

THÈSE

présentée à

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

pour obtenir le grade

Docteur Ingénieur

par

Foad TOWFIQ

SUJET

*Automatisation d'un appareillage de
mesure d'aimantation sous pression*

*Propriétés magnétiques des alliages
 $Fe_x Co_{1-x} Si$ et $Fe_x Co_{1-x} Ti$*

soutenue le 21 septembre 1979 devant la Commission d'Examen

J.C. BARBIER

Président

J. BEILLE

D. BLOCH

F. GAUTIER

J.L. LECONTE

R. TOURNIER

Examineurs

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

Monsieur Gabriel CAU : Président
Monsieur Pierre JULLIEN : Vice Président

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

PROFESSEURS TITULAIRES

MM	AMBLARD Pierre	Clinique de dermatologie
	ARNAUD Paul	Chimie
	ARVIEU Robert	I.S.N
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique Expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BEAUDOING André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture
	BELORIZKY Elie	Physique
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures
	BEZEZ Henri	Pathologie chirurgicale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Clinique gastro-entérologique
Mme	BONNIER Marie-Jeanne	Chimie générale
MM.	BOUCHERLE André	Chimie et toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées
	BOUTET DE MONTVEL Louis	Mathématiques Pures
	BRAVARD Yves	Géographie
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologique
	CALAS François	Anatomie
	CARLIER Georges	Biologie végétale
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Clinique Oto-rhino-laryngologique
	CHATEAU Robert	Clinique de neurologie
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique
	CONTANTIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie pathologique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DELORMAS Pierre	Pneumophtisiologie

MM.	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée (IUT I)
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	JANIN Bernard	Géographie
	KAHANE André	Physique généralé
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHEKNO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
Mme	LAJZEROWICZ Janine	Physique
MM.	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie Pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LE ROY Philippe	Mécanique (IUT I)
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOISEAUX Pierre	Sciences Nucléaires
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
MM.	MALINAS Yves	Clinique Obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Clinique Cardiologique
	MAZARE Yves	Clinique Médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MICOUD Max	Clinique Maladies infectieuses
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie Nucléaire
	NOZIERES Philippe	Spectrométrie Physique
	OZENDA Paul	Botanique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET Jean	Sémiologie Médicale (Neurologie)
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REVOL Michel	Urologie
	RINALDI Renaud	Physique
	DE ROUGEMONT Jacques	Neuro-Chirurgie
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT I)
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale

MM. VAILLANT François
 VALENTIN Jacques
 VAUQUOIS Bernard
 Mme VERAINE Alice
 MM. VERAINE André
 VEYRET Paul
 VIGNAIS Pierre

Zoologie
 Physique Nucléaire
 Calcul électronique
 Pharmacie galénique
 Physique
 Géographie
 Biochimie médicale

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. CRABBE Pierre
 DEMBICKI Eugéniuz
 JOHNSON Thomas
 PENNEY Thomas

CERMO
 Mécanique
 Mathématiques appliquées
 Physique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mlle AGNIUS-DELDORD Claudine
 ALARY Josette
 MM. AMBROISE-THOMAS Pierre
 ARMAND Gilbert
 BENZAKEN Claude
 BJAREZ Jean-Pierre
 BILLET Jean
 BOUCHET Yves
 BRUGEL Lucien
 BUISSON René
 BUTEL Jean
 COHEN ADDAD Pierre
 COLOMB Maurice
 CONTE René
 DELOBEL Claude
 DEPASSEL Roger
 FONTAINE Jean-Marc
 GAUTRON René
 GIDON Paul
 GLENAT René
 GROULADE Joseph
 HACQUES Gérard
 HOLLARD Daniel
 HUGONOT Robert
 IDELMAN Simon
 JOLY Jean-René
 JULLIEN Pierre
 Mme KAHANE Josette
 MM. KRAKOWIACK Sacha
 KUHN Gérard
 LUU DUC Cuong
 MAYNARD Roger
 Mme MINIER Colette
 MM. PELMONT Jean
 PERRIAUX Jean-Jacques
 PFISTER Jean-Claude
 Mlle PIERY Yvette

Physique pharmaceutique
 Chimie analytique
 Parasitologie
 Géographie
 Mathématiques appliquées
 Mécanique
 Géographie
 Anatomie
 Energétique (IUT I)
 Physique (IUT I)
 Orthopédie
 Spectrométrie physique
 Biochimie
 Physique (IUT I)
 M.I.A.G.
 Mécanique des fluides
 Mathématiques Pures
 Chimie
 Géologie et Minéralogie
 Chimie organique
 Biochimie médicale
 Calcul numérique
 Hématologie
 Hygiène et Médecine préventive
 Physiologie animale
 Mathématiques Pures
 Mathématiques Appliquées
 Physique
 Mathématiques Appliquées
 Physique (IUT I)
 Chimie organique
 Physique du solide
 Physique (IUT I)
 Biochimie
 Géologie et Minéralogie
 Physique du solide
 Physiologie animale

MM.	RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
	REBEQ Jacques	Biologie (CUS)
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	RICHARD Lucien	Biologie végétale
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM.	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	VIALON Pierre	Géologie
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	ARMAND Yves	Chimie (IUT I)
	BACHELOT Yvan	Endocrinologie
	BARGE Michel	Neuro chirurgie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Hélène	Pharmacodynamie
MM.	BOST Michel	Pédiatrie
	BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B) (Personne étrangère habilitée à être directeur de thèse)
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHARDON Michel	Géographie
	CHERADAME Hervé	Chimie papetière
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
	CORDONNIER Daniel	Néphrologie
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	CYROT Michel	Physique du solide
	DENIS Bernard	Cardiologie
	DOUCE Roland	Physiologie végétale
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRACSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	FAURE Gilbert	Urologie
	GAUTIER Robert	Chirurgie générale
	GIDON Maurice	Géologie
	GROS Yves	Physique (IUT I)
	GUIGNIER Michel	Thérapeutique
	GUITTON Jacques	Chimie
	HICTER Pierre	Chimie
	JALBERT Pierre	Histologie
	JUNIEN-LAVILLAVROY Claude	O.R.L.
	KOLGDIE Lucien	Hématologie
	LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et médecine préventive
	MALLION Jean-Michel	Médecine du travail

MM. MARECHAL Jean
 MARTIN-BOUYER Michel
 MICHOUILLER Jean
 NEGRE Robert
 NEMOZ Alain
 NOUGARET Marcel
 PARAMELLE Bernard
 PECCOUD François

PEFFEN René
 PERRIER Guy
 PHELIP Xavier
 RACHAIL Michel
 RACINET Claude
 RAMBAUD André
 RAMBAUD Pierre
 RAPHAEL Bernard

Mme RENAUDET Jacqueline
 MM. ROBERT Jean-Bernard
 ROMIER Guy

SCHAERER René
 SHOM Jean-Claude
 STOEBSNER Pierre
 VROUSOS Constantin

Mécanique (IUT I)
 Chimie (CUS)
 Physique (IUT I)
 Mécanique (IUT I)
 Thermodynamique
 Automatique (IUT I)
 Pneumologie
 Analyse (IUT B) (Personnalité étrangère
 habilitée à être directeur
 de thèse)
 Métallurgie (IUT I)
 Géophysique-Glaciologie
 Rhumatologie
 Médecine Interne
 Gynécologie et Obstétrique
 Hygiène et Hydrologie (Pharmacie)
 Pédiatrie
 Stomatologie
 Bactériologie (Pharmacie)
 Chimie Physique
 Mathématiques (IUT B) (Personnalité étrangère
 habilitée à être direc-
 teur de thèse)
 Cancérologie
 Chimie Générale
 Anatomie Pathologie
 Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM. DEVINE Roderick
 HODGES Christopher

Spectro Physique
 Transition de Phases

Fait à SAINT MARTIN D'HERES, NOVEMBRE 1976

Président : M. Philippe TRAYNARD

Vice-Présidents : M. Pierre-Jean LAURENT
M. René PAUTHENET

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité
BESSON Jean	Electrochimie
BLOCH Daniel	Physique du solide
BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
BONNIER Etienne	Electrochimie et Electrometallurgie
BRISSENEAU Pierre	Physique du solide
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
COUMES André	Radioélectricité
DURAND Francis	Métallurgie
FELICI Noël	Electrostatique
FOULARD Claude	Automatique
LESPINARD Georges	Mécanique
MOREAU René	Mécanique
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Physique du solide
PERRET René	Servomécanismes
POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
VEILLON Gérard	Informatique fondamentale et appliquée

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BLIMAN Samuel	Electronique
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique
COHEN Joseph	Electrotechnique
LACOME Jean-Louis	Géophysique
LANCIA Roland	Electronique
ROBERT François	Analyse numérique
ZADWORNÝ François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. ANCEAU François	Mathématiques Appliquées
CHARTIER Germain	Electronique
GUYOT Pierre	Chimie Minérale
IVANES Marcel	Electrotechnique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du solide
LESIEUR Marcel	Mécanique
MORET Roger	Electrotechnique Nucléaire
PIAU Jean-Michel	Mécanique
PIERRARD Jean-Marie	Mécanique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Informatique Fondamentale et Appliquée
MMe. SAUCIER Gabrièle	Informatique Fondamentale et Appliquée

CHERCHEURS DU C.N.R.S. (Directeur et Maîtres de Recherche).

M. FRUCHART Robert	Directeur de Recherche
MM. ANSARA Ibrahim	Maître de Recherche
CARRE René	Maître de Recherche
DRIOLE Jean	Maître de Recherche
LANDAU Ioan Doré	Maître de Recherche
MATHIEU Jean-Claude	Maître de Recherche
MUNIER Jacques	Maître de Recherche

1

2

3

Le présent travail a été effectué au Laboratoire Louis Néel à Grenoble, dirigé par Monsieur le Professeur J.C. Barbier. Je lui exprime ma profonde reconnaissance pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour l'honneur qu'il me fait en présidant ce jury de Thèse.

Monsieur le Professeur D. Bloch a proposé le sujet et a suivi constamment l'avancement de ces études ; j'aimerais lui exprimer ma respectueuse gratitude pour ses suggestions et ses encouragements. Je lui suis très reconnaissant de participer à ce jury.

Je remercie Monsieur le Professeur F. Gautier de l'intérêt qu'il montre pour ce travail en acceptant de participer à ce jury.

Monsieur Tournier, Directeur du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, me fait beaucoup d'honneur en acceptant d'être examinateur de cette étude.

Monsieur J.L. Leconte, Ingénieur au Laboratoire d'Electronique et de Technique de l'Information a bien voulu juger ce travail, je l'en remercie sincèrement.

Monsieur J. Beille, Chargé de Recherches au C.N.R.S. a été le responsable de ce travail. Son dynamisme et son enthousiasme ont été très stimulants pour mes débuts dans la recherche. Il m'est particulièrement agréable de l'assurer de ma sincère et amicale gratitude pour son aide de tous les jours et pour ses qualités humaines et scientifiques dont il m'a fait profiter.

Je remercie tous mes collègues du laboratoire qui m'ont aidé dans la réalisation de ce travail, et plus particulièrement Messieurs B. Barbara et J. Voiron.

J'ai beaucoup apprécié la collaboration de Messieurs A. Draperi et S. Pelosi qui m'ont aidé avec dévouement dans la partie technique de ce travail.

Monsieur A. Plante a joué le rôle de conseiller technique pour la partie automatisa-tion ; il m'a fait bénéficier de ses connaissances et de son expérience. Je lui en suis extrêmement reconnaissant.

Je remercie Monsieur R. Perrier de la Bâthie pour la préparation des échantillons.

Je remercie également Monsieur R. Rammal du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures et Madame C. Lacroix pour les discussions fructueuses dont ils m'ont fait bénéficier.

Mademoiselle G. Menéroud a assuré avec compétence et gentillesse la dactylographie de cette thèse. C'est très amicalement que je la remercie pour le soin qu'elle a apporté à cette tâche.

Je remercie également Madame Trévisson pour l'impression de ce Mémoire.

Enfin, j'exprime ma gratitude à mes parents qui m'ont encouragé tout le long de mes études. Je me permets de leur dédier ce Mémoire.

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I : AUTOMATISATION DE L'APPAREILLAGE DE MESURES .</u> <u>D'AIMANTATION SOUS PRESSION</u>	
I-1 - Introduction	3
I-2 - Principales caractéristiques du montage expérimental	5
I-3 - Automatisation du montage expérimental	6
<u>CHAPITRE II : LES PROPRIETES MAGNETIQUES EN CHAMP FORT DES</u> <u>ALLIAGES $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ ET $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$</u>	
II-1 - Introduction	15
II-2 - La théorie de Landau pour l'apparition du magnétisme et le modèle du faible ferromagnétisme itinérant	17
II-3 - Préparation des échantillons	18
II-4 - Mesures d'aimantations sous champ fort	19
a- Mesures à température constante pour diverses concentrations	19
b - Mesures sous champ fort à température variable	23
II-5 - Conclusion	29

CHAPITRE III : EFFETS DE LA PRESSION HYDROSTATIQUE SUR LES

PROPRIETES MAGNETIQUES DES ALLIAGES $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$

ET $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

III-1 - Introduction	31
III-2 - Présentation des résultats expérimentaux	31
a - Variation de l'aimantation spontanée avec la pression	31
b - Variation de la température de Curie avec la pression	33
III-3 - Discussion des résultats	33
III-4 - Conclusion	40

CHAPITRE IV : ETUDE DE L'AIMANTATION A BASSE TEMPERATURE,

VARIATION THERMIQUE DE LA CHALEUR SPECIFIQUE ET DE

LA SUSCEPTIBILITE PARAMAGNETIQUE DES ALLIAGES

$\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ ET $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

IV-1 - Introduction	43
IV-2 - Variation thermique de l'aimantation à basse température	44
IV-3 - Variation thermique de la chaleur spécifique	48
IV-4 - Variation thermique de la susceptibilité	49
a - FeSi	49
- Résultats expérimentaux	49
- Discussion	53
b - Alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$	59
c - Les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$	60

CHAPITRE V : DISCUSSION DE L'ORIGINE DU MAGNETISME DANS LES

DEUX SERIES D'ALLIAGES

V-1 - Introduction	63
V-2 - $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$	63
V-3 - $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$	65

<u>CONCLUSION</u>	69
-------------------	----

APPENDICE : CALCUL DE LA SUSCEPTIBILITE ASSOCIEE A UNE PAIRE

DE SPINS DANS LE CAS D'UN ECHANGE ANISOTROPE

A-1 - Forme générale de la susceptibilité pour un polycristal 71

A-2 - Calcul des éléments de tenseur de la susceptibilité 72

REFERENCES 77

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

La première partie de ce travail a été l'automatisation d'un appareillage de mesures d'aimantation sous pression qui existait déjà au Laboratoire Louis Néel à Grenoble. Nous présentons dans le chapitre I le système à base de microprocesseur utilisé pour cette automatisation. Ce système est capable de dialoguer avec l'opérateur de façon à réaliser les conditions expérimentales (pression, champ magnétique, température) et fonctionne en centrale de mesures.

Nous avons ensuite entrepris l'étude des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$. Dans le deuxième chapitre nous présentons les résultats des mesures d'aimantation sous champ magnétique intense jusqu'à 150 kOe sur ces alliages. Bien que les composés extrêmes de ces deux séries d'alliages ne soient pas magnétiques, ils présentent une zone de concentration pour le ferromagnétisme. L'analyse des résultats des mesures magnétiques obtenues sous champ intense et sous pression nous permet de préciser les modèles adaptés à la description de leurs propriétés magnétiques.

Dans le troisième chapitre nous étudions l'effet de la pression hydrostatique sur les propriétés magnétiques des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ dans la zone de ferromagnétisme. L'effet de la pression présente la même variation pour l'aimantation spontanée et la température de Curie pour toute la gamme de concentrations. Ces résultats montrent le caractère de faible ferromagnétisme itinérant en accord avec les résultats des mesures magnétiques sous champ fort. Nous avons calculé dans ce modèle la pression critique pour la disparition du ferromagnétisme. Une pression de l'ordre de 40 kbar devrait être suffisante pour faire disparaître le ferromagnétisme des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ et de 180 kbar pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$.

Le chapitre IV est consacré à l'étude de la variation thermique des propriétés physiques de ces alliages. Tout d'abord, nous analysons la variation thermique de l'aimantation spontanée et discutons de la contribution des excitations collectives à l'aimantation à basse température. Nous présentons les résultats des mesures de chaleur spécifique qui nous permettent de confirmer le caractère itinérant des alliages étudiés. Nous avons effectué des mesures de susceptibilité paramagnétique sur tous les échantillons. En particulier, la variation thermique de la susceptibilité de FeSi a un comportement anormal. Nous avons montré que FeSi pourrait être le premier exemple de composé dont l'état fondamental est décrit par le modèle d'Anderson des valences résonantes. Ce modèle avait été introduit par Pauling en 1948 pour expliquer la structure cristallographique inhabituelle de FeSi.

Dans le chapitre V nous discutons des modèles permettant de comprendre l'origine du ferromagnétisme observé dans ces deux séries d'alliages.

CHAPITRE I

AUTOMATISATION DE L'APPAREILLAGE DE MESURES D'AIMANTATION SOUS PRESSION

I-1 - INTRODUCTION

L'étude des propriétés magnétiques, et en particulier de l'aimantation des matériaux sous pression présente un grand intérêt en physique du solide, car elle permet de relier ces propriétés aux distances interatomiques.

En vue de telles études, on peut appliquer la pression de deux façons : ou bien on utilise des cellules autonomes de type "clamp", dans lesquelles la pression est quasi-hydrostatique (WO 71, FLO 76), ou bien des cellules reliées en permanence à un générateur de pression en milieu fluide (BLO 65, ME 69, BA 70, BE 75). Dans la seconde méthode, la pression est hydrostatique mais l'installation est plus lourde et les changements de pression plus compliqués à basse température.

Les appareillages de mesure d'aimantation fonctionnant avec ces deux types de cellules utilisant essentiellement:

- la technique du magnétomètre à bobines vibrantes (ME 69),
- la méthode Faraday (WO 71, GU 74),
- la méthode d'extraction (BE 72).

Un appareillage de mesures d'aimantation sous pression hydrostatique jusqu'à 10 kbar par la méthode d'extraction existait déjà au Laboratoire Louis Néel, à Grenoble (BE 72). Il était intéressant que cet appareillage soit automatisé en raison du grand nombre de paramètres à contrôler et de la complexité des opérations de changement de pression.

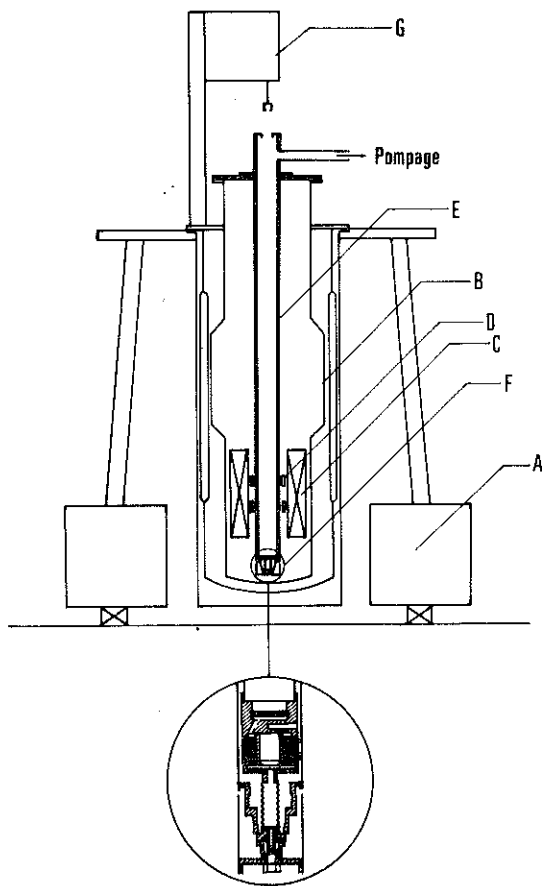


Figure I-1 : L'ensemble cryogénique

- A - support antivibratoire
 - B - cryostat à hélium liquide
 - C - bobine supraconductrice
 - D - bobines de mesure
 - E - calorimètre à température variable
 - F - échangeur thermique en cuivre poreux
 - G - extracteur
- (encart : détail de l'échangeur).

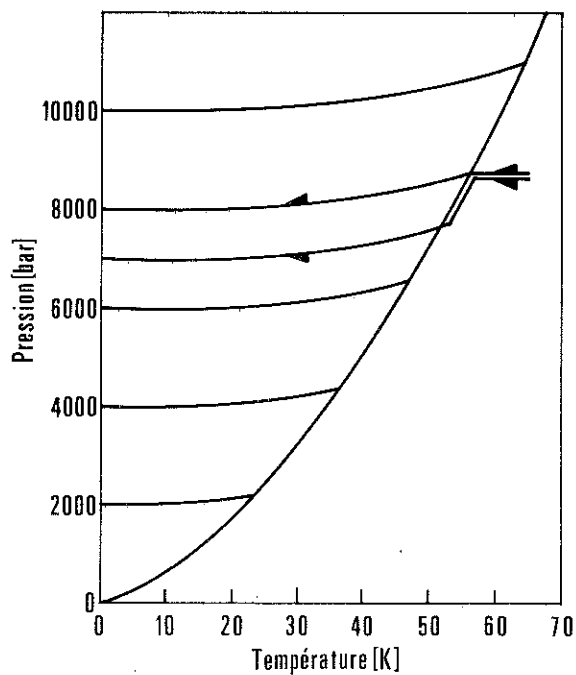


Figure I-2 : Diagramme de phase de l'hélium à basse température et réseau d'isochores.

I-2 - PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DU MONTAGE EXPERIMENTAL

L'ensemble expérimental comprend un cryostat à hélium liquide destiné à permettre le fonctionnement de la bobine supraconductrice, à l'intérieur duquel est placé un calorimètre muni à sa base d'un échangeur en cuivre poreux pour la régulation de la température (figure I-1).

a - La bobine supraconductrice

L'ensemble a été doté d'une nouvelle bobine supraconductrice permettant un champ maximum de 80 kOe en son centre. Celle-ci a été réalisée en fil Nb-Ti (Niomax-FM) à multi-filaments de Cryophysics S.A.

b - Mesures d'aimantation

La mesure d'aimantation est obtenue par l'extraction de l'échantillon entre deux bobines de mesure montées en série et opposition. La f.e.m. produite par extraction est intégrée par un voltmètre VIDAR 521. La sensibilité est de l'ordre de 2.10^{-3} u.e.m./digit.

c - Régulation de température

Le domaine de température s'étend de 4,2 à 300 K. Le système de régulation a été mis au point par Cornut du C.R.T.B.T. et est représenté sur la figure I-1. Il est basé sur la régulation de la température d'une masse poreuse en cuivre (poral) placée au fond d'un calorimètre à double paroi. Une pompe primaire établit un débit de flux gazeux au niveau de l'échantillon provenant de la vaporisation de l'hélium liquide au passage du poral. Les problèmes de régulation sont reportés sur une masse plus petite que celle de la chambre, pour laquelle les constantes de temps de mise en température sont très importantes.

d - La pression

La pression est obtenue à partir d'hélium comprimé par un compresseur à deux étages à membrane (NOVA-SUISS) jusqu'à 3.000 bar, et de 3.000 à 10.000 bar par un multiplicateur (NOVA-SUISS) agissant par réduction de volume. La chambre de haute pression en bronze-béryllium à paroi épaisse et son capillaire haute pression ont déjà été décrits (BE 72).

A basse température, l'hélium devient solide à faible pression. Le diagramme de phase de l'hélium d'après Spain et Segall (SP 71) est présenté figure I-2. Le changement de pression ne peut se faire que si l'hélium est fluide. Pendant l'établissement de la pression dans la chambre il faut donc chauffer l'ensemble chambre et capillaire à une température suffisante. Pour cette opération, on dispose de la régulation de température agissant sur le poral et des enroulements chauffants sur le capillaire et les deux extrémités de la chambre. Après avoir établi la pression, on refroidit la chambre à pression constante jusqu'à solidification de l'hélium dans celle-ci. Pour cela, on maintient un gradient de température en coupant le four inférieur. Lorsque tout l'hélium est solide dans la chambre, on coupe l'alimentation des fours, le refroidissement de l'hélium solide se poursuit alors à volume constant.

