

THÈSE

présentée à

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

pour obtenir le grade

DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

José BEILLE

Ingénieur I.E.G.

SUJET

**Contribution à l'étude
de l'apparition du magnétisme
dans les alliages désordonnés
Pt-Ni et Pd-Ni**

Soutenue le 4 février 1975 devant la commission d'Examen

MM. L. NEEL

Président

D. BLOCH

J. FRIEDEL

R. TOURNIER

E.P. WOHLFARTH

Examineurs

M. Michel SOUTIF
M. Gabriel CAU

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

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

PROFESSEURS TITULAIRES

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

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

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	ASCARELLI Gianni	Physique
	CHEEKE John	Thermodynamique
	GILLESPIE John	I.S.N.
	ROCKAFELLAR Ralph	Mathématiques appliquées
	WOHLFARTH Erich	Physique du solide

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mlle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	BELORIZKY Elie	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	BRUGEL Lucien	Energétique
	CARLIER Georges	Biologie végétale
	CONTE René	Physique
	DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GAUTRON René	Chimie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Méd. Préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	JANIN Bernard	Géographie
	JOLY Jean-René	Mathématiques pures
	JULLIEN Pierre	Mathématiques appliquées
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	KUHN Gérard	Physique
	LUU-DUC-Cuong	Chimie Organique
	MAYNARD Roger	Physique du solide
	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
Mlle	PIERY Yvette	Physiologie animale
MM.	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction Mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM.	VIALON Pierre	Géologie
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Héléne	Pharmacodynamique
M.	BILLET Jean	Géographie
	BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHERADAME Hervé	Chimie papetière
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)

MM.	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	CYROT Michel	Physique du solide
	DELOBEL Claude	M.I.A.G.
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures
	GENSAC Pierre	Botanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROS Yves	Physique (stag.)
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	GUITTON Jacques	Chimie
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	KRAKOWIAK Sacha	Mathématiques appliquées
Mme	LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM.	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
Mme	MINIER Colette	Physique
MM.	MICLOUD Max	Maladies infectieuses
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PHÉLIP Xavier	Rhumatologie
	RACHAIL Michel	Médecine Interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
	RENAUD Maurice	Chimie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Bactériologie
M.	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	SHOM Jean Claude	Chimie Générale
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VROUSOS Constantin	Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	CRABBEE Pierre	C.E.R.M.O.
	CABOT	Mathématiques appliquées
	CURRIE Jan	Mathématiques appliquées

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

MM.	BARGE Michel	Neuro-chirurgie
	CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
	CORDONNIER Daniel	Néphrologie
	DENIS Bernard	Cardiologie
	KOLODIE Lucien	Hématologie
	RAMBAUD Pierre	Pédiatrie
	ROCHAT Jacques	Hygiène et hydrologie

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'I.N.P.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité
BESSON Jean	Electrochimie
BONNETAIN Lucien	Chimie Minérale
BONNIER Etienne	Electrochimie, Electrometallurgie
BRISSENEAU Pierre	Physique du solide
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
COUMES André	Radioélectricité
FELICI Noël	Electrostatique
PAUTHENET René	Physique du solide
PERRET René	Servomécanismes
SANTON Lucien	Mécanique
SILBER Robert	Mécanique des Fluides

PROFESSEUR ASSOCIE

M. BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
----------------------	------------------

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BLIMAN Samuel	Electronique
BLOCH Daniel	Physique du solide et Cristallographie
COHEN Joseph	Electrotechnique
DURAND Francis	Métallurgie
MOREAU René	Mécanique
POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
VEILLON Gérard	Informatique fondamentale et appliquée
ZADWORYN François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. BOUVARD Maurice	Génie mécanique
CHARTIER Germain	Electronique
FOULARD Claude	Automatique
GUYOT Pierre	Chimie minérale
JOUBERT Jean Claude	Physique du solide
LACOUME Jean Louis	Géophysique
LANCIA Roland	Physique atomique
LESPINARD Georges	Mécanique
MORET Roger	Electrotechnique nucléaire
ROBERT François	Analyse numérique
SABONNADIERE Jean Claude	Informatique fondamentale et appliquée
Mme SAUCIER Gabrièle	Informatique fondamentale et appliquée

MAITRE DE CONFERENCES ASSOCIE

M. LANDAU Ioan Doré	Automatique
---------------------	-------------

CHARGE DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

M. ANCEAU François	Mathématiques appliquées
--------------------	--------------------------

Fait à St Martin d'Hères JANVIER 1974

A mes parents.

Le présent travail a été effectué au Laboratoire de Magnétisme de Grenoble dirigé par Monsieur le Professeur Néel, Membre de l'Institut, Prix Nobel de Physique. Je lui exprime ma respectueuse gratitude pour m'avoir accueilli dans son Laboratoire et pour l'honneur qu'il me fait en présidant ce Jury de thèse.

Monsieur le Professeur Bloch a proposé et dirigé cette étude. Son enthousiasme a guidé mes débuts dans la recherche. Par ses suggestions et ses encouragements il a fortement stimulé mon travail. Je lui en suis très reconnaissant.

Monsieur le Professeur Wohlfarth a suivi mon travail avec beaucoup d'intérêt. Pendant son séjour au Laboratoire de Magnétisme, il m'a prodigué ses conseils et m'a fait bénéficier de ses idées personnelles sur mon sujet de recherche. Je tiens à le remercier de son aide et de la qualité des rapports humains qu'il a su établir avec les chercheurs du Laboratoire. Sa participation à ce jury est un grand honneur pour moi.

J'exprime ma gratitude à Monsieur le Professeur Friedel pour avoir accepté de participer à ce jury d'examen.

Je remercie vivement Monsieur Tournier, Directeur de Recherches au C.N.R.S., pour les nombreuses discussions que j'ai pu avoir avec lui et par lesquelles il a guidé mon travail. Je lui suis très reconnaissant de participer à ce jury.

J'ai beaucoup apprécié la collaboration amicale de Monsieur G. Chouteau ; son concours scientifique m'a été très profitable.

Monsieur H. Bartholin m'a fait bénéficier de son amitié et de son expérience à mon arrivée au laboratoire, je lui exprime ici ma reconnaissance.

Je remercie particulièrement Monsieur H.L. Alberts de l'aide qu'il m'a apportée, pendant son séjour au Laboratoire de Magnétisme pour la mise au point de l'appareillage expérimental et pour sa participation aux mesures.

De nombreux résultats expérimentaux n'ont pu être obtenus que grâce à la collaboration amicale de mes camarades du Laboratoire. Je tiens à assurer de ma reconnaissance MM. J. Déportes et J.P. Rebouillat pour m'avoir initié à la technique des bobines supraconductrices ainsi que MM. C. Vettier et J. Voiron.

Je remercie les techniciens du Bureau d'Etudes et de l'Atelier Central du Laboratoire, en particulier MM. Danish, Faurin, Treille et Trévisson pour leur participation active à la construction de l'appareillage expérimental. Qu'il me soit permis de rendre hommage au dévouement et à l'efficacité de MM. G. Dampne et S. Pelosi, techniciens de notre laboratoire qui ont contribué à la réussite de ce travail.

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

Je remercie Madame Trévisson pour le travail d'impression et d'assemblage de ce Mémoire.

J'associe à la réussite de ce travail ma femme dont le soutien moral et la compréhension m'ont été d'un secours inestimable.

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

Un des objets de ce travail est l'utilisation de la pression hydrostatique et des champs intenses pour caractériser l'apparition du magnétisme dans les solutions solides désordonnées concentrées d'un métal non magnétique et d'un métal magnétique. Notre étude se limitera au cas des alliages isoélectroniques nickel-platine et nickel-palladium. Le nickel est ferromagnétique, le palladium et le platine sont paramagnétiques, le palladium étant plus proche de l'état ferromagnétique que le platine lui-même. Un des avantages essentiel de l'emploi des pressions hydrostatiques est la possibilité qui en résulte du passage d'un état ferromagnétique à un état paramagnétique par simple modification des distances interatomiques. Au voisinage des concentrations d'apparition du magnétisme, ces alliages présentent des susceptibilités magnétiques très fortes. On s'attend donc, en champ intense, à des effets non linéaires caractéristiques des propriétés électroniques de ces alliages.

Deux types de modèles ont été invoqués pour rendre compte de l'apparition du magnétisme dans les solutions solides désordonnées PdNi et PtNi. Le premier [Be 66, Do 66, Sc 67, Sc 68] traite ces solutions solides désordonnées comme des métaux purs caractérisés par une interaction d'échange moyenne entre électrons d. Le deuxième [Le 66, Le 68] décrit les propriétés des alliages dilués par des effets de renforcement local au site de l'impureté de l'intégrale d'échange de Coulomb intraatomique. Il a été appliqué avec succès aux alliages PdNi [Le 68, Ch 68a, Ch 68b]. Les alliages PdNi plus concentrés ont été décrits par Chouteau et Tournier [Ch 73] dans un modèle local où des groupes d'atomes de nickel, rendus magnétiques par des effets d'environnement, polarisent la matrice de palladium et les atomes de nickel non magnétiques.

L'analyse des variations avec la concentration en nickel des propriétés magnétiques, thermiques et de transport des alliages PdNi permet de juger de la validité des différents modèles invoqués. Ces modèles doivent être également capables de décrire les variations des propriétés physiques des alliages Pd-Ni en fonction de la pression hydrostatique.

Les données physiques caractérisant les alliages PtNi, y compris à la pression atmosphérique, sont incomplètes. Cependant, un comportement magnétique homogène de ces alliages près de la concentration d'apparition du ferromagnétisme [Gi 72, Fe 72] et la possibilité de décrire ces alliages dans une théorie de faible ferromagnétisme itinérant [Be 72, Gi 72] a déjà été suggérée.

La mesure en fonction de la pression hydrostatique des faibles moments des alliages PtNi et PdNi près de la concentration d'apparition du ferromagnétisme, nécessitait une grande sensibilité des mesures d'aimantation et une pression hydrostatique bien définie.

Au premier chapitre, nous décrivons la méthode de mesure d'aimantation choisie pour obtenir une résolution de $2 \cdot 10^{-3}$ u.e.m., sous champ magnétique jusqu'à 65 kOe et à température variable entre 1,2 et 400 K. Nous précisons par ailleurs le procédé mis au point pour produire une pression presque parfaitement hydrostatique à très basse température.

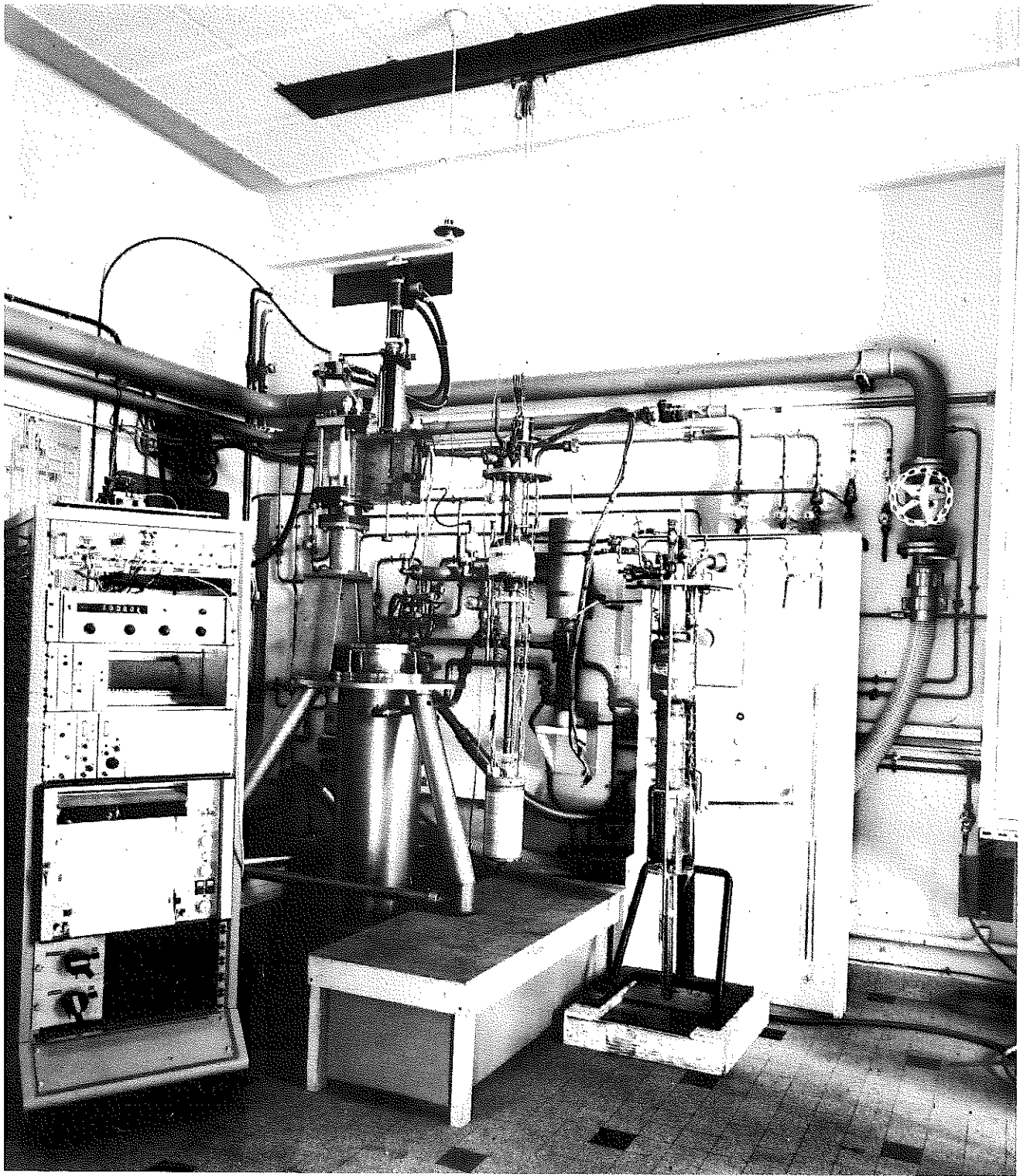
Avant d'entreprendre les mesures d'aimantation sous pression hydrostatique, nous avons précisé les propriétés physiques des alliages PtNi et PdNi à la pression ordinaire. Nous décrivons au deuxième chapitre les mesures d'aimantation réalisées sous champ intense jusqu'à 150 kOe. L'analyse des courbes d'aimantation doit permettre de préciser l'homogénéité ou l'inhomogénéité des alliages en fonction de la concentration. Cette étude, ainsi que celle de l'aimantation spontanée, de la température de Curie et de la susceptibilité en champ fort en fonction de la concentration nous guidera pour le choix de modèles adaptés à la description des alliages étudiés.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude expérimentale et à l'analyse des variations thermiques de l'aimantation spontanée, de la susceptibilité et de la chaleur spécifique des solutions solides PtNi et PdNi.

Dans le dernier chapitre, nous étudions l'effet de la pression hydrostatique sur les propriétés magnétiques des alliages PdNi et PtNi. Nous décrivons en particulier, l'effet de la pression sur l'aimantation spontanée, la température de Curie et la susceptibilité en champ fort de ces alliages. Nous donnons une interprétation des principaux effets observés en utilisant différents modèles pour la description de l'apparition du magnétisme.

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

- [Be 66] BERK N.F. et SCHRIEFFER J.R.
P.R.L., 17, 433, 1966.
- [Be 72] BESNUS M.J. et HERR A.
Phys. Lett., 39A, 83, 1972.
- [Ch 68a] CHOUTEAU G., FOURNEAUX R., GOBRECHT K. et TOURNIER R.
P.R.L., 20, 193, 1968.
- [Ch 68b] CHOUTEAU G., FOURNEAUX R. et TOURNIER R.
P.R.L., 21, 1082, 1968.
- [Ch 73] CHOUTEAU G.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1973.
- [Do 66] DONIACH S. et ENGELSBERG S.
P.R.L., 17, 750, 1966.
- [Fe 72] FERRANDO W.A., SEGNAN R. et SCHINDLER A.I.
Phys. Rev., 5B, 4657, 1972.
- [Gi 72] GILLESPIE D.J. et SCHINDLER A.I.
A.I.P. Conf. Proc., 5, 461, 1972.
- [Le 66] LEDERER P. et BLANDIN A.
Phil. Mag., 14, 363, 1966.
- [Le 68] LEDERER P. et MILLS D.L.
Phys. Rev., 165, 837, 1968.
Phys. Rev. Lett., 19, 1036, 1968.
- [Sc 67] SCHINDLER A.I. et RICE M.J.
Phys. Rev., 164, 759, 1967.
- [Sc 68] SCHINDLER A.I. et MACKLIET C.A.
P.R.L., 20, 15, 1968.



Vue d'ensemble de l'appareillage expérimental
de mesures d'aimantation sous pression hydrostatique

C H A P I T R E I

LES MESURES D'AIMANTATION SOUS PRESSION HYDROSTATIQUE

I-1 - INTRODUCTION

Il n'existe actuellement, dans les laboratoires de Physique du Solide que très peu d'appareillages permettant de mesurer la variation des aimantations ou des susceptibilités avec la pression.

Menyuk et al [Me 69] du Lincoln Laboratory, au Massachussets Institute of Technology mesurent l'aimantation à l'aide d'un magnétomètre à bobines vibrant parallèlement au champ magnétique. Celui-ci est produit par un électroaimant. Cette méthode laisse disponible un important volume utile dans lequel il est possible de placer un cryostat ou un four permettant des variations thermiques de 77 à 500 K. La chambre de pression, en alliage de bronze-béryllium est reliée en permanence à un générateur de pression par l'intermédiaire d'un capillaire. La pression, transmise par de l'hélium gazeux est au maximum de 11 kbar. La sensibilité de l'appareillage a permis de faire des mesures de susceptibilité paramagnétique sous pression sur le composé MnAs. Cependant, la compensation du signal parasite induit dans les bobines vibrantes par les inhomogénéités du champ magnétique est délicate.

A l'Université de Californie, San Diego, La Jolla, Wohlleben et Maple [Wo 71] mesurent la susceptibilité d'échantillons soumis à des pressions quasi-hydrostatiques, dans des enceintes autonomes. Le principe consiste à appliquer la pression dans un système pistons-

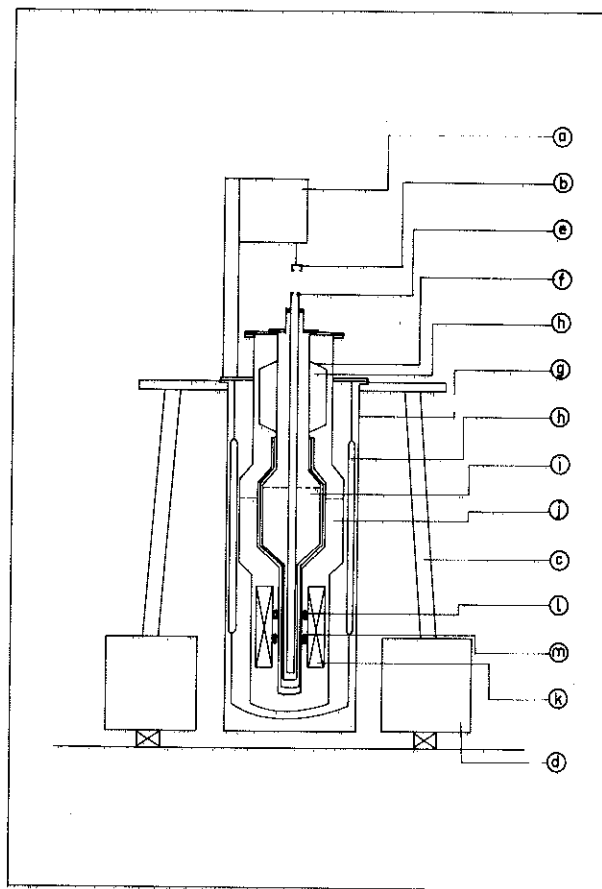


Figure 1 : L'ensemble cryogénique et son support.

- a - extracteur ; b - fixation pour la tige d'extraction ;
 c - support ; d - bloc de béton antivibratoire ; e - calorimètre ;
 f - anticryostat destiné à obtenir des températures variables ;
 g - cryostat, réservoir d'hélium liquide pour la bobine supraconductrice ;
 h - gardes d'azote ; i - fluide cryogénique ; j - hélium liquide ;
 k - bobine supraconductrice ; l, m - bobines de mesure.

cylindre à l'aide d'une presse hydraulique et de bloquer les pistons à l'aide d'écrous. Le cylindre est réalisé en alliage de bronze-béryllium, les pistons en alumine. La pression est transmise à l'échantillon par du téflon ou par un mélange de pentane et d'alcool isoamyl. L'absence de capillaire pour l'amenée de fluide compresseur constitue l'intérêt principal de ce dispositif. Cependant, la pression qui peut être très inhomogène, n'est connue qu'avec peu de précision. Par ailleurs, elle ne peut être modifiée qu'à la température ordinaire, en utilisant une presse extérieure. Cet appareillage permet la mesure des susceptibilités par la méthode de Faraday dans un intervalle de température entre 0,4 et 300 K.

Pour réaliser un ensemble expérimental de mesure des aimantations sous pression, nous avons choisi d'appliquer la pression par de l'hélium à l'échantillon placé dans une chambre en bronze-béryllium reliée au générateur de pression par un capillaire souple. Nous avons adopté une méthode de mesure d'aimantation par extraction de l'échantillon. Les principales sources de signal parasite sont les défauts de guidage et les inhomogénéités de champ qui induisent, lors de l'extraction des courants de Foucault dans l'enceinte. Nous avons donc calculé une bobine supraconductrice produisant un champ magnétique très homogène, de valeur maximum 65 kOe et nous avons conçu un système de guidage du porte-échantillon. Un anticryostat, contenant la chambre de pression placée dans son calorimètre, doit permettre d'obtenir des températures variables entre 1,2 et 400 K [Be 72, Ve 72].

I-2 - DESCRIPTION DU MONTAGE EXPERIMENTAL

L'appareillage expérimental est représenté sur la vue d'ensemble photographique.

A - L'appareillage pour les mesures d'aimantation à température variable

L'ensemble cryogénique de mesures d'aimantation (figure 1) comprend un cryostat (g), réservoir d'hélium liquide nécessaire au fonctionnement de la bobine supraconductrice (k) et un anticryostat (f) permettant d'obtenir des températures variables dans la chambre d'expérience. L'appareillage repose sur un socle en béton antivibratoire (d) monté sur amortisseurs.

A-1 - La bobine de champ magnétique supraconductrice

Nous avons calculé les dimensions optimales de la bobine supraconductrice sur ordinateur et fait réaliser celle-ci à l'atelier du Laboratoire. Nous avons utilisé un fil monobrin en niobium-titane fabriqué par la Compagnie Thomson-Houston (THN 910-37-11-I). Le diamètre du fil, compte-tenu de sa gaine de cuivre et de son isolant est de 0,63 mm. Ce fil correspond à la meilleure densité de courant pour une self-inductance de la bobine de champ la plus petite possible.

Suivant Déportes [De 71] nous avons utilisé comme isolant électrique entre couches, des feuilles de support pour circuit imprimé de type Schjel-Clad fabriquées par les Etablissements Tranchant-Electronique. Ce support, d'épaisseur 80 μ , est formé par une feuille de cuivre collée sur une feuille d'isolant. Nous avons utilisé le programme d'optimisation du "simplexe" mis au point par Bassi du Laboratoire des Rayons X, de façon à obtenir la meilleure homogénéité axiale du champ magnétique pour un volume minimum de fil supraconducteur. L'homogénéité est obtenue par la réalisation dans le bobinage d'une encoche intérieure. Le champ maximum de 65 kOe est obtenu pour un courant de 61 A correspondant à une densité de courant de 12810 A/cm^2 .

La longueur du bobinage est de 22,14 cm, son rayon intérieur de 2,5 cm et son rayon extérieur de 6,76 cm. L'encoche a 2,91 cm de rayon extérieur ; sa longueur est de 6,46 cm.

L'énergie emmagasinée par la bobine sous le champ magnétique maximum est de 23,6 kJ. La libération de cette énergie lors d'un passage éventuel de l'état supraconducteur à l'état normal entraîne la vaporisation de 10 litres d'hélium liquide environ.

Nous avons mesuré l'homogénéité axiale de la bobine de champ en suivant la variation de la magnétorésistance d'une sonde Siemens FP 15M20 lors de son déplacement le long de l'axe. L'homogénéité est optimale entre 20 et 40 kOe (figure 2) ; pour 30 kOe elle est parfaitement symétrique par rapport au centre et meilleure que $3 \cdot 10^{-4}$ sur 5 cm. Entre 40 et 65 kOe, il apparaît une dissymétrie dans la carte de champ. A 60 kOe, la différence d'homogénéité entre les deux positions extrêmes de l'échantillon (distantes de 5 cm) est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$. Les défauts d'homogénéité sont dus à l'aimantation

du supraconducteur et au léger déplacement probable des spires sous champ. Nous avons vérifié que la forme des cartes de champ est reproductible.

