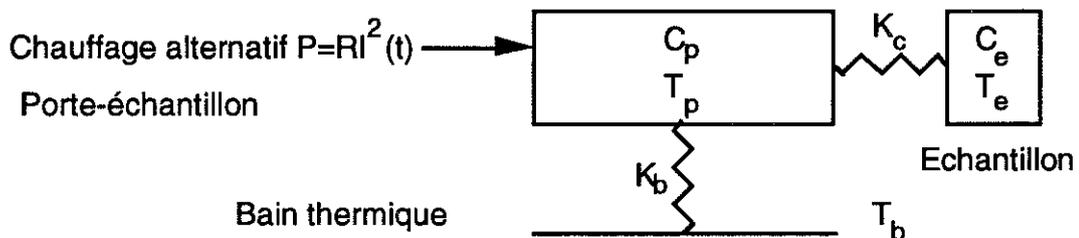


Figure I.5

Soit P la puissance dissipée dans la résistance de chauffage placée sur le porte-échantillon :

$$P = RI^2(t) = R I_0^2 \cos^2 \frac{\omega t}{2} = P_0 [1 + \cos \omega t] \quad \text{avec } P_0 = \frac{RI_0^2}{2},$$

$I(t)$ étant le courant alternatif de pulsation $\frac{\omega}{2}$ qui traverse la résistance de chauffage R .

Faisons l'hypothèse que le système (échantillon et porte-échantillon) a une conductivité infinie. La différence entre la quantité d'énergie entrante et sortante par unité de temps n'est autre que la variation de l'énergie interne de chacun de ses éléments pris séparément. Soit :

$$\frac{dU_i}{dt} = \frac{\partial U_i}{\partial T} \frac{dT_i(t)}{dt} = C_i \frac{dT_i(t)}{dt} \quad (\text{I-1})$$

U représentant l'énergie interne et C la capacité calorifique (l'indice i se rapportant à l'élément considéré).

Le bilan thermique du système s'écrit donc :

$$\begin{cases} C_p \frac{dT_p}{dt} = P - K_b(T_p - T_b) - K_c(T_p - T_e) & (\text{I-2}) \\ C_e \frac{dT_e}{dt} = -K_c(T_e - T_p) & (\text{I-3}) \end{cases}$$

Pour faciliter la résolution d'un tel système, la notation exponentielle pour la puissance dissipée $P(P = P_0(1 + e^{i\omega t}))$ est souvent utilisée [1] et des solutions particulières de la forme suivante sont proposées :

$$T_p = T_b + \Delta T_{p_c} + \Delta T_{p_a} e^{i(\omega t - \varphi + \Delta \varphi)} \quad (\text{I-4})$$

$$T_e = T_b + \Delta T_{e_c} + \Delta T_{e_a} e^{i(\omega t - \varphi)} \quad (\text{I-5})$$

où : ΔT_{pc} et ΔT_{ec} constituent les composantes continues du décalage en température du porte-échantillon et de l'échantillon par rapport à la ligne de base thermalisée à la température T_b .

ΔT_{pa} et ΔT_{ea} constituent les composantes sinusoïdales du décalage en température du porte-échantillon et de l'échantillon par rapport à la ligne de base.

φ représente le décalage de phase de la modulation de température du porte-échantillon et de l'échantillon par rapport à la puissance de chauffage [retard de phase].

$\Delta\varphi$ représente le décalage en phase supplémentaire entre le porte-échantillon et l'échantillon [avance de phase].

La résolution de l'équation (I-3) donne :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta T_{pc} = \Delta T_{ec} \end{array} \right. \quad (I-6)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} (K_c + i\omega C_e)\Delta T_{ea} = K_c\Delta T_{pa} e^{i\Delta\varphi} \end{array} \right. \quad (I-7)$$

En posant $\frac{C_e}{K_c} = \tau_e$ (τ_e étant la constante thermique de l'échantillon par rapport au porte échantillon), l'équation (I-7) devient :

$$\Delta T_{ea}(1+i\omega\tau_e) = \Delta T_{pa} e^{i\Delta\varphi} \quad (I-8)$$

En séparant les parties réelles des parties imaginaires de part et d'autre de l'équation (I-8), on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\Delta T_{ea}}{\Delta T_{pa}} = \cos(\Delta\varphi) \end{array} \right. \quad (I-9)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{tg}\Delta\varphi = \omega\tau_e \end{array} \right. \quad (I-10)$$

En remplaçant les solutions proposées dans les équations (I-2) et (I-3), puis en les ajoutant et en séparant les parties réelles et imaginaires de part et d'autre de l'équation, nous obtenons :

$$\boxed{\Delta T_{pc} = \frac{P_o}{K_b}} \quad (I-11)$$

et le système d'équations :

$$\left\{ \begin{array}{l} -\omega^2 C_p \tau_e \Delta T_{ea} = P_o \cos \varphi - K_p \Delta T_{ea} \end{array} \right. \quad (I-12)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \omega(C_p + C_e) \Delta T_{ea} = P_o \sin \varphi - \omega K_b \tau_e \Delta T_{ea} \end{array} \right. \quad (I-13)$$

Les équations (I-6), (I-9) et (I-11) conduisent à la remarque suivante : l'écart en température entre le bain et l'échantillon ou entre le bain et le porte-échantillon induit par le terme continu de la puissance est le même. Cependant, à cet écart se superposent une oscillation de température ΔT_{ea} pour l'échantillon et ΔT_{pa} pour le porte-échantillon, ces deux oscillations ayant un décalage de phase $\Delta \varphi$ entre elles, mais aussi un décalage de phase φ identique par rapport au bain.

En posant $C = C_e + C_p$ capacité calorifique globale (échantillon-porte-échantillon),

$\tau = \frac{C}{K_b}$ constante de temps thermique de l'ensemble (échantillon-porte-échantillon),

$\tau_p = \frac{C_p}{K_b}$ constante de temps thermique du porte-échantillon,

$\tau_e = \frac{C_e}{K_c}$ constante de temps thermique de l'échantillon,

le système d'équations (I-12) et (I-13) devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} K_b(1 - \omega^2 \tau_p \tau_e) \Delta T_{ea} = P_o \cos \varphi \end{array} \right. \quad (I-14)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} K_b(\tau + \tau_e) \Delta T_{ea} = P_o \sin \varphi \end{array} \right. \quad (I-15)$$

d'où

$$\boxed{\operatorname{tg} \varphi = \frac{\omega(\tau + \tau_e)}{1 - \omega^2 \tau_p \tau_e}} \quad (I-16)$$

En éliminant φ du système d'équations (I-14) et (I-15), nous pouvons déduire la valeur de ΔT_{ea} :

$$\Delta T_{ea} = \frac{P_o}{C\omega} \left[1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau_e^2 \left(\frac{C_p}{C} \right)^2 + \frac{\tau_e^2}{\tau^2} \left(1 + \frac{2K_c}{K_b} \right) \right]^{1/2} \quad (I-17)$$

En remplaçant (I-17) dans l'équation (I-5) et en ne prenant que la partie réelle, l'expression de la température de l'échantillon devient :

$$T_e(t) = T_b + \frac{P_o}{K_b} + \frac{P_o}{C\omega} \left[1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau_e^2 \left(\frac{C_p}{C} \right)^2 + \frac{\tau_e^2}{\tau^2} \left(1 + \frac{2K_c}{K_b} \right) \right]^{1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (I-18)$$

La température de l'échantillon est décalée de la température de la ligne de base d'une composante continue $\Delta T_{ec} = \frac{P_o}{K_b}$ à laquelle s'ajoute une composante alternative d'amplitude ΔT_{ea} de pulsation ω , ayant un retard de phase φ par rapport au bain.

$$T_e(t) = T_b + \Delta T_{ec} + \Delta T_{ea} \cos(\omega t - \varphi) \quad (I-19)$$

Considérons le cas où la capacité calorifique de l'échantillon est petite devant celle de son support et qu'entre l'échantillon et son support, il existe un très bon couplage thermique. Les conditions suivantes $C_e \ll C_p$ et $\tau_e \ll \tau$ sont ainsi satisfaites.

La température de l'échantillon s'écrit alors :

$$T_e(t) = T_b + \frac{P_o}{K_b} + \frac{P_o}{C\omega} \left(1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau_e^2 \right)^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (I-20)$$

avec

$$\begin{cases} \tau = \tau_p = \frac{C_p}{K_b} \\ \tau_e = \frac{C_e}{K_c} \\ \varphi = \text{arctg} \left[\frac{\omega\tau_p + \omega\tau_e}{1 - \omega^2\tau_e\tau_p} \right] \end{cases} \quad (I-21)$$

Le décalage de phase φ de la composante alternative de la température peut s'écrire comme la somme de deux phases φ_e et φ_p telles que :

$$\begin{cases} \varphi_e = \text{arctg} \omega\tau_e \\ \varphi_p = \text{arctg} \omega\tau_p \end{cases}$$

En effet, l'approximation (I-20) et la relation (I-21) nous conduisent à :

$$\operatorname{tg}\varphi = \frac{\omega\tau_p + \omega\tau_e}{1 - \omega^2\tau_e\tau_p} \quad (\text{I-22})$$

Ainsi nous pouvons écrire :

$$\varphi = \varphi_e + \varphi_p \text{ avec } \begin{cases} \operatorname{tg}\varphi_e = \omega\tau_e \\ \operatorname{tg}\varphi_p = \omega\tau_p \end{cases}$$

chacune des phases φ_e et φ_p tient compte séparément des constantes de temps thermiques relatives à l'échantillon et au porte-échantillon respectivement.

Le cas présenté précédemment ne reflète pas encore tout à fait la situation réelle. En effet le calcul précédent repose sur un certain nombre d'hypothèses, à savoir : une diffusivité thermique infinie dans le porte échantillon, l'échantillon ainsi que dans la fuite thermique de conductance K_b , un couplage idéal entre l'élément chauffant et le porte-échantillon, et une capacité calorifique nulle aussi bien pour la fuite thermique que pour la résistance à travers laquelle se dissipe la puissance de chauffage. Progressivement, nous allons améliorer le schéma représentatif (Figure I.6) et essayer de se rapprocher le plus possible du cas concret tel qu'il est réalisé expérimentalement.

Dans un premier temps, nous allons considérer que l'échantillon et son support sont bien couplés et ne forment qu'un ensemble, de capacité calorifique C_p . Le point important que nous soulignons dans le cas présent consiste à traiter la dissipation thermique au niveau de la résistance chauffante et non au niveau de l'ensemble (échantillon - porte-échantillon). En effet, cet ensemble est chauffé à l'aide d'un courant alternatif qui traverse une résistance de chauffage de capacité calorifique C_{ch} couplée au porte-échantillon par l'intermédiaire d'une conductance thermique K_{ch} .

Le bilan énergétique s'écrit :

$$\begin{cases} C_{ch} \frac{dT_{ch}}{dt} = P_o(1 + e^{i\omega t}) - K_{ch}(T_{ch}-T_p) & (I-23) \\ C_p \frac{dT_p}{dt} = K_{ch}(T_{ch}-T_p) - K_b(T_p-T_b) & (I-24) \end{cases}$$

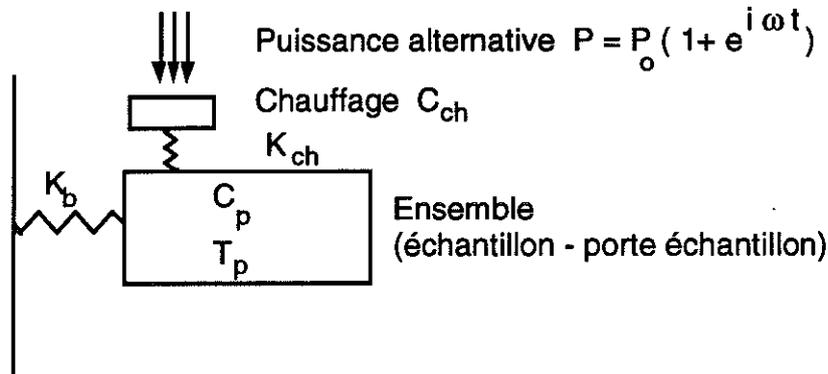


Figure I.6

En utilisant des solutions de la forme :

$$\begin{cases} T_{ch} = T_b + T_{ch0} + \Delta T_{ch} e^{i(\omega t - \varphi + \Delta\varphi)} \\ T_p = T_b + T_{p0} + \Delta T_p e^{i(\omega t - \varphi)} \end{cases} \quad (I-25)$$

et en remplaçant dans l'équation (I-24), nous obtenons les égalités suivantes :

$$\begin{cases} K_{ch}(T_{ch0} - T_{p0}) = K_b T_{p0} \\ (i\omega C_p + K_b + K_{ch}) \Delta T_p = K_{ch} \Delta T_{ch} e^{i\Delta\varphi} \end{cases} \quad (I-26)$$

ou encore :

$$\left(i\omega \frac{C_b}{K_{ch}} + 1 + \frac{K_b}{K_{ch}} \right) \Delta T_p = \Delta T_{ch} e^{i\Delta\varphi} \quad (I-27)$$

$\Delta\varphi$ représente bien l'avance de phase de l'élément chauffage par rapport à l'ensemble (échantillon-porte-échantillon).

En égalant les parties réelles et imaginaires, nous obtenons :

$$\begin{cases} \cos\Delta\varphi = \frac{\Delta T_p}{\Delta T_{ch}} \left(1 + \frac{K_b}{K_{ch}}\right) & \text{(I-28)} \\ \operatorname{tg}\Delta\varphi = \omega\tau_1 = \frac{\omega C_p}{K_{ch} + K_b} & \text{(I-29)} \end{cases}$$

D'après la relation (I-28), nous remarquons que le rapport des amplitudes des composantes alternatives des températures $\frac{\Delta T_p}{\Delta T_{ch}}$ dépend du rapport des conductances thermiques entre le bain et l'ensemble (échantillon-porte-échantillon), et entre le chauffage et l'ensemble (échantillon-porte-échantillon).

En sommant les équations (I-23) et (I-24) et en substituant les solutions proposées pour les températures T_{ch} et T_p , on obtient une nouvelle équation :

$$(C_{ch} \Delta T_{ch} e^{i\Delta\varphi} + C_p \Delta T_p) i\omega e^{i(\omega t - \varphi)} = P_o(1 + e^{i\omega t}) - K_b(T_{p_o} + \Delta T_p e^{i(\omega t - \varphi)}) \quad \text{(I-30)}$$

ce qui permet d'écrire les relations suivantes :

$$\begin{cases} P_o = K_b T_{p_o} & \text{(I-31)} \end{cases}$$

$$\begin{cases} C_{ch}(i\omega)\Delta T_{ch} e^{i\Delta\varphi} = P_o e^{i\varphi} - \Delta T_p [K_b + C_p i\omega] & \text{(I-32)} \end{cases}$$

En utilisant le résultat obtenu dans l'équation (I-26), la relation (I-32) s'écrit :

$$\left[i\omega(C_{ch} + C_p) - \omega^2 C_p \frac{C_{ch}}{K_{ch}} + K_b + i\omega K_b \frac{C_{ch}}{K_{ch}} \right] \Delta T_p = P_o e^{i\varphi} \quad \text{(I-33)}$$

En identifiant les coefficients des parties réelles et imaginaires, nous déduisons le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} K_b \left[1 - \omega^2 \frac{C_{ch} C_p}{K_{ch} K_b} \right] \Delta T_p = P_o \cos\varphi & \text{(I-34)} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \omega \left[C_{ch} + C_p + \frac{C_{ch}}{K_{ch}} K_b \right] \Delta T_p = P_o \sin\varphi & \text{(I-35)} \end{cases}$$

En posant : $C = C_{ch} + C_p$ capacité calorifique globale

$$\begin{aligned} \tau_{ch} &= \frac{C_{ch}}{K_{ch}} && \text{constante de temps thermique de l'élément chauffant} \\ \tau_p &= \frac{C_p}{K_b} && \text{constante de temps thermique de l'ensemble (échantillon / porte-échantillon)} \\ \tau &= \frac{C}{K_b} && \text{constante de temps thermique du système élément chauffant / (échantillon / porte-échantillon).} \end{aligned}$$

Le système d'équations (I-34), (I-35) s'écrit :

$$\begin{cases} K_b[1 - \omega^2\tau_{ch}\tau_p] \Delta T_p = P_o \cos\varphi \\ \omega[C + \tau_{ch}K_b] \Delta T_p = P_o \sin\varphi \end{cases}$$

En éliminant φ , nous en déduisons :

$$\Delta T_p^2 = \frac{P_o^2}{K_b^2[1 - \omega^2\tau_{ch}\tau_p]^2 + \omega^2[C + \tau_{ch}K_b]^2} \quad (I-36)$$

ou encore

$$\Delta T_p^2 = \frac{P_o^2}{(C\omega)^2 \left[\left(\frac{1}{\omega\tau} - \omega \frac{C_p}{C} \tau_{ch} \right)^2 + \left(1 + \frac{\tau_{ch}}{\tau} \right)^2 \right]}$$

ce qui nous conduit à l'expression suivante pour ΔT_p :

$$\Delta T_p = \frac{P_o}{C\omega} \left[1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau_{ch}^2 \left(\frac{C_p}{C} \right)^2 + \frac{\tau_{ch}^2}{\tau^2} \left(1 + 2 \frac{K_{ch}}{K_b} \right) \right]^{1/2} \quad (I-37)$$

En faisant les approximations suivantes $\frac{C_{ch}}{C} \ll 1$ et $\frac{\tau_{ch}}{\tau} \ll 1$ qui sont des conditions remplies expérimentalement, à savoir un très bon couplage entre le chauffage et son support, et une capacité calorifique de l'élément chauffant très petite devant la capacité calorifique globale du porte-échantillon, ceci afin de minimiser la constante thermique τ_{ch} , nous obtenons ainsi l'expression :

$$\Delta T_p = \frac{P_o}{C\omega} \left[1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau_{ch}^2 \right] \quad (I-38)$$

A noter que cette relation est similaire à celle obtenue dans le 1er cas traité (Figure I.5). En effet, le terme $\omega\tau_e$ dans l'expression (I-17) contribue de la même manière que le terme $\omega\tau_{ch}$ dans la relation (I-38).

Nous allons considérer maintenant que la température mesurée est en réalité celle du thermomètre T_{th} de capacité calorifique C_{th} couplé à l'ensemble (échantillon-porte-échantillon) pour une conductance thermique K_{th} (Figure I.7).

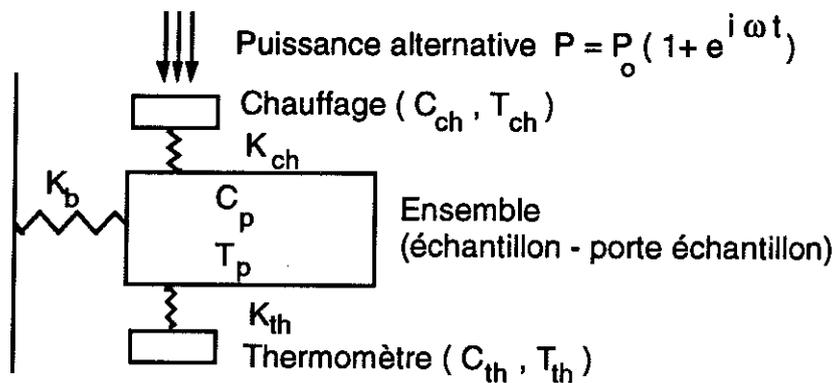


Figure I.7

Sullivan et Seidel ont étudié une situation identique (Figure I.7). Ils ont montré qu'en se plaçant, dans les conditions suivantes :

- la capacité calorifique du chauffage C_{ch} et celle du thermomètre C_{th} sont très petites devant celle de l'échantillon C_e ,
- l'échantillon, le chauffage ainsi que le thermomètre se mettent en équilibre thermique au bout d'un temps respectant l'inégalité :

$$\omega^2(\tau_{th}^2 + \tau_{ch}^2) \ll 1$$

- le temps de relaxation thermique total τ du système vers la borne froide est grand devant la période des oscillations thermiques $\omega\tau \gg 1$ avec :

$$\tau = \frac{C}{K_b} = \frac{(C_e + C_{th} + C_{ch})}{K_b}$$

La température du thermomètre $T_{th}(t)$ au 1er premier degré d'approximation en $(\omega\tau)^{-2}$ et $\omega^2(\tau_{th}^2 + \tau_{ch}^2)$ suit la relation suivante :

$$T_{th}(t) = T_b + \frac{P_o}{K_b} + \frac{P_o}{C\omega} \left[1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2 [\tau_{th}^2 + \tau_{ch}^2] \right]^{-1/2} \cos(\omega t - \phi) \quad (I-39)$$

Nous pouvons ainsi remarquer que la solution proposée par Sullivan et Seidel n'est autre que l'expression obtenue précédemment (I-38), à laquelle on rajoute la contribution du thermomètre $(\omega\tau_{th})^2$. Il ne faut pas oublier que le chauffage et le thermomètre interviennent de la même manière $(\omega^2\tau_{th}^2 + \omega^2\tau_{ch}^2)$ si, et seulement si, les conditions énoncées ci-dessus sont remplies.

Si nous voulons maintenant appliquer ce type de solution à notre système, il faut se rappeler que, dans notre cas, l'échantillon est couplé au bain thermique via le porte-échantillon.

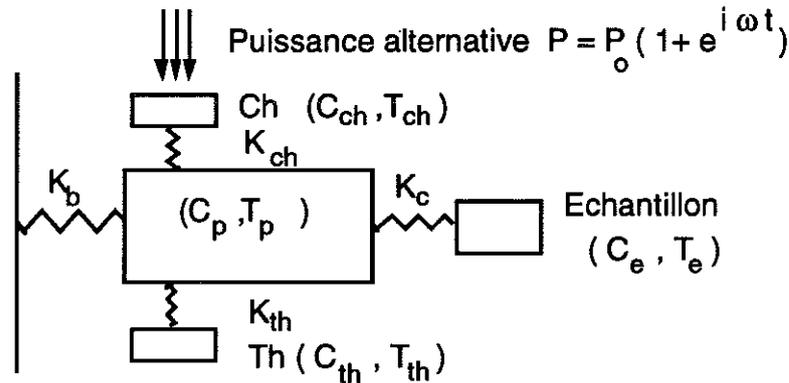


Figure I.8

Écrivons les équations qui permettent de déterminer la température au niveau de chaque éléments. Le bilan énergétique est le suivant :

$$\begin{cases} C_{ch} \frac{dT_{ch}}{dt} = P_o(1+e^{i\omega t}) - K_{ch}(T_{ch} - T_p) \\ C_p \frac{dT_p}{dt} = K_{ch}(T_{ch} - T_p) - K_b(T_p - T_b) - K_{th}(T_p - T_{th}) - K_c(T_p - T_e) \\ C_{th} \frac{dT_{th}}{dt} = K_{th}(T_p - T_{th}) \\ C_e \frac{dT_e}{dt} = K_c(T_p - T_e) \end{cases}$$

Ce type d'équation peut être résolu en utilisant des solutions de la forme :

$$\begin{cases} T_{ch} = T_b + T_{ch_0} + \Delta T_{ch} e^{i(\omega t - \varphi_{ch})} \\ T_{th} = T_b + T_{th_0} + \Delta T_{th} e^{i(\omega t - \varphi_{th})} \\ T_p = T_b + T_{p_0} + \Delta T_p e^{i(\omega t - \varphi_p)} \\ T_e = T_b + T_{e_0} + \Delta T_e e^{i(\omega t - \varphi_e)} \end{cases}$$

Ayant résolu dans les paragraphes précédent les différents cas de figures séparément, on peut montrer aisément qu'en première approximation en $(\omega\tau)^{-2}$ et $\omega^2(\tau_{th}^2 + \tau_{ch}^2 + \tau_e^2)$ la température lue par le thermomètre peut se mettre sous la forme :

$$T_{th}(t) = T_b + \frac{P_0}{K_b} + \frac{P_0}{C\omega} \left[1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2(\tau_{th}^2 + \tau_{ch}^2 + \tau_e^2) \right]^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (I-40)$$

avec

$$\begin{cases} C = C_e + C_{th} + C_{ch} + C_p \approx C_p \\ \tau = \frac{C}{K_b} \approx \tau_p \\ \tau_{th} = \frac{C_{th}}{K_{th}} \\ \tau_{ch} = \frac{C_{ch}}{K_{ch}} \\ \tau_e = \frac{C_e}{K_c} \end{cases}$$

et

$$\varphi \approx \arcsin \left[1 + \left[\frac{1}{\omega\tau} - \omega(\tau_{th} + \tau_{ch} + \tau_e) \right]^2 \right]^{-1/2}$$

IV.2 - Porte-échantillon de conductivité finie

La solution présentée dans le paragraphe précédent repose sur un certain nombre d'hypothèses. En effet, nous avons supposé que le porte-échantillon et l'échantillon avaient une diffusivité thermique infinie, de même nous avons négligé la capacité calorifique de la fuite thermique devant celle des différents éléments constituant le système étudié. Dans la réalité, ces conditions

sont en grande partie vérifiées. Nous allons étudier dans ce qui suit l'influence de la diffusion de la chaleur et comprendre comment se propage le flux de chaleur à l'intérieur d'un échantillon. Pour évaluer cette nouvelle contribution, nous choisissons un système ayant une géométrie simple. Soit un échantillon d'épaisseur L , de section efficace A , parcouru uniformément par un flux de chaleur alternatif à la position ($x = 0$). L'amplitude de l'oscillation thermique est mesurée sur l'autre face ($x = L$) qui est uniformément couplée au bain par la conductance K_b . La quantité de chaleur qui traverse à chaque instant l'échantillon est régie par la loi de Fourier, soit $q(x) = -K \frac{\partial T(x,t)}{\partial x}$, où $q(x)$ représente la quantité de chaleur à la position x par unité de temps, K la conduction thermique ($K = kA$) et $\frac{\partial T}{\partial x}(x,t)$ la dérivée spatiale de la température définie à chaque instant t . Si l'on regarde quelle est la quantité de chaleur qui traverse une distance dx , en faisant l'hypothèse que les pertes latérales dues à la convection et au rayonnement sont négligeables, on aboutit à une équation différentielle de la forme :

$$D \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = \frac{\partial T}{\partial t} , \quad (\text{I-41})$$

D étant la diffusivité thermique définie par la relation :

$$D = \frac{k}{\rho c} ,$$

où ρ est la densité et c la chaleur spécifique de l'échantillon considéré.

Dans le cas d'une barre semi infinie ($T = 0$ quand $x \rightarrow \infty$) soumise à une variation périodique de la température à une extrémité, on peut montrer que la solution de l'équation $T(x, t)$, définie à une position $x \neq 0$ à l'instant t , s'écrit :

$$T(x,t) = T_0 e^{-x/\lambda} e^{i(\omega t - x/\lambda)} , \quad (\text{I-42})$$

avec λ épaisseur caractéristique du milieu considéré. Elle dépend non seulement des propriétés intrinsèques du matériau mais aussi de la fréquence d'oscillation thermique ($\lambda = \sqrt{2D/\omega}$).

Nous voyons ainsi apparaître dans cette solution un terme d'amortissement de "l'onde chaleur" ($e^{-x/\lambda}$) et un terme de propagation de même période

que la température en $x = 0$, mais avec un déphasage ($e^{i(\omega t - x/\lambda)}$), la vitesse de propagation étant $\omega\lambda$.

A ce stade, essayons de résoudre le cas d'un porte-échantillon de dimensions finies, et regardons l'influence de la conductivité finie k du matériau.

La figure I.9 illustre le cas suivant :

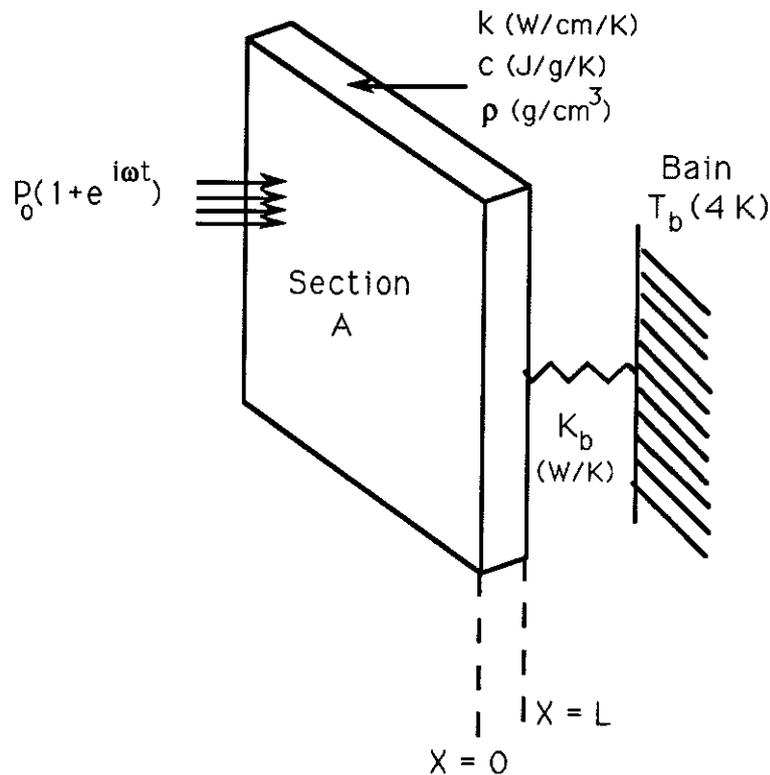


Figure I.9

Le porte-échantillon, de longueur L , est chauffé uniformément à l'aide d'une puissance $P_0(1 + e^{i\omega t})$, à travers sa surface latérale A , de position $x = 0$. Il est couplé par son autre face, de position $x = L$, à un bain thermique par l'intermédiaire d'une fuite thermique K_b . Nous nous intéressons au terme oscillant de la température. Nous réintroduirons la composante continue induite par la puissance P_0 à la fin de cette étude.

Une solution générale de l'équation de diffusion souvent utilisée est la suivante [5] :

$$T(x,t) = (P \operatorname{sh} ax + Q \operatorname{ch} ax) e^{i\omega t} \quad (\text{I-43})$$

avec $a = \frac{1}{\lambda} (1+i)$ et P et Q deux constantes complexes.

Cette solution représente les variations spatiale et temporelle de la température. On peut aisément séparer les deux variables de la manière suivante :

$$T(x,t) = T(x) \cdot T(t) \quad (\text{I-44})$$

Intéressons-nous à la variation de la température en fonction de la position $T(x)$. Cette expression doit vérifier la loi de Fourier en chaque point de position x , ($Q(x) = -K \frac{\partial T}{\partial x}$) où $K = kA$: est la conduction thermique d'un élément de longueur dx . On obtient ainsi le système d'équations :

$$\begin{cases} T(x) = P \operatorname{sh} ax + Q \operatorname{ch} ax \\ Q(x) = -K \frac{\partial T}{\partial x} = -KPa \operatorname{ch} ax - KQa \operatorname{sh} ax \end{cases} \quad (\text{I-45})$$

Sullivan et Seidel ont suggéré que, pour résoudre ce système d'équations, on devait exprimer les variations de la température ainsi que du flux de chaleur en un point donné en fonction d'un autre point, en utilisant la représentation matricielle de Carslaw [6].

Soient T_0 et Q_0 la température et le flux thermique en $x = 0$, et T_L et Q_L la température et le flux thermique en $x = L$

$$\begin{cases} T_L = AT_0 + BQ_0 \\ Q_L = CT_0 + DQ_0 \end{cases} \quad (\text{I-46})$$

Écrivons le système d'équation (45) pour chacune des positions ($x = 0$) et ($x = L$).

$$\begin{cases} T_0 = Q \\ Q_0 = -KPa \end{cases} \quad (\text{I-47})$$

$$\begin{cases} T_L = P \operatorname{sh} aL + Q \operatorname{ch} aL \\ Q_L = -KPa \operatorname{ch} aL - KQa \operatorname{sh} aL \end{cases} \quad (\text{I-48})$$

ou

$$\begin{cases} T_L = T_o \operatorname{ch} aL - \frac{Q_o}{Ka} \operatorname{sh} aL \\ Q_L = (-Ka)T_o \operatorname{sh} aL + Q_o \operatorname{ch} aL \end{cases} \quad (\text{I-49})$$

En identifiant (I-46) et (I-49), nous pouvons écrire les égalités suivantes :

$$\begin{cases} A = D = \operatorname{ch} aL \\ B = -\frac{\operatorname{sh} aL}{Ka} \\ C = -Ka \operatorname{sh} aL \end{cases} \quad (\text{I-50})$$

La représentation matricielle du système d'équation (II-46) s'écrit :

$$\begin{pmatrix} T_L \\ Q_L \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & A \end{pmatrix} \begin{pmatrix} T_o \\ Q_o \end{pmatrix} \quad (\text{I-51})$$

Revenons maintenant au cas illustré dans la figure I.9. On peut remarquer que le flux de chaleur qui arrive à la position $x = 0$: $Q_o = P_o$, tandis que le flux thermique défini à la position $x = L$ représente la puissance dissipée à travers la fuite thermique K_b : $Q_L = K_b T_L$.

En utilisant la forme matricielle établie (I-51) et en substituant ces 2 hypothèses, nous obtenons les équations suivantes :

$$\begin{cases} T_L = AT_o + BP_o \\ K_b T_L = CT_o + AP_o \end{cases} \quad (\text{I-52})$$

d'où

$$\begin{cases} T_o = \frac{T_L - BP_o}{A} \end{cases} \quad (\text{I-53})$$

$$\begin{cases} K_b T_L = \frac{CT_L - CBP_o + A^2 P_o}{A} = \frac{CT_L + P_o(A^2 - BC)}{A} \end{cases} \quad (\text{I-54})$$

Evaluons l'expression $A^2 - BC$ en utilisant les relations établies (I-50) :

$$A^2 - BC = \operatorname{ch}^2 aL - \operatorname{sh}^2 aL = 1$$

De l'équation (II-54), nous pouvons déduire l'expression de la température T_L :

$$T_L = \frac{P_o}{AK_b - C} \quad (I-55)$$

En remplaçant A et C, nous obtenons :

$$T_L = \frac{P_o/K_b}{\text{chaL} + \frac{K a}{K_b} \text{shaL}} \quad (I-56)$$

avec
$$a = \sqrt{\frac{\omega}{2D}} (1+i).$$

En reprenant les notations utilisées [1,5] ($\theta = aL$), nous arrivons à la forme suivante :

$$T_L = \frac{P_o/K_b}{\text{ch}\theta + \frac{\theta K}{K_b L} \text{sh}\theta} \quad (I-57)$$

Avant d'entreprendre les développements limités en $\text{sh}\theta$ et $\text{ch}\theta$ qui s'imposent, nous devons tenir compte de la condition suivante : la longueur du porte-échantillon L est petite devant sa longueur thermique caractéristique. En d'autres termes $\frac{L}{\lambda} \ll 1$ ou $L \ll \sqrt{2D/\omega}$.

Ainsi, on en déduit que le pré-facteur de $\text{sh}\theta$, $\frac{\theta K}{K_b L} \gg 1$, et nous pouvons limiter le développement de $\text{ch}\theta$ à un ordre inférieur à celui de $\text{sh}\theta$.

En nous arrêtant au 2ème ordre en ω et en utilisant les relations suivantes :

$$\frac{K\theta^2}{L} = \omega C_p i \quad \text{avec } C_p = \rho c A L \quad \text{capacité calorifique du porte-échantillon}$$

$$\frac{LK_b}{K\theta^2} = \frac{1}{\omega \tau_p i} \quad \text{avec } \tau_p = \frac{C_p}{K_b} \quad \text{temps de relaxation thermique du porte-échantillon)$$

$$\tau_{ip} = \frac{1}{\sqrt{90}} \frac{L^2}{D} \quad \tau_{ip} \text{ temps de relaxation interne du porte-échantillon}$$

$$\frac{L^2}{D\tau_p} = \frac{K_b}{K_p} \quad K_p \text{ conduction thermique du porte-échantillon } K_p = k \frac{A}{L}.$$

Notons que la condition $\frac{\theta K}{K_b L} \gg 1$ peut également s'écrire :

$\frac{\theta^2 K}{K_b L} \gg 1$ ou encore $\omega\tau_p \gg 1$, qui implique que le temps de relaxation thermique du porte-échantillon est grand devant la période d'oscillation thermique.

Nous obtenons finalement :

$$T_L = \frac{P_o}{\omega C_p} \left[1 + \frac{1}{\omega^2 \tau_p^2} + \omega^2 \tau_{ip}^2 + \frac{2 K_b}{3 K_p} \right]^{-1/2} \quad (I-58)$$

Jusqu'à présent, nous n'avons considéré que la composante alternative de la puissance de chauffage $P_o e^{i\omega t}$. En introduisant le terme temporel et la composante continue, la température à l'autre extrémité du porte-échantillon s'écrit :

$$T_L = T_b + \frac{P_o}{K_b} + \frac{P_o}{\omega C_p} \left(1 + \frac{1}{\omega^2 \tau_p^2} + \omega^2 \tau_{ip}^2 + \frac{2 K_b}{3 K_p} \right)^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (I-59)$$

où le déphasage total φ tient compte séparément de la constante de temps thermique du porte-échantillon ($\tau_p = C_p/K_b$) et du temps de relaxation intrinsèque du matériau qui le constitue ($\tau_{ip} = 1/\sqrt{90} (L^2/D)$).

$$\text{tg}\varphi = \text{tg}(\varphi_p + \varphi_{ip}) \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \text{tg}\varphi_p = \omega\tau_p \\ \text{tg}\varphi_{ip} = \omega\tau_{ip} \end{cases}$$

Par analogie à l'étude menée dans le paragraphe précédent, nous pouvons introduire les temps de relaxation interne de chacun des éléments disposés sur le porte-échantillon (échantillon, chauffage et thermomètre) et ainsi tenir compte de leur diffusivité finie.

Par souci d'homogénéité (I-40), notons les constantes suivantes : τ_{ip} , τ_{ie} , τ_{ich} , τ_{ith} les temps de relaxation internes liés à la diffusivité finie du porte-échantillon, de l'échantillon, du chauffage et du thermomètre.

Ainsi, nous pouvons remarquer que ces différentes constantes de temps internes interviennent de la même manière que les temps de relaxation thermique τ_e , τ_{th} , τ_{ch} de l'échantillon, du thermomètre et du chauffage introduits dans la relation (I-40). Nous allons définir des notations similaires :

$$\tau_{it}^2 = \tau_{ip}^2 + \tau_{ie}^2 + \tau_{ich}^2 + \tau_{ith}^2$$

$$\tau_t^2 = \tau_e^2 + \tau_{ch}^2 + \tau_{th}^2$$

de même :

$$\varphi_{it} = \varphi_{ip} + \varphi_{ie} + \varphi_{ich} + \varphi_{ith}$$

$$\varphi_t = \varphi_e + \varphi_{ch} + \varphi_{th}$$

La température de l'échantillon lue par le thermomètre fixé sur un porte-échantillon, de conductivité finie, chauffé par une puissance $P_0 (1 + e^{i\omega t})$ dissipée à travers une résistance chauffante s'écrit :

$$T_{th}(t) = T_b + \frac{P_0}{K_b} + \frac{P_0}{\omega C} \left[1 + \frac{1}{\omega^2 \tau^2} + \omega^2 \tau_{it}^2 + \omega^2 \tau_t^2 + \frac{2}{3} \frac{K_b}{K_p} \right]^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (I-60)$$

avec :

$$C = C_e + C_{th} + C_{ch} + C_p \approx C_p \text{ capacité calorifique totale}$$

$$\tau = \frac{C}{K_b} \text{ constante de temps thermique du système}$$

τ_t : constante de temps thermique totale qui fait intervenir les différentes conductances thermiques entre porte-échantillon/échantillon, porte-échantillon/thermomètre et porte-échantillon/chauffage.

τ_{it} : temps de relaxation interne total lié à la diffusivité du porte-échantillon, de l'échantillon du thermomètre, ainsi que du chauffage.

$\varphi = \varphi_{it} + \varphi_t$ déphasage global de la température.

Dans cette relation, nous avons omis volontairement les rapports des conductances de la fuite thermique sur celle de l'échantillon ($\frac{K_b}{K_e}$), du chauffage ($\frac{K_b}{K_c}$) ainsi que du thermomètre ($\frac{K_b}{K_t}$), pour ne garder que le terme $\frac{2}{3} \frac{K_b}{K_p}$. Nous pouvons montrer qu'en jouant sur la géométrie du système et plus précisément sur l'épaisseur de chaque élément, la conductance thermique propre de l'échantillon K_e , du chauffage K_c , ainsi que celle du thermomètre K_t sera très grande devant K_b et donc ces termes correctifs peuvent être négligés. Ainsi, nous nous limitons au terme correctif $\frac{2}{3} \frac{K_b}{K_p}$ relatif à la conductance thermique du porte-échantillon entre les deux faces $x = 0$ et $x = L$.

Remarque :

Au cours de cette étude, nous n'avons pas discuté l'influence de la diffusion de la chaleur le long de la fuite thermique qui relie le porte-échantillon au bain thermique qui, lui, est à une température quasiment constante T_b . Cette nouvelle considération a pour effet de rajouter un déphasage supplémentaire entre la composante alternative de la puissance évacuée par la fuite thermique et la modulation de température du porte-échantillon. La résolution de l'équation de diffusion a montré [4] que le terme correctif est infiniment petit et au moins du second ordre en $(\omega\tau)^{-1}$ si l'on choisissait une fuite thermique de diffusivité thermique D suffisamment élevée pour que la quantité $\frac{\omega l^2}{2D}$ soit un infiniment petit, d'ordre égal à $(\omega\tau)^{-1}$ (l étant la longueur de la fuite thermique).

V - THERMOMETRIE

Comme nous l'avons annoncé, le principe de mesure repose sur la connaissance de l'amplitude des oscillations thermiques, ce qui entraîne une très bonne maîtrise de la température et une bonne fiabilité des thermomètres utilisés. Au cours de l'étude classique des échanges de températures intervenant dans le système, menée dans le premier paragraphe, nous avons montré qu'un courant de chauffage de fréquence $f/2$ engendrait une composante continue de la température que l'on désignera comme température moyenne, et un terme oscillant qui constituera la modulation de température. Nous avons précisé que ces deux contributions ne dépendaient essentiellement que de la puissance dissipée dans l'élément chauffant et de la fréquence d'oscillation

thermique. Nous pouvons ainsi constater que, si nous ne disposons que d'un seul couple (chauffage, thermomètre), l'amplitude de la modulation de température sera fixée pour une température donnée T , ou encore pour une puissance appliquée P . Dans notre dispositif de mesure, il nous a paru judicieux de disposer de deux couples (chauffage, thermomètre) (Ch_1, Th_1) et (Ch_2, Th_2) pour pouvoir travailler à une fréquence donnée f et une température T , avec des amplitudes d'oscillation de températures variables. De plus, le fait de réguler la température de l'ensemble à l'aide du 1er couple (Ch_1, Th_1) permet de nous affranchir des éventuelles fluctuations de température du bain thermique qui peuvent apparaître. D'autre part, pour minimiser les constantes de temps thermiques de diffusion entre l'échantillon et le thermomètre (eq.I-40), nous placerons le deuxième thermomètre Th_2 , que l'on appellera thermomètre de mesure par la suite, le plus proche possible de l'échantillon.

V.1 - Mesure de température

Compte tenu de ce qui précède, nous avons équipé le porte-échantillon de deux couples de chauffage et thermomètre (Figure I.10). Le premier couple (Ch_1, Th_1) est relié à un étage de régulation PID [7]. Ce détecteur multifonction va permettre de maintenir la température de l'ensemble à une température moyenne constante. La deuxième résistance chauffante est reliée à un convertisseur tension-courant qui permet de l'alimenter en courant alternatif à la fréquence $f/2$, la référence de fréquence étant celle du générateur synthétiseur. Le deuxième thermomètre Th_2 est polarisé par un courant continu. Puisque l'on a dissipé une puissance à travers la deuxième résistance chauffante Ch_2 , il s'en suit une variation sinusoïdale de la température. Il apparaît donc aux bornes du thermomètre une tension alternative additionnelle qui est proportionnelle à la variation de la résistance. La tension aux bornes du thermomètre s'écrit :

$$V_{th} = R_{th} I_{dc} + dR_{th} I_{dc}$$

La tension continue est détectée à la sortie par un voltmètre digital moyennneur dont on a choisi une constante de temps d'intégration à environ 10 s par mesure. La tension alternative est mesurée après amplification (gain 100) à l'aide d'une détection synchrone calée à la fréquence f de référence.

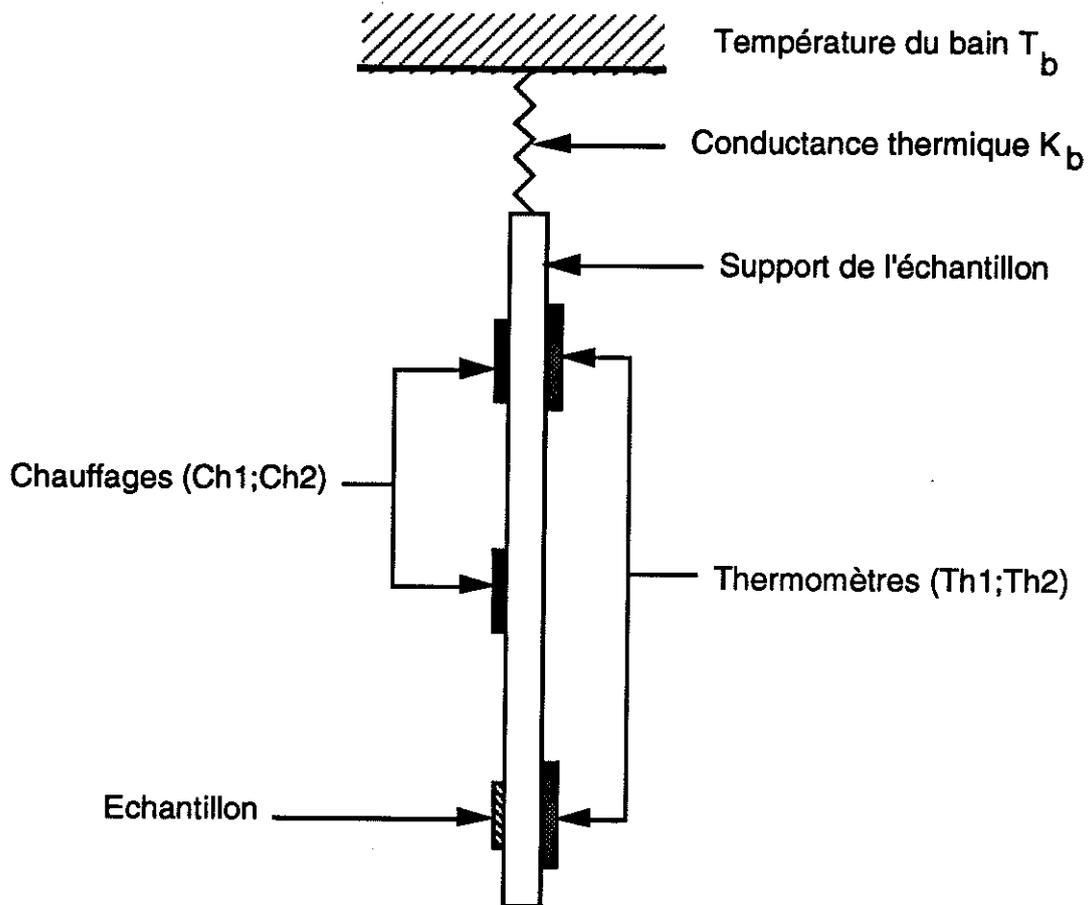


Figure I.10

V.2 - Étalonnage des thermomètres

Nous avons étalonné les thermomètres Th_1 et Th_2 par comparaison avec une platine ($R = 100 \Omega$ à $T = 0^\circ C$) choisie pour sa faible résistivité résiduelle. Cette dernière a été étalonnée, à basse température, par comparaison à une sonde thermométrique en germanium. D'autre part, nous avons constaté que la loi standard de variation des platines [8] n'était valable qu'à partir d'environ 100 K ; or, notre dispositif de mesure doit fonctionner dans une gamme de température comprise entre 4 K et 300 K. Il nous a paru nécessaire d'entreprendre une série d'interpolations pour mieux décrire les variations de la résistance sur un intervalle assez large. Nous avons procédé de la manière suivante :

Pour chaque valeur de la résistance du thermomètre de platine, nous cherchons quelles valeurs de résistance et de température se rapprochent le

plus de cette valeur dans le tableau d'étalonnage. Nous retenons ensuite les six couples qui encadrent cette valeur, puis nous essayons de trouver une loi de la forme :

$$R = f(T) \text{ ou inversement.}$$

Dans notre cas, la loi que nous avons retenue est de la forme :

$$\text{Log}T = A(\text{log}R)^2 + B(\text{log}R) + C \quad (\text{I-61})$$

L'expression de la température s'écrit :

$$T = \exp(A(\text{log}R)^2 + B(\text{log}R) + C) \quad (\text{I-62})$$

Nous pouvons ainsi déduire la valeur du jeu de coefficients qui convient, pour chaque valeur de résistance, en utilisant la méthode des moindres carrés. Nous avons ainsi obtenu une interpolation qui rend bien compte des variations de la résistance du thermomètre platine utilisé en fonction de la température entre 4 et 300 K avec un écart $T_{\text{cal}} - T_{\text{table}}$ allant de 0.1 K à 10 K à 0.01 K à 300 K.