I-3 - AUTOMATISATION DU MONTAGE EXPERIMENTAL

a - Choix de la méthode

L'automatisation doit être capable d'établir les conditions expérimentales (champ magnétique, température et pression), de commander l'extraction pour la mesure d'aimantation et de se comporter en centrale de mesure.

Pour accomplir ces fonctions on avait le choix entre l'utilisation d'un ordinateur et le développement d'un système à base de microprocesseurs, solution moins onéreuse, mais demandant un travail de mise au point plus important. Un microprocesseur est un processeur micro-miniaturisé qui incorpore toutes les fonctions de l'unité centrale d'un ordinateur classique (SA 76, ZA 77). Cette deuxième solution est bien adaptée à notre problème, car une grande vitesse d'exécution ou de calcul n'est pas nécessaire (les constantes de temps liées au montage expérimental étant importantes).

b - Organisation du système de contrôle à base de microprocesseurs

Pour obtenir un système, il faut ajouter de nombreux composants au microprocesseur proprement dit. En particulier : une mémoire externe pour les programmes et pour les données, des entrées-sorties permettant de communiquer avec le monde extérieur et éventuellement d'autres composants suivant les applications.

Un tel système exécute, comme tout ordinateur, une séquence d'instructions dite "programme" qui réside dans la mémoire sous forme binaire. Dans notre système, le programme comprend les séquences suivantes :

- 1 - dialogue avec l'opérateur pour définir les conditions de mesure et du mode de fonctionnement,
- 2 - pilotage des régulations pour établir ces conditions,
- 3 - mesure et impression des résultats,
- 4 - réinitialisation du système en cas de divergence des régulations.

c - Synoptique général

Le synoptique général du programme est présenté figure I-3. Le programme est capable de réaliser un cycle de mesure en température variable sous champ et pression fixes (isotherme) ou à champ variable, à température et pression fixes (isochamp). Dans les deux cas, le microprocesseur demande par l'intermédiaire du téléimprimeur les informations concernant les gammes ou les valeurs des différents paramètres à réguler. Le système réalise les conditions expérimentales pour la première série de mesures (régulation de pression, température et champ) et commande la mesure et l'impression des valeurs de ces paramètres expérimentaux. Pour les mesures d'aimantation il commande alors une série d'extractions dont le signal électrique correspondant est intégré par le voltmètre (VIDAR 521). Avant chaque extraction une mesure de zéro est faite. Les valeurs de l'aimantation et du zéro correspondantes sont imprimées sur deux colonnes. Pour d'autres types de mesures (résistivité, susceptibilité, ...) une simple lecture de voltmètre suivie de l'impression du résultat est commandée. Suivant le mode de fonctionnement, les nouvelles conditions de température ou de champ magnétique sont réalisées. Ce cycle de mesure continue jusqu'en fin de gamme de température ou de champ magnétique.

d - Synoptique particulier au changement de pression

Pour des questions d'investissement financier, on a décidé de garder un certain nombre de commandes manuelles (ouverture et fermeture de la vanne haute pression isolant compresseur et multiplicateur, ouverture et fermeture de la fuite d'huile pour les opérations de changement de pression du multiplicateur). Pour effectuer ces opérations, on attend les indications sur le téléimprimeur.

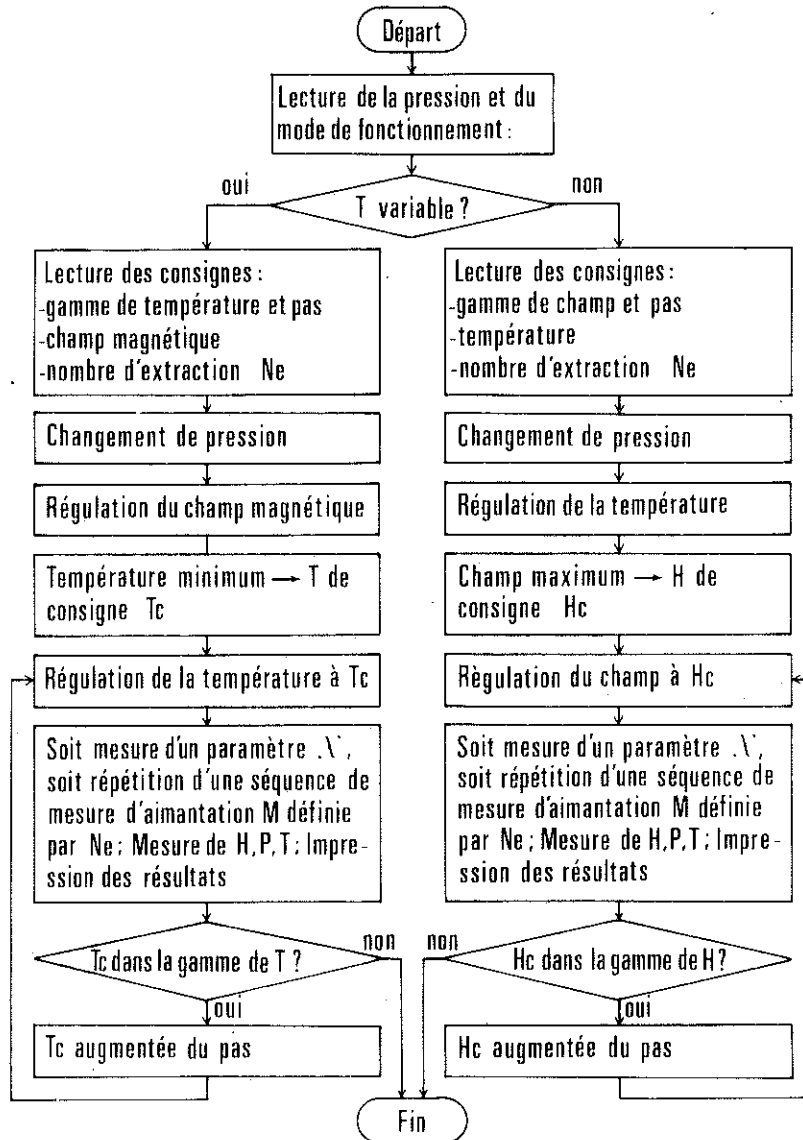


Figure I-3 : Schéma synoptique général du programme d'automatisation.

On a schématisé figure I-4, les différents types de changements de pression par un cycle aller-retour dans le plan pression-température du diagramme de phase de l'hélium. Pour changer la pression en milieu fluide figure I-4a, le système interdit de traverser la courbe d'équilibre de phase. Dans ce cas, il commande la montée en pression pendant la variation thermique.

La variation simultanée de la pression et de la température n'est pas possible lorsqu'on baisse la pression. En effet, cette dernière opération étant manuelle, il est difficile de contrôler des oscillations thermiques éventuelles qui pourraient produire la solidification de l'hélium. On a choisi de faire varier successivement la pression puis la température.

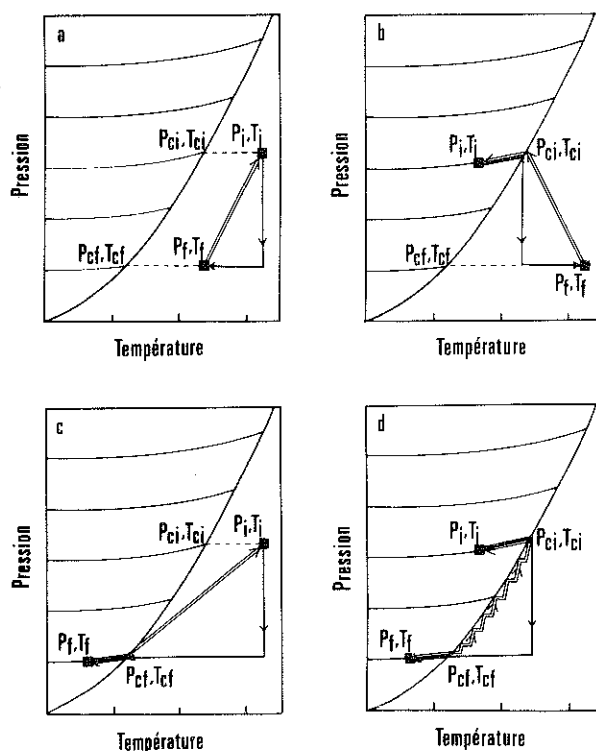


Figure I-4 : Schémas représentant les différents types de changements de pression possibles pour des cycles aller-retour $(P_i - T_i \rightleftharpoons P_f - T_f)$.

Les schémas (I-4b,c,d) montrent des cycles traversant la courbe d'équilibre de phase. Dans les deux derniers, le microprocesseur minimise la longueur du trajet, donc la consommation d'hélium correspondante.

Le programme est capable de déterminer la température et la pression critique de solidification correspondant aux extrémités du trajet ($P_i - T_i$, $P_f - T_f$). Ces paramètres sont appelés ($P_{ci} - T_{ci}$, $P_{cf} - T_{cf}$). L'organigramme de la figure I-5 explicite le sous-programme de changement de pression. La caractérisation des différents cycles est obtenue par la comparaison entre eux des différents paramètres ($P_i - T_i$, $P_{ci} - T_{ci}$, $P_f - T_f$, $P_{cf} - T_{cf}$).

TABEAU I : Définition des paramètres de l'algorithme de changement de pression

T_i	température initiale de la chambre,
P_i	pression initiale donnée par le générateur de pression
T_f	température finale de la chambre
P_f	pression finale dans la chambre
T_{ci}	température de solidification de l'hélium correspondant à T_i
P_{ci}	pression de solidification à la température T_{ci}
T_{cf}	température de solidification de l'hélium correspondant à P_f
P_{cf}	pression de solidification de l'hélium à la température T_{cf}
T_m	température de la chambre mesurée à un instant
P_m	pression donnée par le générateur de pression à un instant
T_{cm}	température de solidification de l'hélium à la pression P_m
P_{cm}	pression de solidification de l'hélium à la température T_{cm}

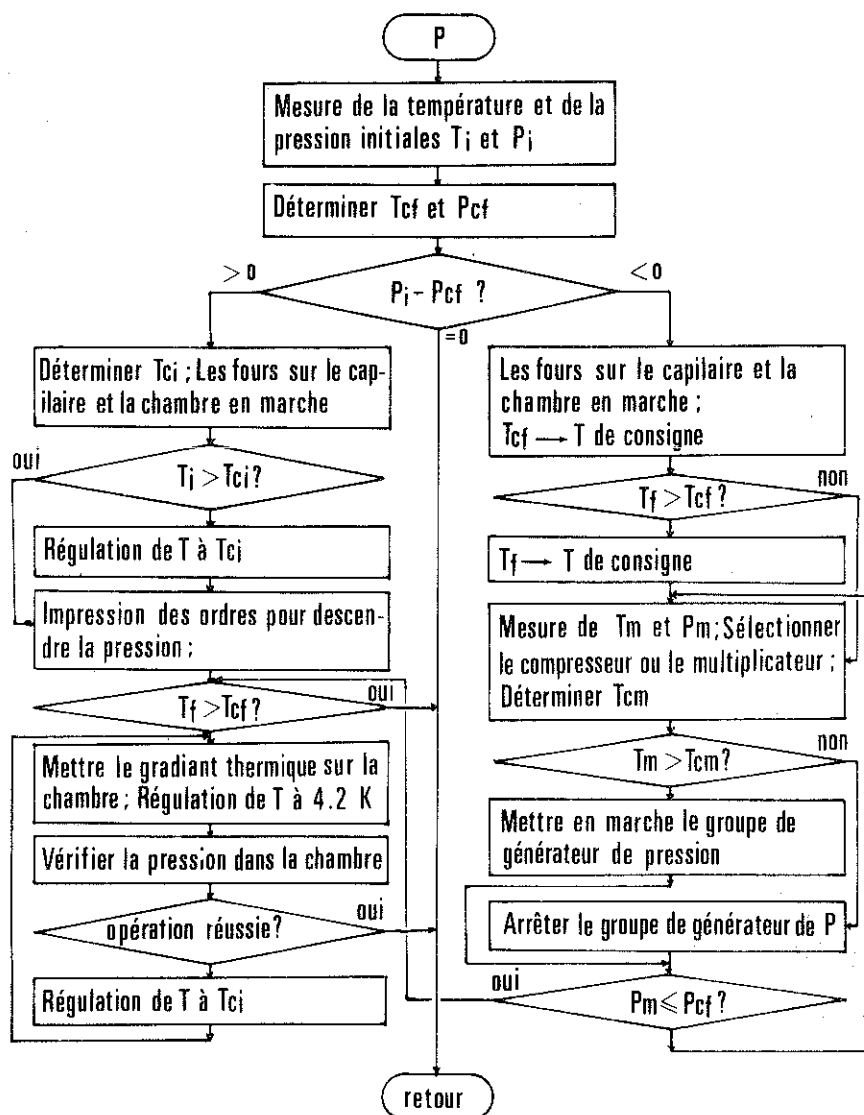


Figure I-5 : Schéma synoptique du sous-programme de changement de pression.

e - Description des différents organes de mesure et de contrôle du système

L'ensemble est schématisé figure I-6.

mesure et régulation de la température

La température est mesurée et régulée au niveau du poral par une diode AsGa. La mesure de la température de la chambre est faite à l'aide de deux résistances de carbone et de platine placées près de l'échantillon, mais à la pression ambiante.

Les points d'étalonnage de la diode AsGa (espacés de 0,2 degré) sont mis dans une mémoire de type EPROM 2716. La température de consigne donnée par le microprocesseur est convertie en tension à partir de la table d'étalonnage et à l'aide d'un convertisseur Digital/Analogique.

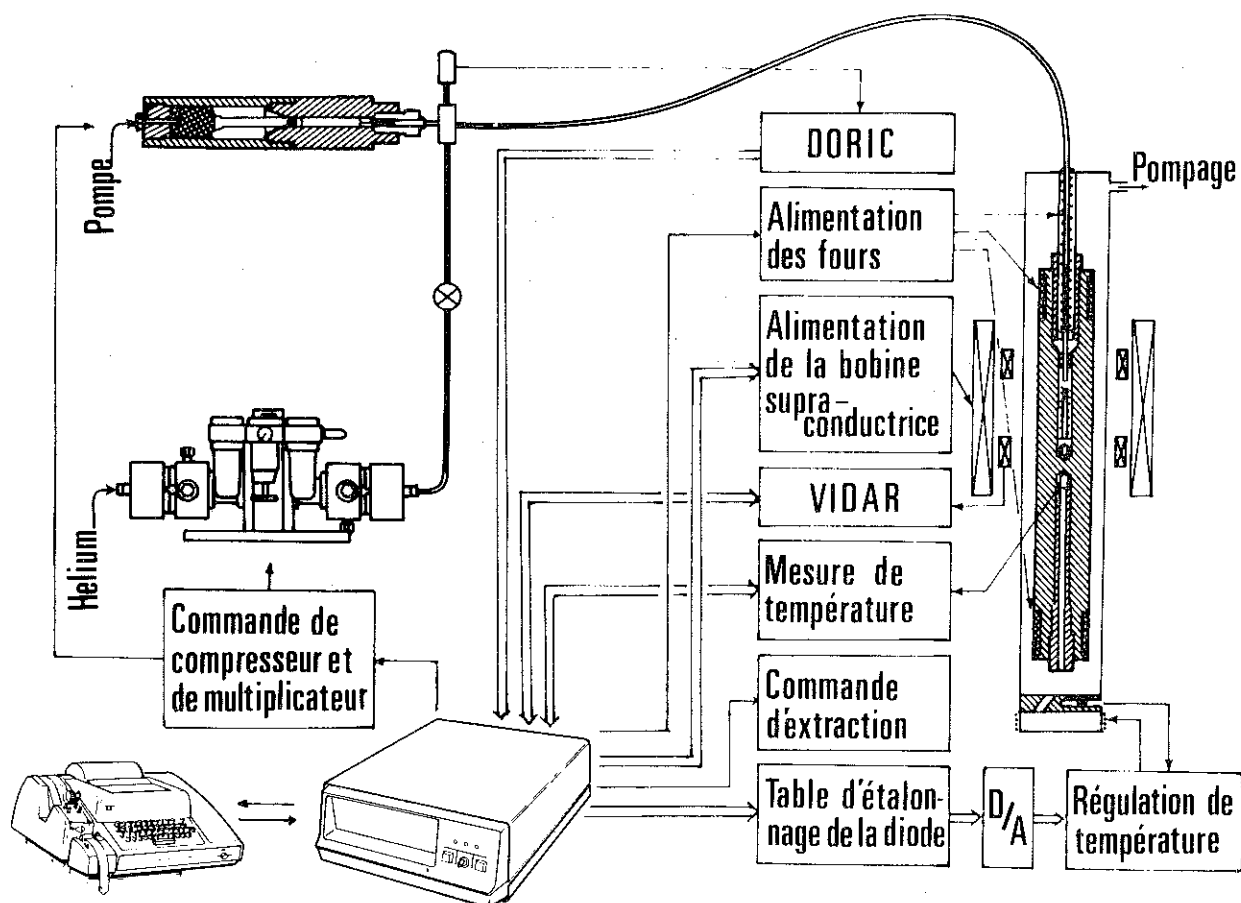


Figure I-6 : Ensemble expérimental et organes de mesure et de contrôle.

Cette tension est appliquée à la régulation de température programmable (Cryophysics modèle 3010II). La résistance de la sonde de platine est traduite directement en degré Kelvin grâce au voltmètre NEWPORT type 260PK. On déduit la température indiquée par la sonde de carbone de la valeur de sa résistance à partir de la formule (CLE 52) :

$$\frac{1}{T} = A \log R + B + \frac{C}{\log R} \quad (I-1)$$

où R est la résistance électrique de la sonde de carbone, A, B, C sont des coefficients déterminés expérimentalement.

Pour effectuer cette mesure on a réalisé un voltmètre contenant une unité de calcul qui donne directement la température en degrés K.

mesure de la pression

Les jauges de manganine (jauge active et jauge passive, jouant le rôle de compensation thermique) sont incluses dans les branches d'un pont de Wheatstone. La valeur de la résistance de la jauge active varie linéairement avec la pression appliquée et déséquilibre le pont. La tension de déséquilibre est traduite en pression et affichée directement en bar sur un appareil DORIC DS100 T2.

alimentation de la bobine supraconductrice

L'alimentation de la bobine supraconductrice fonctionne soit en régulation de tension lors des variations de champ magnétique soit en régulation de courant lorsque le champ magnétique doit être maintenu constant. Les deux consignes de régulation peuvent être soit affichées manuellement soit délivrées par le microprocesseur.

le système de microprocesseur

Le système de pilotage et de mesure est basé sur un microprocesseur Motorola M6800 à 8 bits. Il a été mis au point sur un outil de développement "M6800 EXORciser" qui permet de réaliser le programme et de le tester sur l'expérience. Cet outil est couplé avec un "flopy-disk" qui permet de stocker les informations (programme, données, ...) sur des disques magnétiques souples et joue le rôle de mémoire externe pour piloter l'expérience. Il possède 16 K mémoires vives, des interfaces pour le téléimprimeur et pour le "flopy-disk" et 2 cartes d'entrée-sortie pour les mesures et les commandes. Leur capacité est de 36 bits de sortie et 64 bits d'entrée respectivement. Le système réalisé est un prototype. Par la suite, on compte remplacer l'"EXORciser" et le "flopy-disk" par un système spécialisé.

CH A P I T R E I I

LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES EN CHAMP FORT

DES ALLIAGES $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ ET $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

II-1 - INTRODUCTION

L'origine du magnétisme dans les métaux de transition 3d est encore imparfaitement connue et n'a pas donné lieu à une interprétation théorique entièrement satisfaisante. Pour obtenir des informations sur ce problème, de nombreuses études ont été réalisées sur des solutions solides du type A_xB_{1-x} , où A est un élément magnétique et B un élément non magnétique. Des alliages très étudiés ont été par exemple $\text{Ni}_x\text{Cu}_{1-x}$ (PE 70) et $\text{Ni}_x\text{Pt}_{1-x}$ (AL 74).

D'autres solutions solides A_xB_{1-x} , bien que d'un type plus rare, obtenues à partir d'éléments ou de composés définis A et B non magnétiques présentent une zone de concentration pour le ferromagnétisme et deux concentrations critiques. C'est le cas des alliages pseudo-binaires $(\text{FeSi})_x(\text{CoSi})_{1-x}$ et $(\text{FeTi})_x(\text{CoTi})_{1-x}$.

Les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ forment des solutions solides désordonnées de structure cubique B20 à toute concentration (PE 58, WA 63). Les atomes de silicium sont ordonnés et les atomes de fer et cobalt désordonnés. FeSi est paramagnétique mais avec une susceptibilité qui croît avec la température et passe par un maximum autour de 500 K (FO 38, WA 63, JA 67). Cependant des expériences de diffraction des neutrons polarisés (WA 63) et d'effet Mössbauer (WE 65) ont montré qu'il n'y a pas d'ordre magnétique à basse température pour FeSi. CoSi est diamagnétique avec une susceptibilité indépendante de la température (WI 66).

D'après les mesures magnétiques (SH 72, WE 72, BE 77) la zone d'existence du ferromagnétisme s'étend de $x = 0,2$ à $x = 0,95$. Le moment magnétique est maximum, de l'ordre de $0,2 \mu_B$ par formule pour $x \approx 0,5$.

Les études d'effet Mössbauer (WE 66, KA 72, KA 76) donnent un moment inférieur à $0,1 \mu_B$ sur les atomes de Fe, pour toute la gamme de concentration où le ferromagnétisme existe, et inférieur à $0,05 \mu_B$ pour $x < 0,2$.

Kawarazaki et al (KA 76) ont interprété leurs expériences de résonance magnétique nucléaire dans le cadre d'un modèle dans lequel les moments magnétiques sont portés par les atomes de Co possédant un atome de Fe parmi les atomes de transition les plus proches voisins et où le moment magnétique sur un atome de cobalt est proportionnel au champ hyperfin sur celui-ci. D'autre part, le moment sur le Fe est du même ordre de grandeur que le moment sur le Co. Ainsi, des expériences de diffusion de neutrons polarisés ont montré que pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ le moment sur le Fe est de l'ordre de $0,2 \mu_B$ et le moment sur le Co de $0,12 \mu_B$ (ME 76).

Les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ ont la structure cubique CsCl. TiCo et TiFe sont paramagnétiques (DE 67, AS 73). La zone ferromagnétique s'étend de $x = 0,4$ à $x = 0,8$ (DE 67, AS 73, HI 73, BE 78). Le moment magnétique par atome de Fe ou Co est au maximum de $0,16 \mu_B$ pour x de l'ordre de $0,5$ (AS 73). Les expériences de diffusion de neutrons ont permis d'attribuer un moment de l'ordre de $0,15 \mu_B$ aux sites de Co et Fe et de l'ordre de $0,03 \mu_B$ aux sites de Ti (PI 68). Par contre, d'après les expériences d'effet Mössbauer de Swartzendruber et Bennet (BE 67, BE 68, SW 68) et de Massenet (MA 78) le champ hyperfin sur les atomes de Fe est très petit. Ceci montre que les moments magnétiques sont portés par les atomes de Co, ou bien que les moments sur le Fe sont distribués de façon inhomogène.

Nous nous sommes proposés de caractériser les 2 concentrations critiques de ces deux séries d'alliages faiblement ferromagnétiques à l'aide de mesures sous champ intense et sous haute pression. Nous avons discuté nos résultats dans le cadre de la théorie de Landau du faible ferromagnétisme.

II-2 - LA THEORIE DE LANDAU POUR L'APPARITION DU MAGNETISME ET LE MODELE DU FAIBLE FERROMAGNETISME ITINERANT

Dans la théorie de Landau (LA 58) pour des matériaux de faible aimantation on peut développer la fonction énergie libre en fonction des puissances paires de l'aimantation sous la forme :

$$F = F_0 + \frac{A(T,C)}{2} M^2(H,T,C) + \frac{B(T,C)}{4} M^4(H,T,C) - HM(H,T,C) \quad (II.1)$$

Ce développement est valable à toute température dans le cas où l'aimantation est homogène et non saturée. En minimisant l'énergie libre par rapport à l'aimantation on obtient la relation :

$$M^2(H,T,C) = - \frac{A(T,C)}{B(T,C)} + \frac{1}{B(T,C)} \frac{H}{M(H,T,C)} \quad (II.2)$$

Par ailleurs, Edwards et Wohlfarth (ED 68) ont obtenu une expression analogue à l'équation II.2 à partir de développements limités réalisés sur les équations de Stoner :

$$M^2(H,T,C) = M^2(0,T,C) + 2\chi(0,0,C) M(0,0,C)^2 \frac{H}{M(H,T,C)} \quad (II.3)$$

La théorie de Landau des transitions de phase prévoit que si $B(T,C)$ est positif il y a une transition du second ordre donnée par la condition $A(T,C) = 0$. Cette condition se traduit dans la relation II.3 par l'annulation de l'aimantation spontanée.