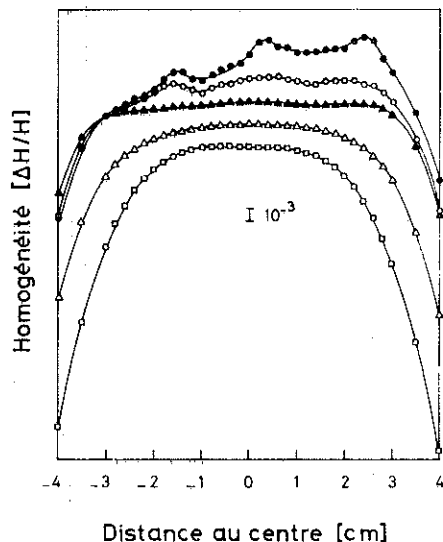


Figure 2 : Variation de l'homogénéité du champ magnétique le long de l'axe de la bobine pour différentes valeurs du champ au centre :
 5 kOe : (□) ; 10 kOe : (Δ)
 20 kOe : (▲) ; 40 kOe : (○)
 60 kOe : (●)

L'étalonnage du champ magnétique a été effectué à l'aide d'une petite bobine étalonnée. La f.e.m. produite à ses bornes lors de son déplacement à partir du centre de la bobine de champ sur une distance de 80 cm était intégrée par un voltmètre intégrateur numérique. Cette bobine de mesure avait été préalablement étalonnée par retournement d'un champ connu dans un électroaimant de type Varian. La relation entre le champ H (Oe) et le courant d'alimentation I (A) de la bobine supraconductrice est $H = 1062 I_A + 50$.

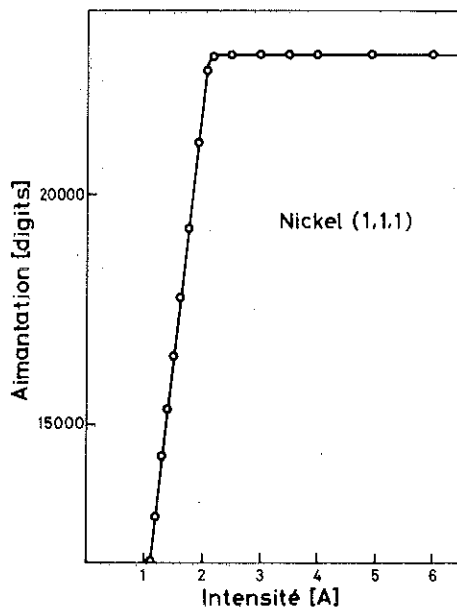


Figure 3 : Nickel monocristallin : variation du signal de sortie du voltmètre numérique lors d'une extraction en fonction de l'intensité dans la bobine supraconductrice (le champ magnétique est appliqué suivant l'axe (1,1,1) du nickel).

La relation précédente a été vérifiée en traçant la courbe d'aimantation à 4,2 K, en fonction du champ magnétique, d'une bille de nickel monocristalline, le champ étant dirigé suivant un axe de facile aimantation (figure 3). La valeur du champ de saturation est prise égale à 2204 Oe [Au 65, Re 72].

A-2 - La mesure d'aimantation

Les deux bobines de mesure, réalisées en fil de cuivre émaillé de 5/100e mm de diamètre, comportent 26 000 spires. Leur longueur est de 4,5 cm, la distance entre leurs centres de 5,17 cm. La course d'extraction donnant le signal maximum est de l'ordre de 5 cm. Elles sont plongées en permanence dans l'hélium liquide ((1, m) figure 1). Elles ont été étalonnées par la mesure de l'aimantation à saturation d'une bille monocristalline de nickel, prise égale à 58,6 u.e.m./g à 4,2 K [Gr 71]. La sensibilité ainsi obtenue est de $1,885 \cdot 10^{-3}$ u.e.m./digit.

Nous avons été amenés à améliorer la résolution de l'appareillage pour mesurer la variation avec la pression de l'aimantation de corps paramagnétiques. Nous avons intercalé un amplificateur de type "Amplispot" entre les bobines de mesure et le voltmètre intégrateur. La magnétorésistance des bobines de mesure est compensée par une résistance variable R_1 , une résistance R_2 sert d'adaptation de l'impédance d'entrée de l'amplificateur (la résistance des bobines de mesure varie de 430 Ω à 1000 Ω lorsque le champ magnétique passe de 0 à 40 kOe, à 4,2 K). Ce montage permet d'obtenir une sensibilité de $5 \cdot 10^{-5}$ u.e.m./digit. L'extraction, qui dure 2 secondes pilotée par des vérins pneumatiques, se fait à vitesse constante avec ralentissement en fin de course.

A-3 - La régulation de température

Le système de mesure et de régulation de température est schématisé figure 4. La chambre de pression est située dans un calorimètre (h), lui-même plongeant dans un fluide cryogénique contenu par l'anticryostat ((f), figure 1). La régulation de température est obtenue par l'équilibre entre les effets de la source chaude constituée par les fours bobinés sur la chambre (j) et de la source froide. Celle-ci peut être réalisée par une atmosphère contrôlée d'hélium dans le calorimètre ou par une fuite calibrée, le vide étant fait dans le calorimètre (la fuite calibrée est obtenue par exemple par des

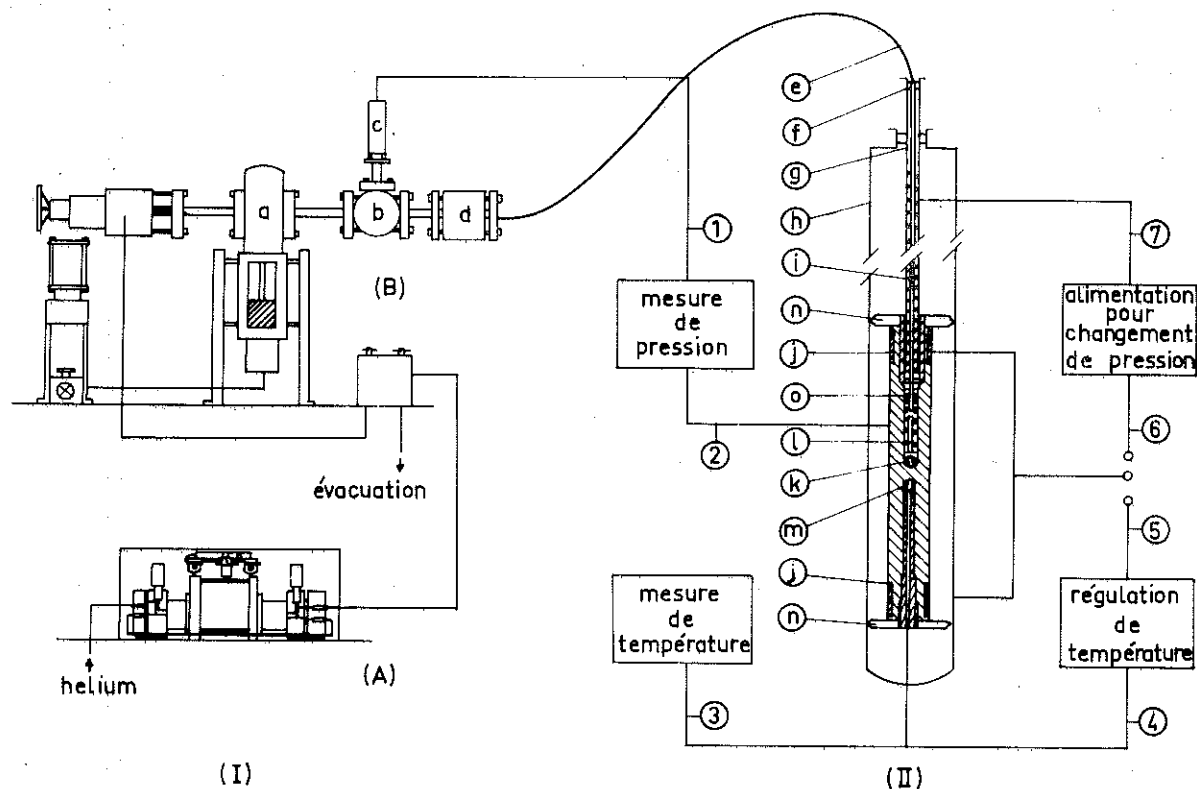


Figure 4 : Appareillage expérimental.

I - Groupe générateur de pression :

A - Compresseur à membrane,

B - Multiplicateur de pression : a) réservoir haute pression ;
b) raccord haute pression ; c) cellule pour jauges de manganine ;
d) raccord générateur de pression-chambre d'expérience ;
e) capillaire de pression.

II - Chambre d'expérience et son calorimètre :

f) fixation pour l'extracteur ; g) enceinte d'isolement du capillaire de pression ; h) calorimètre ; i) four du capillaire ;
j) fours de la chambre d'expérience ; k) échantillon ;
l) porte-échantillon ; m) diode à l'arséniure de gallium de mesure et de régulation de température ; n) guide ;
o) joints métalliques.

III - Circuits de mesure et de commande

- 1 mesure de la pression par jauge de manganine ;
- 2 contrôle de la pression dans la chambre d'expérience par jauge de contrainte ;
- 3 mesure de température ; 4 mesure de température pour la régulation ;
- 5 alimentation des fours de la chambre par la régulation ;
- 6 7 alimentation des fours de la chambre et du capillaire pour les changements de pression.

pièces de guidage réalisées par des pointes métalliques). Le chauffage des fours est piloté par une régulation de température. La détection de la température est réalisée à l'aide d'une diode à l'arséniure de gallium type TG 100 P GR/M (Etablissements Meric). La diode de mesure, alimentée par un courant de 100 μ A a été étalonnée en fonction de la température par Haen au C.R.T.B.T. Au voisinage de 4 K, ainsi qu'entre la température de l'azote liquide et la température ambiante, la sensibilité est de l'ordre de 2 mV/K. La variation ΔT de température lue sans correction de champ magnétique à 4,2 K est négligeable jusqu'à 20 kOe et de l'ordre de 1,5 K sous 50 kOe. Cet effet est approximativement diminué de moitié à la température de l'azote liquide.

B - L'appareillage générateur de pression et les circuits de mesure et de contrôle

La figure 4 schématise le groupe générateur de pression (I), ainsi que la chambre d'expérience dans son calorimètre et les circuits électriques permettant de contrôler la pression et la température au niveau de l'échantillon (II).

B-1 - Production de la pression

Le gaz transmetteur de pression est comprimé à l'aide d'un compresseur Aminco (A) jusqu'à 2000 bar. Un multiplicateur du type Bassett [Ba 54] (B), en série avec le compresseur, permet d'atteindre par réduction de volume, 12 kbar dans un volume utile d'environ 6 cm³.

B-2 - La chambre de pression

La technique des chambres de pression à paroi épaisse en bronze-béryllium a déjà été mise au point au Laboratoire [B1 65, Ba 70, Ch 71]. Nous avons utilisé une chambre de dimensions réduites, de longueur totale 210 mm, de diamètre intérieur et extérieur 5 et 16 mm respectivement ; son volume utile est de 1,5 cm³. Elle est schématisée figure 4. L'échantillon, fixé sur un support est maintenu au bas de la chambre par un ressort en alliage de bronze-béryllium. La liaison entre le multiplicateur de pression et la chambre d'expérience est faite à l'aide d'un tube capillaire souple en acier traité de 1,6 mm de diamètre extérieur et de 0,3 mm de diamètre intérieur. Les joints assurant l'étanchéité entre le tube de pression et la chambre sont du type "à zone non supportée" de Bridgman.

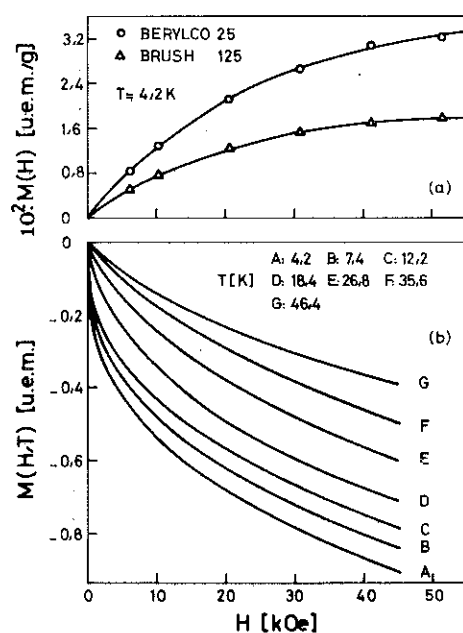


Figure 5 : (a) courbe d'aimantation à 4,2 K d'un échantillon de bronze-béryllium BERYLCO 25 (O) et BRUSH 125 (Δ) ; (b) signal parasite dû à la chambre de pression, sous champ magnétique et pour diverses températures.

Nous avons utilisé pour la construction de la chambre de pression l'alliage de bronze-béryllium "Brush 125" fabriqué par la "Brush Beryllium Company" (Cleveland, Ohio) qui est peu magnétique. A la température ambiante, il est diamagnétique et sa susceptibilité, mesurée sur une balance de translation est comprise entre $-6,2$ et $-4,2 \cdot 10^{-9}$ u.e.m./g/Oe. L'alliage commercial de bronze-béryllium "Berylco 25" fourni par la société "The Beryllium Corporation" a des propriétés mécaniques comparables à celles du "Brush 125", mais possède à la température ambiante une susceptibilité paramagnétique comprise entre $1,5$ et $9 \cdot 10^{-6}$ u.e.m./g/Oe. Les courbes d'aimantation, correspondant aux deux types de bronze, ont été étudiées à 4,2 K par Tissier au C.R.T.B. (figure 5a). Les deux alliages ont un comportement ferromagnétique à cette température. L'aimantation du "Brush 125" est approximativement la moitié de celle du "Berylco 25". Nous donnons, figure 5b, en fonction du champ magnétique et de la température, le signal dû à l'extraction de la chambre seule, de signe opposé à celui dû à l'extraction de l'échantillon. Les mesures doivent donc être corrigées de la contribution de la chambre. Notons que celle-ci décroît rapidement avec la température.

B-3 - Calcul des enceintes

Nous utilisons pour nos chambres de pression la technique de l'autofrettage. Lors du premier essai, on applique une pression suffisante pour créer, près du trou central, une zone de déformation plastique. Celle-ci garde une déformation permanente lorsque la pression est relâchée. Elle se trouve comprimée par la partie extérieure, demeurée élastique, qui, soumise à des contraintes d'extension, joue le rôle d'une frette rapportée. La répartition des contraintes résiduelles peut se calculer à partir des formules de Lamé et Clapeyron [La 33] s'appliquant au cas d'un cylindre long et fermé à ses extrémités, moyennant certaines hypothèses sur les états de contrainte dans la zone de déformation plastique [Wi 68, Ti 68]. Nous représentons, figure 6a, la répartition radiale de la contrainte équivalente sous pression lorsque toute la chambre reste dans le domaine élastique (1) et lorsqu'il apparaît une zone de déformation plastique dans laquelle on suppose que la contrainte reste égale à la limite élastique σ_y (2). La courbe (3) représente la variation de la contrainte résiduelle lorsque la pression est relâchée.

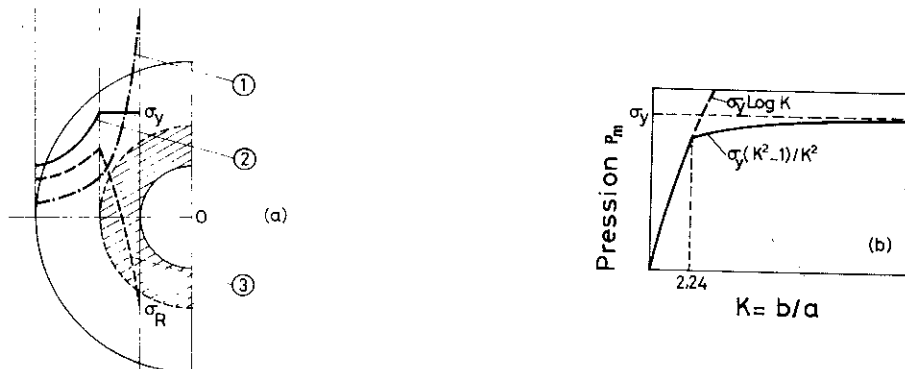


Figure 6 : (a) Toute la chambre reste dans le domaine élastique : variation radiale de la contrainte équivalente (1)
Il apparaît une zone de déformation plastique : variation radiale de la contrainte équivalente (2) et de la contrainte résiduelle après relâchement de la pression (3)
(b) Variation de la pression maximum dans une chambre de pression monobloc en fonction du rapport du diamètre extérieur au diamètre intérieur $K = b/a$.

Pour les petites valeurs du rapport du diamètre extérieur au diamètre intérieur K ($K < 2,24$), l'autofrettage optimum est obtenu lorsque la zone de déformation plastique s'est propagée à tout le volume. Dans ce cas, la contrainte résiduelle σ_R sur le bord intérieur de la chambre est inférieure à la limite d'élasticité σ_y . La pression maximale P_m est celle pour laquelle la contrainte σ_i sur le bord intérieur devient égale à σ_y . On montre que P_m vaut $\sigma_y \text{ Log } K$. Pour les grandes valeurs de K ($K > 2,24$) on ne peut étendre la zone de déformation plastique à tout le volume, sous peine de dépasser la limite d'élasticité du matériau sur le bord intérieur lorsqu'on relâche la pression. Pour un autofrettage optimal, la contrainte σ_i peut varier entre $-\sigma_y$ et $+\sigma_y$. On montre que dans ce cas P_m est égal à $2P_f$, où P_f vaut $\sigma_y/\sqrt{3} (K^2 - 1)/K^2$ ou $\sigma_y/2 (K^2 - 1)/K^2$ suivant le critère de plasticité envisagé [Ti 68]. La technique de l'autofrettage permet donc, pour $K > 2,24$, d'appliquer deux fois la pression maximum calculée par les formules de Lamé et Clapeyron pour les cylindres à parois épaisses. Nous avons représenté, figure 6b, la pression P_m en fonction du rapport K .

Dans le cas de l'alliage utilisé pour la réalisation de nos enceintes σ_y est de l'ordre de 115 kg/mm^2 et K vaut 3,2. Nous trouvons pour P_m la valeur de 10 kbar. Les joints du type "à zone non supportée" de Bridgman sont autocomprimés à une pression P' supérieure à la pression intérieure P . Le facteur P'/P peut s'exprimer en fonction de la surface des joints et de la surface de la zone non supportée. Nous obtenons $P'/P = 1,1$. Un calcul pessimiste indique donc que la pression maximum que l'on puisse appliquer à notre chambre est $P_m \times \frac{P}{P'}$, de l'ordre de 9 kbar.

B-4 - Technique de changement de pression

1 - Principe

L'hélium solide a déjà été utilisé pour appliquer des pressions hydrostatiques à basse température [Sc 70, Sp 71].

Nous avons tracé, figure 7, la courbe d'équilibre des phases solide-liquide de l'hélium à basse température dans un diagramme pression-température. A 4,2 K l'hélium devient solide sous 30 bar environ. Les changements de pression ne peuvent convenablement s'effectuer que lorsque l'hélium est en phase liquide. Il est donc nécessaire

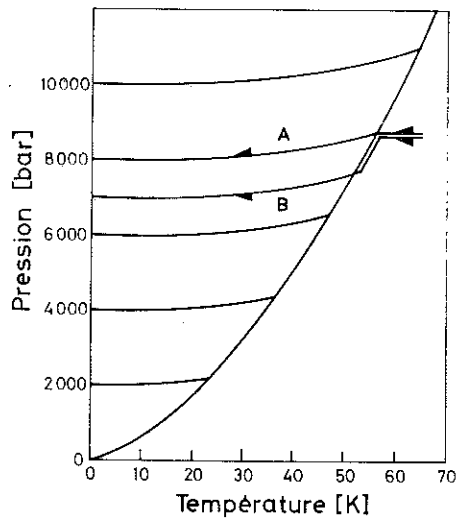


Figure 7 : Courbe d'équilibre solide-liquide de l'hélium à basse température et réseau d'isochores [Sp 71].

de chauffer la chambre et le capillaire à l'aide des fours (j) et (i) représentés figure 4. La pression étant établie dans la chambre et le capillaire, le refroidissement se fait à pression constante jusqu'à la température de solidification correspondante. Si l'on a préalablement imposé un gradient de température le long de la chambre de pression, le cristal d'hélium solide se forme dans le bas de la chambre et se propage jusqu'à sa partie supérieure sans chute de pression. Le refroidissement se poursuit ensuite le long d'une isochore. Si au contraire l'hélium devient d'abord solide dans le capillaire, on obtient un refroidissement à volume constant d'un mélange hélium liquide-hélium solide le long de la courbe d'équilibre de phases. L'hélium n'est totalement solide dans la chambre qu'après une chute de pression importante. La pression initiale étant par exemple de 8700 bar à 60 K, la pression finale obtenue à 4,2 K à l'aide d'un refroidissement piloté est de l'ordre de 8000 bar (chemin A, figure 7), alors que dans le deuxième cas, elle n'est que de 7000 bar (chemin B, figure 7). Nous donnons figure 7, un réseau d'isochores de l'hélium solide [Sp 71].

2 - Mesure de la pression

On mesure la pression d'hélium gazeux dans le multiplicateur à partir de la variation de la résistance électrique d'un enroulement de fil de manganine compensé thermiquement par une autre bobine de fil de manganine à la même température et à la pression atmosphérique. La variation de la résistance de l'enroulement du fil de manganine a été préalablement étalonnée au moyen d'une jauge à piston libre ; la pression est connue avec une précision de 1 %. La variation relative de

résistance associée à la variation de pression est mesurée par une méthode de zéro, au moyen d'un pont d'extensométrie.

Pour évaluer la pression existant réellement dans la chambre à basse température, nous mesurons la dilatation de la paroi de la chambre à l'aide de deux jauges de contraintes (circuit de mesure (2), figure 4) [Ga 61], l'une collée sur une partie de la chambre soumise à la pression, l'autre jouant le rôle de compensation thermique, collée sur une partie inférieure de la chambre non soumise à la pression. Le principe et le moyen de mesure sont les mêmes que ceux décrits précédemment. Nous avons étalonné la variation de résistance de la jauge de contrainte en fonction de la pression, par comparaison avec les indications de la jauge de manganine, pour des températures entre 77 et 300 K. La dilatation est linéaire dans le domaine utilisé. A la température de l'hélium liquide, nous avons déduit la variation de la résistance de la jauge de contrainte en fonction de la pression, à partir des valeurs à 77 K, en tenant compte des petites variations des propriétés mécaniques du bronze-béryllium et du facteur de jauge entre 77 et 4,2 K. Ces corrections sont de l'ordre de 1 %. L'erreur expérimentale sur la détermination de la pression à l'intérieur de la chambre est inférieure à 3 %. Nous avons vérifié que l'étalonnage ainsi obtenu à 4,2 K était correct en comparant les valeurs de la pression dans la chambre mesurées directement à celles déduites de la pression initiale, mesurée à l'aide de la jauge de manganine lorsque l'hélium est liquide dans la chambre, à l'aide des données thermodynamiques de Spain et Segall [Sp 71].

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

- [Au 65] AUBERT G.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1965.
- [Ba 54] BASSET J., BASSET J.
J. Phys. Rad., 15, 574, 1954.
- [Ba 70] BARTHOLIN H.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1970.
- [Be 72] BEILLE J., ALBERTS H.L., BARTHOLIN H., BLOCH D. et VETTIER C.
C. R. Acad. Sc. Paris, B275, 719, 1972.
- [Bl 65] BLOCH D.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1965.
- [Ch 71] CHAISSE F.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1971.
- [De 71] DEPORTES J.
Thèse de 3e Cycle, Université de Grenoble, 1971.
- [Ga 61] GARFINDEL M. et MAPOTHER D.E.
Phys. Rev., 122, 459, 1961.
- [Gr 71] GRANGLE J. et GOODMAN G.M.
Proc. Roy. Soc., A321, 477, 1971.
- [Gu 74] GUERTIN R.P. et FONER S.
Rev. Sci. Instr., 45, 863, 1974.
- [La 33] LAME G. et CLAPEYRON B.P.E.
Mem. Acad. Sc. Paris, 4, 465, 1833.