Cette sonde thermométrique va nous permettre d'étalonner les thermomètres placés sur le porte-échantillon. La figure I.11 présente la disposition des divers éléments et explicite la procédure d'étalonnage que nous avons adoptée.

Le régulateur PID est relié au couple (thermomètre platine et résistance de chauffage) situé sur la ligne de base.

Les deux thermomètres disposés sur le porte-échantillon sont polarisés par un même courant continu. La tension continue aux bornes de chacun de ces deux thermomètres est détectée séparément à la sortie par un voltmètre digital. Le régulateur PID est relié au thermomètre platine par l'intermédiaire d'un pont basse impédance. En utilisant le tableau d'étalonnage préalablement établi pour cette résistance de platine, nous réglons la ligne de base à la température T. Connaissant le courant de polarisation des deux thermomètres et mesurant la tension qui apparaît à leurs bornes, nous pouvons déduire la valeur de la résistance de chaque thermomètre pour une température réglée de la ligne de base. Pour éviter un étalonnage erroné, il faut s'assurer que la totalité de la

puissance dissipée au niveau de la résistance chauffante de la ligne de base est évacuée par la fuite thermique vers le bain, ainsi le porte-échantillon est à la même température que la ligne de base. D'autre part, il faut veiller à ce que le courant de polarisation des thermomètres ne crée pas de surchauffe. En effet, une puissance supplémentaire dissipée au niveau des thermomètres entraîne une erreur sur la température du porte-échantillon, et par conséquent un étalonnage inexact.

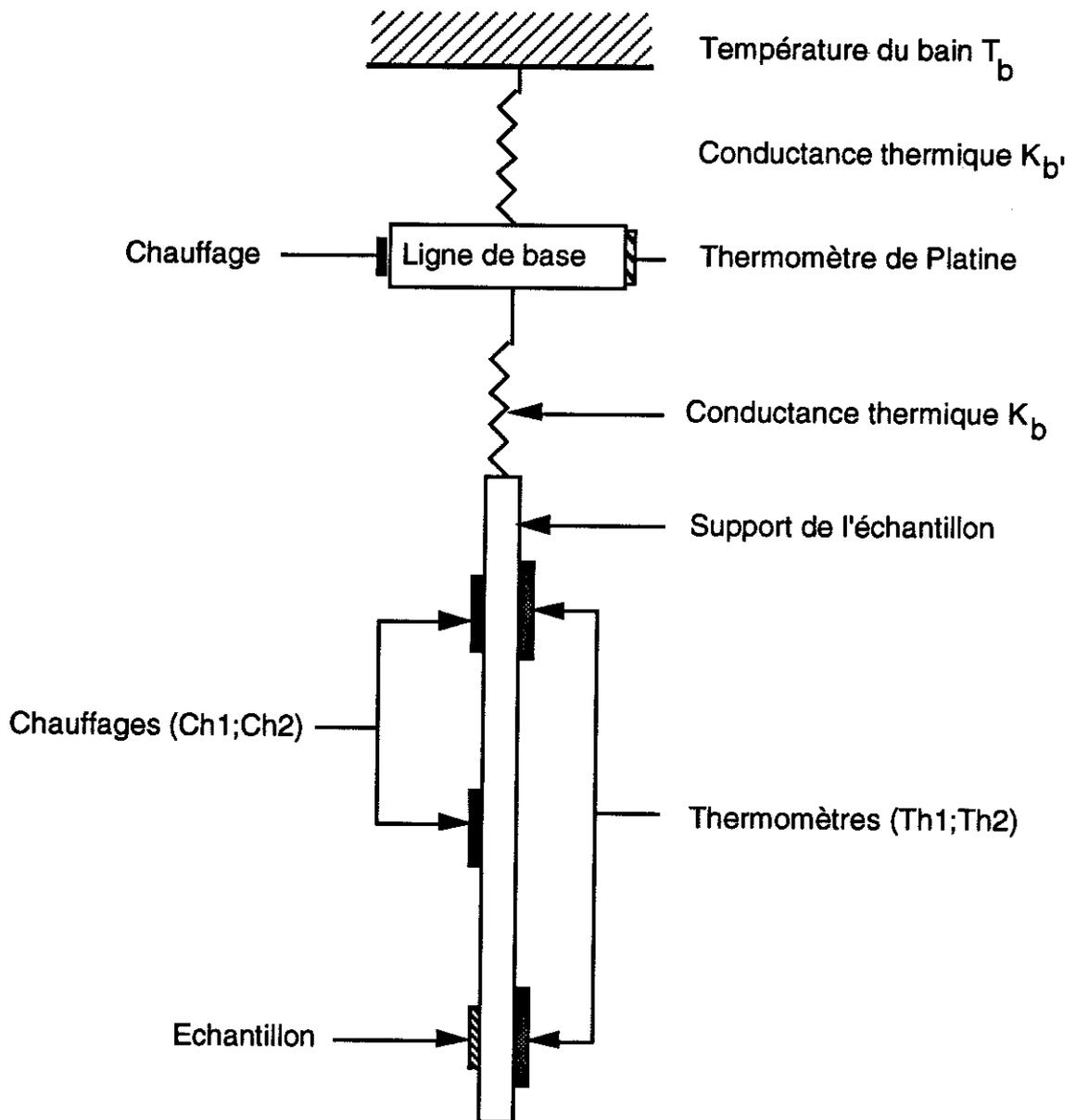


Figure I.11

V.3 - Choix des thermomètres de mesure

V.3.1 Thermomètres en platine évaporé

Lors de nos premiers essais, le porte-échantillon que nous avons utilisé était le suivant :

Un disque de saphir poli de 1 cm de diamètre. Sur l'une des faces, deux plots de platine de $2,4 \text{ mm}^2$, ainsi que deux bandes d'inox de 1000 \AA d'épaisseur ont été évaporés à l'aide d'un magnétron. Sur l'autre face, une couche de platine de 3000 \AA d'épaisseur avait été déposée. Les deux résistances d'inox d'environ $200 \text{ } \Omega$ constituent les éléments chauffants (Ch_1, Ch_2) précédemment évoqués, tandis que les deux plots de platine une fois gravés vont servir de thermomètres.

Nous avons obtenu des résistances de platine d'environ $300 \text{ } \Omega$, en utilisant la technique de photolithographie, suivie d'une attaque chimique du platine. Cependant, la solution d'attaque du platine étant très violente, nous n'avons pas réussi à protéger les résistances de chauffage en inox [9].

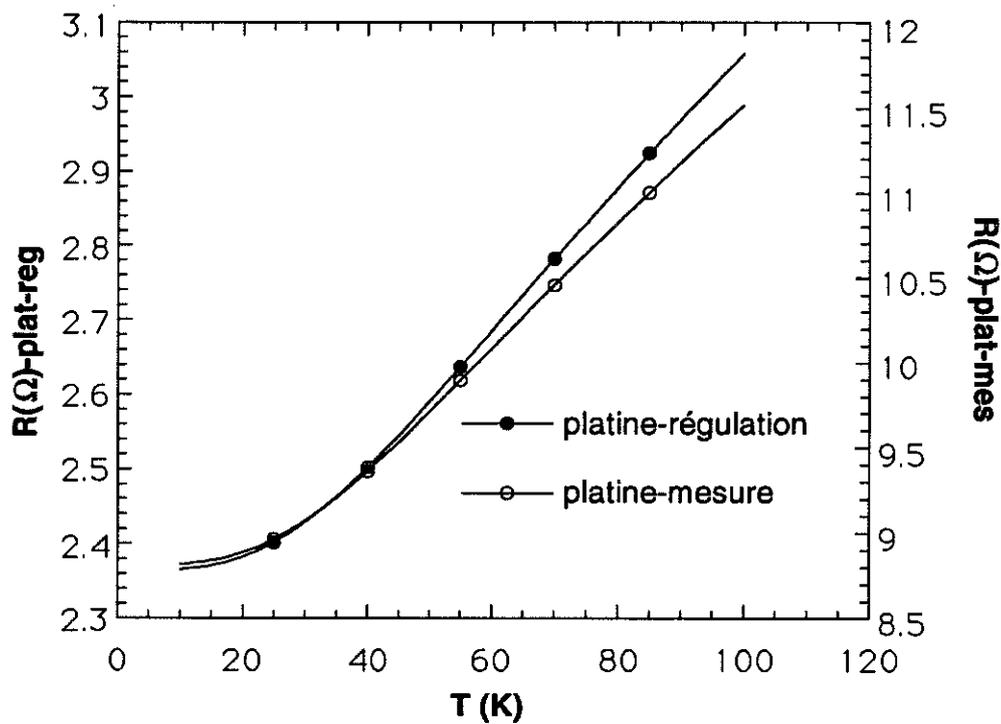


Figure I.12

La deuxième technique a consisté à attaquer les deux plots de platine par sablage. Nous avons ainsi gravé deux thermomètres Th_1, Th_2 . Nous avons ensuite étalonné ces deux sondes thermiques par comparaison avec la résistance de platine. La figure I.12 présente la variation ohmique de ces thermomètres.

i) Mesure de la température :

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que c'est la tension aux bornes du thermomètre Th_2 qui va nous renseigner sur la température du porte-échantillon et de l'oscillation de température induite par le courant alternatif de fréquence $f/2$ parcourant la résistance de chauffage Ch_2 . Mais, pour pouvoir déterminer ces deux quantités T et dT , il nous faut dans un premier temps trouver les lois d'interpolations des courbes $R(T)$ des deux résistances de platine obtenues par comparaison au thermomètre de la ligne de base.

Nous avons procédé de la même manière que pour la résistance de référence (ligne de base). Cependant, il s'est avéré que, pour les résistances gravées de platine, une loi de la forme :

$$R(T) = AT^2 + BT + C \quad (I-63)$$

convenait le mieux.

Par la méthode des moindres carrés, nous déterminons les coefficients A , B et C et ainsi nous pouvons accéder à la température du premier thermomètre dit thermomètre de régulation Th_1 .

$$T_{\text{reg}} = \frac{-B + \sqrt{B^2 - 4A(C-R)}}{2A}, \quad (I-64)$$

mais aussi à la température du deuxième thermomètre que l'on appellera thermomètre de mesure :

$$T_{\text{mes}} = \frac{-B' + \sqrt{B'^2 - 4A'(C'-R')}}{2A'}. \quad (I-65)$$

Pour les raisons évoquées dans le paragraphe (V), nous prendrons par la suite comme température de l'échantillon la température lue par le deuxième thermomètre (T_{mes}). Néanmoins, nous avons vérifié que l'écart ($T_{reg} - T_{mes}$) restait relativement faible, ce qui suggère que la température du porte-échantillon est quasiment homogène et que le gradient de température est négligeable.

De ce qui précède, nous déduisons qu'à chaque température régulée T_{reg} , nous pouvons accéder à la température T_{mes} à proximité de l'échantillon, Equ. (I-65).

ii) Mesure de l'oscillation de température :

La tension alternative aux bornes du 2^{ème} thermomètre (Th_2) mesurée à la sortie, à l'aide de la détection synchrone permet d'obtenir la variation de la résistance du thermomètre dR . Pour évaluer à quelle oscillation de température dT cela correspond, il nous reste à dériver l'équation (I-63) :

$$\frac{dR}{dT} = 2A' T_{mes} + B'$$

puis de déduire dT :

$$dT = \frac{dR}{2A' T_{mes} + B'} \quad (I-66)$$

Nous voyons que nous avons accès à la modulation de température puisque dR est mesuré, et A' , T_{mes} et B' sont déterminés par les relations précédentes.

Bien que ce prototype de support d'échantillon ait apporté des résultats encourageants qui seront présentés dans les premiers tests, nous étions limités par les caractéristiques des thermomètres platine gravé, la pente étant trop faible. Nous avons choisi de les remplacer par des thermomètres en nitrure de niobium.

V.3.2 - Thermomètres NbN évaporé

Ces thermomètres sont réalisés au laboratoire [10]. Ils se présentent sous la forme d'un substrat de saphir de $2 \times 4 \text{ mm}^2$ de surface, sur lequel a été évaporée une couche de nitrure de niobium. Quatre plots de $0.8 \times 0.8 \text{ mm}^2$ de platine sont également évaporés pour permettre les soudures des fils tensions et courants aux bornes du thermomètre. L'autre face du saphir est entièrement revêtue d'une couche de platine. Pour l'étalonnage de ces deux nouveaux thermomètres, ainsi que pour la mesure de température et de l'oscillation de température, nous avons procédé de la même manière que pour les deux thermomètres platine gravés.

i) Mesure de la température :

La meilleure loi qui décrit les variations de résistance des thermomètres (NbN) en fonction de la température est de la forme :

$$T(R) = A'R^2 + B'R + C \quad (\text{I-67})$$

Nous avons vérifié que l'écart relatif $\left(\frac{T_{\text{cal}} - T_{\text{étal}}}{T_{\text{cal}}}\right)$ restait inférieur à 1 ‰. Les courbes représentant les variations de la résistance de chacun de ces thermomètres en fonction de la température sont présentées dans la figure I.13.

ii) Mesure de l'oscillation de température :

Comme précédemment, en dérivant la relation (I-67), nous obtenons l'expression de la modulation de température :

$$dT = (2A'R + B')dR \quad (\text{I-68})$$

Mesurant R et dR aux bornes du thermomètre de mesure Th_2 et connaissant les coefficients A' et B' donnés par la relation (I-67), nous déduisons la température T_{mes} ainsi que la valeur de l'oscillation thermique pour chaque température régulée T_{reg} (Th_1 thermomètre de régulation).

V.3.3 - Comparaison

La figure I.14 présente une comparaison entre les coefficients caracté

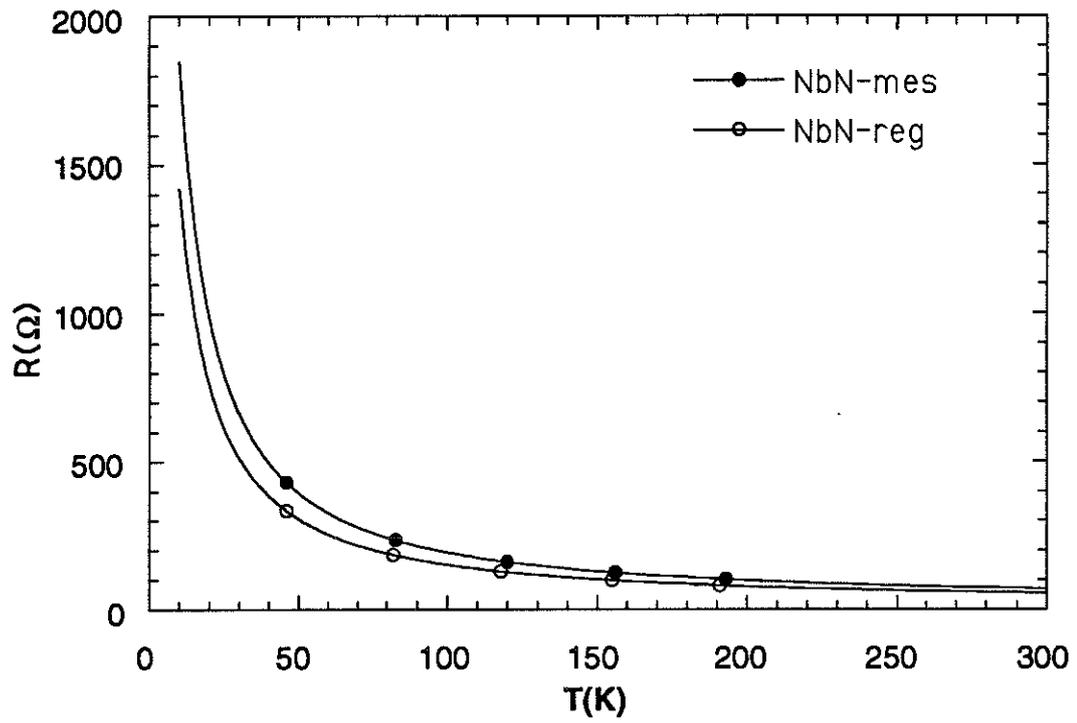


Figure I.13

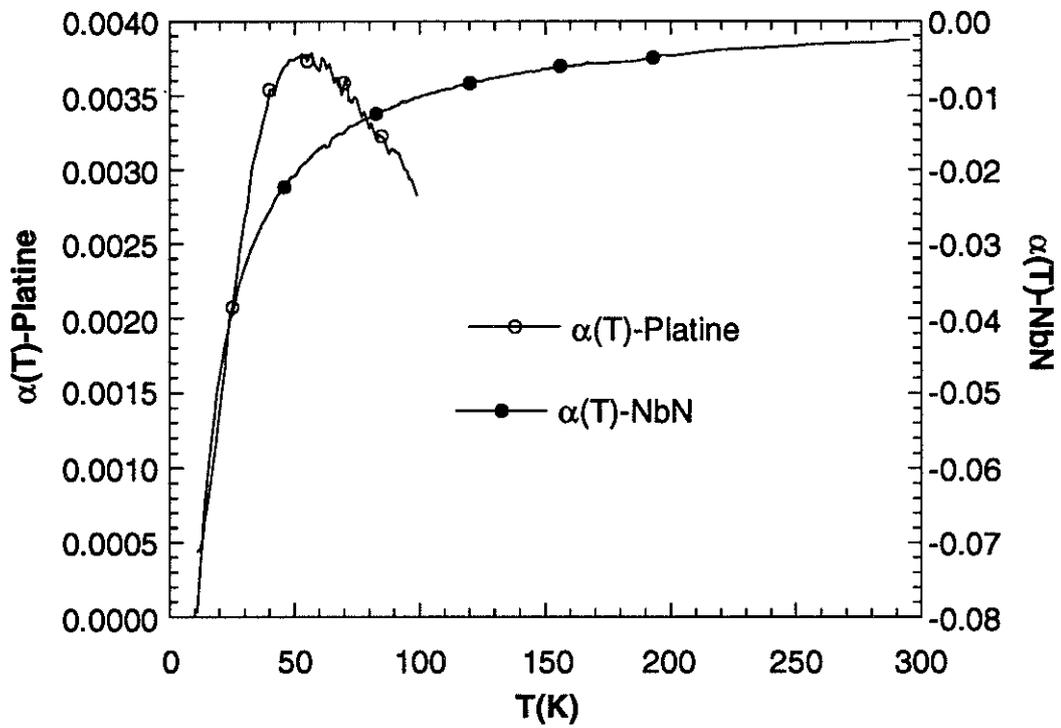


Figure I.14

ristiques ($\alpha = \frac{1}{R} \frac{dR}{dT}$) relatifs aux thermomètres NbN et aux thermomètres de platine. A la vue de ces résultats, notre choix s'est porté sur les thermomètres de nitrure de niobium dont la sensibilité est au moins 4 fois plus grande que celles des platines gravées.

VI - CHOIX DE LA FREQUENCE DE TRAVAIL

La fréquence utilisée doit être un compromis entre les basses fréquences, nécessaires pour créer des oscillations thermiques, et des fréquences suffisamment élevées pour être dans une bande de fréquences qui permette un bon fonctionnement des détections synchrones. Pour notre dispositif expérimental, nous avons choisi de travailler à une fréquence d'une valeur typique de 4 Hz.

VII - ECHANTILLON

VII.1 - Elaboration et orientation

L'échantillon a été élaboré par le service Métallurgique du laboratoire à partir d'un germe polycristallin d'erbium 4N. La méthode de croissance utilisée est la méthode classique Czochralski [11]. Cette technique est applicable à de nombreux dispositifs de chauffage (fours résistifs, fours à induction). Dans notre cas, l'échantillon d'erbium polycristallin est placé dans un creuset de cuivre refroidi à l'eau et polarisé positivement par contact tournant à charbon. La fusion de l'échantillon est assurée par trois arcs électriques dans une atmosphère d'argon purifiée. L'erbium, comme toutes les terres rares, a aux températures élevées (ici $T = T_f = 1522^\circ\text{C}$) une réactivité chimique extrêmement grande. Il est donc nécessaire de réaliser les préparations sous vide ou, comme dans notre cas, sous atmosphère d'Ar soigneusement purifiée et desséchée. L'échantillon est maintenu en fusion ; le gradient de température est assuré par une tige refroidie au bout de laquelle est fixé un germe chimiquement inerte vis-à-vis de l'erbium en fusion. La croissance du cristal s'effectue par translation du "germe" vers le haut. La rotation de la tige assure une parfaite homogénéité thermique de l'interface liquide solide. De plus, la sole en cuivre est en rotation au cours de la fusion, assurant ainsi pendant le tirage l'homogénéité thermique

du bain tout au long de la croissance du cristal. Des variations successives du diamètre de tirage à vitesse constante permettent d'obtenir un monocristal à partir d'un germe polycristallin. Lors des rétrécissements, seuls les cristallites capables d'évacuer le mieux les calories ne fondent pas. Après plusieurs "necking", le tirage devient monocristallin. L'une des difficultés rencontrées avec l'erbium est sa forte tension de vapeur, la condensation de ces vapeurs sur les parties froides du four rendant le contrôle du tirage très difficile. Le cristal ayant atteint les dimensions voulues, nous arrêtons le tirage. Pour vérifier si l'échantillon obtenu est bien monocristallin, nous avons utilisé la méthode Laué en retour. Connaissant le groupe d'espace de l'erbium, les symétries de la maille cristalline sont facilement repérées à l'aide d'un diagramme Laué. Nous avons ensuite orienté le cristal suivant l'axe c qui, dans le cas de l'erbium, est un axe d'ordre 6.

VII.2 - Découpe et traitement thermique

Après avoir orienté le cristal suivant l'axe c , nous avons collé une tige de quartz comme repère afin d'effectuer la découpe le long de cet axe. La technique d'électroérosion couramment utilisée pour la découpe du matériau conducteur s'est révélée inefficace dans notre cas. En effet, les deux faces sectionnées étaient recouvertes d'une couche de carbone provenant d'une réaction de l'erbium avec le kérosène. De plus, les deux faces étaient altérées et granuleuses. Nous avons donc pensé à cliver les premiers plans à la surface en utilisant une solution d'attaque électrolytique assez violente [12]. Le résultat n'étant pas concluant, nous avons décidé d'utiliser une scie à fil diamanté comme technique de découpe. Finalement, le premier échantillon a une forme parallélépipédique, de côté $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ et de 3 mm de long. Sa masse est de 8 mg. Afin de s'assurer qu'aucune impureté (atomes étrangers) ne se soit infiltrée au cours de la croissance ou de la découpe, nous avons analysé l'échantillon à l'aide d'un microscope électronique à balayage équipé d'une diode d'analyse chimique (EDS). Les premiers essais de mesure de $\frac{dR}{dT}$ concernant ce barreau sont présentés dans le chapitre III. Au vu de ces résultats, nous avons décidé d'augmenter la surface d'échange entre le porte-échantillon et l'échantillon, et de réduire également l'épaisseur de ce dernier. L'échantillon que nous allons étudier en détail a la forme d'un disque d'épaisseur 0.12 mm, de section elliptique de grand axe 3 mm, parallèle à l'axe c , de petit axe 2 mm et de masse 4.2 mg. Pour réduire et tenter d'éliminer la concentration des contraintes internes et des dislocations contenues dans l'échantillon, nous lui avons fait

subir un traitement thermique adéquat [13]. L'erbium est placé dans une petite ampoule de silice (SiO_2). Cette dernière est entourée d'une enveloppe de tantale (Ta). Le tout est scellé dans un tube de silice sous une pression d'environ 5.10^{-6} Torr. L'échantillon est ensuite recuit pendant 24h à 900°C . Les contacts sur l'échantillon sont réalisés par soudure par point à l'aide d'un fil d'inox de 0.1 mm. Le rapport l/s vaut 50 cm^{-1} .

VIII - CONSTANTES DE TEMPS THERMIQUES DU SYSTEME

VIII.1 - Estimations numériques

L'équation (I-60) fait intervenir différentes constantes de temps thermiques que nous allons évaluer au voisinage de 100 K. Les thermomètres, ainsi que les chauffages, ayant été évaporés, nous pouvons négliger leurs constantes de couplage τ_{ch} et τ_{th} ainsi que les constantes de diffusion interne τ_{ich} et τ_{ith} devant les autres temps de relaxation thermique. L'équation (I-60) s'écrit :

$$T_{th}(t) = T_b + \frac{P_o}{K_b} + \frac{P_o}{\omega c} \left[1 + \frac{1}{\omega^2 \tau^2} + \omega^2 (\tau_e^2 + \tau_{ip}^2 + \tau_{ie}^2) + \frac{2 K_b}{3 K_p} \right]^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (\text{I-69})$$

i) Temps de relaxation thermique de l'échantillon :

La conductivité thermique de la colle (M610) utilisée pour fixer l'échantillon sur son support est d'au moins $5 \text{ WK}^{-1}\text{cm}^{-2}$. La surface de l'échantillon en contact avec cette colle est d'environ 5 mm^2 . Ainsi, la valeur de τ_e ($\tau_e = \frac{C_e}{K_c}$) est :

$$\tau_e \approx 2.5 \text{ ms.}$$

ii) Temps de relaxation interne de l'échantillon :

$$\tau_{ie} = \frac{1}{\sqrt{90}} \frac{L_e^2}{D_e}$$

$$C_e \approx 0.15 \text{ Jg}^{-1}\text{K}^{-1}, \quad k_e \approx 0.10 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}, \quad \rho_e = 9 \text{ gcm}^{-3}, \quad L_e \approx 3 \text{ mm}, \quad D_e = \frac{k_e}{\rho_e C_e},$$

$$D_e \approx 0.08 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}, \quad \tau_{ie} \approx 0.1 \text{ ms.}$$

L'erbium étant métallique, sa diffusivité va augmenter quand la température va baisser. Ce terme sera donc d'autant plus négligeable à basse température.

iii) Temps de relaxation interne du porte-échantillon :

$$\tau_{ip} = \frac{1}{\sqrt{90}} \frac{L_p^2}{D_p},$$

L_p étant la distance entre le chauffage Ch_2 et l'échantillon $L_p \approx 5$ mm, $C_p = 0.13 \text{ JK}^{-1}\text{g}^{-1}$, $k_p = 5 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$, $\rho_p = 4 \text{ gcm}^{-3}$, ce qui conduit à $\tau_{ip} \approx 2.5$ ms.

Finalement, le terme $\omega^2(\tau_{ip}^2 + \tau_{ie}^2 + \tau_e^2) \approx 0.008 \ll 1$ et l'expression (I-69) s'écrit :

$$T_{th}(t) = T_b + \frac{P_o}{K_b} + \frac{P_o}{\omega C} \left[1 + \frac{1}{\omega^2 \tau^2} + \frac{2 K_b}{3 K_p} \right]^{1/2} \cos(\omega t - \varphi) \quad (\text{I-70})$$

VIII.2 - Choix de la fuite thermique

Afin d'éviter une atténuation importante de l'amplitude de l'oscillation thermique, il faut vérifier que le terme $\frac{2}{3} \frac{K_b}{K_p}$ dans l'expression (I-70) soit négligeable devant 1. Nous avons choisi la nature de la fuite thermique de sorte que les conditions suivantes soient satisfaites :

- * La puissance nécessaire pour atteindre 100 K ne doit pas être très élevée pour qu'à 100 K l'énergie dissipée ne vaporise pas trop d'hélium, ce qui réduirait l'autonomie du vase d'hélium ($P_o = 100$ mW à $T = 100$ K).
- * Le temps de relaxation thermique total τ du système doit être grand devant la période des oscillations thermiques $\omega \tau \gg 1$.

Pour réaliser cette fuite thermique notre choix s'est porté sur un fil de cuivre de 0.4 mm de diamètre et de 100 mm de long. Nous avons ainsi vérifié que les termes $1 / \omega^2 \tau^2$ et $2 K_b / 3 K_p$ sont effectivement négligeables

$$(T = 100 \text{ K}, \omega \tau \approx 500 \text{ et } \frac{2}{3} \frac{K_b}{K_p} \approx 4.10^{-3}).$$

L'amplitude de l'oscillation thermique peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{\Delta T_{ac}}{\Delta T_{dc}} = \frac{1}{\omega\tau} \quad (I-71)$$

où ΔT_{dc} représente la différence de température entre le porte-échantillon et le bain thermique T_b ($\Delta T_{dc} = T_p - T_b$). Nous pouvons remarquer que l'amplitude de l'oscillation thermique maximale est de 100 mK à 100 K.

VIII.3 - Vérification des oscillations de température

La procédure expérimentale pour s'assurer que la fuite thermique choisie est bien adaptée est la suivante :

Nous avons créé une oscillation de température en injectant un courant à travers le chauffage Ch_2 . Mesurant la résistance du thermomètre Th_2 et utilisant la loi d'étalonnage (I-67), nous déduisons la température du porte-échantillon T_p et donc l'écart ΔT_{dc} ($\Delta T_{dc} = T_p - T_b$).

De même, l'oscillation thermique créée ΔT_{ac} est mesurée après amplification, via une détection synchrone. La puissance dissipée à travers la résistance de chauffage est également mesurée, ce qui nous permet de déduire la conductance thermique apparente de la fuite K_T .

$$P_o = K_T \Delta T_{dc} \quad (I-72)$$

La mesure des deux amplitudes ΔT_{ac} et ΔT_{dc} permet d'évaluer la valeur de $\omega\tau$ dans la gamme de température [10-100 K]. Ayant choisi de travailler à une fréquence de 3.42 Hz et connaissant $\omega\tau$, nous déduisons la capacité calorifique totale du système :

$$C_T = K_T \tau \quad (I-73)$$

Le tableau ci-dessous récapitule nos mesures.

T_p (K)	$I_3 = I_{ch}$ (mA)	ΔT_{dc} (K)	ΔT_{ac} (K)	$\Delta T_{dc}/\Delta T_{ac}$	P (mW)	K_T (mW/K)	C (mJ/K)	T (K)	$C(E_r)$ (mJ/K)
9.93	4.30	5.73	0.050	120	1.01	0.177	0.964	10.00	
11.89	5.60	7.69	0.053	145	1.72	0.224	1.517	15.21	0.173
19.76	9.70	15.56	0.064	243	5.20	0.334	3.779	20.01	0.489
29.79	14.10	25.59	0.079	326	11.02	0.431	6.529	29.69	0.479
41.07	18.00	36.87	0.092	403	17.98	0.488	9.147	41.34	0.618
50.14	20.60	45.94	0.097	473	23.57	0.513	11.310	50.07	0.712
60.51	23.20	56.31	0.099	566	29.94	0.532	14.020	60.08	0.726
70.35	25.50	66.15	0.096	686	36.24	0.548	17.500	69.68	0.768
80.45	27.70	76.25	0.096	796	42.86	0.562	20.820	80.26	0.817
86.40	31.50	82.20	0.096	860	46.92	0.571	22.850	86.30	0.677
91.63	29.00	87.43	0.094	930	50.20	0.574	24.839	90.87	0.618
98.77	31.50	94.57	0.093	1020	55.77	0.590	28.020	102.27	0.621

Tableau I.1

Remarque :

Nous pouvons constater que les conditions :

- $\omega\tau \gg 30$,
- $P < 100$ mW [10 K - 100 K],
- $C_e \ll C_T$

sont bien satisfaites. Cependant, la puissance mesurée à 100 K est différente de 100 mW car, dans le dispositif expérimental, nous avons placé en série, avec la fuite K_b qui relie le support de l'échantillon à la ligne de base une deuxième fuite K_b' , reliant la ligne de base au bain thermique, pour les raisons précédemment évoquées (figure I.11). De ce fait, la conductance thermique apparente K_T est plus faible que la conductance thermique estimée, ce qui a l'avantage de dissiper des puissances plus faibles.

Dans ces conditions, nous avons :

$$\Delta T_{ac} = \frac{P_o}{\omega C_T} \quad (I-74)$$

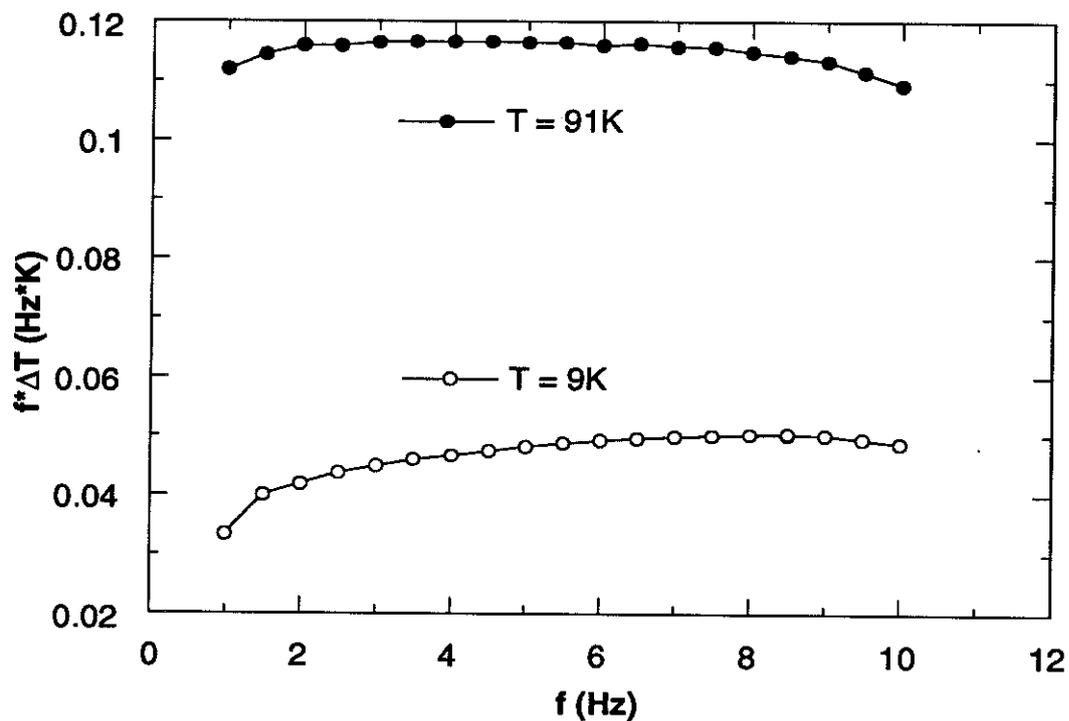


Figure I.15

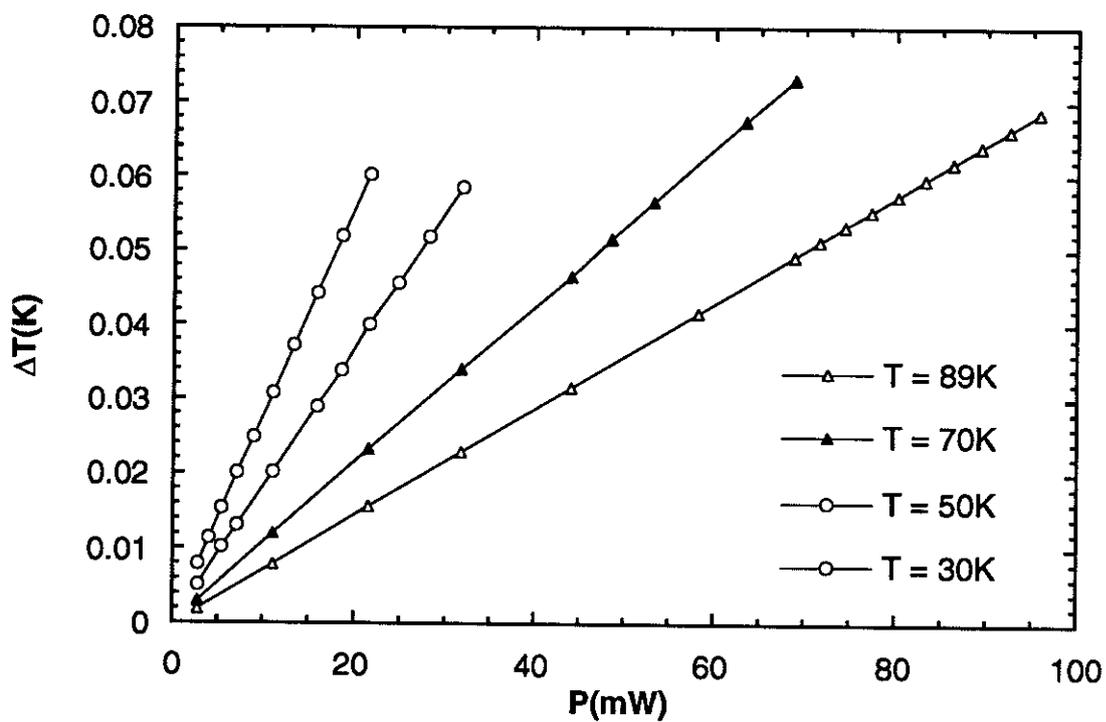


Figure I.16

De plus, pour vérifier le choix de la fréquence de résonance, nous avons mesuré pour une température donnée T l'amplitude des oscillations thermiques en fonction de la fréquence. La figure I.15 présente la variation de la quantité $\omega\Delta T_{ac}$ en fonction de la fréquence pour deux températures différentes. Le plateau observé ($\omega\Delta T_{ac} = \text{constante}$) à partir d'une fréquence voisine de 3 Hz montre bien que le compromis, entre une fréquence suffisamment basse pour des oscillations thermiques détectables, et suffisamment élevée pour le fonctionnement correct des détections synchrones, est un bon choix. La relation I-74 est bien vérifiée. La figure I.16 reflète le comportement de l'amplitude de l'oscillation thermique pour une fréquence fixe $f = 3.42$ Hz et une température donnée $T = 30$ K, 50 K, 70 K, 89 K en fonction de la puissance. Nous pouvons ainsi vérifier que l'amplitude de l'oscillation thermique varie linéairement avec la puissance P_0 (I-74).

IX - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

La figure I.17 présente le schéma de principe dans son ensemble. La référence de fréquence du système est celle d'un générateur synthétiseur (WAVETEK 171) qui pilote un convertisseur tension/courant. Ce dernier alimente, en courant alternatif à la fréquence $f/2$, la résistance de chauffage Ch_2 . L'échantillon, dont on veut mesurer la variation de la résistance par rapport à la température, est placé au centre d'une bobine supraconductrice. Il est maintenu à une température constante à l'aide du couple (Ch_1, Th_1) relié au régulateur PID. Un filtre rejecteur, calé à la fréquence f , est placé en série avec le PID pour ne pas que ce dernier "écrase" l'oscillation de température vue par le thermomètre Th_1 , pour maintenir la température fixe. La mesure au niveau de l'échantillon est une mesure en 4 fils. L'échantillon est polarisé par un courant continu. Les signaux alternatifs qui apparaissent aux bornes de l'échantillon et du thermomètre Th_2 sont mesurés après amplification par deux détections synchrones (ITHACO 393). Le premier étage de la chaîne de détection est constitué d'un transformateur et d'un transistor à effet de champ. Pour réduire le bruit thermique du FET, nous devons le refroidir. Nous l'avons placé dans un boîtier en cuivre rempli de billes de verre pour l'immobiliser. L'ensemble transistor et transformateur est disposé dans un container en plomb qui est immergé dans l'hélium. Le FET est couplé au bain de façon à ce que la puissance qu'il dissipe le maintienne à une température d'environ 150 K. Il est cependant nécessaire de le chauffer au démarrage pour qu'il s'amorce et s'auto-régule en température. Ce FET bas bruit va permettre d'amplifier la tension aux

bornes du transformateur. Le deuxième amplificateur relié au thermomètre de mesure Th_2 possède un FET qui fonctionne à la température ambiante.

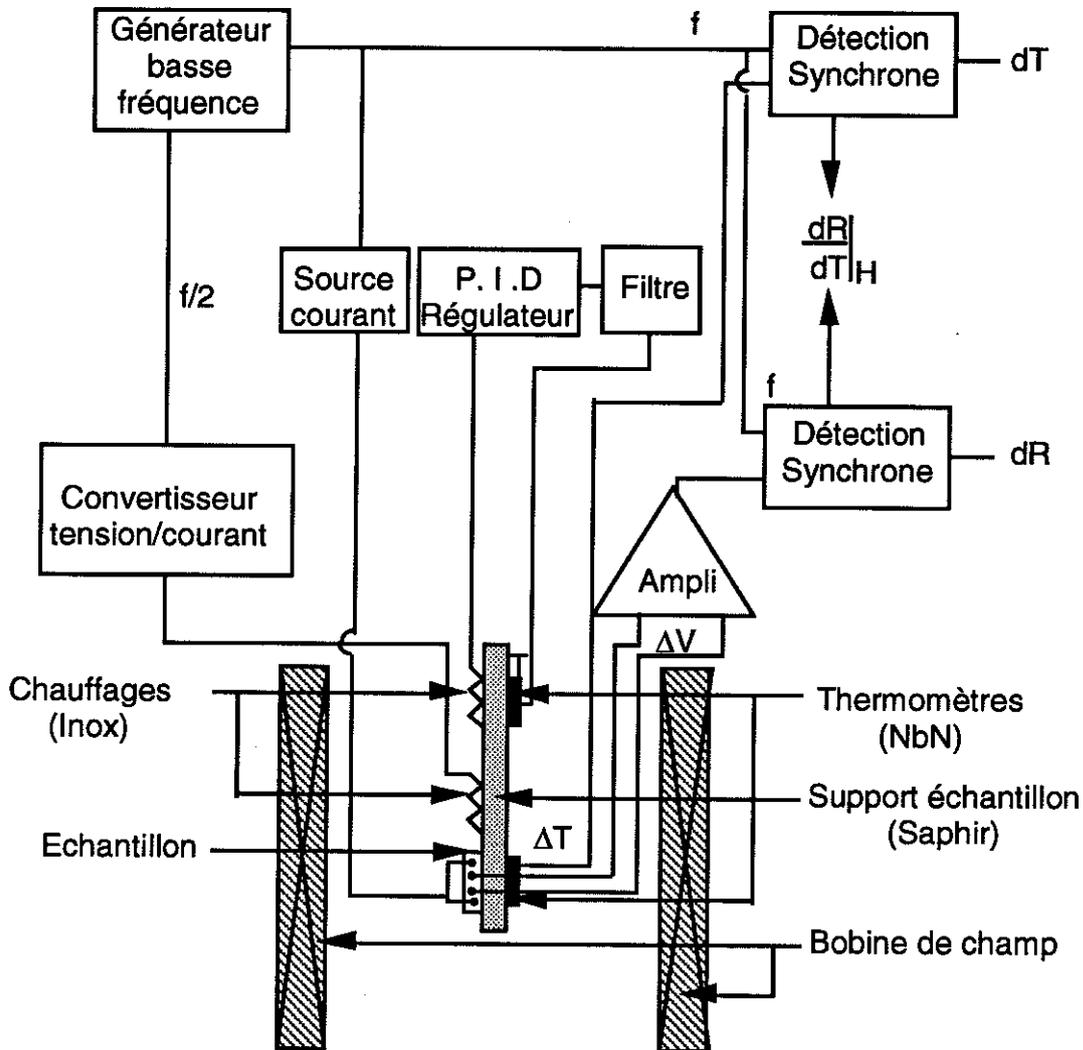


Figure I.17

Un micro-ordinateur (Apple II GS) recueille l'ensemble des signaux par l'intermédiaire d'un voltmètre programmable, et pilote le régulateur PID ainsi que la source de courant qui alimente l'échantillon et la contre-réaction.

IX.1 - Cryostat

Le cryostat utilisé est constitué de deux enceintes munies de leur propre vide d'isolement. Le vide d'isolement séparant la première enceinte contenant 23 l d'azote du milieu ambiant est rempli de super-isolant afin de réfléchir le rayonnement entre la paroi externe ($T = 300$ K) et la paroi interne ($T = 77$ K). La

deuxième enceinte contient 15 litres d'hélium liquide. L'autonomie en hélium du cryostat utilisé a été évaluée à environ 3 jours quand le dispositif de mesure est immergé. Si l'on désire étudier des phénomènes physiques à plus basses températures, nous pouvons abaisser la pression du bain d'hélium à une pression d'environ 3.6 torrs, ce qui équivaut à une température de 1,5 K. Toute l'installation repose sur un bloc en béton posé sur des amortisseurs pneumatiques pour isoler le cryostat des vibrations mécaniques environnantes, qui risqueraient de perturber les mesures. Par ailleurs, l'extrémité inférieure du cryostat est entourée de deux écrans en μ -métal de haute perméabilité magnétique. Ces écrans vont nous permettre d'effectuer des mesures en champ presque nul et de blinder le montage contre d'éventuelles variations de champs magnétiques externes. Chacun de ces deux écrans est muni d'une bobine de désaimantation qui nous permet de faire des cycles d'hystérésis à l'aide d'un courant alternatif de fréquence 50 Hz, dont l'amplitude décroît progressivement.

IX.2 - Electronique

La figure I.4 présentée dans le premier paragraphe peut être remplacée par le schéma électrique suivant :

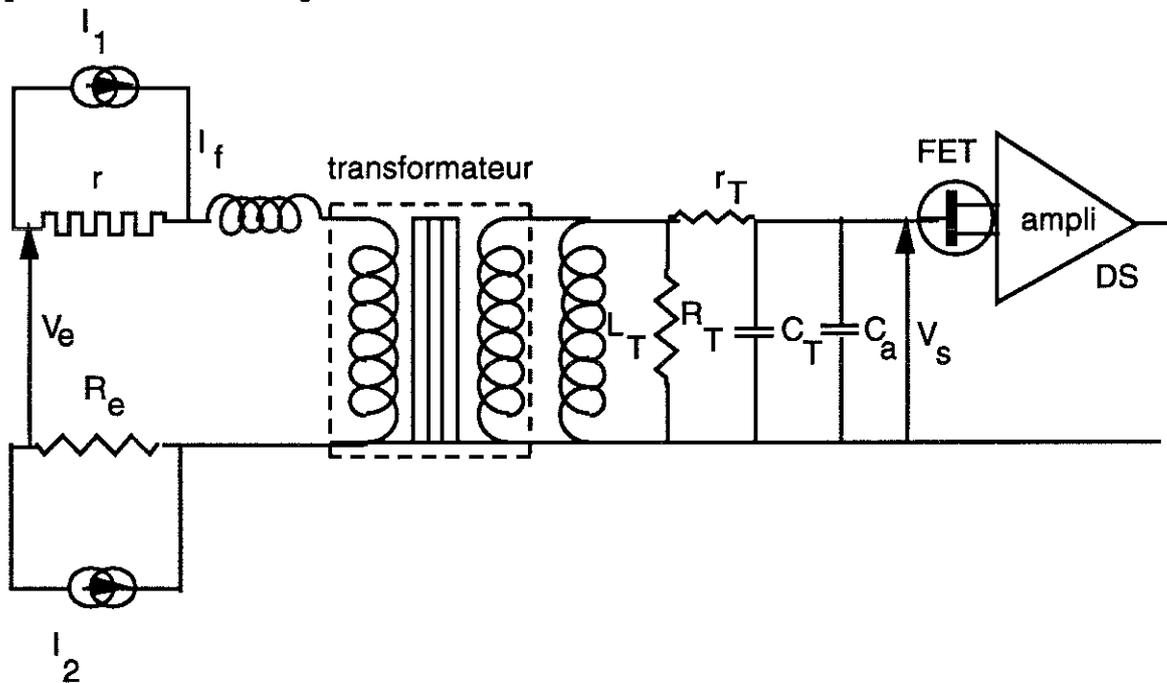


Figure I.18

Le circuit comporte : la résistance de contre-réaction ($r = 0.1\Omega$), l'échantillon $R_{\text{éch}}$, le transformateur que l'on considère comme parfait avec : un rapport de transformation n , une inductance et une capacité L_T et C_T des enroulements du secondaire, une inductance de fuite ramenée au primaire l_f , une résistance R_T représentant les pertes du transformateur et une résistance r_T des fils du secondaire.