Dans la formule II.3, $\chi(0,0,C)$ est la susceptibilité ferromagnétique initiale (limite de $\chi(H,T,C)$ lorsque H et T tendent vers zéro). Dans la théorie du faible ferromagnétisme itinérant cette susceptibilité est renforcée d'échange (ST 38) :

$$\chi(0,0,C) = \mu_B^2 \frac{N N(E_F)}{UN(E_F) - 1} \quad (II.4)$$

Dans cette expression $N(E_F)$ est la densité d'état au niveau de Fermi, U est le terme d'énergie de répulsion coulombienne, N est le nombre d'atomes.

A la transition magnétique le critère de Stoner est vérifié ($UN(E_F) = 1$) et $\chi(0,0,C)$ diverge. Edwards et Wohlfarth ont obtenu des relations entre l'aimantation spontanée $M(0,0)$, la température de Curie T_c et la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ (ED 68) :

$$\frac{M^2(0,0,C)}{N^2 \mu_B^2} = \frac{4\pi^2}{3} k_B^2 T_c^2 N^2(E_F) \frac{v_1^2 - v_2^2}{v_1^2 - \frac{v_2^2}{3}} \quad (\text{II.5})$$

$$\chi(0,0,C) = \frac{8N^3 \mu_B^4 N^3(E_F)}{M^2(0,0,C)} \frac{1}{v_1^2 - \frac{v_2^2}{3}} \quad (\text{II.6})$$

$$\text{où } v_m = \frac{1}{N(E_F)} \left. \frac{d^m N(E)}{dE^m} \right|_{E=E_F}$$

Des relations II.5 et II.6 on déduit lorsque les paramètres de bande varient peu avec la concentration :

$$M(0,0,C) \sim T_c \sim \frac{1}{\sqrt{\chi(0,0,C)}} \quad (\text{II.7})$$

D'autre part, le produit $\chi(0,0) M^2(0,0)$ ne dépend plus du facteur de renforcement de Stoner $\alpha = \frac{1}{UN(E_F) - 1}$ qui est le paramètre critique principal.

Donc dans la théorie du faible ferromagnétisme les tracés de $M^2(H,T,C)$ en fonction de $H/M(H,T,C)$ (tracés d'Arrott) ont une pente ($1/B$, paramètre de Landau) qui doit peu varier dans le voisinage de la concentration critique, si les paramètres de bande près du niveau de Fermi varient peu avec la concentration.

II-3 - PREPARATION DES ECHANTILLONS

La plupart des échantillons $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ ont été préparés par J. Wernick de "Bell Telephone Laboratories" par fusion au four à induction dans des creusets en alumine des éléments en composition stoechiométrique (WE 65, WE 66).

Nous avons préparé les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ par fusion en lévitation. Nous avons réalisé un recuit sous vide à 950°C pendant deux jours suivi d'un refroidissement, à un taux voisin de 30 degrés/heure. Les propriétés magnétiques des échantillons (aimantation spontanée, température de Curie, homogénéité,...) sont très sensibles au temps de recuit et à la vitesse de refroidissement.

II-4 - MESURE D'AIMANTATIONS SOUS CHAMP FORT

Shinoda avait mesuré l'aimantation des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ jusqu'à 2 kOe (SH 72) et Asada et Nosé celle des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ jusqu'à 15 kOe (AS 73). Nous donnons ici les résultats des mesures d'aimantation sous champ magnétique intense jusqu'à 150 kOe réalisées au Service National des Champs Intenses à Grenoble.

a - Mesures à température constantes pour diverses concentrations

Nous donnons, figures II-1 et II-2, les courbes d'aimantation sous champ fort $M(H)$ à température constante de 4,2 K et pour toute la gamme de concentrations pour les deux séries d'alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$. Sous champ fort, on n'obtient ni saturation ni variation linéaire en fonction du champ. Cette allure de courbe peut être considérée comme caractéristique de faible ferromagnétisme itinérant. La susceptibilité initiale et la susceptibilité sous champ fort des alliages sont plus fortes pour les alliages de concentration $x < 0,5$ (courbes A à D pour la figure II-1, courbes A à F pour la figure II-2) que pour $x > 0,5$. Pour ces derniers alliages, l'aimantation varie de façon plus linéaire sous champ et correspond à une susceptibilité faible comme dans le cas des moments localisés.

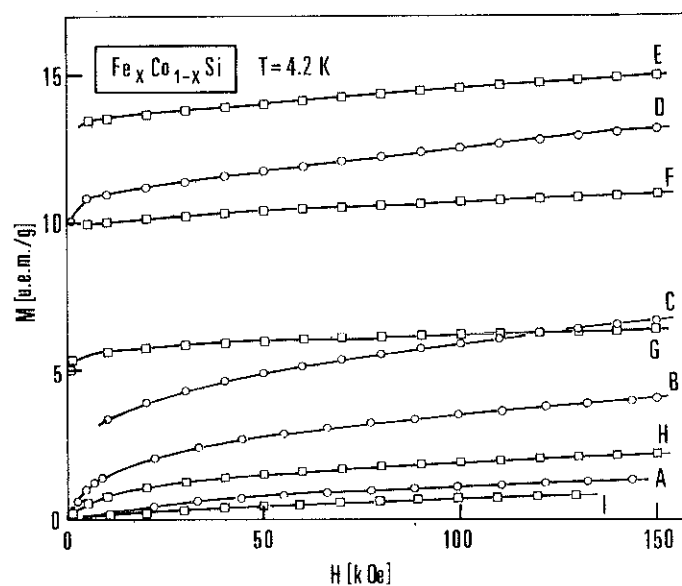


Figure II-1 : Aimantation M en fonction du champ H pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ à 4,2 K ;
 $x = 0,1$ (A) ; $0,2$ (B) ;
 $0,3$ (C) ; $0,5$ (D) ;
 $0,65$ (E) ; $0,8$ (F) ;
 $0,9$ (G) ; $0,95$ (H) ;
 $0,98$ (I).

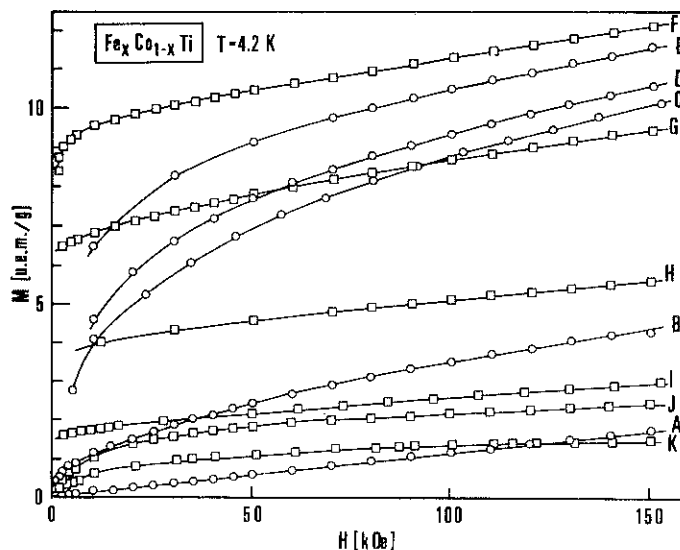


Figure II-2 : Aimantation M en fonction du champ H pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ à 4,2 K ; $x = 0,0$ (A) ; 0,23 (B) ; 0,37 (C) ; 0,40 (D) ; 0,43 (E) ; 0,5 (F) ; 0,55 (G) ; 0,67 (H) ; 0,73 (I) ; 0,83 (J) ; 1,0 (K).

Figures II-3 et II-4, nous présentons les tracés d'Arrott obtenus à 4,2 K, pour toute la gamme de concentrations et pour les deux séries d'alliages. En première approximation le tracé en champ fort correspondant à une concentration donnée est linéaire comme prévu dans la théorie de Landau. Les déviations à la linéarité qui apparaissent en champ plus faible pour des alliages paramagnétiques sont certainement liées à des inhomogénéités magnétiques. La pente de ces tracés varie beaucoup en fonction de la concentration comme on peut le constater dans l'encart des figures II-3 et II-4. Cette situation est tout à fait différente de celle que l'on peut observer pour les alliages isoélectroniques $\text{Pt}_x\text{Ni}_{1-x}$ (AL 74). Les alliages étudiés n'étant pas isoélectroniques la forme de la bande "d" et son remplissage dépendent beaucoup de la concentration, ce qui explique la forte variation observée pour le coefficient B . D'après la formule II.5, on peut penser que la variation de $1/B$ est similaire à la variation de $N(E_F)$ en fonction de la concentration. Ceci montre que la transition magnétique est directement liée à la variation rapide de $N(E_F)$ avec la concentration.

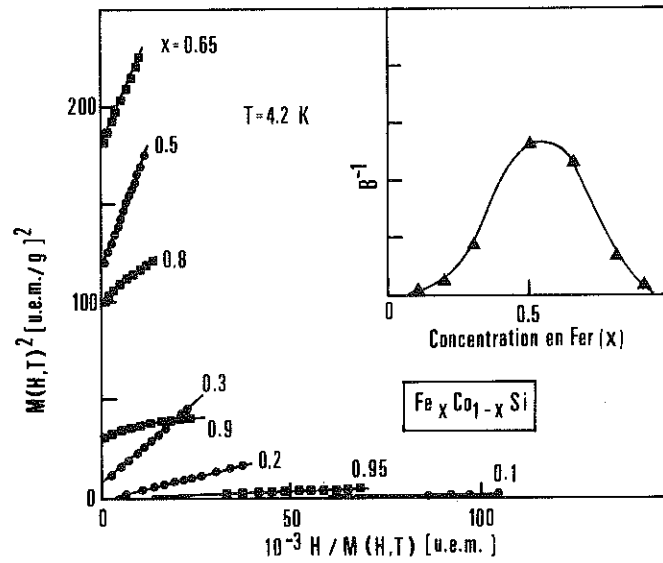


Figure II-3 : Tracés d'Arrott à 4,2 K pour divers alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$.
Encart : pente ($1/B$) des tracés d'Arrott en fonction de la concentration en Fe.

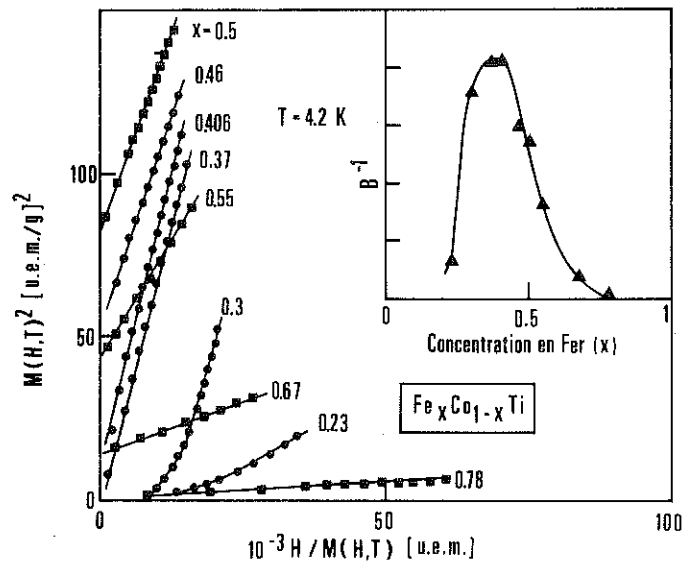


Figure II-4 : Tracés d'Arrott à 4,2 K pour divers alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$.
Encart : pente ($1/B$) des tracés d'Arrott en fonction de la concentration en Fe.

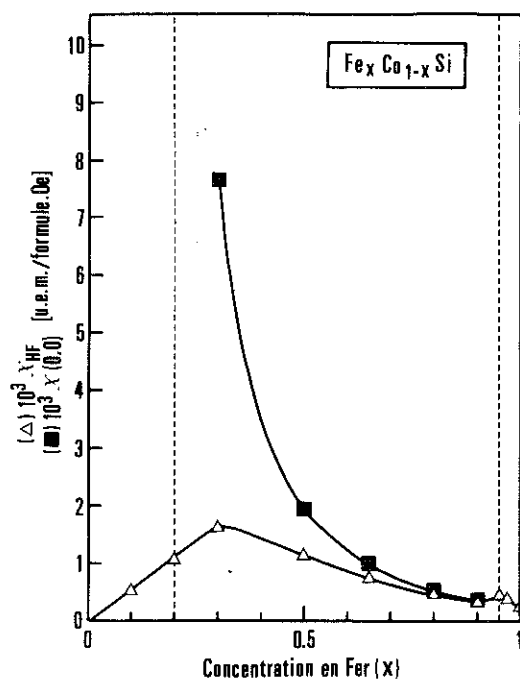


Figure II-5 : Variation en fonction de la concentration de la susceptibilité initiale ferromagnétique ($\blacksquare$) et de la susceptibilité sous champ fort de 150 kOe (Δ) des alliages Fe_xCo_{1-x}Si

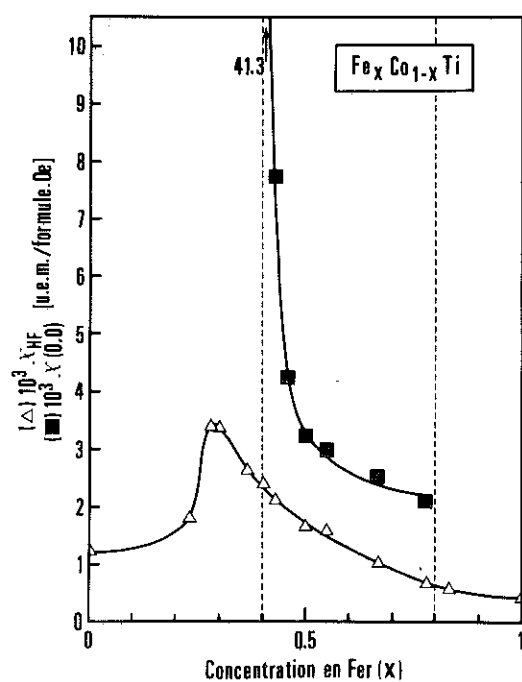


Figure II-6 : Variation en fonction de la concentration de la susceptibilité initiale ferromagnétique ($\blacksquare$) et de la susceptibilité sous champ fort de 150 kOe (Δ) des alliages Fe_xCo_{1-x}Ti.

Figures II-5 et II-6, on a représenté les susceptibilités sous champ fort, à 150 kOe, χ_{HF} , des deux séries d'alliages à 4,2 K ainsi que la susceptibilité initiale ferromagnétique $\chi(0,0,C)$ déduite de la pente des tracés d'Arrott. La susceptibilité sous champ fort présente un maximum à une concentration proche de la concentration critique relative aux alliages riches en cobalt tandis que la susceptibilité initiale $\chi(0,0,C)$ diverge dans cette zone de concentration. Le comportement de χ_{HF} et $\chi(0,0,C)$ peut être dû à l'augmentation du facteur de renforcement de Stoner et de la densité d'état au niveau de Fermi près de la transition. Par contre près de la concentration critique du côté riche en Fe, la susceptibilité ne présente pas de maximum, ce qui indique une transition d'un caractère plus localisé.

On remarque par ailleurs que $\chi(0,0,C)$ tend vers χ_{HF} pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Si$ riches en Fe ; par contre le rapport $\frac{\chi(0,0,C)}{\chi_{HF}}$ reste compris entre 2 et 10 pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Ti$ ferromagnétiques. Ceci indique que les alliages $Fe_xCo_{1-x}Si$ concentrés en Fe ont un caractère plus localisé que les mêmes alliages de la série $Fe_xCo_{1-x}Ti$.

b - Mesures sous champ fort à température variable

Pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Si$ nous présentons des tracés d'Arrott à température variable obtenus pour les alliages paramagnétiques $Fe_{0,2}Co_{0,8}Si$ (figure II-7) et $Fe_{0,98}Co_{0,02}Si$ (figure II-8), ainsi que pour l'alliage ferromagnétique $Fe_{0,5}Co_{0,5}Si$ (figure II-9). On constate que pour un alliage donné la pente de la partie champ fort de ces tracés varie peu avec la température.

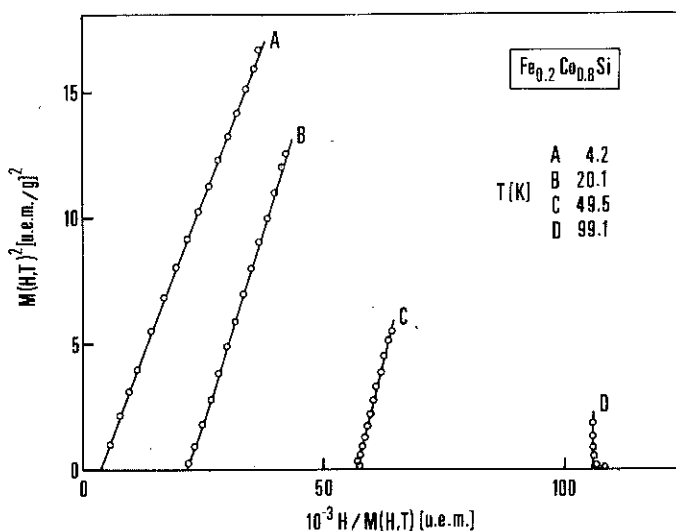


Figure II-7 : Tracés d'Arrott relatifs à $Fe_{0,2}Co_{0,8}Si$ pour diverses températures.

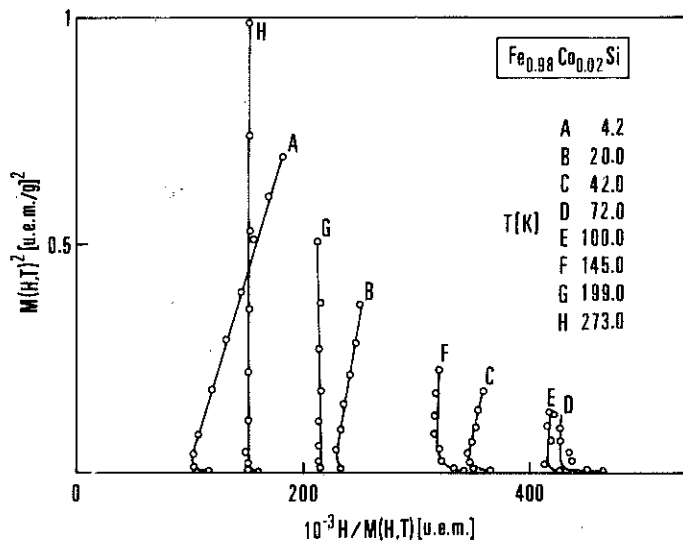


Figure II-8 : Tracés d'Arrott relatifs à $\text{Fe}_{0,98}\text{Co}_{0,02}\text{Si}$ pour diverses températures.

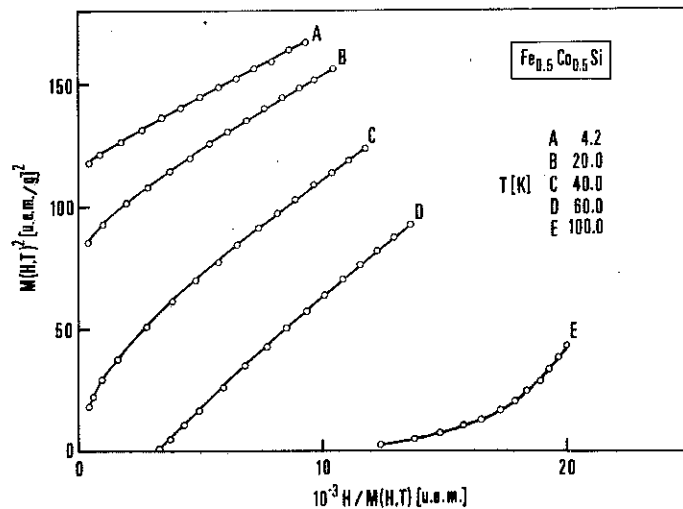


Figure II-9 : Tracés d'Arrott relatifs à $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ pour diverses températures.

Il en est de même pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ pour lesquels nous donnons les tracés d'Arrott relatifs aux alliages paramagnétiques $\text{Fe}_{0,23}\text{Co}_{0,67}\text{Ti}$ (figure II-10) et $\text{Fe}_{0,83}\text{Co}_{0,17}\text{Ti}$ (figure II-11) ainsi qu'à l'alliage ferromagnétique $\text{Fe}_{0,55}\text{Co}_{0,45}\text{Ti}$ (figure II-12). Ceci est en accord avec la théorie du faible ferromagnétisme itinérant, la température étant une perturbation plus faible que la concentration, car elle ne modifie pas le remplissage de la bande d.

On appelle $I(T)$ l'intersection de la droite représentant M^2 en fonction de H/M à la température T avec l'axe M^2 . La température de Curie déduite des mesures sous champ fort est définie par $I(T_c) = 0$. Nous avons également déterminé une valeur de la température de Curie à partir des courbes de la susceptibilité initiale en fonction de la

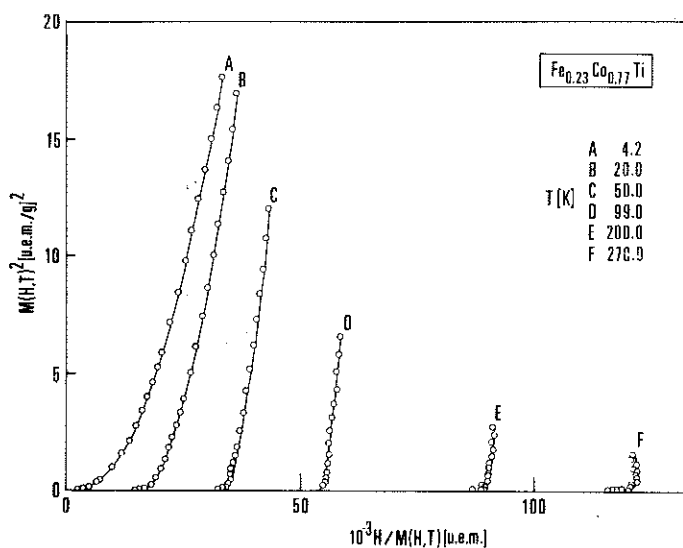


Figure II-10 : Tracés d'Arrott relatifs à $\text{Fe}_{0.23}\text{Co}_{0.77}\text{Ti}$ pour diverses températures.

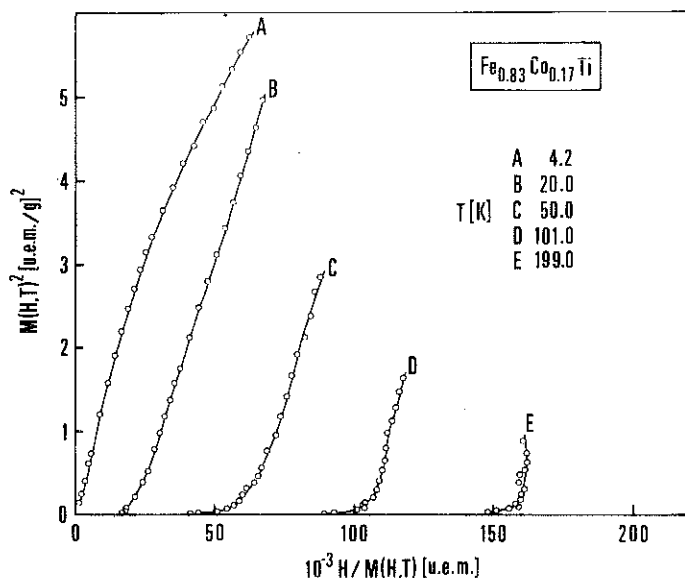


Figure II-11 : Tracés d'Arrott relatifs à $\text{Fe}_{0.83}\text{Co}_{0.17}\text{Ti}$ pour diverses températures.