- [Me 69] MENYUK N., KAFALAS J.A., DWIGHT K. et GOODENOUGH J.B.
J. Appl. Phys., 40, 1324, 1969.
- [Re 72] REBOUILLAT J.P.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1972.
- [Sc 70] SCHINDLER J.E.
Cryogenics, 10, 418, 1970.
- [Sp 71] SPAIN I.L. et SEGALL S.
Cryogenics, 11, 26, 1971.
- [Ti 68] TIMOSHENKO S.
"Résistance des matériaux", 2e partie, Dunod Paris, 350, 1968.
- [Ve 72] VETTIER C., ALBERTS H.L., BEILLE J. et BLOCH D.
C. R. Acad. Sc. Paris, 275, 915, 1972.
- [Wi 68] WILSON W.R.D. et SKELTON W.J.
The Inst. of Mec. Eng., 182, 1968.
- [Wo 71] WOHLLEBEN D. et MAPLE M.B.
The Rev. Sci. Instr., 42, 1573, 1971.

C H A P I T R E I I

LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES EN CHAMP FORT DES ALLIAGES PdNi ET PtNi

II-1 - APPARITION DU MAGNETISME DANS LES ALLIAGES DES ELEMENTS DE

TRANSITION DE LA PREMIERE SERIE AVEC LE PLATINE OU LE PALLADIUM

Le palladium et le platine ont une structure cristallographique cubique à faces centrées. Le fer, le nickel et le cobalt peuvent être substitués à des atomes de palladium et de platine pour former des structures solides désordonnées. Les solutions désordonnées sont obtenues à toutes concentrations pour les alliages PtNi et PdNi, pour des concentrations inférieures à 82 % et 76 % dans le cas des alliages PtCo et PdCo [Bo 51], inférieures à 72 % et 70 % pour les alliages PtFe et PdFe [Su 74]. Les propriétés magnétiques de ces alliages désordonnés sont remarquables. Le moment par atome de transition est bien supérieur à son moment dans le métal de transition pur (figures 1 et 2). Les moments par atome de soluté atteignent 10, 2,4, 7 μ_B pour le fer, le nickel ou le cobalt dissous dans le palladium, 7 et 3,5 μ_B pour le fer ou le cobalt dissous dans une matrice de platine. Les alliages entre le platine et le nickel constituent cependant une exception puisque le moment magnétique par atome de nickel est toujours inférieur au moment du nickel pur.

Chouteau a mis en évidence par des mesures d'aimantation et de chaleur spécifique [Ch 73] des lois d'échelle caractéristiques d'un état de verre de spin dans les alliages très dilués PdFe avec des couplages oscillants de type R.K.K.Y. à basse température ($T < 0,3$ K).

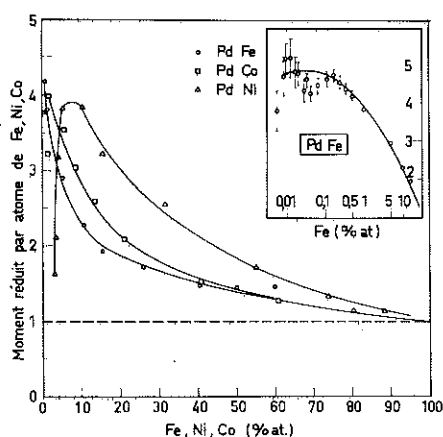


Figure 1 : Variation en fonction de la concentration en Fe, Ni et Co dans le palladium du rapport du moment par atome de soluté au moment par atome de soluté à l'état massif [Ch 73, Cr 65a, Bo 61, Sa 32 et nos mesures].

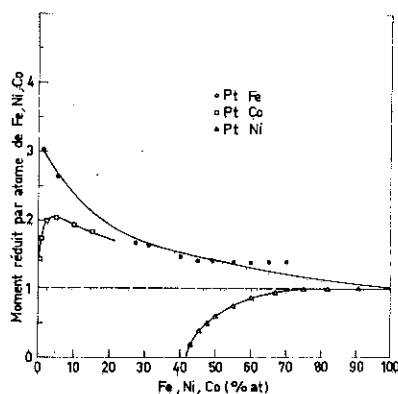


Figure 2 : Variation en fonction de la concentration de Fe, Ni, Co dans le platine du rapport du moment par atome de soluté au moment par atome de soluté à l'état massif [Cr 65a, Su 74, Ma 37, et nos mesures].

Les alliages PdFe et PdCo sont caractérisés par une très faible concentration d'apparition du ferromagnétisme ($0,05 \% < c < 0,1 \%$) que l'on peut déterminer à partir des mesures d'aimantation spontanée [Cr 60, Cr 65a], d'effet Mössbauer [Cr 65b], de résistivité [Co 65, My 68, Wi 70, Ni 72], de chaleur spécifique [Ni 72].

Les atomes de fer dilués dans le platine ($c < 0,1 \% \text{ Fe}$) évoluent d'un état magnétique vers un état non magnétique lorsque la température est abaissée au dessous de 0,5 K d'après les mesures de résistivité [Lo 72], de pouvoir thermoélectrique [Ma 62] et d'effet Mössbauer [Ma 67]. Le couplage ferromagnétique apparaît pour une concentration comprise entre 0,6 % et 1 % Fe d'après les mesures de

résistivité [Lo 72]. Cette concentration critique est de l'ordre de 10 fois supérieure à celle observée dans les alliages PdFe. Le coefficient de renforcement d'échange du platine est en effet de l'ordre de $5/3$ [Mu 70] alors que celui du palladium est de 10 [Ch 68]. Les alliages très dilués PtCo présentent aussi une disparition du moment de l'impureté au-dessous de 1,6 K [Ga 68, Sh 69, Co 73, Ti 72]; alors que le couplage ferromagnétique apparaît vers 2 % Co [Cr 65a]. Les mesures de résonance magnétique nucléaire sur les atomes de platine dans les alliages paramagnétiques PtFe et PtCo [Gr 68] montrent que la polarisation moyenne de la matrice est nulle, ce qui est compatible avec des interactions oscillantes de type R.K.K.Y.

Les alliages isoélectroniques du nickel avec le platine et le palladium sont différents des précédents par l'apparition du couplage ferromagnétique à plus haute concentration.

Dans les alliages dilués PdNi, le coefficient du terme en T^2 de la résistivité, la susceptibilité, le coefficient de chaleur spécifique électronique, varient linéairement avec la concentration [Ch 68] en accord avec un modèle de fluctuations locales de spin [Le 68]. L'apparition du magnétisme dans ces alliages a été discutée par Chouteau et Tournier [Ch 73]. Les impuretés isolées et celles situées dans une paire d'atomes proches voisins ne seraient pas magnétiques. Le magnétisme apparaîtrait sur des atomes de nickel situés dans un groupe d'au moins 3 atomes de nickel proches voisins. Les mesures de diffraction neutronique effectuées sur des alliages dans la zone de concentration critique jusqu'à 4,7 % Ni [Al 70] ont montré que le magnétisme apparaissait sous la forme de moments géants, certains atomes de nickel n'étant pas magnétiques. Le ferromagnétisme apparaît au voisinage de 2 % Ni (figure 3).

La résistivité des alliages dilués PtNi varie en T^2 à basse température [Ma 70, Gi 72]. Le coefficient de chaleur spécifique électronique, du terme en T^2 de la résistivité et la susceptibilité des alliages PtNi est linéaire en fonction de la concentration [Ma 70] comme le prévoit la théorie de fluctuations locales de spin [Le 68]. Cependant il n'existe qu'un accord quantitatif médiocre avec la théorie [Ma 70]. Besnus et Herr [Be 72] ont mis en évidence, par des mesures d'aimantation une concentration d'apparition du ferromagnétisme de l'ordre de 42 % Ni. Les mesures de chaleur spécifique de Gillespie

et al [Gi 72] ont montré par ailleurs qu'il n'y avait pas de terme constant, indépendant de la température, caractéristique de superparamagnétisme. De même les courbes d'aimantation varient peu avec la température entre 4,2 K et 1,5 K [Gi 72], ce qui élimine la possibilité de grands effets d'amas. Cependant, un faible terme logarithmique apparaissant dans la résistivité au-dessus de la concentration critique [Gi 72] pourrait être dû à la présence de quelques amas.

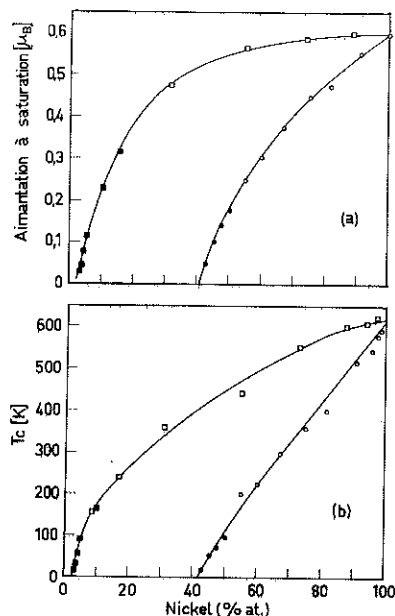


Figure 3 : Variation de l'aimantation à saturation (a) et de la température de Curie (b) en fonction de la concentration en nickel dans les alliages PdNi ($\square$: [Sa 32, Ma 37], $\blacksquare$: nos mesures), et PtNi ($\circ$: [Ma 37], $\bullet$: nos mesures).

II-2 - ETUDE DE L'AIMANTATION SPONTANEE DES ALLIAGES PdNi ET PtNi :

DESCRIPTION DANS UN MODELE LOCAL

A - Les échantillons

Les échantillons ont été préparés à partir de Pd-5N Johnson-Matthey. Les échantillons d'une première série (1,5 ; 2 ; 3 ; 5 % Ni) ont été coulés pendant une heure à 1650°C sous vide, dans des creusets en alumine. Ces échantillons ont été utilisés précédemment par Chouteau et al [Ch 68]. Ils contiennent environ 50 ppm de fer. Les échantillons d'une deuxième série (2,5 ; 3,5 ; 4 % Ni) ont été préparés par une méthode de semi-lévitation suivie d'une trempe à l'eau [Be 70]. Des mesures magnétiques sur le palladium ont montré que cette méthode n'introduisait aucune impureté magnétique.

Les échantillons de PtNi ont été préparés par fusion dans un creuset en alumine dans un four haute fréquence sous atmosphère d'argon, à partir de Pt et de Ni de pureté 4N. Nous avons fait analyser, par un procédé d'activation, la teneur en fer de l'alliage 45,2 % Ni que nous avons trouvée égale à 140 ppm. Les alliages PtNi de concentration en Ni proche de 75 % et 50 % peuvent être ordonnés par un traitement thermique approprié [Ha 58]. Gillespie et Schindler [Gi 72] ont réalisé sur les échantillons à ordonner un recuit dont la durée est comprise entre 22 et 66 jours à une température entre 400 et 600°C. Les alliages ordonnés ne sont pas ferromagnétiques.

B - Mesure d'aimantation sous champ magnétique intense

Nous avons utilisé l'appareillage expérimental du S.N.C.I. à Grenoble [Au 74]. Le champ magnétique est produit dans une bobine refroidie à eau de type Bitter ; sa valeur maximale est 150 kOe. Elle correspond à une puissance électrique dissipée de 5 MW. Des résistances de carbone et de platine sont utilisées pour la mesure de la température et la régulation. L'aimantation est mesurée par une technique d'extraction sous champ constant. Le signal produit par le déplacement de l'échantillon dans les bobines de mesure est intégré à l'aide d'un voltmètre numérique. La sensibilité est de 10^{-3} u.e.m. La précision absolue sur l'aimantation est de 10^{-2} u.e.m.

C - L'apparition du ferromagnétisme dans les alliages PdNi

Nous avons représenté, figure 4, l'aimantation en fonction du champ magnétique jusqu'à 150 kOe, à 4,2 K pour les échantillons étudiés. Ces courbes se comparent bien avec celles données par Chouteau jusqu'à 35 kOe [Ch 73].

Pour définir l'aimantation spontanée appelée $M(0,0)$, nous avons choisi d'extrapoler en champ nul les tracés de $M^2(H,T)$ en fonction de $H/M(H,T)$ qui présentent une variation à peu près linéaire dans une zone limitée de champ H ($H < 10$ kOe) ; T désigne la température. Nos valeurs sont peu différentes de celles données par Chouteau qui décrit les courbes d'aimantation par l'équation $M = M(0,0) + \chi H$, où χ est une susceptibilité moyenne dans la zone de champ expérimentale. Les valeurs de l'aimantation spontanée $M(0,0)$ sont présentées figure 5, en échelles logarithmiques. Pour des concentrations comprises entre 2 et 5 % Ni la variation observée est très rapide. Dans une gamme de concentration entre 5 et 15 %, la varia-

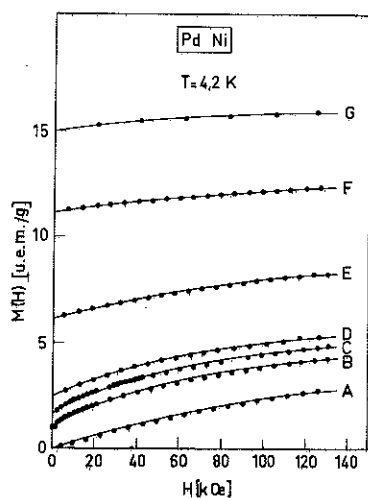


Figure 4 : Variation sous champ intense et à 4,2 K de l'aimantation des alliages PdNi

(A : 1,5 % Ni ; B : 2,5 % Ni ;
C : 3 % Ni ; D : 3,5 % Ni ;
E : 5 % Ni ; F : 10 % Ni ;
G : 15 % Ni).

tion de l'aimantation spontanée est à peu près linéaire avec la concentration, caractérisée par un moment par atome de nickel de l'ordre de $2,4 \mu_B$. On en déduit que pour les alliages de concentration supérieure à 5 % presque tous les atomes de nickel sont magnétiques. L'existence d'une zone de concentration d'additivité des moments par atome d'impureté est un phénomène général pour les alliages du fer, nickel ou cobalt avec le platine ou le palladium. Cette zone est comprise entre 0,01 et 0,2 % Fe dans les alliages PdFe (cartouche de la figure 1, d'après [Ch 73]) et entre 2 et 10 % Co dans les alliages PtCo (figure 2, d'après [Cr 65a]). Ceci conduit à attribuer un moment géant constant de $2,4 \mu_B$ aux atomes de nickel magnétiques dans les alliages PdNi de concentration inférieure à 15 % Ni. La variation très rapide de l'aimantation entre 2 et 5 % Ni est donc attribuée à l'apparition du magnétisme sur les atomes de nickel.

Il a été déduit [Ch 73] des mesures de susceptibilité sur des alliages dilués PdNi que les groupes de trois atomes ou plus de nickel premiers proches voisins sont magnétiques. Ces groupes polarisent la matrice constituée par le palladium et les atomes de nickel non magnétiques. A partir de ces hypothèses Chouteau et Tournier [Ch 73] ont décrit les propriétés des alliages dilués PdNi à l'aide d'un modèle local dans lequel :

- 1 - Le moment géant μ_G associé à un atome de nickel magnétique est donné [Do 67] par :

$$\mu_G = \mu_{Ni} (1 + \hat{J} \chi_{Pd}) \quad (1)$$

où $\hat{J}$ est l'intégrale d'échange normalisée entre le moment localisé de l'atome de nickel et les électrons d de la matrice. Cette relation entre le moment géant μ_G et la susceptibilité du palladium est vérifiée à toute température d'après les mesures de susceptibilité faites par Chouteau [Ch 73].

- 2 - La polarisation autour d'un atome de nickel magnétique a la même forme qu'autour d'un atome de fer dans les alliages PdFe. Elle s'écrit :

$$\frac{dm}{dv} = K_{Ni} \frac{e^{-qr}}{r} \quad (2)$$

où $\frac{dm}{dv}$ est la densité d'aimantation par unité de volume à la distance r de l'atome magnétique et K_{Ni} caractérise l'amplitude de la polarisation. La valeur de q est $0,3 \text{ \AA}^{-1}$, d'après Low et Holden [Lo 66].

- 3 - Le rayon de la sphère de polarisation, R , autour d'un atome de nickel magnétique dans les alliages PdNi est le même qu'autour d'un atome de fer dans les alliages PdFe ($R \approx 15 \text{ \AA}$ [Lo 66]). En effet, le rapport du moment géant au moment "nu" de l'atome magnétique est le même dans les deux cas. On suppose enfin que la polarisation possède approximativement la même extension spatiale autour d'un groupe de trois atomes de nickel premiers voisins qu'autour d'un atome isolé, car le rayon de la sphère de polarisation est grand devant la distance interatomique.

K_{Ni} est déterminé à partir de la valeur expérimentale de la polarisation par l'équation suivante :

$$\mu_G - \mu_{Ni} = 4\pi K_{Ni} \int_{d_0}^R r e^{-qr} dr \quad (3)$$

où d_0 est la distance entre deux atomes proches voisins ($d_0 = 2,72 \text{ \AA}$).

D'autre part, à partir de mesures de susceptibilité, Chouteau a déterminé les valeurs des susceptibilités χ_1 et χ_2 des impuretés isolées ou appartenant à une paire ($\chi_1 \approx 87 \chi_{Pd}$; $\chi_2 \approx 4\chi_1$). A partir des valeurs de χ_1 et χ_2 il est alors possible de trouver à quelles distances, r_1 et r_2 , d'un groupe magnétique, des atomes de Ni induits, isolés ou par paire, sont saturés et ont la valeur maximale du moment, soit $2,4 \mu_B$.

On appelle c_1 , c_2 , c_3 la concentration des atomes isolés, des atomes inclus dans une paire ou dans un groupe de trois atomes et μ_1^{ind} et μ_2^{ind} les moments induits sur les atomes de Ni isolés ou par paire

$$\mu_{\alpha}^{ind} = 3K_{Ni} \frac{\mu_G}{\mu_{Ni}} \frac{\chi_{\alpha}}{\chi_{Pd}} 4\pi \int_{r_{\alpha}}^R r e^{-qr} dr \quad (4)$$

avec $\alpha = (1,2)$.

L'aimantation spontanée $M(0,0)$ de l'alliage est alors donnée par :

$$M(0,0) = \frac{c_3}{3} N_0 \left[3\mu_G + c_1 (Z_1 \mu_G + \mu_1^{ind}) + c_2 (Z_2 \mu_G + \mu_2^{ind}) \right] \quad (5)$$

où Z_1 et Z_2 sont les nombres d'atomes de Ni isolés ou par paire saturés par la polarisation d'un groupe magnétique.

L'aimantation spontanée ainsi calculée est tracée figure 5. L'accord avec les mesures expérimentales est très bon jusqu'à 2,5 % Ni ; au delà le calcul donne des valeurs beaucoup plus fortes car il néglige la pénétration des sphères de polarisation. La susceptibilité calculée avec ces hypothèses est en bon accord avec celle donnée par l'expérience. Un modèle local permet ainsi une bonne description de l'apparition du magnétisme dans les alliages PdNi.

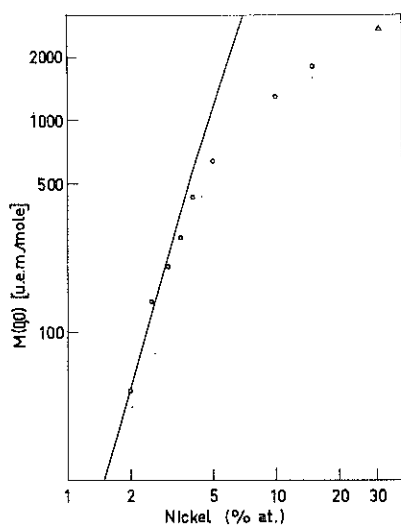


Figure 5 : $M(0,0)$ en fonction de la concentration (Δ : [Ma 37] ; O : nos mesures) et courbe théorique calculée par Chouteau et Tournier [Ch 73] (échelles logarithmiques).

D - Description de l'aimantation spontanée des alliages PtNi

dans un modèle local

La figure 6 représente les courbes d'aimantation à 4,2 K sous champ intense de 150 kOe des alliages PtNi de concentration 41,4, 42,9, 45,2, 47,6, 50,2 % Ni.

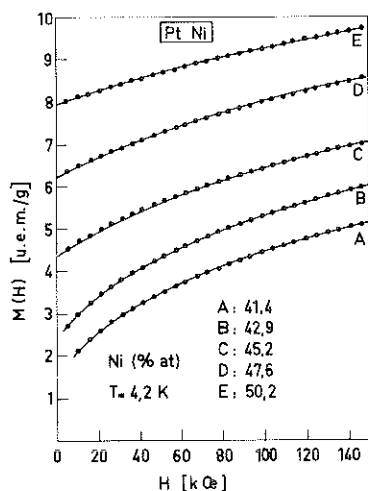


Figure 6 : Variation sous champ intense et à 4,2 K de l'aimantation des alliages PtNi.

Nous avons défini l'aimantation à saturation de façon analogue à celle des alliages PdNi. Les tracés de M^2 en fonction de H/M sont alors linéaires dans toute la gamme de champ.

Nous avons analysé l'aimantation spontanée en fonction de la concentration dans un modèle où les atomes de nickel peuvent prendre un moment magnétique s'ils sont entourés d'un nombre minimum P d'atomes de même nature. Jaccarino et Walker [Ja 65] ont décrit ainsi l'apparition du magnétisme sur les atomes de fer dilués dans des alliages $Nb_{1-c}Mo_c$ et $Rh_{1-c}Pd_c$. Un traitement analogue paraît applicable aux alliages $NiCu$ [Ro 69, Pe 70] où les moments des atomes de nickel varient peu avec la concentration [Ob 68, Ro 68] et dans lesquels il existe des atomes de nickel magnétiques, même à très faible concentration. Dans ce modèle, le moment moyen par atome est donné par :

$$\mu = \mu_{Ni} c \sum_{n=P}^{12} C_{12}^n c^n (1-c)^{12-n} \quad (6)$$

dans le cas d'un réseau c.f.c. où $C_{12}^n = 12! / n! (12-n)!$.

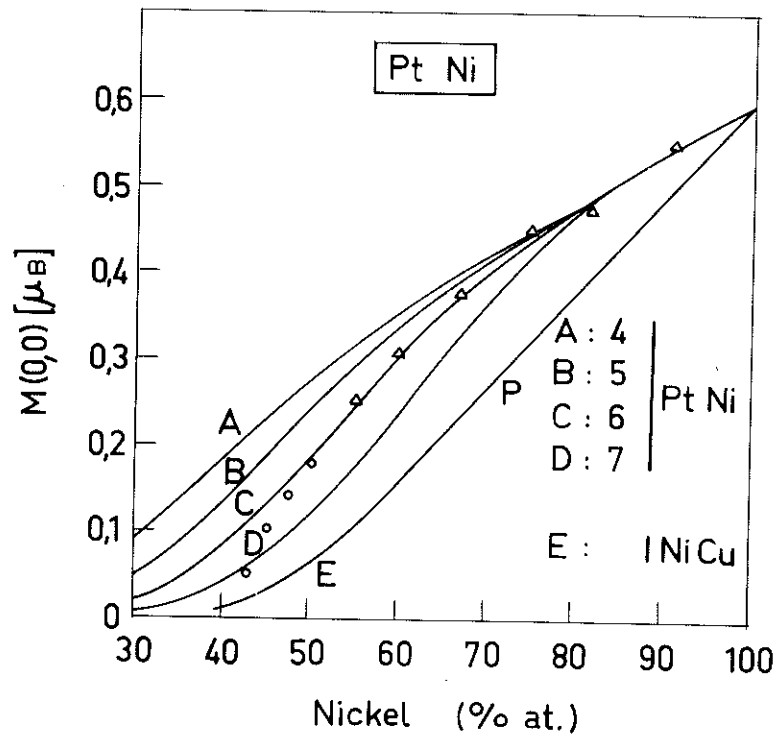


Figure 7 : Courbes théoriques calculées pour la variation de $M(0,0)$ avec la concentration dans un modèle de Jaccarino-Walker, où P désigne le nombre d'atomes de nickel proches voisins d'un atome de nickel nécessaires pour l'apparition d'un moment sur cet atome (Δ : [Ma 37] ; O : nos mesures) (A, B, C, D) et variation expérimentale de l'aimantation spontanée des alliages $CuNi$ ([Ro 69, Ko 70, Ti 68]) (E).