Nous pouvons procéder à quelques simplifications avant la mise en équation du système :

- la capacité des enroulements C_T peut être négligée devant la capacité d'accord C_a ,
- de même nous pouvons considérer que l'impédance de fuite ramenée au primaire ainsi que la résistance série du secondaire sont négligeables devant la résistance de source ramenée au secondaire R . Le schéma équivalent du montage se met sous la forme :

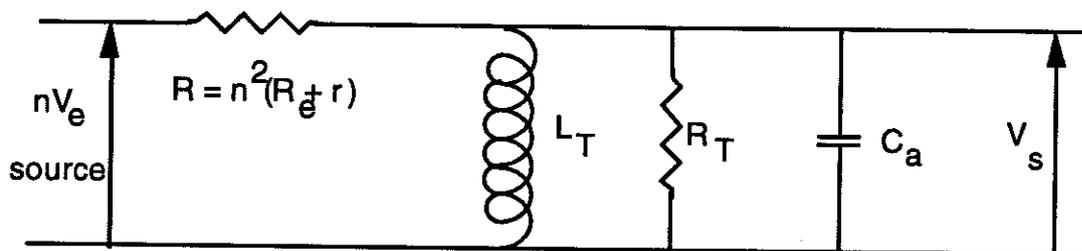


Figure I.19

IX.2.1 - Mise en équation du système

Ecrivons l'expression de la fonction de transfert qui est le rapport de la tension à la sortie sur la tension à l'entrée $T = \frac{V_s}{V_e}$:

$$T = \frac{nj}{\left[\frac{RR_T}{(R_T+R)L_T\omega} \right] (1-L_TC_a\omega^2)+j} \left[\frac{R_T}{R_T+R} \right]$$

en utilisant les notations suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} R// = \frac{R_T R}{R_T + R} \\ \omega_0^2 = \frac{1}{L_T C_a} \\ Q = \frac{R//}{L_T \omega_0} = R// C_a \omega_0 \text{ (facteur de qualité du système)} \\ A = \frac{R_T}{R + R_T} \text{ (facteur d'amortissement du signal)} \end{array} \right.$$

$$|T| = \frac{nA}{\left[Q^2 \left(\frac{\omega_0^2}{\omega^2} \right) \left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} \right)^2 + 1 \right]^{1/2}} \quad (\text{I-75})$$

La fonction de transfert est maximale à la résonance ($\omega = \omega_0$) :

$$|T_{\max}| = nA \quad (\text{I-76})$$

IX.2.2 - Condition d'adaptation optimale

Nous avons choisi de travailler à une fréquence d'environ 4 Hz pour les raisons précédemment évoquées. Nous devons donc ajuster la valeur de la capacité d'accord C_a de sorte que la fréquence de résonance du système soit typiquement 4 Hz. Connaissant la valeur de la self du transformateur ($L_T \approx 6000$ H), nous avons placé une capacité d'accord de l'ordre de 250 nF. D'après l'expression de la fonction de transfert, nous remarquons que le facteur d'amortissement A sera d'autant plus faible que la résistance R ($R = n^2(R_e + r)$) est faible devant la résistance parallèle du transformateur R_T ($R < R_T$). Pour évaluer le rapport de transformation n optimum, nous devons introduire les différentes sources de bruit provenant des différents éléments du circuit. Il est d'usage [14,15,16] de représenter les sources de bruit par une tension de bruit e_s et un courant de bruit i à l'entrée du préamplificateur. (Figure I.20). e_s représente le bruit thermique de la source, $(\bar{i}_t \bar{e}_t)$ le générateur de bruit du transformateur, $(\bar{i}_a \bar{e}_a)$ le générateur de bruit de l'amplificateur, Z_e l'impédance d'entrée de l'amplificateur ($Z_e = 10^3$ M Ω). Les sources de bruit étant indépendantes, les valeurs quadratiques moyennes s'ajoutent. L'expression du bruit total à l'entrée du préamplificateur s'écrit :

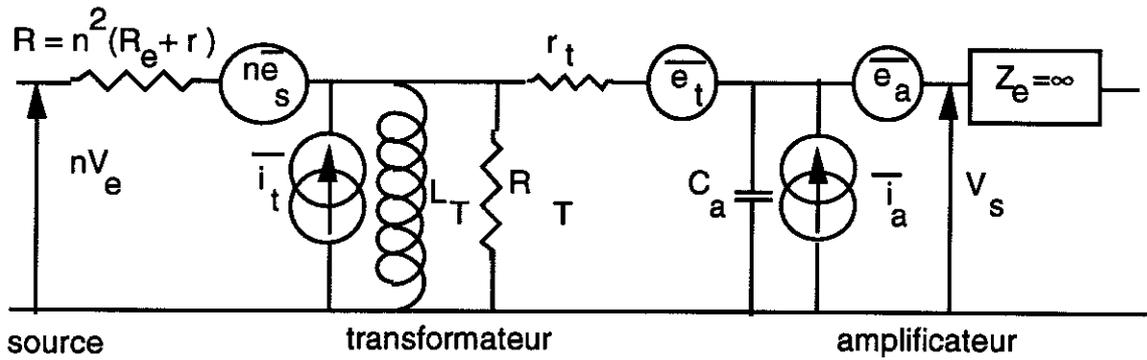


Figure I.20

$$\overline{B_s^2} = |T|^2 \overline{e_s^2} + \overline{e_t^2} + \overline{e_a^2} + |Z_s|^2 (\overline{i_t^2} + \overline{i_a^2})$$

où Z_s représente l'impédance de sortie du système :

$$Z_s \equiv [R // L // C_a] = \frac{1}{\frac{1}{L_T \omega_j} + C_a \omega_j + \frac{1}{R //}} \quad (I-77)$$

à la fréquence de résonance ($\omega = \omega_0$), nous avons :

$$\begin{cases} |Z_s| = R // = \frac{R R_T}{R + R_T} = R A \\ |T| = n A \end{cases}$$

Ramenons l'expression du bruit à l'entrée du circuit :

$$\overline{B_e^2} = \overline{e_s^2} + \frac{1}{n^2 A^2} (\overline{e_t^2} + \overline{e_a^2}) + \frac{|Z_s|^2}{n^2 A^2} (\overline{i_t^2} + \overline{i_a^2}) \quad (I-78)$$

La condition d'adaptation optimale consiste à minimiser le bruit thermique du système, ce qui revient à écrire la condition suivante :

$$\frac{\partial \overline{B_e^2}}{\partial n} = 0 \quad (I-79)$$

Si le facteur d'amortissement A est proche de 1, on aboutit à l'expression :

$$n^2 r = \sqrt{\frac{\overline{e_t^2} + \overline{e_a^2}}{\overline{i_t^2} + \overline{i_a^2}}} \quad (\text{I-80})$$

Pour passer à l'application numérique, nous devons évaluer les différentes sources de bruit.

i) Bruit de Nyquist de la source e_s :

$$\overline{e_s^2} = 4k_B T r \Delta f \quad (\text{I-81})$$

où T représente la température absolue de la source $T = 4 \text{ K}$, k_B est la constante de Boltzmann, r est la résistance de la source (dans notre cas, nous avons considéré que le bruit de Nyquist de la source était essentiellement dû au bruit thermique de la résistance de contre-réaction (R_e étant négligeable devant r), Δf est la bande de fréquence, d'où :

$$\overline{e_s} \approx 5 \text{ pV}(\text{Hz})^{-1/2}$$

ii) Générateur de bruit du transformateur ($\overline{e_t}, \overline{i_t}$) :

La tension de bruit correspond au bruit de Nyquist de la résistance série du transformateur r_T ($r_T = 50 \Omega$) à $T = 4 \text{ K}$. Cependant, le courant de bruit secondaire est dû au courant qui traverse la résistance parallèle du transformateur ($R_T \approx 25 \text{ M}\Omega$) (bruit Barkhausen). Nous pouvons écrire les relations suivantes :

$$\begin{cases} \overline{e_t^2} = 4k_B T r_T \Delta f \\ \overline{i_t^2} = \frac{4k_B T \Delta f}{R_T} \end{cases}$$

L'application numérique donne : $\overline{e_t} \approx 0.1 \text{ nV} / (\text{Hz})^{-1/2}$ et $\overline{i_t} \approx 3 \text{ fA}(\text{Hz})^{-1/2}$.

iii) Générateur de bruit de l'amplificateur ($\overline{e_a}, \overline{i_a}$) [17] :

A la température ambiante ($T=300 \text{ K}$) et à basse fréquence $\overline{e_a} \approx 6 \text{ nV}(\text{Hz})^{-1/2}$, $\overline{i_a} \approx 5 \text{ fA}(\text{Hz})^{-1/2}$. Nous avons vu que, pour réduire l'énergie de bruit du FET, nous l'avons immergé dans l'hélium. Sa température de

fonctionnement étant 150 K, les valeurs de tension et courants de bruit sont $\bar{e}_a \approx 9 \text{ nV}(\text{Hz})^{-1/2}$ et $\bar{i}_a \approx 0.5 \text{ fA}(\text{Hz})^{-1/2}$. Nous pouvons remarquer qu'en abaissant la température, l'énergie de bruit a chuté d'un facteur 10.

D'après ces valeurs numériques, nous déduisons la valeur de l'impédance d'adaptation :

$$R = \sqrt{\frac{\bar{e}_t^2 + \bar{e}_a^2}{\bar{i}_t^2 + \bar{i}_a^2}} = Z_a$$

Nous obtenons $Z_a \approx 3 \text{ M}\Omega$.

Ainsi, nous pouvons déduire la valeur du rapport de transformation optimum n ($R = n^2(R_e + r) \approx n^2 r$) :

$$n \approx 5000$$

Afin de satisfaire la condition d'amortissement minimum $R \ll R_T$, l'enroulement du secondaire du transformateur contient 25000 spires. La valeur de $n \approx 5000$ nous conduit à disposer 5 spires au primaire du transformateur.

IX.3 - Performances

IX.3.1 Mesure du Bruit et sensibilité

Nous voulons connaître la plus petite tension que l'on puisse détecter à l'aide du dispositif de mesure mis au point. Pour cela, nous utilisons un volt-mètre branché à la sortie de la détection synchrone et nous mesurons le bruit du circuit à la fréquence de résonance $f = f_0$. A la sortie du circuit, la tension de bruit mesurée est $\bar{B}_s \approx 30 \text{ nV}(\text{Hz})^{-1/2}$ ramené à l'entrée du système. Nous obtenons $\bar{B}_e \approx 6 \text{ pV}(\text{Hz})^{-1/2}$. Compte tenu des estimations précédentes des tensions de bruit, nous pouvons constater que nous sommes limités par le bruit blanc de la résistance de contre-réaction. En effet, la tension de bruit de la source vaut $\bar{e}_s \approx 5 \text{ pV}(\text{Hz})^{-1/2}$. Pour un échantillon de quelques $\text{m}\Omega$ polarisé par un courant de 100 mA, la tension de bruit ainsi mesurée correspond à une variation de résistance de $0.06 \text{ n}\Omega$. Nous remarquons que ce dispositif de

mesure permet d'obtenir une grande résolution $\frac{\Delta R}{R} \approx 10^{-8} \text{ (Hz)}^{-1/2}$. En moyennant sur 100 secondes, cette résolution atteint 10^{-9} , ce qui n'est certainement pas envisageable par des techniques de mesure de résistance classiques. Le dispositif expérimental que nous avons développé fonctionne dans la gamme de température [4-300 K] avec une modulation thermique relative $\frac{\Delta T_{ac}}{T}$ de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$. Pour bien mettre en évidence la sensibilité élevée de cette technique, nous montrerons par ailleurs que nous pouvons accéder à la dérivée seconde sans grande dispersion (chapitre II).

IX.3.2 Mesure du gain du système de détection

Lors de la mise en équation du système, nous avons trouvé l'expression de la fonction de transfert sous la forme :

$$|T| = \frac{nA}{\left[Q^2 \left(\frac{f_0^2}{f^2} \right) \left(1 - \frac{f^2}{f_0^2} \right)^2 + 1 \right]^{1/2}} \quad (\text{I-82})$$

Connaissant la valeur du rapport de transformation ($n = 5000$), nous nous donnons comme objectif de tracer la caractéristique $T(f)$ à des températures différentes et de déterminer :

- la fréquence de résonance f_0 ,
- le facteur de qualité du système Q ,
- le facteur d'amortissement du signal $A = \frac{T(f=f_0)}{n Q}$,
- la résistance parallèle du secondaire $R_{//} = \frac{Q}{C_a \omega_0}$ ($\omega_0 = 2\pi f_0$),
- la résistance parallèle du transformateur R_T ,
- la résistance de source ramenée au secondaire $R = n^2[r + R_e + 2r_c]$,
- la résistance de contact au niveau de l'échantillon r_c .

Pour mesurer le gain du système de détection, nous injectons un courant alternatif I_2 , de fréquence f , à travers la résistance de contre-réaction r , et nous mesurons la tension à la sortie v_s en fonction de f .

$$G(f) = |T(f)| = \frac{V_s(f)}{r I_2 g} \quad (\text{I-83})$$

g : facteur d'amplification du FET bas bruit ($g = 100$).

La figure I.21 présente nos résultats à la température $T = 4 \text{ K}$ et $T = 85 \text{ K}$. Le maximum de la fonction de transfert est atteint pour une fréquence $f_0 = 3.419 \text{ Hz}$ avec une amplitude $G(f_0) = 4000$ pour $T = 4 \text{ K}$ et $G(f) = 3880$ pour $T = 85 \text{ K}$. Le tableau (I.2) récapitule les valeurs des différents éléments déduits à partir de la courbe pour les températures $T = 4 \text{ K}$ et $T = 85 \text{ K}$. La courbe en traits pleins (figure I.21) montre le fit des résultats expérimentaux pour $T = 4 \text{ K}$ et $T = 85 \text{ K}$, en utilisant l'expression (I-82) avec les paramètres fixés.

$T \text{ (K)}$	$G(f_0)$	$f_0 \text{ (Hz)}$	A	Q	$R_{//} \text{ (M}\Omega\text{)}$	$R_S \text{ (M}\Omega\text{)}$	$R_T \text{ (M}\Omega\text{)}$	$r_c \text{ (}\Omega\text{)}$
4	4000	3.419	0.8	26.3	4.59	5.74	23	0.06
85	3880	3.419	0.77	30.3	5.27	6.80	23.5	0.085

Tableau I.2

Nous avons également vérifié que la condition $R < R_T$, qui conduit à un faible amortissement de la fonction de transfert, est bien vérifiée. Nous avons constaté que le gain du système de détection variait avec la température (la résistance des fils de mesure augmente quand la température croît). Pour éviter toutes imprécisions de mesure induites par cette variation du gain, nous avons mesuré la caractéristique gain en fonction de la température à la fréquence $f = 3.42 \text{ Hz}$ et fitté cette courbe par un polynôme de degré 3 (figure I.22). Nous allons utiliser l'interpolation ainsi obtenue dans la gamme [4-100 K] durant les mesures de $\frac{dR}{dT}$ [cf. paragraphe III.2].

IX.4 - Champ magnétique

Nous avons conçu une bobine qui nous permet de créer un champ magnétique pouvant atteindre 5 T. Cette bobine est réalisée à l'aide d'un fil supraconducteur multifilamentaire. Elle fonctionne dans l'hélium liquide

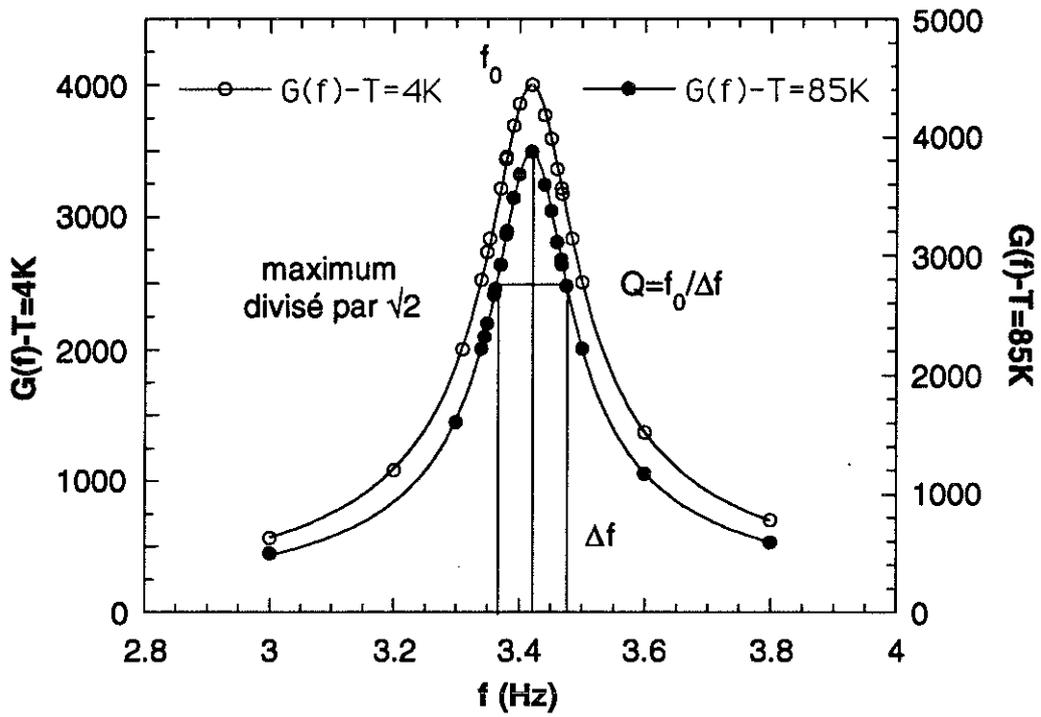


Figure I.21

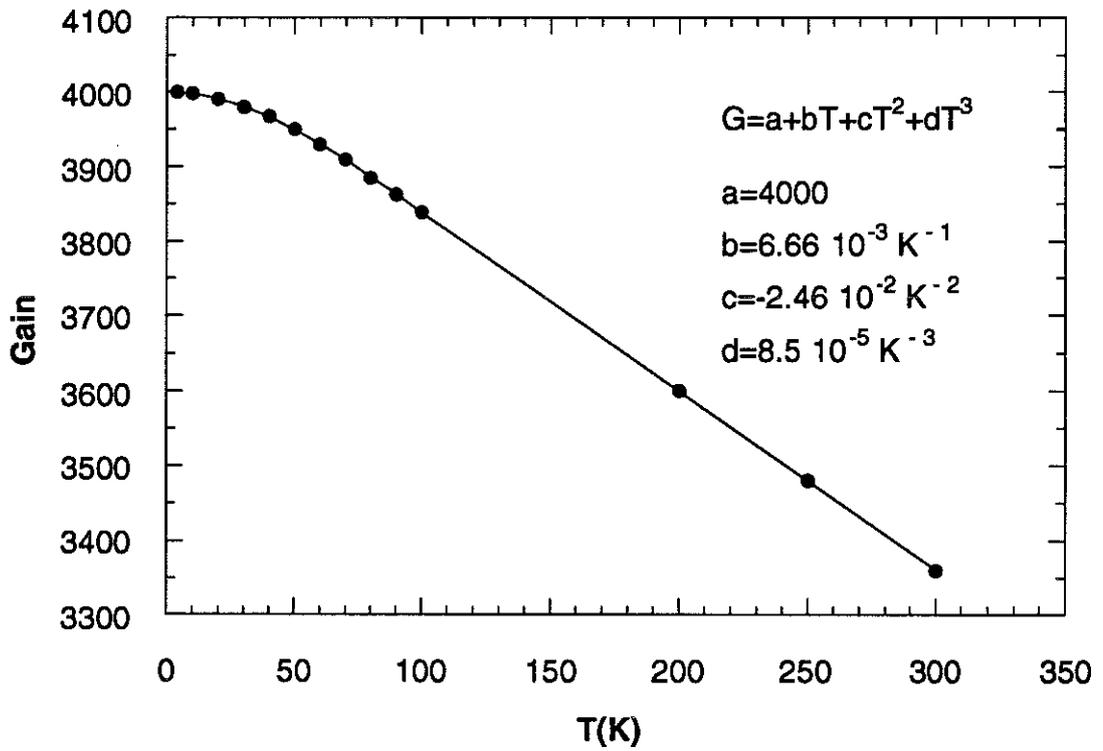


Figure I.22

en mode court-circuité. Elle comporte une encoche afin d'homogénéiser le champ au niveau de l'échantillon. Ses dimensions ont été optimisées à l'aide d'un programme informatique que nous avons adapté.

Sa caractéristique a été déterminée par calcul et vaut :

$$\frac{H}{I} = 0.1022 \frac{T}{A}$$

CHAPITRE II

GENERALITES SUR LES TERRES RARES

I - GENERALITES

Le comportement magnétique des éléments de terre rare a suscité beaucoup d'intérêt durant les années 1958-1990. Les propriétés physiques de ces matériaux ont fait l'objet de nombreuses études, tant théoriques qu'expérimentales.

Ces éléments diffèrent les uns des autres par le remplissage de la couche 4f. En effet, la configuration électronique normale adoptée est la suivante : $4f^n 5d^1 6s^2$ où n varie de 0 à 14 quand on parcourt le tableau de classification du lanthane au lutétium. Les couches 5s et 5p sont pleines et restent localisées. Les électrons 5d et 6s forment un nuage électronique au milieu duquel sont disposés les ions de terre rare trivalents. Ces niveaux constituent la bande de conduction. Les électrons 4f sont situés sur une couche profonde. L'aspect très localisé des orbitales 4f et leur très faible recouvrement entraînent que les interactions entre les moments magnétiques atomiques se font via les électrons de conduction. De cette brève description, il découle une distinction assez simpliste entre les propriétés physiques liées à la présence de la bande de conduction et d'autres qui seraient liées à la couche 4f, sans toutefois perdre à l'esprit les interactions d'échange qui existent entre les électrons 4f et les électrons de conduction qui sont, elles aussi, présentes dans certaines propriétés physiques.

Du point de vue théorique, le modèle d'un atome de terre rare isolé en présence d'une mer d'électrons de conduction a été utilisé pour expliquer les nombreuses propriétés physiques. La faible expansion de la couche 4f fait que le métal de terre rare peut être traité en première approximation comme une série d'ions isolés les uns des autres. L'une des meilleures justifications de ce modèle est le bon accord entre les moments magnétiques théoriques des ions trivalents calculés à partir de la loi de Hund et ceux déduits expérimentalement, à l'exception de (Eu^{3+} et Sm^{3+}) [18]. Ce sont donc les électrons 4f qui sont les principaux responsables du comportement magnétique des éléments de terres rares. Néanmoins, l'interaction indirecte entre deux moments localisés existe et a été introduite par Ruderman et Kittel [19]. Cette interaction se fait via les électrons de conduction par polarisation de spin. Expérimentalement, cette interaction indirecte est mise en évidence par la loi de Curie-Weiss. En effet, si nous nous limitons au modèle de l'ion isolé, on ne peut

expliquer le comportement en $\frac{C}{T-\theta_p}$ de la susceptibilité paramagnétique des éléments de terre rare (θ_p température paramagnétique). Une autre preuve de l'existence de cette interaction d'échange se trouve dans la résistivité magnétique des terres rares.

II - RESISTIVITE DES METAUX DE TERRES RARES

Les différentes courbes de résistivité des métaux de terre rare présentent deux régions assez distinctes. A hautes températures, une croissance approximativement linéaire avec la température est observée et rend compte de la résistivité due aux phonons ρ_{ph} . Quand la température décroît, plusieurs anomalies apparaissent et traduisent différents ordres magnétiques qui s'établissent. Cette partie de la résistivité est appelée résistivité magnétique ρ_{mag} . La résistivité peut donc s'exprimer sous forme additionnelle de plusieurs contributions différentes (loi de Matthiessen).

$$\rho = \rho_{res} + \rho_{ph} + \rho_{mag} \quad (\text{II-1})$$

La résistivité résiduelle ρ_{res} est indépendante de la température et renseigne sur la pureté du matériau.

Les anomalies de résistivité ont été attribuées à l'interaction d'échange entre les électrons de conduction et les électrons 4f. A très basse température, les éléments de terre rare sont en général ferromagnétiques. Théoriquement, à la température $T = 0$, les spins sont tous alignés et la résistivité magnétique est nulle. La résistivité totale est alors égale à la résistivité résiduelle. Lorsque la température croît, des fluctuations de spins sont induites, qui traduisent une résistivité magnétique possédant des anomalies.

Dans la littérature, un intérêt considérable a été apporté à cette résistivité magnétique. Un premier modèle a été proposé par Kasuya [20], amélioré par de Gennes et Friedel [21] et, par la suite, par Suesazki et Mori [22]. Le premier point de départ pour exprimer ce terme a été de considérer la diffusion des électrons de conduction par les électrons localisés 4f.

III - HAMILTONIEN D'INTERACTION S-F

Considérons le cas d'un métal contenant N atomes. A chaque atome de position \mathbf{R}_n est associé un spin \mathbf{S} venant de la couche 4f. Chaque électron de conduction interagit avec les électrons localisés par :

$$H_{\text{electron-ion}} = - \sum_n \Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \mathbf{s}(\mathbf{r}) \mathbf{S}(\mathbf{R}_n) \quad (\text{II-2})$$

où $\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n)$ est la constante d'interaction et $\mathbf{s}(\mathbf{r})$ la densité de spin des électrons de conduction :

$$\mathbf{s}(\mathbf{r}) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\alpha\beta} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{r}} u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) u_{\mathbf{k}'}^*(\mathbf{r}) c_{\mathbf{k}\alpha}^{\dagger} \frac{\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma}_{\alpha\beta} c_{\mathbf{k}'\beta}$$

$\boldsymbol{\sigma}_{\alpha\beta}$ étant la représentation matricielle de Pauli $\sigma_{\alpha\beta}^x, \sigma_{\alpha\beta}^y$ et $\sigma_{\alpha\beta}^z$.

N. B. les caractères gras sont des vecteurs.

Les électrons de conduction sont décrits par des fonctions de Bloch :

$$|\mathbf{k}\sigma\rangle = \varphi_{\mathbf{k}\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) |\sigma\rangle = \varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) |\sigma\rangle \quad (\text{II-3})$$

où $\varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ désigne la partie orbitale de la fonction d'onde et $|\sigma\rangle$ son état de spin. Dans le cas général, l'hamiltonien d'interaction global s'écrit :

$$H = \int_V d^3r \sum_{\mathbf{R}_n} \Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \mathbf{s}(\mathbf{r}) \mathbf{S}(\mathbf{R}_n) \quad (\text{II-4})$$

L'approximation usuelle utilisée est de considérer l'interaction $\Gamma(\mathbf{r})$ comme une interaction ponctuelle.

$$\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) = \Gamma \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \quad (\text{II-5})$$

Avec cette hypothèse (II-4), l'hamiltonien d'interaction s'écrit alors :

$$H = -\Gamma \sum_{\mathbf{R}_n} \mathbf{s}(\mathbf{R}_n) \mathbf{S}(\mathbf{R}_n) \quad (\text{II-6})$$

La résistivité due aux collisions des électrons de conduction avec le réseau de spin magnétique s'écrit :

$$\rho_m = \frac{m}{ne^2\tau} \quad (\text{II-7})$$

où n , m et τ sont respectivement la densité des électrons de conduction, leur masse effective à la surface de Fermi et le temps de relaxation défini par :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{2} \frac{h^3 n(E_F)}{m^2} \int_0^\pi d\theta \sin\theta (1 - \cos\theta) \frac{d\sigma}{d\Omega} \quad (\text{II-8})$$

où $n(E_F)$ est la densité d'états de la bande de conduction pour une direction de spin dans l'approximation des électrons libres :

$$n(E_F) = \frac{m k_F}{2\pi^2 \hbar^2}$$

k_F étant le vecteur d'onde au niveau de la surface de Fermi

Pour calculer la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ [23,24,25,26], nous faisons l'hypothèse que seules les collisions élastiques entrent en jeu dans le mécanisme de diffusion des électrons de conduction par les électrons 4f et nous utilisons l'approximation de Born au 1er ordre. Nous obtenons :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{m}{2\pi\hbar}\right)^2 \sum_{\alpha\beta} P_\alpha |\langle \alpha | H | \beta \rangle|^2 \quad (\text{II-9})$$

L'élément de matrice H est pris entre l'état initial d'un électron de conduction de vecteur d'onde k et de spin α pour le système total avant collision, et l'état final d'un électron de conduction de vecteur d'onde k' et de spin β pour le système total après collision. P_α est la probabilité de trouver le système dans l'état $|\alpha\rangle$ à l'équilibre thermique. En revenant à l'article de De Gennes et Friedel, l'expression de l'hamiltonien d'interaction est :

$$H = -\Gamma \sum_{nq} e^{iqR_n} (\mathbf{s} \mathbf{S}_n - \mathbf{s} \langle \mathbf{S} \rangle) \quad (\text{II-10})$$

La section efficace différentielle par ion magnétique qui donne une contribution à la résistivité magnétique ρ_m est décrite par :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma_0}{4\pi} \sum_{nq} e^{iqR_n} \left[\frac{\langle S_0 S_n \rangle - \langle S_0 \rangle \langle S_n \rangle}{S(S+1)} \right] \quad (\text{II-11})$$

où
$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma_0}{4\pi} \sum_{nq} \Gamma(R_n) e^{iqR_n}$$

avec
$$\Gamma(R_n) = \left[\frac{\langle S_0 S_n \rangle - \langle S_0 \rangle \langle S_n \rangle}{S(S+1)} \right], \quad (\text{II-12})$$

fonction de corrélation statistique entre deux spins séparés par une distance R_n ,

et :
$$\sigma_0 = \frac{1}{4\pi} \left(\frac{m\Gamma}{\hbar^2} \right)^2 S(S+1). \quad (\text{II-13})$$

L'expression (II-12) peut s'écrire :

$$\Gamma(R_n) = \left[\frac{\langle S_0 S_n \rangle - \langle S \rangle^2}{S(S+1)} \right] \quad (\text{II-14})$$

$\langle S_0 \rangle \langle S_n \rangle = \langle S \rangle^2$ car la valeur moyenne du spin de l'électron localisé est indépendante de n.

Nous voyons ainsi que seuls les écarts à la valeur moyenne de spin $\langle S \rangle$, en d'autres termes fluctuations de spin, donnent une contribution à la résistivité magnétique.

Dans la limite des hautes températures $\langle S \rangle$ est nul et les spins ne sont pas corrélés $\langle S_0 S_n \rangle$ est nul si et seulement si $n \neq 0$. Dans ces conditions, le temps de relaxation est égal à :

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{\hbar k_F}{m} \sigma_0 \quad (\text{II-15})$$

et
$$\rho_{m_0} = \frac{m}{ne^2\tau_0} = \frac{\hbar k_F}{ne^2} \sigma_0 \quad (\text{II-16})$$

La première approximation est "l'approximation sans corrélation". Elle est basée sur l'hypothèse suivante : la longueur d'onde des électrons au niveau de Fermi est suffisamment courte pour négliger les effets d'interférence entre les ions magnétiques voisins, d'où :

$$\langle S_o S_n \rangle = \delta_{no} \langle S^2 \rangle = \delta_{no} S(S+1) \quad (\text{II-17})$$

où $\delta_{no} = 1$ si $n = 0$.

La relation (II-11) s'écrit donc :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma_o}{4\pi} \frac{S(S+1) - \langle S \rangle^2}{S(S+1)} \quad (\text{II-18})$$

Nous obtenons ainsi l'expression du temps de relaxation sous la forme :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_o} \left[1 - \frac{\langle S \rangle^2}{S(S+1)} \right] \quad (\text{II-19})$$

d'où

$$\rho_m = \rho_{mo} \left[1 - \frac{\langle S \rangle^2}{S(S+1)} \right] \quad (\text{II-20})$$

Les deux relations (II-18) et (II-19) font apparaître un lien entre l'ordre à longue distance dans le réseau de spins ioniques et le temps de relaxation.

Ce modèle, proposé par Kasuya, traite le cas d'un réseau de spins indépendants et ne tient pas compte des corrélations à courte distance.

Pour un ferromagnétique, au-dessus de T_c , dans la région paramagnétique, $\langle S \rangle$ est nul, donc $\rho = \rho_{mo}$. En général, la résistivité due aux phonons est linéaire en T , ce qui permet d'extrapoler ρ_{mo} à $T = 0$ K, après soustraction de la résistivité résiduelle. L'accord entre ce modèle et les expériences reste qualitativement satisfaisant, sans toutefois expliquer le comportement de la résistivité au voisinage de la température critique.

IV - EFFET DES CORRELATIONS A COURTE DISTANCE

De Gennes et Friedel ont complété le modèle précédent en introduisant les corrélations à courte distance pour décrire le comportement d'un ferromagnétique au-dessus de T_C quand $\langle S \rangle$ est nul dans tout le cristal.

L'interaction Γ_n est donnée par :

$$\Gamma_n = \frac{\langle S_0 S_n \rangle}{S(S+1)} \quad (\text{II-21})$$

Pour tenir compte des corrélations, nous permettons aux spins S_n de prendre une orientation moyenne autour du spin S_0 à la position R_0 fixe :

$$\langle S_n \rangle = \Gamma_n S_0 \quad (\text{II-22})$$

Toutefois, dans le papier de De Gennes et Friedel ces corrélations ont été étudiées comme une petite perturbation, donc faibles par rapport aux corrélations à longue portée provenant de la diffusion des électrons de conduction par les électrons 4f localisés. Chaque spin S_n , situé au point n , est en équilibre sous l'action de ses voisins n' . La valeur moyenne $\langle S_n \rangle$ de S_n au point n ne sera plus nulle. Γ_n dans l'expression (II-22) n'est plus nul si $n \neq 0$, mais fini. La différence $(\langle S_0 \rangle - S_0)$ proviendra de l'influence des voisins du point $n = 0$, d'où Γ_0 sera différent de 1. Si l'on appelle H_n le champ moléculaire au point n dû aux spins n' . Dans l'approximation du champ moléculaire, la fluctuation de spin $\langle S_n \rangle - \delta_{no} S_0$ est directement reliée au champ H_n par :

$$\langle S_n \rangle - \delta_{no} S_0 = S B\left(\frac{SH_n}{k_B T}\right) \quad (\text{II-23})$$

où S est la valeur du spin et $B(x)$ la fonction de Brillouin. Ces expressions donnent une formule approchée du temps de relaxation τ , à cause de l'approximation du champ moléculaire, mais qui tient compte des corrélations à courtes distance. De Gennes et Friedel ont ensuite fait des calculs plus affinés et ont évalué la fonction de corrélation $\Gamma(R, T)$ dans l'approximation d'Ornstein-Zernike en supposant que cette dernière reste valable pour toute valeur de R et T indépendant.

Dans le cas d'un ferromagnétique, l'expression de la résistivité a une singularité de la forme [27] :

$$\rho(T) = \rho_c - b|t|\ln|t| \quad t = (T/T_c) - 1 \quad \text{avec } b > 0 \quad (\text{II-24})$$

ce qui prédit un "cusp" de la résistivité à T_c .

La conclusion essentielle est que :

- pour $k_{FD} > \pi$, l'effet des corrélations est faible, la courbe de résistivité étant essentiellement perturbée au voisinage de T_c et présente un petit pic à T_c (d étant la distance interatomique),
- pour $k_{FD} \ll \pi$, on s'attend à un fort accroissement de la résistivité au voisinage de T_c , ceci étant lié aux phénomènes d'opalescence critique qui apparaissent aux petits angles et aux grandes longueurs d'onde.

Nous allons, par la suite, essayer de voir si ces conditions sont satisfaites dans le cas de l'erbium.

V - ANALOGIE ENTRE LES ANOMALIES DE LA CHALEUR SPECIFIQUE ET CELLES DE LA RESISTIVITE MAGNETIQUE

Fisher et Langer ont ensuite repris le modèle de De Gennes et Friedel, tout en soulignant que la partie dominante de la résistivité magnétique est surtout due aux corrélations à courte distance, ce qui pourrait expliquer les singularités observées au voisinage de la température critique.

La remarque la plus importante soulignée par Fisher et Langer concernant le modèle de De Gennes est le fait que la fonction de corrélation est établie même pour une distance R_n supérieure au libre parcours moyen des électrons de conduction. Or, la diffusion des électrons de conduction par deux spins localisés séparés par une distance R_n ne peut se faire de manière cohérente si la distance qui les sépare est supérieure au libre parcours moyen des électrons de conduction. De plus, comme le libre parcours moyen l a une

valeur finie même au voisinage de la température critique, on ne peut expliquer les anomalies de la résistance dans cette région en ne tenant compte que de la fonction de corrélation qui fait intervenir les corrélations à longue portée.

En conséquence, il paraît nécessaire d'aller au delà de l'approche d'Ornstein-Zernike qui se limite aux corrélations à longue portée. Pour ce faire, il suffit d'introduire dans la fonction de corrélation une dépendance en température qui serait directement liée aux corrélations à courte distance inférieure au libre parcours moyen et pourrait ainsi décrire les singularités observées dans les courbes $\frac{dp}{dt}$ au voisinage de T_c . Cette contribution à la fonction de corrélation entre les spins localisés posséderait un comportement singulier en $|t|^{1-\alpha}$ avec α exposant critique de la chaleur spécifique qui rendrait compte des phénomènes d'opalescence critique qui apparaissent au voisinage de la température critique.

Le modèle de Fisher et Langer prédit que, pour $T > T_c$, le comportement de la dérivée de la résistivité $\frac{dp}{dt}$ serait essentiellement dû aux corrélations à courte portée, et surtout à la dépendance en température de $\Gamma(R_s, T)$ pour $R_s \neq 0$, où R_s représente le rayon de la $s^{\text{ième}}$ cellule de spins localisés entourant le site $R_n = 0$ [26]. En outre, la fonction de corrélation $\Gamma(R_s, T)$ possède la même singularité à T_c que la densité de fluctuations d'énergie magnétique définie pour $T > T_c$ dans un domaine où la taille ne bouge pas et qui est celle du libre parcours moyen. [27].

$$U(T) = - \sum_n J(R_n) \langle S_0 S_n \rangle \quad (\text{II-25})$$

$$U(T) = - \sum_{s=1} \vartheta_s J(R_s) \Gamma(R_s, T)$$

où $J(R)$ est la constante de couplage type Heisenberg et ϑ_s est le nombre de spins à l'intérieur de la cellule R_s . Ce qui leur permet de conclure que la résistivité $\rho(t)$ et l'énergie magnétique $U(T)$ ont la même singularité au-dessus de T_c , et donc que $\frac{dp}{dt}$ varie comme la chaleur spécifique magnétique en $|t|^{1-\alpha}$ [25,26,28].

De nombreuses études expérimentales [29,30,31,32,33,34,35] sur des éléments ou des composés de terre rare (Dy, Eu, Te, Ho, Gd) ont confirmé les caractères généraux énoncés, mais néanmoins, il subsiste diverses controverses en ce qui concerne la détermination des exposants critiques au voisinage de la

transition, ainsi que la détermination de la température critique (minimum de $\frac{dR}{dT}$ ou point d'inflexion de $\frac{dR}{dT}$), ce qui motive une étude plus approfondie du comportement de la dérivée de la résistance en fonction de la température, en utilisant la précision de la technique expérimentale que nous avons développée.

CHAPITRE III**ETUDE DE L'ERBIUM EN CHAMP NUL**

I - INTRODUCTION

Certains éléments de terres rares étudiés du point de vue des phénomènes de transport [36,37,38,39,40] et de la chaleur spécifique [41], et en particulier l'erbium, n'ont pas fait l'objet d'une étude complémentaire après l'apparition de cette approche théorique. C'est pourquoi nous avons choisi de mesurer la dérivée de la résistance par rapport à la température de l'erbium, élément riche en transitions de phase magnétiques.

II - PROPRIETES MAGNETIQUES DE L'ERBIUM

L'erbium appartient à la seconde série des terres rares. Il cristallise dans la structure hexagonale (Chapitre I), proche de la structure hexagonale compacte. Cable *et al.* [42] ont étudié en détail la structure de l'erbium par des mesures de diffraction de neutrons sur des monocristaux. Cet élément possède trois transitions de phase magnétiques. Une température de Néel, séparant la région désordonnée magnétiquement de la région ordonnée, se trouve au voisinage de 80 K [42,43].

Au-dessous de cette température, jusqu'à une température dite intermédiaire T_H d'environ 52 K, l'erbium possède une structure antiferromagnétique modulée le long de l'axe c . Le moment magnétique reste parallèle à c et son amplitude varie sinusoidalement le long de cet axe. L'arrangement étant périodique, de période $3.5 c$ (c étant le paramètre de maille), Millhouse et Koehler [44] ont clarifié la structure magnétique par de nouvelles mesures. Ils ont montré que seule la composante m_{nz} du moment magnétique oscillait dans la structure magnétique modulée le long de l'axe c :

$$m_{nz} = m // \sin(n\omega + \alpha) ; m_{nx} = m_{ny} = 0 \quad (\text{III-1})$$

n étant le numéro du plan perpendiculaire à c , ω l'angle entre deux plans magnétiques et α un angle de phase.

Au-dessous de la température intermédiaire et jusqu'à 20 K, on a une structure plus complexe. La structure oscillante des composantes parallèles à c

des moments magnétiques forme des domaines antiphases. Plusieurs plans de moment magnétique constant, parallèle à c "up", suivis par le même nombre de plans avec le même moment magnétique dirigé dans le sens opposé "down". Cette structure est bien de type antiferromagnétique. Pour un même plan, la projection des moments sur l'axe c est constante, mais la variation de cette projection d'un plan à l'autre n'est plus purement sinusoïdale ; il apparaît des harmoniques d'ordre supérieur en plus du fondamental. Les composantes des moments dans le plan de base décrivent une spirale régulière.

$$\begin{aligned} m_{n_x} &= m_{\perp} \cos(n\omega + \beta) \\ m_{n_y} &= m_{\perp} \sin(n\omega + \beta) \end{aligned} \quad (\text{III-2})$$

$$m_{n_z} = A_1 \sin(n\omega + \delta) + A_3 \sin(3n\omega + \phi)$$

à $T = 25 \text{ K}$, $\omega = \frac{\pi}{4}$, $m_{\perp} = 3.6 \mu_B$, $A_1 = 9.72 \mu_B$, $A_3 = 2.97 \mu_B$, $\delta = 22.5^\circ$, $\phi = 247.5^\circ$. Les valeurs des constantes dans l'équation (III-2) dépendent de la température [45,23].

De plus, dans cette gamme de température, la période de variation n'est pas commensurable avec le paramètre c. Elle varie de 3.5 c à 52 K à 4 c à 20 K, ce qui conduit à un vecteur d'onde qui varie de $\frac{4\pi}{7c}$ à $\frac{4\pi}{8c}$. Toutes ces raisons font que le comportement de l'erbium en champ nul et sous champ reste peu clair dans cette gamme de température.

Au-dessous de la température $T_c \approx 20 \text{ K}$, un ordre de type "ferromagnétique" s'établit. Cette configuration en cône ou plutôt en spirale ferromagnétique s'explique de la manière suivante : la composante des moments selon l'axe c est la même d'un plan à l'autre. Cependant, la configuration des projections des moments dans les plans perpendiculaires à l'axe c est hélicoïdale. L'angle ω des moments entre plans successifs est indépendant de la température et vaut environ 44° [23,45]. La structure "ferroconique" est décrite par :

$$\begin{aligned} m_{n_x} &= m_{\perp} \cos(n\omega + \beta) \\ m_{n_y} &= m_{\perp} \sin(n\omega + \beta) \end{aligned} \quad (\text{III-3})$$

$$m_{nz} = m_{//}$$

avec $m_{//} = 7.9 \mu_B$, $m_{\perp} = 4.3 \mu_B$ à la température de l'hélium.

III - RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1 - Premiers tests

L'étude de la résistivité en fonction de la température pour des polycristaux [39] ou des monocristaux [36-38,40] selon les différentes directions et les mesures de résistance effectuées sur le premier échantillon (parallélépipédique) ont montré les trois anomalies souhaitées, à savoir : une transition para-antiferromagnétique à T_N (transition du second ordre), une "bosse" de la résistance à la température T_H intermédiaire, et finalement une transition du premier ordre antiferro-ferromagnétique à la température T_C . Nous détaillerons tous les changements de phase magnétique ultérieurement.

Etant donné l'hystérésis observé dans la gamme de température 10-60 K, c'est autour de la transition para-antiferromagnétique (Chapitre I) que nous allons étudier le comportement de la dérivée de la résistance par rapport à la température. Le point que nous voulons mettre en valeur dans ce paragraphe est l'étrange désaccord observé dans la figure III.1. Cette dernière présente pour le même échantillon, la comparaison entre la dérivée mathématique calculée à partir des mesures de la résistance et celles effectuées par mesure directe. L'allure qualitative des deux courbes est similaire, mais il subsiste un écart en amplitude d'un facteur 4. Ces résultats inattendus nous ont conduit à la remarque suivante : l'échantillon n'est pas sensible à l'oscillation de température ΔT_{ac} que l'on crée. Compte tenu des divers compromis à satisfaire (oscillation de température), il nous a paru judicieux de jouer sur les dimensions de l'échantillon. Ainsi, pour remédier au problème rencontré, nous avons réduit l'épaisseur de l'échantillon et augmenté la surface d'échange entre l'échantillon et son support, d'où le choix du deuxième échantillon de forme elliptique.

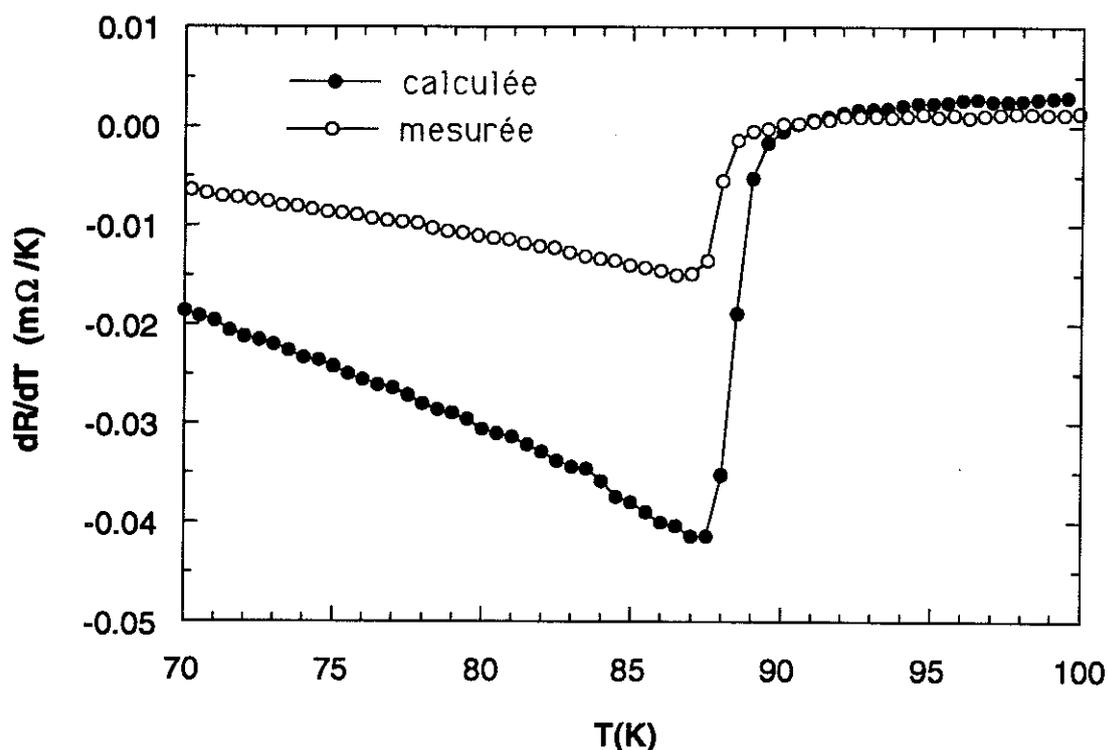


Figure III.1

III.2 - Mesure de la résistance du deuxième échantillon entre 4 et 300 K

La figure III.2 présente les mesures de la résistance en fonction de la température. Dans la région paramagnétique, à mesure que la température décroît, la résistance varie de manière linéaire jusqu'à environ 120 K, rendant compte de la contribution de la résistance due à l'interaction électron-phonon R_{ph} . Ensuite, nous observons un accroissement assez brutal de la résistance. Cette première anomalie apparaît vers 87 K, température qui correspond à la température de Néel, caractérisant la transition para-antiferromagnétique. La résistance continue à augmenter jusqu'à atteindre un maximum vers 60 K. Dans l'intervalle de température compris entre 87 K et 60 K, l'erbium s'ordonne dans la phase antiferromagnétique modulée selon l'axe c décrite précédemment. A cette même température, $T_H = 60$ K, la résistance présente à nouveau un changement de pente important (point anguleux). En dessous de T_H , la résistance décroît rapidement jusqu'à atteindre la température de "Curie" $T_C \approx 20$ K. Cette température T_H est bien la signature d'un réarrangement de phase magnétique, d'ordre "structural". Finalement, la troisième anomalie apparaît au voisinage de 20 K et correspond à une transition antiferro-"ferroconique" (§ II). La figure III.3 montre bien un hystérésis observé dans la gamme de

température 10-60 K. Ce dernier disparaît entièrement à 60 K, ce qui peut permettre d'affirmer que ce comportement est intrinsèque à l'échantillon et n'est pas relié à un mauvais équilibre thermique lors des mesures. Ces résultats sont en accord avec plusieurs mesures de résistance [36-40], des mesures d'aimantation [46,47] et de chaleur spécifique [41]. De récentes mesures de diffraction neutronique [48,] et une étude calorimétrique [49] ont confirmé que la transition, antiferromodulée selon l'axe *c* à paramagnétique, est bien une transition de second ordre. La différence entre les valeurs de la température de Néel que l'on a déterminée $T_N = 87$ K et $T_N \approx 84,4$ K ou $T_N \approx 85,6$ K des différents articles [40,48,49] peut nous donner une indication sur la pureté de notre échantillon. En effet, il a été montré [50] que la température de Néel T_N croît d'une valeur $T_N = 80$ K jusqu'à 88 K lorsque la pureté du cristal est améliorée.