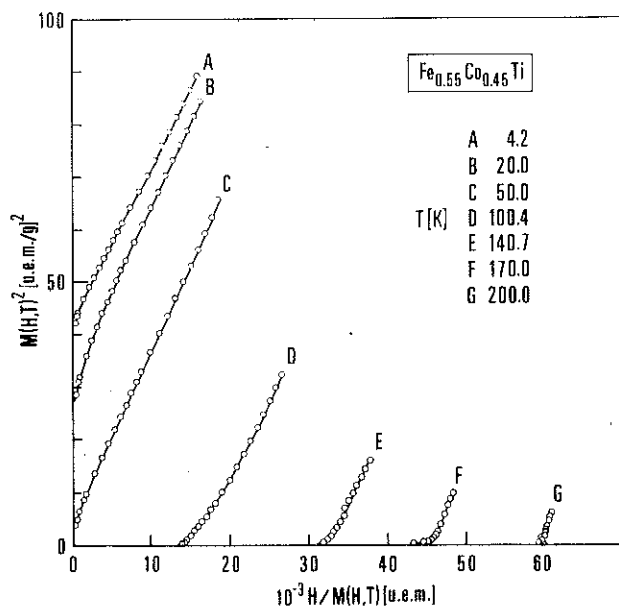


Figure II-12 : Tracés d'Arrott relatifs à $\text{Fe}_{0.55}\text{Co}_{0.45}\text{Ti}$ pour diverses températures.

température. On a choisi pour T_c la température correspondant au point d'inflexion de ces courbes. La détermination de T_c par cette méthode est imprécise. Par contre elle permet une bonne détermination de dT_c/dp (où p est la pression) car comme nous le verrons chapitre III, les courbes de variation thermique de la susceptibilité sous différentes pressions se déduisent les unes des autres par translation. A titre d'exemple on donne figure II-13 de telles courbes obtenues pour les alliages ferromagnétiques $Fe_xCo_{1-x}Ti$. Pour mesurer la susceptibilité initiale de l'échantillon on utilise un dispositif comportant des bobines primaire et secondaire placés hors de la chambre haute pression. La susceptibilité initiale est déduite de la valeur de la composante de la tension secondaire en quadrature avec le courant primaire. L'appareil de mesure est un détecteur synchrone type Princeton Applied Research 129A.

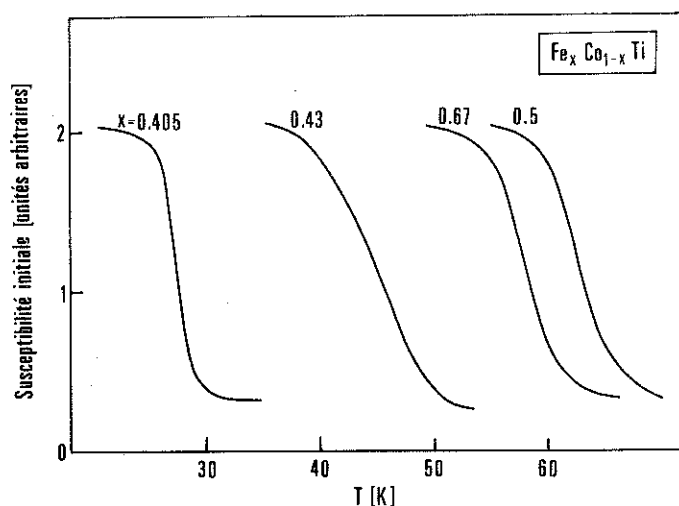


Figure II-13 : Susceptibilité initiale en fonction de la température pour divers alliages $Fe_xCo_{1-x}Ti$.

Nous avons reporté tableaux II-1 et II-2 pour les deux séries d'alliages : l'aimantation spontanée, la température de Curie, la susceptibilité initiale ferromagnétique. Dans ces tableaux, on indique à la fois les valeurs de la température de Curie définies à partir des tracés d'Arrott et à partir des mesures de susceptibilité initiale. On remarque une différence importante entre ces deux valeurs pour les températures de Curie assez faibles, ce que nous attribuons à des inhomogénéités magnétiques à faible champ. Figures II-14 et II-15 nous présentons pour les deux séries d'alliages l'aimantation spontanée et la température de Curie en fonction de la concentration.

Tableau II-1 : Propriétés magnétiques des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$

x (% at de Fe)	0,3	0,5	0,65	0,9	0,9
T_c (K)					
à partir des mesures de susceptibilité	8,8	43,5	-	37,4	21,3
à partir des tracés d'Arrott	10	51,8	66	46,9	30,8
$M(0,0)$ (u.e.m./formule)	272	928,5	1153	868,3	505,5
$\frac{M(0,0)}{T_c}$	27,2	17,9	17,5	18,5	16,4
$10^3 \chi(0,0)$ (u.e.m./formule)	7,69	1,88	0,99	0,54	0,36

Tableau II-2 : Propriétés magnétiques des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

x (% at de Fe)	0,405	0,43	0,5	0,67	0,78
T_c (K)					
à partir des mesures de susceptibilité	27,3	44,7	62,6	58,8	20,1
à partir des tracés d'Arrott	13,9	33,9	55	39,2	8,4
$M(0,0)$ (u.e.m./formule)	317	686	993	435	113
$\frac{M(0,0)}{T_c}$	22,8	20,2	18,0	11,1	13,4
$10^3 \chi(0,0)$ (u.e.m./formule)	41,3	7,85	3,47	3	2,08

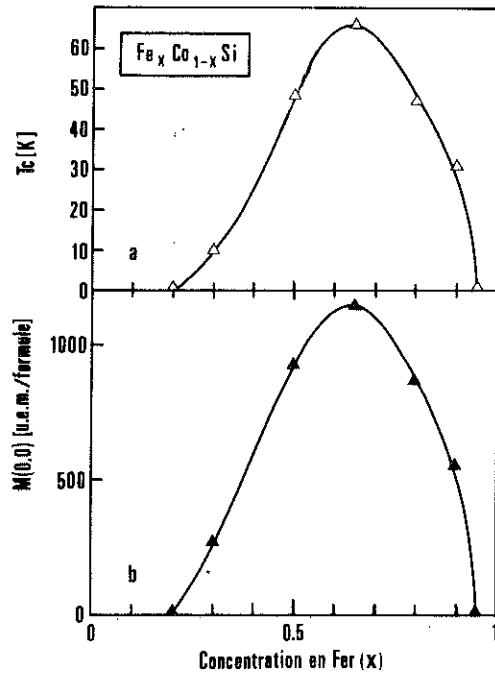


Figure II-14 : Température de Curie T_c (a) et aimantation spontanée $M(0,0)$ (b) en fonction de la concentration pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Si$.

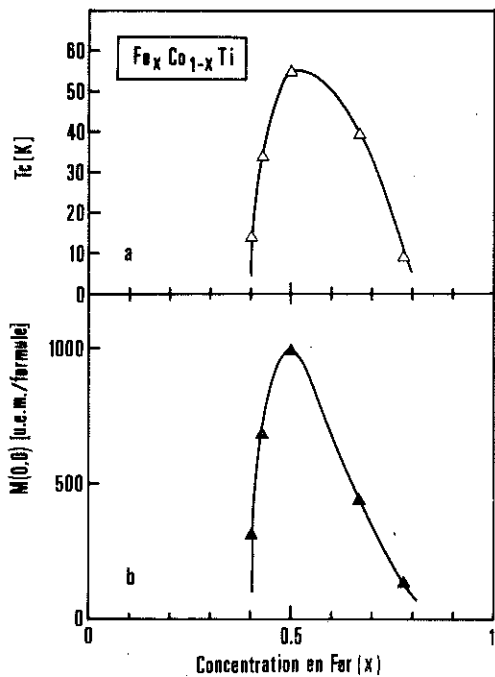


Figure II-15 : Température de Curie T_c (a) et aimantation spontanée $M(0,0)$ (b) en fonction de la concentration pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Ti$.

II-5 - CONCLUSION

Nous avons trouvé que les alliages ferromagnétiques $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ ont les propriétés magnétiques caractéristiques générales du faible ferromagnétisme itinérant :

- tracés d'Arrott à température constante linéaire,
- faible dépendance de la pente de ces tracés avec la température.

Cependant on n'observe pas de divergence de la susceptibilité initiale ferromagnétique à la concentration critique correspondant aux alliages riches en Fe, ni de maximum pour la susceptibilité sous champ fort dans le voisinage de cette concentration. D'autre part pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ riches en Fe la susceptibilité sous champ fort est très voisine de la susceptibilité ferromagnétique initiale. Enfin pour les deux séries d'alliages les courbes $M(H)$ pour les alliages concentrés en Fe ont l'allure caractéristique de ferromagnétiques localisés. On prévoit donc pour les alliages concentrés en Fe un comportement plus localisé que pour les autres alliages de ces deux séries.

CHAPITRE III

EFFETS DE LA PRESSION HYDROSTATIQUE SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

DES ALLIAGES $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ ET $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

III-1 - INTRODUCTION

Les alliages étudiés présentent les caractéristiques générales de faibles ferromagnétiques itinérants. Dans de telles substances les propriétés magnétiques sont des fonctions très sensibles des paramètres extérieurs et donc de la pression. Lorsque nous avons entrepris l'étude sous pression des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ il n'existait alors dans la littérature que les résultats concernant la variation de la susceptibilité avec la pression de FeSi à la température ambiante. La valeur obtenue était relativement importante ($\frac{d}{d} \frac{\ln \chi}{\ln V} = 10$) (PA 75). Pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ il n'existait que les mesures magnétiques sous pression sur trois alliages de concentration différente (HI 77). Afin de mieux comprendre le comportement magnétique des deux séries d'alliages nous avons réalisé des mesures magnétiques sous pression dans toute la gamme de concentration.

III-2 - PRESENTATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

a - Variation de l'aimantation spontanée

Pour déterminer la variation de l'aimantation spontanée avec la pression nous avons tracé $M^2(H, 4,2 \text{ K}, p)$ en fonction de $H/M(H, 4,2 \text{ K}, p)$ (tracés d'Arrott) pour différentes pressions. Figures III-1 et III-2, on présente de tels tracés pour les alliages $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ (BLO 75) et $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$. Comme prévu dans la théorie du faible ferromagnétisme itinérant les courbes obtenues se décalent parallèlement sous l'effet de la pression appliquée.

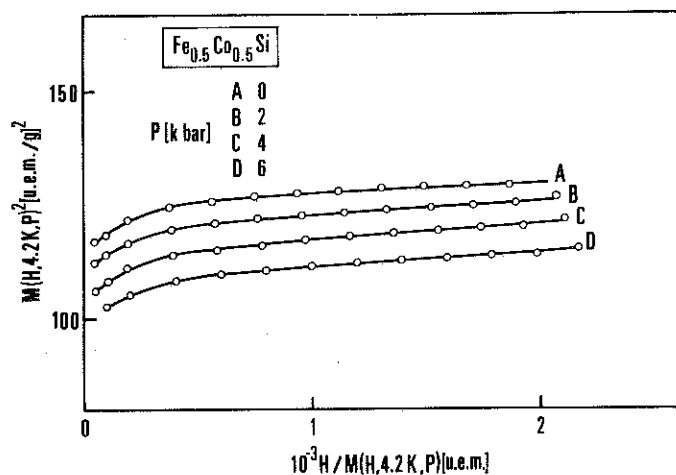


Figure III-1 : Tracés d'Arrott à 4,2 K pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ à différentes pressions.

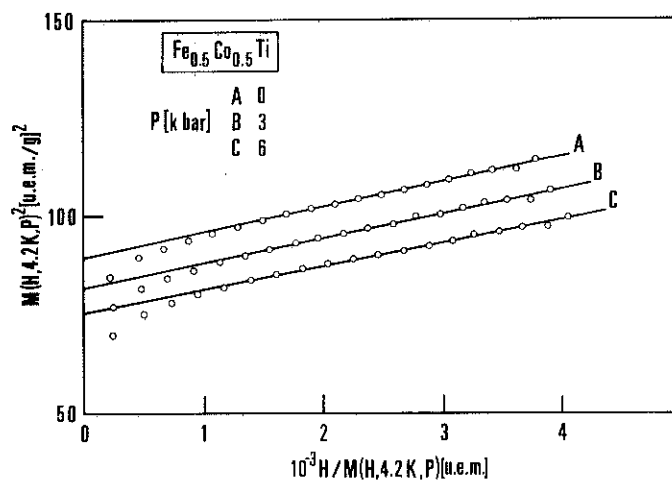


Figure III-2 : Tracés d'Arrott à 4,2 K pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ à différentes pressions.

b - Variation de la température de Curie avec la pression

Pour déterminer la variation de la température de Curie T_c avec la pression, nous avons tracé les courbes de la susceptibilité initiale χ_i en fonction de la température pour diverses pressions (figures III-3, III-4, III-5). On prend pour température de Curie la température correspondant au point d'inflexion de la courbe $\chi_i(T)$.

Tableaux III-1 et III-2 sont reportées les valeurs absolues et relatives de l'effet de la pression sur l'aimantation spontanée et sur la température de Curie. Les effets relatifs de la pression sur la température de Curie ne dépendent pas de la méthode de détermination de T_c (tracés d'Arrott ou susceptibilité initiale).

III-3 - DISCUSSION DES RESULTATS

Les coefficients qui interviennent dans les relations II.5 et II.6 liant entre eux $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)$ ne dépendent pas du facteur de Stoner. On prévoit donc que l'effet de la pression sur ces coefficients est faible comparé à l'effet de la concentration. Dans ces conditions la relation II.7 doit rester vérifiée sous pression et on doit observer :

$$\frac{d \ln M(0,0)}{dp} = \frac{d \ln T_c}{dp} = - \frac{1}{2} \frac{d \ln \chi(0,0)}{dp} \quad (\text{III.1})$$

On constate tableaux III-1 et III-2, et figures III-6 et III-7 que les valeurs obtenues pour $d \ln M(0,0)/dp$ et pour $d \ln T_c/dp$ sont du même ordre de grandeur pour tous les alliages.

En minimisant l'expression de l'énergie libre tenant compte de l'énergie magnéto-élastique, Wohlfarth et Bartel (WO 71a) ont obtenu pour un faible ferromagnétique itinérant :

$$T_c \frac{dT_c}{dp} = - \frac{5}{6} \kappa \frac{U}{U_b} \frac{\chi(0,0) T_c^2}{N \mu_B^2 N(E_F)} \quad (\text{III.2})$$

où κ est la compressibilité, U l'énergie de répulsion coulombienne et U_b cette même énergie calculée sans tenir compte des corrélations.

Dans le cas d'alliages faiblement ferromagnétiques isoélectroniques $T_c \frac{dT_c}{dp} \sim T_c^2 \chi(0,0)$ doit peu varier avec la concentration, ce qui donne une divergence de $\frac{dT_c}{dp}$ en $\frac{1}{T_c}$ à la disparition du magnétisme.

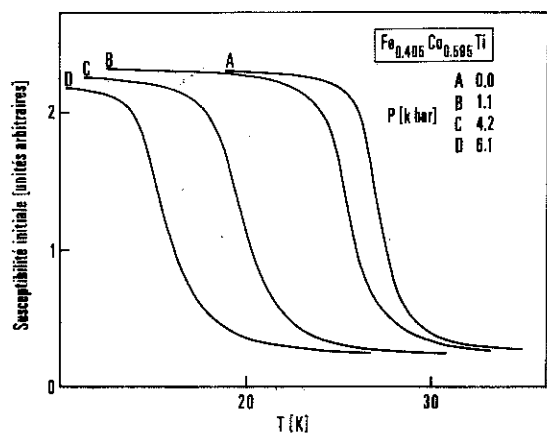


Figure III-3 : Courbes de la susceptibilité initiale en fonction de la température pour $\text{Fe}_{0.405}\text{Co}_{0.595}\text{Ti}$ à différentes pressions.

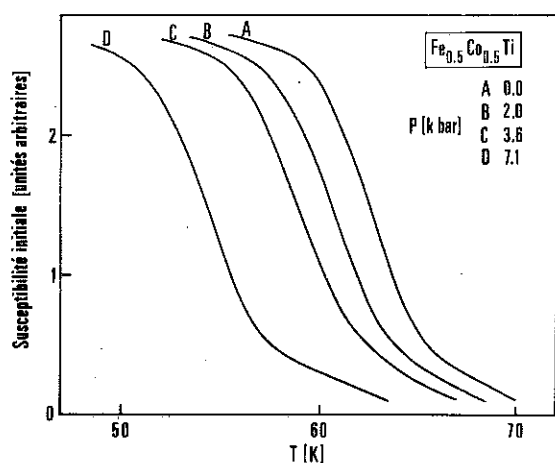


Figure III-4 : Courbes de la susceptibilité initiale en fonction de la température pour $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Ti}$ à différentes pressions.

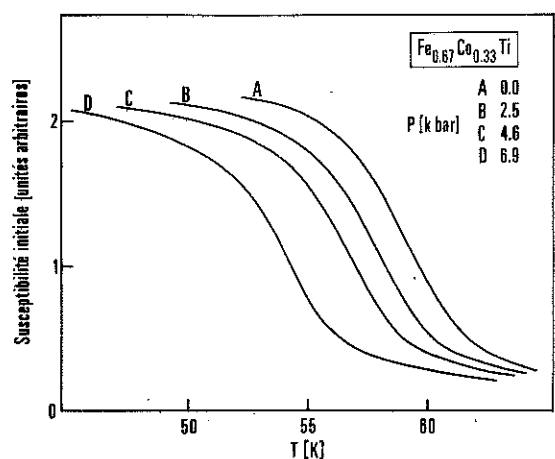


Figure III-5 : Courbes de la susceptibilité initiale en fonction de la température pour $\text{Fe}_{0.67}\text{Co}_{0.33}\text{Ti}$ à différentes pressions.

$\frac{dT_c}{dp}$ diverge effectivement près de la concentration critique correspondant aux alliages riches en cobalt. Par contre près de la concentration critique correspondant aux alliages riches en fer, l'effet de la pression sur la température de Curie T_c est beaucoup plus faible et ne diverge pas. Ce comportement est à rapprocher de la variation avec la concentration de la susceptibilité ferromagnétique (initiale et sous champ fort) de ces alliages.

Tableau III-1 : Effet de la pression sur l'aimantation spontanée et la température de Curie pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Si$

x	0,3	0,5	0,8	0,9
$\frac{dM(0,0)}{dp}$ (u.e.m. formule ⁻¹ kbar ⁻¹)	- 3,7	-11,1	- 3,7	- 1,4
$\frac{dT_c}{dp}$ [K.kbar ⁻¹]	- 0,14	- 0,76	- 0,04	- 1,1
$10^3 \frac{d \ln M(0,0)}{dp}$ [kbar ⁻¹]	-16	-12	- 4,3	- 2,8
$10^3 \frac{d \ln T_c}{dp}$ [kbar ⁻¹]	-16	-17,5	- 1	- 50
$-10^3 \frac{5}{12} \pi^2 \frac{k_B^2}{\mu_B^2} \kappa \frac{\chi(0,0)}{\chi_{\text{électronique}}}$ *	-25,5	- 4,6	- 0,9	- 0,5

*valeurs de la compressibilité calculées par interpolation linéaire (ZI 74).

Tableau III-2 : Effets de la pression sur l'aimantation spontanée et la température de Curie pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

x	0,405	0,43	0,5	0,55	0,67	0,73	0,78
$\frac{dM(0,0)}{dp}$ (u.e.m. formule ⁻¹ .kbar ⁻¹)	- 10,3	-15,5	-13,7	-	- 3,75	- 1,6	- 1,3
$\frac{dT_c}{dp}$ [K.kbar ⁻¹]	- 1,92	- 1,8	- 1,21	- 0,66	- 8,6	-	- 0,16
$10^3 \frac{d \ln M(0,0)}{dp}$ [kbar ⁻¹]	- 61	-23	-14	-	- 8,6	- 9	-11,5
$10^3 \frac{d \ln T_c}{dp}$ [kbar ⁻¹]	- 70	-40	-20	-11	-10,7	-	- 8
$-10^3 \frac{5}{12} \pi^2 \frac{k_B^2}{\mu_B} \kappa \frac{\chi(0,0)^*}{\gamma_{\text{électro.}}}$	-111	-20	- 9	- 9	-13,8	-16	-10

* compressibilités supposées égales à celles de $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ que nous avons mesurées ($\kappa = 0,62 \cdot 10^{-3}$ [kbar⁻¹])

A partir des mesures de chaleur spécifique à basse température (ST 62, AS 73, KA 76) on peut déduire $N(E_F)$ pour nos alliages dans le cadre d'une théorie du faible ferromagnétisme itinérant (ED 68).

En effet le coefficient du terme linéaire en température dans la chaleur spécifique à basse température, $\gamma_{\text{mesuré}}$, dépend de $N(E_F)$. Il peut s'exprimer sous la forme :

$$\gamma_{\text{mesuré}} = \gamma_{\text{électronique}} + \gamma_{\text{magnétique}} \quad (\text{III.3})$$

où $\gamma_{\text{électronique}} = \frac{2}{3} N \pi^2 k_B^2 N(E_F)$ (III.4)

et $\gamma_{\text{magnétique}} = - \frac{1}{2} \frac{M^2(0,0)}{\chi(0,0) T_c}$ (III.5)

A partir de l'expression III.2 on peut alors calculer $\frac{d \ln T_c}{dp}$. En prenant pour U/U_b une valeur de l'ordre de 0,75 qui est une moyenne observée pour les substances faiblement ferromagnétiques itinérantes, on obtient :

$$\frac{d \ln T_c}{dp} \approx - \frac{5}{12} \pi^2 \frac{k_B^2}{\mu_B^2} \kappa \frac{\chi(0,0)}{\gamma_{\text{électronique}}} \quad (\text{III.6})$$

L'accord numérique n'est que qualitatif bien qu'il soit assez bon pour certaines concentrations. La courbe représentant les valeurs calculées pour $\frac{d \ln T_c}{dp}$ est représentée en trait fort figures III-6 et III-7. On constate sur ces figures que la variation obtenue reproduit l'expérience de façon très satisfaisante.

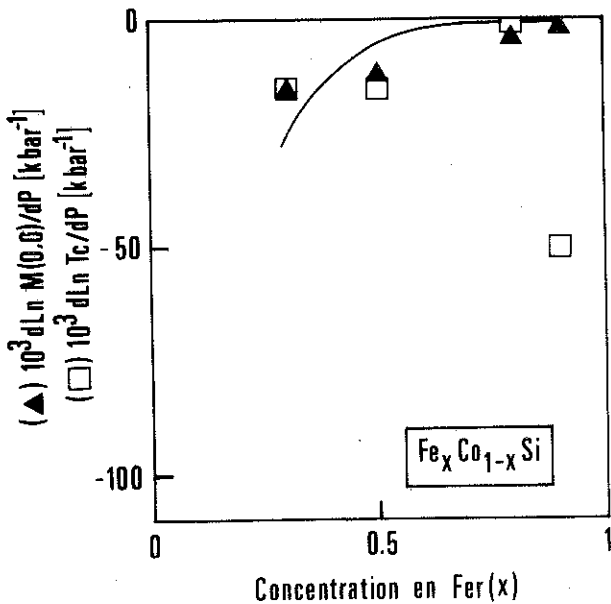


Figure III-6 : Valeurs expérimentales de $d \ln M(0,0)/dp$ (▲) et de $d \ln T_c/dp$ (□) pour $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ en fonction de la concentration (la courbe en trait fort représente les valeurs calculées de $d \ln T_c/dp$).

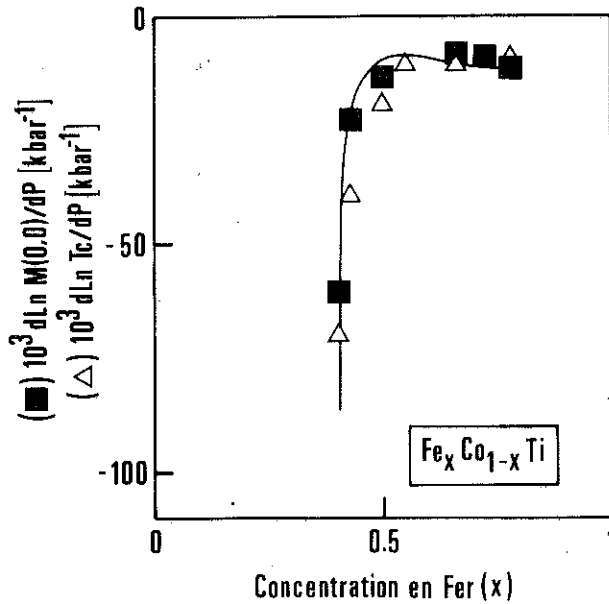


Figure III-7 : Valeurs expérimentales de $d \ln M(0,0)/dp$ (■) et de $d \ln T_c/dp$ (Δ) pour $Fe_xCo_{1-x}Ti$ en fonction de la concentration. (la courbe en trait fort représente les valeurs calculées de $d \ln T_c/dp$).