Nous avons tracé, figure 7, les courbes déduites de (6) pour différentes valeurs de P. Nous constatons que la courbe correspondant à $P = 6$ décrit assez correctement la courbe expérimentale pour des concentrations supérieures à 50 % Ni. Aux plus faibles concentrations un nombre de 7 ou 8 proches voisins serait nécessaire pour la condition de magnétisme, dans une région où les effets de polarisation seraient moins importants. En fait ce modèle n'est pas très réaliste dans le cas des alliages PtNi où la matrice est renforcée d'échange, car il ne tient pas compte des effets importants dus à la polarisation de la matrice et des atomes de nickel non magnétiques par les atomes magnétiques. Les alliages NiCu ont sensiblement la même concentration d'apparition du magnétisme (courbe E, figure 7). On peut donc penser que la différence des aimantations à saturation des alliages PtNi et des alliages Cu Ni est due à la polarisation de la matrice. Dans cette hypothèse, la différence des aimantations à saturation des deux types d'alliages pour des concentrations supérieures à 75 % Ni est due aux atomes de platine saturés (dans cette zone de concentration, l'aimantation à saturation des alliages PtNi a une variation linéaire). La contribution du platine serait de $0,11 \mu_B$ environ pour l'alliage de concentration 75 % Ni, ce qui correspondrait à $0,44 \mu_B$ pour le platine saturé. Cette valeur est à comparer à $0,4 \mu_B$ déduite du nombre de trous trouvés pour le platine [Wi 68]. Il semble donc que l'on obtienne une description correcte de l'aimantation à saturation des alliages PtNi dans un modèle de Jaccarino-Walker à huit premiers voisins comme dans le cas des alliages CuNi, dans lequel on tiendrait compte des effets de polarisation de la matrice. A cause de l'importance des effets de polarisation, ce modèle prévoit des variations spatiales d'aimantation beaucoup plus faibles que dans le cas des alliages CuNi et un comportement magnétique plus homogène.

II-3 - LES ALLIAGES PtNi, FAIBLES FERROMAGNETIQUES HOMOGENES,

LES ALLIAGES PdNi, FAIBLES FERROMAGNETIQUES INHOMOGENES

A - Les alliages PtNi

A-1 - Aimantation sous champ fort et coefficients de Landau

Nous avons mesuré l'aimantation des alliages sous 150 kOe, à des températures entre 4,2 K et 300 K [Be 74]. Nous donnons, figures 8 et 9, les courbes d'aimantation des alliages contenant 47,6 et 50,2 % Ni. Nous constatons que l'aimantation M n'est pas saturée en champ très élevé et que sa valeur est faible, inférieure à $0,22 \mu_B$.

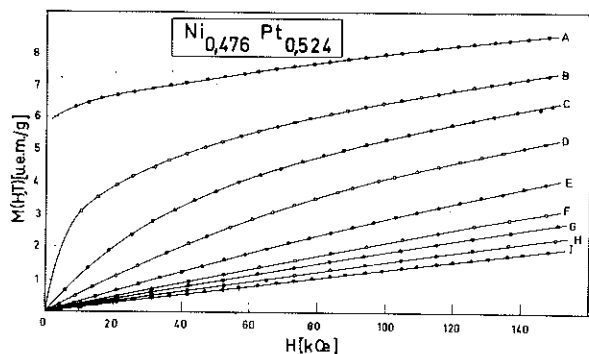


Figure 8 : Aimantation M en fonction du champ H pour l'alliage $\text{Pt}_{0,524}\text{Ni}_{0,476}$ (A : 4,2 K ; B : 77,3 K ; C : 106,8 K ; D : 134 K ; E : 171,7 K ; F : 206 K ; G : 227 K ; H : 254,4 K ; I : 286 K).

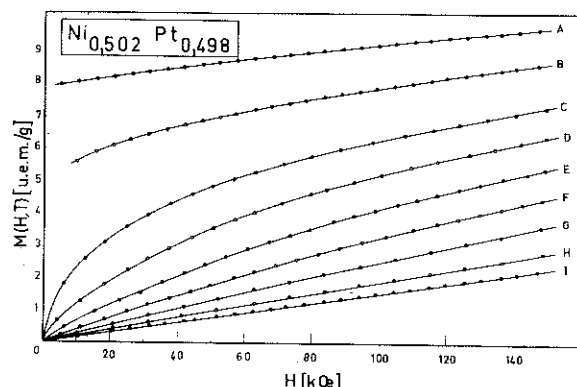


Figure 9 : Aimantation M en fonction du champ H pour l'alliage $\text{Pt}_{0,498}\text{Ni}_{0,502}$ (A : 4,2 K ; B : 77,3 K ; C : 119,8 K ; D : 143,4 K ; E : 167 K ; F : 191 K ; G : 218,4 K ; H : 254,2 K ; I : 286 K).

Nous donnons figure 10, la susceptibilité incrémentielle $\chi(H,T) = (\partial M(H,T) / \partial H)_T$ des alliages pour des champs magnétiques de 0, 20, 40, 140 kOe à 4,2 K. La concentration critique, correspondant au maximum de susceptibilité est voisine de 42 %. On note une décroissance rapide de la susceptibilité avec le champ magnétique appliqué, avec une variation non linéaire entre 0 et 20 kOe, qui montre l'importance des effets de polarisation dans la valeur du moment magnétique.

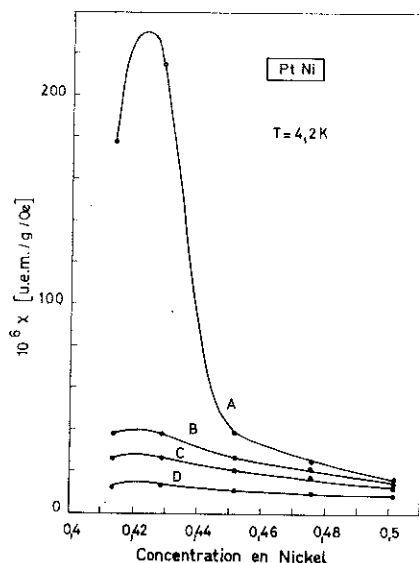


Figure 10 : Variation en fonction de la concentration de la susceptibilité en champ fort des alliages PtNi à 4,2 K et pour divers champs magnétiques appliqués (A : 0 kOe ; B : 20 kOe ; C : 40 kOe ; D : 140 kOe).

Considérant que l'alliage est homogène, la faible valeur de l'aimantation permet de développer la différence d'énergie libre entre l'état paramagnétique et l'état ferromagnétique en fonction de l'aimantation [La 58] :

$$\Delta F = \frac{A(T,c)}{2} M^2(H,T) + \frac{B(T,c)}{4} M^4(H,T) - H M(H,T) \quad (7)$$

Dans le cas où l'aimantation est non saturée, ce développement, généralement valable près de la température de Curie est aussi applicable à basse température [Ma 68]. Dans la théorie de Landau, l'évolution des propriétés magnétiques est due principalement au coefficient $A(T,c)$ alors que le coefficient $B(T,c)$ présente de faibles variations avec la température et la concentration. L'aimantation M est obtenue en minimisant ΔF par rapport à M :

$$[A(T,c) + B(T,c) M^2(H,T)] M(H,T) = H \quad (8)$$

$$\text{ou :} \quad M^2(H,T) = - \frac{A(T,c)}{B(T,c)} + \frac{1}{B(T,c)} \frac{H}{M(H,T)} \quad (9)$$

Dans le cas où $B(T,c)$ varie peu, il existe donc une relation linéaire entre $M^2(H,T)$ et $\frac{H}{M(H,T)}$. Les représentations de M^2 en fonction de H/M sont appelées tracés d'Arrott [Ar 57].

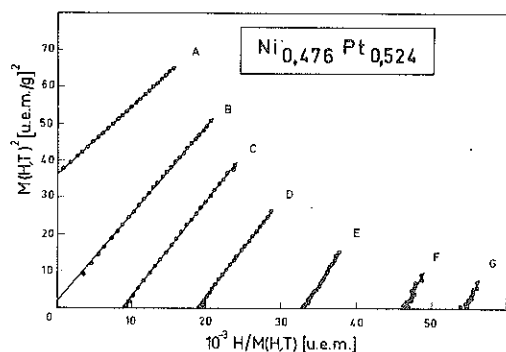


Figure 11 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $\text{Pt}_{0,524}\text{Ni}_{0,476}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe (A : 4,2 K ; B : 77,3 K ; C : 106,8 K ; D : 134 K ; E : 171,7 ; F : 206 K ; G : 226,7 K).

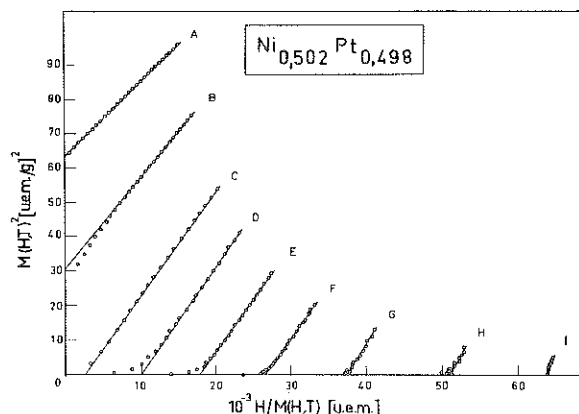


Figure 12 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $\text{Pt}_{0,498}\text{Ni}_{0,502}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe (A : 4,2 K ; B : 77,3 K ; C : 119,8 K ; D : 143,4 K ; E : 167 K ; F : 191 K ; G : 218,4 K ; H : 254,2 K ; I : 286 K)

Les tracés d'Arrott (figures 11 et 12) relatifs aux alliages contenant 47,6 % et 50,2 % Ni, à des températures comprises entre 4,2 et 300 K, sont linéaires. Leur pente, pour un échantillon donné dépend peu de la température. On observe de légères déviations par rapport à la linéarité en champ faible, qui peuvent être dues à des impuretés ou à des inhomogénéités dans l'alliage. Nous avons tracé, figure 13, M^2 en fonction de H/M pour tous les échantillons étudiés, à 4,2 K. On constate que la pente B^{-1} varie peu avec la concentration.

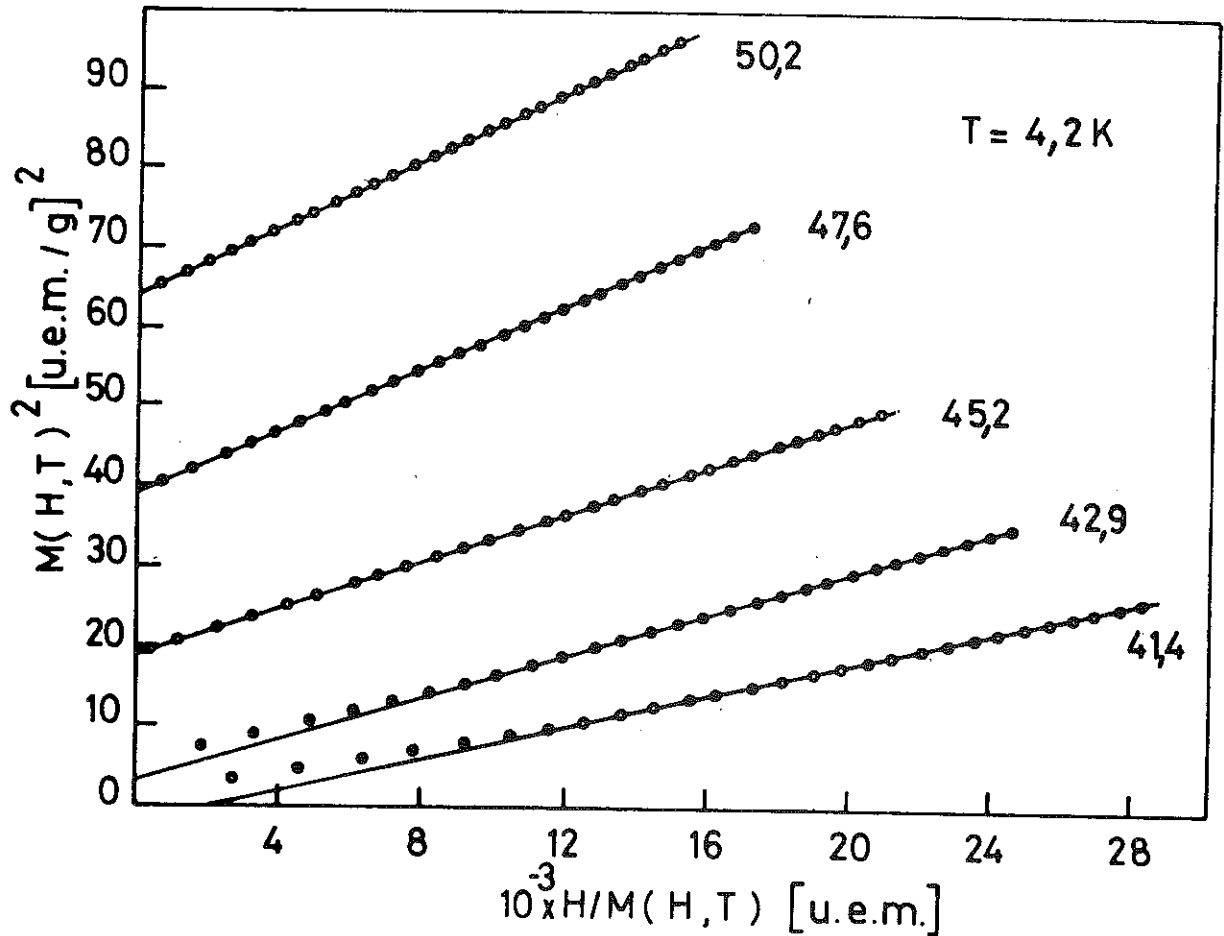


Figure 13 : M^2 en fonction de H/M pour divers alliages PtNi à 4,2 K et sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe.

Exprimons les coefficients de Landau en fonction des variables magnétiques. Nous définissons la susceptibilité initiale sous champ, $\chi(0,T)$, comme la limite de $\chi(H,T)$ lorsque H tend vers 0, et la susceptibilité initiale sous champ à 0 K, $\chi(0,0)$, comme la limite de $\chi(0,T)$ lorsque T tend vers 0. On définit de même l'aimantation spontanée à la température T , $M(0,T)$ comme la limite de $M(H,T)$ lorsque H tend vers 0. On trouve facilement, à partir de l'équation (8) :

$$A(T) = - [2 \chi(0,T)]^{-1}$$

$$\text{et } B(T) = [2 M^2(0,T) \chi(0,T)]^{-1} \quad (10)$$

B(T) varie peu avec la température. $M^2(0,T)$ reste donc proportionnel à $\chi(0,T)^{-1}$ en fonction de la température. On peut ainsi exprimer le coefficient de Landau B par la relation :

$$B = [2 M^2(0,0) \chi(0,0)]^{-1}.$$

Pour une concentration c donnée, l'équation (9) peut donc s'écrire :

$$M^2(H,T) = M^2(0,T) + 2 \chi(0,0) M(0,0)^2 \frac{H}{M(H,T)} \quad (11)$$

En conclusion, les alliages PtNi dans le voisinage de la concentration critique apparaissent comme de faibles ferromagnétiques homogènes dont les propriétés magnétiques sont bien décrites en première approximation par la théorie de Landau.

A-2 - La théorie du faible ferromagnétisme itinérant

1 - L'approximation de Hartree-Fock ou de Stoner

L'approximation de Hartree-Fock de l'hamiltonien de Hubbard consiste à considérer que les électrons de spin $\uparrow$ voient un champ moyen créé par les électrons de spin $\downarrow$. L'énergie totale par atome s'écrit alors :

$$E = \frac{1}{N} \sum_{k\sigma} \epsilon_k \bar{n}_{k\sigma} + U n_{\uparrow} n_{\downarrow} \quad (12)$$

où N est le nombre d'atomes.

$\bar{n}_{k\sigma}$ désigne la moyenne dans le temps du nombre d'électrons de vecteur d'onde k et de spin σ , dont l'énergie cinétique est ϵ_k . U est l'énergie de répulsion coulombienne effective entre deux électrons de spins opposés. On peut montrer que la susceptibilité paramagnétique obtenue dans ce modèle s'exprime par :

$$\chi = \frac{g^2 \mu_B^2}{2} \frac{N N_F}{1 - U N_F} \quad (13)$$

On obtient une susceptibilité renforcée par rapport à la susceptibilité de Pauli χ_p des électrons sans interaction :

$$\chi_p = \frac{g^2 \mu_B^2}{2} N N_F \quad (14)$$

où g est le facteur gyromagnétique et N_F la densité d'états électroniques au niveau de Fermi par atome et par spin.

Le terme $1/(1 - UN_F)$ est appelé facteur de renforcement de Stoner. Il diverge pour $UN_F = 1$. On obtient ainsi le critère de ferromagnétisme de Stoner : $UN_F > 1$.

2 - Le modèle de Edwards et Wohlfarth

A la suite des travaux de Stoner, Edwards et Wohlfarth [Ed 68] ont discuté les propriétés des substances faiblement ferromagnétiques caractérisées par une faible différence de population entre les deux demi-bandes d, en traitant le terme d'interaction par un modèle de champ moléculaire. L'aimantation spontanée à la température T est reliée à l'aimantation spontanée à 0 K par la relation :

$$M^2(0, T) = M^2(0, 0) \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right) \quad (15)$$

et l'aimantation $M(H, T)$ pour le champ magnétique H et la température T obéit à la relation caractéristique :

$$M^2(H, T) = M^2(0, 0) \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right) + 2\chi(0, 0)M^2(0, 0) \frac{H}{M(H, T)} \quad (16)$$

Cette équation n'est autre que l'équation (11) compte-tenu de la relation (15). Les variations thermiques du coefficient de Landau $A(T)$ et de la susceptibilité initiale ferromagnétique $\chi(0, T)$ sont alors données par :

$$A(T) = - \frac{1}{2\chi(0, 0)} \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right) \quad (17)$$

et

$$\chi(0, T) = \chi(0, 0) \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right)^{-1}$$

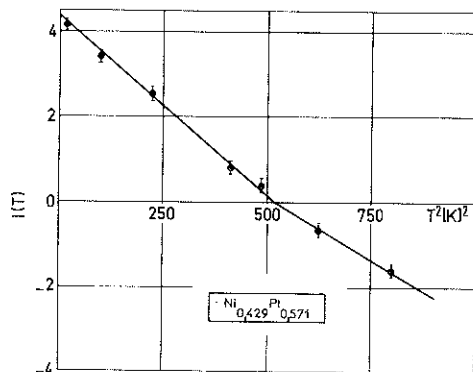


Figure 14 : Variation de $I(T)$ (voir le texte) en fonction de T^2 pour l'alliage $Pt_{0.571}Ni_{0.429}$.

Nous avons tracé, figure 14, la fonction $I(T)$, ordonnée de l'intersection des droites d'Arrott avec l'axe des M^2 en fonction de T^2 pour l'alliage 42,9 % Ni [Al 74]. La relation de Stoner (15) décrit correctement la variation de $I(T)$ à la précision expérimentale près. Une étude détaillée de $I(T)$ à basse température mettra en évidence des déviations par rapport à la loi en T^2 , dues aux excitations collectives.

Le fait de pouvoir appliquer le modèle de Edwards-Wohlfarth au cas des solutions solides désordonnées de type PtNi n'est pas évident et ne peut être invoqué comme une loi générale. On peut cependant considérer que dans le cas des alliages PtNi, dans lesquels il y a de très petits effets d'amas et dont l'aimantation apparaît comme homogène, on a une densité d'états moyenne $\overline{N(\epsilon)}$ et une interaction de Coulomb moyenne $\overline{U}$. On considère alors que $\overline{N(\epsilon)}$ et $\overline{U}$ varient de façon continue avec la concentration. Cela revient à traiter la structure électronique des électrons d par une bande unique. Dans ces conditions il est possible de définir une concentration critique d'apparition du ferromagnétisme.

Mathon [Ma 68] a exprimé, pour des alliages homogènes faiblement ferromagnétiques, la variation de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ en fonction de la concentration. L'aimantation spontanée $M(0,T)$ s'exprime en fonction des coefficients de Landau par :

$$M(0,T) = \left[- \frac{A(T,c)}{B} \right]^{\frac{1}{2}}$$

$A(T,c)$ doit donc être négatif dans l'état ferromagnétique et positif dans l'état paramagnétique. Le plus simple est de supposer que $-A(T,c)$ est proportionnel à $(c - c_F)$. Cette hypothèse entraîne que $M^2(0,0)$ est proportionnel à $c - c_F$. De la relation (15) vérifiée expérimentalement on déduit que T_c est proportionnel à $M(0,0)$; $M^2(0,0)$ est proportionnel à $\chi(0,0)^{-1}$ comme le coefficient B varie faiblement avec la concentration. On prévoit donc les relations de proportionnalité suivantes :

$$M^2(0,0) \sim T_c^2 \sim \chi(0,0)^{-1} \sim (c - c_F) \quad (18)$$

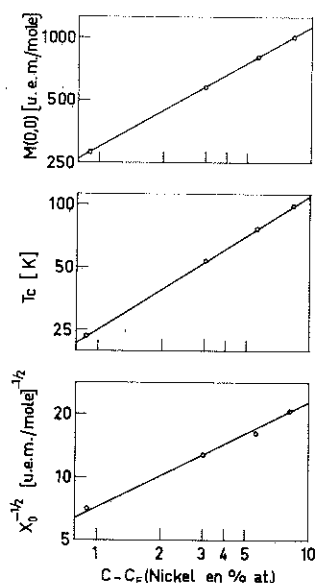


Figure 15 : Variation de $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)^{-1/2}$ en fonction de la concentration pour les alliages PtNi (échelles logarithmiques).

Nous avons représenté, figure 15, en échelles logarithmiques la variation avec la concentration de $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)^{-1/2}$. Les points expérimentaux sont alignés sur des droites dont les pentes sont voisines de 0,5. Nous donnons, tableau 1, les caractéristiques des alliages étudiés ainsi que les valeurs des quantités $M(0,0)/T_c$ et $\chi(0,0) M(0,0)^2$ dont les faibles variations avec la concentration illustrent les lois de proportionnalité (18).

3 - Analyse des résultats expérimentaux

La contribution du couplage spin-orbite à la structure de bande et à la susceptibilité magnétique du platine pur est grande [Fr 61, Fr 64]. Cependant, les expériences de résonance ferromagnétique ont montré que le facteur g de l'alliage $Ni_{0,603}Pt_{0,397}$ était 1,98 et que celui de l'alliage $Ni_{0,502}Pt_{0,498}$ était 2,00 [Fi 69]. Nous supposons donc que la susceptibilité des alliages PtNi près de la concentration critique est une susceptibilité de spin renforcée.

La susceptibilité dans l'état paramagnétique ($A(T) > 0$) est reliée au paramètre de Landau $A(T)$ par :

$$\chi(T) = 1/A(T)$$

Son expression en fonction des paramètres de bande est donnée par (13). Dans l'état ferromagnétique ($A(T) < 0$), la susceptibilité initiale

T A B L E A U 1

Variation de l'aimantation spontanée à 0 K, $M(0,0)$, de la température de Curie T_c , de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ ainsi que de $M(0,0)/T_c$ et $\chi(0,0) M(0,0)^2$

c	0,429	0,452	0,476	0,502
$M(0,0)$ [u.e.m./mole]	283	579	798	1000
$M(0,0)$ [μ_B]	0,051	0,104	0,143	0,179
T_c [K]	23,0	54,2	74 ^a	100 ^a
$10^2 \chi(0,0)$ [u.e.m./mole]	1,98	0,625	0,393	0,241
$M(0,0)/T_c$ [u.e.m./mole K]	12,3	10,7	10,8	10,0
$10^2 \chi(0,0) M(0,0)^2$ [u.e.m./mole]	16	21	25	24

a [Be 72]

$\chi(0,T)$ est reliée à $A(T)$ par :

$$\chi(0,T) = - 1/2 A(T),$$

et son expression est :

$$\chi(0,T) = \mu_B^2 \frac{N N_F}{\bar{U}(T) - 1} \quad (19)$$

où $\bar{U} = U N_F$.

Afin de déterminer N_F et $\bar{U}$, nous devons comparer les mesures de susceptibilité avec les mesures de chaleur spécifique à basse température. Pour un alliage paramagnétique, la contribution essentielle à la chaleur spécifique à basse température est la contribution électronique $c = \gamma_0 T$, où :

$$\gamma_0 = \frac{2}{3} \pi^2 k^2 N N_F. \quad (20)$$

Nous étudierons en détail la chaleur spécifique à basse température des alliages près de la concentration critique c_F dans le chapitre suivant. Le coefficient de chaleur spécifique électronique croît de la valeur 6,5 mJ/mole K^2 pour le platine pur jusqu'à 16 mJ/mole K^2 à c_F . Au contraire ce coefficient dépend peu de la composition pour les alliages ordonnés autour de la composition stoechiométrique 50 % Ni ($\gamma = 11,61$ mJ/mole K^2 pour l'alliage ordonné $Ni_{0,5}Pt_{0,5}$) [Fe 72]. Afin d'obtenir une estimation de N_F nous prenons $\gamma_0 = 11$ mJ/mole K^2 dans le voisinage c_F . On obtient alors $N_F \approx 2,3$ états/eV/atome/spin. On en déduit que la valeur de U est de l'ordre de 0,44 eV que l'on peut comparer à 0,62 eV pour le nickel [Wo 68] et à 0,35 eV pour $ZrZn_2$ [Ed 68] où la densité d'états est de l'ordre de 2,9 états/eV/atome/spin. A partir des valeurs de $\chi(0,0)$ (tableau 1) on peut déduire enfin les valeurs de $\bar{U}$: 1,004, 1,012, 1,020, 1,033 pour les alliages de concentration 42,9, 45,2, 47,6 et 50,2 % Ni.