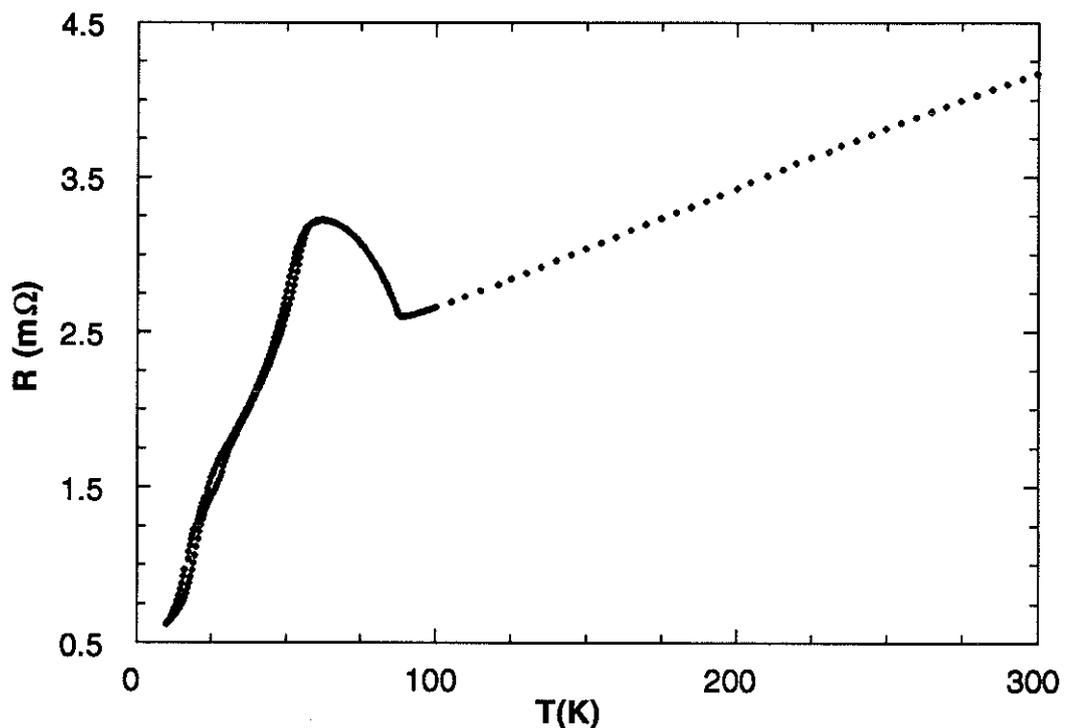


Figure III.2

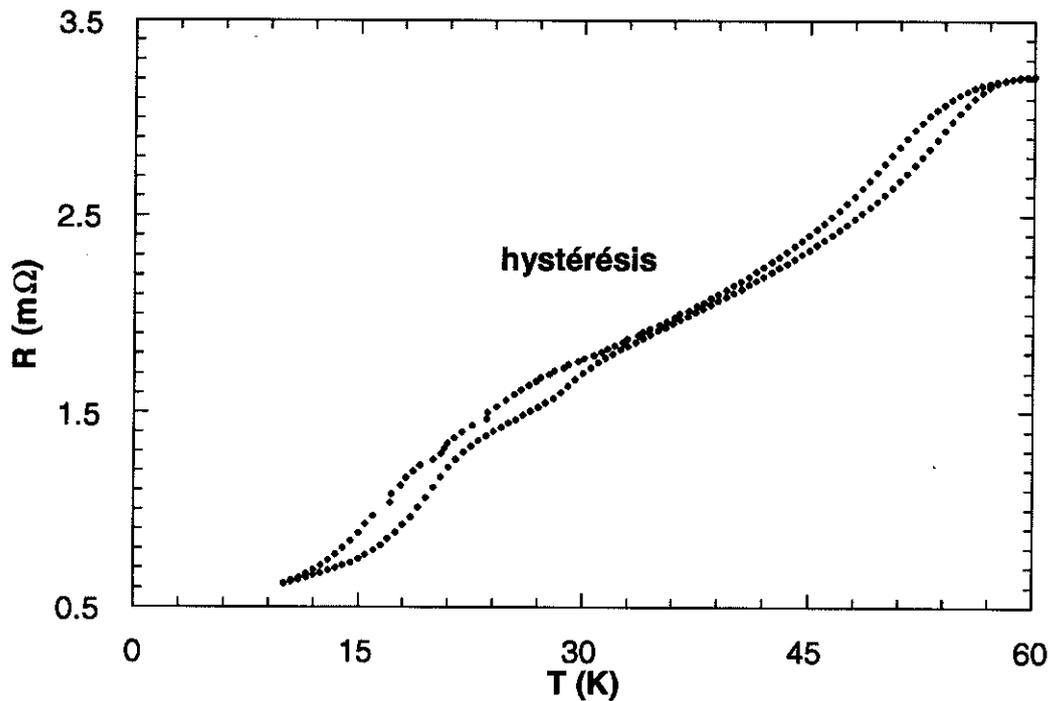


Figure III.3

Puisque c'est sur $\frac{dR}{dT}$ que se focalise l'intérêt théorique, nous allons maintenant étudier le comportement de l'anomalie observée à T_N , par les mesures directes de $\frac{dR}{dT}$ sur ce même échantillon.

III.3 - Mesure de la dérivée de la résistance par rapport à la température

La figure III.4 présente nos mesures de $\frac{dR}{dT}$ sur l'échantillon elliptique dans la gamme de température 70-300 K. Nous pouvons ainsi constater que le changement important de pente, observé sur la courbe de résistance (Fig. III.2) au voisinage de T_N , se traduit par un maximum beaucoup plus prononcé en dérivée. Il reste maintenant à vérifier que les mesures de $\frac{dR}{dT}$ représentent bien la réponse de l'échantillon à l'oscillation de température ΔT_{ac} . La figure III.4 présente également la dérivée calculée à partir de la courbe de résistance (Fig III.2), en utilisant un programme qui approxime localement la courbe à une parabole, puis en prend la dérivée au point considéré. Sur cette même figure, nous avons porté nos points de mesures directes. Nous pouvons ainsi juger du bon accord entre ces deux quantités, et même remarquer que la dispersion des points $\frac{dR}{dT}$ calculés est nettement plus grande que celle de la courbe mesurée. Le dispositif expérimental fonctionne de façon satisfaisante. Cependant, pour mieux apprécier la grande performance de notre technique, nous avons tenu à

dériver mathématiquement nos mesures directes de $\frac{dR}{dT}$ en utilisant le même programme (Fig. III.5). L'encart présenté dans cette figure montre bien que la dispersion des mesures est tout à fait correcte.

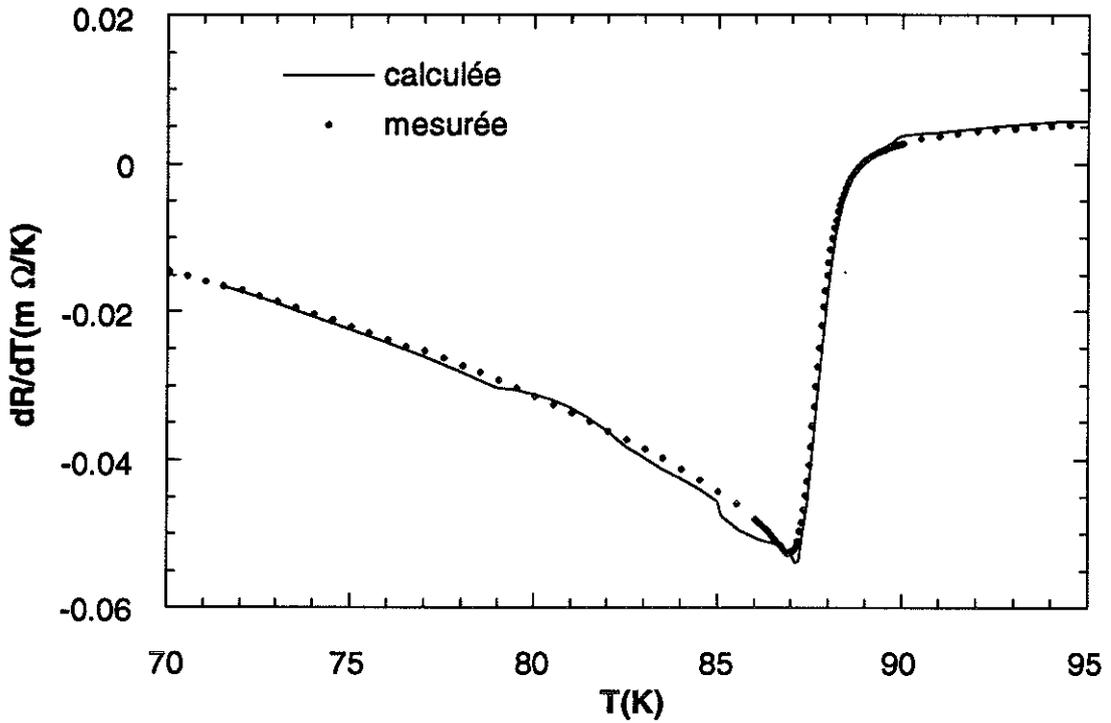


Figure III.4

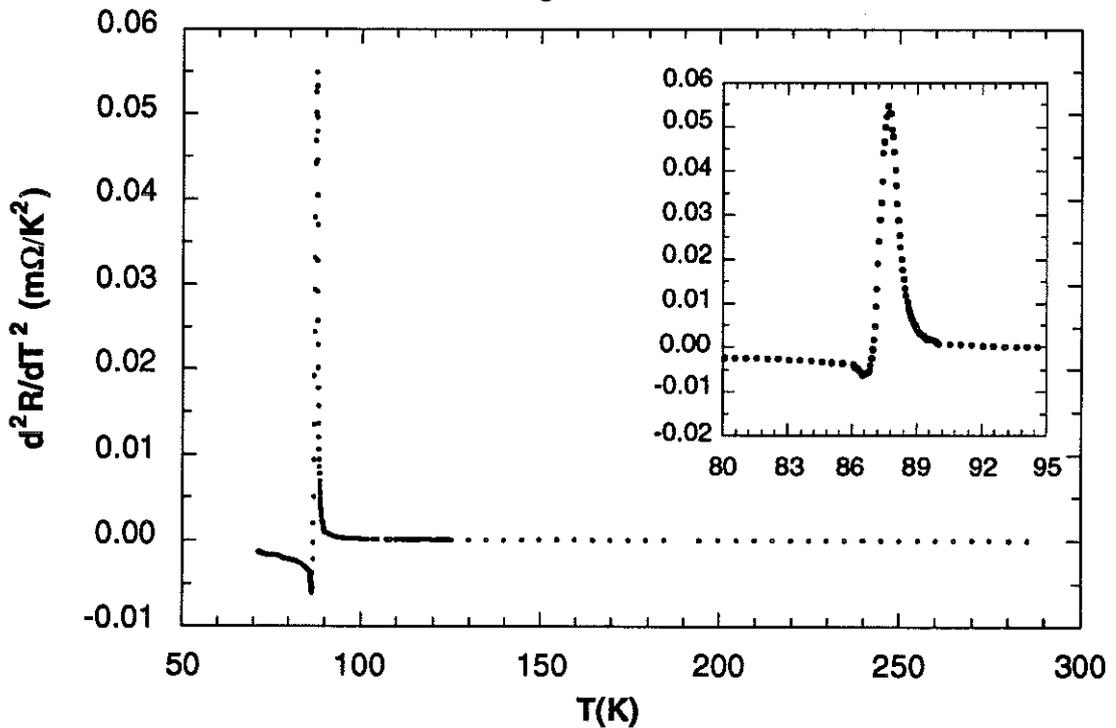


Figure III.5

IV.3 - Procédure retenue pour l'analyse des résultats expérimentaux obtenus

IV.3.1 - Comparaison entre les mesures de chaleur spécifique et celles de dR/dT

Dans la littérature, de nombreuses études comparatives ont été effectuées sur les transitions ferromagnétiques [60,61,62]. A notre connaissance, en ce qui concerne les terres rares antiferromagnétiques, seul le dysprosium [30,31] et le gadolinium [34] ont fait l'objet d'une étude approfondie, montrant l'analogie entre les deux comportements. Dans le cas de l'erbium, les mesures de chaleur spécifique de Sckochdopole [41] redonnent approximativement les mêmes températures de transition. Ces mesures ont été effectuées sur un polycristal d'erbium. Nous avons, dans un premier temps, comparé (Fig. III.7) ces mesures de chaleur spécifique avec nos mesures de $\frac{dR}{dT}$ (Fig. III.4) sur le monocristal d'erbium, de forme elliptique.

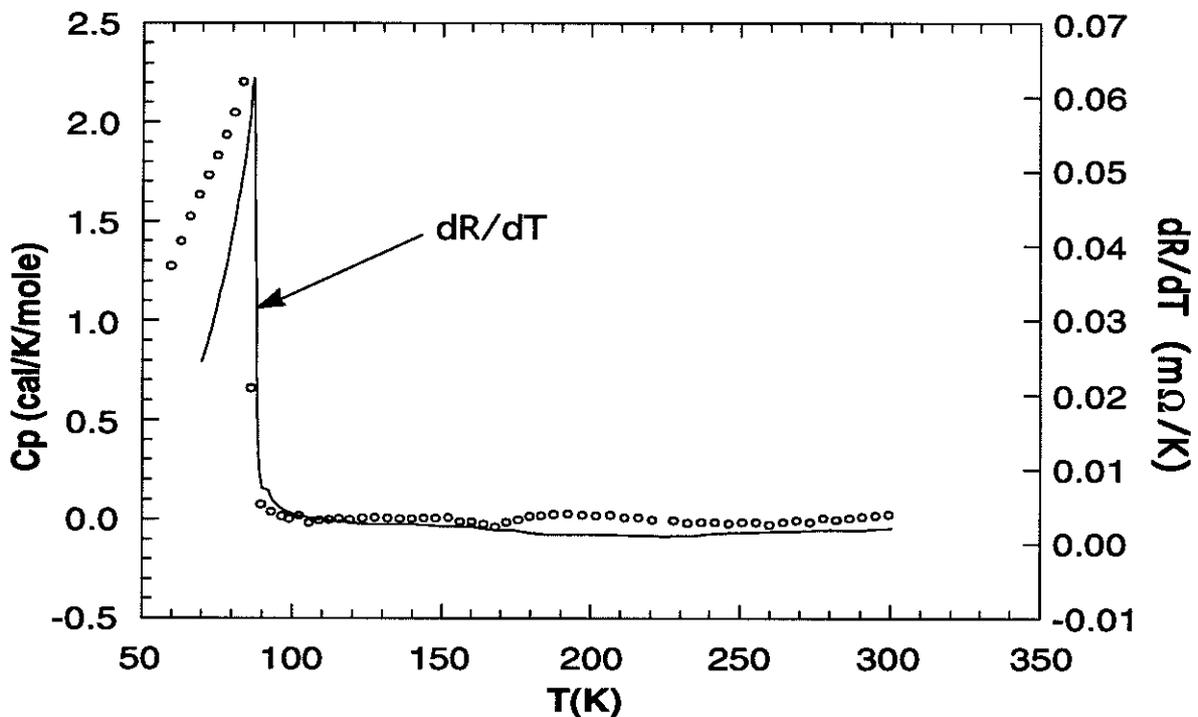


Figure III.7

Qualitativement, dans la gamme de température 70-120 K, nous pouvons voir que l'allure des deux courbes est similaire, compte tenu des mesures de grandeurs physiques différentes (thermodynamique, transport) faites sur des échantillons différents (l'un polycristallin, l'autre monocristallin). De plus la mesure de chaleur spécifique est une mesure "bulk" tenant compte de toutes les contributions (plan (a,b) et axe c) tandis que les mesures de dR/dT présentées sont faites selon l'axe de facile aimantation c.

IV.3.2 - Détermination du T_N dans la région paramagnétique

Nous considérons les mesures de $\frac{dR}{dT}$ dans l'intervalle de température au-dessus de T_N et loin de T_N . L'une des difficultés rencontrée pour fitter la courbe par l'équation (III-4) est le nombre de paramètres encore élevé (α , T_N , B et A). Pour réduire ce dernier, nous choisissons de prendre la dérivée logarithmique de l'équation (III-4), tout en retranchant la constante B à $\frac{dR}{dT}$. Nous obtenons ainsi l'équation (III-6), qui ne contient que trois paramètres, ce qui est relativement raisonnable :

$$\frac{d}{dT} \left[\ln \left| \frac{dR}{dT} - B \right| \right]^{-1} = -\frac{1}{\alpha} (T - T_N) \quad (\text{III-6})$$

Nous avons choisi de prendre la constante B égale à la moyenne de $\frac{dR}{dT}$ sur l'intervalle de température [150-240 K] ($B = 8,8 \cdot 10^{-3} \text{ m}\Omega/\text{K}$) (Fig. III.4). La figure III.8 représente l'évolution de la relation établie en (III-6) en fonction de la température. Cette constante B intervient dans le comportement linéaire de la courbe de résistance (Fig. III.2), loin de la région critique. Vu que cette valeur influe de façon significative dans l'expression (III-6), nous avons vérifié que cette dernière correspondait bien à la valeur extraite du fit linéaire [$R(T) = BT+C$] effectué sur la courbe de résistance dans le même intervalle de température [150-240K]. La figure III.8 montre un comportement linéaire dans la gamme de température [89-125 K], ce qui permet de déterminer directement la valeur de la température de Néel $T_N \approx 87.7 \text{ K}$, mais aussi celle de l'exposant critique $\alpha = 1/2$.

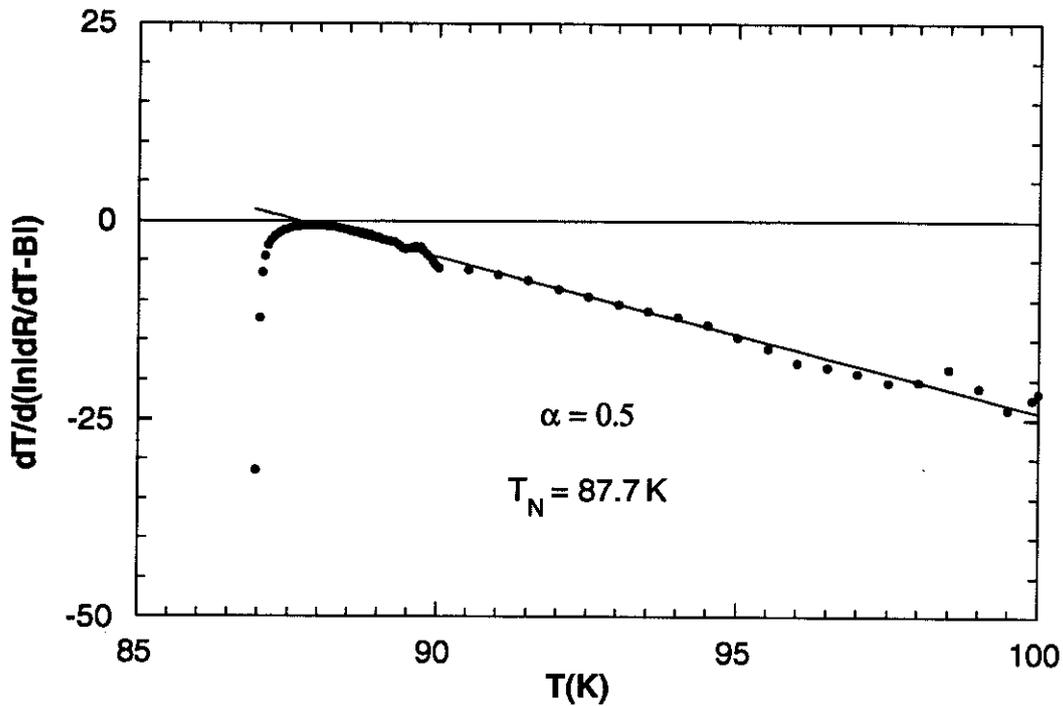


Figure III.8

La valeur de l'exposant critique obtenu α ($\alpha = 1/2$) dans cet intervalle de température est égale à celle de l'exposant de la chaleur spécifique prédite par la théorie de champ moyen. Une fois la valeur de $\alpha = 1/2$ déterminée entre 89 K et 125 K, nous avons repris l'équation (III-4) et utilisé l'algorithme de Marquardt ($dR/dT = At^{-1/2} + B$), où A , B et T_N ont été introduits comme paramètres. Le meilleur fit obtenu avec la valeur $\alpha = 1/2$ fixé a donné les valeurs suivantes dans l'intervalle 89-125 K : $T_N \approx 87,7$ K et $B \approx 8,7 \cdot 10^{-3}$ m Ω /K (Fig. III.9). Cette valeur de T_N correspond au point d'inflexion de $\frac{dR}{dT}$ au-dessus du minimum.

L'identification de la température au point d'inflexion ($T_N \approx 87,7$ K) n'est pas une simple coïncidence. Elle est non seulement confirmée par la méthode des moindres carrés non linéaire précédemment évoquée, en utilisant l'équation (III-4) Fig. (III.9), mais aussi par le fit linéaire effectué sur la dérivée logarithmique (Fig. III.8). A partir de cette analyse, il nous semble que l'approche la plus plausible dans la détermination du T_N est de considérer ce point d'inflexion ($T_N = 87,7$ K), au lieu du minimum observé sur les courbes de $\frac{dR}{dT}$ ($T_N = 86,9$ K), qui est le choix conventionnel du T_N [22,29,32,54,57]

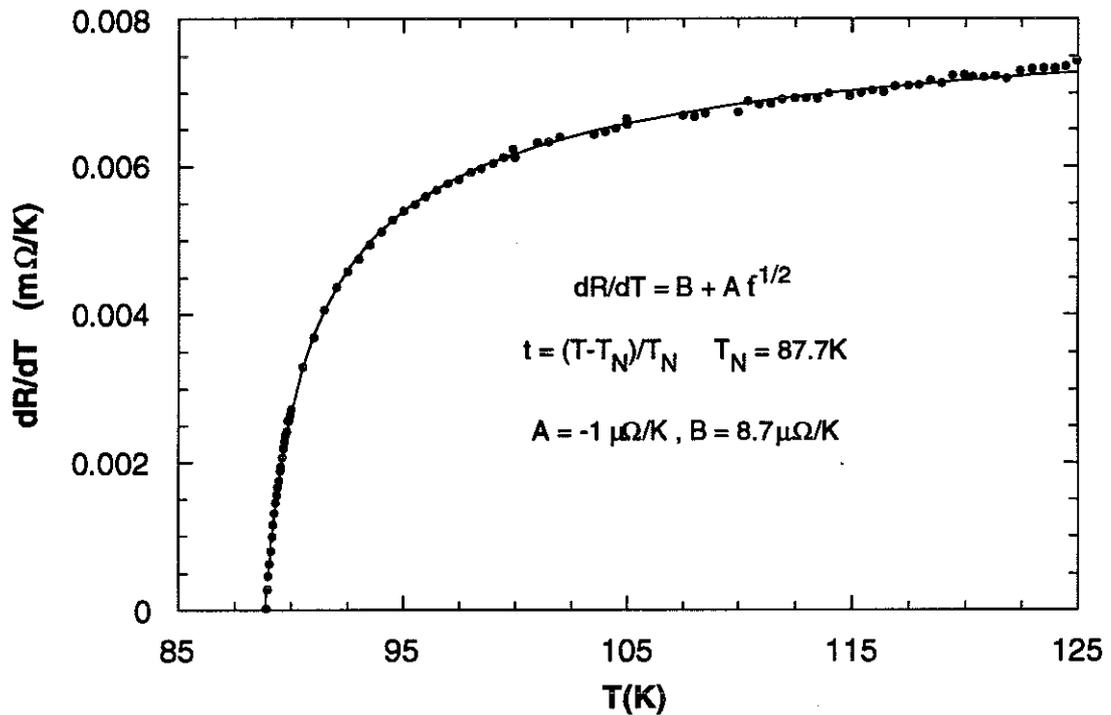


Figure III.9

IV.3.3 - Loin de la région critique $T \ll T_N$

Au-dessous du régime critique et loin de T_N ($T \ll T_N$), nous avons effectué plusieurs fits en utilisant l'équation (III-4), pour plusieurs intervalles de température en faisant varier les bornes supérieures et inférieures de la température. Le meilleur fit donne $\alpha = -0,46$ dans la région de température comprise entre 70-83 K. Nous avons comparé cette valeur aux précédentes valeurs obtenues pour le dysprosium et l'holmium dans des gammes de températures comparables, $\alpha = -0,3$ [54,32]. La valeur ainsi trouvée ($\alpha = -0,46$) n'est donc pas un artefact de mesure ou d'analyse. Cependant, les articles concernant la valeur de $\alpha = -0,3$ pour le dysprosium ont suggéré que cette valeur, étant loin de la valeur prédite par le champ moyen, pouvait être associée à la "bosse" antiferromagnétique, qui se produit à une température $T_H = 60$ K et qui correspond au réarrangement de spin antiferromagnétique. Aucune justification satisfaisante ou plus détaillée de cette hypothèse n'est apparue [54]. A la vue des résultats expérimentaux, il nous est apparu judicieux d'essayer de traiter ces données par des lois de type :

$$\frac{dR}{dT} = AT^n e^{-\Delta/T} \quad (\text{III-7})$$

Le meilleur fit, qui décrit l'allure de la courbe obtenue sur un intervalle un peu plus large que le précédent, correspond à des valeurs de $A = -0,17 \mu\Omega/K^2$, $n = 2$, $\Delta \approx 3T_N$. La figure III.10 illustre les points de mesures, ainsi que le fit en trait plein.

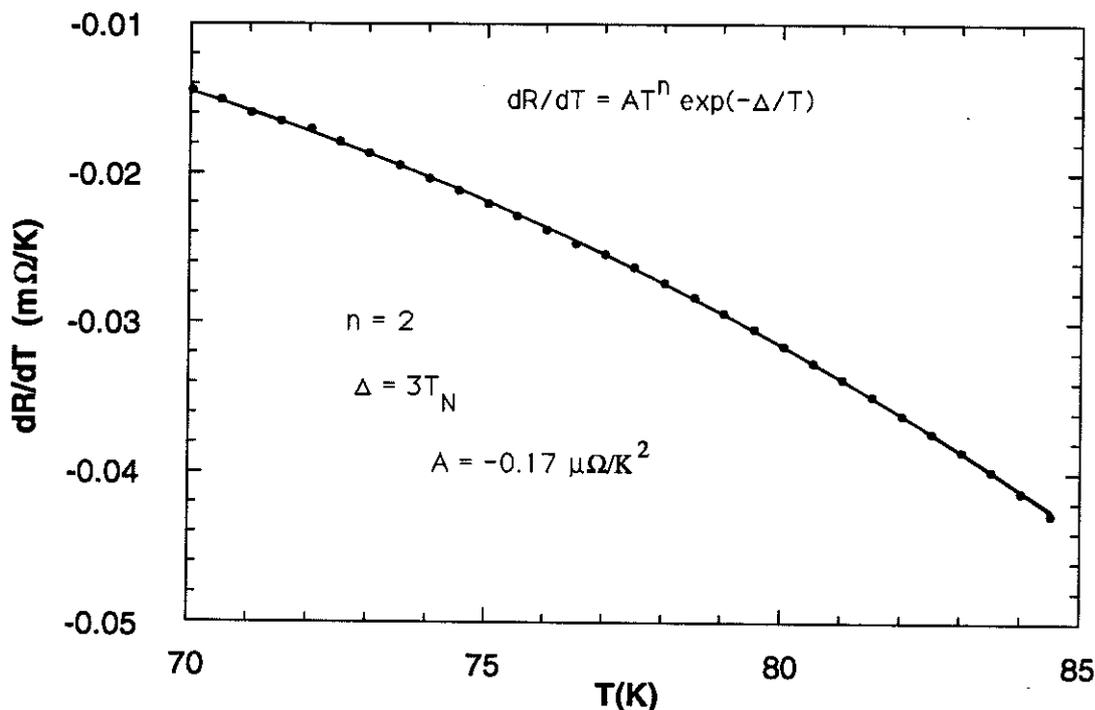


Figure III.10

Il est vrai que ce type de loi décrit mieux nos résultats expérimentaux, comparé aux formules analytiques utilisées au voisinage des transitions magnétiques. Toutefois, nous pensons que cette suggestion peut être traitée comme la signature de diffusion inélastique de phonons ou de magnons?, ce qui pourrait éventuellement expliquer la remontée brusque de la résistance au voisinage de $T_H = 60$ K. Néanmoins, nous insistons sur le fait que cela ne constitue pas une preuve de l'existence d'un gap dans le spectre des ondes de spin. Dans le cas de l'erbium, aucun gap n'a été signalé vers 300 K. Cependant, ce type de relation a été utilisée dans différentes variétés de transition (chaleur spécifique d'un supraconducteur [63], le modèle d'Ising de chaîne linéaire [64]). Dans le contexte de notre système (élément de terre rare), un fit similaire a décrit des mesures de chaleur spécifique pour le terbium et le dysprosium [23].

Ce genre de loi a été utilisée à basse température, comparé à Δ ($T < \Delta$), pour décrire des transitions ferro-antiferromagnétiques. La valeur déduite du gap d'onde de spin Δ est $\Delta = 23,5$ K pour le terbium et 31 K pour le dysprosium, avec une valeur de n fixée, $n = 1,5$. A notre connaissance, c'est la première fois que l'on suggère ce type de relation pour décrire la dérivée de la résistance dans une phase antiferromagnétique qui précède un régime critique, $T \ll T_N$. La question que l'on se pose est la suivante : peut-on vérifier l'existence d'un gap dans le spectre des ondes de spin $\Delta = 300$ K ? Ce qui, par contre, paraît plus évident, de mon point de vue, c'est que l'exposant de champ moyen n'est pas vérifié en dessous et loin de T_N , certainement à cause du réarrangement antiferro modulé- antiferro antiphase, qui a lieu au voisinage de ce régime, et qui peut masquer le comportement en $t^{-1/2}$.

IV.3.4 - Le régime critique

i) Au-dessous de T_N :

Pour les raisons évoquées précédemment, notre choix pour T_N s'est porté sur le point d'inflexion $T_N = 87,7$ K. Dans un premier temps, les paramètres A' , B' , α' sont traités comme des paramètres pouvant varier indépendamment.

Dès les premières analyses, nous avons noté une influence considérable du paramètre B' sur la détermination de l'exposant critique α' . Le premier fit adéquat sans contrainte sur les valeurs de A' , B' et α' a donné $\alpha' = -0,4$, $B' = -0,07$ m Ω /K dans la gamme de température (84,5-86,9 K). Les paramètres ainsi obtenus sont sensibles à une petite variation de l'intervalle de température quand la borne de température supérieure se rapproche de T_N . En outre, la valeur de B' obtenue est voisine de la valeur du pic de $\frac{dR}{dT}$ expérimental, ce qui amène à la remarque suivante : cette valeur est une contrainte imposée par l'algorithme utilisé pour l'analyse, même si, au départ, c'est un paramètre variable. Si l'on "éclate" la courbe de $\frac{dR}{dT}$ au voisinage de la transition (Fig. III.11), nous pouvons constater qu'il apparaît un arrondissement de la courbe au voisinage de la transition. Nous avons voulu vérifier expérimentalement, en resserrant les points autour de la transition avec des temps d'attente plus longs, que cet arrondi ne provenait pas des constantes de temps d'équilibre du système. Cette tentative ayant donné les mêmes résultats, nous pensons que l'arrondi observé peut être attribué aux imperfections du cristal. Dans cette

hypothèse, nous ne pouvons pas tenir compte des points de mesure très proches de T_N .

La procédure d'analyse est la suivante : vu l'influence de B' sur les valeurs de α' , nous avons effectué plusieurs fits, en permettant à α' de varier de $-0,001$ à $-0,4$, et nous avons ainsi déterminé les valeurs de B' que l'on n'a pas pu atteindre expérimentalement. Ensuite, en utilisant les valeurs de B' ainsi estimées, nous avons choisi les meilleurs fits dans la gamme de température $[85-86,8 \text{ K}]$, qui se révèle être l'intervalle de température où les paramètres A' et α' sont indépendants de la température. De plus, nous nous sommes assurés que les paramètres ainsi obtenus (A' , α' , B') ne variaient pas de manière significative si l'on permettait à T_N de varier autour de la valeur $T_N \approx 87,7 \text{ K}$. En outre, nous avons comparé l'intervalle de température $[85-86,8 \text{ K}]$ que nous avons considéré pour mener cette analyse avec les estimations prédites pour le régime critique $3 \cdot 10^{-4} \leq t \leq 3 \cdot 10^{-2}$ [54]. Nous pouvons ainsi conclure que l'intervalle choisi $85-86,8 \text{ K}$ est consistant. Cependant, les points très proches de T_N n'ont pas été pris en compte à cause de la nature arrondie de la transition. Cette dernière n'étant pas suffisamment raide "idéale" à cause des imperfections liées peut-être aux défauts (dislocations, contraintes...) à l'intérieur de l'échantillon.

i) Au-dessus de T_N :

Nous avons mené la même analyse proche de T_N , par valeur supérieure. Cependant, les fits utilisant l'équation (III-4) n'ont pas décrit de manière adéquate la courbe expérimentale dans l'intervalle de température $1 \cdot 10^{-3} \leq t \leq 1,5 \cdot 10^{-2}$ avec des valeurs d'exposant α constantes, satisfaisant le critère $\alpha = \alpha'$ au-dessus et en dessous de T_N . Pour se convaincre que ce type de loi ne suffit pas pour décrire les mesures expérimentales, nous avons tracé la fonction suivante : $\ln|dR/dT-B|$ versus $\ln|t|$ dans la même gamme de température $[87,8-89 \text{ K}]$. La valeur de B était égale à B' ($B=B'$) pour satisfaire le critère de continuité de dR/dT à T_N . Les valeurs de B sont données dans le tableau III.1.

Le fait qu'aucun fit linéaire n'ait pu décrire la fonction précédente nous a amené à penser qu'une modification des formules analytiques proposées pour ce type de transition était nécessaire. Cette correction de l'exposant d'échelle, pour pouvoir passer d'un régime paramagnétique à un régime critique proche

de T_N , par valeur supérieure par exemple, a été suggérée dans plusieurs articles [54,55,78].

Cela nous conduit à remplacer l'équation (III-4) par :

$$\frac{dR}{dT} = B + A\theta(t)t^{-\alpha}(1+Ft^{\Delta_1}) \quad (\text{III-8})$$

où $\theta(t) = 1(0)$ selon que $t > 0$ ou ($t < 0$), Δ_1 est la correction à l'exposant α , et B , A et F sont les paramètres du fit.

En toute rigueur, ce même type de correction est prédit pour le régime critique en dessous de T_N , avec la même correction Δ_1 et des paramètres ($B = B'$), A' et F' . Nous reviendrons sur cette remarque dans la conclusion de ce chapitre.

Ainsi, le régime critique au voisinage de T_N par valeur supérieure est décrit par :

$$\frac{dR}{dT} = B + At^{-\alpha}(1 + Ft^{\Delta_1}) \quad (\text{III-9})$$

Nous avons effectué plusieurs fits en utilisant cette dernière équation dans l'intervalle de température [87,8-89 K]. L'exposant de "cross-over" Δ_1 a été fixé en utilisant les résultats de la théorie de groupe de renormalisation, en ce qui concerne la correction de l'exposant d'échelle.

Cet exposant Δ_1 dépend du degré de liberté du paramètre d'ordre n . Si nous prenons les valeurs de Δ_1 calculées par le modèle à n -vecteur, $\Delta_1 = 0,52$ et $\Delta_1 = 0,55$ pour $n = 2$ et $n = 4$ respectivement. Si l'on ne tient compte que du critère de continuité de $\frac{dR}{dT}$ à T_N , c'est-à-dire ($B=B'$) (Tableau III.1), nous obtenons dans l'intervalle $\alpha[-0,001$ et $-0,4]$ plusieurs valeurs de l'exposant α qui peuvent satisfaire ($\alpha = \alpha'$), et décrire le comportement critique au-dessus de T_N . Nous voyons ainsi qu'en ne tenant compte que de ces critères, nous ne pouvons pas trancher sur une valeur de α . Tel qu'il est présenté, ce système admet plusieurs solutions. Il faut donc rechercher un autre critère si l'on veut résoudre le problème selon cette approche théorique. Or, il existe une relation, dite

d'universalité, du rapport d'amplitude critique $\frac{A}{A'}$. Ce dernier dépend à la fois de n et de α . Son expression est donnée par [54,65,66,70,76]:

$$\left| \frac{A}{A'} \right| = 2^{\alpha(1+\varepsilon)} \left(\frac{n}{4} \right) + \theta(\varepsilon^2) \quad (\text{III-10})$$

avec $\varepsilon = 4-d$, d étant la dimensionalité du système, dans notre cas $d = 3$. Pour l'intervalle de α choisi $[-0,001, -0,4]$, nous avons calculé les valeurs théoriques en utilisant l'équation (III-10) pour deux valeurs du degré de liberté du paramètre d'ordre $n = 2,4$. Nous les avons ensuite comparées à celles extraites des différents fits, quand α varie de $-0,001$ à $-0,4$, en utilisant les valeurs estimées pour l'exposant Δ_1 , selon le modèle n -vecteur ou la série d'analyses hautes températures donnée dans les références [69,70].

Finalement, nous aboutissons à deux cas possibles :

- Si $n = 2$ et $\Delta_1 = 0,52$ (n vecteur modèle)
et $\Delta_1 = 0,6$ (série d'analyses hautes températures),

la valeur de l'exposant critique α , qui satisfait l'équation (III-10) avec les différentes estimations de Δ_1 , est :

$$\alpha \approx -0,0015 \pm 0,0005 \text{ et } \frac{A}{A'} = 1,010 \pm 0,002.$$

Nous pouvons raisonnablement dire que α est proche de zéro. La figure III.11 présente plusieurs fits pour différentes valeurs de α .

- Si $n = 3,4$ et $\Delta_1 = 0,54$ (n vecteur modèle)
et $\Delta_1 = 0,55$ (série d'analyses hautes températures),

la valeur de α serait $\alpha \approx -0,119 \pm 0,004$ avec $\frac{A}{A'} = 2,018 \pm 0,007$ en respectant le critère (III-10).

De récentes mesures d'aimantation [67] ont confirmé que la phase antiferromagnétique comprise entre 60 K et 87 K était bien une phase modulée selon l'axe c . Nous pouvons penser que le nombre de degré de liberté de l'aimantation est $n = 2$, ce qui est en accord avec l'article [68] montrant qu'une transition antiferro sinusoïdale \leftrightarrow paramagnétique est décrite par un modèle type Heisenberg avec $n = 2$. Comme l'erbium possède ce même type de transition modulée selon c , au voisinage de T_N , nous pouvons croire qu'il peut

être probablement décrit par un modèle de spin avec deux degrés de liberté pour le paramètre d'ordre $n = 2$. Dans ce cas, l'exposant critique qui permet d'obtenir un fit raisonnable, en accord avec le critère d'universalité du rapport d'amplitude, est $\alpha \approx -0,001$, et donc très proche de zéro.

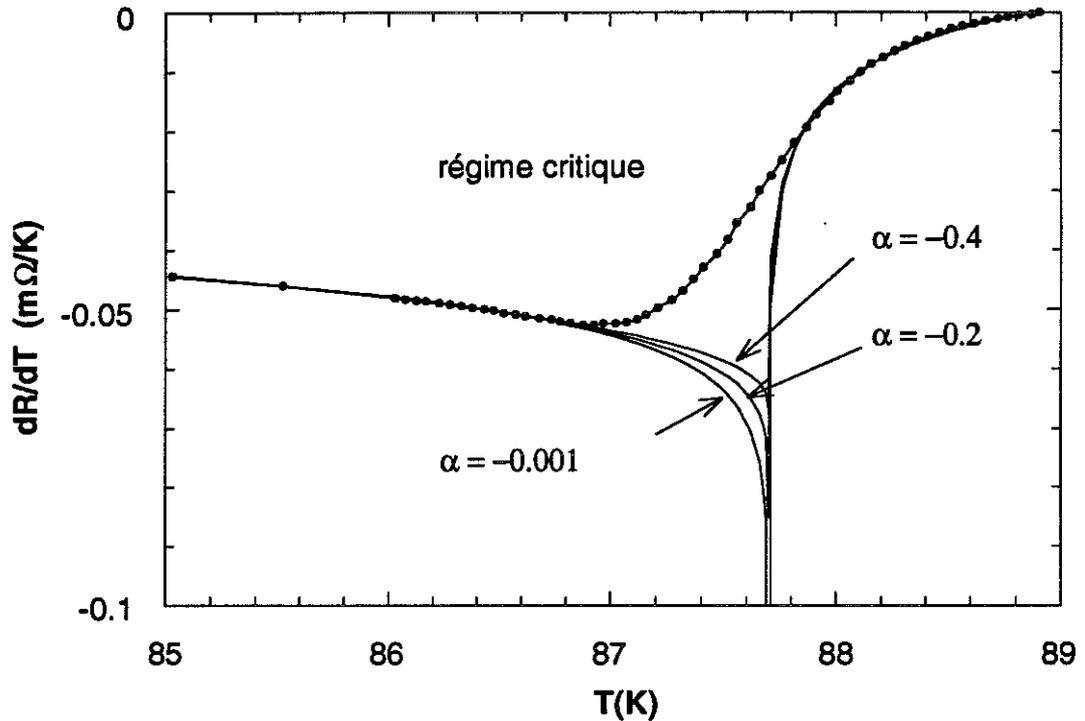


Figure III.11

V - CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons mené une étude détaillée de la dérivée de la résistance par rapport à la température, sur un échantillon d'erbium orienté selon l'axe c , au voisinage de T_N . Dans la littérature, les analyses effectuées sur les mesures de résistance pour déterminer les exposants critiques de la partie singulière de la résistivité, ont bien mis en évidence les difficultés auxquelles ils ont été confrontés, à savoir : le grand nombre de paramètres à déterminer et leur forte interdépendance dans un intervalle de température réduit.

Finalement, la mesure directe de $\frac{dR}{dT}$ nous a permis :

- (i) de proposer une approche plausible pour la détermination de la température de Néel, confirmée par l'analyse numérique,
- (ii) la précision de nos résultats expérimentaux de $\frac{dR}{dT}$ nous a permis d'être cohérent avec le modèle qui consiste à considérer que la partie singulière de $\frac{dR}{dT}$ est dominée par les corrélations à courte portée dans les deux cas, $T \rightarrow T_N^+$ et $T \rightarrow T_N^-$, alors que les corrélations à longue portée ($\alpha = 1/2$) deviennent pertinentes pour $t > 2 \cdot 10^{-2}$ sur un intervalle de température assez large dans la phase paramagnétique,
- (iii) la première analyse du comportement de $\frac{dR}{dT}$ en dessous de T_N , mais loin du régime critique, a conduit à une valeur $\alpha = -0,46$, qui a également été déterminée pour d'autres éléments de terre rare, mais dont l'interprétation physique n'est pas encore bien établie. Nous avons suggéré qu'une loi d'activation thermique pouvait décrire le comportement de nos résultats dans une grande gamme de température, loin de T_N . L'origine physique sous-jacente serait l'existence d'un gap dans la phase antiferromagnétique provenant de diffusions inélastiques de magnons ou de phonons?, et pourrait peut-être expliquer la remontée de la résistance à $T = 60$ K.

La comparaison entre les valeurs théoriques et celles extraites des courbes expérimentales est donnée dans le tableau III.1.

α'	α	$B'=B$	A'	A	A/A'	$2^{\alpha n/2} (n=2)$	$2^{\alpha n/2} (n=4)$
-0,001	-0,002	-7,479	7,460	7,537	1,010	0,999	1,999
-0,005	-0,008	-1,534	1,516	1,595	1,052	0,997	1,993
-0,010	-0,015	-0,791	0,773	0,850	1,010	0,993	1,986
-0,050	-0,068	-0,197	0,181	0,276	1,524	0,966	1,932
-0,100	-0,119	-0,122	0,111	0,224	2,018	0,933	1,866
-0,200	-0,188	-0,085	0,082	0,225	2,744	0,871	1,741
-0,300	-0,231	-0,073	0,081	0,243	3,000	0,812	1,625
-0,400	-0,263	-0,066	0,090	0,265	2,944	0,758	1,516

Tableau III.1

La figure III.12 présente les résultats expérimentaux de $\frac{dR}{dT}$, ainsi que les différents fits selon les intervalles de température considérés dans toute la gamme 70-125 K.

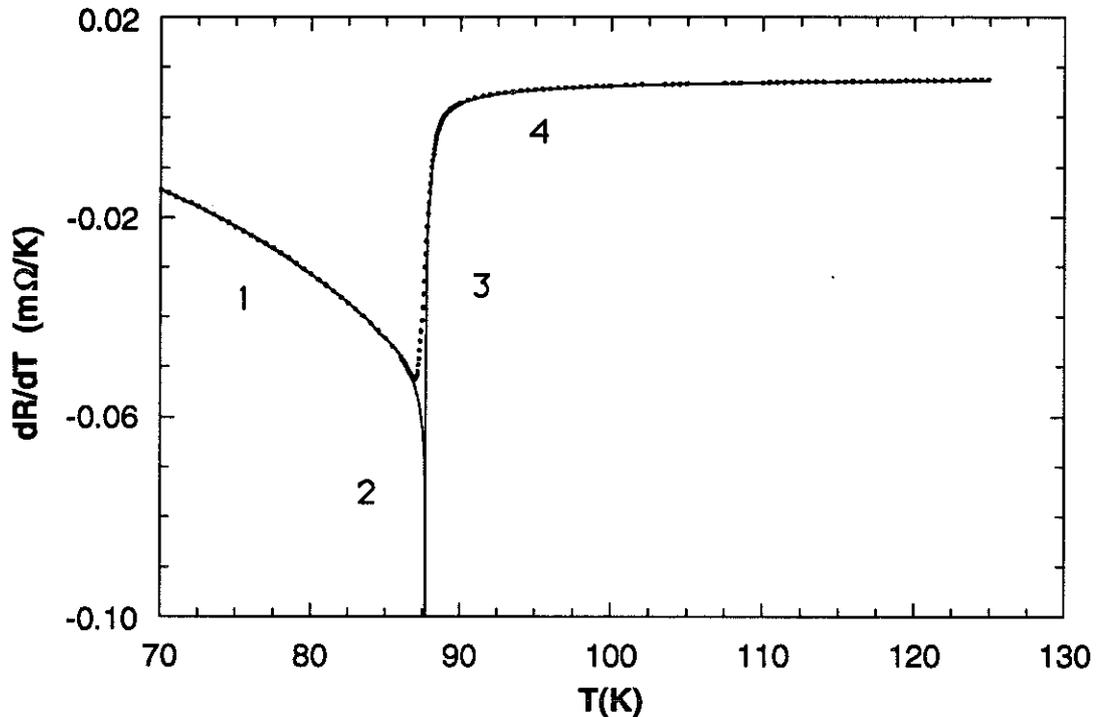


Figure III.12

- (iv) Nous avons pu remarquer qu'au voisinage de T_N , plusieurs valeurs de paramètres pouvaient tout aussi bien décrire les courbes expérimentales de $\frac{dR}{dT}$. Pour éviter d'obtenir des valeurs incohérentes et de donner des conclusions hâtives, nous avons mis l'accent sur la précaution qu'il faut prendre pour traiter ce genre de comportement critique. La valeur de l'exposant critique $\alpha = -0,001$ a été déterminée de telle sorte que les critères physiques donnés par le modèle utilisé soient satisfaits, à savoir :
- a) la continuité de $\frac{dR}{dT}$ à T_N ($B = B'$),
 - b) l'égalité des exposants critiques au-dessus et au-dessous de T_N ($\alpha = \alpha'$), en accord avec le critère des exposants pour la chaleur spécifique [78],
 - c) la vérification du critère d'universalité du rapport d'amplitude $\frac{A}{A'}$ déterminé à partir des expressions théoriques [65,66,69,70,76].
- (v) **Remarque :** Le même type de relation (III-8) pourrait exister en dessous de T_N puisque des critères d'universalité des rapports $\frac{F}{F'}$ [70,76] également liés à α , n et d sont prédits. Ce dernier pourrait permettre de

passer d'un régime loin de T_N à un régime critique, toujours en dessous de la transition. Nous avons effectué ce type d'analyse, mais la valeur de F' était insignifiante. C'est pourquoi nous n'avons tenu compte que de la relation (III-4), en dessous de T_N , sans terme de cross-over Δ_1 . De plus, ceci peut s'expliquer par l'existence de la transition antiferro-hélicoïdale / antiferromodulée, si proche de la région critique.