La relation III.2 donne une variation parabolique avec la pression de la température de Curie et de l'aimantation spontanée :

$$T_c^2(p) = T_c^2(0) - 2\alpha p \quad (III.7)$$

$$M^2(0,0,p) = M^2(0,0,0) - 2\beta p \quad (III.8)$$

où α et β dépendent des paramètres de bande.

Figures III-8 et III-9 on a présenté l'aimantation spontanée en fonction de la concentration calculée pour différentes pressions dans l'hypothèse où les relations III.7 et III.8 sont vérifiées. Dans ces conditions le maximum d'aimantation se déplace vers les concentrations riches en Fe. Le ferromagnétisme disparaîtrait aux environs de 40 kbar pour les alliages $Fe_xCo_{1-x}Ti$. Par contre une pression de l'ordre de 180 kbar serait nécessaire pour faire disparaître le ferromagnétisme dans les alliages $Fe_xCo_{1-x}Si$.

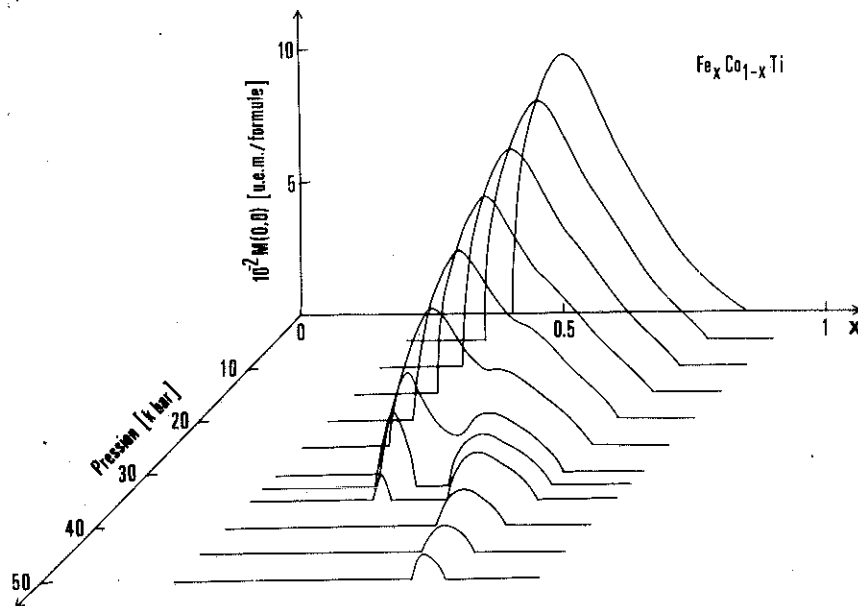


Figure III-8 : Aimantation spontanée des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ calculée à différentes pressions.

Dans les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$, entre 20 et 40 kbar, les calculs effectués dans l'approximation parabolique à partir des effets observés à faibles pressions donnent deux maxima pour l'aimantation spontanée. L'existence des deux maxima doit être vérifiée expérimentalement, pour bien montrer qu'elle n'est pas due aux hypothèses de calcul ou à la dispersion expérimentale. Une expérience positive entre 20 et 40 kbar pourrait illustrer la nature différente du ferromagnétisme pour les alliages riches en Co et les alliages riches en Fe.

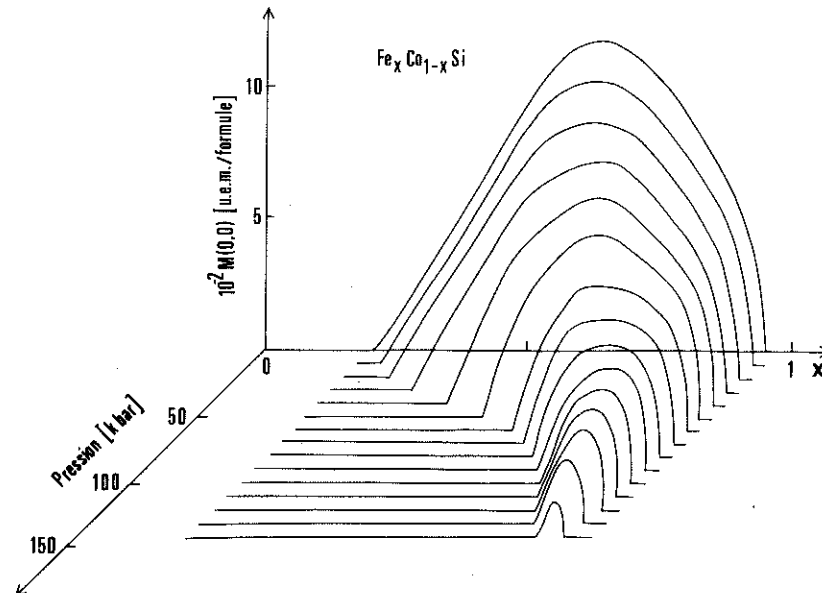


Figure III-9 : Aimantation spontanée des alliages $Fe_x Co_{1-x} Si$ calculée à différentes pressions.

III-4 - CONCLUSION

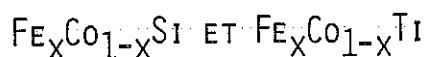
Les mesures d'aimantation sous pression sur ces alliages sont en accord avec les caractéristiques générales du faible ferromagnétisme itinérant :

- forts effets de la pression sur l'aimantation spontanée et la température de Curie,
- même ordre de grandeur pour les effets relatifs sur l'aimantation spontanée et la température de Curie,
- accord qualitatif entre les effets mesurés et calculés dans le cadre de la théorie du faible ferromagnétisme sur la base de la formule III.6 à partir des valeurs expérimentales de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ et de la chaleur spécifique à basse température.

Cependant la divergence des effets de la pression sur l'aimantation spontanée et la température de Curie prévue dans la théorie du faible ferromagnétisme itinérant n'est observée que près de la concentration critique relative au côté riche en cobalt ; ce qui semblerait indiquer un comportement magnétique plus localisé pour les alliages ferromagnétiques $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ riches en Fe.

CHAPITRE IV

ÉTUDE DE L'AIMANTATION À BASSE TEMPÉRATURE, VARIATION THERMIQUE DE LA CHALEUR SPÉCIFIQUE ET DE LA SUSCEPTIBILITÉ PARAMAGNÉTIQUE DES ALLIAGES



IV-1 - INTRODUCTION

Nous traitons dans ce chapitre de l'évolution thermique de grandeurs physiques caractéristiques de la nature du magnétisme dans les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$.

Nous avons tout d'abord discuté de la contribution des excitations collectives à l'aimantation à basse température. Nous avons repris des mesures de chaleur spécifique à basse température pour préciser l'homogénéité des alliages et, dans le voisinage de la température de Curie pour caractériser la transition magnétique. Nous avons effectué des mesures de susceptibilité paramagnétique sur tous les composés. En particulier pour FeSi l'aimantation a été mesurée en fonction du champ jusqu'à très basse température. Nous montrons que FeSi peut constituer le premier exemple de composé dont l'état fondamental est du type liquide quantique décrit dans la théorie des valences résonantes développée par P.W. Anderson à partir de travaux antérieurs de L. Pauling. La courbe complète de la susceptibilité de FeSi en fonction de la température a pu être calculée dans le cadre de cette théorie.

IV-2 - VARIATION THERMIQUE DE L'AIMANTATION A BASSE TEMPERATURE

Afin d'étudier la variation thermique de l'aimantation à basse température, nous avons mesuré l'aimantation de plusieurs échantillons ferromagnétiques en fonction du champ jusqu'à 150 kOe pour de nombreuses températures entre 1,4 K et T_c . Les réseaux d'Arrott (M^2 , H/M) isothermes obtenus pour les alliages $\text{Fe}_{0,65}\text{Co}_{0,35}\text{Si}$ et $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ sont donnés figure IV-1 et IV-2.

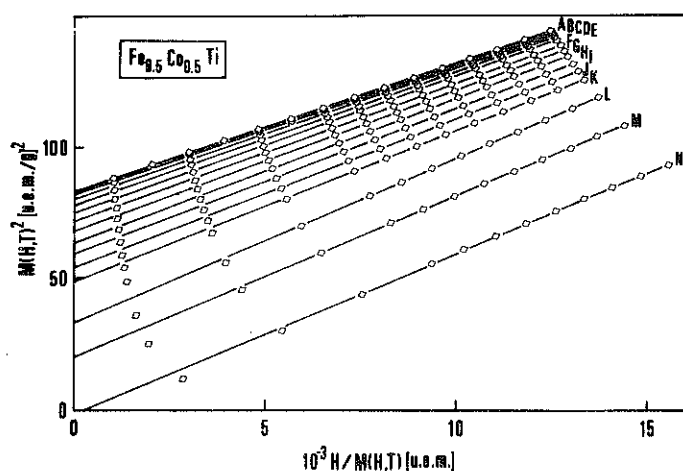


Figure IV-1 : M^2 en fonction de H/M pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ à diverses températures : 1,46 K (A) ; 4,2 K (B) ; 7 K (C) ; 10 K (D) ; 13 K (E) ; 16 K (F) ; 19 K (G) ; 22 K (H) ; 25 K (I) ; 28 K (J) ; 31 K (K) ; 38 K (L) ; 45 K (M) ; 53,3 K (N).

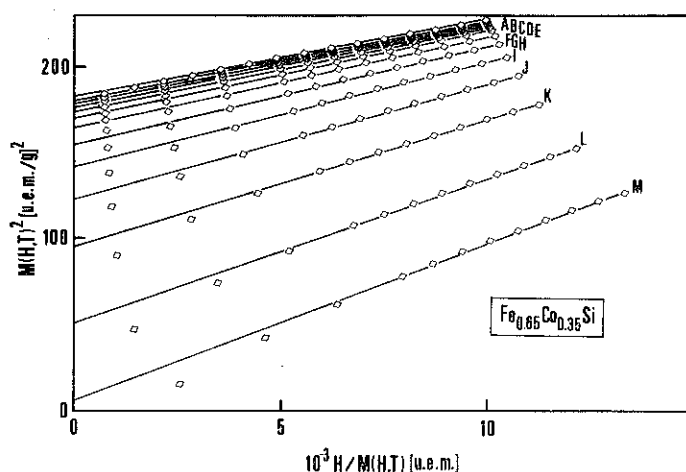


Figure IV-2 : M^2 en fonction de H/M pour $\text{Fe}_{0,65}\text{Co}_{0,35}\text{Si}$ à diverses températures : 4,2 K (A) ; 6 K (B) ; 8 K (C) ; 10 K (D) ; 12 K (E) ; 14 K (F) ; 17 K (G) ; 21 K (H) ; 26 K (I) ; 32 K (J) ; 40 K (K) ; 52 K (L) ; 64 K (M).

L'intersection $I(T)$ des droites d'Arrott avec l'axe M^2 a été obtenu par une méthode de moindres carrés. $I(T)$ n'est pas une fonction linéaire de T^2 , comme on peut le constater figures IV-3 et IV-4, ce qui indique que la loi de Stoner n'est pas vérifiée.

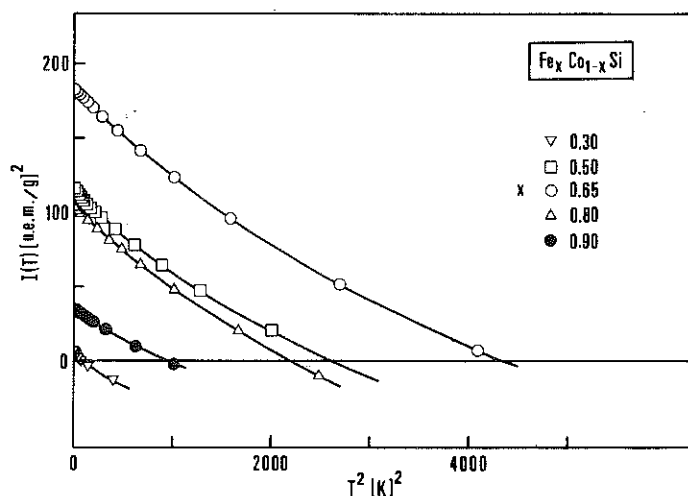


Figure IV-3 : Tracés de $I(T)$ en fonction de T^2 pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$.

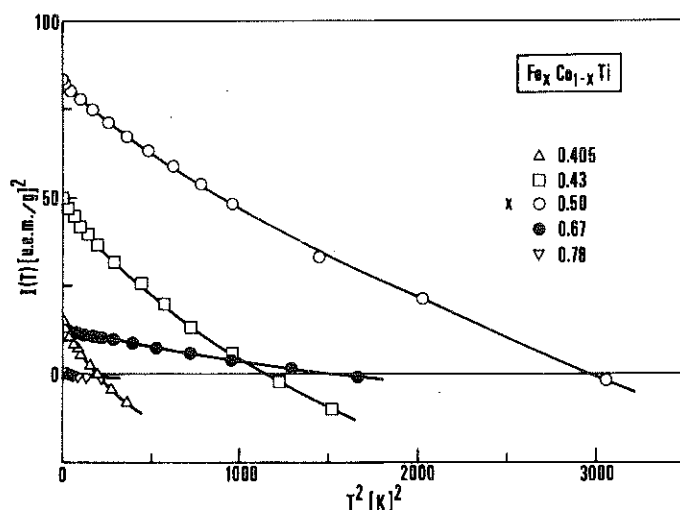


Figure IV-4 : Tracés de $I(T)$ en fonction de T^2 pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$.

Les écarts à la linéarité peuvent s'expliquer par la présence d'excitations collectives qui peuvent exister dans les faibles ferromagnétiques itinérants (HE 51). Ces derniers ont traité les excitations collectives dans une théorie de R.P.A. comme des fluctuations autour de l'état d'équilibre de Stoner. L'aimantation à basse température a été exprimée par Edwards (ED 62) comme la somme de deux termes : une contribution des excitations collectives variant en $T^{3/2}$ et une contribution des excitations à une particule variant en T^2 . La forme obtenue pour $M(0,T)$ est ainsi :

$$M(0,T) = M(0,0) - aT^{3/2} - bT^2 \quad (\text{IV-1})$$

L'équation (IV-1) nous a permis de rendre compte correctement jusqu'à $T_c/2$ de nos résultats par une méthode de moindres carrés. Nous donnons figure IV-5 les tracés de $M(0,T) - M(0,0) + bT^2$ en fonction de $T^{3/2}$ (points expérimentaux et tracés par moindres carrés en traits pleins).

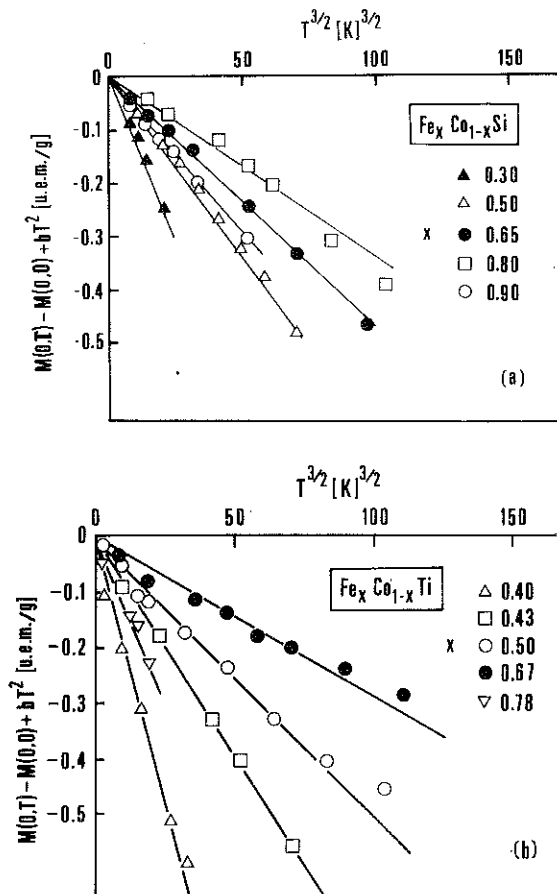


Figure IV-5 : $M(0,T) - M(0,0) + bT^2$ en fonction de $T^{3/2}$ pour divers alliages : $Fe_xCo_{1-x}Si$ (a) ; $Fe_xCo_{1-x}Ti$ (b).

Le coefficient a s'exprime en fonction du coefficient de dispersion des ondes de spin D :

$$a(\text{u.e.m./formule}) = 0,1173 \Omega N_A \mu_B (k_B/D)^{3/2} \quad (\text{IV-2})$$

où N_A est le nombre d'Avogadro et Ω est le volume atomique. Dans les tableaux IV-1 et IV-2 on donne les valeurs de $\frac{a}{M(0,0)}$, $\frac{b}{M(0,0)}$ et D .

Par ailleurs on donne figure IV-6 les points représentant D en fonction de l'aimantation spontanée $M(0,0)$. Dans le voisinage des deux concentrations critiques D est proportionnel à $M(0,0)$ mais avec deux valeurs différentes du coefficient de proportionnalité.

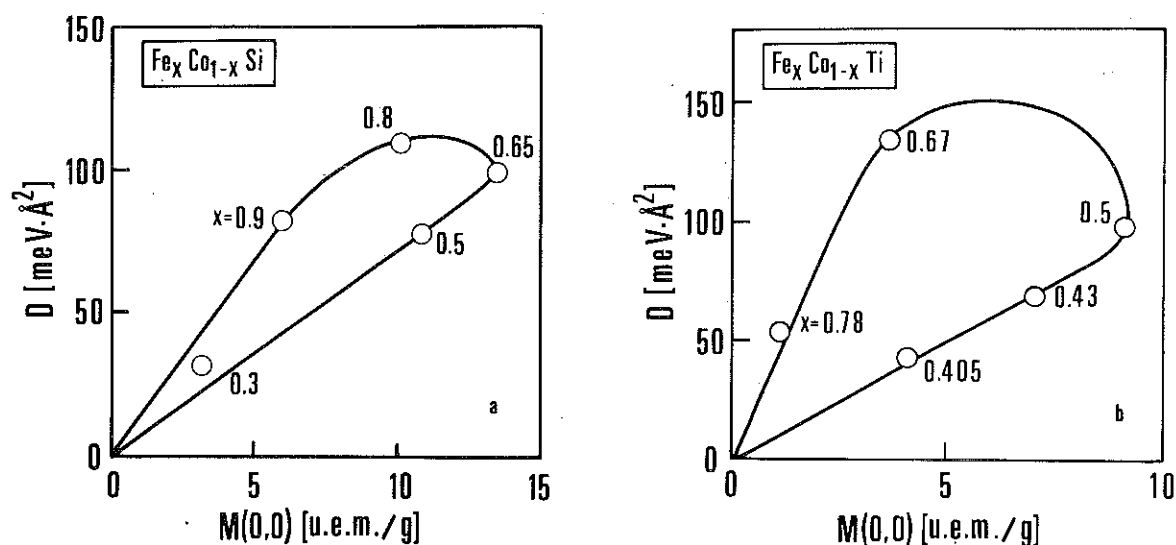


Figure IV-6 : Coefficient de dispersion des ondes de spin en fonction de $M(0,0)$ pour les alliages : $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ (a) ; $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ (b).

D/T_c est de l'ordre de $1,6 \text{ meV } \text{\AA}^2 \text{ K}^{-1}$ pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ et pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$. Cette valeur est à comparer avec celle obtenue pour les alliages PdNi et PtNi ($1,4 \text{ meV } \text{\AA}^2 \text{ K}^{-1}$) et pour les alliages FeNi dans la région de l'Invar ($1,3 \text{ meV } \text{\AA}^2 \text{ K}^{-1}$).

Tableau IV-1 : Coefficient D de dispersion des ondes de spin pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$.

x	0,3	0,5	0,65	0,8	0,9
$10^3 a/M(0,0)$	9,0	0,58	0,32	0,37	0,98
$10^3 b/M(0,0)$	5,9	0,18	0,11	0,23	0,53
$D \text{ (meV } \text{\AA}^2)$	31	77	99	110	80

Tableau IV-2 : Coefficient D de dispersion des ondes de spin pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

x	0,405	0,43	0,5	0,67	0,78
$10^3 a/M(0,0)$	3,9	1,11	0,51	0,76	10,3
$10^3 b/M(0,0)$	2,53	0,43	0,17	0,32	7,0
D (meV Å ²)	42	66	94	132	53

IV-3 - VARIATION THERMIQUE DE LA CHALEUR SPECIFIQUE

Nous avons mesuré la chaleur spécifique de $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ entre 28 K et 300 K au C.R.T.B.T. en collaboration avec J. Chaussy (figure IV-7a). La courbe de la chaleur spécifique en fonction de la température ne présente pas d'anomalie magnétique correspondant à la transition paramagnétique-ferromagnétique, ce qui démontre le caractère itinérant de cet alliage.

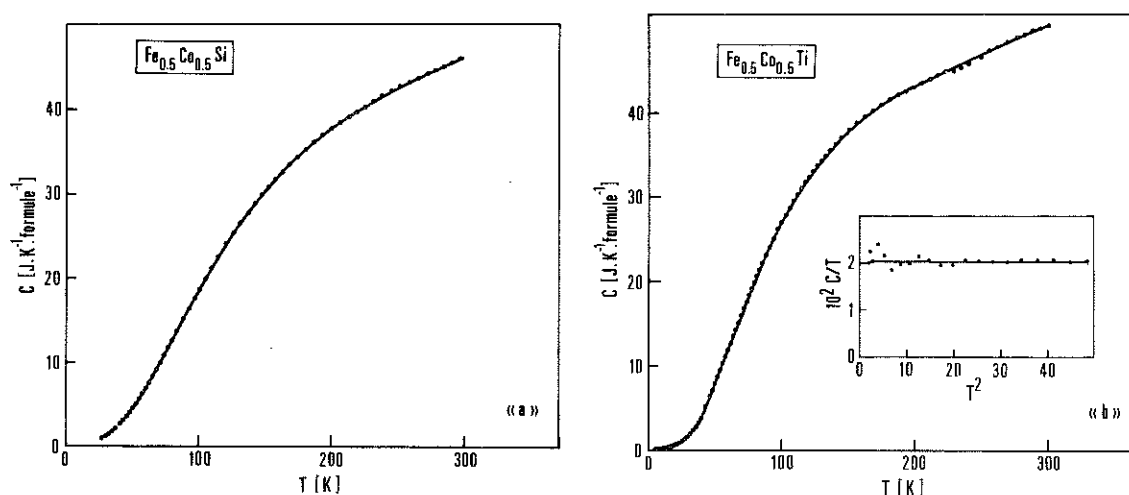


Figure IV-7 : Chaleur spécifique C en fonction de la température T pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ (a) ; $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ (b). (encart : C/T en fonction de T^2).

De même, on n'observe pas d'anomalie dans la courbe de la chaleur spécifique en fonction de la température pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ (figure IV-7b). Pour cet alliage les points représentant C/T en fonction de T^2 à basse température (figure IV-7b) sont alignés. Il n'y a donc pas de terme constant dans la chaleur spécifique qui serait caractéristique d'amas magnétiques. Une remontée à basse température dans le tracé de C/T en fonction de T^2 aurait été trouvée par Starke et al (ST 62) dans des expériences antérieures. Elle pourrait être due à des inhomogénéités chimiques de leurs échantillons.

La variation thermique de la chaleur spécifique peut être décrite par une fonction de la forme :

$$C = \gamma T + f\left(\frac{T}{\Theta}\right) \quad (\text{IV-3})$$

où γT est la contribution électronique et magnétique ($\gamma = \gamma_e + \gamma_m$), et $f\left(\frac{T}{\Theta}\right)$ est la contribution du réseau décrite par

$$f\left(\frac{T}{\Theta}\right) = 12 R \frac{3}{(\Theta/T)^3} \int_0^{\Theta/T} \frac{n^3 dn}{e^n - 1} - 9 R \frac{\Theta/T}{e^{\Theta/T} - 1} \quad (\text{IV-4})$$

La température de Debye Θ a été calculée pour le maximum de la courbe de C/T en fonction de T (KNA 72). Nous avons déterminé $\Theta = 399 \text{ K}$ pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Ti}$ et $\Theta = 516 \text{ K}$ pour $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$.