A-3 - Conclusion

L'aimantation des alliages PtNi est bien décrite par le modèle du faible ferromagnétisme itinérant. En particulier, les tracés M^2 en fonction de H/M sont rectilignes dans une grande gamme de champs magnétiques et parallèles dans un large domaine de température et de concentration. D'autre part, l'aimantation spontanée $M(0,0)$, la température de Curie T_c , et la susceptibilité en champ fort $\chi(0,0)$ sont reliées par des relations caractéristiques des substances faiblement ferromagnétiques [Al 74, Be 74]. Ce modèle, enfin, nous a permis d'obtenir un ordre de grandeur de la densité d'états au niveau de Fermi N_F de l'interaction coulombienne effective entre électrons d. Des expériences de diffraction neutronique, en cours à l'Institut Laue-Langevin permettront de préciser la validité de ce modèle par l'étude précise de la distribution des moments magnétiques dans les alliages PtNi.

B - Les alliages PdNi

B-1 - Discussion de l'homogénéité des alliages PdNi

Nous avons mesuré l'aimantation des alliages sous 150 kOe à des températures entre 4,2 et 300 K. Nous donnons figure 16, les courbes d'aimantation de l'alliage contenant 3 % Ni. Comme pour les alliages PtNi nous constatons que l'aimantation n'est pas saturée en champ très élevé.

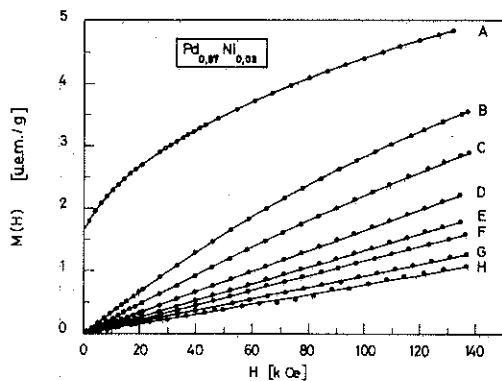


Figure 16 : Aimantation M en fonction du champ H pour l'alliage $\text{Pd}_{0,97}\text{Ni}_{0,03}$
(A : 4,2 K ; B : 77,3 K ;
C : 105,5 K ; D : 137,9 K ;
E : 167,4 K ; F : 193,9 K ;
G : 248 K ; H : 288,3 K)

La susceptibilité incrémentielle présente un maximum vers 2,5 % Ni (figure 17) en accord avec les mesures de Chouteau et al [Ch 68]. La susceptibilité diminue rapidement sous l'effet du champ magnétique appliqué. Une variation non linéaire entre 0 et 20 kOe démontre, comme pour les alliages PtNi, l'importance des effets induits.

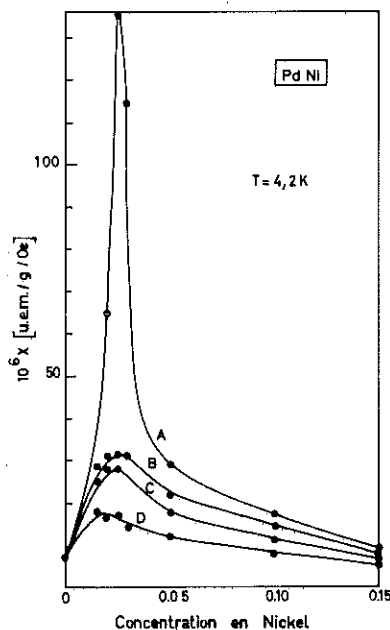


Figure 17 : Variation en fonction de la concentration de la susceptibilité en champ fort des alliages PdNi à 4,2 K et pour divers champs magnétiques appliqués
(A : 0 kOe ; B : 20 kOe ;
C : 40 kOe ; D : 140 kOe).

Plusieurs essais d'analyse de l'aimantation en fonction du champ magnétique ont été effectués pour des alliages faiblement ferromagnétiques inhomogènes à partir d'une expression de l'énergie libre obtenue par Mathon [Ma 68a] :

$$F = \int dr \left[f_0 - M(r)H + \frac{1}{2} A(T,c)M^2(r) + \frac{1}{4} B(T,c)M^4(r) + \frac{1}{2} C(T,c) \{ \vec{\nabla} M(r) \cdot \vec{\nabla} M(r) \} \right] \quad (21)$$

où f_0 représente l'énergie libre dans l'état paramagnétique. En minimisant l'équation (21) par rapport à l'aimantation, on obtient :

$$\left[A(T,c) + B(T,c)M^2(r) - C(T,c)\nabla^2 \right] M(r) = H \quad (22)$$

L'équation (22) peut être résolue dans le cas où les fluctuations locales du coefficient de Landau A et de l'aimantation M sont assez faibles dans le cristal. Cela peut se produire dans les alliages PdNi quand il y a recouvrement des nuages de polarisation des groupes d'atomes de nickel magnétiques, au-dessus d'une concentration de l'ordre de 2,5 à 3 % Ni. Un premier type de solutions de l'équation (22) a été donné lorsque les fluctuations de M sont négligeables devant celles de A [Sh 72], un deuxième type de solutions répond au cas où l'on ne peut négliger les fluctuations de M [Ya 73]. Dans ces deux cas, les tracés de M^2 en fonction de H/M présentent des déviations caractéristiques par rapport à la variation linéaire qui serait observée pour des alliages faiblement ferromagnétiques homogènes.

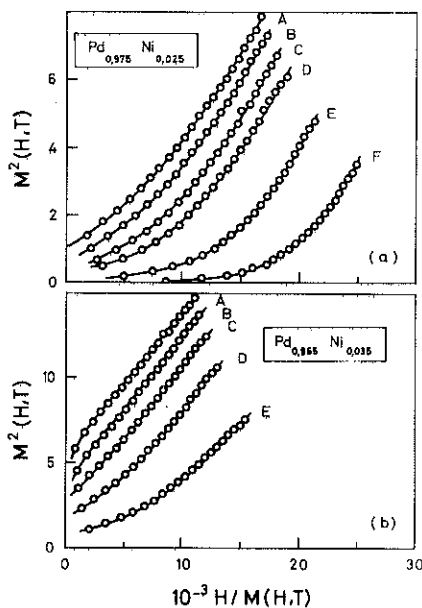


Figure 18 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $\text{Pd}_{0.975}\text{Ni}_{0.025}$ (a) et $\text{Pd}_{0.965}\text{Ni}_{0.035}$ (b) dans des champs magnétiques jusqu'à 45 kOe :

- a) A : 4,2 K ; B : 12,5 K ;
C : 19,8 K ; D : 25,4 K ;
E : 38,7 K ; F : 53,6 K
- b) A : 4,2 K ; B : 15 K ;
C : 23 K ; D : 34,5 K ;
E : 52,4 K.

Nous avons représenté, figure 18, les tracés de M^2 en fonction de H/M pour les alliages contenant 2,5 et 3,5 % Ni. Le premier présente les déviations caractéristiques d'alliages faiblement ferromagnétiques inhomogènes [Ya 73] ; le deuxième apparaît comme plus homogène. Son comportement est assez semblable à celui décrit par Shtrikman et Wohlfarth [Sh 71]. On observe qu'en champ fort, la pente de M^2 en fonction de H/M dépend peu de la température et de la concentration. Au-dessus de 5 % les alliages apparaissent comme des alliages faiblement ferromagnétiques homogènes (figures 19 et 20).

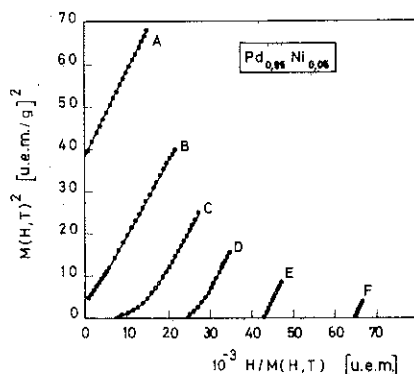


Figure 19 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $Pd_{0.95}Ni_{0.05}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe
(A : 4,2 K ; B : 77,3 K ;
C : 114,1 K ; D : 142,3 K ;
E : 176,7 K ; F : 219,7 K.)

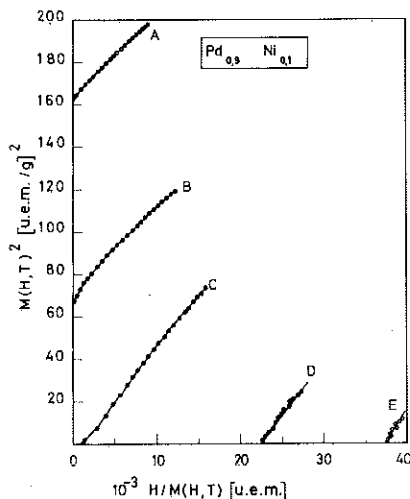


Figure 20 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $Pd_{0.9}Ni_{0.1}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe
(A : 4,2 K ; B : 121,6 K ;
C : 164,2 K ; D : 220,5
E : 256,8 K).

A partir de ces courbes, on peut, compte tenu des variations théoriques prévues [Sh 71, Ya 73], calculer l'écart quadratique moyen de l'aimantation $\langle \Delta M^2 \rangle = \langle \{M - \langle M \rangle\}^2 \rangle$ qui traduit l'inhomogénéité de l'alliage. La valeur trouvée pour $r = \frac{\langle \Delta M^2 \rangle}{\langle M \rangle^2}$, importante à faible concentration ($r = 60 \cdot 10^{-2}$ pour l'alliage 2,5 % Ni), devient faible et varie plus lentement au-dessus de 4 % Ni ($r = 4 \cdot 10^{-2}$ et 10^{-2} pour les alliages 4 et 5 % Ni). Les courbes d'aimantation traduisent donc une évolution d'un état très inhomogène vers un état beaucoup plus homogène au-dessus de 4 % Ni. Ce comportement est illustré aussi par les courbes représentant M^2 en fonction de H/M sous champ maximum de 150 kOe et à 4,2 K pour divers alliages de concentration entre 1,5 et 5 % Ni (figure 21).

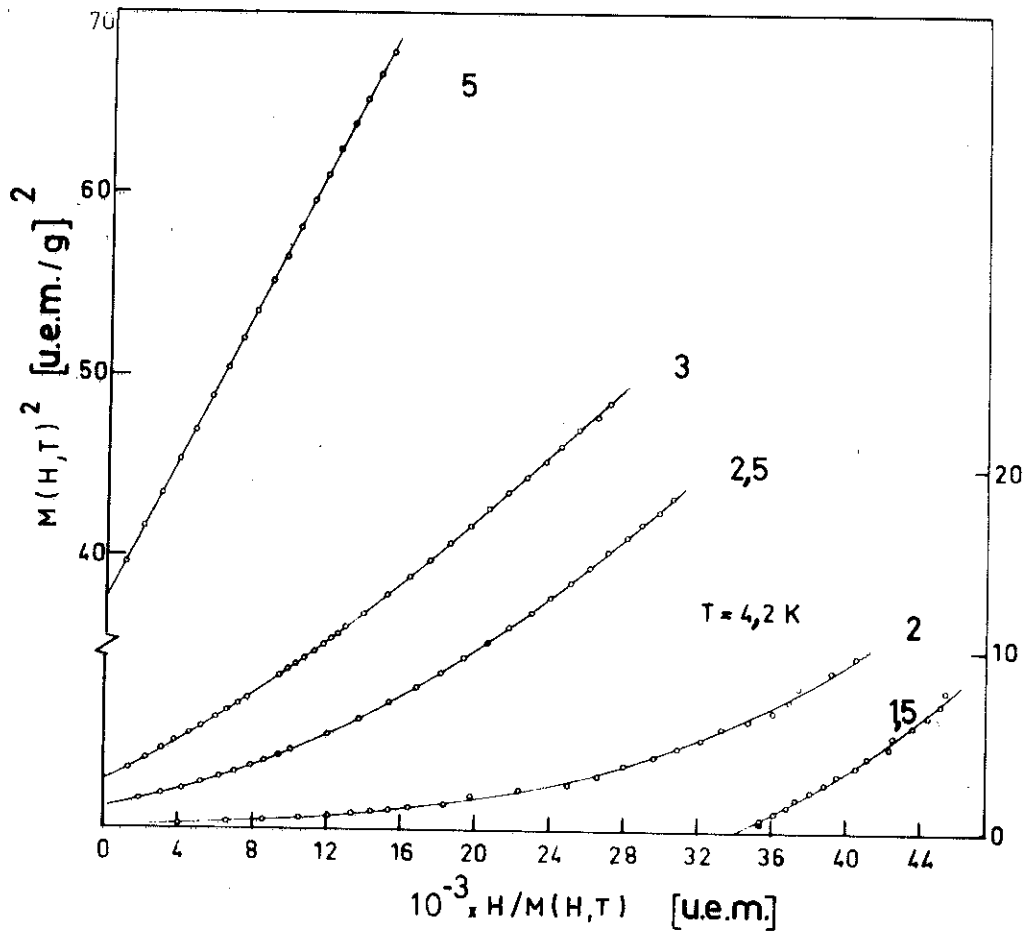


Figure 21 : M^2 en fonction de H/M pour divers alliages PdNi à 4,2 K et sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe.

B-2 - Description des propriétés magnétiques des alliages PdNi
de concentration supérieure à 5 % Ni

Les courbes représentant M^2 en fonction de H/M n'étant pas linéaires, la détermination de la température de Curie T_c des alliages peut être assez imprécise. Par exemple pour l'alliage 3 % Ni, T_c déterminée en champ faible est de 18,2 K et en champ fort 14,4 K. Cependant au-dessus de 3 % Ni, les alliages deviennent plus homogènes et la détermination de T_c est plus précise. Nous avons choisi de définir T_c dans une gamme de champ magnétique entre 20 et 50 kOe, dans laquelle l'influence des impuretés est peu importante.

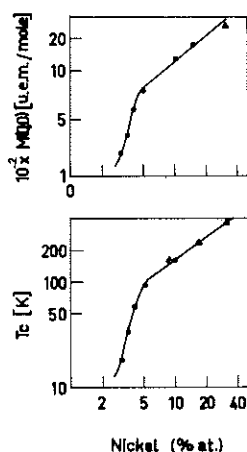


Figure 22 : Variation de $M(0,0)$ et T_c en fonction de la concentration (A: [Sa 32, Ma 37]).

Nous avons tracé, figure 22, l'aimantation spontanée $M(0,0)$ et la température de Curie T_c en échelles logarithmiques. $M(0,0)$ et T_c présentent la même allure de variation, avec un changement de pente vers 5 % nickel correspondant à une modification de comportement physique. Entre 5 et 10 % Ni, $M(0,0)$ est proportionnel à la concentration, ce qui signifie que les atomes de nickel sont presque tous magnétiques, les alliages étant alors chimiquement homogènes. La variation de l'aimantation avec la concentration, de même que la variation avec la concentration de $\partial M(0,0)/\partial p$ et $\partial T_c/\partial p$, comme nous le verrons au chapitre IV, permettent de penser que le couplage des moments localisés sur les atomes de nickel provient principalement d'une interaction indirecte par l'intermédiaire des électrons 4d de la matrice.

Ce modèle a été discuté par Takahashi et Shimizu [Ta 65, Ta 66] dans l'hypothèse d'une polarisation uniforme des électrons d, dans l'approximation du champ moléculaire. Les paramètres sont les coefficients de champ moléculaire α et γ , où α traduit l'échange spin localisé-électron d et γ l'échange électron d-électron d. L'expression obtenue pour T_c est :

$$T_c = N c g^2 \mu_B^2 S(S+1) \frac{\alpha^2 \chi_{Pd}(T_c)}{3k} \quad (23)$$

Le moment par impureté, μ_G , dans le cas où γ est faible devant α est :

$$\mu_G = g S(1 + \alpha \chi_{Pd}) \mu_B \quad (24)$$

Dans ces expressions, S est le spin de l'impureté. Doniach et Wohlfarth [Do 67] ont traité la polarisation induite dans une matrice d par des moments locaux d'une façon indépendante de la forme précise de la polarisation. L'expression du moment géant est la même que celle donnée par (24). Kim [Ki 66] a montré que les impuretés augmentent localement l'interaction coulombienne électron-électron de la matrice ; la matrice peut ainsi devenir ferromagnétique et aligner les spins des impuretés. L'expression trouvée pour la température de Curie est la même que celle donnée par (23). Nous employerons la notation $\hat{J}$ généralement utilisée pour le coefficient α de Takahashi et Shimizu. La relation entre $\hat{J}$ et J , où J est l'intégrale d'échange entre le spin de l'impureté et la densité de spin des électrons d au sens de Doniach et Wohlfarth est :

$$\hat{J} = 2J/N_0 g^2 \mu_B^2. \quad (25)$$

Si χ_{Pd} ne dépendait pas de la température, l'équation (23) conduirait à une variation de T_c linéaire avec la concentration. La variation thermique de χ_{Pd} peut expliquer la variation expérimentale de T_c pour les alliages de concentration supérieure à 5 % Ni. L'équation (23) donne T_c en fonction de c et $\chi_{Pd}(T_c)$, ce qui constitue une relation implicite entre T_c et c . Or entre 150 et 450 K, la susceptibilité du palladium pur peut s'exprimer en fonction de la température par :

$$\chi_{Pd}(T) = \frac{C}{T+\Theta} \quad (26)$$

avec $\Theta = 300$ K et $C = 0,33$ u.e.m.K/mole. On peut ainsi exprimer χ_{Pd} pour la température T_c :

$$x_{Pd}(T_c) = \frac{C}{T_c + \Theta} \quad (27)$$

On peut alors déduire des équations 23 et 27 une relation entre la température de Curie T_c et la concentration c :

$$T_c = \frac{\Theta}{2} \left[(1 + Ac)^{1/2} - 1 \right] \quad (28)$$

où
$$A = \frac{4C}{\Theta^2} \frac{4J^2 S(S+1)}{3N_o k g^2 \mu_B^2}$$

La courbe d'équation (28) qui décrit le mieux la variation expérimentale de la température de Curie pour des concentrations entre 5 et 31 % correspond à $A = 34$ (figure 23). La température de Curie des alliages PdCo a pu être décrite d'une manière analogue jusqu'à 15 % Co [Ho 69]. A partir de la valeur expérimentale du coefficient A et de la valeur 0,3 pour le spin S correspondant au spin effectif du nickel pur, on déduit la valeur de 0,22 eV pour l'intégrale d'échange J . Cette valeur est en très bon accord avec $J = 0,26$ eV que l'on peut déduire de la valeur du moment géant de $2,4 \mu_B$ du nickel dans les alliages de concentration comprise entre 5 et 10 % Ni.

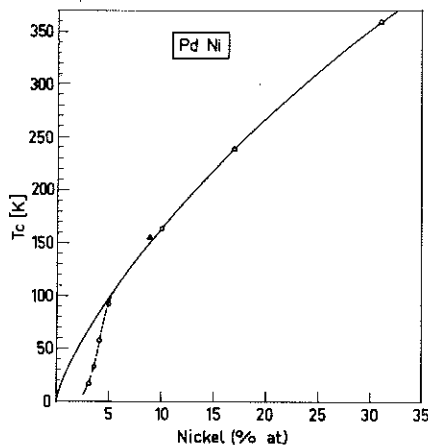


Figure 23 : T_c en fonction de la concentration (Δ : [Sa 32] ; $\circ$: nos mesures) et courbe théorique.

B-3 - Conclusion

Les mesures d'aimantation nous ont permis de mettre en évidence une zone de concentration où les alliages PdNi sont bien décrits par un modèle local comme cela a été discuté par Chouteau [Ch 73] et une zone au-dessus de 5 % Ni où les spins localisés sur les atomes de nickel sont couplés de façon indirecte par l'intermédiaire de la matrice.

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

- [Al 70] ALDRED A.J., RAINFORD B.D., STRINGFELLOW M.W.
P. R. L., 24, 897, 1970.
- [Al 74] ALBERTS H.L., BEILLE J., BLOCH D., WOHLFARTH E.P.
Phys. Rev. B, 9, 2233, 1974.
- [Ar 57] ARROTT A.
Phys. Rev., 108, 1394, 1957.
- [Au 74] AUBERT G., BARTHOLIN H., BLOCH D., CHAUSSY J., GUILLOT M.,
LACAZE A., PAUREAU J., PAUTHENET R., PICOCHÉ J.C., RUB P.,
VALLIER J.C. et WAIN TAL A.
Proc. Int. Conf. on Magnetism, Moscou, 1973.
- [Be 70] BETHOUX O., FERRARI J., CORNUT B.
Rev. Appl. Phys., 5, 865, 1970.
- [Be 72] BESNUS M.J. et HERR A.
Phys. Lett., 39A, 83, 1972.
- [Be 73] BEILLE J., BLOCH D., WOHLFARTH E.P.
Phys. Lett., 43A, 207, 1973.
- [Be 74] BEILLE J., BLOCH D., BESNUS M.J.
J. Phys. F : Metal Phys., 4, 1275, 1974.
- [Bo 51] BOZORTH R.M.
"Ferromagnetism", D. van Nostrand Comp. Inc., Princetown,
New Jersey, 413, 1951.
- [Bo 61] BOZORTH R.M., WOLFF P.A., DAVIS D.D., COMPTON V.B., WERNICK J.H.
Phys. Rev., 122, 1157, 1961.
- [Ch 68] CHOUTEAU G., FOURNEAUX R., GOBRECHT K. et TOURNIER R.
P. R. L., 20, 193, 1968.

- [Ch 73] CHOUTEAU G.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1973.
- [Co 65] COLES B.R., WASZINK J.H., LORAN J.
Proc. Int. Conf. on Magnetism, Nottingham, England,
(The Inst. of Phys. and the Phys. Soc. London, England, 1965).
- [Co 73] COSTA RIBEIRO P.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1973.
- [Cr 60] CRANGLE J.
Phil. Mag., 5, 335, 1960.
- [Cr 65a] CRANGLE J. et SCOTT W.R.
J. Appl. Phys., 36, 921, 1965.
- [Cr 65b] CRAIG P.P., PERISHO R.C., SEGNAN A. et STEYERT W.A.
Phys. Rev., 138A, 1460, 1965.
- [Do 67] DONIACH S. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., 296, 442, 1967.
- [Ed 68] EDWARDS D.M. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., 303A, 127, 1968.
- [Fe 72] FERRANDO W.A., SEGNAN R., SCHINDLER A.I.
Phys. Rev., B5, 4657, 1972.
- [Fi 69] FISHER G. et BESNUS M.J.
Sol. Stat. Commun., 7, 1527, 1969.
- [Fr 61] FRIEDEL J., LEMAN G. et OLSZEWSKI S.
J. Appl. Phys., 325, 325, 1961.
- [Fr 64] FRIEDEL J., LENGART P. et LEMAN G.
J. Phys. Chem. Solids, 25, 789, 1964.
- [Ga 68] GALLOP J.C. et CAMPBELL I.A.
Sol. Stat. Commun., 6, 831, 1968.
- [Gi 72] GILLESPIE D.J., MACKLIETT C.A., SCHINDLER A.I.
Boulder Conf. on Low Temp. Phys., 1972.
- [Gr 68] GRAHAM L.D. et SHREIBER D.S.
J. Appl. Phys., 39, 963, 1968.

- [Ha 58] HANSEN M.
Constitution of binary alloys (McGraw-Hill, N.York, 1958)
p. 1031.
- [Hi 69] HICKS T.J., RAINFORD B., KOUVEL J.S., LOW G.G. et COMLY J.B.
P. R. L., 22, 531, 1969.
- [Ho 69] HOLZAPFEL W.B., COHEN J.A., DRICKAMER H.G.
Phys. Rev., 187, 657, 1969.
- [Ja 65] JACCARINO V. et WALKER L.R.
P. R. L., 15, 258, 1965.
- [Ki 66] KIM D.J.
Phys. Rev., 149, 434, 1966.
- [La 58] LANDAU L.D. et LIFSHITZ E.M.
Statistical Physics (Pergamon, N.Y., 1958).
- [Le 68] LEDERER P. et MILLS D.L.
Phys. Rev., 165, 187, 1968.
- [Lo 66] LOW G.G. et HOLDEN T.M.
Proc. Phys. Soc., 89, 119, 1966.
- [Lo 72] LORAM J.W., WHITE R.J. et GRASSIE A.D.C.
Phys. Rev., B5, 3659, 1972.
- [Ma 37] MARIAN V.
Ann. de Phys., 7, 513, 1937.
- [Ma 62] McDONALD D.K.C., PEARSON W.B. et TEMPLETON I.M.
Proc. Roy. Soc. (London), A266, 161, 1962.
- [Ma 67] MALEY M.P., TAYLOR R.D., THOMPSON J.L.
J. Appl. Phys., 38, 1249, 1967.
- [Ma 68a] MATHON J.
Proc. Roy. Soc., A306, 355, 1968.
- [Ma 68b] MATHON J. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., A302, 409, 1968.