CHAPITRE IV**ETUDE DE L'ERBIUM SOUS CHAMP**

I - INTRODUCTION

Nous allons présenter, dans ce chapitre, le comportement de la résistance et de la partie singulière de $\frac{dR}{dT}$ au voisinage des différentes transitions de phase, sous champ magnétique compris entre 0 et 5 T. La précision des données expérimentales de $\frac{dR}{dT}|_{H=0T}$ nous a permis de proposer une nouvelle approche dans la détermination des exposants critiques, au voisinage d'une transition magnétique (Chapitre III), en se basant sur les différents modèles prédits par la théorie du groupe de renormalisation, ce qui nous a motivés pour montrer qu'en utilisant les propriétés de transport $R(T,H)$ et $\frac{dR}{dT}|_H$ sur un monocristal d'erbium, nous pouvions proposer une nouvelle investigation dans la détermination d'un diagramme de phase (T,H). Des mesures simultanées d'aimantation effectuées sur un monocristal d'erbium similaire, en utilisant un magnétomètre à SQUID, nous permettra de comparer l'évolution des différentes lignes de transition sous champs.

La dernière partie de ce chapitre portera sur une analyse des mesures directes de $\frac{dR}{dT}$ sous champ, selon le même modèle théorique, montrant qu'à partir des propriétés de transport $\frac{dR}{dT}|_H$, il est peut être envisageable d'accéder à une autre propriété thermodynamique, telle que la température de Curie-Weiss.

II - MESURE DE LA RESISTANCE SOUS CHAMP MAGNETIQUE

La figure IV.1 présente les mesures de la résistance suivant l'axe c , en présence d'un champ magnétique $H // c$ compris entre 0 et 3 T, quand la température croît de 10 à 300 K. Le premier effet important que l'on puisse observé est l'atténuation brutale de la bosse antiferromagnétique observée à $T_H = 60$ K en champ nul, quand le champ magnétique appliqué augmente tous les 0,5 T (Figure IV.1). Ce comportement a déjà été signalé dans le cas d'un antiferromagnétique similaire T_b [71,77] ainsi que dans le Dy [81].

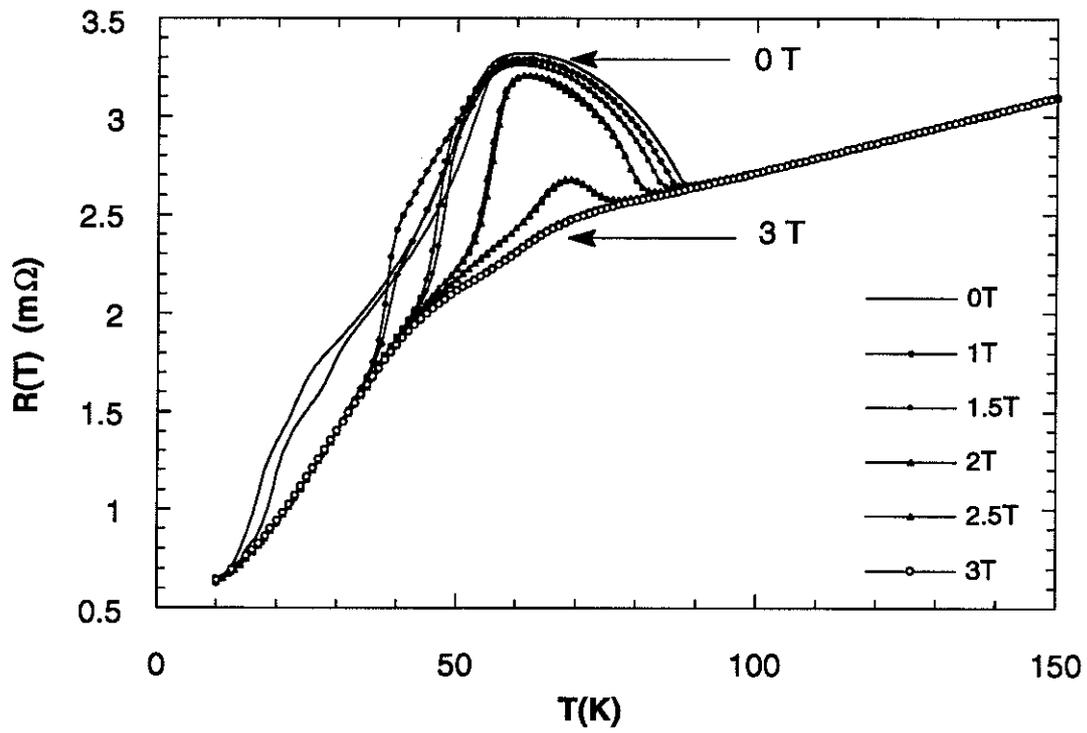


Figure IV.1

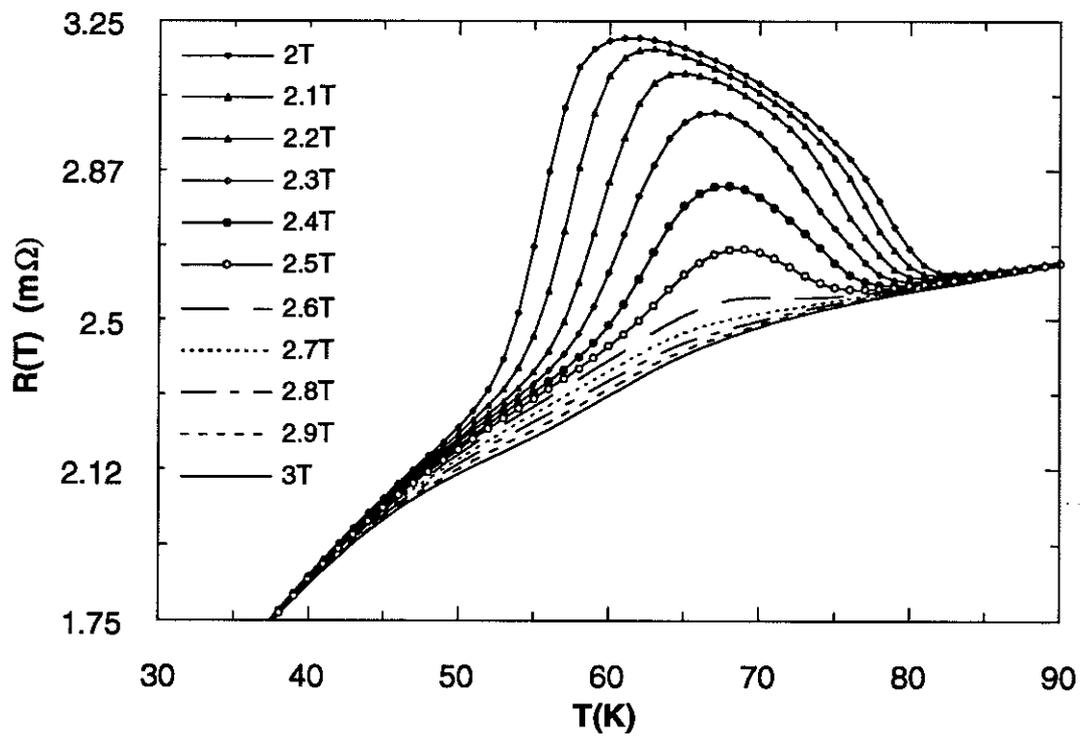


Figure IV.2

Pour bien observer cet effet, nous avons choisi d'incrémenter le champ magnétique tous les 0,1 T et de suivre la dépendance en température de la résistance dans l'intervalle de température considéré (Fig. IV.2).

Nous pouvons ainsi noter la diminution progressive de l'amplitude, ainsi que sa quasi disparition pour un champ de $H \sim 2,6$ T. De plus, de manière qualitative, nous notons un changement de symétrie de la bosse antiferromagnétique pour un champ voisin de $H \sim 2,3$ T. Un des points les plus importants qu'il ne faut pas oublier de signaler est la disparition de l'hystérésis observée en champ nul dans la gamme de température 10-60 K, pour un champ typiquement $H \sim 2,5$ T (Fig. IV.3).

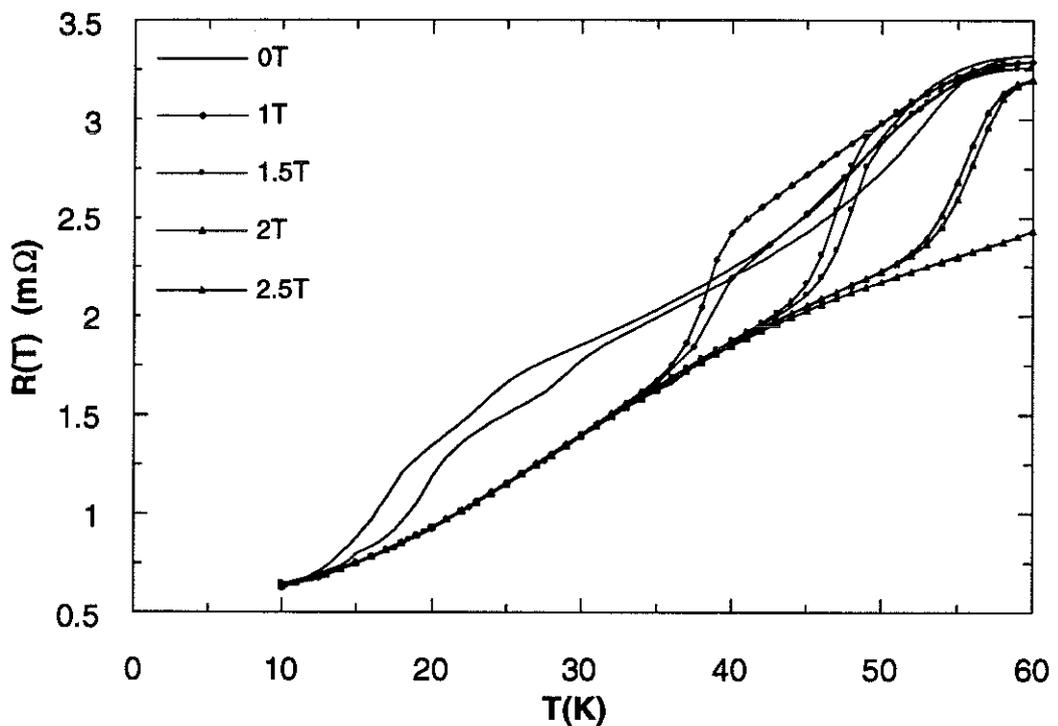


Figure IV.3

Cette remarque est d'un intérêt non négligeable puisqu'elle va nous permettre d'explorer les réponses de la résistance à une oscillation de température $\frac{dR}{dT}$ pour des champs voisins de $\sim 2,5$ T. La figure IV.4 présente les mesures de résistance en présence de champs plus forts (3 à 5 T). Nous pouvons noter la disparition de la bosse antiferromagnétique, mais aussi une incurvation marquant un changement de pente brusque quand le champ appliqué croît. Cet effet, sous toute réserve, peut être attribué au passage d'une région paramagnétique à une phase ferromagnétique. En effet, de récentes mesures de neutrons

sous champ $H // c$, sur monocristal d'erbium orienté selon l'axe c , ont confirmé qu'aucune phase antiferromagnétique ne persistait au-delà d'un champ $H \sim 2,5$ T [72].

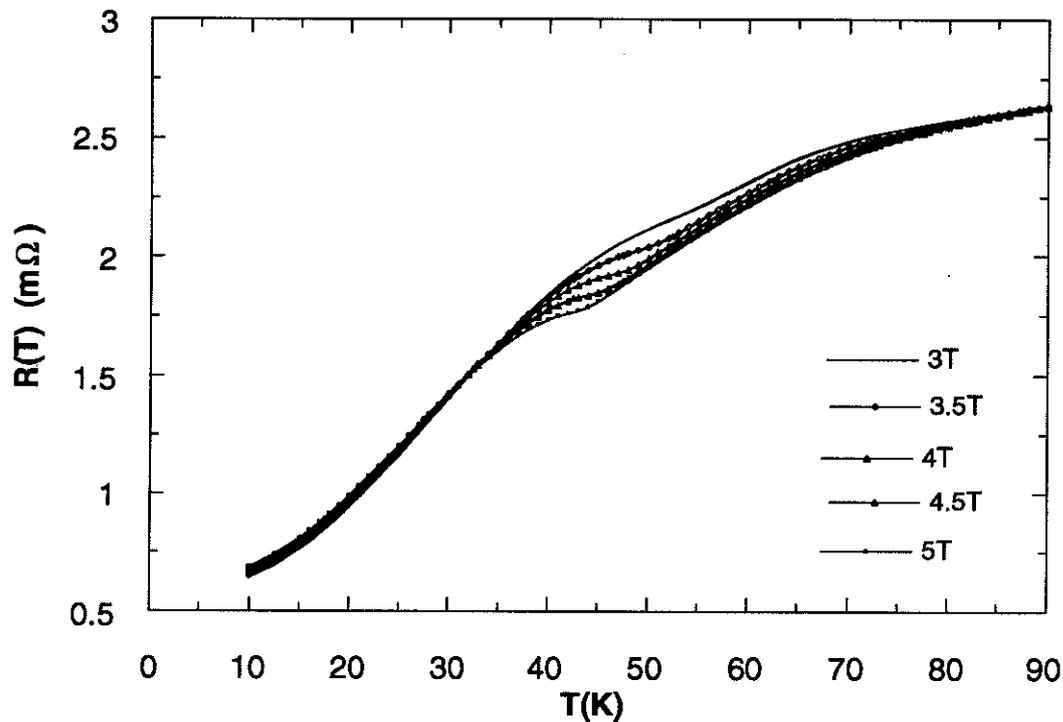


Figure IV.4

III - MESURE DE $\frac{dR}{dT}$ SOUS CHAMP MAGNETIQUE

La figure IV.5 présente les mesures de la dérivée de la résistance en fonction de la température, en présence de champ magnétique [0 -3T], le long de l'axe de facile aimantation (axe c), dans l'intervalle de température 70-100 K. Nous allons focaliser notre intérêt sur la transition paramagnétique - ferromagnétique qui a lieu à $T_N = 87,7$ K, $H = 0$ T. A mesure que nous augmentons le champ, cette transition se décale vers les basses températures, décrivant la ligne de transition habituelle para-antiferromagnétique. Cependant, pour un champ de 2 T, un second point d'inflexion commence à prendre naissance au voisinage du régime critique. Puis, pour un champ de $H \sim 2,25$ T, on observe nettement un "splitting" de la température critique.

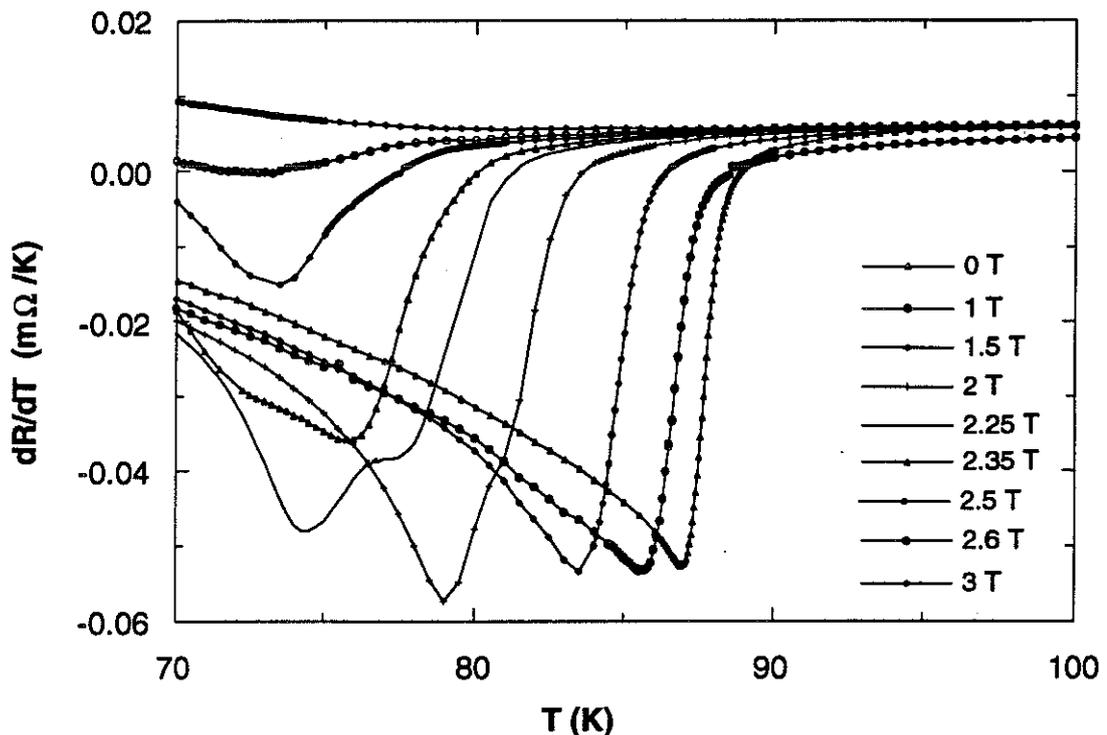


Figure IV.5

Cet effet n'est pas un artefact de mesure car une série de mesures a été effectuées en descendant et en montant la température, pour ce même champ, en resserrant au maximum les points de mesure. Par contre, ce dédoublement de la transition peut suggérer qu'un nouvel ordre magnétique commence à s'établir pour un champ voisin de 2 T. L'interprétation physique de ce type de singularité peut s'expliquer par le fait que les moments magnétiques tendent à s'orienter selon la direction du champ magnétique appliqué, dans la phase antiferromagnétique, ce qui suggérerait que la transition de la région paramagnétique à la phase antiferro-modulée selon l'axe c se fait par l'intermédiaire d'une poche où les moments sont ordonnés différemment. Il est vrai que par des mesures de transport nous ne pouvons pas dire avec certitude de quelle phase il s'agit ! Néanmoins, nous suggérons avec réserve que cette phase est une phase ordonnée ferro- ou ferrimagnétique, mais certainement différente de l'antiferromagnétique. Parallèlement à nos mesures de transport sous champ, un article concernant l'étude aux neutrons sous champ sur un monocristal d'erbium montre également qu'un ordre différent s'établit dans la phase antiferromagnétique pour des champs allant de 2 à 3 T. Ils ont suggéré que ce domaine était ferromagnétique [72]. Cette constatation montre bien qu'avec des mesures de transport aussi performantes, nous pouvons mettre en

évidence l'apparition de nouvelles phases sous champ, jusqu'alors non évoquées par d'autres mesures.

La seconde anomalie, qui apparaît juste après cette singularité, correspond à la transition de la phase ferromagnétique (peut-être modulée selon l'axe c ?) à la phase antiferromagnétique modulée. Toutefois, un champ d'environ 2,45 T est suffisant pour détruire complètement la structure antiferromagnétique modulée selon l'axe c , l'anomalie correspondante disparaissant. Cependant, sur la figure IV.5, nous pouvons bien observer que la singularité, qui persiste pour des champs plus forts que 2,45 T, caractérise la transition de la phase paramagnétique à la nouvelle phase ordonnée, précédemment évoquée. Ce champ $H \sim 2,45$ T correspond également à la disparition de la bosse antiferromagnétique, observée dans la figure IV.4.

La dernière transition correspond au passage de la phase antiferromagnétique à l'ordre ferromagnétique "conique". Cette transition se déplace vers les hautes températures jusqu'à un champ d'environ 2,45 T.

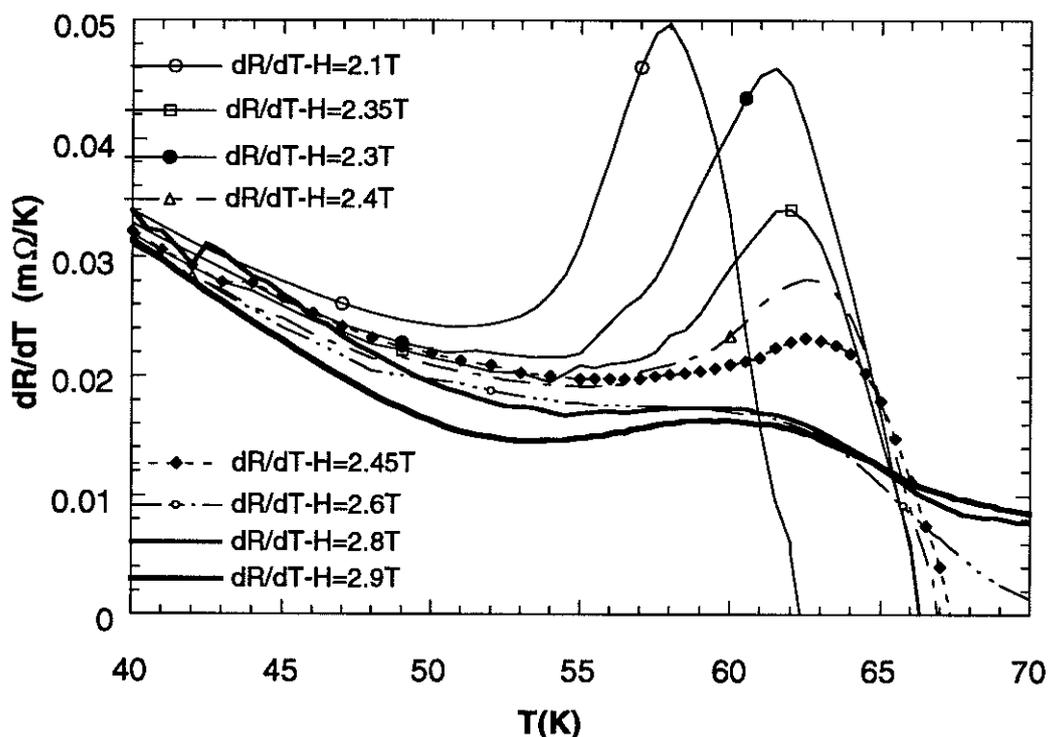


Figure IV.6

La figure IV.6 présente la courbe de $\frac{dR}{dT}$ pour différents champs, jusqu'à la disparition du pic antiferro-ferromagnétique. Pour des champs supérieurs à 2,45 T, jusqu'à 2,6 T, il semblerait qu'un changement de courbure se produise et se déplace vers les basses températures, définissant une ligne entre ces deux

structures ferromagnétiques différentes. Ce qui est certain, c'est qu'à partir d'environ 2,6 T on passe directement de la région paramagnétique à la structure ferromagnétique conique.

Finalement, pour des champs supérieurs, il y a un déplacement des courbes de $\frac{dR}{dT}$ vers les basses températures, signalant une pseudo-limite entre un état paramagnétique et une structure ferroconique figée. Peut-être faudrait-il aller vers des champs plus élevés pour n'avoir qu'un état où tous les moments seraient alignés parallèlement au champ, dans une structure ordonnée à l'infini.

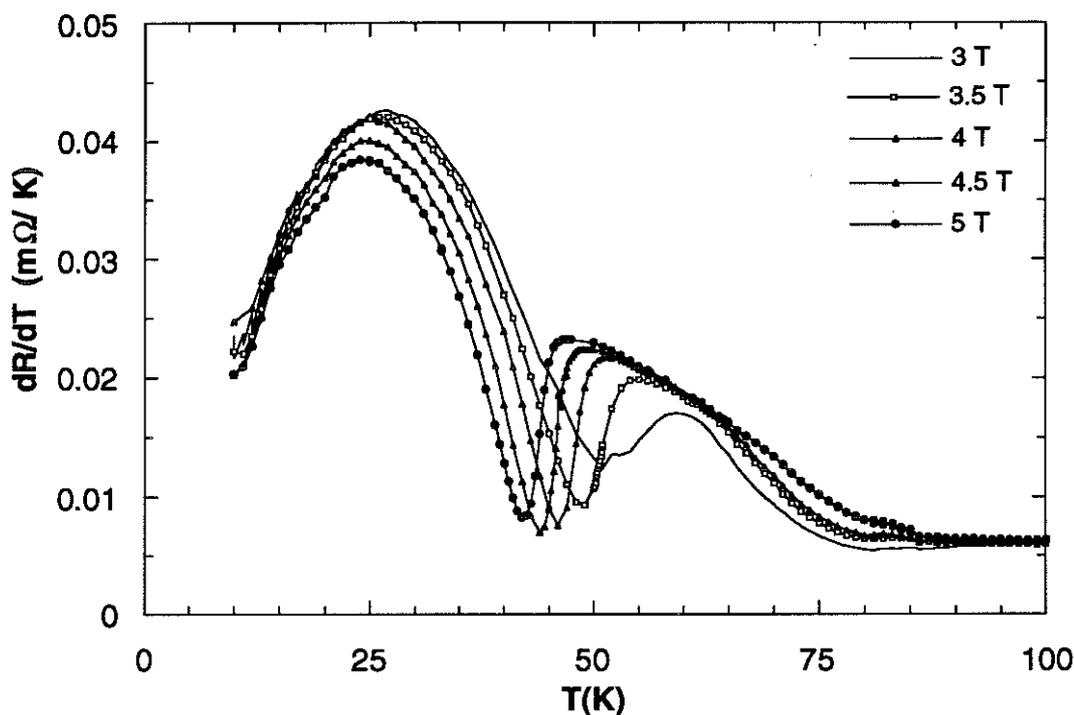


Figure IV.7

La figure IV.7 présente les mesures de $\frac{dR}{dT}$ en présence de champs magnétiques plus forts (3 T - 5 T). La température de "Curie" a été prise au premier point d'inflexion, entre les deux bosses, quand la température décroît. Le même critère a été retenu pour les différents champs magnétiques.

Durant l'analyse de nos mesures de $\frac{dR}{dT}$ sous champ magnétique, un article concernant l'étude de la structure magnétique de l'erbium sous champ [72] est paru. Il a confirmé que le passage de l'état paramagnétique à la structure modulée selon l'axe *c*, pour des champs allant de 2 à 3 T, se faisait via une phase ferromagnétique, mais aucune précision sur la structure n'a été mentionnée. Notre étude s'est poursuivie jusqu'à 5 T, c'est pourquoi nous signalons une pseudo-limite entre l'état paramagnétique et l'état ferro-conique.

De plus, la nouvelle phase "ferromagnétique conique" est définie, d'une part par la ligne para-ferromagnétique, et d'autre part par la ligne ferro-antiferromodulée, selon l'axe c. Ces lignes n'ont pas été définies dans les articles [72] et [73]. Au vu de ces résultats surprenants, nous envisageons une nouvelle investigation dans l'étude de la structure magnétique d'un monocristal d'erbium similaire par mesure neutronique, allant jusqu'à des champs de 8 T.

IV - MESURE D'AIMANTATION

L'échantillon, dont on veut mesurer la variation d'aimantation induite par un champ extérieur de 0.01 T à 8 T, a la même forme elliptique et a subi le même traitement que celui mesuré par $\frac{dR}{dT}$. Sa masse est de 5,02 mg. Le champ est appliqué selon l'axe de facile aimantation.

IV.1 - Courbes de variation d'aimantation en fonction de la température

La figure IV.8 montre l'effet d'un champ magnétique extérieur [0.5-5T] sur l'aimantation, en fonction de la température.

IV.1.1 - Pour les faibles champs : 0,5 - 2 T

La courbe de variation de l'aimantation en fonction de la température, en présence d'un champs faible, se décompose en deux régions :

- Une première région à haute température, qui signale une transition para-antiferromagnétique modulée selon l'axe c. Le pic observé est de plus en plus marqué et se déplace vers les basses températures jusqu'à disparaître vers 2,25 T (Fig. IV.8). La figure IV.9 montre la variation de l'aimantation pour des champs allant de 1,5T à 2,5T avec incrément de 0,25T pour bien observer la disparition du pic antiferromagnétique.

Pour les champs allant de 1,5 à 2 T, le pic est relativement symétrique et croît en amplitude quand le champ augmente. Pour un champ de 2,25 T, nous

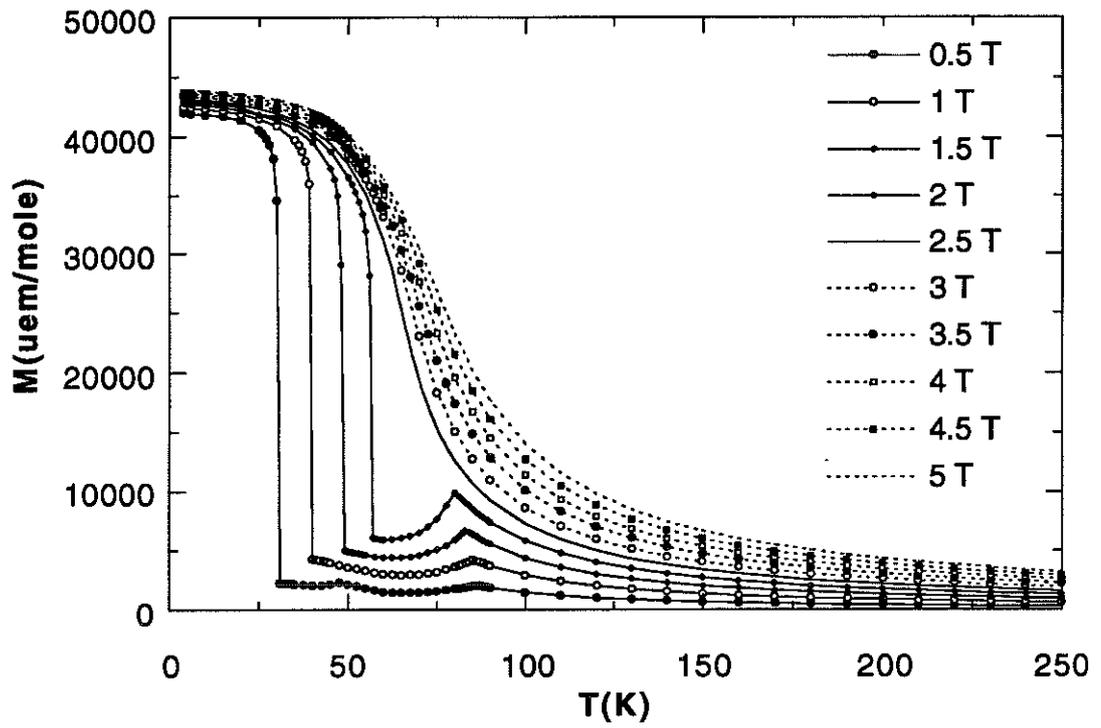


Figure IV.8

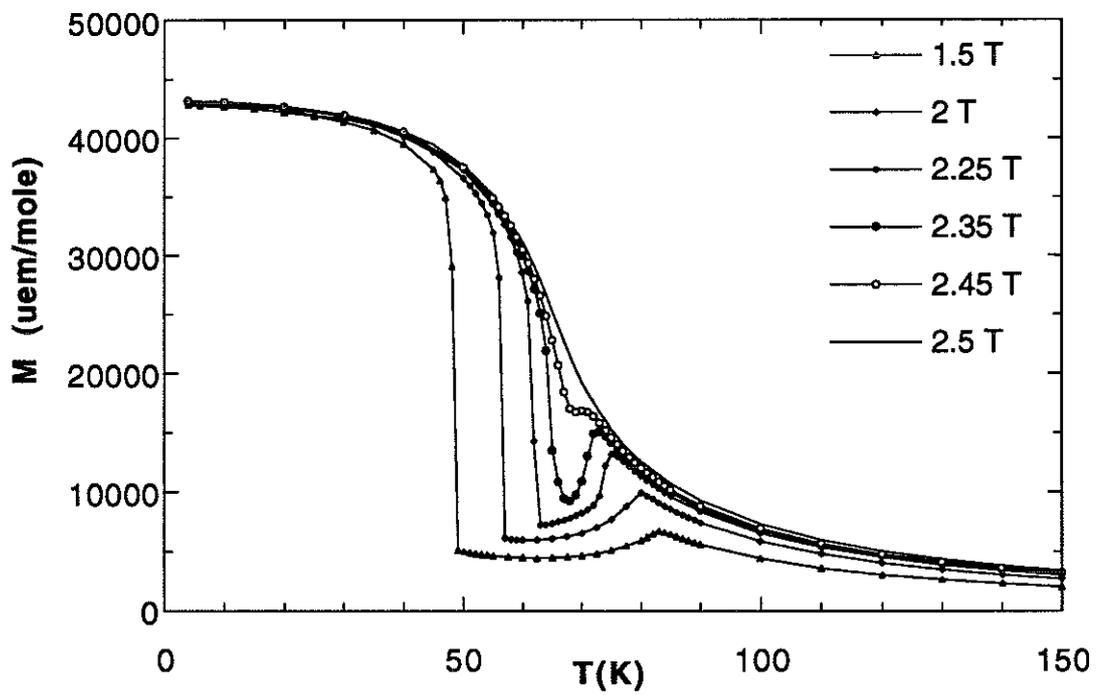


Figure IV.9

pouvons noter que le pic devient qualitativement asymétrique, avec une pente plus prononcée pour un champ de 2,35 T. Pour un champ de 2,45 T, le pic a laissé place à une incurvation beaucoup plus "douce", pour disparaître totalement à 2,5 T. La question posée : est-ce relié avec l'anomalie observée sur dR/dT "splitting" de la température critique, est-ce la signature d'un nouvel réarrangement magnétique ?

- La deuxième région correspond au saut brusque d'aimantation, signalant la transition antiferro-ferromagnétique "conique". Cette dernière se déplace vers les hautes températures et devient de moins en moins abrupte quand le champ augmente.

IV.1.2 - Pour les forts champs :

Sur la figure IV.8, on observe des courbes d'aimantation qui continuent de croître de façon monotone jusqu'à une valeur maximum. Nous voyons que, même pour un champ de 5 T, l'aimantation à saturation n'est pas atteinte.

IV.2 - Mesure d'aimantation en fonction du champ

La courbe de variation de l'aimantation M en fonction du champ extérieur se décompose en trois régions :

IV.2.1 - Région "basse température": 2-60 K :

On observe un régime linéaire en champ, $M \propto (H)$, signalant la phase antiferromagnétique, jusqu'à un champ H qui se déplace vers les forts champs quand la température augmente (Fig. IV.10). Pour ce champ, on observe un saut en aimantation lié au passage antiferromagnétique-ferromagnétique "conique". Notons que ce saut s'atténue au fur et à mesure qu'augmente la température, de 50 à 60 K.

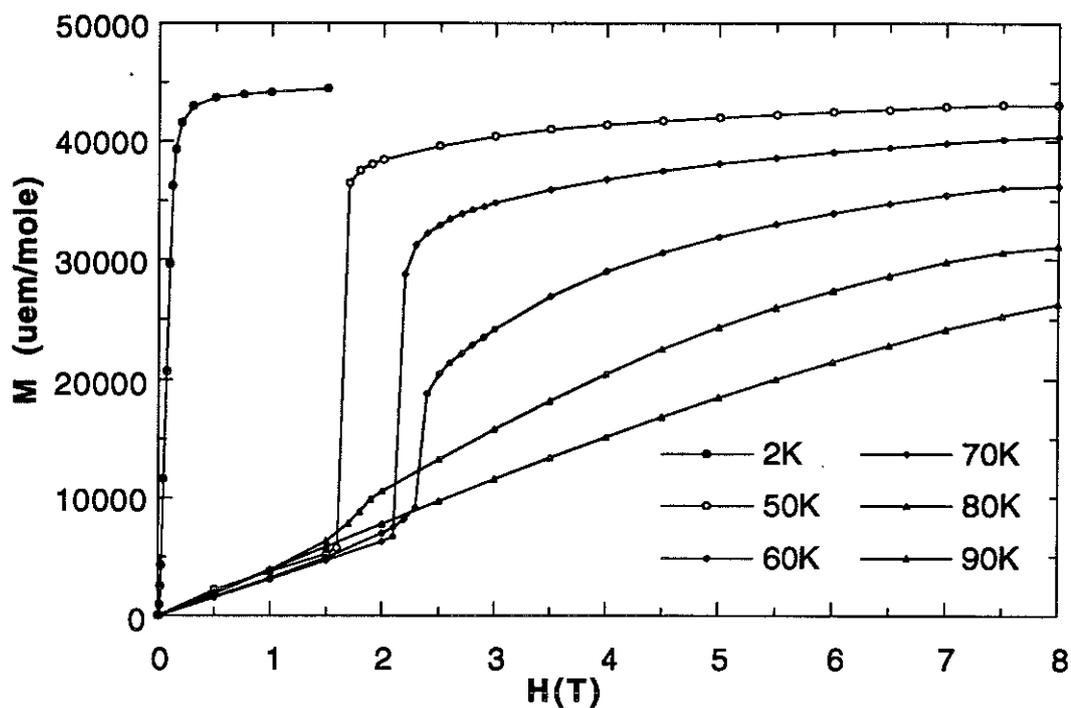


Figure.IV.10

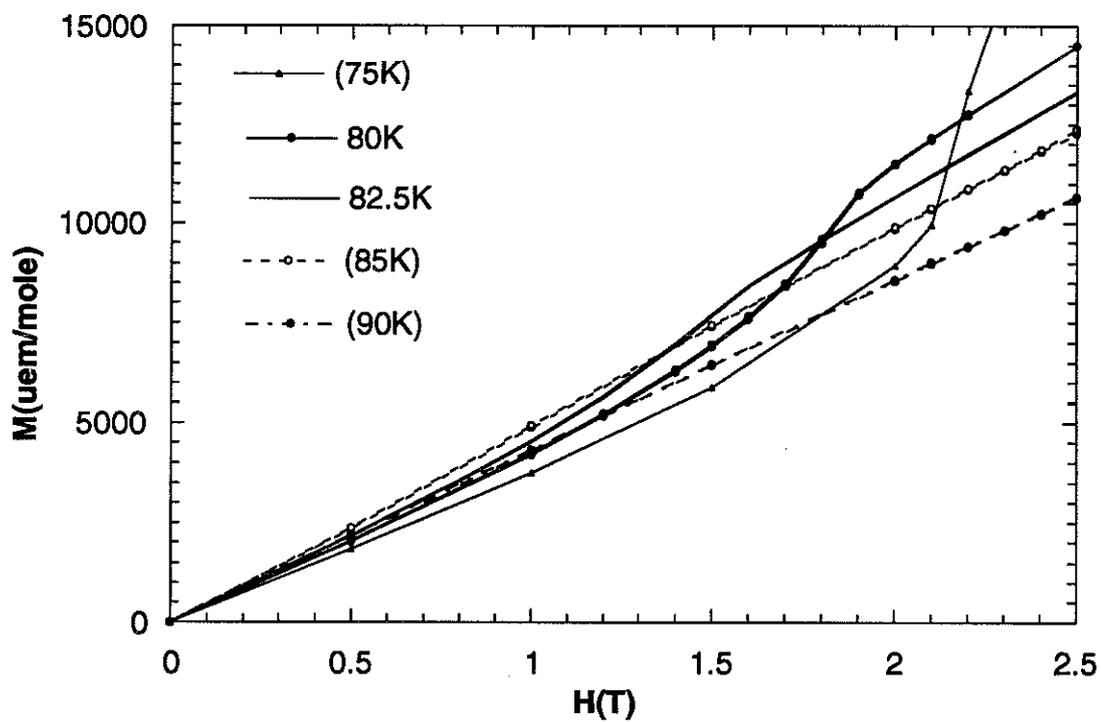


Figure IV.11

IV.2.2 - Région haute température :

Dans la phase antiferro modulée l'aimantation décolle du régime linéaire pour 70, 75 et 82.5K. Notons qu'à 70 K, (Fig.IV.10) le saut persiste mais il est suivi d'une courbure plus "soft". En outre, la courbe à 75 K (Fig.IV.11) présente une variation de pente vers environ un champ 2,25T, avec une courbure de plus en plus douce, signalant (avec réserve), que la transition antiferromagnétique-paramagnétique se fait via une autre phase (ferro ou férri,). La courbe, à 90 K, montre bien le régime quasi linéaire en champ de la phase paramagnétique.

Remarque :

- Les courbes M(H) obtenues ne présentaient pratiquement pas d'hystérésis en température.
- La courbe de première aimantation a permis d'évaluer le coefficient de champ démagnétisant. En champ faible, à 2K, l'aimantation est proportionnelle à la susceptibilité et s'écrit :

$$\chi = \frac{M}{H} = \frac{1}{4\pi n} \text{ en unité (C.G.S)}$$

où n est le coefficient de champ démagnétisant. La valeur de n obtenue est $n \approx 3.10^{-2}$. Nous ne tiendrons pas compte de cette correction par la suite.

- Cette courbe à 2 K nous permet également d'estimer l'aimantation à saturation et d'en déduire le nombre effectif de magnétons de Bohr, $p = \frac{43500}{N\mu_B}$, (N nombre d'Avogadro), d'où $p \approx 7.94$ comparé à la valeur de 7.9 (m // chapitre III) dans la phase ferromagnétique.
- La courbe M(H), à 8 T, montre que l'aimantation à saturation n'est pas encore atteinte, ceci pouvant s'expliquer par le cône préférentiel d'aimantation dans la phase ferromagnétique.

V - ANALYSE DES COURBES D'AIMANTATION

V.1 - En régime paramagnétique

La figure IV.12 présente l'inverse de la susceptibilité en fonction de la température, dans la région paramagnétique.

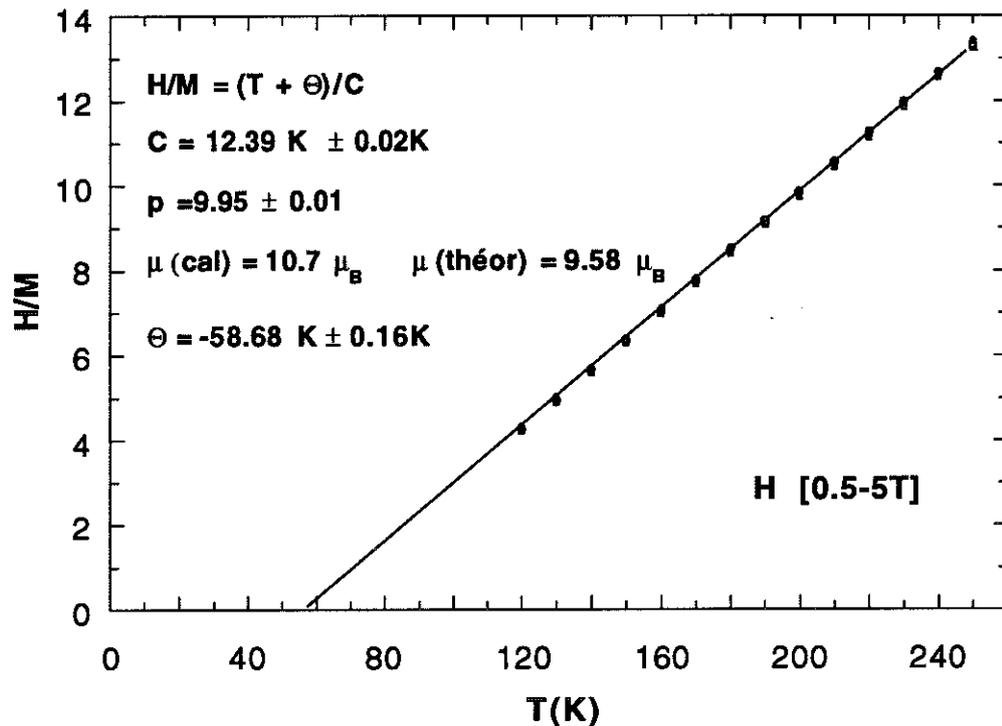


Figure IV.12

$$\chi^{-1} = \frac{1}{C} (T + \theta) \quad (\text{IV-1})$$

où C est la constante de Curie et θ la température paramagnétique de Curie-Weiss.

Nous constatons que, pour les différents champs magnétiques 0,5-5 T, toutes les courbes se superposent, décrivant ainsi la loi de Curie-Weiss, avec $\theta \approx -58\text{K}$, $C \approx 12 \text{ mole}^{-1} \text{ K}$ et $\mu \approx 9.9 \mu_B$. Cette dernière valeur étant compatible avec la valeur théorique $9,58 \mu_B$ de l'ion trivalent Er^{3+} ($p = g.(J.(J+1))^{1/2}$).

V.2. - En régime critique

Sachant qu'au voisinage de la région critique, la susceptibilité suit l'expression :

$$\chi = C(t)^{-\gamma} \quad (\text{IV-2})$$

où C est la constante de Curie, t la température réduite $t = \frac{T - T_c(H)}{T_c(H)}$ et T_c la température critique.

nous avons tracé l'inverse de la dérivée logarithmique en fonction de T :

$$\frac{dT}{d \ln \chi} = -\frac{T}{\gamma} + \frac{T_c(H)}{\gamma} \quad (\text{IV.3})$$

Les valeurs de γ ainsi obtenues sont consistantes avec la valeur théorique, $\gamma = 1,33$ (prédite théoriquement pour le régime critique). Ce qui paraît assez surprenant c'est que les températures $T_c(H)$ obtenues décrivent bien la ligne antiferro-hélicoïdale/ferro conique malgré l'existence des deux phases antiferromagnétique.

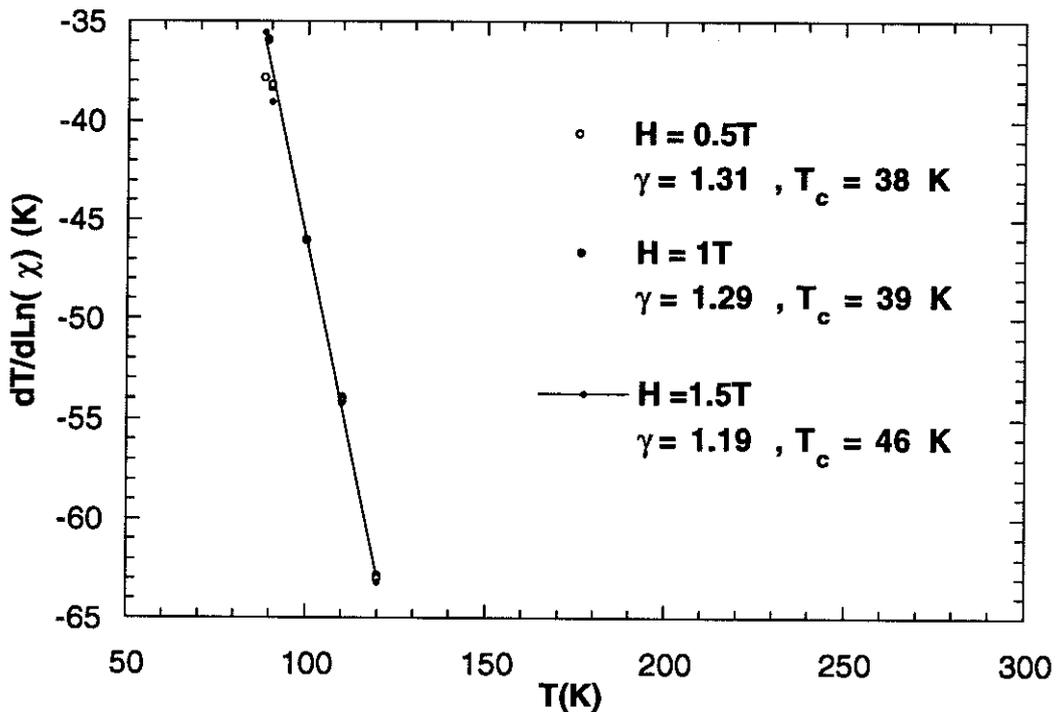


Figure IV.13

VI - ETUDE COMPARATIVE AVEC LES MESURES DE $\frac{dR}{dT}$ POUR LA DETERMINATION DES LIGNES DE TRANSITIONS.

A partir de toutes ces courbes d'aimantation, nous nous donnons pour objectif de comparer les différentes lignes de transition avec celles obtenues à partir des résultats de $\frac{dR}{dT}$ sous champ.

VI.1 - Ligne de transition para-phase ordonnée magnétiquement

Pour tracer cette ligne, nous avons déterminé T_N au point d'inflexion de $\frac{dR}{dT}$. En ce qui concerne les mesures d'aimantation, on retrace la même ligne en prenant la température du pic antiferromagnétique observé sur les courbes d'aimantation jusqu'à 2,45 T (Fig. IV.8 et 9).