Le facteur de renforcement électron-phonon λ défini par $\gamma_e = \gamma_e(0)(1 + \lambda)$ n'a pu être déterminé car nous n'avons pas de points expérimentaux au-dessus de Θ où λ devient faible.

IV-4 - VARIATION THERMIQUE DE LA SUSCEPTIBILITE

a - FeSi

Résultats expérimentaux

La susceptibilité de FeSi a été mesurée par de nombreux auteurs jusqu'à 1400 K (FO 38, BE 55, WA 63, SHU 65, SHI 66, WE 72). Elle présente un maximum à environ 500 K et une remontée à basse température (en dessous de 100 K). Cette dernière a été attribuée à la présence d'impuretés paramagnétiques isolées ou à d'autres phases cristallographiques.

Nous avons préparé plusieurs échantillons de FeSi par la méthode de lévitation en creuset froid. La fusion a été suivie d'un recuit à 950°C pendant 8 jours. La pureté des éléments Fe et Si était de 99,999 %.

Afin de préciser le comportement à basse température de FeSi nous avons effectué des mesures d'aimantation dans des champs atteignant 150 kOe entre 4,2 et 300 K et jusqu'à 75 kOe entre 4,2 et 100 mK au C.R.T.B.T. Les courbes d'aimantation sont présentées figures IV-8 et IV-9. Elles sont linéaires et s'incurvent légèrement en champ fort à basse température.

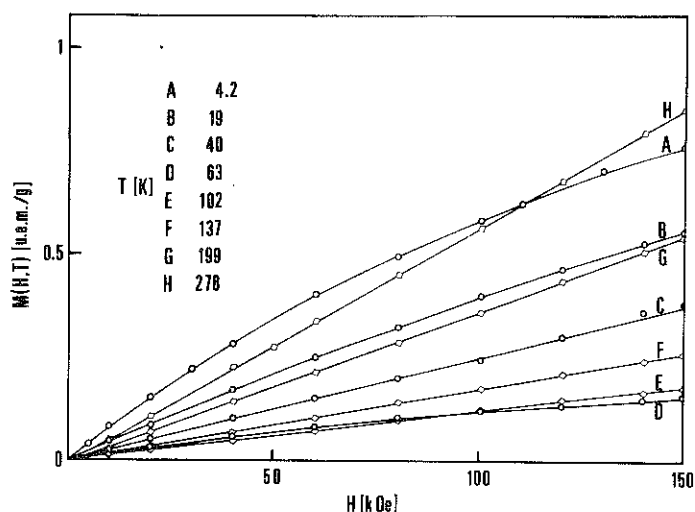


Figure IV-8 : Courbes d'aimantation de FeSi de 4,2 à 278 K.

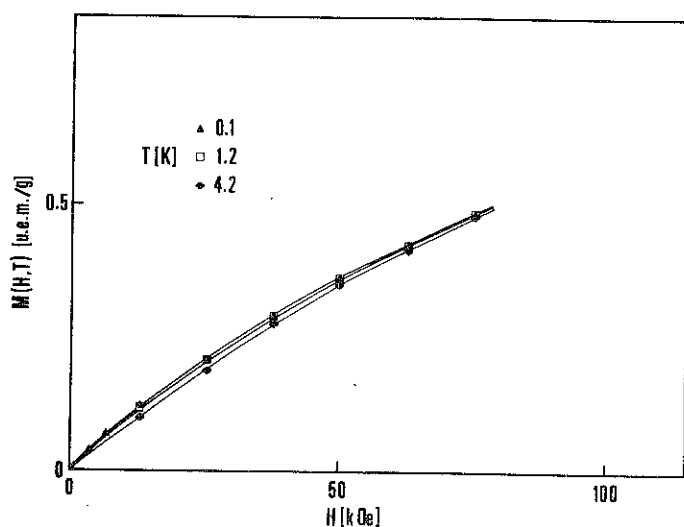


Figure IV-9 : Courbes d'aimantation de FeSi à 0,1 K, 1,2 K et 4,2 K.

On ne remarque pas d'aimantation spontanée, ce qui confirme l'absence d'amas ferromagnétiques. D'autre part, l'aimantation varie peu entre 0,1 et 4,2 K. Ceci exclut également la présence d'impuretés paramagnétiques. Ces résultats nous permettent de conclure que la remontée de la susceptibilité observée à basse température (figures IV-10 et IV-11) est une propriété intrinsèque de FeSi.

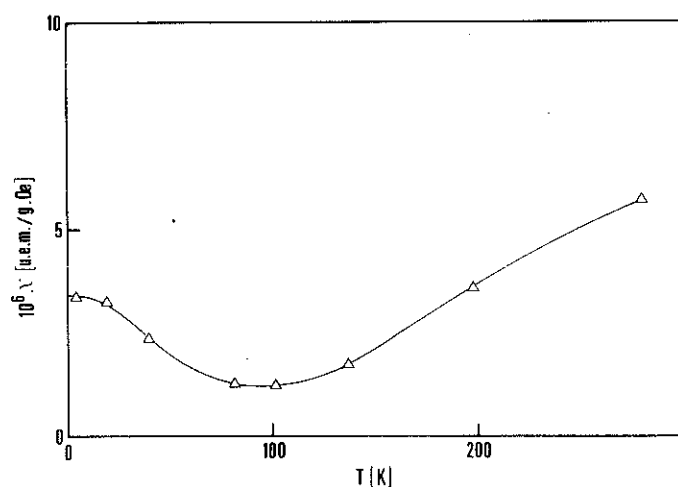


Figure IV-10 :
Susceptibilité incrémentielle de FeSi à 150 kOe (Δ) de 4,2 à 278 K.

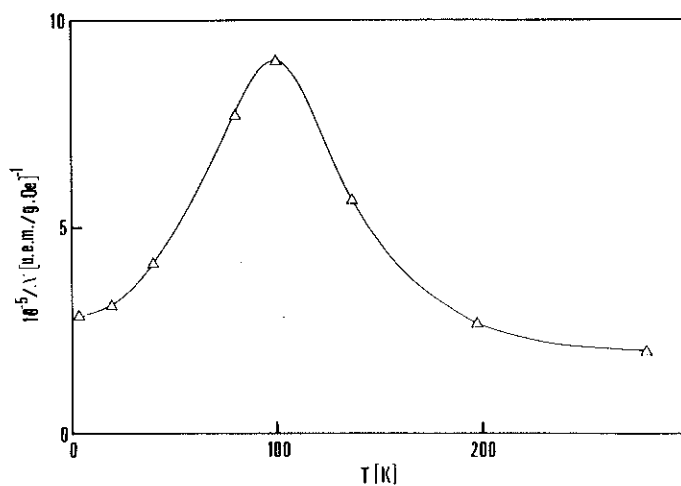


Figure IV-11 : Inverse de la susceptibilité de FeSi à 150 kOe (Δ) de 4,2 à 278 K.

Par ailleurs d'autres expériences (effet Seebeck (WO 65), résistivité (WO 65), compressibilité (ZI 74)) mettent aussi en évidence une anomalie vers 100 K.

Jaccarino et al (JA 67) ont tenté d'interpréter la variation thermique de la susceptibilité à haute température à l'aide de deux modèles : 1) l'un comportant deux bandes étroites séparées par une bande interdite ; 2) l'autre comportant deux niveaux d'énergie de moments localisés. Ces modèles ne peuvent pas être satisfaisants car ils ne rendent pas compte du comportement de la susceptibilité en dessous de 100 K.

Des expériences de diffraction des neutrons effectuées à 77 K (WA 63) ainsi que d'effet Mössbauer et d'orientation nucléaire sous champ magnétique, effectuées respectivement à 4,2 K et 26 mK (MO 75) montrent que FeSi ne présente pas d'ordre à longue distance jusqu'à 26 mK. Ces résultats sont confirmés d'une façon directe par nos mesures de susceptibilité magnétique jusqu'à 100 mK qui montrent un comportement paramagnétique. Le moment du Fe paramagnétique ne peut cependant pas être déterminé à l'aide de ces mesures en raison des importantes anomalies qui apparaissent sur la courbe $\frac{1}{\chi}(T)$ au dessous de 600 K. Au dessus de cette température on peut estimer grossièrement le moment paramagnétique à $2,1 \mu_B$ d'après les résultats expérimentaux de Watanabe (WA 63) Cette valeur correspond à un spin $S = 0,65 \pm 0,2$. Une détermination plus précise nécessite des mesures à plus haute température. Cependant le spin du fer dans FeSi peut être évalué d'une manière différente. En effet, la bande d de CoSi est pleine et ce composé est diamagnétique. Le fer ayant un électron de moins que le cobalt on peut estimer en première approximation que la bande d du fer dans FeSi possède un trou, ce qui conduirait à un spin $1/2$ par atome de fer. Cette valeur est comparable à celle déduite de la susceptibilité à haute température et nous l'adopterons par la suite. D'autre part, cette valeur pour le moment du fer est en accord avec celle trouvée dans le cas du composé FeGe de même structure et possédant des propriétés électroniques voisines. Des expériences de diffraction des neutrons (WI 76) indiquent en effet que FeGe a une structure héli magnétique avec un moment de $1 \mu_B$ sur le fer.

Discussion

En plus des anomalies observées vers 100 K dans diverses mesures physiques, FeSi présente une structure cristallographique particulière. En effet comme L. Pauling l'a noté en premier (PA 48), chaque atome de fer est entouré de 7 proches voisins de silicium et chaque atome de silicium est entouré de 7 atomes de fer. De plus les distances interatomiques dans ce composé sont anormalement faibles. Il en résulte une valence de 6,91 pour le fer et de 6,85 pour le silicium, valeurs beaucoup plus grandes que les valeurs habituelles de ces deux éléments (respectivement 5,78 et 4) (PA 48).

Pauling a proposé, afin d'interpréter cette structure un modèle de valences résonnantes (PA 48). Il suppose que chaque atome de Si forme 4 liaisons de valence qui peuvent résonner avec les 7 proches voisins de Fe. De même il y aurait fluctuation de valences entre les liaisons Fe-Fe et les liaisons Fe-Si. Dans ce modèle, il n'existe pas de liaison Si-Si. L'hypothèse de fluctuation de valences a été justifiée par Pauling sur la base des distances interatomiques existant dans le composé FeSi.

L'idée de Pauling sur la résonance des valences a été récemment reprise par P.W. Anderson qui a développé une théorie des fluctuations de valences pour les systèmes triangulaires. Il a montré que l'état de base d'un antiferromagnétique triangulaire de spin 1/2 peut être tout à fait différent de celui de Néel (AN 73). En raison de résonance de valences il n'apparaît pas d'ordre à longue distance, l'état fondamental étant non magnétique.

Dans le cas de FeSi les plans à structure triangulaire de fer sont séparés par des atomes de fer qui se projettent au centre de chaque triangle. Le motif de base de FeSi peut être considéré comme un tétraèdre irrégulier (figure IV-12) d'axe de symétrie de type $|111|$. Cette symétrie axiale peut conduire à l'existence d'interactions d'échange anisotropes entre les directions de type $|111|$ et les plans perpendiculaires correspondants (111). Ces interactions d'échange se font vraisemblablement par l'intermédiaire des atomes de silicium (superéchange).

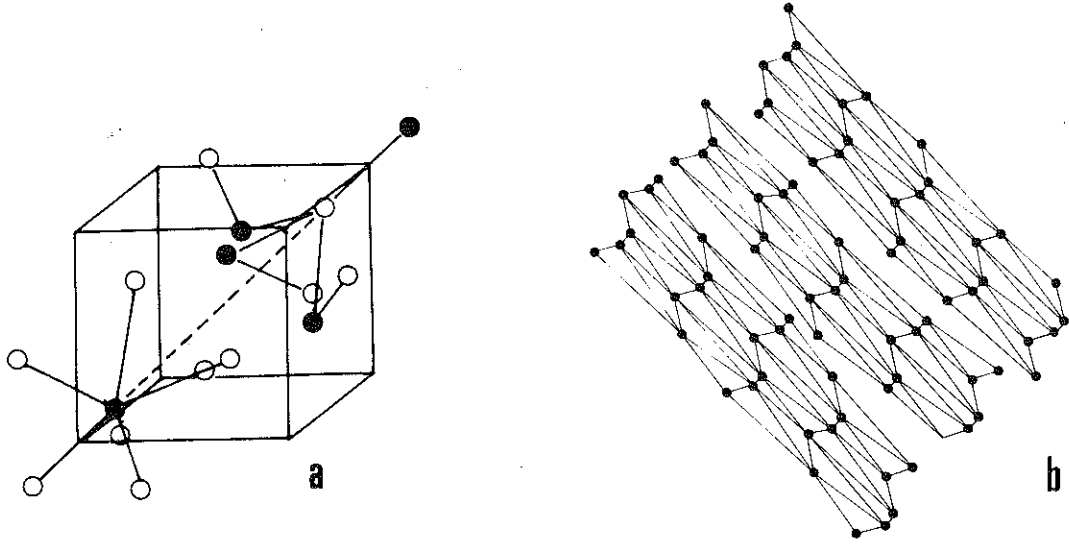


Figure IV-12 : (a) : maille cristalline de FeSi (O : Si, ● : Fe) ;
(b) : réseau des atomes de Fe dans des plans (111).

D'autre part, le spin du fer est de $1/2$. Les conditions pour l'application du modèle de liaison de valences résonnante sont remplies.

P. FASEKAS et P.W. Anderson ont décrit ce système de résonance de valence à l'aide de l'Hamiltonien suivant, caractérisé par une anisotropie de l'échange.

$$H = J \sum_{\langle i,j \rangle} S_i^z S_j^z + J \frac{\alpha}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} (S_i^+ S_j^- + S_j^+ S_i^-) \quad (\text{IV-5})$$

l'axe Oz est normal au plan de la structure triangulaire.

L'état de résonance de valence est plus probable que l'état de Néel si $0 < \alpha < 1$. Ce résultat peut être déduit du schéma de niveaux associé à une paire de spins $\vec{S}_1$ et $\vec{S}_2$. En effet, en présence d'un champ magnétique h , l'Hamiltonien (IV-5) pour une paire de spin s'écrit :

$$h \parallel Oz, H = J S_1^z S_2^z + J \frac{\alpha}{2} (S_1^+ S_2^- + S_2^+ S_1^-) - h_z g_z (S_1^z + S_2^z) \quad (\text{IV-6})$$

$$h \parallel Ox, H = J S_1^z S_2^z + J \frac{\alpha}{2} (S_1^+ S_2^- + S_2^+ S_1^-) - \frac{h_x}{2} g_x (S_1^+ + S_1^- + S_2^+ + S_2^-) \quad (\text{IV-7})$$

Nous avons diagonalisé cet Hamiltonien (voir appendice) et nous avons déduit les schémas de niveaux suivants (figure IV-13) :

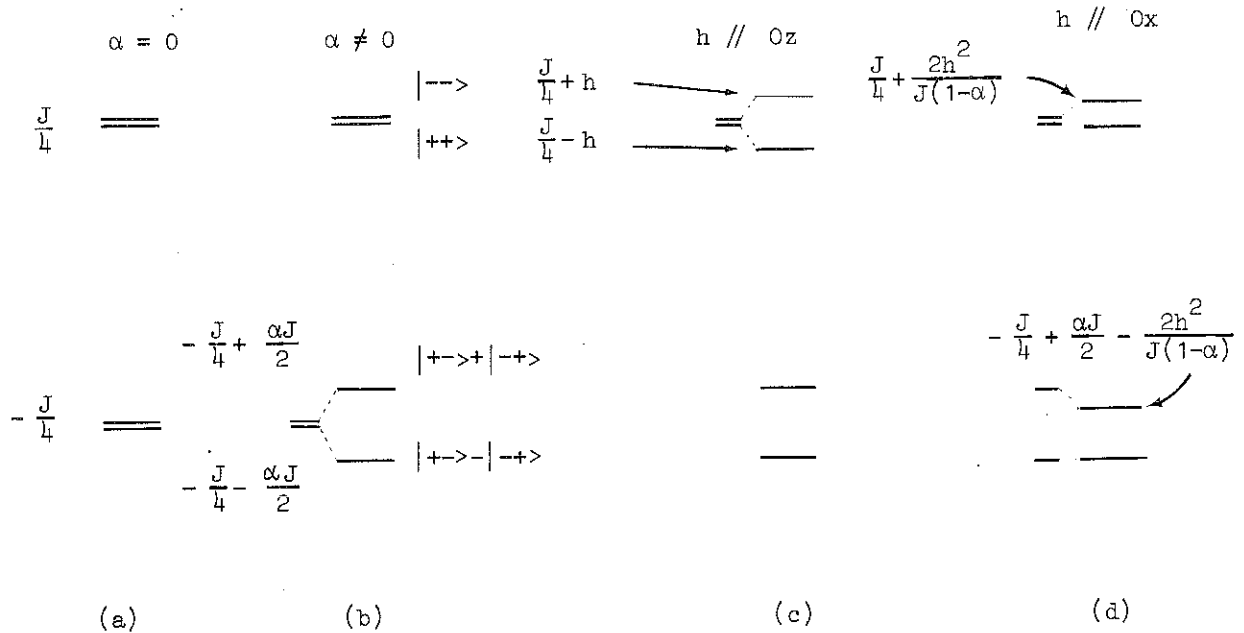


Figure IV-13 : Schémas des niveaux énergétiques du système d'une paire de spins.

a) $\alpha = 0$, système d'Ising ; b) système anisotrope ($\alpha \neq 0$) sans champ magnétique ; c) système anisotrope sous champ parallèle à Oz ; d) système anisotrope sous champ parallèle à Ox .

En l'absence de champ magnétique, l'énergie de l'état fondamental

$|+->-| ->+$ est $-\frac{J}{4} - \frac{\alpha J}{2}$ à comparer à celle associée à l'état de Néel $-\frac{J}{4} - \frac{J\alpha^2}{2}$ (AN 73).

Comme on le voit le schéma des niveaux en l'absence de champ (figure IV-13b) ne dépend pas du signe de α . Celui-ci sera pris comme négatif pour rendre compte des résultats expérimentaux. Dans ce cas l'état fondamental est caractérisé par $|+->+| ->+$.

Le schéma de niveaux étant différent lorsque le champ est parallèle ou perpendiculaire à Oz , la susceptibilité doit être anisotrope. Nous en déduisons (voir appendice) :

$$\chi_z = \frac{\beta g_z^2 (e^{-\frac{\beta J}{4}} + \text{ch } \beta h g_z \text{ ch } \frac{\beta J \alpha}{2})}{(e^{-\frac{\beta J}{4}} \text{ ch } \beta h g_z + e^{\frac{\beta J}{4}} \text{ ch } \frac{\beta J \alpha}{2})^2} \quad (\text{IV-8})$$

$$\chi_x = \frac{m_x}{h} + \frac{\beta \left[\frac{4h g_x^2}{J(1-\alpha)} \right]^2 (ch A ch B + e^{\frac{\beta \alpha J}{2}})}{(e^{\frac{\beta \alpha J}{4}} ch B + e^{-\frac{\beta \alpha J}{4}} ch A)^2} \quad (IV-9)$$

où :

$$m_x = \frac{\frac{4h g_x^2}{J(1-\alpha)} e^{-\frac{\beta \alpha J}{4}} sh B}{e^{\frac{\beta \alpha J}{4}} ch B + e^{-\frac{\beta \alpha J}{4}} ch A}$$

$$A = \frac{\beta J}{4} (1 + \alpha)$$

$$B = \frac{\beta J}{4} (1 - \alpha) + \frac{2\beta h^2 g_x^2}{J(1 - \alpha)}$$

$$\beta = \frac{1}{k_B T}$$

Nous avons calculé numériquement la susceptibilité en utilisant les valeurs $J = 1500$ K, $\alpha = -0,07$, $g_z \approx 5$, $g_x \approx 1$ (figure IV-14). L'allure de la courbe obtenue est tout à fait comparable à celle mesurée sur un échantillon polycristallin de FeSi. L'accord n'est pas parfait car notre modèle, simplifié, ne prend en compte qu'une paire de spins. Un calcul quantitatif devrait faire intervenir un grand nombre de spins. Ce calcul est très complexe en raison de la frustration associée au réseau triangulaire.

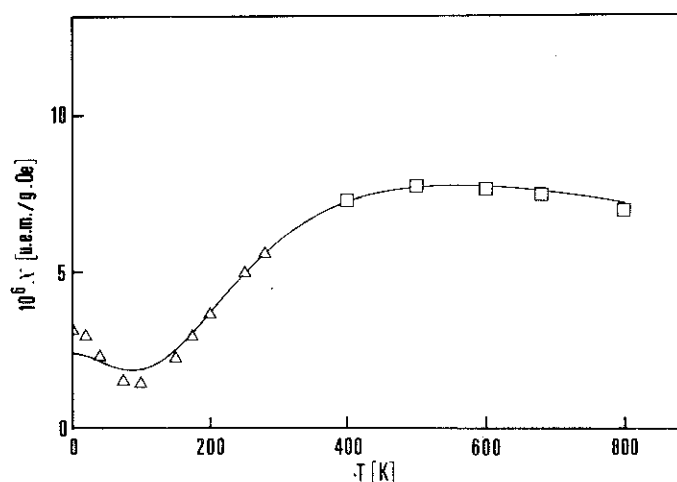


Figure IV-14 : Courbe calculée pour la susceptibilité de FeSi en fonction de la température : Δ nos points expérimentaux, $\square$ d'après Jaccarino et al (JA 67).

Nous prévoyons que l'anisotropie de l'échange entraîne une anisotropie de la résistivité à basse température. En effet, dans ce modèle, à basse température, la conductivité planaire (111) doit résulter de résonances de valence associées aux fluctuations quantiques de spin. Dans l'état fondamental ($|+->+|->>$), la condition de parallélisme des spins dans le plan conduit de proche en proche à une propagation de la fluctuation de valence.

L'anisotropie de l'échange peut avoir plusieurs origines, notamment une anisotropie du superéchange ou bien la superposition d'un superéchange isotrope J et d'un double échange associé aux plans triangulaires $-(1-\alpha)J$. La seconde de ces possibilités semble plus probable si l'on admet notre hypothèse de fluctuations quantiques de charges dans FeSi. Le double échange a été proposé par Zener (ZE 51a), puis étudié par Anderson et Hasegawa (AN 55) et De Gennes (DE 60). Ce mécanisme nécessite :

- 1) la présence de porteurs mobiles (par exemple des ions de même nature sur des sites équivalents mais avec des valences différentes,
- 2) la conservation du signe du spin du porteur au cours d'un saut d'une site à l'autre.

Comme Pauling l'a montré (PA 48), il en est ainsi dans FeSi. En effet, à chaque motif triangulaire (3 atomes de fer) est associé un électron d. Cet électron se partage entre les trois atomes de fer ; il saute d'une position à l'autre, ce qui produit des transferts de charges dans le plan. Au cours de ces transferts il y a conservation du signe de spin de l'électron.

A plus haute température, les sauts électroniques sont thermiquement activés. La contribution à la conductivité planaire, σ_q associée aux fluctuations d'origine quantique, diminue au profit d'une conductivité σ_c de type activé. Il n'y a plus de conservation du signe du spin de l'électron transféré. Le double échange tend à disparaître et nous prévoyons alors que ce système devient isotrope à haute température. Les variations thermiques des deux types de conductivité prévus pour FeSi sont :

$$\sigma_q(T) \approx \sigma_q(0) \quad (IV-10)$$

$$\sigma_c(T) \propto \frac{1}{T} e^{-\Delta/k_B T} \quad (IV-11)$$

Dans la représentation $\ln T \sigma$ en fonction de $\frac{1}{T}$ ces deux lois s'écrivent de la façon suivante :

$$\ln T \sigma_q(T) \approx \ln \sigma_q(0) - \ln \frac{1}{T} \quad (IV-12)$$

$$\ln T \sigma_c(T) \propto \frac{1}{T} \quad (IV-13)$$

A haute température la conductivité du type activé donne une variation linéaire de $\ln T \sigma_c(T)$ en fonction de $\frac{1}{T}$ (IV-11). A basse température la conductivité doit présenter une déviation logarithmique (IV-10).