- [Ma 70] MACKLIET C.A., SCHINDLER A.I., GILLESPIE D.J.
Phys. Rev., 1B, 3283, 1970.
- [Mu 70] MUELLER F.M., GARLAND J.W., COHEN M.H. et BENNEMANN
(non publié), cité par [Ma 70].
- [My 68] MYDOSH J., BUDNICK J.I., KAWATRA M.P. et SKALSKI S.
P. R. L., 21, 1346, 1968.
- [Ni 72] NIEWENHUYNS G.J., BOERSTOEL B.M., ZWART J.J., DOKTER H.D.
et VAN DEN BERG G.J.
Physica, 62, 278, 1972.
- [Ob 68] OBENSHAIN F.E., LOVE J.C. et CZJZEK G.
Proc. of the 11th Int. Conf. on Low Temp. Phys., St Andrews,
Scotland, 1969.
- [Pe 70] PERRIER J.P., TISSIER B. et TOURNIER R.
P. R. L., 24, 313, 1970.
- [Ro 68] ROWLAND T.J. et BEAL MONOD M.T.
Phys. Rev., 164, 360, 1968.
- [Ro 69] ROBBINS C.G., CLAUS H., BECK P.A.
Phys. Rev. Lett., 22, 1307, 1969.
- [Sa 32] SADRON C.
Ann. de Phys., 27, 417, 1932.
- [Sh 69] SHEN L., SHREIBER D.S., ARKO A.J.
Phys. Rev., 179, 512, 1969.
- [Sh 72] SHTRIKMAN S. et WOHLFARTH E.P.
Physica, 60, 427, 1972.
- [Su 74] SUMIYAMA K.
Thèse Docteur-Ingénieur, Université de Kyoto, 1974.
- [Ta 65] TAKAHASHI T. et SHIMIZU M.
J. Phys. Soc. Japan, 20, 26, 1965,
- [Ta 66] TAKAHASHI T. et SHIMIZU M.
J. Phys. Soc. Japan, 21, 681, 1966.

- [Ti 68] TISSIER B.
Thèse de 3e Cycle, Université de Grenoble, 1968.
- [Ti 72] TISSIER B. et TOURNIER R.
Sol. Stat. Commun., 11, 895, 1972.
- [Wi 68] WINDMILLER L.R. et KETTERSON J.B.
P. R. L., 20, 324, 1968.
- [Wi 70] WILLIAMS G.
J. Phys. Chem. Solids, 31, 529, 1970.
- [Wo 68] WOHLFARTH E.P.
J. Inst. Math. Appl., 4, 359, 1968.
- [Ya 73] YAMADA H. et WOHLFARTH E.P.
Phys. Stat. Sol., 58, K151, 1973.

C H A P I T R E I I I

ETUDE DE L'AIMANTATION ET DE LA CHALEUR SPÉCIFIQUE À BASSE TEMPÉRATURE.

VARIATION THERMIQUE DES COEFFICIENTS DE LANDAU ET

DE LA SUSCEPTIBILITÉ PARAMAGNÉTIQUE DES ALLIAGES PtNi ET PdNi

III-1 - INTRODUCTION

Nous discutons dans ce chapitre de l'évolution thermique de grandeurs physiques caractéristiques de la nature du magnétisme dans les alliages PtNi et PdNi. Nous étudions ainsi à basse température les différentes excitations intervenant dans la variation thermique de l'aimantation et les chaleurs spécifiques d'alliages PtNi dont les concentrations en nickel sont situées de part et d'autre de la concentration critique d'apparition du ferromagnétisme. Dans le domaine des plus hautes températures, entre la température de Curie des alliages et la température ambiante, nous étudions l'évolution thermique des coefficients de Landau et de la susceptibilité paramagnétique.

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

Le modèle de bande de Stoner pour la description du ferromagnétisme ne contenait pas d'excitations dues aux ondes de spin. Herring et Kittel [He 51] ont montré que de telles excitations pouvaient exister dans les métaux où les électrons présentent un caractère itinérant. Un traitement dynamique est nécessaire pour obtenir

leur contribution à laquelle on ne peut pas accéder dans le traitement statique de champ moléculaire de Stoner. L'aimantation à basse température peut s'écrire alors sous la forme :

$$M_{\text{total}}(H,T) = M_{ST}(H,T) - \Delta M_{O.S.}(H,T)$$

où $M_{ST}(H,T)$ est la partie de l'aimantation due aux excitations de Stoner et $\Delta M_{O.S.}(H,T)$ est la variation de l'aimantation due aux ondes de spin. M_{ST} varie linéairement en fonction de T^2 depuis $T = 0$ K jusqu'à la température de Curie pour un faible ferromagnétique itinérant [Ed 68]. $\Delta M_{O.S.}$ a une contribution principale en $T^{3/2}$ en champ nul et à basse température.

Il nous a paru intéressant d'essayer de séparer, à l'aide de mesures d'aimantation précises, les contributions à la variation thermique de l'aimantation à basse température des deux types d'excitations et d'en déduire le coefficient D de dispersion des ondes de spin. Le coefficient D doit être obtenu directement par des mesures de diffraction neutronique, en cours à l'Institut Laue-Langevin.

Les mesures d'aimantation ont été utilisées antérieurement pour la détermination des excitations collectives dans des alliages du palladium. Les valeurs du coefficient D des alliages PdFe, déduites des mesures de chaleur spécifique de Veal et Rayne [Ve 64], des mesures de champ hyperfin par R.M.N. sur le noyau de fer par Skalski et al [Sk 68], des expériences de diffraction neutronique aux petits angles de Stringfellow [St 68] et enfin des mesures de chaleur spécifique et d'aimantation à basse température [Sm 70] sont cohérentes entre elles.

L'incertitude sur la détermination du coefficient D résulte des hypothèses simplificatrices effectuées lors de l'analyse des courbes d'aimantation. Ainsi nous supposerons que la contribution de l'interaction mode - mode est faible et qu'elle ne donne pas lieu à des termes d'ordre supérieur à q^2 dans la relation de dispersion (q est le moment associé à l'énergie $\hbar\omega_q$). On négligera d'autre part la variation thermique du coefficient D à basse température. Enfin, nous calculerons le coefficient D sous un champ magnétique H donné sans tenir compte du terme supplémentaire qu'introduit théoriquement, dans la variation thermique de l'aimantation, une variation du coefficient D en fonction du champ magnétique H.

Cependant, compte tenu de la cohérence des études précédemment effectuées sur les alliages PdFe et qui reposent sur des hypothèses analogues, nous pouvons espérer obtenir, à partir des mesures d'aimantation, un ordre de grandeur du coefficient D de dispersion des ondes de spin.

A - La théorie des ondes de spin

A-1 - Excitations de Stoner et excitations collectives en fonction de la température et du champ magnétique

Dans une première étape, nous ne tenons pas compte de la contribution des ondes de spin. A partir de la relation entre le carré de l'aimantation $M^2(H,T)$ et le rapport $H/M(H,T)$ qui existe pour des alliages faiblement ferromagnétiques [Ed 68], on déduit pour des températures suffisamment faibles la relation suivante :

$$\frac{M(H,T)}{M(0,0)} = 1 + \frac{\chi(0,0)H}{M(0,0) + \chi(0,0)H} - \frac{M(0,0)}{M(0,0) + \chi(0,0)H} \frac{T^2}{2T_c^2} \quad (1)$$

Ajoutant ensuite la contribution due aux excitations collectives, on trouve pour la variation de l'aimantation en fonction du champ magnétique et de la température :

$$\frac{M(H,T)}{M(0,0)} = 1 + \frac{\chi(0,0)H}{M(0,0) + \chi(0,0)H} - \frac{M(0,0)}{M(0,0) + \chi(0,0)H} \frac{T^2}{2T_c^2} - \frac{\Delta M_{0.S.}(H,T)}{M(0,0)} \quad (2)$$

A basse température et pour les grandes longueurs d'onde, les ondes de spin agissent comme une collection de particules obéissant à la statistique de Bose. La relation entre l'énergie d'excitation d'un spin et son moment est :

$$E = Dq^2 + g\mu_B H \quad (3)$$

où l'on néglige les termes d'ordre supérieur à q^2 .

A partir de cette relation de dispersion on trouve dans la limite des basses températures [Th 64] :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta M_{0.S.}(H,T)}{M(0,0)} &= 0,1173 \Omega \frac{N_a}{M(0,0)} \frac{\zeta(\frac{3}{2}, \frac{T_M}{T})}{\zeta(\frac{3}{2})} \left(\frac{k_B}{D}\right)^{3/2} T^{3/2} \\ &= C \frac{\zeta(\frac{3}{2}, \frac{T_M}{T})}{\zeta(\frac{3}{2})} T^{3/2} \end{aligned} \quad (4)$$

où N_a est le nombre d'atomes dans le cristal, Ω le volume atomique et $M(0,0)$ l'aimantation spontanée. $\zeta(\frac{3}{2})$ est la fonction de Rieman d'indice $\frac{3}{2}$ et $\zeta(\frac{3}{2}, \frac{1}{t})$ est la fonction de Rieman d'indice $\frac{3}{2}$ généralisée définie par :

$$\zeta(\frac{3}{2}, \frac{1}{t}) = \sum_{m=1}^{\infty} m^{-\frac{3}{2}} \exp(-\frac{m}{t}).$$

T_M est la température caractéristique de l'énergie magnétique $g\mu_B H$.

$$T_M = \frac{g\mu_B H}{k_B}.$$

On obtient le développement suivant pour l'aimantation :

$$\frac{M(H,T)}{M(H,0)} = 1 - m_2(H) T^2 - m_{3/2}(H,T) T^{3/2} \quad (5)$$

où :

$$M(H,0) = \frac{M(0,0) + 2\chi(0,0)H}{M(0,0) + \chi(0,0)H} \times M(0,0) \quad (5a)$$

$$m_2(H) = \frac{M(0,0)}{M(0,0) + 2\chi(0,0)H} \times \frac{1}{2T_c^2} \quad (5b)$$

$$m_{3/2}(H,T) = \frac{M(0,0) + \chi(0,0)H}{M(0,0) + 2\chi(0,0)H} \times \frac{\zeta(\frac{3}{2}, \frac{T_M}{T})}{\zeta(\frac{3}{2})} \times C \quad (5c)$$

$$C = 0,1173 \Omega \frac{N_a}{M(0,0)} \left(\frac{k_B}{D}\right)^{3/2} \quad (5d)$$

A-2 - Effets de la magnétostriction

Les effets de magnétostriction se superposent aux effets des différentes excitations que nous avons évaluées précédemment. On peut exprimer la variation de l'aimantation M par la relation [Co 70]

$$\frac{dM(0,T)}{M(0,0)} = \frac{1}{M(0,0)} \left(\frac{\partial M(0,T)}{\partial V}\right)_T dV + \frac{1}{M(0,0)} \left(\frac{\partial M(0,T)}{\partial T}\right)_V dT \quad (6)$$

$$\frac{dM(0,T)}{M(0,0)} = \left[\Gamma\beta + \frac{1}{M(0,0)} \left(\frac{\partial M(0,T)}{\partial T}\right)_V \right] dT \quad (7)$$

où $\Gamma = \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V}$, et où β est le coefficient volumique de dilatation thermique. On en déduit la variation thermique relative d'aimantation à pression fixe p :

$$\left(\frac{M(0,T) - M(0,0)}{M(0,0)} \right)_p = T \int_0^T \beta dT + \left(\frac{M(0,T) - M(0,0)}{M(0,0)} \right)_V \quad (8)$$

Kortekaas et al [Ko 74] ont mesuré récemment la dilatation thermique linéaire de 3 alliages PtNi de concentration 36,9, 42,9, 45,2 % Ni entre 4,2 et 6 K. La dilatation linéaire peut être représentée en première approximation par :

$$\frac{L(T) - L(4,2 \text{ K})}{L(4,2 \text{ K})} = AT^2 = \int_{4,2 \text{ K}}^T \beta dT.$$

Le coefficient A vaut $-0,13 \cdot 10^{-8}$ et $-0,28 \cdot 10^{-8}$ pour les deux alliages PtNi de concentration 42,9 et 45,2 % Ni. Le terme $\left| \int_0^T \beta dT \right|$ pour les alliages étudiés est bien inférieur à $10^{-8} T^2$.

Nous déduisons des données magnétiques obtenues sur les alliages PtNi (tableau 1), que la contribution de la magnétostriction à la variation thermique de l'aimantation est inférieure à $20 \cdot 10^{-8} T^2$ pour l'alliage de concentration 52 % Ni. Ce terme représente 0,55 % du coefficient $\frac{1}{2T_c^2}$ du terme de Stoner.

T A B L E A U 1

	Pt _{0,53} Ni _{0,47}	Pt _{0,48} Ni _{0,52}	Pd _{0,96} Ni _{0,04}	Pd _{0,95} Ni _{0,05}
M(0,0) u.e.m./mole	678	1074	449	653
χ(0,0) x 10 ⁴ u.e.m./mole	34,8	15,5	33,6	20
T _c (K)	71	114	53,7	80
$\Gamma = \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V}$	15,6	21	2,4	3,65

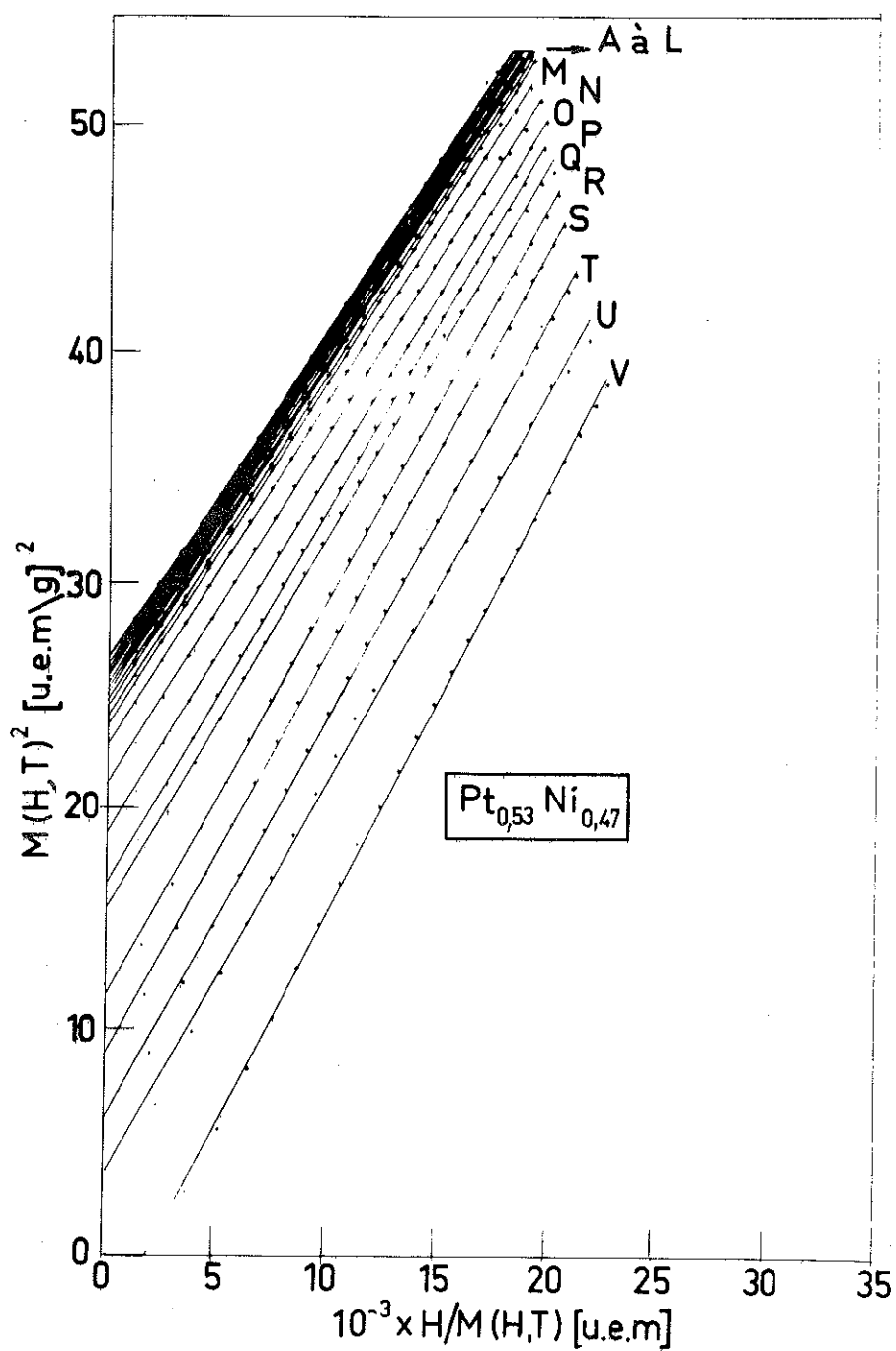


Figure 1 ; M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $Pt_{0,53}Ni_{0,47}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe et à diverses températures
A : 4,2 K ; B : 6,0 K ; C : 7,55 K ; D : 9,0 K ; E : 10,51 K ;
F : 11,89 K ; G : 13,31 K ; H : 14,37 K ; I : 16,02 ;
J : 17,36 K ; K : 19,22 K ; L : 20,72 ; M : 23,64 ;
N : 29,76 K ; O : 35,63 K ; P : 40,13 K ; Q : 43,75 K ;
R : 49,98 K ; S : 55,08 K ; T : 60,73 K ; U : 65,63 K ;
V : 76,48 K.

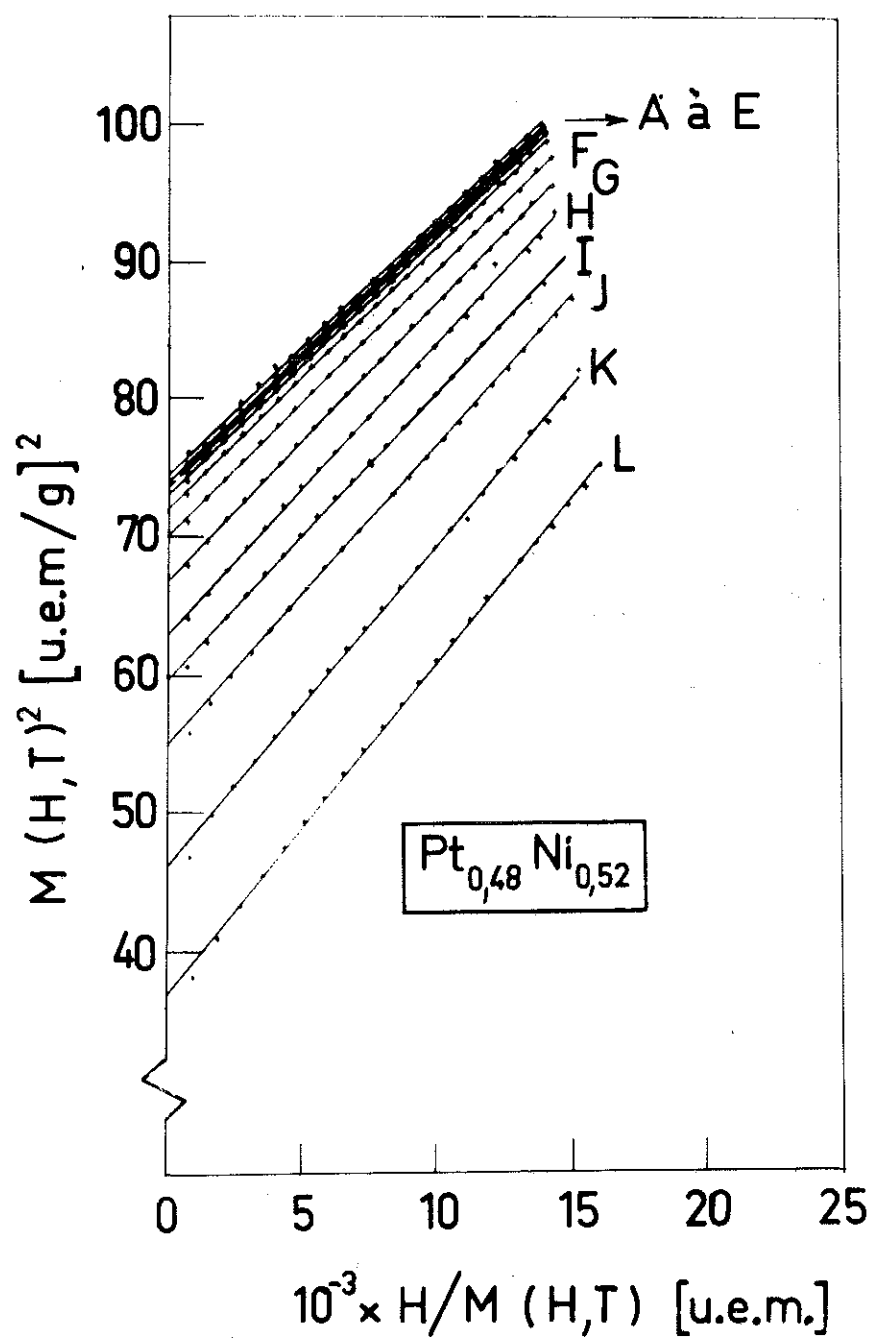


Figure 2 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $\text{Pt}_{0,48}\text{Ni}_{0,52}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe et à diverses températures
 A : 4,2 K ; B : 8,04 K ; C : 12,13 K ; D : 15,64 K ;
 E : 19,88 K ; F : 27,04 K ; G : 35,35 K ; H : 45,74 K ;
 I : 52,99 K ; J : 62,14 K ; K : 75,66 K ; L : 88,93 K.

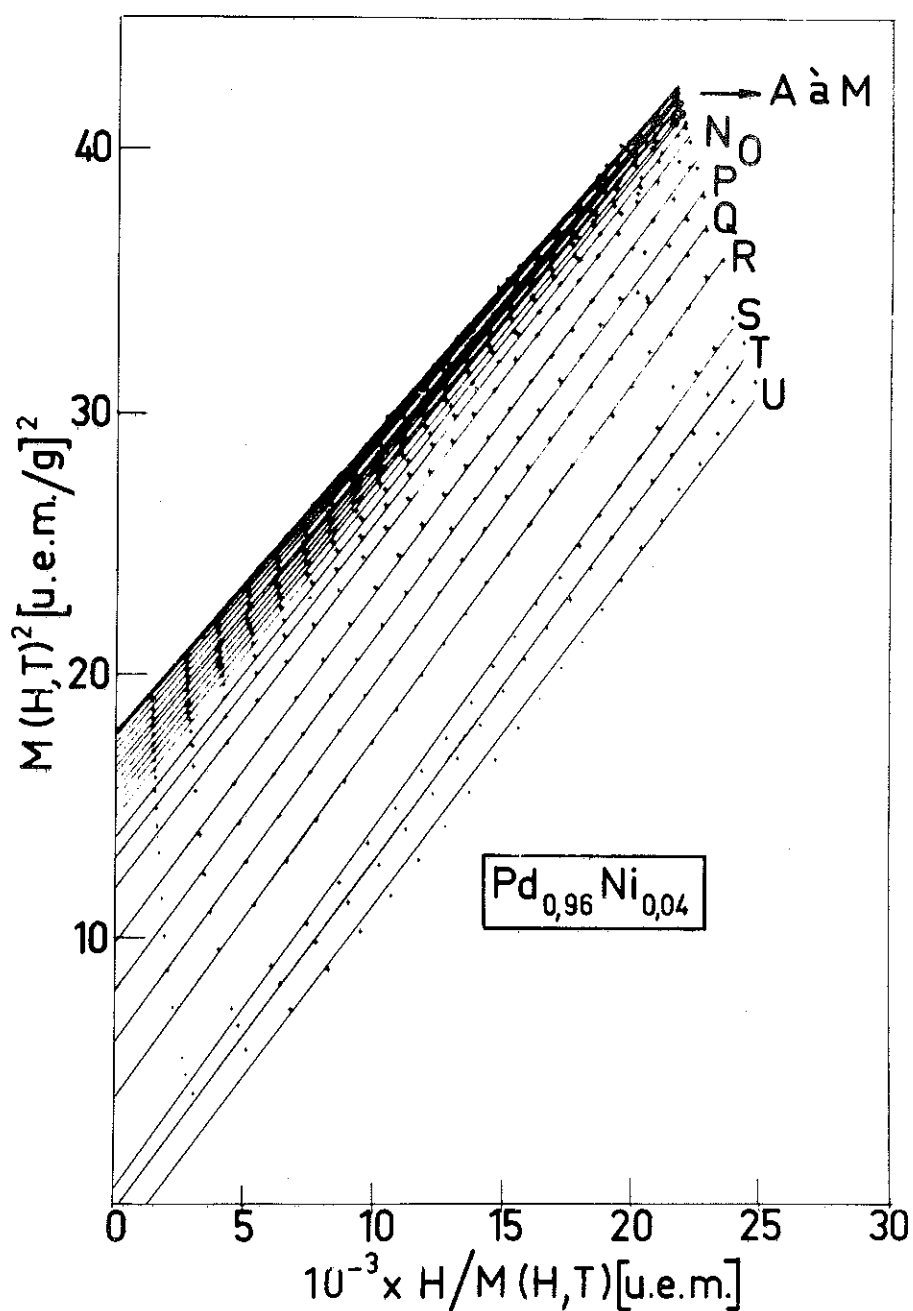


Figure 3 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $\text{Pd}_{0,96}\text{Ni}_{0,04}$ sous champ magnétique jusqu'à 140 kOe et à diverses températures
A : 1,4 K ; B : 4,2 K ; C : 5,81 K ; D : 7,0 K ; E : 8,4 K ;
F : 10,02 K ; G : 11,58 K ; H : 12,63 K ; I : 13,61 K ;
J : 14,83 K ; K : 16,11 K ; L : 17,65 K ; M : 19,85 K .
N : 22,02 K ; O : 25,09 K ; P : 30,45 K ; Q : 34,9 K ;
R : 39,13 K ; S : 44,13 K ; T : 51,25 K ; U : 54,96 K.