VI.2 - Ligne de transition "ferro"-antiferromagnétique modulée selon c

Pour les mesures de $\frac{dR}{dT}$ cette ligne correspond au deuxième point d'inflexion qui apparaît lors du "splitting du T_N ". Sur les courbes de variation de l'aimantation en fonction du champ, cette ligne peut être déterminée en prenant l'intervalle de température où l'on décolle du régime antiferromagnétique (70 - 85 K) pour rejoindre l'état paramagnétique.

VI.3 - Ligne antiferromagnétique modulée selon l'axe c - antiferrohélicoïdal

Pour déterminer cette ligne, nous avons pris les températures des maximum de courbes de résistance jusqu'à un champ de 2,4 T (Fig. IV.2). Sur les mesures d'aimantation, cette ligne est difficile à détecter. Elle correspond peut être au minimum des courbes d'aimantation entre le pic antiferromagnétique et le saut ferromagnétique conique.

VI.4 - Ligne antiferro hélicoïdale-ferro conique

Pour les mesures de $\frac{dR}{dT}$, ces températures correspondent au pic de $\frac{dR}{dT}$ de 0 à 2,45 T (Fig. IV.6), qui se traduit par un saut assez brusque sur les courbes $M(T)$ (Fig. IV.9) et $M(H)$ (Fig. IV.10). De 2,45 T jusqu'à 2,6 T (Fig. IV.6), le pic de $\frac{dR}{dT}$ disparaît, laissant place à un point d'inflexion qui se déplace vers les basses températures, signalant le passage du domaine "ferro" à la phase

ferromagnétique conique ? Cette transition étant peut-être signalée sur les courbes $M(H)$ par un saut beaucoup plus atténué et plus large sur les courbes $M(H)$ et $M(T)$.

VI.5 - Ligne para-ferromagnétique en champ fort

Cette dernière a été déterminée en prenant le premier point d'inflexion de $\frac{dR}{dT}$ après la première bosse, quand la température décroît (Fig.IV.7). En ce qui concerne les mesures d'aimantation, ces points correspondent à la température critique T_c en champ fort, suivant la loi (IV-4) près du régime critique.

$$\chi = C \left(\frac{T}{T-T_c} \right)^\gamma \quad (\text{IV-4})$$

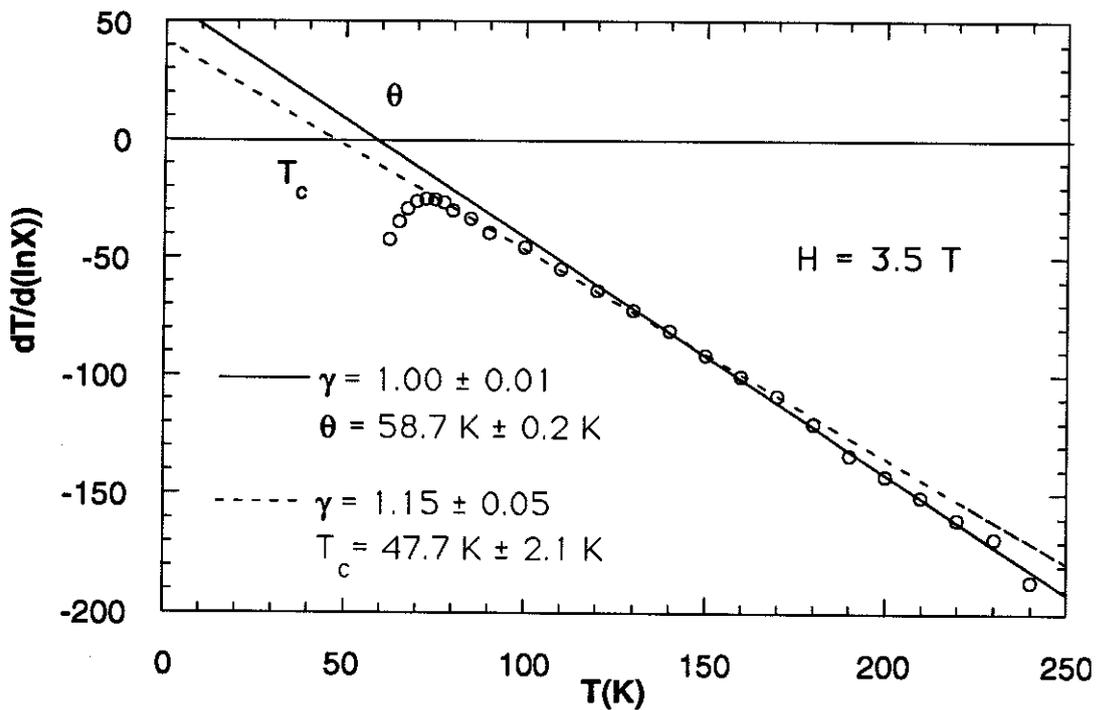


Figure IV.14

La figure IV.14 illustre la dérivée logarithmique $\frac{dT}{d \ln \chi}$ pour un champ donné. Ce même fit a été utilisé pour les différents champs, pour déterminer l'allure de cette ligne.

$$\frac{dT}{d \ln \chi} = -\frac{1}{\gamma} T + \frac{T_c}{\gamma} \quad (\text{IV-5})$$

VI.6 - Diagramme de Phase

Les résultats ainsi obtenus nous ont permis de tracer le diagramme de phase de l'erbium en utilisant une nouvelle approche expérimentale. La figure IV.15 illustre le diagramme (H-T) d'un monocristal d'erbium.

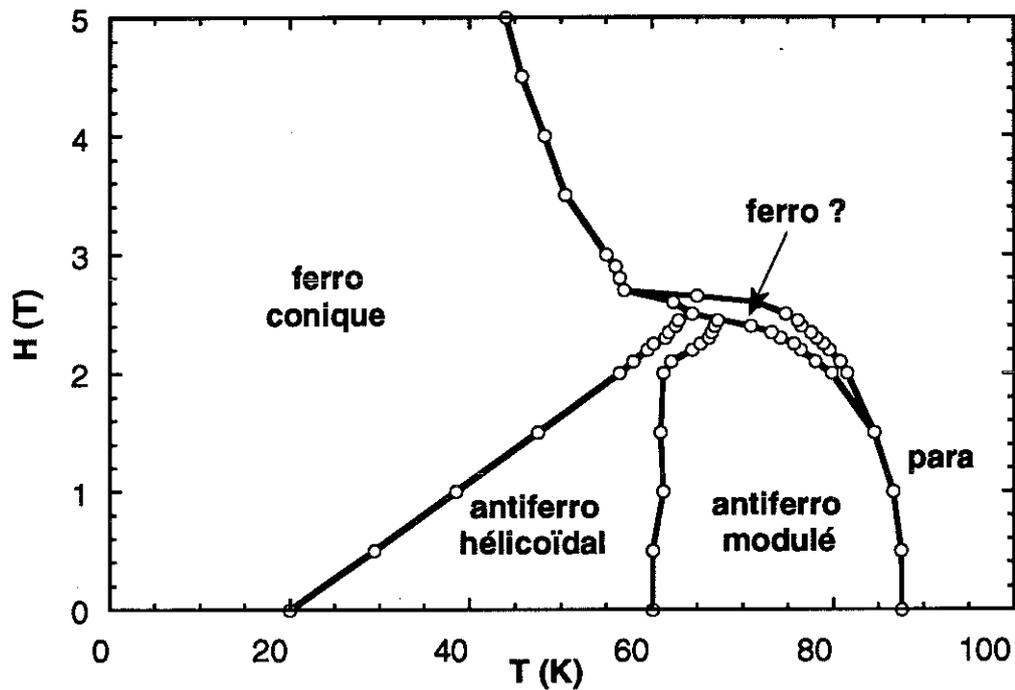


Figure IV.15

VII - ANALYSE DE dR/dT SOUS CHAMP :

VII. 1 - Prédictions théoriques et interprétation des résultats

la théorie développée dans le cas d'un métal antiferromagnétique est illustrée dans la figure IV.16.

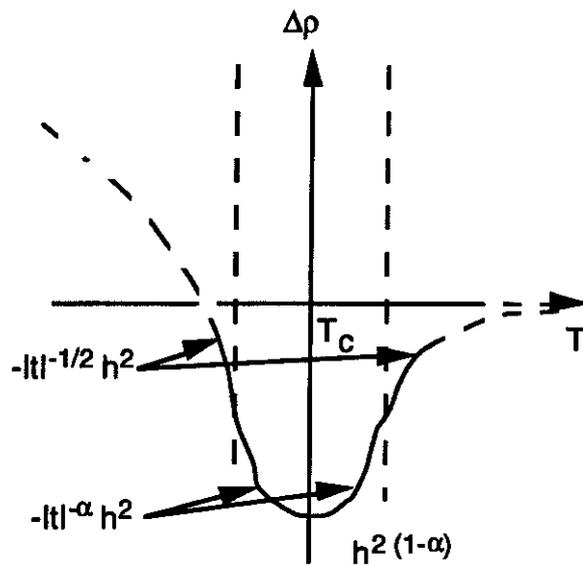


Figure IV.16

Le comportement de la résistivité est décrit par Balberg et Helman [74].

ρ	$t \gg h$	$ t \ll h$
$T < T_N$	$- t ^{1-\alpha} + (1-\alpha)t t ^{-\alpha}h^2$	$(fh^2)^{1-\alpha} + (1-\alpha) t (fh^2)^{-\alpha}$
$T > T_N$	$t^{1-\alpha} + (1-\alpha)t^\alpha h^2$	$(fh^2)^{1-\alpha} + (1-\alpha)t(fh^2)^{-\alpha}$

où t est la température réduite, $t = \frac{T - T_N(0)}{T_N(0)}$ et $h = \frac{\mu H}{K_B T_N(0)}$ ($\mu = \rho \mu_B$)
 μ_B magnéton de Bohr et K_B constante de Boltzmann.

Nous avons effectué le même type d'analyse que dans le chapitre III et trouvé que les formules analytiques loin du régime critique dans la région paramagnétique.

$$\frac{dR}{dT} = B + At^{-\alpha}, \tag{IV.6}$$

où t est la température réduite ($t = \frac{T - T_N(H)}{T_N(H)}$), décrivaient bien l'allure de la courbe avec $\alpha = 1/2$ et $B = 8,7 \cdot 10^{-3} \text{ m}\Omega/\text{K}$, ceci pour des champs allant de 0,5 à 2,5 T. On a pu ainsi comparer les valeurs des températures de Néel déduites à celles du diagramme de phase. La figure IV.17 présente la dérivée logarithmique, ainsi que le fit montrant la valeur de l'exposant α et la valeur de $T_N(H)$ pour, par exemple, $H = 1 \text{ T}$.

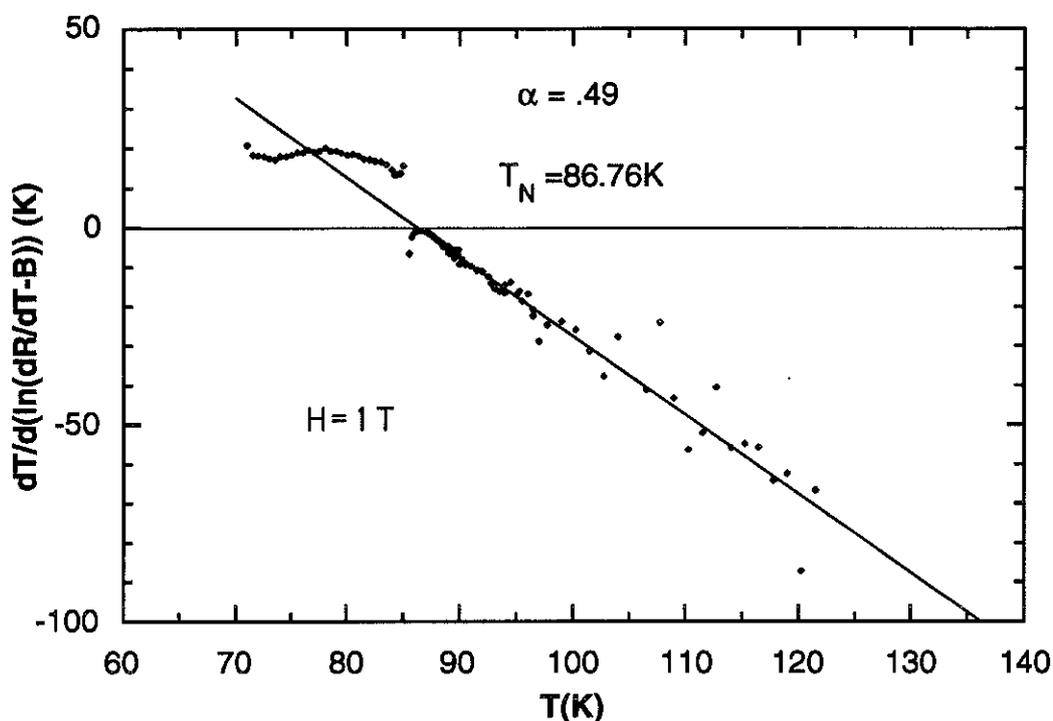


Figure IV.17

Dans la même idée, nous avons évalué l'écart $\frac{T_N(H) - T_N(0)}{T_N(0)}$ en fonction de h^2 suivant la relation :

$$\frac{T_N(H) - T_N(0)}{T_N(0)} = -FH^2 = -fh^2 \quad (\text{IV-7})$$

où f est relié directement à la température de Curie-Weiss :

$$f = \frac{(S+1)^4}{60S^4 \left[1 + \frac{\theta}{T_c(0)} \right]^2} \quad (\text{IV-8})$$

Pour l'erbium, $S = 3/2$.

La relation (IV-7) n'est valable que pour $FH^2 \ll T_N(0)$ et pour une transition antiferro-paramagnétique, donc dans notre cas jusqu'à 2 T.

La figure IV.18 illustre la différence $\frac{T_N(H) - T_N(0)}{T_N(0)}$ en fonction de H^2 pour des champs allant de 0 à 2 T.

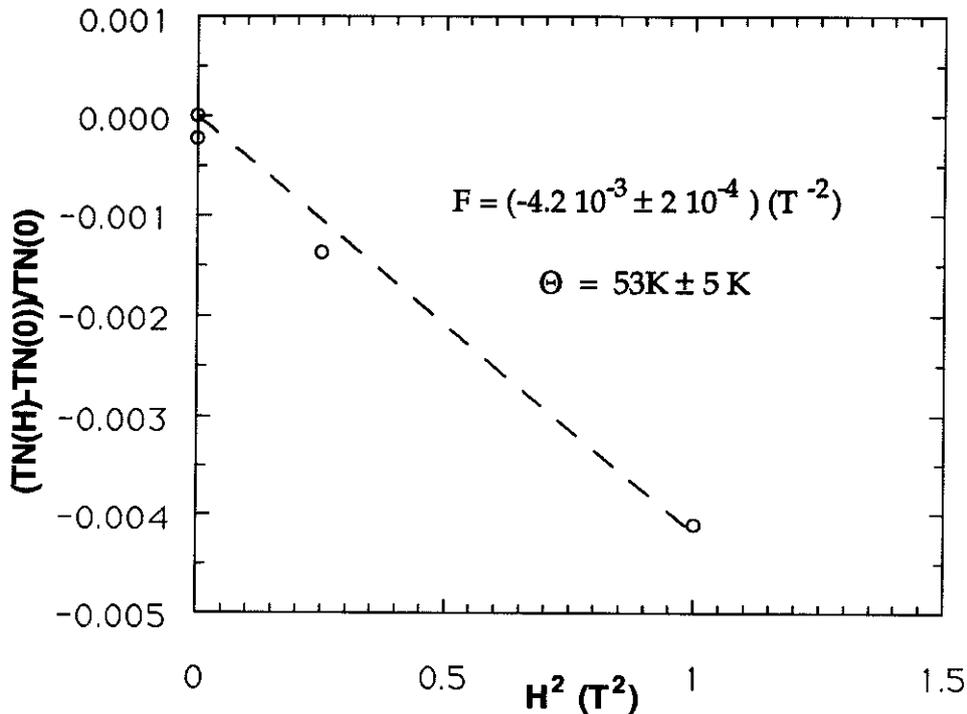


Figure IV.18

La prédiction théorique concernant une transition para-antiferromagnétique. Sur cette figure nous avons porté le fit linéaire (IV-7). La valeur de F trouvée correspond à une température de Curie-Weiss de $53 \text{ K} \pm 5 \text{ K}$. Cependant, vu le nombre de points restreint, nous ne pouvons pas juger de la crédibilité du fit obtenu. Puisque l'expression est valable dans la limite $FH^2 \ll T_N(0)$, il nous est apparu intéressant de connaître le comportement de $T_N(H) - T_N(0)/T_N(0)$ pour des valeurs de champ supérieures (0,01-2,6 T), tout en respectant la limite $FH^2 \ll T_N(0)$. Vu l'allure de la courbe obtenue (Fig. IV.19), nous avons décidé de la décrire en H^4 , ce qui suggère un terme d'ordre supérieur dans le développement $T_N(H)$ en fonction de $T_N(0)$ [74]. La valeur de F trouvée est du même ordre de grandeur que celle du fit linéaire pour les faibles champs (Fig. IV.18). La température de Curie-Weiss ainsi déduite θ est de l'ordre de 53 K. La remarque que l'on peut suggérer est que, dans notre cas, une telle loi a l'air de mieux fitter nos résultats expérimentaux et permet de décrire une ligne de transition para-antiferromagnétique pour les champs allant de 0 à 2 T, mais aussi la ligne para-"ferro" ou "ferri" pour les champs allant de 2 T à 2,6 T. Nous insistons sur le fait que cette loi en h^4 ne nous permet pas d'affirmer ou de

conclure qu'une ligne de transition para-phase ordonnée est forcément décrite par cette expression. Néanmoins, cela suggère qu'il reste de nombreux points à éclaircir du point de vue des prédictions théoriques.

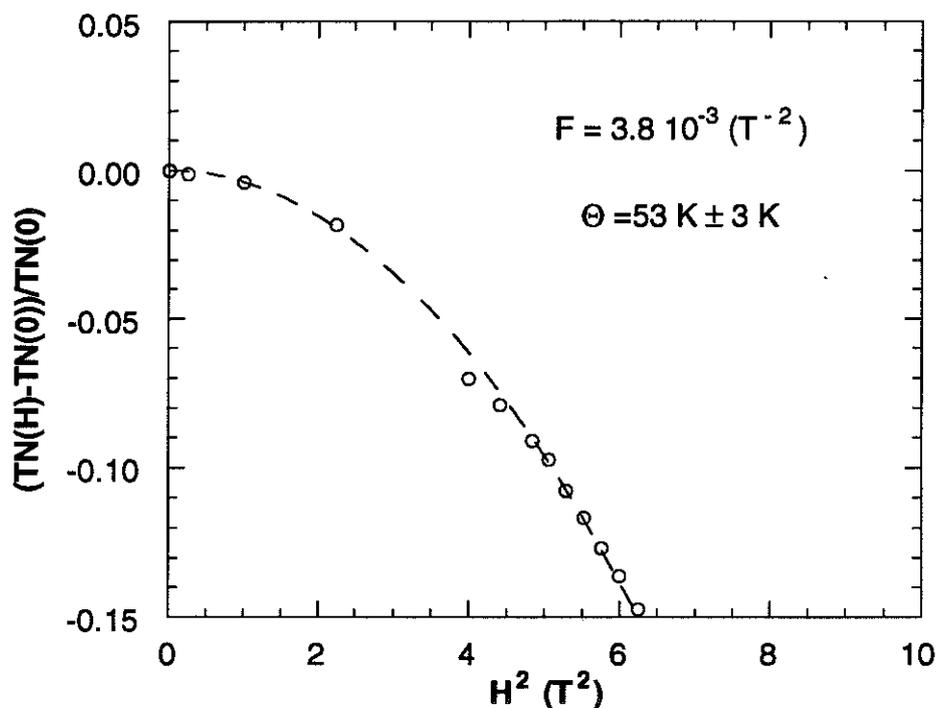


Figure.IV.19

VII.2 - Analyse de dR/dT dans la région paramagnétique :

Nous présentons, dans la figure VI.20, les résultats expérimentaux pour un champ de 1 T. Sur cette même courbe, nous avons voulu traiter nos mesures en nous basant sur le modèle théorique prédit pour la résistance sous champ magnétique loin de $T_N(0)$ [tableau ci-dessus $T > T_N(0)$].

L'expression de la dérivée de la résistance par rapport à la température sous champ magnétique s'écrit :

Dans la région loin de T_N , par valeurs supérieures :

$$T \gg T_N(0) \quad \frac{dR}{dT} = B + At^\alpha + Ct^{\alpha-1} \quad \text{avec } \alpha = 1/2 \quad (\text{IV-9})$$

avec $t = \frac{T - T_N(0)}{T_N(0)}$, $B = 8,7 \text{ E-3 m}\Omega/\text{K}$, A et C paramètres variables, l'expression de :

$$C = \frac{(1-\alpha)(-\alpha) \mu_B^2 p^2}{K_B^2 T_N^3(0)} f H^2 \quad \text{avec } p = 9,58$$

avec f décrit par la relation (IV-8).

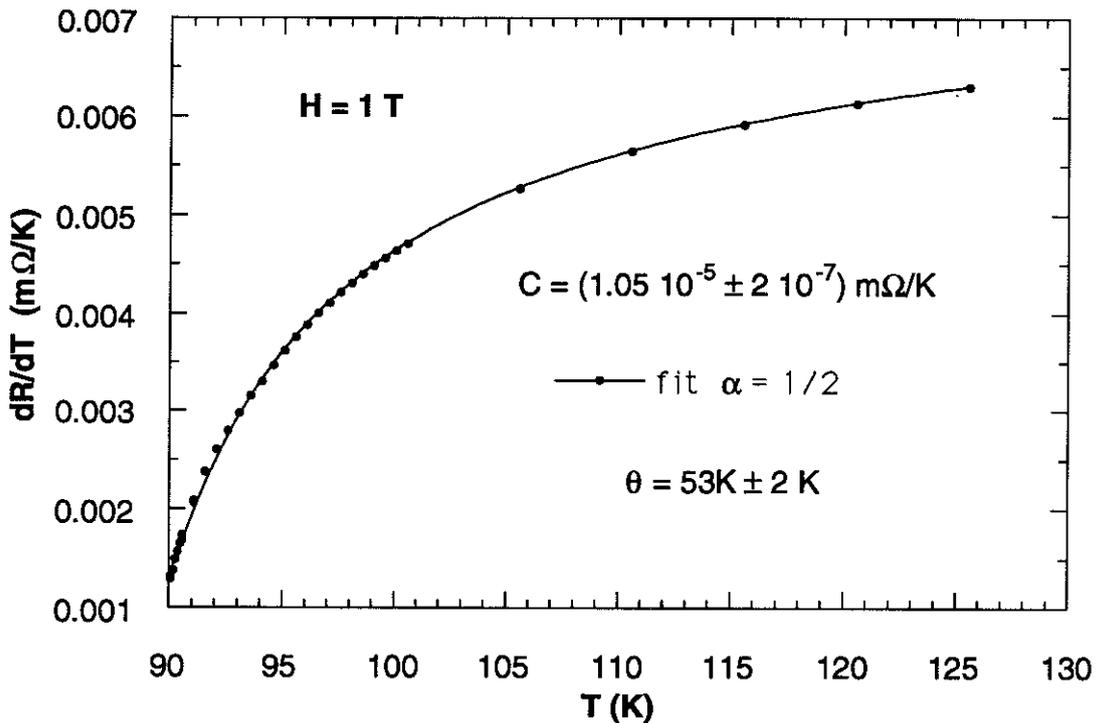


Figure IV.20

A partir de la valeur de C obtenue, nous avons déduit la valeur de la température de Curie-Weiss, de l'ordre de $\theta \approx 53 \text{ K} \pm 2 \text{ K}$.

Nous avons constaté que la limite de validité de la relation de la résistivité au-dessus de $T_N(0)$, $t \gg h$, ou $H \ll 0,155 (T - T_N(0))$, pouvait être plus élargie. En effet, si l'on tient compte de ce critère, notre fit expérimental devrait être valide à partir d'une valeur $T \approx 95 \text{ K}$. Or, nous observons que cette loi décrit correctement nos mesures expérimentales à partir de $T = 90 \text{ K}$, jusqu'à 120 K , dans la région paramagnétique.

Nous pouvons remarquer que la valeur de θ déduite par les mesures de $\frac{dR}{dT}$ sous un champ de 1 T est consistante avec la valeur déterminée par les

mesures magnétiques mais aussi avec celle déduite de la variation de $T_N(H)$. La même analyse a été faite pour des champs allant jusqu'à 2,5 T et donnait des valeurs du même ordre de grandeur, variant de 55 à 52 K.

En effet, le terme $\left. \frac{dR}{dT} \right|_{H=0}$ existant dans la formule (IV-9) fixe la valeur de $T_N(0)$. Or, la température de Néel change en présence d'un champ, donc cette relation au voisinage de la transition n'est plus crédible.

VIII- CONCLUSION

La sensibilité de la technique expérimentale que nous avons développée nous a permis de déceler un changement d'ordre magnétique sous un champ magnétique compris dans l'intervalle 2-2,6 T. Cette structure, récemment observée par des mesures neutroniques, montre bien l'intérêt des mesures directes de $\frac{dR}{dT}$. Des mesures d'aimantation [67] ont estimé la valeur d'un champ appelé champ critique, $H = 2,24$ T, qui signale la transition ferro-paramagnétique. Néanmoins, ce même article mentionne qu'à $T = 65$ K, le modèle de Jensen prédit un champ critique de 2,6 T. Nous pensons qu'effectivement il existe deux champs que l'on peut appeler critiques, associés à deux transitions de phase. La première transition, observée par les mesures de neutrons pour un champ de 2,24 T, est également marquée par le splitting du T_N sur les courbes de dérivées de résistance. Cela correspondrait à une transition para-phase ordonnée (la phase ordonnée étant ferro- ou ferrimagnétique ?). Le deuxième champ critique de 2,6 T à $T = 65$ K [75] correspond exactement à la transition para-ferromagnétique conique sur notre diagramme. Ces remarques montrent bien que des propriétés de transport telles que $\frac{dR}{dT}$ sont très sensibles à un arrangement magnétique.

En ce qui concerne l'analyse de $\frac{dR}{dT}$ sous champ magnétique, les points remarquables sont les suivants :

* Nous avons pu accéder à la température de Curie-Weiss de deux manières différentes :

- 1) En utilisant les mesures de $\frac{dR}{dT}$ dans la région paramagnétique, pour des champs de 0,5 à 2,5 T, selon le modèle théorique proposé. Un exemple pour $H = 1$ T donne la valeur de θ déduite à partir du fit.

- 2) Nous avons tracé la différence $[T_N(H) - T_N(0)]/T_N(0)$ en fonction de h^2 pour des champs compris entre 0,01 et 1 T, mais aussi en h^4 pour des champs allant de 0 à 2,6 T. L'ordre de grandeur de θ est consistant avec celui des mesures d'aimantation. Cette loi en h^4 reste encore à éclaircir, car, pour cette gamme de champ, deux transitions de phase apparaissent.
- 3) Ces résultats montrent, non seulement qu'il y a une relation entre $\frac{dR}{dT}$ et la chaleur spécifique (exposant $\alpha = 1/2$), mais aussi que l'analyse de $\frac{dR}{dT}$ donne des renseignements sur la valeur de la température de Curie-Weiss qui, elle aussi, est une propriété thermodynamique.
- * Pour le régime critique, le modèle théorique, prédit pour les mesures sous champ, ne peut décrire les mesures de $\frac{dR}{dT}$ au voisinage de la transition. En effet, dans l'expression $T_N(0)$ apparaît, alors que T_N diminue avec le champ, donc le terme correctif en h^2 ne peut suffire près de la transition.
 - * Pour le régime loin de T_N , par valeur inférieure $T < T_N$, nous avons essayé de déterminer l'évolution de l'exponentielle sous champ, mais nous nous sommes confrontés au problème suivant : l'exponentielle reste valable, mais, dès que le champ atteint 2 T, il semblerait qu'une loi en $t \ln t$ décrive mieux les résultats expérimentaux, ce qui serait cohérent avec l'apparition de la phase dite ferromagnétique.
 - * Tous ces résultats de dR/dT sous champ magnétique ont permis une nouvelle investigation dans la détermination d'un diagramme de phase détaillé (H-T) à partir de propriétés de transport qui n'était pas envisageable par des mesures classiques de résistance, du moins à notre connaissance.

Remarque :

Vu la richesse d'informations que peut contenir cette quantité dR/dT , il semble qu'un développement théorique approprié est nécessaire pour permettre de comprendre les phénomènes observés et de décrire ces résultats intéressants.

CONCLUSION

Nous avons développé, dans ce mémoire, la mise au point d'une technique originale de mesure directe de la dérivée de la résistance par rapport à la température. L'appareillage permet de mesurer, entre 4 et 300 K, d'une part la résistance de l'échantillon avec une résolution de $2 \cdot 10^{-5}$, et d'autre part $(\frac{dR}{dT})$ en détectant la variation de la résistance de l'échantillon, avec une modulation thermique relative $(\frac{\Delta T_{ac}}{T})$ de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$. La grande sensibilité du système de détection permet de déceler des variations relatives $(\frac{dR}{dT})$ de 10^{-9} avec $R \approx 3 \text{ m}\Omega$.

La performance de cette technique nous a permis d'étudier les transitions de phases magnétiques d'un monocristal d'erbium orienté selon l'axe *c*, d'une part en champ nul et d'autre part en présence d'un champ magnétique compris entre 0 et 5 T.

L'analyse des mesures de $(\frac{dR}{dT})$ en champ nul nous a permis :

- La suggestion d'une nouvelle approche pour la détermination de la température de Néel. L'ambiguïté est résolue : T_N doit être pris au point d'inflexion de $(\frac{dR}{dT})$ et non au minimum qui est le choix conventionnel.
- La découverte d'une loi exponentielle près de T_N par valeur inférieure, qui suggère l'existence d'un gap dans la phase antiferromagnétique, provenant de diffusions inélastiques de magnons ou de phonons. C'est, à notre connaissance, la première fois qu'un terme de cette nature est signalé si près de la transition antiferromagnétique. Sans doute est-il essentiel pour ce résultat que la mesure de $(\frac{dR}{dT})$ soit faite le long de l'axe *c*, et peut-être n'est-ce seulement que suivant cet axe que ce terme est assez fort pour masquer la contribution en $(\frac{T-T_N}{T_N})$ prédite théoriquement.

La précision de nos résultats expérimentaux de $(\frac{dR}{dT})$ nous a permis de vérifier le modèle théorique, qui consiste à considérer que la partie singulière de $(\frac{dR}{dT})$ lors d'une transition de phase est reliée à la chaleur spécifique et est dominée par les corrélations à courte portée dans les deux cas $T \rightarrow T_{N+}$ et $T \rightarrow T_{N-}$, alors que les corrélations à longue portée ($\alpha = 1/2$) deviennent significatives pour $t > 2 \cdot 10^{-2}$ sur un intervalle de température assez large dans la phase paramagnétique.

Au voisinage de la transition très près de T_N par valeur inférieure ou supérieure, nous avons montré que, pour traiter le comportement critique de manière satisfaisante, il fallait tenir compte de certains critères physiques donnés par le modèle théorique, à savoir :

- la continuité de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ à T_N ,
- l'égalité des exposants critiques au-dessus et au-dessous de T_N ($\alpha=\alpha'$), en accord avec le critère des exposants pour la chaleur spécifique,
- la vérification du critère d'universalité du rapport d'amplitude $\left(\frac{A}{A'}\right)$ déterminé à partir des résultats de la théorie du groupe de renormalisation.

L'analyse des mesures de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ sous champ magnétique (0-5 T) :

Les mesures de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ sous champ magnétique ont permis de déceler la présence d'un changement d'ordre magnétique pour un champ compris entre 2 et 2,6 T, jusqu'alors non évoqué par ailleurs. Les résultats obtenus montrent bien que les mesures de transport telles que $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ sont d'un intérêt considérable puisqu'elles sont sensibles à un arrangement magnétique bien marqué par le "splitting" de la température du T_N sur les courbes de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ pour ces champs. De récentes mesures neutroniques sous champ magnétique ont confirmé l'existence d'une phase "ferromagnétique" dans cet intervalle de champ.

L'ensemble de nos mesures de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ nous ont permis de tracer un diagramme de phase (H-T) détaillé, chaque ligne de transition correspondant à une anomalie bien observée sur les courbes de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$. Parallèlement, nous avons effectué des mesures d'aimantation pour faire une étude comparative concernant les lignes de transition. Les deux études complémentaires ont donné des résultats cohérents. Néanmoins, la phase "ferromagnétique" est beaucoup mieux observée sur les courbes de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ sous des champs allant de 2 à 2,6 T.

Du point de vue théorique, dans la région paramagnétique, nous avons non seulement montré que la relation entre $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ et la chaleur spécifique ($\alpha = 1/2$) existe, mais aussi que l'analyse de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ sous champ donne des renseignements sur la température de Curie-Weiss qui, elle aussi, est une propriété thermodynamique.

En ce qui concerne le régime critique, il semble qu'un développement théorique approprié est indispensable pour comprendre les phénomènes physiques observés.

En conclusion, l'étude de $\left(\frac{dR}{dT}\right)$ sur un système tel qu'un élément de terre rare (erbium), a priori bien connu, a révélé une richesse d'informations inattendues. La maîtrise des différents paramètres relatifs à la technique expérimentale nous permet d'envisager l'extension de cette mesure aux systèmes où il existe une compétition d'interactions ferro-antiferromagnétiques et un problème d'universalité des exposants critiques (AuFe), ainsi qu'à l'antiferromagnétisme du Cr, dont l'intérêt n'a pas faibli ces derniers temps (E. Fawcett 1988) [80], mais aussi aux semiconducteurs ferro- ou antiferromagnétiques par exemple (EuO, FeO) [74].

PUBLICATIONS

"A very sensitive technique for measuring the temperature derivative of electrical resistance between 4 and 300 K"

"Critical exponents and amplitude ratio by direct measurement of dR/dT in erbium"

"Phase diagram (T, H) investigation by direct measurement of dR/dT in a magnetic material"

A very sensitive technique for measuring the temperature derivative of electrical resistance between 4 and 300 K

J. Chaussy, P. Gandit, J. L. Bret, and F. Terki
Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Laboratoire Associé à l'Université Joseph Fourier
de Grenoble, C.N.R.S., BP 166, 38042 Grenoble-Cédex 09, France

(Received 7 February 1992; accepted for publication 14 April 1992)

A sinusoidal temperature modulation method has been developed to provide direct access to the derivative of the resistance with respect to temperature dR/dT . This quantity is of a high physical interest since it gives information on the critical behavior of the specific heat of magnetic materials near the critical points. The original aspect of such an experimental device is the high sensitivity of its detection. Indeed it provides a resolution $\Delta R/R$ of 10^{-9} with $R=3$ m Ω . Finally, we demonstrate the high accuracy of this technique with experimental measurements of dR/dT of a rare-earth single crystal.

I. INTRODUCTION

In the last years, a widespread interest in the behavior of magnetic materials near critical points has stimulated a lengthening list of experiments.¹⁻⁶ Some previous papers have indicated the usefulness of transport properties at magnetic phase transitions and in particular the critical resistivity measurements for the determination of the specific heat exponents.⁷⁻⁹ Indeed theoretical predictions have shown that the singular part of dR/dT is directly connected to the specific heat in both the long- and short-range correlation regimes.^{10,11} In this paper we describe an original technique which we have developed in order to gain direct access to the variation of the resistance of magnetic materials with an oscillation of the temperature. This permits a new approach and provides a much needed experimental determination of the critical exponents (α' , α) of the specific heat.^{12,13}

II. MEASURING PRINCIPLE

The experimental method consists of measuring the response of the sample resistance to an oscillation of the temperature thus providing direct access to dR/dT . The sample, in which we want to measure the variation of the resistance due to a small temperature oscillation, is placed, at a regulated temperature T , in the center of a superconducting field coil. It is biased by a dc current, the dc voltage which appears is proportional to its resistance. Then, if we create a temperature oscillation ΔT_{ac} , an additional ac voltage (proportional to the variation of the resistance) appears across the sample and follows the equation:

$$V_{dc} + \Delta V_{ac} = R_s(T)I_{dc} + \Delta R_s(T)I_{dc}, \quad (1)$$

where $R_s(T)$ is the temperature dependence of the sample resistance, $\Delta R_s(T)$ is the variation of the resistance due to an oscillation of the temperature ΔT_{ac} , I_{dc} is the dc current which passes through the sample, and V_{dc} , ΔV_{ac} are the dc and ac voltages, respectively, which appear across the sample. We can then write:

$$\frac{dR_s(T)}{dT} = \frac{\Delta R_s(T)}{\Delta T_{ac}} = \frac{1}{I_{dc}} \frac{\Delta V_{ac}}{\Delta T_{ac}}. \quad (2)$$

A. The experimental device

A schematic diagram of the experimental set up is given in Fig. 1. The average temperature of the system (sample and sample holder) is regulated by a PID (proportional, integral, and derivative) controller associated with a heater-thermometer pair. The temperature modulation ΔT_{ac} is imposed using a second heater resistor supplied by a voltage current converter driven at a frequency $f/2$. Moreover, a notch filter is placed in series with the regulator in order to prevent the temperature oscillation ΔT_{ac} also detected by the coupled thermometer, from being damped down by the PID whose function consists in regulating the average temperature of the system.

A second thermometer is biased by a direct current. Thus the dc voltage which appears across this thermometer allows us to determine accurately the sample's average temperature. At the same time an alternating voltage component also appears. This allows us to measure the temperature oscillation ΔT_{ac} .

The two ac voltages which correspond to the oscillation of the temperature ΔT_{ac} and to the variation of the resistance $\Delta R_s(T)$, respectively, are detected after amplification by two lock-in amplifiers operating at the same frequency f .

B. Measurement technique

We use a four-probe method. A simplified electronic circuit diagram is shown in Fig. 2. The first stage of the detection chain constituted by a transformer and a field-effect transistor (FET) is immersed in a helium bath to reduce the thermal noise. The primary of the transformer is superconducting so the input impedance of the electronic circuit is small for dc signals. If we biased the sample with a dc current I_1 , a small fraction of it would pass through the transformer modifying its characteristics. Therefore we would not be able to determine the part of the current which really flows through the sample. In order to avoid this problem, we inject another dc current I_2 through the standard resistor to balance the bridge (Fig. 2). This means that we must know the sample resistance before detecting dR/dT .

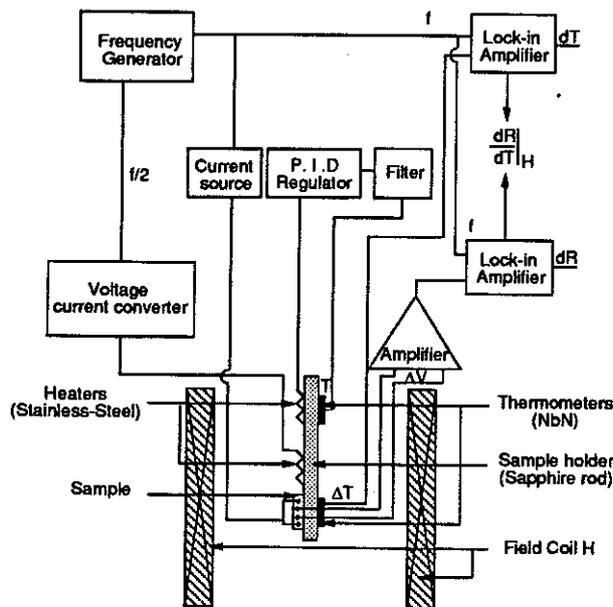


FIG. 1. Block diagram of the instrumental setup.

1. Measurement of the sample resistance $R_s(T)$

During these first measurements we do not create any oscillation in the temperature of the sample. We just regulate the temperature using the PID controller. Then we simultaneously inject two alternating currents I_{1ac} , I_{2ac} at the same frequency f into the sample and the standard resistor, respectively. These currents are applied in the ratio I_{1ac}/I_{2ac} such that no current flows through the transformer, then the output voltage is null. Thus we can write the following equation:

$$R_s I_{1ac} = r I_{2ac}, \quad (3)$$

where r is the standard resistor $r=0.1 \Omega$ and R_s is the sample resistance. Using Eq. (3), we can deduce the sample resistance $R_s(T)$ at every regulated temperature within the range of interest. This technique of zero potential at the

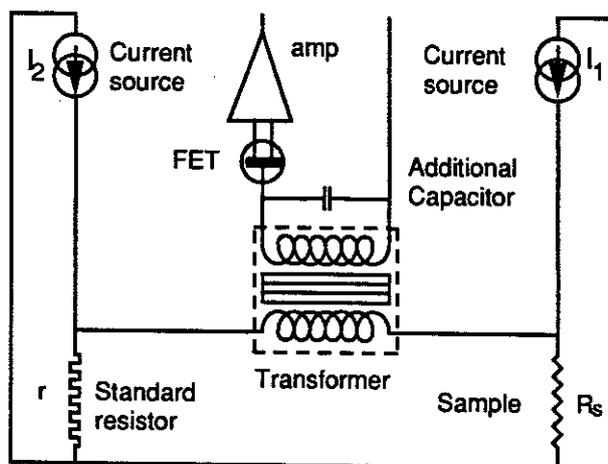


FIG. 2. Schematic line diagram describing the measuring principle.

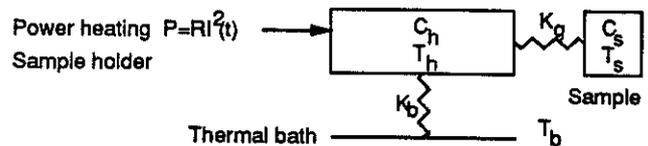


FIG. 3. Simplified diagram representative of the sample holder coupled on one side to a helium bath and on the other to the sample by the thermal conductances K_b and K_g , respectively.

transformer input means that the measurements of $R_s(T)$ is independent of the gain of the detection chain.

2. Measurement of dR/dT

We have previously determined the value of the current ratio which we have to impose in order to balance the bridge at each temperature. We then inject two direct currents in this ratio I_{1dc}/I_{2dc} and thus ensure that no direct current passes through the transformer and modifies its characteristics. If we create an oscillation in the temperature ΔT_{ac} , we induce an ac voltage at the input of the transformer directly proportional to the variation of the sample resistance $\Delta R_s(T)$ for this oscillation of the temperature. The response of the resistance dR_s to the oscillation dT follows the equation:

$$\frac{dR_s}{dT} = \frac{V}{G I_{1dc} \Delta T_{ac}}, \quad (4)$$

where V is the signal detected by the second lock-in amplifier, G is the gain of the detection chain, I_{1dc} is the direct current injected in the sample, and ΔT_{ac} is the amplitude of the temperature oscillation.

III. THERMAL CALCULATIONS

We recall that the principal idea of this technique of measuring dR/dT consists in the detection of a variation of the resistance due to an oscillation of the temperature. Therefore we must ensure that the modulation of the temperature is not limited by thermal constraints, is sufficient to be detected, and also that the sample is sensitive to this oscillation of the temperature.

A. The choice of the frequency

The frequency used is a compromise between the low frequency necessary to have thermal oscillation and the operating frequency band of the lock-in amplifiers. For our experimental device, we have chosen a frequency f of typically 4 Hz.

B. The alternative heating

We consider the system presented in Fig. 3. It consists of a sample holder of a calorific capacity C_h coupled on one side to a helium bath and on the other to a sample of a calorific capacity C_s by the thermal conductances K_b and K_g , respectively. The thermal balance sheet for this system is

$$\begin{cases} C_h \frac{dT_h}{dt} = P_0(1 + e^{i\omega t}) - K_b(T_h - T_b) - K_g(T_h - T_s) \\ C_s \frac{dT_s}{dt} = -K_g(T_s - T_h) \end{cases} \quad (5)$$

(The indices h and s are associated with the sample holder and the sample, respectively.) The expression of the sample temperature T_s which verifies these equations is

$$T_s(t) = T_b + \frac{P_0}{K_b} + \frac{P_0}{C\omega} \left(1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau^2 \right)^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi), \quad (6)$$

where T_b is the temperature of the helium bath, P_0 is the imposed heating power from the heater, C is the total specific heat (sample holder and sample) $C = C_h + C_s$, τ is the thermal relaxation time of the system (sample holder and sample) $\tau = C/K_b$, τ_s is the time constant of the sample $\tau_s = C_s/K_g$, K_g is the thermal conductance between the sample and the sample holder, and K_b is the thermal conductance of the thermal link.

This solution cannot be applied to a real system without considering the influence of the finite thermal conductivity of the sample holder. This new consideration yields the following expression for the temperature of the sample:¹⁴

$$T_s(t) = T_b + \frac{P_0}{K_b} + \frac{P_0}{C\omega} \left(1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \omega^2\tau_i^2 + \frac{2K_b}{3K_h} \right)^{-1/2} \times \cos(\omega t - \varphi), \quad (7)$$

where τ_i is an additional relaxation time which takes into account the internal relaxation time of the sample holder $\tau_{ih} (\tau_i^2 = \tau_s^2 + \tau_{ih}^2)$, and K_h is the thermal conductance of the sample holder.

C. Sample and sample holder

To demonstrate the performance of our measurement technique we have chosen to study a single crystal of Er in the form of a disk with a diameter of about 3 mm, a thickness of 0.12 mm, and a mass of 4.2 mg. It is glued on a sapphire rod of dimensions $10 \times 8 \times 0.2 \text{ mm}^3$, using a strain gauge glue because of its good thermal conductivity. The heaters (stainless-steel) and the thermometers (NbN) have been directly evaporated onto the sample holder in order to minimize the time constants of the thermal coupling. The experimental setup is presented in Fig. 4.

D. Estimation of the time constants introduced in the system

Let us calculate for example the different relaxation times given in Eq. (7) at $T=100 \text{ K}$, this being in the temperature range of interest of the chosen sample (erbium).

(i) *The relaxation time of the sample τ_s :* The thermal conductivity of the glue used to set the sample can be estimated to be at least $5 \text{ W K}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. The area of sample which is in contact with the strain gauge glue is about 5 mm^2 , thus $\tau_s (\tau_s = C_s/K_g)$ is typically 2.5 ms.

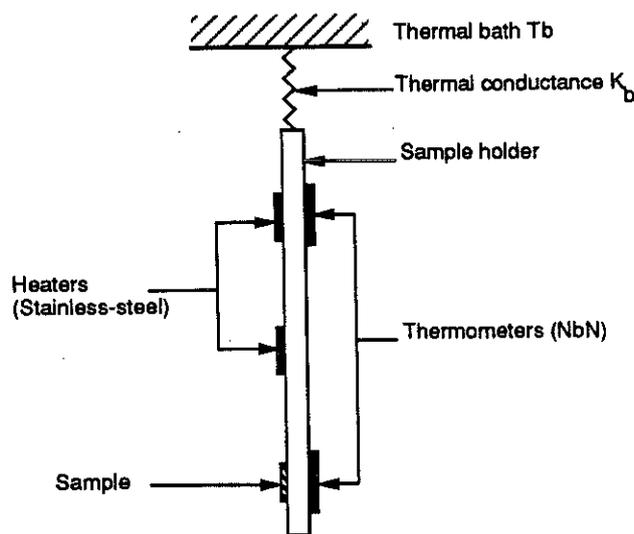


FIG. 4. Schematic diagram of the sample holder showing the relative positions of different elements (heaters, thermometers, and sample).

(ii) *The internal relaxation time of the sample holder τ_{ih}* (Ref. 14):

$$\tau_{ih} = \frac{1}{\sqrt{90}} \frac{L^2}{D}, \quad D = \frac{k}{\rho c} \quad (8)$$

where D is the diffusivity coefficient, L is the distance between the heater and the sample $L \approx 5 \text{ mm}$. Numerically, $c = 0.13 \text{ J K}^{-1} \text{ g}^{-1}$, $k = 5 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $\rho = 4 \text{ g cm}^{-3}$ for the sapphire rod. Then $\tau_{ih} \approx 2.5 \text{ ms}$.

In Eq. (7) we have not taken into account the internal relaxation time of the sample $\tau_{is} = (1/\sqrt{90})/(L_s^2/D_s)$, because the diffusivity of the metal is high at low temperature. Indeed the numerical value gives $\tau_{is} \approx 10^{-4} \text{ s}$ which can be neglected.