Figure IV-15 on a représenté en traits pointillés les lois (IV-10) et (IV-11) et en trait fort l'allure attendue pour la conductivité dans un plan (111). La courbe obtenue peut être comparée à celle qui a été mesurée par Wolf et al (WO 65) sur des polycristaux de FeSi. On peut remarquer que le changement de pente se produit vers 100 K.

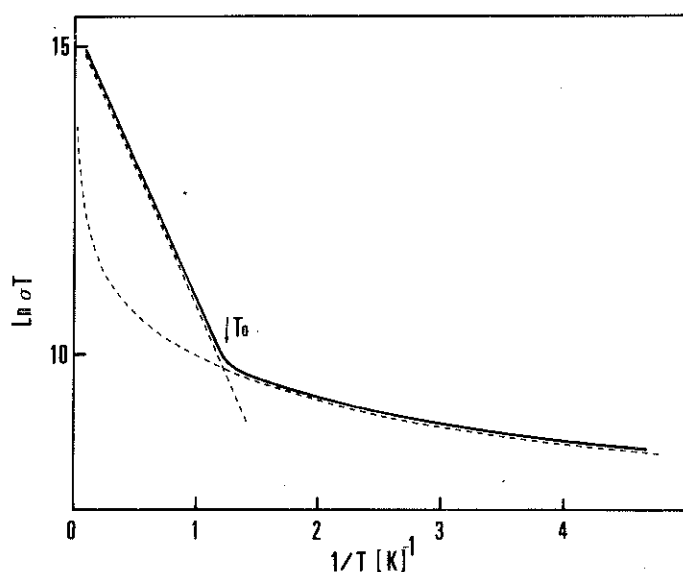


Figure IV-15 : Schéma de la variation thermique que nous prévoyons pour la conductivité planaire dans le cadre de la théorie des valences résonantes.

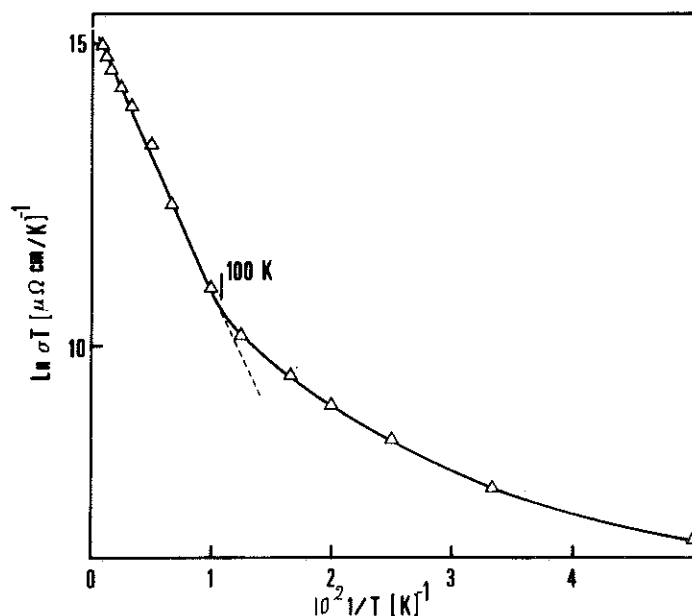


Figure IV-16 : Variation thermique expérimentale de la conductivité de FeSi polycristallin dans l'échelle de $\ln T \sigma$ en fonction de $\frac{1}{T}$ (d'après Wolf et al (WO 65)).

En conclusion, le composé FeSi est le premier exemple de matériaux dont les propriétés physiques peuvent s'expliquer dans leur ensemble par la théorie de valences résonantes proposée par L. Pauling, puis développée par P.W. Anderson.

b - Alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$

Nous présentons figure IV-17 l'inverse de la susceptibilité sous champ fort en fonction de la température pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ dans toute la gamme de la concentration.

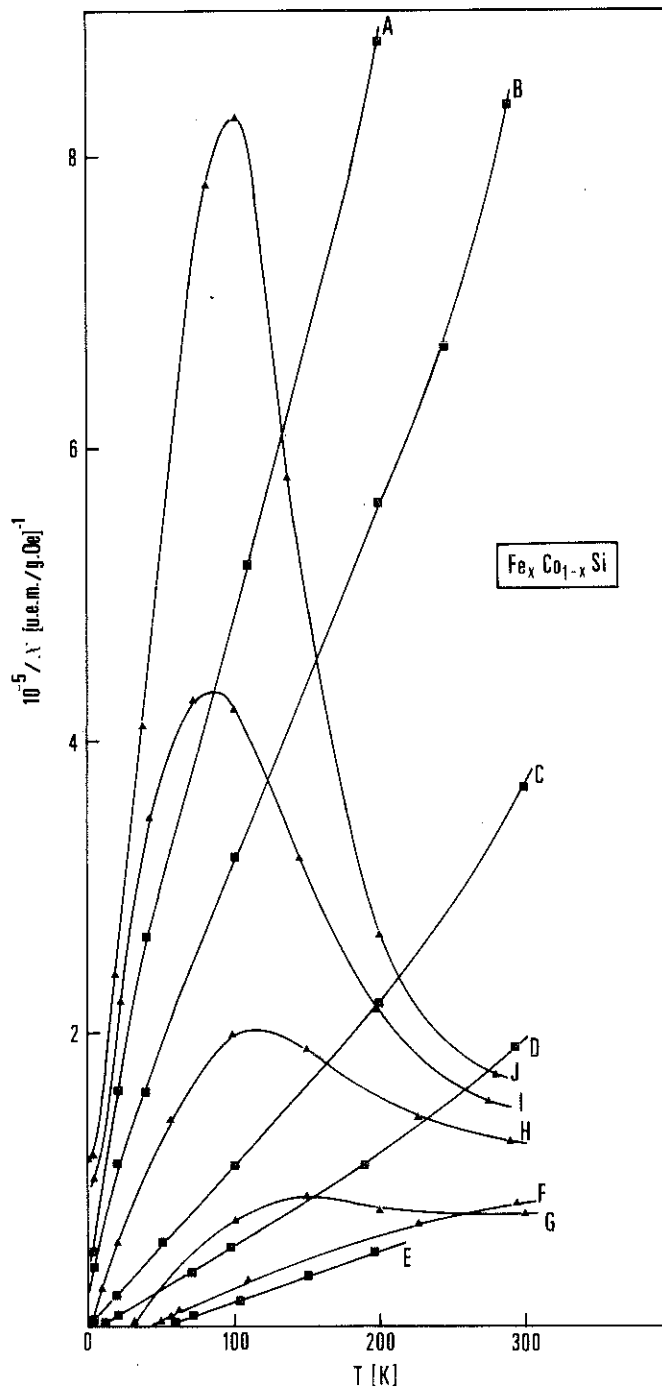


Figure IV-17 : Inverse de la susceptibilité paramagnétique de divers alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ en fonction de la température :
 $x = 0,05$ (A) ; $0,1$ (B) ;
 $0,2$ (C) ; $0,3$ (D) ;
 $0,5$ (E) ; $0,8$ (F) ;
 $0,9$ (G) ; $0,95$ (H) ;
 $0,98$ (I) ; $1,0$ (J).

Les alliages correspondant à $x = 0,98, 0,95$ et $0,9$ présentent un maximum dans la courbe $\frac{1}{\chi(T)}$, entre 100 et 200 K. Ce maximum est lié aux propriétés de FeSi. Pour les alliages de concentration $x < 0,8$, les susceptibilités paramagnétiques présentent une allure de Curie-Weiss.

Nous avons porté figure IV-18 le moment magnétique à haute température q_c par atome de cobalt pour $x < 0,2$ et le moment magnétique à basse température q_s par atome de cobalt dans la zone ferromagnétique ($0,2 < x < 0,95$).

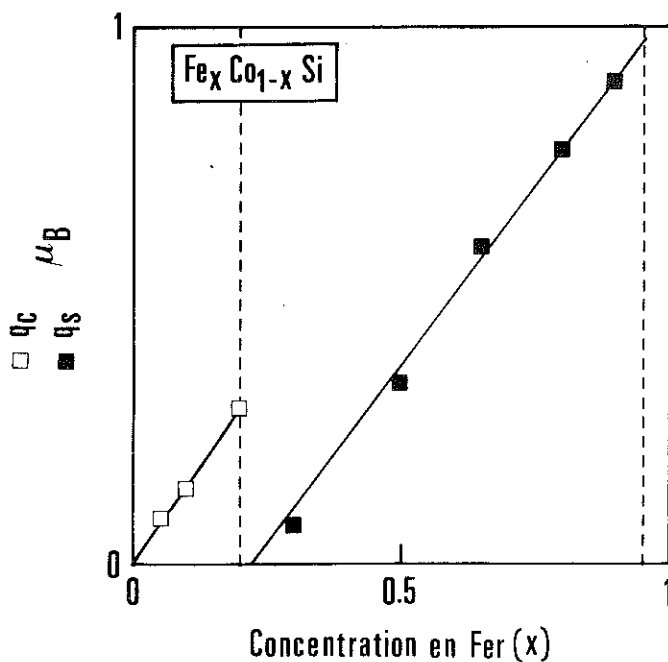


Figure IV-18 : Variation en fonction de la concentration de q_c et q_s par atome de cobalt pour $Fe_xCo_{1-x}Si$.

q_c et q_s augmentent linéairement en fonction de la concentration en fer. Cette variation de q_c et q_s est compatible avec un modèle où les moments sont portés par le cobalt avec une valeur proportionnelle à la concentration en fer.

c - Les alliages $Fe_xCo_{1-x}Ti$

On donne figure IV-19 les courbes représentant l'inverse de la susceptibilité initiale déduite des mesures sous champ fort ($\chi(0,T)$ est la limite de $\chi(H,T)$ quand H tend vers 0) pour divers alliages correspondants.

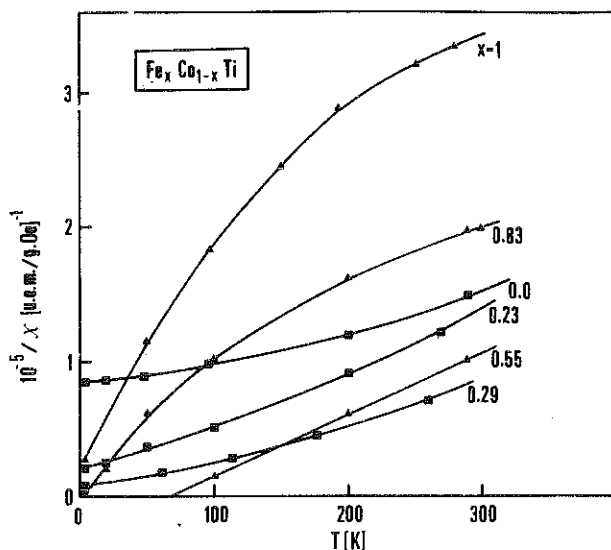


Figure IV-19 : Inverse de la susceptibilité paramagnétique de divers alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ en fonction de la température.

Pour FeTi la courbe peut se décomposer sous la forme de la somme d'une susceptibilité constante de Pauli et d'une susceptibilité paramagnétique. Les courbes d'aimantation (figure IV-20) montrent que le comportement de FeTi est du type superparamagnétique.

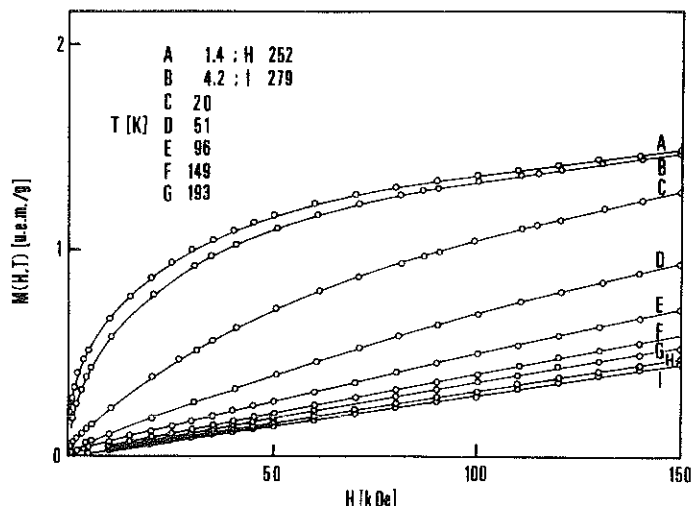


Figure IV-20 : Courbe d'aimantation de FeTi en fonction du champ magnétique entre 1,4 et 279 K.

D'après Ikeda et al (IK 74), les courbes d'aimantation pour les alliages $\text{Fe}_{1-x}\text{Ti}_{1+x}$, près de la stoechiométrie mettent en évidence des amas de l'ordre de $12 \mu_B$ avec une concentration de 10^{-2} /atome. L'origine de ces amas pourrait être due à des traces de phase de Laves

ou à des parois d'antiphases de structure CsCl produites par une formation péritectique de ces composés. Les expériences d'effet Mössbauer de Narayanasamy et al (NA 77) sur les alliages $\text{Fe}_{1-x}\text{Ti}_{1+x}$ mettent en évidence un élargissement de raie compatible avec l'existence d'amas paramagnétiques.

Les alliages paramagnétiques riches en fer présentent une allure identique pour $\frac{1}{\chi(T)}$ (figure IV-19). Les alliages ferromagnétiques ont une susceptibilité de type Curie-Weiss comme il est fréquent de le rencontrer dans le cas des alliages faiblement ferromagnétiques itinérants. Le nombre de porteurs magnétiques par atome de transition augmente linéairement avec la concentration en cobalt. Pour les alliages paramagnétiques riches en cobalt et en particulier pour CoTi , $\frac{1}{\chi(T)}$ varie approximativement en T^2 comme on le prévoit dans le cas d'une susceptibilité du type Pauli.

En conclusion, les mesures de chaleur spécifique, d'aimantation à basse température et de susceptibilité paramagnétique constituent des données physiques importantes pour comprendre le comportement magnétique des deux séries d'alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$. En particulier, les anomalies dans la susceptibilité de FeSi ont mis en évidence les propriétés de valence résonante de ce composé.

C H A P I T R E V

DISCUSSION DE L'ORIGINE DU MAGNÉTISME DANS

LES DEUX SÉRIES D'ALLIAGES

V-1 - INTRODUCTION

Nous avons observé pour les alliages ferromagnétiques riches en cobalt :

- 1 - une forte valeur de la susceptibilité initiale ferromagnétique et de la susceptibilité sous champ fort (150 kOe),
- 2 - des effets de pression importants sur la température de Curie et l'aimantation spontanée,
- 3 - des courbes d'aimantation $M(H)$ qui présentent ni saturation ni une susceptibilité constante.

La susceptibilité ferromagnétique initiale et sous champ et les effets de pression sur la température de Curie et l'aimantation spontanée sont beaucoup plus faibles pour les alliages riches en fer. Par ailleurs, les courbes d'aimantation présentent pour ces alliages une allure caractéristique d'un comportement plus local.

V-2 - $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$

Les expériences d'effet Mössbauer sur ces alliages (BE 67, SW 68, MA 78) ont montré qu'il n'y avait pas de champ hyperfin sur le fer. Ceci suggère un magnétisme local sur les atomes de cobalt dans les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$. A la suite des précédents travaux de Ruderman et

Kittel (RU 54), de Zener (ZE 51) et Yoshida (YO 56), Friedel et al (FRI 61), Lederer et Blandin (LE 66) ont discuté de l'apparition d'une polarisation de spins sur certains sites (critère local) sous l'effet des interactions d'échange. Le critère local pour le magnétisme est $UN(E_F) \geq 1$, où U et $N(E_F)$ sont l'énergie efficace de répulsion coulombienne et la densité d'états au niveau de Fermi sur le site considéré. Les propriétés magnétiques varient avec le rapport λ/d où λ est le rayon de la sphère de polarisation positive et d est la distance interatomique. Le cas $\frac{\lambda}{d} \gg 1$ (fort recouvrement des sphères de polarisation) est essentiellement le modèle de bande classique de Stoner. Lorsque le critère de Stoner local est vérifié avec $\frac{\lambda}{d} < 1$ les moments doivent être peu couplés, correspondant à des critères de magnétisme plus local, de type Langevin. Pour $\frac{\lambda}{d} \ll 1$, le ferromagnétisme peut disparaître par apparition de couplages ferro- et antiferromagnétiques.

Le cobalt pourrait être magnétique dans FeTi en accord avec le fort renforcement d'échange de la susceptibilité obtenue pour FeTi ($\frac{\chi}{\gamma} = 9$), par contre le fer dans CoTi serait non magnétique, en accord avec la faible valeur du rapport $\frac{\chi}{\gamma}$ trouvée pour CoTi ($\frac{\chi}{\gamma} = 1,5$). Quand le fer est substitué à des atomes de Co dans CoTi, la densité d'états moyenne sur les sites de Co augmente. Pour $x \approx 0,4$ le critère de Stoner local pour le magnétisme sur les sites de Co est vérifié. Ce cas peut correspondre à $\frac{\lambda}{d} \gg 1$ car le comportement des alliages est celui du faible ferromagnétique itinérant (forte susceptibilité, forts effets de la pression...). Lorsque la concentration en cobalt diminue, des caractères locaux apparaissent qui peuvent être liés à la diminution du rapport $\frac{\lambda}{d}$. Pour $x \approx 0,8$ le rapport $\frac{\lambda}{d}$ peut être tel que les moments soient suffisamment découplés pour donner naissance à un paramagnétisme de type Langevin. Théoriquement lorsque $\frac{\lambda}{d}$ diminue encore par dilution en cobalt on doit pouvoir obtenir un état de verre de spin. On a cherché à mettre cet état en évidence. Nous avons fait des mesures de susceptibilité initiale en courant alternatif sur des alliages de concentration $0,8 < x < 1$ et nous n'avons pas remarqué de maximum caractéristique des verres de spin. D'autre part nous n'avons pas remarqué non plus d'anomalie dans la courbe de chaleur spécifique à basse température pour ces alliages.

L'état de verre de spin pour les alliages très dilués en cobalt peut être détruit par l'apparition du phénomène qui donne naissance au superparamagnétisme dans FeTi (présence de phases de Laue ou d'anti-phases due à la réaction péritectique pour la formation de FeTi). La présence des moments localisés dans les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ riches en Fe est mise en évidence par les remontées à basse température de la résistivité observées sur ces alliages (HI 78).

V-3 - $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$

Pour ces alliages, d'après les expériences de résonance magnétique nucléaire (KA 72) et d'effet Mössbauer (WE 66) les atomes de cobalt magnétique sont ceux qui ont un atome de fer parmi les atomes de transitions proches voisins. Le moment moyen déterminé pour les atomes de cobalt est du même ordre de grandeur que celui des atomes de fer. Le modèle de couplage par l'intermédiaire des sphères de polarisation (FRI 61, LE 66) invoqué pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ peut être applicable aux alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$, mais en considérant des sphères de polarisation plus grandes. Ceci explique que la zone pour le ferromagnétisme est beaucoup plus large.

En raison du caractère local de FeSi et des effets de voisinage mis en évidence par les expériences de résonance magnétique nucléaire, nous avons analysé l'aimantation spontanée des alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ dans un modèle du type Jaccarino-Walker (JA 65). On a considéré que les atomes de cobalt sont magnétiques et couplés ferromagnétiquement s'ils ont au moins n atomes de fer parmi leurs 6 atomes de transition proches voisins. D'autre part, on a pris un moment pour les atomes de cobalt magnétiques proportionnel à la concentration en fer ($\mu_{\text{Co}} = \mu x$), ce qui est suggéré par le fait que q_s/cobalt est proportionnel à x (figure IV-

$$M(0,0) = \mu x (1-x) \sum_{k=n}^6 C_6^k x^k (1-x)^{6-k} \quad (\text{V-1})$$

où $M(0,0)$ est l'aimantation spontanée.

Nous avons fitté les points expérimentaux de l'aimantation spontanée avec la formule (V-1) en prenant $n = 3$ et $\mu = 1 \mu_B$ (figure V-1).

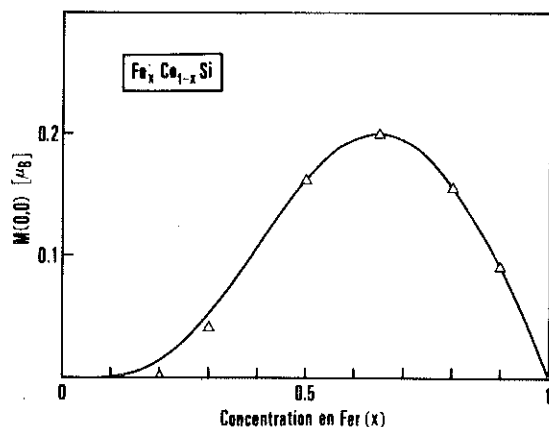


Figure V-1 : Courbe théorique calculée pour la variation de $M(0,0)$ avec la concentration dans un modèle de Jaccarino-Walker (trait fort) et aimantation spontanée mesurée $M(0,0)$ (Δ), pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$.

Pour les alliages ferromagnétiques riches en Fe ($x = 0,65, 0,8, 0,9$) on a observé des courbes d'aimantation à 4,2 K qui ont une allure semblable à celle observée pour MnSi. On présente (figures V-2 et V-3) pour l'alliage $\text{Fe}_{0,9}\text{Co}_{0,1}\text{Si}$ la courbe d'aimantation à 4,2 K et le tracé d'Arrott correspondant. En dessous de 500 Oe, l'aimantation est proportionnelle au champ.

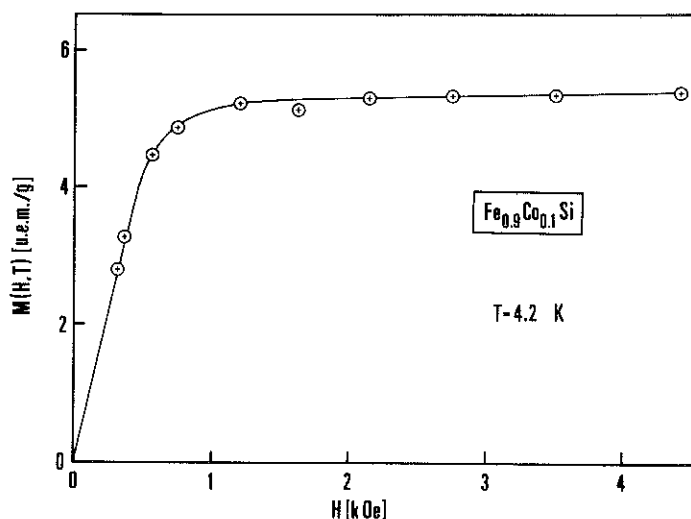


Figure V-2 : Courbe d'aimantation à 4,2 K pour $\text{Fe}_{0,9}\text{Co}_{0,1}\text{Si}$.

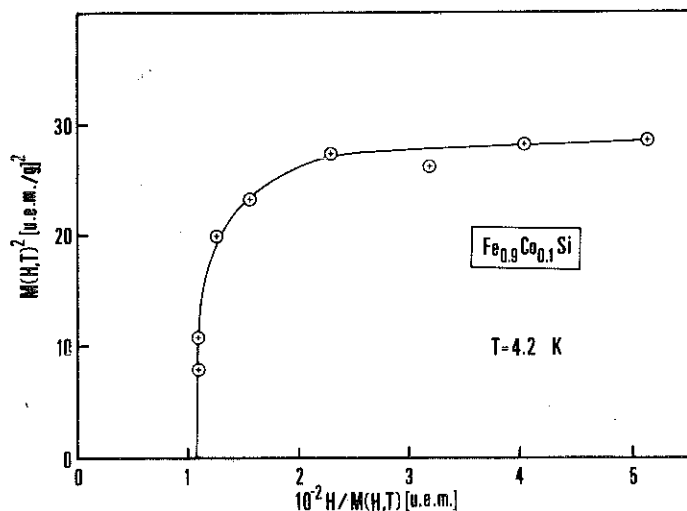


Figure V-3 : Tracé de M^2 en fonction de H/M pour $\text{Fe}_{0,9}\text{Co}_{0,1}\text{Si}$.

Nous pensons que les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$, riches en Fe, sont héli-magnétiques à bas champ comme MnSi. La susceptibilité héli-magnétique trouvée pour $\text{Fe}_{0,9}\text{Co}_{0,1}\text{Si}$ est de $8,7 \cdot 10^{-3}$ u.e.m./g Oe, à comparer à celle de MnSi ($4,5 \cdot 10^{-3}$ u.e.m./g Oe). Ce comportement à faible champ a été observé pour les alliages correspondants à $x = 0,65$ ($\chi = 5,0 \cdot 10^{-3}$ u.e.m./g Oe), $0,8$ ($\chi = 4,0 \cdot 10^{-3}$ u.e.m./g Oe), $0,9$ ($\chi = 8,7 \cdot 10^{-3}$ u.e.m./g Oe).