Pour les alliages PdNi, il n'existe pas de mesures directes du coefficient de dilatation thermique. Nous savons seulement que le coefficient de dilatation thermique électronique b du palladium ($\beta \approx bT$ à basse température) est de l'ordre de deux fois celui du platine et vaut $4,05 \cdot 10^{-9} \text{ K}^{-2}$ d'après White et al [Wh 70] et White [Wh 72]. Nous supposons que pour les alliages PdNi la contribution de la magnétostriction à la variation thermique de l'aimantation est du même ordre de grandeur que pour les alliages PtNi et nous la négligerons.

B - Résultats expérimentaux

B-1 - Détails expérimentaux

Nous avons étudié la variation thermique entre 1,4 ou 4,2 K et 90 K de l'aimantation de deux alliages PtNi contenant 47 et 52 % Ni et de l'alliage Pd-Ni contenant 4 % Ni sous champ magnétique intense jusqu'à 150 kOe. Nous avons d'autre part mesuré la variation thermique de l'aimantation de l'alliage PdNi 5 % Ni, entre 4,2 et 30 K sous champ magnétique fixe : 50 et 100 kOe respectivement. Les résultats sont représentés sous forme de tracés de M^2 en fonction de H/M (figures 1 à 3) donnés par l'ordinateur à l'aide d'une méthode de moindres carrés. A partir de ces tracés, on détermine par extrapolation en champ nul, la variation thermique de l'aimantation spontanée. Nous avons obtenu les variations thermiques de l'aimantation pour 25, 50, 75, 100 kOe par interpolation, à partir des isothermes, et nous présentons les points expérimentaux, figure 4.

B-2 - Analyse des résultats

1 - Etude en champ nul

La variation thermique de l'aimantation déduite de l'équation (5) peut s'écrire :

$$\frac{M(T)}{M(0,0)} = 1 - m_{2(H=0)} T^2 - m_{3/2(H=0)} T^{3/2} \quad (9) \quad (9)$$

où : $m_{2(H=0)} = \frac{1}{2T_c^2} \quad (9a)$

et $m_{3/2(H=0)} = C \quad (9b)$

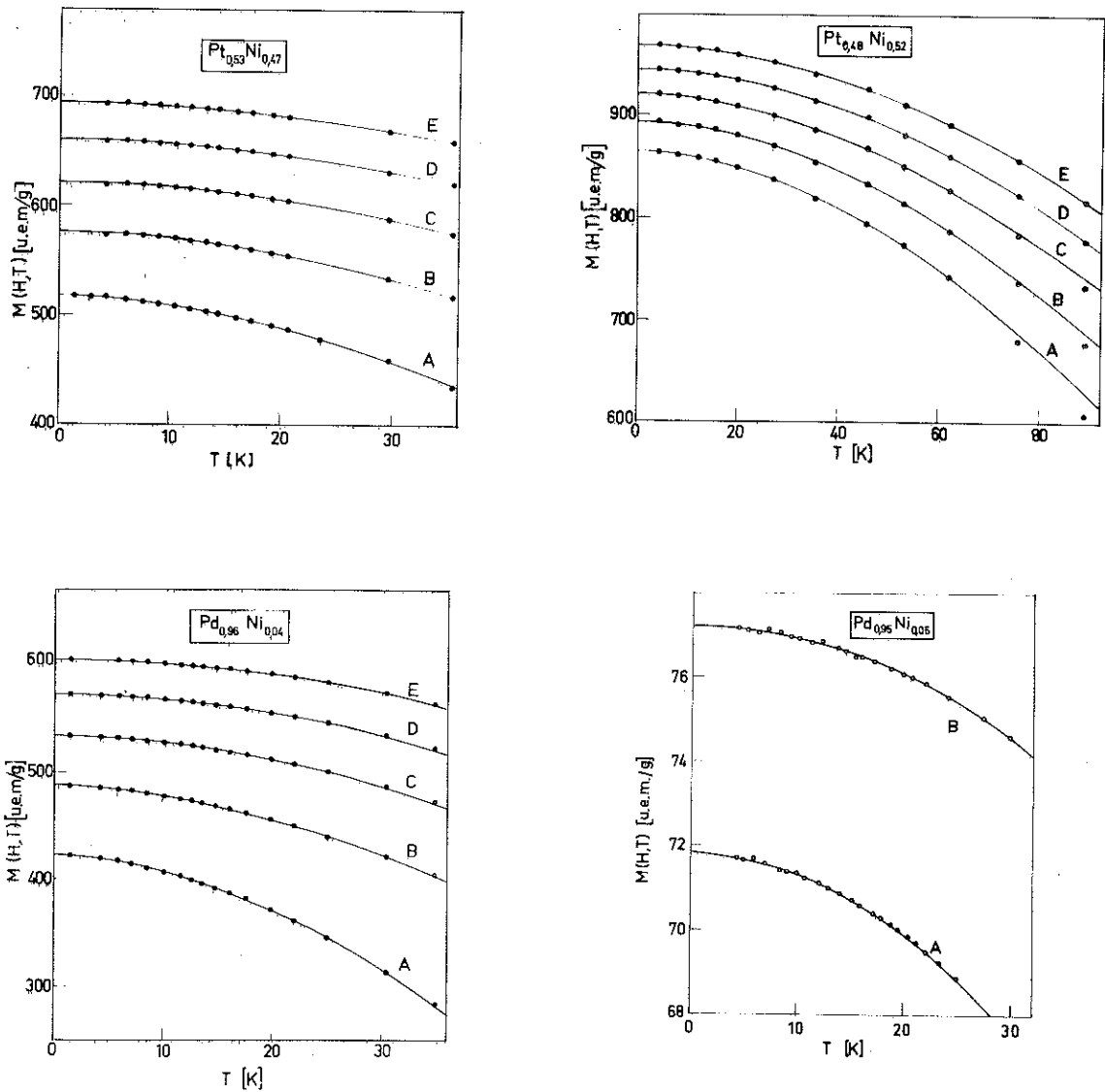


Figure 4 : Variation thermique, sous champ magnétique constant, de l'aimantation M des échantillons $\text{Pt}_{0.53}\text{Ni}_{0.47}$, $\text{Pt}_{0.48}\text{Ni}_{0.52}$, $\text{Pd}_{0.96}\text{Ni}_{0.04}$ (A : 0 kOe ; B : 25 kOe ; C : 50 kOe ; D : 75 kOe ; E : 100 kOe) et $\text{Pd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}$ (A : 50 kOe ; B : 100 kOe).

Nous avons mis en évidence la présence d'un terme en T^2 et d'un terme en $T^{3/2}$ dans la variation thermique de l'aimantation en traçant $(\frac{M(0,T)}{M(0,0)} - 1)T^{-3/2}$ en fonction de $T^{1/2}$ (figure 5 pour les alliages $Pt_{0,53}Ni_{0,47}$ et $Pd_{0,96}Ni_{0,04}$). La variation est linéaire dans les limites de la dispersion expérimentale. Il est difficile de prendre en considération les points expérimentaux correspondant à des températures inférieures à 5 K à cause de l'imprécision de leur détermination. Nous avons tracé par ailleurs en traits discontinus la loi de Stoner dans cette représentation définie à partir des valeurs expérimentales de $M(0,0)$ et de T_c . Nous attribuons les écarts observés entre la loi de Stoner et les points expérimentaux à basse température aux excitations collectives. Nous avons donc calculé les coefficients $m_{2(H=0)}$ et $m_{3/2(H=0)}$ à partir du développement à coefficients constants (9) à l'aide d'une méthode de moindres carrés prenant en compte les résultats expérimentaux. Les courbes ainsi obtenues pour la variation thermique de l'aimantation en champ nul sont tracées, figure 4. Nous avons reporté, tableau 2, les coefficients $M(0,0)$, $m_{2(H=0)}$ et $m_{3/2(H=0)}$ relatifs à l'alliage $Pt_{0,53}Ni_{0,47}$. La température de Curie déterminée à partir de la valeur du coefficient $m_{2(H=0)}$ est 88 K, soit de l'ordre de 1,25 fois la valeur de T_c déterminée directement à l'aide des tracés d'Arrott dans la gamme de températures correspondante. L'accord est satisfaisant.

Nous avons inclus dans le calcul la mesure des aimantations spontanées correspondant à des températures inférieures à $T_c/2$. Nous avons calculé le coefficient D de dispersion des ondes de spin à partir des valeurs du coefficient $m_{3/2(H=0)}$. Nous avons trouvé pour D les valeurs 96 ± 10 et 146 ± 15 meV Å² pour les alliages $Pt_{0,58}Ni_{0,42}$ et $Pt_{0,48}Ni_{0,52}$ et 82 ± 10 meV Å² pour l'alliage $Pd_{0,96}Ni_{0,04}$.

2 - Etude sous champ magnétique

Sous champ magnétique, le coefficient $m_{3/2}(H,T)$ dépend de la température (équation 5). Nous avons cependant déterminé $M(0,H)$ et $m_2(H)$ à partir des points expérimentaux représentant l'évolution thermique de l'aimantation sous champ constant, à l'aide d'un développement à coefficients constants semblable à celui donné par l'équation (9). Les courbes caractérisées par ce développement sont tracées, figure 4. La valeur de T_c déduite de $m_2(H)$ est en bon accord avec la valeur expérimentale (6e colonne du tableau 2). De même les valeurs

T A B L E A U 2

Coefficients $m_2(H)$, $m'_{3/2}(H)$, $M(0,H)$, du développement en fonction de la température de l'aimantation de l'alliage $Pt_{0,53}Ni_{0,47}$ pour différentes valeurs du champ magnétique ; valeurs calculées pour $M(0,H)$ à partir de (5a) ; valeurs calculées pour la température de Curie T_c à partir de (5b)

H (kOe)	$10^5 m_2(H)$ (K) ⁻²	$10^5 m'_{3/2}(H)$ (K) ^{-3/2}	M(0,H) (voir texte) u.e.m./g	M(0,H) calculé u.e.m./g	T_c déduite de m_2 (H) ² (K)
0	$6,5 \pm 1$	34 ± 4	5,175	5,175	88
25	$4,8 \pm 1$	40 ± 4	5,767	5,765	91
50	$4,1 \pm 0,5$	31 ± 4	6,219	6,236	90
75	$3 \pm 0,3$	43 ± 8	6,614	6,618	97
100	$2,8 \pm 0,3$	40 ± 8	6,953	6,934	94

de $M(0,H)$ sont en bon accord avec les valeurs calculées à partir de l'équation (5) (5e colonne du tableau 2). On peut alors obtenir par lissage le coefficient constant :

$$m'_{3/2} = m_{3/2}(H,T) \frac{\zeta(\frac{3}{2})}{\zeta(\frac{3}{2} - \frac{T}{T_g})} = \frac{M(0,0) + \chi(0,0)H}{M(0,0) + 2\chi(0,0)H} C$$

et en déduire le coefficient de dispersion sous champ magnétique $D(H)$ par la formule (5a). Les valeurs de D ainsi obtenues ont été reportées sur la figure 6.

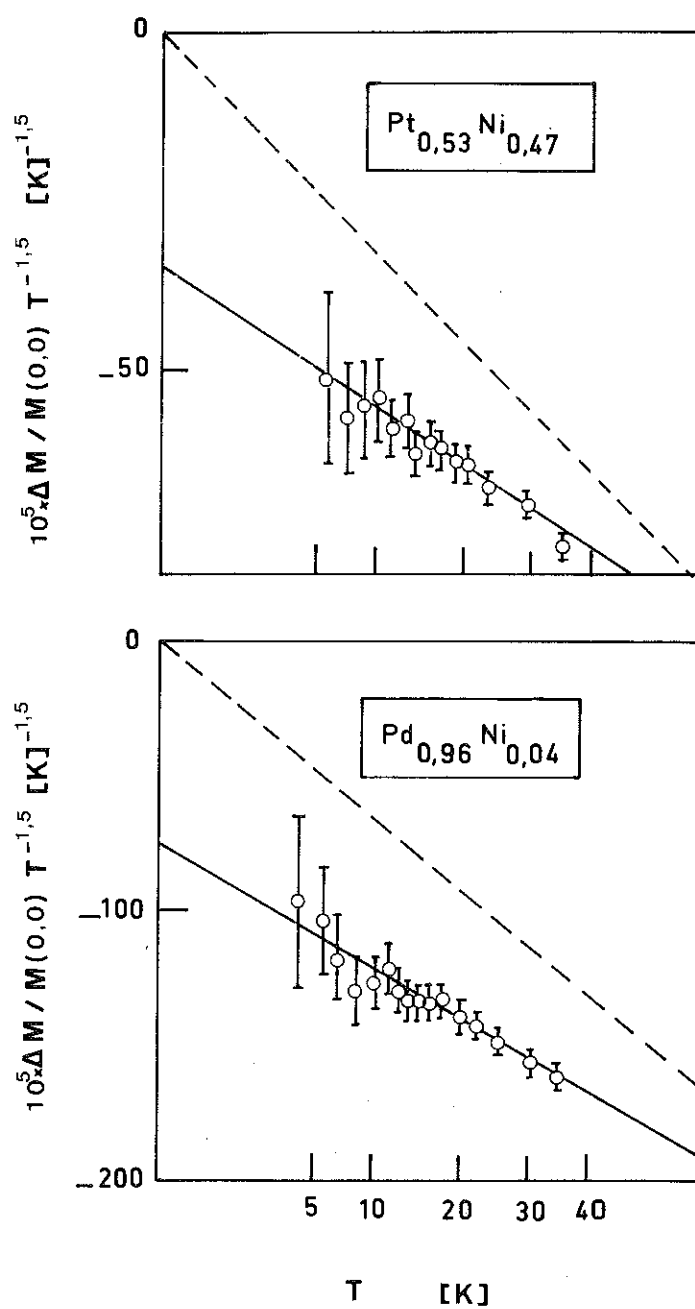


Figure 5 : Variation du rapport $(\frac{M(0,T)}{M(0,0)} - 1)T^{-3/2}$ en fonction de $T^{1/2}$ pour les alliages $Pt_{0.53}Ni_{0.47}$ et $Pd_{0.96}Ni_{0.04}$.

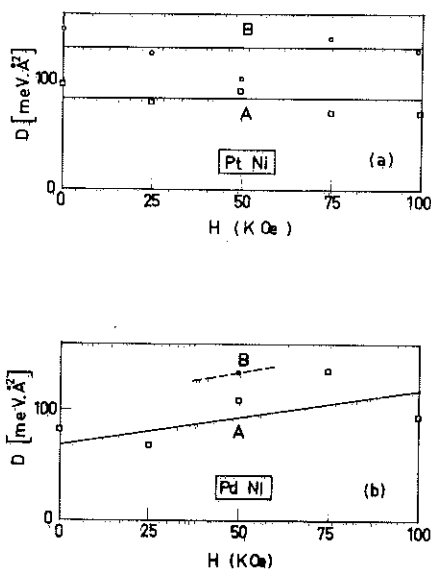


Figure 6 : Coefficient D de dispersion des ondes de spin, en fonction du champ magnétique

a) $\text{Pt}_{0,53}\text{Ni}_{0,47}$ ($\square$) ;

$\text{Pt}_{0,48}\text{Ni}_{0,52}$ ($\circ$) ;

b) $\text{Pd}_{0,96}\text{Ni}_{0,04}$ ($\square$) ;

$\text{Pd}_{0,95}\text{Ni}_{0,05}$ ($\circ$).

C - Analyse des résultats

C-1 - Les alliages PtNi

Les valeurs de D pour les alliages PtNi varient peu avec le champ magnétique (figure 6a). Doniach et Wohlfarth [Do 65] ont montré que dans le cas d'alliages cubiques simples faiblement ferromagnétiques, D était proportionnel à l'aimantation spontanée à 0 K et à T_c . D'autre part, D s'annule lorsque le critère de Stoner n'est plus vérifié. Nous avons porté, figure 7, les valeurs du coefficient D pour les deux alliages en fonction de $\sqrt{c - c_F}$ (a) et de T_c (b). Nous constatons, qu'en accord avec la théorie du faible ferromagnétisme, le coefficient de dispersion D est proportionnel à la température de Curie T_c et à la racine carrée de l'écart à la concentration critique, pour les deux alliages étudiés.

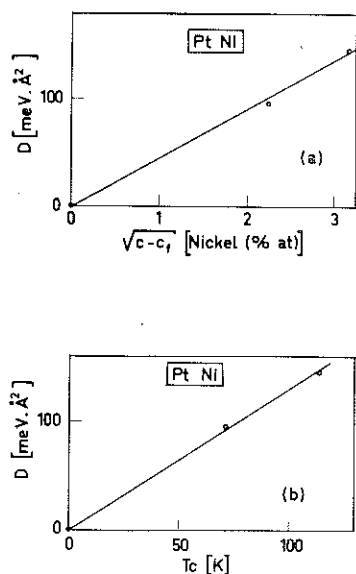


Figure 7 : Coefficient D de dispersion des ondes de spin, de deux alliages PtNi en fonction :

- a) de la racine carrée de l'écart à la concentration critique,
- b) de la température de Curie.

C-2 - Les alliages PdNi

Malgré la dispersion expérimentale, il apparaît que les valeurs du coefficient D augmentent avec le champ magnétique (figure 6b). Pour l'alliage PdNi contenant 5 % Ni, nous n'avons pu déterminer avec précision que la valeur de D à 50 kOe. En effet, à 100 kOe, le coefficient $m'_{3/2}$ est trop petit devant l'imprécision de sa détermination. Nous estimons la valeur du coefficient D en champ nul à $100 \pm 15 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$ pour cet alliage, à partir de la valeur obtenue pour 50 kOe.

Comme nous l'avons remarqué au paragraphe II et comme cela sera confirmé par les mesures d'aimantation sous pression, dans les alliages PdNi suffisamment concentrés ($c > 5\%$), les atomes de nickel, presque tous magnétiques, sont couplés par l'intermédiaire des électrons d de la matrice qu'ils polarisent. Doniach et Wohlfarth [Do 67] ont donné un traitement dynamique adapté à ce type d'alliages. Ce traitement est semblable à celui d'un modèle d'Heisenberg dans lequel les spins des impuretés interagissent par l'intermédiaire d'un couplage de type R.K.K.Y., renforcé d'échange et dépendant de la fréquence. Ce couplage résulte de la polarisation des électrons itinérants. Dans

ce modèle, la bande d de la matrice est capable de transmettre les ondes de spin. Une expression théorique a été donnée pour le coefficient de dispersion D. Les valeurs de D calculées pour les alliages PdFe, dont le spectre d'excitations dû aux ondes de spin a été étudié directement par Stringfellow [St 68] ont le bon ordre de grandeur, bien que 3 fois plus fortes que les valeurs expérimentales. Cela peut provenir de la difficulté d'évaluer certains paramètres tels que la masse effective des trous dans le palladium. Cette difficulté disparaît si l'on calcule le coefficient D des alliages PdNi à partir de celui des alliages PdFe. Pour deux alliages du palladium en effet, le coefficient D est proportionnel à $\frac{(\mu_G - \mu_M)^2}{\mu_G} c$ d'après son expression théorique [Do 67]. μ_M et μ_G sont respectivement le moment "nu" et le moment géant des impuretés de concentration c. Pour le nickel dans le palladium, $\mu_M = 0,6 \mu_B$, $\mu_G = 2,4 \mu_B$; pour le fer dans le palladium, $\mu_M = 2,8 \mu_B$, $\mu_G = 10 \mu_B$. A partir de la valeur $\frac{D}{c} = 5040 \text{ meV } \text{\AA}^2$ déduite pour les alliages PdFe, on trouve $\frac{D}{c} = 1313 \text{ meV } \text{\AA}^2$ pour les alliages PdNi. Les valeurs du coefficient D ainsi calculées sont 52 et 65 $\text{meV } \text{\AA}^2$ pour les alliages PdNi contenant 4 % Ni et 5 % Ni. Ces valeurs sont de l'ordre de 1,5 fois plus petites que celles déterminées à partir des mesures d'aimantation, ce qui est raisonnable compte-tenu des hypothèses faites.

On peut également comparer nos résultats à ceux déduits des mesures de résonance ferromagnétique de Nosé [No 61] sur des films d'alliages PdNi plus concentrés en nickel. L'analyse a été faite en utilisant un modèle d'Heisenberg où la relation entre le coefficient de dispersion D, l'énergie d'échange effective entre atomes, J_{eff} , et le spin effectif par atome, S_{eff} , est : $D = 2 J_{\text{eff}} a^2 S_{\text{eff}}$; a est la distance interatomique. Les valeurs obtenues pour J_{eff} à l'aide de nos mesures sont $(11 \pm 2) 10^{-14} \text{ erg}$ et $(9 \pm 1) 10^{-14} \text{ erg}$ pour les alliages Pd Ni 4 % Ni et 5 % Ni. Les valeurs de J trouvées par Nosé entre 97,8 % et 65,4 % Ni évoluent peu et sont de l'ordre de $8,5 \cdot 10^{-14} \text{ erg}$. Nous obtenons donc le même ordre de grandeur pour J_{eff} . Il est cependant difficile de préciser sa signification physique.

Les valeurs du coefficient D déduites pour les alliages PdNi et PtNi correspondent à $\frac{D}{T_c} \approx 1,4 \text{ meV } \text{\AA}^2 \text{ K}^{-1}$. Cette valeur est à comparer à $\frac{D}{T_c} \approx 1,3 \text{ meV } \text{\AA}^2 \text{ K}^{-1}$ pour les alliages Fe-Ni dans la région de l'Invar [Ha 64, Me 68].

En conclusion, les mesures d'aimantation ont permis d'obtenir un ordre de grandeur du coefficient de dispersion des ondes de spin. Pour les alliages PtNi, le coefficient D semble varier proportionnellement à la racine carrée de l'écart à la concentration critique et proportionnellement à la température de Curie. Pour les alliages PdNi les valeurs du coefficient D calculées sur la base d'un modèle de couplage indirect des spins d'impureté par l'intermédiaire des électrons d de la matrice sont en accord qualitatif avec les valeurs que nous avons déterminées.