Finally, $\omega^2\tau_i^2 \approx 0.01$ ($\omega^2\tau_i^2 \ll 1$), and Eq. (7) becomes

$$T = T_b + \frac{P_0}{K_b} + \frac{P_0}{C\omega} \left(1 + \frac{1}{\omega^2\tau^2} + \frac{2K_b}{3K_h} \right)^{-1/2} \cos(\omega t - \varphi). \quad (9)$$

In fact we detect the temperature of the sample holder. To ensure that it really corresponds to the sample temperature, we must check that the term $[(2/3)(K_b/K_h)]$ is less than 1.

E. The choice of the thermal conductance K_b

We have to choose the nature of the thermal link so that the power we must provide to get the sample initially from $T=4 \text{ K}$ to $T=100 \text{ K}$ does not exceed 100 mW. Therefore we ensure that the dissipated energy does not vaporize too much helium. Hence the thermal conductance K_b is provided by a copper wire of a diameter of 0.4 mm and a length of 100 mm. We have then checked that the terms $1/\omega^2\tau^2$ and $(2/3)(K_b/K_h)$ are really negligible—indeed at $T=100 \text{ K}$, $\omega\tau \approx 500$, and $(2/3)(K_b/K_h) \approx 4 \times 10^{-3}$. In this way, the magnitude of the temperature oscillation is given by

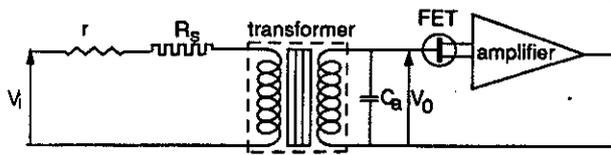


FIG. 5. Electronic circuit used for the experimental device where r is the standard resistor $r=0.1 \Omega$, R_s is the sample resistance, C_a is the additional capacitor, and V_i , V_o are the input and output voltages, respectively.

$$\frac{\Delta T_{ac}}{\Delta T_{dc}} = \frac{1}{\omega\tau} \quad (10)$$

where $\Delta T_{dc} = (T_h - T_b)$. At $T=100 \text{ K}$, the maximum value of ΔT_{ac} is 200 mK.

IV. THE ELECTRONIC CIRCUIT

A schematic electronic circuit diagram is presented in Fig. 5. It can be substituted by the equivalent circuit given in Fig. 6 where we have replaced the transformer by a perfect one with a transformer ratio n , an inductance L_T , and a loss resistance R_T . We have neglected the resistance of the secondary r_T because it is small compared to the source resistance multiplied by the square of the transformer ratio: $R = n^2(R_s + r)$. The transfer function T (ratio of the output voltage V_o to the input voltage V_i) is given by

$$T = \frac{V_o}{V_i} = \frac{nj}{[RR_T/(R_T+R)L_T\omega](1-L_TC_a\omega^2) + jR_T + R} \quad (11)$$

Using the following notations:

$$\begin{cases} R_{\parallel} = \frac{R_T R}{R_T + R} \\ \omega_o^2 = \frac{1}{L_T C_a} \\ Q = \frac{R_{\parallel}}{L_T \omega_o} = R_{\parallel} C_a \omega_o \end{cases} \quad (12)$$

this function becomes

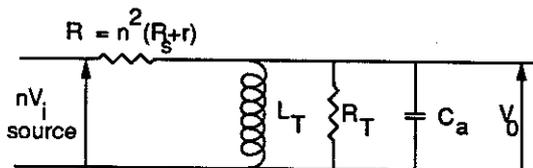


FIG. 6. Equivalent electronic circuit where R is the total resistance (including the sample and the standard resistor) multiplied by the square of the transformer ratio [$R = n^2(R_s + r)$], n is the transformer ratio, L_T is the transformer inductance, and R_T is the transformer loss resistance.

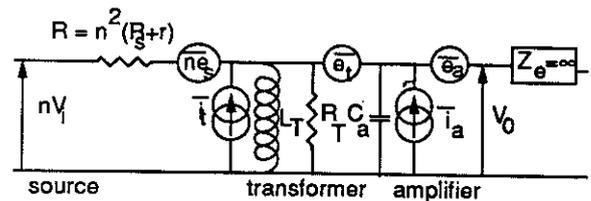


FIG. 7. Electronic circuit after introducing the noise sources where ne_s is the thermal noise voltage source brought back to the secondary of the transformer, e_t and i_t are the noise generators of the transformer, e_a and i_a are the noise generators of the amplifier, and Z_o is the input impedance of the amplifier.

$$|T| = \frac{n}{[Q^2(\omega_o^2/\omega^2)(1-\omega^2/\omega_o^2)^2 + 1]^{1/2}} \frac{R_T}{R + R_T} \quad (13)$$

The transfer function reaches its maximum when $\omega = \omega_o$, $|T|_{\max} = nR_T/(R + R_T)$. Therefore, we have to work at $\omega_o = 1/\sqrt{L_T C_a}$ which gives the maximal signal at the output of the transformer. In order to have a resonant frequency $f_o \approx 4 \text{ Hz}$ for the reasons discussed before, we have adjusted the capacity C_a at 250 nF. Moreover, we have checked that $R \ll R_T$ to have little damping. In this way the transfer function takes the expression $|T| = n$. To calculate the optimum value of the transformer ratio n , we must introduce noise sources. The noise sources are usually represented by a rms noise voltage source e and a rms noise current source i at the input of the preamplifier.¹⁵ The modified diagram of the electronic circuit is presented in Fig. 7.

At the resonant frequency the total noise referring to the output of the system is

$$\bar{B}_o^2 = |T|^2 \bar{e}_s^2 + \bar{e}_t^2 + \bar{e}_a^2 + |Z_o|^2 (\bar{i}_t^2 + \bar{i}_a^2), \quad (14)$$

where \bar{e}_s is the thermal noise voltage of the source, \bar{e}_t , \bar{i}_t are the noise voltage and noise current source of the transformer, \bar{e}_a , \bar{i}_a are the noise voltage and noise current source of the amplifier, and Z_o is the output impedance of the system.

$$Z_o = [R_{\parallel} \parallel L \parallel C_a] = \frac{1}{1/L_T \omega j + C_a \omega j + 1/R_{\parallel}} \quad (15)$$

At the frequency $\omega = \omega_o$ we obtain $Z_o = R_{\parallel}$ and $|T| = n$. Referring the above noise \bar{B}_o to the input of the circuit we can write:

$$\bar{B}_i^2 = \bar{e}_s^2 + \frac{1}{n^2} (\bar{e}_t^2 + \bar{e}_a^2) + \frac{|Z_o|^2}{n^2} (\bar{i}_t^2 + \bar{i}_a^2). \quad (16)$$

The optimization of the operating conditions of the electronic system consists in the minimization of the noise with respect to the transformer ratio:

$$\frac{\partial \bar{B}_i^2}{\partial n} = 0. \quad (17)$$

If we suppose that $R \ll R_T$ then $R_{\parallel} = R$ and takes the following expression:

$$R = \sqrt{\frac{\bar{e}_i^2 + \bar{e}_a^2}{\bar{i}_i^2 + \bar{i}_a^2}} = Z_a \quad (18)$$

For numerical calculations, we have to evaluate the different noise sources:

(i) The Nyquist noise of the source e_s :

$$\bar{e}_s^2 = 4k_B T R \Delta f, \quad (19)$$

where T is the absolute temperature of the source $T=4$ K, k_B is the Boltzmann constant in (J K^{-1}) , R is the resistance of the source in (Ω) , and Δf is frequency bandwidth in (Hz) . In our case the Nyquist noise of the source is essentially the thermal noise of the standard resistor $r = 0.1 \Omega$, $\bar{e}_s \approx 5 \times 10^{-12} \text{ V}(\text{Hz})^{-1/2}$.

(ii) The noise generator of the transformer ($e_p i_t$): The noise voltage source e_t is equivalent to the thermal noise of the resistance of the secondary of the transformer ($r_T = 50 \Omega$) at $T=4$ K, since the noise current source i_t is due to the thermal current which flows through the parallel resistance R_T ($R_T \approx 25 \text{ M}\Omega$) of the transformer (see Fig. 7).

$$\begin{cases} \bar{e}_t^2 = 4k_B T r_T \Delta f \\ \bar{i}_t^2 = \frac{4k_B T \Delta f}{R_T} \end{cases} \quad (20)$$

Numerical calculations give $\bar{e}_t \approx 10^{-10} \text{ V}(\text{Hz})^{-1/2}$, $\bar{i}_t \approx 3 \times 10^{-15} \text{ A}(\text{Hz})^{-1/2}$.

(iii) The noise characteristics of the amplifier ($e_a i_a$) (Refs. 15-16): At room temperature and at low frequency: $\bar{e}_a \approx 6 \times 10^{-9} \text{ V}(\text{Hz})^{-1/2}$, $\bar{i}_a \approx 5 \times 10^{-15} \text{ A}(\text{Hz})^{-1/2}$. To reduce the energy noise, the FET is enclosed in a copper box which is immersed in the helium bath. The thermal link between the FET and the bath is calculated to give an operating temperature of typically 150 K for the FET, just from self heating. Moreover a small heater resistance is used to bring it to around this temperature at the start of the experiment. Thus: $\bar{e}_a \approx 9 \times 10^{-9} \text{ V}(\text{Hz})^{-1/2}$, $\bar{i}_a \approx 5 \times 10^{-16} \text{ A}(\text{Hz})^{-1/2}$. In this way: $Z_a \approx 3 \times 10^6 \Omega$; $R_s + r \approx 0.1 \Omega$; $n \sim 5000$. For fulfilling the condition $R_T \gg R$ the secondary winding contains 25 000 turns, we then deduce that we have to wind about five turns for the primary of the transformer.

V. RESULTS

To emphasize the high sensitivity of our electronic device, we have measured the noise voltage at the output of the system and found $\bar{B}_o \approx 30 \text{ nV}(\text{Hz})^{-1/2}$, referring it to the input of the system this gives $\bar{B}_i \approx 6 \text{ pV}(\text{Hz})^{-1/2}$. This value is essentially the Nyquist noise of the source \bar{e}_s ($\bar{e}_s \approx 5 \times 10^{-12} \text{ V}(\text{Hz})^{-1/2}$). In this way, we believe that we are only limited by the thermal noise of the standard resistor ($r=0.1 \Omega$). Hence, we have measured a sample resistance of a few (m Ω) using a biased current of 100 mA. Therefore we deduced a high resolution $\Delta R/R$ of $10^{-8} (\text{Hz})^{-1/2}$ for our experimental technique. However, by averaging over 100 s this resolution increases to 10^{-9} which is certainly more accurate than a direct measurement of the resistance. Moreover, this apparatus functions within

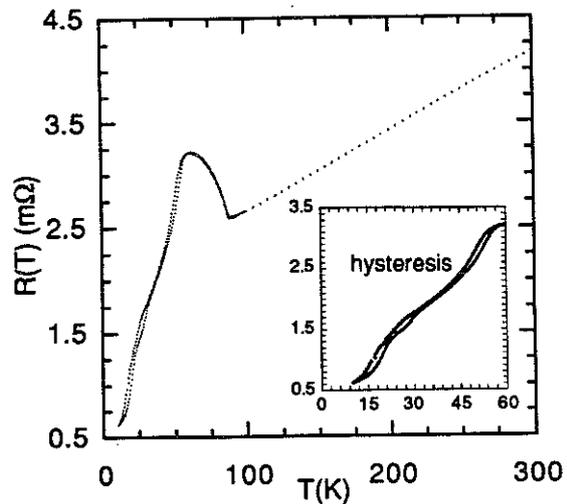


FIG. 8. *c*-axis resistance of a single crystal of erbium vs temperature. The insert shows the hysteresis which occurs over the range (10–60 K).

the temperature range (4–300 K) with a relative thermal oscillation $\Delta T_{ac}/T$ of up to 2×10^{-3} . Figure 8 shows our resistance measurements of a single crystal of erbium as a function of temperature over the temperature range (10–300 K). In Fig. 9 we present its dR/dT over the temperature interval (70–125 K). The results obtained this way permit the elimination of unnecessary additional parameters in the temperature dependent expression of the resistance (analysis and physical interpretations have been discussed in Ref. 17). Therefore, this new approach constitutes a very notable advance in the determination of the specific exponents (α' , α). An additional aspect of the usefulness of these transport property measurements (dR/dT) in anisotropic system, is that the critical exponents are obtained from data measured along a privileged axis. In

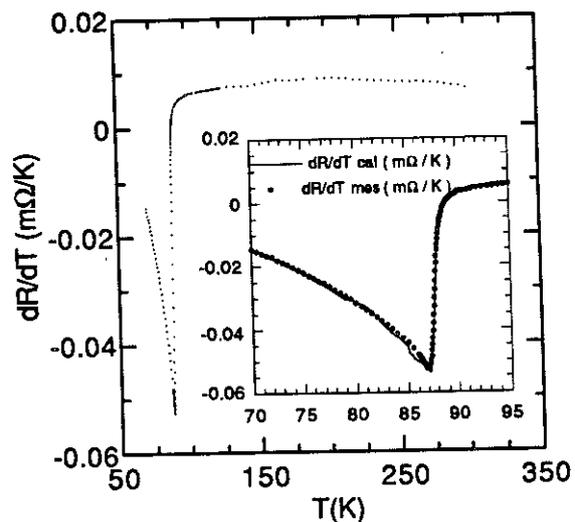


FIG. 9. Temperature derivative of the resistance plotted against temperature for Er. The inset shows the comparison between the experimental data (points) and the data calculated (line) using a sliding seven-point parabolic fit to resistance data $R(T)$.

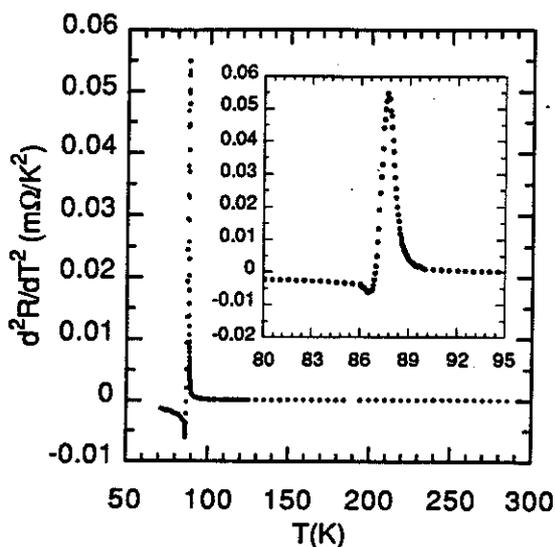


FIG. 10. Second temperature derivative of the resistance calculated using a sliding seven-point parabolic fit to the direct measurements of dR/dT .

this way we eliminate contributions from the plane perpendicular to this axis which is more difficult to do with a bulk specific heat measurement. In order to point out the high accuracy of our experimental device we have plotted in Fig. 10 the second derivative of the resistance using a sliding seven point parabolic fit to the direct measurement of the derivative of the resistance with respect to the temperature.

ACKNOWLEDGMENTS

It is a pleasure to acknowledge the technical assistance of B. Picot and P. Brosse-Marion during the construction of the experimental apparatus. We are indebted to Dr. P. Lejay for growing a pure single crystal of erbium which allowed us to yield high quality measurements. We are grateful to G. Battuz for his precious help in the thermal treatment of the sample. Dr. D. Braithwaite is also to be thanked for reading the manuscript.

- ¹ J. I. Budnick and M. P. Kawatra, eds., *Dynamic Aspects of Critical Phenomena* (Gordon and Breach, New York, 1972).
- ² B. J. Coqblin, in *The Electronic Structure of Rare Earth Metals and Alloys* (Academic, New York, 1977).
- ³ H. U. Aström and G. Benediktsson, *J. Phys. Cond. Mat.* **1**, 4381 (1989).
- ⁴ G. H. F. Brits and P. de V du Plessis, *Physica B* **156 & 157**, 762 (1989).
- ⁵ D. Gibbs, J. Bohr, and J. D. Axe, *Phys. Rev. B* **34**, 8182 (1986); *Physica B* **159**, 93 (1989).
- ⁶ J. Genossar, M. Osteinitz, and E. Fawcett, *Can. J. Phys.* **62**, 823 (1984).
- ⁷ I. Balberg and A. Maman, *Physica B* **96**, 54 (1979).
- ⁸ G. Malmström and D. J. W. Geldart, *Phys. Rev. B* **21**, 1133 (1980).
- ⁹ D. J. W. Geldart and G. Malmström, *J. Phys. C* **15**, 5799 (1982).
- ¹⁰ Y. Suezaki and H. Mori, *Prog. Theor. Phys.* **41**, 1177 (1969).
- ¹¹ M. E. Fisher, *Rev. Mod. Phys.* **46**, 597 (1974).
- ¹² P. Bak and D. Mukamel, *Phys. Rev. B* **13**, 5086 (1976).
- ¹³ D. Mukamel, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 481 (1975).
- ¹⁴ P. F. Sullivan and G. Seidel, *Phys. Rev.* **173**, 679 (1968).
- ¹⁵ F. Ayela, J. L. Bret, and J. Chaussy, *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 2821 (1991).
- ¹⁶ F. Bardoni, G. Maggi, A. Ottaviano, and G. V. Palatino, *Rev. Sci. Instrum.* **52**, 1079 (1981).
- ¹⁷ F. Terki, P. Gandit, and J. Chaussy, *Phys. Rev. B* **46**, 1 July (1992).

Critical exponents and amplitude ratio by direct measurement of dR/dT in erbium

F. Terki, P. Gandit, and J. Chaussy

*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique,
25 avenue des Martyrs, Boîte Postale No. 166, 38042 Grenoble CEDEX 09, France*

(Received 12 December 1991)

High-precision data of the electrical-resistance temperature derivative dR/dT along the c axis of a single crystal of erbium have been obtained using a direct measurement method. Numerical analysis of the dR/dT data for this helical antiferromagnet system provides a quantitative verification of the theory of scattering of electrons by spin fluctuations in the vicinity of the Néel temperature T_N in a single crystal of Er. In addition, the accuracy of the present results enabled us to check the agreement between our results and the theoretical predictions of critical exponents and amplitude ratio obtained by renormalization-group (ϵ -expansion and field-theoretical) methods. The results can be well described using the mean-field theory far from the critical region and above T_N . However, below T_N and far from the transition region, an exponential law is suggested.

INTRODUCTION

The study of transport properties in the vicinity of a phase transition has been the focus of many previous papers. The electrical resistance in particular has been extensively studied at magnetic phase transitions. Generally speaking, there is a reasonable agreement between theory and experiment in the case of ferromagnets.¹⁻³ However, the situation is much more uncertain in the case of antiferromagnets. The role of critical fluctuations in antiferromagnets was studied by Suesaki and Mori (SM).⁴ They concluded that long-range correlations should dominate throughout the paramagnetic regime so that $dR/dT \propto t^{2\beta-1}$. Fisher and Langer^{2,5} supported this prediction in an interesting paper which showed that the singular part of dR/dT has the same behavior as the specific heat in both the long-range and short-range correlation regimes. Richard and Geldart⁶ also found that for $T > T_N$ long-range correlations play a role (discussion based on Ornstein-Zernicke approximation for spin correlation $dR/dT \propto t^{-1/2}$) but they expressed the view that short-range correlations dominate for temperatures sufficiently close to T_N for both $T \rightarrow T_N^-$ and $T \rightarrow T_N^+$ (an idea in contrast with the SM prediction). Later Balberg and Maman⁷ and Malmström and Geldart⁸ suggested that a more sophisticated treatment of the results is required in order to make a careful comparison between theory and experiment. They based their analysis on the physical expectation of the continuity of the resistance as well as the continuity of its temperature derivative at T_N . They mentioned that a correction to the scaling law is necessary in order to improve the agreement between theory and experiment within the critical regime. They also noted a discrepancy between theoretical values of critical exponents and the amplitude ratio calculated using the ϵ -expansion or n -vector model and their own numerical calculations. This disagreement was not attributed to purely experimental problems but rather to the lack of adequate theoretical requirements.

The present work is based on the idea that close to T_N the critical resistance temperature derivative of antiferromagnetic metals should vary as the magnetic specific heat. We attempted to analyze the dR/dT measurements of erbium in detail. As far as we know, different analyses of critical resistance behavior have yielded different critical exponents for similar antiferromagnet systems. We noted that the exponents obtained thus far seem to be extremely dependent on the method of analysis used.⁷⁻¹² As a result, we have developed a direct measurement method which is a helpful tool for the determination of critical parameters since it reduces the number of fitting parameters. The situation below the transition temperature is still far from clear. The qualitative features of the temperature dependence of the resistance below T_N were attributed to the deformation of the Fermi surface and the creation of superzone gaps caused by the magnetic order in the helical antiferromagnetic phase below T_N . More recently, it was pointed out⁶ that these arguments concerning the superzone-induced band structure are unsatisfactory. Here, far from T_N ($T \ll T_N$) we suggest the existence of an exponential law which takes into account the excitations of the spin system and which can be described by spin-density waves. This behavior can be associated by the effects of inelastic scattering from magnons, phonons⁹ which are reflected by the "antiferromagnetic hump" with its maximum located below T_N .

MEASUREMENT TECHNIQUE

The experimental method consists of measuring the response of the resistance to an oscillation in the temperature, thus providing direct access to dR/dT . We use a four-probe method for both the resistance measurements and the measurements of the derivative of the resistance with respect to temperature. The sample is biased by a dc current, the dc voltage which appears is proportional to its resistance. Then, if we create a temperature oscilla-

tion ΔT_{ac} an additional ac voltage (proportional to the variation of the resistance) appears across the sample and follows the equation

$$V_{dc} + \Delta V_{ac} = R(T)I_{dc} + \Delta R(T)I_{dc},$$

where $R(T)$ is the temperature dependence of the resistance, $\Delta R(T)$ is the variation of the resistance due to an oscillation of the temperature ΔT_{ac} , I_{dc} is the dc current which passes through the sample, and V_{dc} , V_{ac} are the dc and ac voltage which appear across the sample. Then we can write

$$\frac{dR(T)}{dT} = \frac{1}{I_{dc}} \frac{\Delta V_{ac}}{\Delta T_{ac}}.$$

The average temperature of the system (sample and sample holder) is regulated by an (proportional, integral, and derivative P.I.D) apparatus associated with a heater-thermometer pair. The temperature modulation ΔT_{ac} is imposed using a second heater resistor supplied by a voltage-current converter driven at a low frequency ($f/2$) of typically 2 Hz. A second thermometer is biased by a direct current. Thus the dc voltage which appears across this thermometer allows us to determine accurately the sample's average temperature. At the same time an alternating voltage component also appears. This allows us to measure the temperature oscillation ΔT_{ac} (typically near $T_N = 87$ K, ΔT_{ac} has an amplitude of about 5 to 10 mK).

The two ac voltages which correspond to the oscillation of the temperature ΔT_{ac} and to the variation of the resistance $\Delta R(T)$ respectively are detected after amplification by two lock-in amplifiers operating at the same frequency $f = 4$ Hz.

One of the original aspects of the experimental device is that the first stage of the detection chain, including a transformer and a transistor FET, is immersed in liquid helium. In order to optimize the operating conditions of the electronic system and because of thermal constraints discussed later, we found that we have to work at the resonant frequency. Therefore an additional capacitor was required to adjust the frequency f of the temperature oscillation ΔT_{ac} . While the input impedance of the electronic circuit is high for ac signals it is small for dc signals. Thus a small fraction of the dc current applied on the sample passes through the transformer and can modify

its characteristic. We would not then be able to determine that part of the current which really follows through the sample. To avoid this problem we used a bridge. A simplified electronic circuit diagram is shown in Fig. 1 where we have added a standard resistor of about 0.1Ω in parallel to our sample resistance.

Another interest of our method is its high accuracy. A variation in the voltage of 6 pV, which corresponds to a variation in the resistance of a few n Ω using a biasing current of 100 mA for an accuracy 1%, can be detected.

MEASURING PRINCIPLE

In the following we describe our measurement technique.

(a) The sample is regulated at a constant temperature. Then, we simultaneously inject two alternating currents I_{1ac} , I_{2ac} at the same resonant frequency $f \approx 4$ Hz into the sample and a standard resistor, respectively. These currents are applied in the ratio I_{1ac}/I_{2ac} so that no currents flow through the transformer. Thus we can write the following equation:

$$R_S I_{1ac} = r I_{2ac},$$

where r is the standard resistor $r = 0.1 \Omega$ and R_S is the sample resistance. Using the preceding relation, we can deduce the sample resistance $R_S(T)$ at every average temperature within the [4–300 K] range.

(b) We have thus determined the value of the current ratio I_1/I_2 which we have to impose to balance the bridge at all temperature. We inject two direct currents in this ratio I_{1dc}/I_{2dc} , and thus we ensure that no direct current passes through the transformer and modifies its characteristics. Then if we create an oscillation in the temperature ΔT_{ac} , we induce an ac voltage at the output of the transformer, directly proportional to the variation of the resistance of the sample $\Delta R_S(T)$ for this temperature oscillation. This signal constitutes the response of the resistance dR to oscillation dT and finally we can write

$$\frac{dR}{dT} = \frac{V}{G I_1 \Delta T},$$

where V is the signal detected by the second lock-in amplifier, G is the amplifier gain, I_1 is the direct current injected in the sample resistance, and ΔT is the amplitude of the temperature oscillation.

In this section we have only briefly described some important points of our apparatus. Further details will be presented elsewhere.¹³

SAMPLE HOLDER

As we know,¹⁴ the amplitude of the temperature oscillation is inversely proportional both to the specific heat C and to the frequency ω of the oscillation ΔT_{ac} ($\Delta T_{ac} \propto 1/C\omega$). Therefore, in order to detect small modulations of the temperature over the temperature range 10–300 K, we chose to use a sapphire sample support of dimensions $10 \times 8 \times 0.2$ mm³ and worked at a low frequency of about 4 Hz. Moreover, we ensured that the

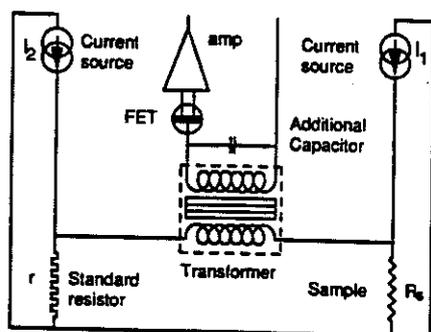


FIG. 1. Schematic diagram describing the electronic circuit.

time constants of the thermal coupling between the sample holder and the sample and between the sample holder and the (heater-thermometers) pairs were as small as possible. To this end we used a strain gauge glue to fix the sample to the holder because of its good thermal conductivity, and directly evaporated the heaters (stainless steel) and the thermometers (NbN) onto the sample holder.

The NbN thermometers were chosen because of their good characteristics such as the variation of their temperature resistance dependence over the whole temperature range (4–300 K) and more especially because of their reproducibility and sensitivity over the temperature range of interest.

SAMPLE

The sample used for these measurements was cut from a single crystal of erbium which was grown using the classical Czochralski method. During cutting, care was taken to avoid introduction of defects such as dislocations, holes, or impurities. A subsequent (energy dispersive spectrometry) analysis on a (scanning electronic microscopy) apparatus revealed no extra elements induced during the growing or cutting processes. Finally the crystal was cut into the form of a disk with a diameter of about 3 mm, a thickness of 0.12 mm and a mass of 4.2 mg. The c axis of the crystal lay in the plane of the disk and was correctly oriented to ensure that only $dR/dT||c$ or $R(T)||c$ was measured without taking account of the other basal contributions. Then the single crystal was wrapped in a thin Ta foil, sealed in a quartz tube under a vacuum with a pressure of about 5×10^{-6} Torr, and annealed at 900°C for 24 h to remove internal strains and dislocations.

RESULTS

Figure 2 shows our resistance measurements as a function of temperature over the temperature range of 10–300 K, while Fig. 3 presents the temperature derivative resistance measurements versus temperature over the

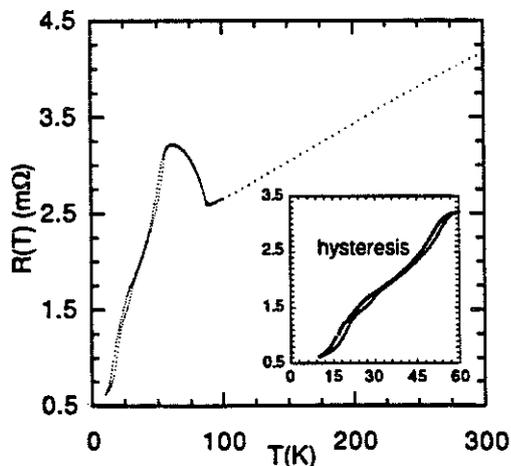


FIG. 2. c -axis resistance of single crystal of Er vs temperature. The inset shows the hysteresis which occurs over the range 10–60 K.

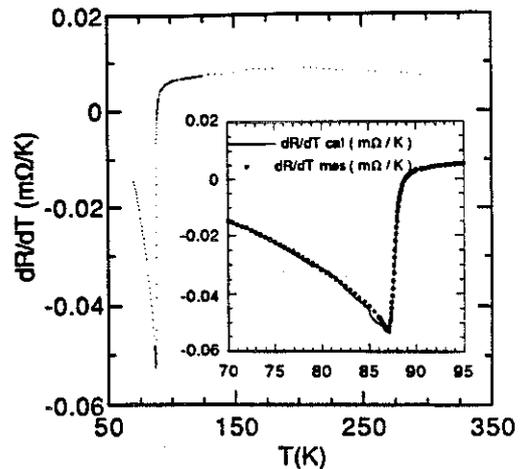


FIG. 3. Temperature derivative of the resistance plotted against temperature for Er. The inset shows the comparison between the experimental data (points) and the calculated one (line) using a sliding seven-points parabolic fit to the resistance data.

temperature interval of 70–125 K. As can be seen from Fig. 2 the resistance of Er clearly exhibits the onset of the various types of spin ordering. Previous studies have identified three distinct regions of magnetic order^{15–26}.

In the paramagnetic state, as the temperature is lowered the resistance decreases linearly. Then, a sharp increase in the electrical resistance with decreasing temperature is observed. This first anomaly occurs at the Néel temperature $T_N = 87$ K, which characterizes the para-antiferromagnetic transition. Thus the resistance increases, reaching a peak around $T = 60$ K. Between $T_N = 87$ K and $T = 60$ K an antiferromagnetic order appears with spins confined to the c axis. At $T = 60$ K another important change of slope takes place. Below this temperature the resistance drops quickly due to an antiferromagnetic rearrangement in the spin ordering. Finally the third anomaly occurs at $T_c = 20$ K and indicates an antiferro-ferro transition. We also noted a distinct hysteresis in the resistance curve within the temperature interval of 10–60 K. This hysteresis disappears above 60 K, proving that it is an intrinsic behavior and not for example due to a bad thermal equilibrium.

These results are in agreement with some previous measurements of resistance^{17–19,26} magnetic moments,^{20,21} and specific heat.²² Moreover, simultaneous neutron diffraction and ultrasonic measurements²³ and a high-resolution calorimetric study²⁴ confirm that the c -axis sinusoidally modulated \leftrightarrow paramagnetic phase transition which occurs at $T_N \approx 85$ K is of second order. The discrepancy between our experimentally observed value of $T_N \approx 87$ K and $T_N \approx 84.4$ K or $T_N \approx 85.6$ K given in Refs. 23, 24, 26 may be taken as an indication of the high purity of our sample. Indeed it has been shown²⁵ that T_N increases with increasing purity from $T_N = 80$ K to $T_N = 88$ K. It is obvious that the feature which occurs in the vicinity of the Néel temperature is more pronounced in Fig. 3 than in Fig. 2, and thus it is more reliable to use the temperature derivative resistance for the analysis of

the critical regime than to use only the temperature resistance. In the following we focus our interest on the Néel transition and make a detailed study of direct measurements of the electrical resistance temperature derivative in the vicinity of T_N .

ANALYSIS OF THE RESULTS

For antiferromagnets it is generally accepted that specific heat and temperature resistance derivative are well described by the same power law^{6-8,26,27}:

$$C_v \propto \frac{dR}{dT} = A|t|^{-\alpha} + B, \quad (1)$$

where A is the critical amplitude of the resistance derivative, α is the critical exponent of the specific heat, B is a constant, and t is the reduced temperature $|(T - T_N)/T_N|$, where T_N is the Néel temperature.

Hitherto, authors who were interested in extracting critical exponents and the amplitude ratio using transport phenomena have used only resistance data in their analysis.^{7-12,26,29,33} The temperature dependence of the resistance is generally described using the expression given in Eq. (2):

$$R(t) = at^{1-\alpha} + bt + c, \quad (2)$$

where $a = AT_N/(1-\alpha)$, $b = BT_N$, and $c = \text{constant}$. Equation (2) is simply the integral of Eq. (1).

Previously, ten parameters (a, α, b, c, T_N) for $T > T_N$ and ($a', \alpha', b', c', T'_N$) for $T < T_N$ were required [Eq. (2)] to accurately fit the temperature resistance measurements obtained for the same or similar antiferromagnet materials. Recently an interesting paper⁷ has shown that improper or incomplete experimental analysis of resistivity results can yield some incorrect values for critical exponents because for the large number of parameters and also because of the exponent's dependence on the method of analysis used. Our experimental method provides a direct access to dR/dT , which is a quantity of physical significance [Eq. (1)] since it is connected to the specific heat. It permits us also to eliminate additional, unnecessary parameters, a very notable point in all critical exponent determinations.⁷

The data have been analyzed in the following temperature ranges using the nonlinear squares method of analysis developed by Marquardt.²⁸

A. $T > T_N$ and determination of T_N

We first consider the data in the temperature range above and far from T_N . One difficulty with the established curve fitting is that Eq. (1) still has four parameters (α, T_N, B , and A). We propose then to take the logarithm of Eq. (1) and differentiate it from temperature in order to get rid of the parameter A . Thus, we obtain Eq. (3), which contains only three parameters:

$$\left[\frac{d}{dT} \left(\ln \left| \frac{dR}{dT} - B \right| \right) \right]^{-1} = -\frac{1}{\alpha} (T - T_N). \quad (3)$$

Taking B as the average constant of the dR/dT data in

the temperature interval of 150–240 K ($B = 8.8 \times 10^{-3}$ m Ω /K), we plot this function versus T , see Fig. 4. We have also verified that this value of B is the same as the one extracted using a linear fit [$R(T) = BT + C$] on the experimental resistance data $R(T)$ in the same temperature interval. Figure 4 shows that a linear fit accurately describes this function. Therefrom we have directly deduced the Néel temperature and the critical exponent value α ($T_N = 87.7$ K, $\alpha = 0.5$ in the 89–125 K range). The obtained value of the critical exponent α ($\alpha = 0.5$) in this temperature regime is equal to the value of the specific heat exponent predicted by the mean-field theory. Then, assuming that $\alpha = 0.5$ and for the temperature range 89–125 K we reverted to Eq. (1), and used the nonlinear least square ($dR/dT = At^{-0.5} + B$, where A, B , and T_N are taken as parameters) to describe our dR/dT experimental data. The best fit with the fixed value of the critical exponent $\alpha = 1/2$ within this interval (89 K, 125 K) is obtained for $T_N \approx 87.7$ K and $B \approx 8.7 \times 10^{-3}$ m Ω /K (see Fig. 5). This value of T_N coincides with the inflection point of dR/dT .

The identification of the Néel temperature as the temperature of the inflection point ($T_N = 87.7$ K) is well confirmed both by the method just described involving Eq. (3), and by a least-squares analysis of dR/dT measurements using Eq. (1) with the fixed value of the critical exponent $\alpha = 1/2$. To this end we believe that this value constitutes the most plausible approach in the determination of T_N instead of the temperature of the minimum of dR/dT ($T_N = 86.9$ K), which is the conventional choice of T_N .^{4,7,9,12,29,33}

B. $T < T_N$

For the temperature interval below and far from T_N ($T \ll T_N$), we have made several fits using Eq. (1) over

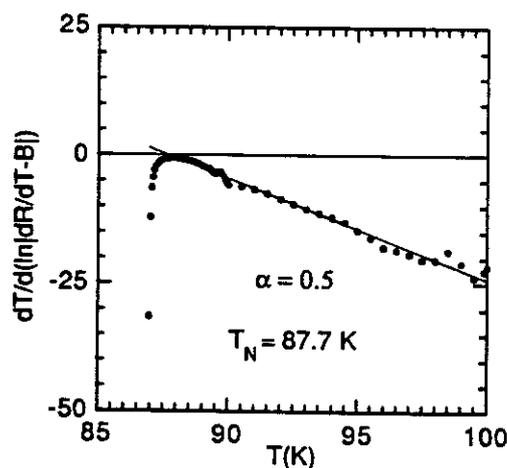


FIG. 4. Plot of the function

$$\left[\frac{d}{dT} \left(\ln \left| \frac{dR}{dT} - B \right| \right) \right]^{-1} = -\frac{1}{\alpha} (T - T_N)$$

against temperature for $T \gg T_N$. The slope of the line through the data indicates an exponent α equal to 0.5 and the intersection with the temperature axis gives $T_N = 87.7$ K. The linear background B has been determined from the data far above T_N .

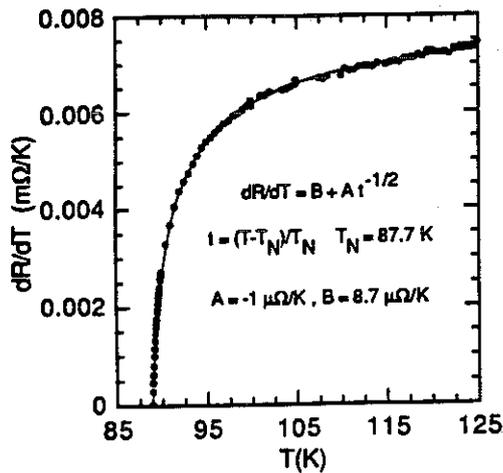


FIG. 5. Nonlinear square fit to data dR/dT for $T > T_N$ involving the power law $dR/dT = A|t|^{-\alpha} + B$ with the fixed value $\alpha = 0.5$. A, B, T_N are the fit parameters and t is the reduced temperature.

a variety of temperature ranges with small changes in the temperature limits. The best fit gives $\alpha = -0.46$ in the temperature range 70–83 K. The fact that this value is comparable to $\alpha = -0.3$, which was obtained for dysprosium and holmium,^{7,29} indicates that this result ($\alpha = -0.46$) is not accidental. It was associated with “the bending” of the resistivity around the temperature $T_H = 60$ K at which the antiferromagnetic rearrangement occurs, but no satisfactory justifications of such an exponent value have been established so far.⁷

By contrast we find that an expression such as

$$\frac{dR}{dT} = AT^n e^{-\Delta/T} \quad n=2 \text{ and } \Delta \approx 3T_N \quad (4)$$

accurately describes our data over a larger temperature range of 70–84.5 K (Fig. 6) than the preceding nonlinear-least-squares fit with $\alpha = -0.46$. Although this suggested law could be treated as the signature of the

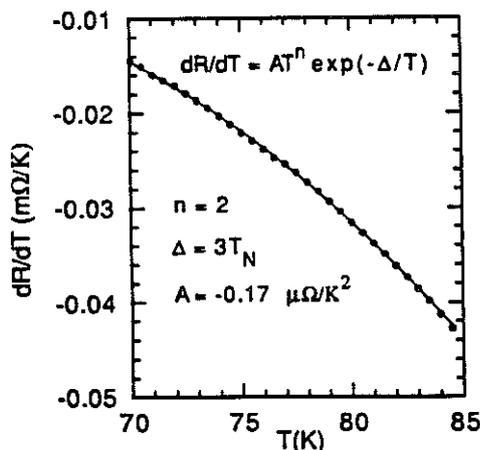


FIG. 6. Fit of dR/dT data for $T \ll T_N$ using the activated law $dR/dT = AT^n e^{-\Delta/T}$, where A, n, Δ are independent fit parameters.

effects of inelastic scattering from (magnons and phonons?) which may explain the “bending” of the resistance around 60 K, it cannot be considered as a conclusive evidence for the existence of an energy gap in the spin-wave spectrum. This type of essential singularity has been reported in association with various transitions (specific heat of superconductor,³⁰ linear Ising chain model³¹). In the context of our system a similar fit on specific heat measurements was obtained³² for terbium and dysprosium. This law was used at low temperatures compared to Δ . The deduced value of the spin-wave gap was $\Delta = 23.5$ K for terbium and 31 K for dysprosium with a fixed value of $n = 1.5$. To our knowledge this is the first time that the same expression has also been used to describe the temperature derivative resistance for the antiferromagnetic ordering which precedes the critical regime ($T \ll T_N$).

C. The critical regime

Below T_N

The Néel temperature is chosen to be at $T_N = 87.7$ K for reasons which have been discussed above. At first the parameters A', B', α' were treated as independent parameters. However, we immediately noted the large influence B' has over the determination of the critical exponent value α' . The first adequate fit without any imposed constraints on A', B' , and α' gives $\alpha' = -0.4$, $B' = -0.07$ mΩ/K over the temperature range 84.5–86.9 K. These parameters were sensitive to a small change in the temperature range when points close to T_N were included. Moreover, the fact that the B' obtained value is equal to the value of dR/dT at the minimum leads us to think that this value is a constraint imposed by computational details.

If we believe that the transition is not “ideal” and that the rounding which occurs very close to the minimum of dR/dT may attribute to imperfections in the sample, we can eliminate a number of points close to this minimum. Therefore, because of the large influence of the B' value on the determination of α' and the computational constraints, we decided to make several fits where the value of the critical exponent α' is allowed to vary within the interval $[-0.001, -0.4]$ and then determined B' values which cannot be reached experimentally. Then using these estimated values of B' , we selected the best fits within a temperature range of 85–86.8 K, which is the temperature interval over which the results (A', α', B') given in Table I are temperature independent. Nevertheless we also ensure that no significant change occurs in the values of the parameters (A', α', B') when we impose small variations in T_N around 87.7 K.

Furthermore, we compared the estimated temperature range 85–86.8 K over which we perform this analysis with other estimates such as $3 \times 10^{-4} \leq |t| \leq 3 \times 10^{-2}$ (Ref. 7) over which it is accepted that the critical behavior occurs. We concluded that the selected interval 85–86.8 K is consistent but the points very close to T_N have been dropped because of the sample's imperfection and the nature of the transition which is not “perfect or ideal.”

TABLE I. (α' , α) are the critical exponents of dR/dT below and above T_N , respectively. (B' , B , A' , A) are the fit parameters involving the equation $dR/dT = B + A\Theta(t)t^{-\alpha}(1 + Ft^{\Delta_1})$. A/A' is the amplitude ratio which follows the theoretical expression $|A/A'| = 2^\alpha(1 + \epsilon)(n/4) + \Theta(\epsilon^2)$.

α'	α	$B'=B$	A'	A	A/A'	$2^\alpha n/2$ ($n=2$)	$2^\alpha n/2$ ($n=4$)
-0.001	-0.002	-7.479	7.460	7.537	1.010	0.999	1.999
-0.005	-0.008	-1.534	1.516	1.595	1.052	0.997	1.993
-0.010	-0.015	-0.791	0.773	0.850	1.010	0.993	1.986
-0.050	-0.068	-0.197	0.181	0.276	1.524	0.966	1.932
-0.100	-0.119	-0.122	0.111	0.224	2.018	0.933	1.866
-0.200	-0.188	-0.085	0.082	0.225	2.744	0.871	1.741
-0.300	-0.231	-0.073	0.081	0.243	3.000	0.812	1.625
-0.400	-0.263	-0.066	0.090	0.265	2.944	0.758	1.516

Above T_N

We first performed the same analysis close to and above T_N . However, we noted that a satisfactory fit using Eq. (1) cannot accurately describe our experimental dR/dT data over the range of the reduced temperature t : $1 \times 10^{-3} \leq t \leq 1.5 \times 10^{-2}$ with consistent parameter values ensuring that the criterion $\alpha = \alpha'$ is fulfilled. To check that such law is not followed by our experimental data in this regime we plotted the function $\ln|dR/dT - B|$ vs $\ln|t|$ over the temperature range 87.8–89 K where B is taken to be equal to the precedent value $B'(B=B')$ presented in Table I to fulfill the physical requirement of the continuity of dR/dT at T_N .

The fact that no linear fit has been found to describe this function leads us to believe that a correction to the scaling exponent suggested in previous papers is required.^{7,8,34}

Consequently, Eq. (1) is replaced by

$$\frac{dR}{dT} = B + A\Theta(t)t^{-\alpha}(1 + Ft^{\Delta_1}), \quad (5)$$

where $\Theta(t) = 1(0) t > 0 (< 0)$, Δ_1 is the correction to the scaling exponent, and B, A, F are fit parameters.

Then, in the critical regime close to and above T_N , this equation becomes

$$\frac{dR}{dT} = B + At^{-\alpha}(1 + Ft^{\Delta_1}). \quad (6)$$

Several fits were made using this equation over a temperature interval in the vicinity of T_N ($T \gtrsim T_N$) (87.8 K, 89 K). In these fits, the crossover correction exponent was held fixed, using the renormalization group results for the correction of the scaling exponent.

It has been noted that Δ_1 depends on the value of the degree of freedom of the order parameter n . Hence, using the n -vector model, Δ_1 takes the following values: $\Delta_1 = 0.52$ and $\Delta_1 = 0.55$ for $n=2$ and $n=4$, respectively. If we only require the continuity of dR/dT at T_N , i.e., $B=B'$, we obtain a range of possible values for the critical exponent α confined within the range $\alpha[-0.001, -0.4]$ and thus, in this case we are unable to make a choice for the value of α which gives the best solution. Therefore, this problem is not solvable in its present form, and we need an additional theoretical requirement such as the universality of the critical ampli-

tude ratio A/A' in order to obtain a solution. This ratio also depends on the α and n values and its expression is given by^{7,35,36}

$$\left| \frac{A}{A'} \right| = 2^\alpha(1 + \epsilon) \left[\frac{n}{4} \right] + \Theta(\epsilon^2). \quad (7)$$

Now for the range of the available values of the critical exponent α [$-0.001, -0.4$] obtained as before we have calculated the theoretical expectation of the critical amplitude ratio using Eq. (7) up to the first order of ϵ and for $\epsilon=1$ ($\epsilon=4-d$, d the dimensionality of the system). We then compared them with those extracted from our fits when α varies within the range $[-0.001, -0.4]$ and Δ has the estimated values calculated by applying the n -vector model or high-temperature series analysis given in Ref. 37.

In summary, we conclude that

if $n=2$ and $\Delta_1=0.52$ (n vector model),

and $\Delta_1=0.6$ (high-temperature series analysis),

the value of the critical exponent which satisfies Eq. (7) with the fixed value of Δ_1 , obtained using either of the two estimations, is $\alpha \approx -0.001$ and can be very close to zero. Some curve fits with different values of α are presented in Fig. 7.

if $n=3,4$ and $\Delta_1=0.54$ (n -vector mode),

and $\Delta_1=0.55$

(high-temperature series expansions),

the value of α is $\alpha \approx -0.1$.

A recent study of the magnetization of Er (Ref. 38) confirmed that the antiferromagnetic phase within the temperature range bounded by $T_N=60$ K and $T_N=87$ K is a sinusoidally modulated phase having the spin confined to the c axis. Then according to the study presented in Ref. 39, which shows that a sinusoidal \leftrightarrow paramagnetic transition is described by a $2n$ Heisenberg model and leads to Heisenberg-like $n=2$, we believe that erbium is probably described by a spin model with $n=2$ degrees of freedom for the order parameter. Thus the

CONCLUSION

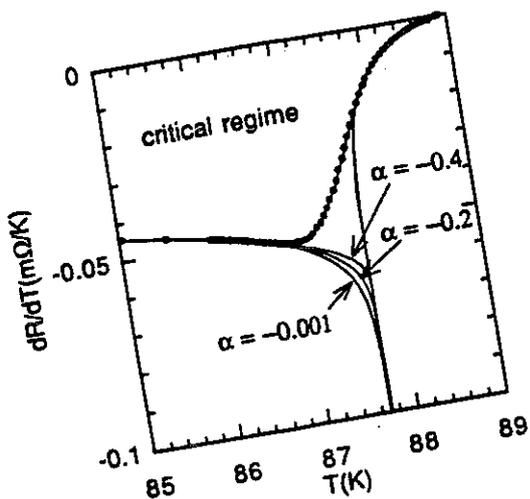


FIG. 7. Different fits of dR/dT over the critical regime using the fit parameters given in Table I for $\alpha = -0.001, -0.2, -0.4, n = 2$, and $\Delta = 0.5$.

value of the critical exponent which gives a reasonable fit in accord with theoretical expectations of the critical ratio amplitude is $\alpha \approx -0.001$ and can be very close to zero. A comparison between theoretical and experimental results for $n = 2$ and $n = 4$ is reported in Table I. Finally Fig. 8 shows the different best laws used to accurately fit our dR/dT data over the whole temperature range (70–125 K).