Les tracés d'Arrott à toute température obtenus pour $\text{Fe}_{0,9}\text{Co}_{0,1}\text{Si}$ sont tout à fait comparables à ceux obtenus pour MnSi (figure V-4).

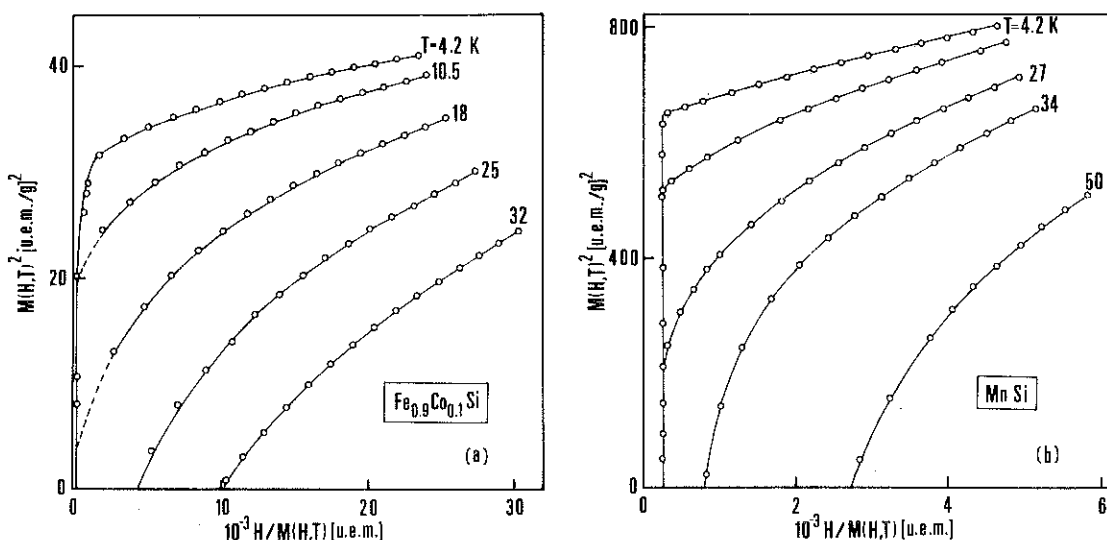


Figure V-4 : Tracés d'Arrott à diverses températures pour (a) $\text{Fe}_{0,9}\text{Co}_{0,1}\text{Si}$, (b) MnSi.

Pour s'assurer de la structure hélimagnétique de ces composés nous devons réaliser des études de diffraction des neutrons. Il reste à expliquer par quel mécanisme physique l'introduction des atomes de cobalt modifie l'état de base de FeSi pour l'état de base hélimagnétique observé.

C O N C L U S I O N

Nous avons réalisé l'automatisation d'un ensemble expérimental de mesures d'aimantation sous pression hydrostatique à l'aide d'un système à base de microprocesseurs.

Nous avons utilisé ce système expérimental pour l'étude d'alliages désordonnés $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ et $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$. Nous avons montré que les propriétés magnétiques du composé FeSi pouvaient s'interpréter dans le cadre de la théorie des "Valences Résonantes" proposée par L. Pauling et développée par P.W. Anderson. En particulier nous avons pu calculer la variation thermique de la susceptibilité et expliquer l'allure de la variation thermique de la résistivité.

L'ensemble de nos résultats expérimentaux nous a amené à décrire les deux séries d'alliages dans le cadre d'un modèle développé par Friedel et al. (FRI 61) et Lederer et Blandin (LE 66). Le moment serait porté par les atomes de cobalt et le couplage par l'intermédiaire des sphères de polarisation dépendrait de la concentration. Par ce modèle on peut expliquer la nature différente des deux concentrations critiques :

- caractère de faible ferromagnétisme itinérant pour les alliages riches en cobalt,
- caractères plus locaux pour les alliages plus concentrés en fer.

Nous nous proposons d'étudier dans une étape ultérieure :

- pour FeSi :
 - a - l'anisotropie de la susceptibilité et de la résistivité d'un monocristal,

- pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$:
 - a - l'ordre hélimagnétique attendu pour les alliages concentrés en fer par diffusion des neutrons,
 - b - le comportement magnétique sous pression dans le domaine des 100 kbar.
- pour les alliages $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$:
 - a - le comportement magnétique dans le domaine des 100 kbar.

A P P E N D I C E

CALCUL DE LA SUSCEPTIBILITÉ ASSOCIÉE À UNE PAIRE DE SPINS

DANS LE CAS D'UN ÉCHANGE ANISOTROPE

A-1 - FORME GENERALE DE LA SUSCEPTIBILITE POUR UN POLYCRISTAL

Pour un cristal parfait, de susceptibilité $\overleftrightarrow{\chi}$ dans un champ $\vec{h}$, l'énergie est donnée par :

$$E = - \frac{1}{2} \vec{h} \cdot \overleftrightarrow{\chi} \cdot \vec{h} \quad (A-1)$$

où :

$$\overleftrightarrow{\chi} = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{bmatrix} \quad (A-2)$$

Dans le repère des axes principaux de la susceptibilité :

$$\chi_{xx} = \chi_x ; \chi_{yy} = \chi_y ; \chi_{zz} = \chi_z \text{ et } \chi_{ij} = 0 \quad (i \neq j).$$

Si $\vec{h}$ a pour cosinus directeurs (l, m, n) par rapport aux axes principaux, la susceptibilité χ dans la direction du champ pour un monocristal s'écrit :

$$\chi = \chi_x l^2 + \chi_y m^2 + \chi_z n^2 \quad (A-3)$$

et la susceptibilité $\bar{\chi}$ pour un polycristal sera :

$$\bar{\chi} = \chi_x \bar{l}^2 + \chi_y \bar{m}^2 + \chi_z \bar{n}^2 \quad (A-4)$$

avec $\bar{l}^2 = \bar{m}^2 = \bar{n}^2 = \overline{\cos^2 \theta} = \frac{1}{3}$

$$\boxed{\bar{\chi} = \frac{1}{3} (\chi_x + \chi_y + \chi_z)} \quad (A-5)$$

(χ_x, χ_y, χ_z sont les valeurs propres de $\overleftrightarrow{\chi}$).

A-2 - CALCUL DES ELEMENTS DE TENSEUR DE LA SUSCEPTIBILITE χ

Le système est décrit à l'aide de l'Hamiltonien suivant :

$$H = JS_1^z S_2^z + J \frac{\alpha}{2} (S_1^+ S_2^- + S_2^+ S_1^-) \quad (A-6)$$

a - h // Oz

L'Hamiltonien A-6 s'écrit :

$$H = JS_1^z S_2^z + J \frac{\alpha}{2} (S_1^+ S_2^- + S_2^+ S_1^-) - h(S_1^z + S_2^z) \quad (A-7)$$

$$H = \begin{matrix} |++\rangle \\ |+-\rangle \\ |-+\rangle \\ |--\rangle \end{matrix} \begin{vmatrix} \frac{J}{4} - h & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{J}{4} & \frac{J\alpha}{2} & 0 \\ 0 & \frac{J\alpha}{2} & -\frac{J}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{J}{4} + h \end{vmatrix} \quad (A-8)$$

On en déduit :

valeur propre

fonction propre

$$\lambda_{1z} = \frac{J}{4} + h$$

$$\psi_{1z} = |++\rangle$$

$$\lambda_{2z} = \frac{J}{4} - h$$

$$\psi_{2z} = |--\rangle$$

$$\lambda_{3z} = -\frac{J}{4} + \frac{\alpha J}{2}$$

$$\psi_{3z} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+-\rangle + |-+\rangle)$$

$$\lambda_{4z} = -\frac{J}{4} - \frac{\alpha J}{2}$$

$$\psi_{4z} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+-\rangle - |-+\rangle)$$

$$Z_z = \sum_i \exp(-\beta \lambda_{iz}) \quad (A-9)$$

où

$$\beta = \frac{1}{k_B T}$$

$$\langle m_{zz} \rangle = \frac{\sum_i \langle \psi_i | S_1^z + S_2^z | \psi_i \rangle \exp(-\beta \lambda_{iz})}{Z} = \frac{e^{-\beta \lambda_{1z}} - e^{-\beta \lambda_{2z}}}{Z}$$

$$\langle m_{zz} \rangle = \frac{\frac{\sinh \beta h}{\beta J}}{\cosh \beta h + e^{\frac{\beta J}{2}} \cosh \frac{\beta J \alpha}{2}} \quad (A-10)$$

$$\langle m_{zx} \rangle = \frac{\sum_i \langle \psi_i | \frac{S_1^+ + S_1^- + S_2^+ + S_2^-}{2} | \psi_i \rangle \exp(\beta \lambda_{iz})}{Z} = 0 \quad (A-11)$$

$$\langle m_{zy} \rangle = \frac{\sum_i \langle \Psi_i | \frac{S_1^+ - S_1^- + S_2^+ - S_2^-}{2i} | \Psi_i \rangle \exp(-\beta \lambda_{iz})}{Z} = 0 \quad (A-12)$$

$$\chi = \frac{\partial \langle m \rangle}{\partial h} \quad (A-13)$$

$$\chi_{zz} = \frac{\beta (\text{ch} \beta h \text{ ch } \frac{\beta J \alpha}{2} + e^{-\frac{\beta J}{2}})}{(e^{-\frac{\beta J}{4}} \text{ch } h + e^{\frac{\beta J}{4}} \text{ch } \frac{\beta J \alpha}{2})^2} \quad (A-14)$$

$$\chi_{zx} = \chi_{zy} = 0$$

b - h // Ox ou h // Oy

L'Hamiltonien A-6 s'écrit :

$$H = J S_1^z S_2^z + J \frac{\alpha}{2} (S_1^+ S_2^- + S_2^+ S_1^-) - \frac{h}{2} (S_1^+ + S_1^- + S_2^+ + S_2^-) \quad (A-15)$$

$$H = \begin{vmatrix} \frac{J}{4} & -\frac{h}{2} & -\frac{h}{2} & 0 \\ -\frac{h}{2} & -\frac{J}{4} & \frac{J\alpha}{2} & -\frac{h}{2} \\ -\frac{h}{2} & \frac{J\alpha}{2} & -\frac{J}{4} & -\frac{h}{2} \\ 0 & -\frac{h}{2} & -\frac{h}{2} & \frac{J}{4} \end{vmatrix} \quad (A-16)$$

les valeurs propres sont données par :

$$\begin{vmatrix} 2(\frac{J}{4} - \lambda) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & J(-\frac{J}{4} - \frac{J\alpha}{2} - \lambda) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2(-\frac{J}{4} + \frac{J\alpha}{2} - \lambda) & -2h \\ 0 & 0 & -2h & 2(\frac{J}{4} - \lambda) \end{vmatrix} = 0 \quad (A-17)$$

On en déduit pour $|\alpha| \ll 1$:

valeur propre

fonction propre

$$\lambda_{1x} = \frac{J}{4}$$

$$\Psi_{1x} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|++> - |-->)$$

$$\lambda_{2x} = \frac{J}{4} + \frac{2h^2}{J(1-\alpha)}$$

$$\Psi_{2x} = X(|+-> + |-+>) + Y(|++> + |-->)$$

$$\lambda_{3x} = \frac{J}{4} + \frac{J\alpha}{2} - \frac{2h^2}{J(1-\alpha)}$$

$$\Psi_{3x} = Y(|+-> + |-+>) - X(|++> + |-->)$$

$$\lambda_{4x} = -\frac{J}{4} - \frac{J\alpha}{2}$$

$$\Psi_{4x} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+-> - |-+>)$$

$$X = \frac{J^2(1-\alpha)^2}{J^2(1-\alpha)^2 + 2h^2\sqrt{2}} \frac{1}{\sqrt{2}} ; \quad Y = \frac{2hJ(1-\alpha)}{J^2(1-\alpha)^2 + 2h^2\sqrt{2}} \frac{1}{\sqrt{2}}$$

$$Z_x = \sum_i \exp(-\beta\lambda_{ix}) \quad (A-18)$$

$$\langle m_{xz} \rangle = \frac{\sum_i \langle \Psi_{ix} | S_1^z + S_2^z | \Psi_{ix} \rangle \exp(-\beta\lambda_{ix})}{Z_x} = 0 \quad (A-19)$$

$$\langle m_{xy} \rangle = \frac{\sum_i \langle \Psi_{ix} | \frac{S_1^+ - S_1^- + S_2^+ - S_2^-}{2i} | \Psi_{ix} \rangle \exp(-\beta\lambda_{ix})}{Z_x} = 0 \quad (A-20)$$

$$\langle m_{xx} \rangle = \frac{\sum_i \langle \Psi_{ix} | \frac{S_1^+ + S_1^- + S_2^+ + S_2^-}{2} | \Psi_{ix} \rangle \exp(-\beta\lambda_{ix})}{Z_x} = \frac{4xy e^{-\beta\lambda_{2x}} - 4xy e^{-\beta\lambda_{3x}}}{Z_x}$$

$$\langle m_{xx} \rangle = \frac{\frac{4h}{J(1-\alpha)} e^{-\frac{\beta\alpha J}{4}} \text{sh } B}{e^{\frac{\beta\alpha J}{4}} \text{ch } B + e^{-\frac{\beta\alpha J}{4}} \text{ch } A} \quad (A-21)$$

$$\chi_{xy} = \chi_{xz} = 0$$

$$\chi_{xx} = \frac{\langle m_{xx} \rangle}{h} + \frac{\beta \left| \frac{4h}{J(1-\alpha)} \right|^2 \text{ch } A \text{ch } B + e^{-\frac{\beta\alpha J}{2}}}{\left(e^{\frac{\beta\alpha J}{4}} \text{ch } B + e^{-\frac{\beta\alpha J}{4}} \text{ch } A \right)^2} \quad (A-22)$$

$$\text{où } A = \frac{\beta J}{4} (1+\alpha) ; \quad B = \frac{\beta J}{4} (1-\alpha) + \frac{2\beta h^2}{J(1-\alpha)}$$

Pour $h \parallel Oy$ de la même façon, nous avons :

$$\chi_{yx} = \chi_{yz} = 0 \quad \text{et} \quad \chi_{yy} = \chi_{xx}$$

$$\overleftrightarrow{\chi} = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{bmatrix}$$

$$\chi_x = \chi_{xx} \quad ; \quad \chi_y = \chi_{yy} = \chi_{xx} \quad ; \quad \chi_z = \chi_{zz}$$

Nous avons :

$$\overline{\chi} = \frac{2}{3} \chi_x + \frac{1}{3} \chi_z$$

(A-23)

R É F É R E N C E S

- (AL 74) ALBERTS H.L., BEILLE J., BLOCH D. et WOHLFARTH E.P.
Phys. Rev., 9, 2233, 1974.
- (AN 55) ANDERSON P.W. et HASEGAWA H.
Phys. Rev., 100, 675, 1955.
- (AN 73) ANDERSON P.W.
Mater. Res. Bull., 8, 153, 1973.
- (AS 73) ASADA Y. et NOSE H.
J. Phys. Soc. Japan, 35, 409, 1973.
- (BA 70) BARTHOLIN H.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1970.
- (BE 55) BENOIT R.
J. Chim. Phys., 52, 119, 1955.
- (BE 67) BENNETT L.H. et SWARTZENDRUBER L.J.
Phys. Lett., 24A, 359, 1967.
- (BE 68) BENNETT L.H., SWARTZENDRUBER L.J. et WATSON R.E.
Phys. Rev., 165, 500, 1968.
- (BE 72) BEILLE J., ALBERTS H.L., BARTHOLIN H., BLOCH D. et VETTIER C.
C.R. Acad. Sc. Paris, B275, 719, 1972.
- (BE 75) BEILLE J.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1975.
- (BE 77) BEILLE J., BLOCH D., JACCARINO V., WERNICK J.J. et WERTHEIM G.K.
J. de Physique, 38, 339, 1977.
- (BE 78) BEILLE J., BLOCH D. et TOWFIQ F.
Sol. Stat. Commun., 25, 57, 1978.
- (BLO 65) BLOCH D.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1965.

- (BLO 75) BLOCH D., VOIRON J., JACCARINO V. et WERNICK J.H.
Phys. Lett., 51A, 362, 1975.
- (CLE 52) CLEMENT J.R. et QUINNELL E.H.
Rev. Sci. Instr., 2, 213, 1952.
- (DE 60) DE GENNES P.G.
Phys. Rev., 118, 141, 1960.
- (DE 67) DE SAVAGE B.F. et GOFF J.F.
J. Appl. Phys., 38, 1337, 1967.
- (ED 62) EDWARDS D.M.
Proc. Roy. Soc., A269, 338, 1962.
- (ED 68) EDWARDS D.M. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., A303, 127, 1968.
- (FA 74) FAZEKAS P. et ANDERSON P.W.
Phil. Mag., 30, 423, 1974.
- (FLO 76) FLORENCE D.
Thèse Docteur-Ingénieur, Université de Grenoble, 1976.
- (FO 38) FOEX M.G.
J. Phys. Radium, 9, 37, 1938.
- (FRI 61) FRIEDEL J., LEMAN G. et OLSZEWSKI S.
J. Appl. Phys., 32, 3258, 1961.
- (GU 74) GUERTIN R.P. et FONER S.
Rev. Sci. Instr., 45, 863, 1974.
- (HE 51) HERRING C. et KITTEL C.
Phys. Rev., 81, 869, 1951.
- (HI 77) HILSCHER G., BUIS N. et FRANSE J.J.M.
Physica, 91B, 170, 1977.
- (HI 78) HILSCHER G. et GRATZ E.
Phys. Stat. Sol., A48, 473, 1978.
- (IK 74) IKEDA K., NAKAMICHI T. et YAMAMOTO M.
J. Phys. Soc. Japan, 37, 652, 1974.

- (JA 65) JACCARINO B. et WALKER L.R.
Phys. Rev. Lett., 15, 258, 1965.
- (JA 67) JACCARINO B., WERTHEIM G.K., WERNICK J.H., WALKER L.R. et ARAJS S.
Phys. Rev., 160, 476, 1967.
- (KA 72) KAWARAZAKI S., YASUOKA H. et NAKAMURA Y.
Sol. Stat. Commun., 10, 919, 1972 ; 11, 81, 1972.
- (KA 76) KAWARAZAKI S., YASUOKA H., NAKAMURA Y. et WERNICK J.H.
J. Phys. Soc. Japan, 41, 1171, 1976.
- (KNA 72) KNAPP G.S. et JONES R.W.
Phys. Rev., B6, 1761, 1972.
- (LA 58) LANDAU L.D. et LIFSHITZ E.M.
"Statistical Physics", Pergamon Press, N. York, 1958.
- (LE 66) LEDERER P. et BLANDIN A.
Phil. Mag., 14, 363, 1966.
- (MA 78) MASSENET O.
Communication privée.
- (ME 69) MENYUK N., KAFALAS J.A., DWIGHT K. et GOODENOUGH J.B.
J. Appl. Phys., 40, 1324, 1969.
- (ME 76) MEZEI F., SCHWEIZER J., JACCARINO V. et WERNICK J.H.
Sol. Stat. Commun., 20, 533, 1976.
- (MO 75) MONTANO P.A., SHNFIELD Z. et BARRET P.H.
Phys. Rev., B11, 3302, 1975.
- (NA 77) NARAYANASAMY A., ERICSSON T., NAGARAJAN T. et MUTHUKUMARASAMY P.
Phys. Stat. Sol., 42, K65, 1977.
- (PA 48) PAULING L. et SOLDATE A.M.
Acta Cryst., 1, 212, 1948.
- (PA 75) PANFILOV A.S., PIVOVAR T.L., SVECHKAREV I.V., GELD P.V. et SIDORENKO F.A.
J. Phys. Exp. et Théo., T68, 2134, 1975.

- (PE 58) PEARSON W.B.
"Lattice spacings and structures of metals and alloys",
Pergamon Press, New York, 1958.
- (PE 70) PERRIER J.P., TISSIER B. et TOURNIER R.
Phys. Rev. Lett., 24, 313, 1970.
- (PI 68) PICKART S.J., NATHANS R. et MENZINGER F.
J. Appl. Phys., 39, 2221, 1968.
- (RU 54) RUDERMAN M.A. et KITTEL C.
Phys. Rev., A273, 247, 1954.
- (SA 76) SAVAGE R.
16e IMTDR Conf., 143, 1976.
- (SHI 66) SHINODA D. et ASANABE S.
J. Phys. Soc. Japan, 21, 555, 1966.
- (SHI 72) SHINODA D.
Phys. Stat. Sol., 11A, 129, 1972.
- (SHU 65) SHUBINA T.S., SIDORENKO F.A. et GELD P.V.
Fiz. Metal. i Metalloved, 19, 544, 1965.
- (SP 71) SPAIN J.L. et SEGALL S.
Cryogenics, 11, 26, 1971.
- (ST 38) STONER E.C.
Proc. Roy. Soc., A165, 372, 1938.
- (ST 62) STARKE E.A., CHENG C.H. et BECK P.A.
Phys. Rev., 126, 1746, 1962.
- (SW 68) SWARTZENDRUBER L.J. et BENNETT L.H.
J. Appl. Phys., 39, 2215, 1968.
- (WA 63) WATANABE H., YAMAMOTO H. et ITO K.
J. Phys. Soc. Japan, 18, 995, 1963.
- (WA 65) WANNIER G.H.
"Statistical Physics", John Wiley & Sons, Inc. N. York, 276, 1965.
- (WE 65) WERTHEIM G.K., JACCARINO V., WERNICK J.H., SELTCHIK J.A.,
WILLIAMS H.J. et SHERWOOD R.C.
Phys. Lett., 18, 89, 1965.

- (WE 66) WERTHEIM G.K., WERNICK J.H. et BUCHANAN D.N.E.
J. Appl. Phys., 37, 3333, 1966.
- (WE 72) WERNICK J.H., WERTHEIM G.K. et SHERWOOD R.C.
Mat. Res. Bull., 7, 1431, 1972.
- (WI 66) WILLIAMS H.J., WERNICK J.H., SHERWOOD R.C. et WERTHEIM G.K.
J. Appl. Phys., 37, 1256, 1966.
- (WI 76) WILKINSON C., SINCLAIR F. et FORSYTH J.B.
Ve Conf. on "Solid compounds of transition elements",
extended abstract, Uppsala (Suède) 1976.
- (WO 65) WOLFE R., WERNICK J.H. et HASZKO S.E.
Phys. Lett., 19, 449, 1965.
- (WO 69) WOHLFARTH E.P.
J. Phys. C, 2, 68, 1969.
- (WO 71) WOHLLEBEN D. et MAPLE M.B.
Rev. Sci. Instr., 42, 1573, 1971.
- (WO 71a) WOHLFARTH E.P. et BARTEL L.C.
Phys. Lett., 34A, 303, 1971.
- (WO 75) WOHLFARTH E.P.
I.E.E.E. Trans. on Magn., MAG 11, 1638, 1975.
- (YO 56) YOSHIDA K.
Prog. Theor. Phys., 16, 45, 1956.
- (ZA 77) ZAKS R. et Le BEUX P.
"Les microprocesseurs", Sybex-Europe, 1977.
- (ZE 51) ZENER C.
Phys. Rev., 81, 440, 1951 ; 83, 299, 1951.
- (ZE 51a) ZENER C.
Phys. Rev., 82, 403, 1951.
- (ZI 74) ZINOVEVA G.P., ANDREEVA L.P. et GELD P.V.
Phys. Stat. Sol., 23, 711, 1974.

Dernière page d'une thèse

VU

Grenoble, le 12 septembre 1979

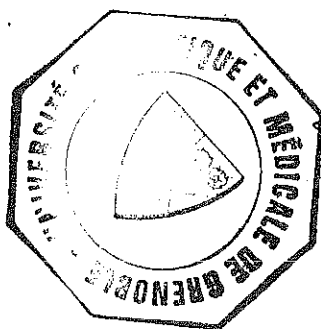
Le Président de la thèse

V. Marlié

Vu, et permis d'imprimer,

Grenoble, le 17 septembre 1979

Le Président de l'Université
Scientifique et Médicale



G. Calu

D3 G. CALU