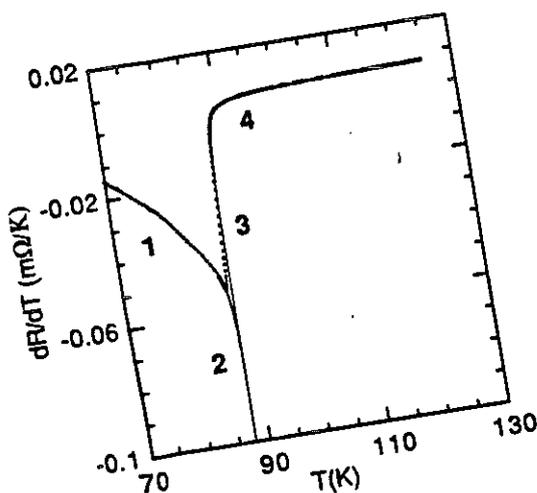


FIG. 8. Temperature derivative of the resistance plotted against temperature for Er over the whole temperature range 70–125 K. Solid lines are the fits for different temperature ranges involving the following equations:

$$\frac{dR}{dT} = AT^n e^{-\Delta/T} \text{ for } T \ll T_N$$

$$\frac{dR}{dT} = B' + A't^{-\alpha} \text{ for } T < T_N \text{ in the close vicinity of } T_N$$

$$\frac{dR}{dT} = B + A't^{-\alpha}(1 + Ft^{\Delta_1}) \text{ for } T > T_N \text{ in the close vicinity of } T_N$$

$$\frac{dR}{dT} = B + A't^{-\alpha} \text{ for } T \gg T_N \text{ with } \alpha = 0.5 \text{ (mean-field exponent)}$$

In this paper we have presented a detailed study of the temperature derivative of the resistance (dR/dT) measurement along the c axis of a single crystal of erbium in the vicinity of its Néel temperature T_N . This is a systematic analysis of a direct measurement of the singular part of dR/dT within the critical regime in a single crystal of Er.

It is accepted that the determination of critical parameters using only the analysis of resistance measurements is confronted with many difficulties because of the large number of parameters and their strong interdependence over even a small temperature range. Hence we emphasize the interest of a direct access to dR/dT , using the technique described above and which leads to a reduction in the number of parameters required to fit the high-quality data. An additional interest of these transport property measurements (dR/dT) to extract the specific heat critical exponent α is that the critical exponent is obtained from data measured along the c axis of the single crystal of Er. In this way we obtain the singular part of dR/dT along the c axis and eliminate contributions from the (a, b) plane. This is more difficult with a bulk specific heat measurement in an anisotropic system.

In summary, we have discussed in this paper the following:

- (i) A plausible approach for the determination of the Néel temperature has been introduced and justified by showing that a careful least-squares analysis converges to the same value of T_N .
- (ii) High-precision measurements of dR/dT have allowed us to obtain results which are consistent with the view that short-range correlations dominate the singular part of dR/dT for both $T \rightarrow T_N^+$ and $T \rightarrow T_N^-$ although long-range correlations ($\alpha = 1/2$) become relevant for $t > 2 \times 10^{-2}$ over a large temperature range in the paramagnetic state. These results are reported and analyzed in detail for a single crystal of erbium.
- (iii) The analysis of the behavior below T_N and far from the critical regime leads to an exponent ($\alpha \approx -0.46$). But for the physical interpretation of such a value is not well understood. Therefore we have suggested that an activated law may describe our experimental data over a large temperature range below and far from T_N . A physical interpretation underlying this kind of law is possible existence of an energy gap in the antiferromagnetic phase which may be attributed to the effects of elastic scattering from magnons and phonons and explain the bending of the resistance at $T_H = 60$ K.
- (iv) Because of the large range of the best-fit parameters ($A', \alpha', B', A, \alpha$) obtained (Table I) which accurately describe the behavior of the singular part of dR/dT a restricted temperature range in the vicinity of the temperature, it has been shown that a careful analysis and unsatisfactory conclusions.

The value of the critical exponent $\alpha = -0.001$ this paper was obtained after fulfilling the following requirements, such as

- (a) the continuity of dR/dT at the Néel temperature $T_N(B'=B)$, the equality of the critical exponent of the temperature resistance derivative α' and α below and above the critical temperature $T_N(\alpha'=\alpha)$ according to the expected scaling results on the specific heat exponent,³⁴
- (b) the universality of the critical amplitude ratio $|A/A'|$ given by the theoretical expression in Ref. 35.

ACKNOWLEDGMENTS

It is a pleasure to thank the late R. Rammal for fruitful discussions which were helpful for the analysis of the experimental results. We are grateful to J. Souletie, M. Lees, and A. Briggs for comments and suggestions on this work, and to P. Lejay for providing us a precious sample.

- ¹P. G. de Gennes and J. Friedel, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 71 (1958).
- ²M. E. Fisher and J. S. Langer, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 665 (1968).
- ³T. G. Richard and D. J. W. Geldart, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 290 (1973).
- ⁴Y. Suezaki and H. Mori, *Prog. Theor. Phys.* **41**, 1177 (1969).
- ⁵M. E. Fisher, *Rev. Mod. Phys.* **46**, 597 (1974).
- ⁶T. G. Richard and D. J. W. Geldart, *Phys. Rev. B* **15**, 1502 (1977).
- ⁷I. Balberg and A. Maman, *Physica* **96B**, 54 (1979).
- ⁸G. Malmström and D. J. W. Geldart, *Phys. Rev. B* **21**, 1133 (1980).
- ⁹K. V. Rao, Ö. Rapp, Ch. Johannesson, D. J. W. Geldart, and T. G. Richard, *J. Phys. C* **8**, 2135 (1975).
- ¹⁰G. T. Meaden, N. H. Sze, and J. R. Johnston, in *Dynamical Aspects of Critical Phenomena*, edited by J. I. Budnik and M. P. Kawatra (Gordon and Breach, New York, 1972), p. 315.
- ¹¹R. A. Craven and R. D. Parks, *Phys. Rev. Lett.* **31**, 383 (1973).
- ¹²K. V. Rao, Ö. Rapp, T. G. Richard, and D. J. W. Geldart, *J. Phys. C* **6**, L231 (1973).
- ¹³P. Gandit, Ph.D. thesis, University of Grenoble, 1992 (unpublished).
- ¹⁴P. F. Sullivan and G. Seidel, *Phys. Rev. B* **173**, 679 (1968).
- ¹⁵J. W. Cable, E. O. Wollan, W. C. Koehler, and M. K. Wilkinson, *Phys. Rev. B* **140**, 1896 (1965).
- ¹⁶M. Habenschuss, C. Stassis, S. K. Sinha, H. W. Deckman, and F. H. Spedding, *Phys. Rev. B* **10**, 1020 (1974).
- ¹⁷M. Atoji, *Solid State Commun.* **14**, 1047 (1974).
- ¹⁸R. V. Colvin, S. Legvold, and F. H. Spedding, *Phys. Rev. B* **120**, 741 (1960).
- ¹⁹F. H. Spedding, B. J. Beaudry, and W. D. Cress, *Rev. Chim. Minér.* **13**, 62 (1976).
- ²⁰F. Elliot, S. Legvold, and F. H. Spedding, *Phys. Rev.* **100**, 1595 (1955).
- ²¹J. Gibbs, J. Bohr, and J. D. Axe, *Phys. Rev. B* **34**, 8182 (1986); *Physica B* **159**, 93 (1989).
- ²²R. E. Skocholopole, M. Griffel, and F. H. Spedding, *J. Chem. Phys.* **23**, 2258 (1955).
- ²³G. H. F. Brits and P. de V. du Plessis, *Physica B* **156&157**, 762 (1989).
- ²⁴H. U. Aström and G. Benediktsson, *J. Phys. Condens. Matter* **1**, 4381 (1989).
- ²⁵J. Genossar, M. Osteinitz, and E. Fawcett, *Can. J. Phys.* **62**, 823 (1984).
- ²⁶P. de V. du Plessis, G. H. F. Brits, and G. A. Eloff, *J. Phys. (Paris) Colloq.* **49**, C 8, 353 (1988).
- ²⁷S. Alexander, J. S. Helman, and I. Balberg, *Phys. Rev. B* **13**, 304 (1976).
- ²⁸D. J. Marquardt, *J. Soc. Ind. Appl. Math.* **11**, 43 (1963).
- ²⁹R. L. Singh and D. J. W. Geldart, *Solid State Commun.* **20**, 501 (1976).
- ³⁰M. Tinkham, in *Introduction to Superconductivity*, edited by B. Bayne and M. Gardiner (Krieger, Florida, 1980), p. 8.
- ³¹J. Souletie, *J. Phys. (Paris) Colloq.* **49**, 1211 (1988).
- ³²B. Coqblin, in *The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys* (Academic, New York, 1977), pp. 213-215.
- ³³Ö. Rapp, G. Benediktsson, and H. U. Aström, *Phys. Rev. B* **18**, 3665 (1978).
- ³⁴D. J. W. Geldart and G. Malmström, *J. Phys. C* **15**, 5799, 5811 (1982).
- ³⁵E. Brezin, J. C. Le Guillou, and J. Zinn-Justin, *Phys. Lett.* **47A**, 285 (1974).
- ³⁶C. Bervillier, *Phys. Rev. B* **14**, 4964 (1976).
- ³⁷J. C. Le Guillou and J. Zinn-Justin, *Phys. Rev. B* **21**, 3976 (1980).
- ³⁸S. Gama and M. E. Foglio, *Phys. Rev. B* **37**, 2123 (1988).
- ³⁹M. Droz and M. D. Coutinho-Filho, in *Magnetism and Magnetic Materials*, Proceedings of the 21st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, edited by J. J. Becker, G. H. Lander, and J. J. Rhyne, AIP Conf. Proc. No. 29 (AIP, New York, 1976), p. 465.

Classification

Physics Abstracts

75.30K — 75.40 — 75.40G

Phase diagram (T, H) investigation by direct measurement of dR/dT in a magnetic material

Ph. Gandit, F. Terki, J. Chaussy and P. Lejay

Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, 25 avenue des martyrs, BP 166, 38042 Grenoble Cedex 09, France

(Received 31 July 1992, accepted 10 August 1992)

Résumé. — La dépendance en température de la résistance $R(T)$ et de la partie singulière de $\frac{dR}{dT}$ au voisinage des régions critiques, sous champs magnétiques compris entre 0 et 5 T sont présentées dans cet article. Ces mesures ont été obtenues à l'aide d'une nouvelle technique qui permet d'accéder directement à $\left. \frac{dR(T)}{dT} \right|_H$. Cette quantité qui est reliée au coefficient de transport $\frac{1}{R} \frac{dR}{dT}$, est proportionnelle à la chaleur spécifique au voisinage des transitions de phases. La précision des données expérimentales nous a permis de vérifier le bon accord entre l'analyse que nous avons menée pour $H = 0$ T, et la valeur des exposants critiques prédite par différents modèles de la théorie du groupe de renormalisation. En outre, nous présentons une nouvelle approche de la détermination d'un diagramme de phase (T, H) en utilisant les propriétés de transport $R(T, H)$ et $\left. \frac{dR(T)}{dT} \right|_H$ d'un monocristal d'erbium, au voisinage des températures critiques.

Abstract. — The temperature dependences of the resistance $R(T)$ and the singular part of $\frac{dR}{dT}$ near the critical regime and in the presence of magnetic fields H [0-5 T] are presented in this paper. The measurements were carried out using a novel technique from which $\left. \frac{dR}{dT} \right|_H$ can be determined directly. This quantity, being related to the transport coefficient $\frac{1}{R} \frac{dR}{dT}$, is directly connected to the specific heat behavior near the phase transition. The high accuracy of our experimental data allows us to compare the critical exponents deduced from our previous measurements in zero field ($H = 0$ T) and those predicted by several models of the renormalization group theory. We present a complete phase diagram for a single crystal of erbium oriented along the c -axis. This constitutes the first systematic study of field-induced magnetic phase transitions using the magnetoresistance $R(T, H)$ and its derivative $\left. \frac{dR}{dT} \right|_H$ near the critical points.

Introduction.

The effect of critical fluctuations on the electrical resistance of magnetic materials became a subject of widespread interest several years ago. Previous work has shown that the temperature dependence of the resistance in the vicinity of the critical temperature T_N is directly related to the magnetic energy [1-3]. Suezaki and Mori [4] studied the role of critical fluctuations in antiferromagnets and concluded that long range correlations should dominate approaching the paramagnetic state, from which $\frac{dR(T)}{dT} \propto t^{2\beta-1}$ ($t = |1 - T/T_N|$). Then, Fisher [2, 5] and Langer [2] predicted that the magnetic contribution to the temperature derivative of the electrical resistance near the Curie temperature $dR(T)/dT$, should be proportional to the specific heat, $C(T)$, for a ferromagnet, since the temperature dependence of both quantities is dominated by short-range part of the spin-correlation function. This theoretical prediction has been quantitatively verified in the quasi-itinerant ferromagnets nickel [6] and iron [8], and in β -brass [9], an order-disorder system.

However, the situation is much more uncertain for the case of antiferromagnets. Although, the conclusion that $\frac{dR(T)}{dT} \propto C(T)$ has been extended to antiferromagnets below the Néel temperature $T \leq T_N$ [6, 10, 11]. Then, Richard and Geldart [11], and Alexander *et al.* [12] have shown that for $T > T_N$, long range correlations play a role (prediction based on the Ornstein-Zernicke approximation for spin correlations $\frac{dR(T)}{dT} = t^{1/2}$) [12]. They also discussed in some detail the effect of critical fluctuations on the electrical resistivity of antiferromagnets and binary alloys. In recent work [13], we presented a numerical analysis of the temperature derivative of the electrical resistance along the c -axis of a single crystal of Er in zero field. The high accuracy of our $\frac{dR}{dT}$ measurements enabled us to compare our experimental results with theoretical predictions. Our analysis is based on the physical expectation that the resistance and its derivative with respect to temperature are continuous at T_N .

Moreover, we found that the physical requirement such as the universality of the critical amplitude ratio $\frac{A}{A'}$, given by recent group renormalization results [14], should be fulfilled. This more sophisticated analysis of the experimental data near the critical regime had been suggested by Balberg and Maman [15], and Malmström and Geldart [16]. They confirmed that a different analysis of the critical resistance behavior yields different critical exponents for similar antiferromagnet systems [15-20]. Moreover, we have suggested [13] previously that far from the critical regime, $\frac{dR}{dT}$ follows an exponential law, which takes into account the excitations of the spin system. In the present paper we focus on the magnetic as well as the temperature dependence of the critical resistance $R(T, H)$. We present high precision data for $\left. \frac{dR(T)}{dT} \right|_H$ measured by a new technique which we have developed to directly determine this transport property [21]. In the literature, the magnetoresistance of nickel near its Curie temperature has to date been considered only in the mean field approximation by Schwerer [22]. Simon and Salomon [8] attempted to measure both the specific heat and the resistivity of gadolinium near the Curie point as function of magnetic field and show that they were proportional. Recent developments in the understanding of the critical behavior of the resistance in magnetic materials for zero field and under applied magnetic fields have been reviewed [23-25]. In this paper we extend our previous work [13] to find fields induced magnetic phase transitions in an antiferromagnetic single crystal of erbium.

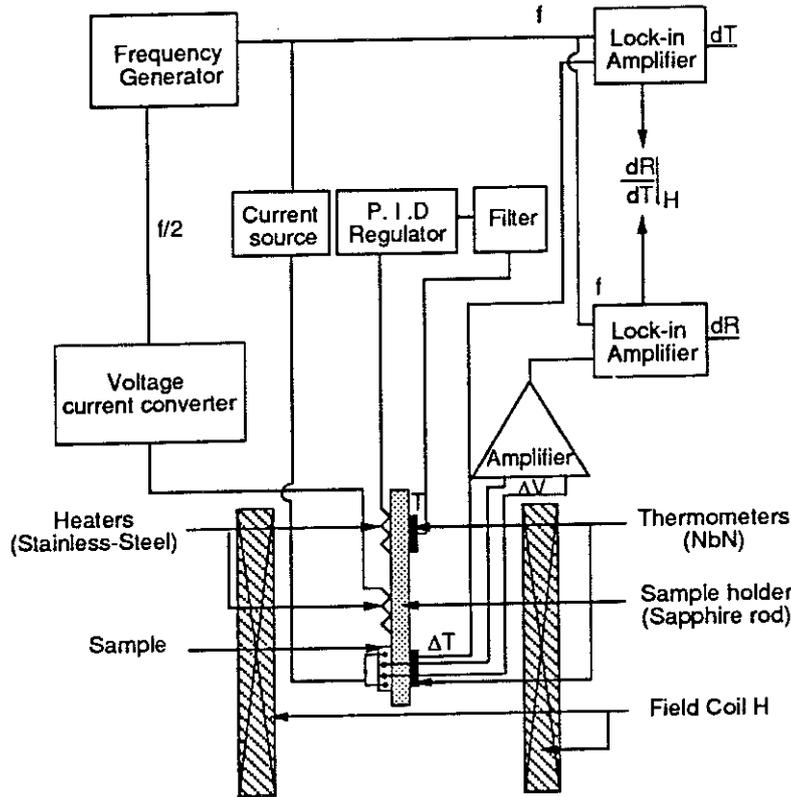


Fig. 1. — Schematic diagram of the experimental set-up.

Measuring principle [13, 21].

The experimental method consists of measuring the response of the sample resistance $R_s(T)$ to a small temperature oscillation ΔT_{ac} , from which the derivative of the resistance with respect to temperature $\frac{dR_s(T)}{dT}$ is found. The sample we want to study is placed in the center of a superconducting field coil, which enabled us to determine the features of the magnetoresistance of the sample, up to a field $H = 5$ T. The sample is biased by a DC current I_{dc} at a regulated temperature T . The DC voltage V_{dc} which appears at its extremities, is proportional to its resistance $R_s(T)$. Then, an oscillation of the temperature ΔT_{ac} , induces an additional AC voltage ΔV_{ac} (proportional to the variation of the resistance $\Delta R_s(T)$), given by:

$$V_{dc} + \Delta V_{ac} = R_s(T, H) I_{dc} + \Delta R_s(T, H) I_{dc} \tag{1}$$

We can then deduce the quantity $\left. \frac{dR_s(T)}{dT} \right|_H$:

$$\left. \frac{dR_s(T)}{dT} \right|_H = \left. \frac{\Delta R_s(T)}{\Delta T_{ac}} \right|_H = \frac{1}{I_{dc}} \frac{\Delta V_{ac}}{\Delta T_{ac}} \tag{2}$$

Apparatus [21].

A schematic diagram of the experimental set up is given in figure 1.

- The average temperature of the system (sample and sample holder) is regulated by a PID (proportional, integral and derivative) controller associated with a heater-thermometer pair.
- The temperature modulation ΔT_{ac} is imposed using a second resistance heater driven by a voltage to current converter at a frequency $f/2 \sim 2$ Hz.
- The second thermometer is biased by a direct current. Thus the DC voltage which appears across this thermometer allows us to determine accurately the sample's average temperature. At the same time, an alternating voltage component also appears, it enables the temperature oscillation ΔT_{ac} to be measured.
- NbN thermometers were chosen because of their reproducibility and sensitivity over the temperature range of interest. Moreover, we have measured the magnetic field dependence of the NbN resistance and checked that the deduced temperature T is only slightly modified by applying a magnetic field ($\Delta T/T < 2\%$ at $T \sim 4.2$ K for a field of 5 T).
- The two AC voltages, which correspond to the temperature oscillation ΔT_{ac} and the variation of the resistance $\Delta R_s(T)$ respectively are detected after amplification by two lock-in amplifiers operating at the same frequency f ($f = 4$ Hz).

A more complete description of the measurement technique can be found in reference [21]. In addition to direct physical interpretation [13] of the measurements, we would like to emphasize again the high accuracy of the results obtained by our technique. Indeed a resolution $\frac{\Delta R}{R}$ of $10^{-8}(\text{Hz})^{-1/2}$ with R equal to a few $\text{m}\Omega$ can be achieved. By averaging over 100 s this resolution increases to 10^{-9} which is much more accurate than a direct measurement of the resistance.

Experimental results and physical interpretation.

The sample was a single crystal of erbium grown by the Czochralski method under a purified atmosphere of argon. The resistance and temperature resistance derivative data were measured parallel to the c -axis, with magnetic fields applied along the easy axis of magnetization (c -axis).

1. MEASUREMENTS OF $R(T)$ AND dR/dT WITHOUT APPLYING A MAGNETIC FIELD [13]. — Recent measurements of the resistance as a function of the temperature within the range [10 K – 300 K] confirmed that Erbium exhibits three distinct types of spin ordering. We have studied the behavior of the resistance of a single crystal of Er for ($H = 0$ T) within the temperature interval [10 K – 300 K]. A sharp increase in the electrical resistance with decreasing temperature occurs at the Néel temperature, $T_N = 87.6$ K, and characterizes the para-antiferromagnetic transition. Then the resistance increases with decreasing temperature down to $T = 60$ K where it reaches its maximum value. Between the Néel temperature and this intermediate temperature, $T_H = 60$ K, the magnetic structure is “modulated along the c -axis”. Below T_H and down to the Curie temperature of 20 K, the resistance drops quickly, due to another type of antiferromagnetic rearrangement, with a complex structure [26, 27]. Below T_c , the magnetic moments order in a ferro-conical structure [28]. We also noted a distinct hysteresis in the resistance curve in the temperature range [10 K – 60 K] which disappeared above 60 K. Figure 2 shows our temperature derivative measurements $\frac{dR}{dT}$ (points), since the solid lines are fits for different temperature range. The physical interpretation of such laws are discussed in detail in reference [13].

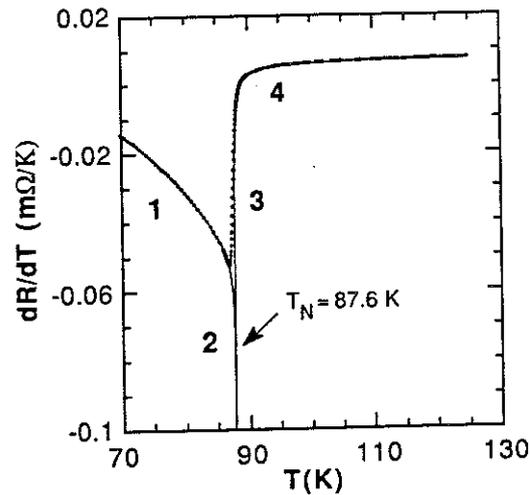


Fig. 2. — Temperature derivative of the resistance plotted versus temperature for Er. Solid lines are fits for different temperature ranges as follows : 1) $\frac{dR}{dT} = AT^2 e^{-\Delta/T}$ with $\Delta \approx 3T_N$ for $T \ll T_N$, 2) $\frac{dR}{dT} = B' + A'(1 - T/T_N)^{-\alpha'}$ for $T < T_N$ in the close vicinity of T_N , with $\alpha' = 0.001$, 3) $\frac{dR}{dT} = B + A(T/T_N - 1)^{-\alpha} (1 + F(T/T_N - 1)^{\Delta_1})$ for $T > T_N$ in the close vicinity of T_N , with $\alpha = 0.001$, $\Delta_1 = 0.55$ and, 4) $\frac{dR}{dT} = B + A(T/T_N - 1)^{-\alpha}$ for $T \gg T_N$ with $\alpha = 0.5$ (mean field exponent).

2. MEASUREMENTS OF $R(T)$ IN THE PRESENCE OF MAGNETIC FIELDS. — Figure 3 shows resistance measurements in the presence of magnetic fields, within the range [0 – 3 T], as the temperature is increased from 10 K to 300 K. The bump of the resistance observed at $T = 60$ K in zero field decreases continuously when the magnetic field is increased, and has practically disappeared in a magnetic field of 2.6 T. This effect has already been observed in a similar antiferromagnet (Tb) [29]. In order to scrutinize this feature we measured the thermal dependence of the c-axis resistance for various values of the magnetic field // c in the range [2 T – 3 T] (Fig. 4). We then deduced the value of the field ($H \sim 2.6$ T) for which the maximum of the resistance vanishes. We also noted that the hysteresis observed for zero field in the temperature range [10 K-60 K] tends to disappear for a field of about 2.5 T. Figure 5 shows the effect of different values of magnetic fields 1, 1.5, 2 and 2.5 T on the hysteretic behavior of the resistance within the temperature interval [10-60K]. For higher fields in the range [3-5 T] (Fig. 6), the antiferromagnetic phase is destroyed while at the same time a marked change of slope occurs as the field is increased (Fig. 6). This feature can be associated with the transition from the paramagnetic to the ferromagnetic phase. Indeed, recent neutron measurements in the presence of magnetic fields [30] confirm that no antiferromagnetic phase persists for fields above 2.5 T.

3. MEASUREMENTS OF dR/dT IN PRESENCE OF MAGNETIC FIELDS. — Figure 7 shows our $\frac{dR}{dT}$ measurements in applied magnetic fields along the axis of easy magnetization (c-axis) in the temperature range 70 K - 100 K. The paramagnetic-antiferromagnetic transition which occurs at the Néel temperature (87.6 K in zero field) moves towards lower temperatures with increasing magnetic field from 1 T to 2 T. Moreover, for a field of 2 T a second inflexion point begins to appear in the vicinity of the critical regime. Then, at a field of 2.25 T, a splitting

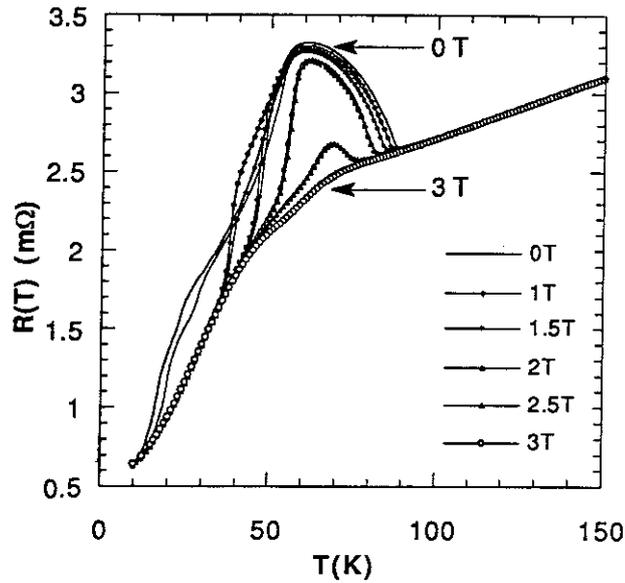


Fig. 3. — *c*-axis resistance of single crystal of Er versus temperature for different magnetic fields applied along the *c*-axis ($0 < H < 3$ T).

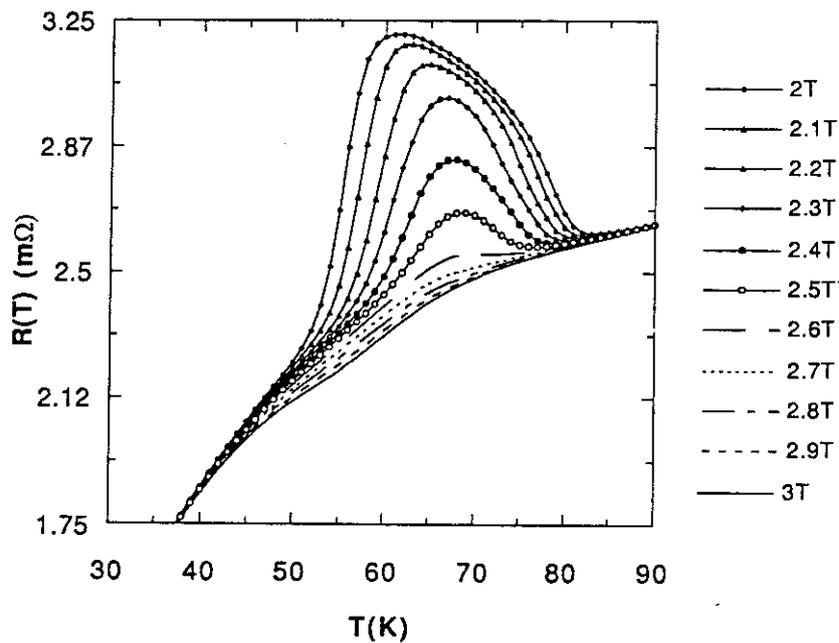


Fig. 4. — Detailed measurements of the magneto-resistance of Er for fields ranging from 2 T to 3 T.

of the critical temperature is clearly observed. This feature indicates that a new phase with an another type of order appears. This constitutes the first systematic evidence, by transport property measurements $\frac{dR}{dT}$, of a new magnetic rearrangement induced by an external magnetic field. The physical interpretation of this experimental singularity is that a field of 2 T tends to order the magnetic moments parallel to the direction of the field in the antiferromagnetic phase below T_N . Thus the transition from the paramagnetic state to the antiferromagnetic

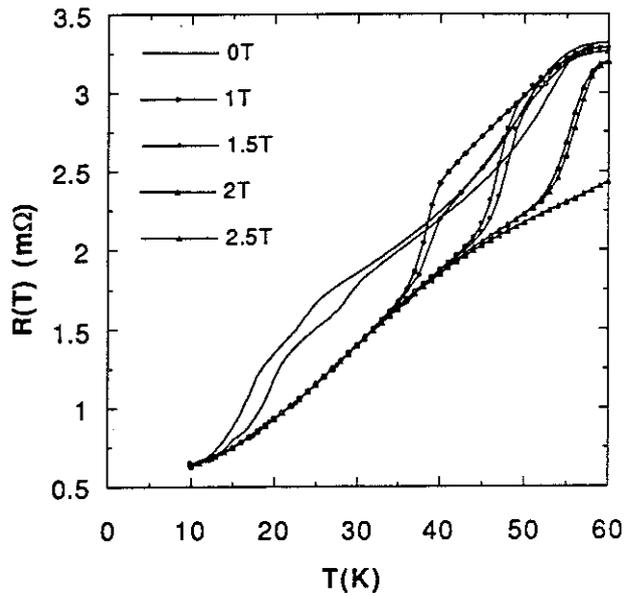


Fig. 5. — Hysteresis behavior of the resistance in temperature range [10 - 60 K] in magnetic fields ($0 < H < 2.5$ T).

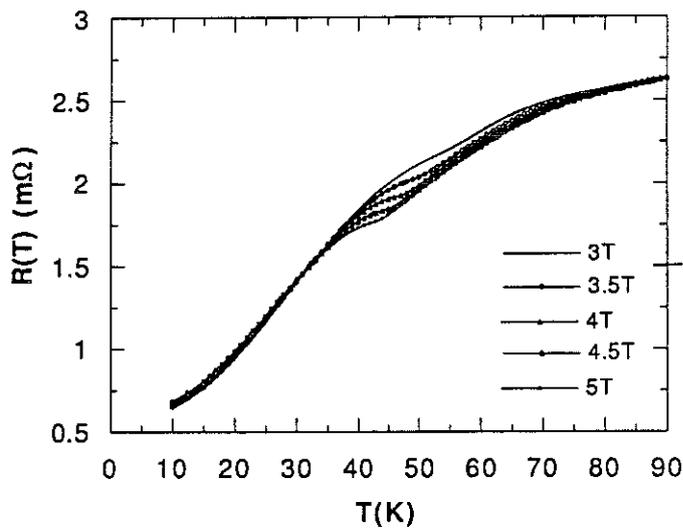


Fig. 6. — Resistance versus temperature curves for high fields ($3 < H < 5$ T).

(*c*-axis modulated) ordering proceeds via an intermediate ferromagnetic ordering as confirmed by neutron studies [30].

The second anomaly occurring just below the above corresponds to the transition from ferromagnetic (*c*-axis modulated structure?) to the modulated antiferromagnetic phase. Even so, a critical field of about 2.45 T is sufficient to completely destroy the *c*-axis modulated antiferromagnetic structure. Indeed, the corresponding anomaly is progressively attenuated and disappears at about this field (Fig. 7). Nevertheless the singularity which still persists at fields greater than this critical field characterizes the transition from the paramagnetic state to the new ferromagnetic ordering discussed above. This field also corresponds to the disappearance

scattering from magnons and phonons. To extend this work, detailed theoretical analyses of the recent measurements under applied magnetic fields will be presented in a forthcoming publication [34]. This will confirm the predicted power-laws for the temperature dependence of the magnetoresistance of antiferromagnetic metals [25] within the critical regime and the mean-field regime, and our suggested activated law below and far from T_N .

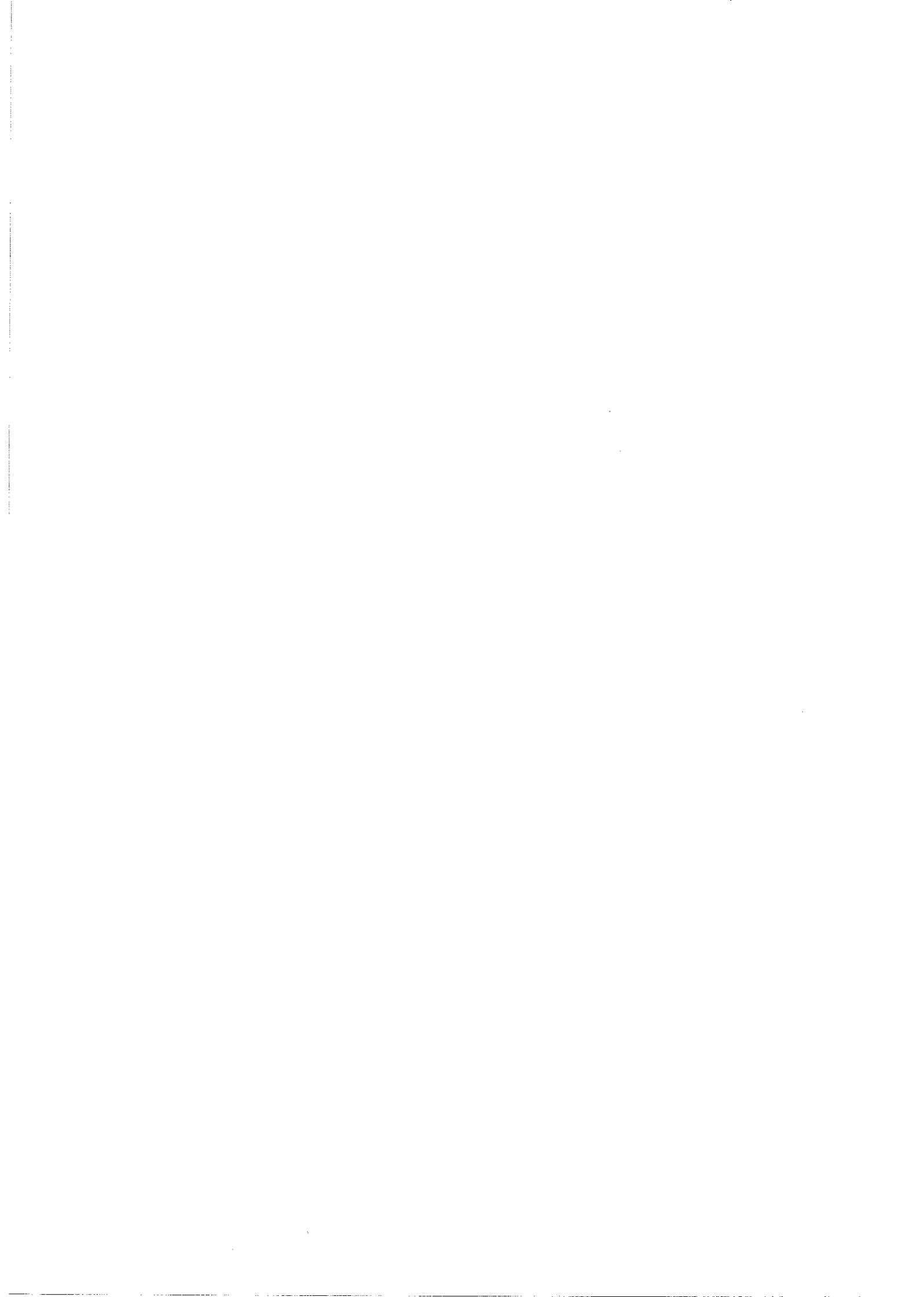
Acknowledgments.

We would like to express our gratitude to the late Dr R. Rammal for suggesting the field of study and for valuable help in early stages of the theoretical treatment. We would also like to thank Dr N. Schopohl for fruitful discussions and comments.

References

- [1] de GENNES P.G. and FRIEDEL J., *J. Phys. Chem. Solids* **4** (1958) 71.
- [2] FISHER M.E. and LANGER J.S., *Phys. Rev. Lett.* **20** (1968) 665.
- [3] RICHARD T.G. and GELDART D.J.W., *Phys. Rev. Lett.* **30** (1973) 290.
- [4] SUEZAKI Y. and MORI H., *Prog. Theor. Phys.* **41** (1969) 1177.
- [5] FISHER M.E., *Rev. Mod. Phys.* **46** (1974) 597.
- [6] ZUMBERG F.C. and PARKS R.D., *Phys. Rev. Lett.* **24** (1970) 520.
- [7] SHACKLETTE L.W., *Phys. Rev. B* **9** (1974) 3789.
- [8] SIMONS D.S. and SALOMON M.B., *Phys. Rev. Lett.* **26** (1971) 750.
- [9] RICHARD T.G. and GELDART D.J.W., *Phys. Rev. B* **15** (1977) 1502.
- [10] RICHARD T.G. and GELDART D.J.W., *Phys. Rev. Lett.* **30** (1973) 290.
- [11] KASUYA T. and KONDO A., *Solid State Commun.* **14** (1974) 249.
- [12] ALEXANDER S., HELMAN J.S. and BALBERG I., *Phys. Rev. B* **13** (1976) 304.
- [13] TERKI F., GANDIT Ph., CHAUSSY J., *Phys. Rev. B* **46** (July 1992).
- [14] BREZIN E., LE GUILLOU J.C. and ZINN-JUSTIN J., *Phase Transition and Critical Phenomena*, C. Domb and M.S. Green Eds. (Academic, New York, 1976) Vol 5, p. 125.
- [15] BALBERG I. and MAMAN A., *Physica* **96B** (1979) 54.
- [16] MALMSTRÖM G. and GELDART D.J.W., *Phys. Rev. B* **21** (1980) 1133.
- [17] RAO K.V., RAPP Ö, JOHANNESON Ch., GELDART D.J.W. and RICHARD T.G., *J. Phys. C. Solid State Phys.* **8** (1975) 2135.
- [18] MEADEN G.T., SZE N.H. and JOHNSTON J.R., *Dynamical Aspects of Critical Phenomena*, J.I. Budnik and M.P. Kawatra Eds (Gordon and Breach, New York, 1972) p. 315.
- [19] CRAVEN R.A. and PARKS R.D., *Phys. Rev. Lett.* **31** (1973) 383.
- [20] RAO K.V., RAPP Ö, RICHARD T.G. and GELDART D.J.W., *J. Phys. C Solid State Phys.* **6** (1973) L231.
- [21] CHAUSSY J., GANDIT Ph., BRET J.L. and TERKI F., *Rev. Sci. Inst.* **63** (1992) 3953.
- [22] SCHWERER F.C., *Phys. Rev. B* **9** (1974) 958.
- [23] BALBERG I., *Physica* **91B** (1977) 71.
- [24] ALEXANDER S., HELMAN J.S. and BALBERG I., *Phys. Rev. B* **13** (1976) 304.
- [25] BALBERG I. and HELMAN J.S., *Phys. Rev. B* **18** (1978) 303.
- [26] CABLE J.W., WOLLAN E.O., KOEHLER W.C. and WILKINSON M.K., *Phys. Rev. B* **140** (1965) 1896.
- [27] SPEDDING F.H., BEAUDRY B.J. and CRESS W.D., *Revue Chimie Minérale* **13** (1976) 62.
- [28] COOBLIN B., *The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys*, (Academic Press, 1977) p. 213-215.

- [29] HEGLAND D.E., LEGVOLD S. and SPENDLING F.H., *Phys. Rev.* **131** (1963) 158.
- [30] LIN H., COLLINS M.F., HOLDEN T.M. and WEI W., *Phys. Rev. B* **45** (1992) 12873.
- [31] ECCLESTON R. and PALMER S.B., *J. Magn. Magn. Mater.* **104-107** (1992) 1529.
- [32] GAMA S. and FOGGIO M.E., *Phys. Rev. B* **37** (1988) 2123.
- [33] JENSEN J., *J. Phys.* **F6** (1976) 1145.
- [34] TERKI F., GANDIT Ph., CHAUSSY J. and SCHOPHL N., to be submitted to *Phys. Rev. B*.



- [21] - P.G. de Gennes and J. Friedel, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 71 (1958).
- [22] - Y. Suezaki and H. Mori, *Prog. Theor. Phys.* **41**, 1177 (1969).
Y. Suezaki and H. Mori, *Phys. Letters*, **28A**, 70 (1968).
- [23] - B. Coqblin, in *The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys*, edited by the Academic Press, p 213-215 (1977).
- [24] - S. Legvold, in "*magnetic properties of rare-earth metals*" Chapter 7 (Ed R. Elliott), Plenum Press.
- [25] - M.E. Fisher and J.S. Langer, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 665 (1968).
- [26] - M.E. Fisher, *Rev. Mod. Phys.* **46**, 597 (1974).
M.E. Fisher, *J. Math. Phys.* **5**, 944 (1964).
- [27] - F.C. Zumteg, F. Cadieu, S. Marcelja and R.D. Parks, *Phys. Rev. Lett.* **25**, 1204 (1970).
- [28] - V.L. Pokrovskii, *Seminar on Phase Transitions, Budapest (Hongrie)* Oct (1967).
- [29] - K.V. Rao, Ö. Rapp, Ch. Johanneson, D.J.W. Geldart and T.G. Richard, *J. Phys. C. Solid State Physics* **8**, 2135 (1975).
K.V. Rao, Ö. Rapp, T.G. Richard and D.J.W. Geldart, *J. Phys. C Solid State Physics* **6**, L231 (1973).
- [30] - E.B. Amitin, Yu. A. Kovalevskaya, F.S. Rakhnekulov and I.E. Paukov, *Soviet. Physics. Solid State.* **12**, 599 (1970).
- [31] - Ö.Källbäck and S.G. Humble, *Physica Scripta.* **35**, 747 (1987).
- [32] - R.L. Singh and D.J.W. Geldart, *Solid State Commun.* **20**, 501 (1976).
- [33] - R.W. Green, S Legvold and F.H. Spedding, *Phys. Rev. B* **127**, 2046 (1962).
- [34] - D.S. Simons and M. B. Salomon, *Phys. Rev. B* **10**, 4680 (1974).
- [35] - J.B. Sousa, J.M. Moreira, M.E. Braga, S.B. Palmer, S. Bates and B.J. Beaudry, *J. Phys. F : Met. Phys* **15**, 1171 (1985).
J.B. Sousa, J.M. Moreira, M.E. Braga, S.B. Palmer, S. Bates, S. Legvold and B.J. Beaudry, *Journal of Magn Materials.* **54**, 671 (1986).
- [36] - M. Atoji, *Solid State Commun.* **14**, 1047 (1974)
- [37] - R.V. Colvin, S. Legvold and F.H. Spedding, *Phys. Rev. B* **120**, 147 (1967).
- [38] - F.H. Spedding, B.J. Beaudry and W.D. Cress, *Rev. Chim. Miner.* **13**, 62 (1976).
- [39] - R.W. Green, S Legvold and F.H. Spedding, *Phys. Rev. B* **120**, 741 (1960).
- [40] - P. de V. du Plessis, G.H.F. Brits and G.A. Eloff, *J. de Physique. (Paris)* *Coloq.* **49**, C 8, 353 (1988).
- [41] - R.E. Skochdopole, M. Griffel and F.H. Spedding, *J. Chem. Phys.* **23**, 2258 (1955).

Bibliographie

- [42] - J.W. Cable, E.O. Wollan, W.C. Koehler and M.K. Wilkinson, *Phys. Rev. B* **140**, 1896 (1965).
- [43] - M. Habenschuss, C. Stasus, S.K. Sinha, H.W. Deckman and F.H. Spedding, *Phys. Rev. B* **10**, 1020 (1974).
- [44] - A.H. Millhouse and W. C. Koehler, *Proceedings of the Inter. Coll. on Rare Earth Elements. Paris-Grenoble, (mai 1969).*
- [45] - J.L. Féron, *Thèse d'état de l'Université de Grenoble* (1969).
- [46] - F. Elliot, S. Legvold and F.H. Spedding, *Phys. Rev* **100**, 1595 (1955).
- [47] - D. Gibbs, J. Bohr and J.D. Axe, *Phys. Rev. B* **34**, 8182 (1986);
Physica B **159**, 93 (1989).
- [48] - G.H.F. Brits and P. de V. du Plessis, *Physica B* **156&157**, 762 (1989).
- [49] - H.U. Aström and G. Benediktsson, *J. Phys. Cond. Mat.* **1**, 4381 (1989).
- [50] - Genossar, M. Osteinitz and E. Fawcett, *Can. J. Phys.* **62**, 823 (1984).
- [51] - S. Alexander, J.S. Helman and I. Balberg, *Phys. Rev. B* **13**, 304 (1976).
- [52] - T.G. Richard and D.J.W. Geldart, *Phys. Rev. B* **15**, 1502 (1977).
- [53] - I. Balberg, *Physica* **91B**, 71 (1977).
- [54] - I. Balberg and A. Maman, *Physica* **96B**, 54 (1979).
- [55] - G. Malmström and D.J.W. Geldart, *Phys. Rev. B* **21**, 1133 (1980).
- [56] - R.A. Craven and R.D. Parks, *Phys. Rev. Lett.* **31**, 383 (1973).
- [57] - Ö. Rapp, G. Benediktsson and H.U. Aström, *Phys. Rev. B* **18**, 3665 (1978).
- [58] - G.T. Meaden, N.H. Sze and J.R. Johnston in *Dynamical Aspects of Critical Phenomena*, edited by J.I. Budnik and M.P. Kawatra eds (Gordon and Breach, New York, 1972) p. 315.
- [59] - D.J. Marquardt, *J. Soc. Ind Appl. Math.* **11**, 43 (1963).
- [60] - P.P. Craig, N.I. Goldurg, T.A. Kitchens and J.I. Budnick,
Phys. Rev.Lett,**19** 1334 (1967).
- [61] - F.C. Zumteg and R.D. Parks, *Phys. Lett*, **24**, 520 (1970).
- [62] - Ö. Källbäck, *Physica. Scripta*, **25**, 673 (1982).
- [63] - Tinkham, in "*Introduction to superconductivity*", Edited by B. Bayne and M. Gardine (Krieger Florida) (1980). P 8.
- [64] - J. Souletie, *J. Phys (Paris). Colloq* **49**, 1211 (1988).
- [65] - E. Brezin, J.C. Le Guillou and J. Zim-Justin, *Phys.Lett*, **47A**, 285 (1974).
- [66] - C. Bervillier, *Phys. Rev. B*, **14**, 4964 (1976).
- [67] - S. Gamma and M. E. Foglio, *Phys. Rev. B*, **37**,2123 (1988).
- [68] - M. Droz and M.D. Coutinho-Filho, in *Magnetism and Magnetic Materials*, Proceedings of the 21st Annual Conference on Magnetism and Magnetic

- Materials, Edited by J.J. Becker, G.H. Lander and J.J. Rhyne, AIP conf Proc , 29, 465 (1976) (AIP New-York).
- [69] - J.C. Le Guillou and J. Zinn-Justin, Phys. Rev. B 21, 3976 (1980).
- [70] - E. Brezin, J.C. Le Guillou and J. Zinn-Justin in "*Phase Transition and Critical Phenomena*" edited by C.Domb and M. S.Green (Academic, New York, 1976) Vol 5, P125.
- [71] - Hegland. D.E. Legvold and F.M. Splending, Phys. Rev,131, 158 (1963).
- [72] - H. Lin, M.F. Collins, T.M. Holden and W. Wei, Phys. Rev. B 45, 12873 (1992).
- [73] - R. Eccleston and S.B. Palmer, J. of Magn. and Magn. Mat. 104-107, 1529 (1992).
- [74] - I. Balberg and J.S. Helman, Phys. Rev B 18, 303 (1978).
- [75] - J. Jensen, J. Phys, F6, 1145 (1976).
- [76] Shang-Keng Ma in "*Modern Theory of Critical Phenomena*", Reading, Massachusetts (1976).
- [77] A.R. Mackintosh, Phys Rev 9, 90 (1962).
- [78] D.J.W. Geldart and G. Malmström, J. Phys. C, 15, 5799, 5811 (1982).
- [79] D.L. Connelly, J.S. Loomis and D.E. Mapother, Phys. Rev 3B, 924 (1971).
- [80] E. Fawcett, Rev. Mod. Phys. 60, 209 (1988).
- [81] M. Akhavan, H.A. Blackstead and P.L. Donoho, Phys. Rev B, 9, 4258 (1973).