III-3 - EXPERIENCES DE CHALEUR SPECIFIQUE A BASSE TEMPERATURE

SUR LES ALLIAGES PtNi

Les mesures de chaleur spécifique de Gillespie et al [Gi 72] sur les alliages PtNi contenant 43,5 et 50 % Ni avaient mis en évidence un fort renforcement de la chaleur spécifique électronique au voisinage de la concentration critique. D'autre part, les chaleurs spécifiques C à basse température des alliages PtNi dilués, de concentration inférieure à 12,8 % Ni [Ma 70], ainsi que celles des alliages de concentration 43,5 et 50 % Ni [Gi 72], sont linéaires dans le diagramme de $\frac{C}{T}$ en fonction de T^2 . Dans cette représentation, il n'y a pas de terme en $\frac{A}{T}$ caractéristique d'amas superparamagnétiques comme dans le cas des alliages CuNi [Sc 61]. D'autre part, le terme γ de chaleur spécifique électronique des alliages dilués, présente en fonction de la concentration une variation linéaire qualitativement en accord avec une théorie de fluctuations locales de spin [Ma 70]. Notons cependant que l'accord est quantitativement moins bon que dans le cas des alliages PdNi [Ch 68a].

Kuentzler a réalisé des mesures de chaleur spécifique sur des alliages PtNi de part et d'autre de la concentration d'apparition du ferromagnétisme. Nous avons étudié quantitativement les variations avec la concentration du paramètre γ et du coefficient β du terme en T^3 de la chaleur spécifique dans le domaine paramagnétique et dans le domaine ferromagnétique [Be 74b].

A - Résultats expérimentaux

Le dispositif expérimental a été décrit par Kuentzler [Ku 70]. Le thermomètre est constitué par une résistance de germanium calibrée. Il n'y a pas de déviation par rapport à la linéarité dans la représentation de $\frac{C}{T}$ en fonction de T^2 . Les valeurs des coefficients γ et β obtenues pour les alliages étudiés sont reportées au tableau 3. Dans sa représentation en fonction de la concentration c , le coefficient γ présente un maximum à $42,5 \pm 0,5$ % Ni (figure 8a). Cette valeur est en bon accord avec celle, 42 %, correspondant à la concentration critique c_F définie par le maximum de susceptibilité initiale en champ fort (figure 8b). Le coefficient β présente un minimum accentué pour la même concentration (tableau 3).

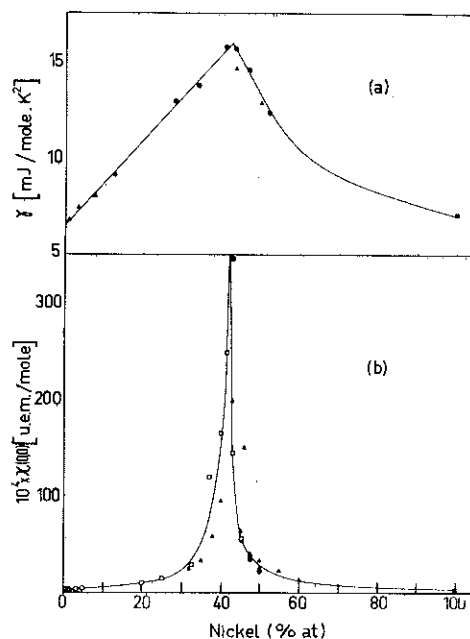


Figure 8 : a) chaleur spécifique électronique γ d'alliages désordonnés PtNi en fonction de la concentration :

(●) : [Be 74] ; (Δ) : [Ma 70] ; ($\blacktriangle$) : [Gi 72]

b) susceptibilité initiale en champ fort $\chi(0,0)$ d'alliages désordonnés PtNi en fonction de la concentration

(□) : [Be 72] ; (Δ) : [Gi 72] ; ($\blacktriangle$) : [Al 74] ;

(O) : [Ch 73].

T A B L E A U 3

Coefficients de chaleur spécifique à basse température pour les alliages
PtNi

concentration en nickel (% at.)	28	34	41	43,5	47	52
γ [mJ /mole K ²]	12,9	13,8	15,7	15,6	14,5	12,3
β [mJ /mole K ⁴]	0,109	0,075	0,038	0,038	0,073	0,104

B - Discussion

On peut comparer les résultats obtenus sur les alliages PtNi à ceux relatifs aux alliages c.f.c. : RhNi, PdNi, IrNi (tableau 4). La concentration c_F correspondant au maximum de chaleur spécifique électronique coïncide avec la concentration caractérisant le maximum de susceptibilité en champ fort. Pour les alliages IrNi, le maximum de susceptibilité correspond à une concentration, 81 % Ni, légèrement plus faible que celle relative au maximum de chaleur spécifique électronique (85 % Ni) [Bu 70].

La courbe de chaleur spécifique électronique dans le voisinage de son maximum a été analysée en termes de paramagnons pour les alliages IrNi et RhNi [Bu 70, Bu 67] dans le cadre d'une théorie homogène [Sc 67, Be 66, Do 66]. Dans cette théorie, la susceptibilité diverge près de la concentration critique c_F comme $(c-c_F)^{-1}$ et la chaleur spécifique comme $-\ln|c-c_F|$.

T A B L E A U 4

Chaleur spécifique électronique maximum d'alliages du nickel
avec un élément de transition non magnétique

	γ [mJ/mole K ²] de l'élément de transition non magnétique [He 66a]	concentration critique c_F (en %at.Ni) définie par le maximum de γ	γ [mJ/mole K ²] à c_F
PdNi	9,5	$\approx 2,5$	15,2 [Ch 68]
PtNi	6,5	42	16
RhNi	4,7	63	14,5 [Bu 67]
IrNi	3,2	85	13 [Bu 70]

Les courbes représentant $\frac{C}{T}$ en fonction de T^2 , où C est la chaleur spécifique présentent dans le cas des alliages RhNi des déviations à très basse température par rapport à la linéarité. Ces déviations pourraient provenir d'un terme en T^3 $\ln T$ prévu dans la chaleur spécifique par une théorie homogène de paramagnons [Bu 67, Br 68], ou d'un terme constant caractéristique d'amas faiblement ferromagnétiques [Ha 68].

Chouteau et al [Ch 68b] ont étudié les termes γ et β de la chaleur spécifique à basse température d'alliages PdNi de concentration en nickel comprise entre 0,2 et 15 %. Ils ont montré qu'une théorie homogène de fluctuations de spin ne peut rendre compte de la variation du coefficient γ avec la concentration c , dont une description correcte est donnée par un modèle local de fluctuations de spin. Le coefficient β présente une variation comparable, au signe près, à celle du coefficient γ . Sa variation avec la concentration a été expliquée par la présence dans la chaleur spécifique d'un terme pro-

proportionnel à c et dépendant de $T^3 \ln \frac{T}{T_f(0)}$, où $T_f(0)$ est la température de fluctuation des atomes de palladium, qui dans la gamme de températures expérimentale ($0,3 < T < 3$ K) se comporte comme T^3 pour $T_f(0) > 20$ K.

Pour les alliages PtNi, bien que la variation du coefficient γ soit beaucoup plus linéaire que pour les alliages RhNi, PdNi et IrNi, le coefficient β présente une variation rapide en fonction de la concentration et un pic au voisinage de 42,5 % Ni. Sa variation relative entre la valeur pour le platine pur et la valeur minimum $\frac{d\beta}{\beta_{Pt}}$, est de +0,7, à comparer à la valeur correspondante $\frac{d\beta}{\beta_{Pt}}$ de +0,54 pour les alliages PdNi.

Remarquons que la valeur maximum du coefficient de chaleur spécifique γ_{max} à la concentration critique c_F pour les alliages PdNi, PtNi, RhNi, IrNi est du même ordre de grandeur (tableau 4). On pourrait en conclure que les alliages peuvent être traités de façon homogène pour l'apparition du magnétisme qui serait liée à une valeur maximum de la densité d'état électronique globale au niveau de Fermi. Une contribution importante à la variation du coefficient γ peut être donnée par la variation avec la concentration en nickel de la densité d'états N_F au niveau de Fermi [Wo 74a]. Les calculs de bande [He 66b] ont en effet montré que la densité d'états du nickel paramagnétique est de 1,6 à 2 fois plus forte que celle du nickel ferromagnétique, ce qui correspond à une chaleur spécifique électronique de l'ordre de $(13 \pm 1,5)$ mJ/mole K^2 . On s'attend donc à une augmentation du coefficient γ depuis la valeur correspondant au platine pur vers une valeur de l'ordre de grandeur de celle calculée pour le nickel paramagnétique. Dans le nickel ferromagnétique, la densité d'états $N(E_F^+)$ est très faible et la chaleur spécifique de 7,1 mJ/mole K^2 est essentiellement associée à la densité d'états $N(E_F^+)$. On observe donc une décroissance du coefficient γ dans l'état ferromagnétique.

Pour les alliages faiblement ferromagnétiques homogènes, il est possible de calculer, à l'aide de la théorie de Landau, la contribution magnétique à la chaleur spécifique électronique. On peut l'exprimer sous la forme [Wo 68, Wo 65] :

$$\gamma_M = - M^2(0,0)/2 T_c^2 \chi(0,0) \quad (10)$$

D'après les relations de proportionnalité entre $M^2(0,0)$, T_c^2 et $1/\chi(0,0)$ déjà discutées, γ_M est proportionnel à $c - c_F$ dans le voisinage de la concentration critique c_F . Cependant, la diminution du coefficient de chaleur spécifique électronique au-dessus de c_F n'est pas entièrement décrite par le terme γ_M . Nous donnons tableau 5, les valeurs mesurées du coefficient γ desquelles on a soustrait la contribution magnétique γ_M , appelées γ_{para} . Malgré cette correction γ_{para} présente un maximum pour la concentration critique c_F .

T A B L E A U 5

Chaleur spécifique paramagnétique calculée d'alliages ferromagnétiques
PtNi

concentration en nickel (% at.)	42,9	45,2	47,6	50,2
γ_{para} [mJ/mole K ²]	16,1	15,8	15,6	15,2

En conclusion, la variation avec la concentration du coefficient β du terme en T^3 dans la chaleur spécifique à basse température, comparable à celle observée pour les alliages PdNi semble mettre en évidence des effets qui ne peuvent être interprétés dans le cadre de la théorie classique du ferromagnétisme itinérant. Ces effets cependant paraissent moins importants que dans le cas des alliages RhNi, PdNi, IrNi, car le coefficient γ varie linéairement avec la concentration depuis la valeur pour le platine pur jusqu'à sa valeur maximum. Il est d'ailleurs possible de donner une description qualitative de la variation du coefficient γ dans le domaine paramagnétique dans un modèle classique de bande, une contribution importante de la décroissance de γ dans le domaine ferromagnétique étant liée à l'apparition du magnétisme dans les alliages.

III-4 - EVOLUTION THERMIQUE DES COEFFICIENTS DE LANDAU POUR LES ALLIAGES PtNi ET SUSCEPTIBILITES PARAMAGNETIQUES DES ALLIAGES PtNi ET PdNi

Les mesures d'aimantation ont montré que les alliages PtNi pouvaient être considérés comme homogènes. Les effets d'amas magnétiques qui apparaissent à faible champ sont peu importants. Il semble donc possible de caractériser les propriétés magnétiques des alliages PtNi par les coefficients de Landau A et B caractéristiques de l'énergie libre des matériaux homogènes.

A - Variation thermique des coefficients de Landau A et B pour les alliages PtNi

Dans le cas idéal du faible ferromagnétisme itinérant, les coefficients de Landau A et B sont donnés par :

$$A(T) = - \frac{1}{2\chi(0,0)} \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right) \quad (11)$$

$$B = (2\chi(0,0) M(0,0)^2)^{-1}$$

Nous avons déjà indiqué que les expressions 11 de A et B étaient vérifiées pour $T < T_c$ si l'on ne tient pas compte des déviations dues aux ondes de spin. Nous avons ainsi montré que la pente des tracés représentant M^2 en fonction de H/M dépendait peu de la température et donc que le coefficient B était constant en première approximation. Nous avons d'autre part, constaté que la fonction $I(T) = - \frac{A(T)}{B}$ dépendait linéairement de T^2 .

A partir des courbes d'aimantation sous champ intense, nous avons étudié avec précision la variation thermique des coefficients de Landau entre 4,2 et 286 K [Be 74a]. Nous présentons, figure 9, la variation de $B(4,2 \text{ K})/B(T)$ en fonction de T^2 . Il apparaît que B peut être décrit par une fonction quadratique de la température T suivant la loi $B = B_0(1 + B_1 T^2)$. Le coefficient B_1 varie lentement avec la concentration ; il évolue de la valeur $-3,1 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-2}$ pour l'alliage contenant 42,9 % Ni à la valeur $-1,6 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-2}$ pour l'alliage contenant 50,2 % Ni. La variation relative de B avec la température est de l'ordre de 30 fois plus faible que celle observée pour ZrZn_2 [Wo 70]. Il est possible

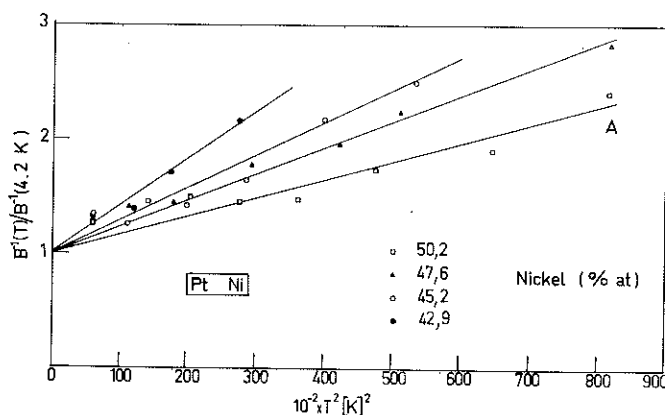


Figure 9 : Variation thermique de l'inverse du coefficient B de Landau en fonction du carré de la température T, pour les alliages PtNi.

de prévoir la variation thermique des coefficients A et B dans la théorie du faible ferromagnétisme. Ils peuvent être développés suivant les puissances paires de la température, les coefficients du développement pouvant s'exprimer en fonction des dérivées successives de la densité d'état au niveau de Fermi [Wo 70, Be 72a]. Nous donnons, figure 10, la variation en fonction de la température de $I(T)$, intersection des tracés de M^2 en fonction de H/M avec l'axe des M^2 :

$$I(T) = - \frac{A(T)}{B(T)} = - \frac{1}{B(T) \chi_0(T)}$$

où $\chi_0(T)$ est la susceptibilité paramagnétique initiale. Si la loi parabolique était vérifiée pour la susceptibilité, la variation de $I(T)$ devrait être quadratique en T comme l'est celle de $B(T)$. Nous constatons de fortes déviations par rapport à cette loi de variation.

Wohlfarth [Wo 74b] a expliqué la variation thermique observée pour $I(T)$ en donnant à la susceptibilité $\chi_0(T)$ une loi de variation de Curie-Weiss et au paramètre $B(T)$ une loi de variation quadratique en température.

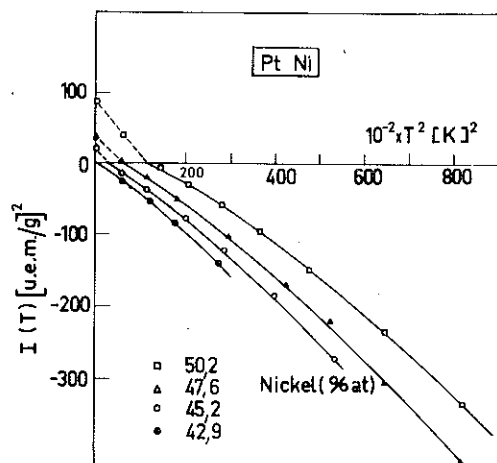


Figure 10 : Variation de $I(T) = -\frac{A(T)}{B(T)}$ (voir texte) en fonction du carré de la température T pour les alliages PtNi.

B - Susceptibilité paramagnétique des alliages PtNi et PdNi

B-1 - Les alliages PtNi

1 - Résultats expérimentaux

Bien que l'aimantation M ne soit pas une fonction linéaire du champ magnétique H , même dans l'état paramagnétique, il est possible de déterminer avec précision la susceptibilité initiale χ_0 au-dessus de la température de Curie par l'intersection des tracés représentant M^2 en fonction de H/M avec l'axe H/M . Cette intersection correspond à la valeur limite de H/M pour M (ou H) tendant vers 0. La variation de χ_0^{-1} en fonction de la température est donnée, figure 11, à partir de nos mesures (F à M) [Be 74a] et des mesures d'autres auteurs [Su 38, Fa 44, Bu 60, Ko 61, Ma 36]. Les courbes de la figure 11(b) pour le platine pur et le nickel pur, ont été tracées à l'échelle 1/5 de celles tracées à la figure 11(a) afin de conserver les pentes. On observe que :

- 1 - La susceptibilité des alliages suit en première approximation une loi de Curie-Weiss, du moins dans un grand domaine de température,
- 2 - La constante de Curie de tous les alliages a le même ordre de grandeur.

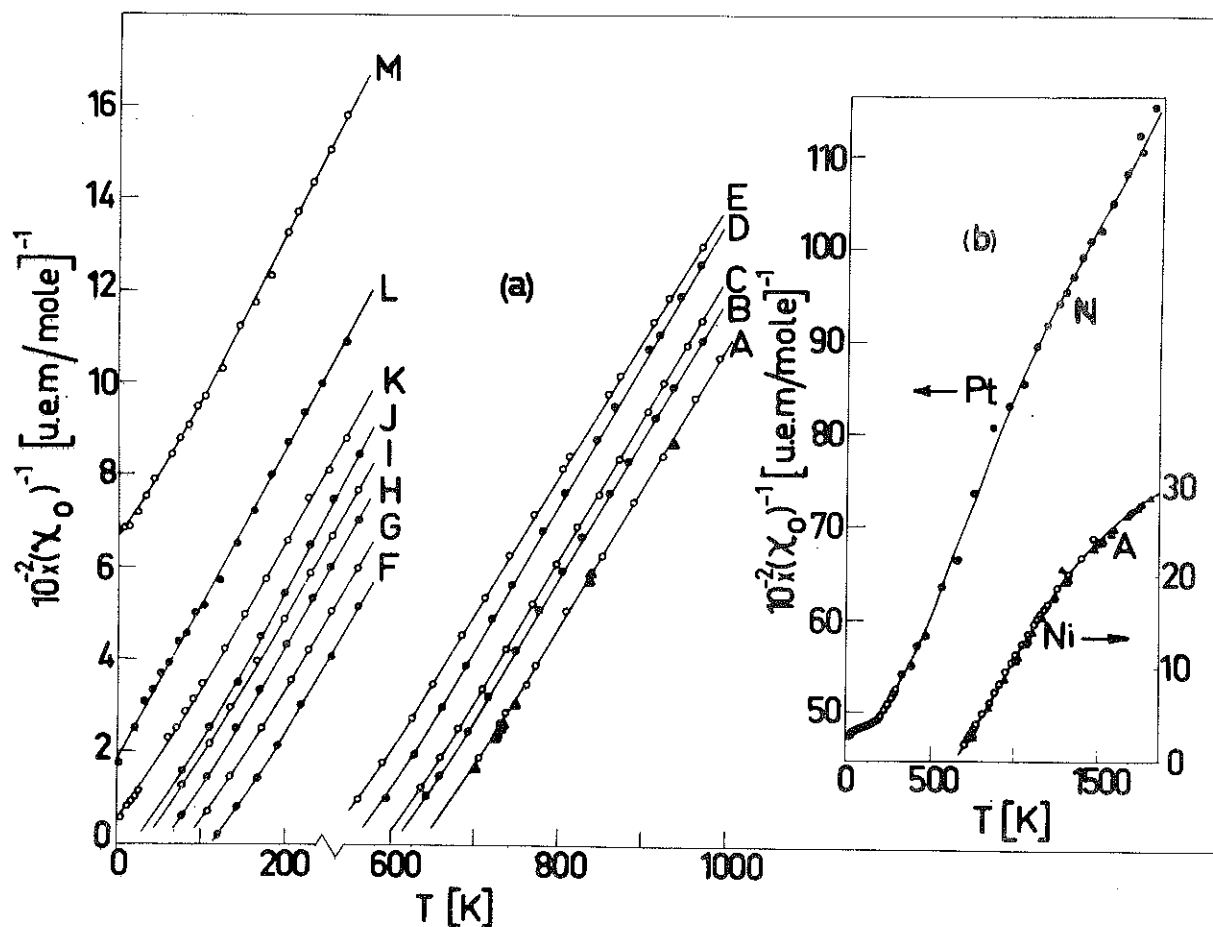


Figure 11 : Variation thermique de l'inverse de la susceptibilité paramagnétique initiale des alliages PtNi :

A : nickel pur ; B : $\text{Pt}_{0,013}\text{Ni}_{0,987}$; C : $\text{Pt}_{0,023}\text{Ni}_{0,977}$;
D : $\text{Pt}_{0,041}\text{Ni}_{0,959}$; E : $\text{Pt}_{0,091}\text{Ni}_{0,909}$;
F : $\text{Pt}_{0,498}\text{Ni}_{0,502}$; G : $\text{Pt}_{0,524}\text{Ni}_{0,476}$;
H : $\text{Pt}_{0,548}\text{Ni}_{0,452}$; I : $\text{Pt}_{0,571}\text{Ni}_{0,429}$;
J : $\text{Pt}_{0,586}\text{Ni}_{0,414}$; K : $\text{Pt}_{0,632}\text{Ni}_{0,368}$;
L : $\text{Pt}_{0,674}\text{Ni}_{0,326}$; M : $\text{Pt}_{0,759}\text{Ni}_{0,241}$; N : platine pur.
A : [Su 38 (O) ; FA 55 ($\blacktriangle$)] ; de B à E : [Ma 36] ;
de F à M : nos mesures ; N : [Bu 60 (O) ; Ko 61 ($\bullet$)] .

2 - Discussion

a - La théorie du faible ferromagnétisme

Bien que les propriétés essentielles déduites de la théorie du faible ferromagnétisme de Edwards-Wohlfarth [Ed 68] soient correctement vérifiées au-dessous de la température de Curie, la susceptibilité paramagnétique ne suit pas la variation en $(T^2 - T_c^2)^{-1}$ prévue par cette théorie. La susceptibilité suit une loi de Curie-Weiss en $(T - T_c)^{-1}$, comme pour la plupart des substances faiblement ferromagnétiques : $ZrZn_2$ [Og 67], $HfZn_2$ [Kn 71], Sc_3In [Ga 68]. Notons cependant que la loi parabolique est vérifiée pour Ni_3Ga [Sc 73]. Remarquons toutefois que la constante de Curie dépend peu de la concentration alors que dans un modèle local classique, la constante de Curie est proportionnelle au carré de l'aimantation spontanée. D'après Wohlfarth et de Chatel [Wo 70], les termes d'ordre supérieur à 2 dans le développement en fonction de la température des coefficients de Landau A et B peuvent devenir importants à haute température, entraînant de fortes déviations par rapport à la loi parabolique et pouvant donner une loi de Curie-Weiss qui serait ainsi un résultat du hasard. La loi de Curie-Weiss pourrait cependant se comprendre pour des températures de dégénérescence T_F grandes devant T_c ou au moins du même ordre de grandeur que T_c . Rappelons ici que T_F caractérise la variation thermique à basse température de la susceptibilité [Wo 65] :

$$\chi(T) = \chi(0,0) \left(1 + \frac{T^2}{T_F^2} + \dots \right)$$

et qu'elle est liée à la température de Curie T_c et au paramètre de répulsion coulombien $\bar{U}$ par la relation :

$$T_c^2 = T_F^2 (\bar{U} - 1).$$

Or d'après les mesures magnétiques décrites au chapitre II, T_F est de l'ordre de 500 K pour les alliages PtNi près de la concentration critique. Pour les alliages ferromagnétiques étudiés, T_F est donc compris entre 5 et 16 fois la température de Curie, ce qui montre bien que ces alliages sont assez éloignés de la limite classique.

b - Les théories conduisant à des lois de Curie-Weiss pour des alliages ferromagnétiques itinérants

Wang, Evenson et Schrieffer [Wa 69] ont montré qu'une forte énergie d'interaction U pouvait conduire, au-dessus du point de Curie à des moments locaux avec une loi de Curie pour la susceptibilité et des valeurs correctes pour la constante de Curie.

Murata et Doniach [Mu 72] ont généralisé le modèle du faible ferromagnétisme en tenant compte du couplage mode-mode des fluctuations de spin dans le cadre d'une théorie de Landau. Les températures de Curie obtenues dans ce modèle sont plus faibles que celles obtenues dans une approximation Hartree-Fock. Cependant, la constante de Curie C devrait être plus grande que $2\chi(0,0)T_c$ où $\chi(0,0)$ est la limite à $T = 0$ et $H = 0$ de la susceptibilité en champ fort. Or cette inégalité n'est pas vérifiée pour les alliages PtNi étudiés où C est de l'ordre de $0,30 \text{ u.e.m. mole}^{-1}$ et $2\chi(0,0)T_c$ varie de $0,5 \text{ u.e.m. mole}^{-1}$ pour l'alliage 50,2 % Ni à $1,1 \text{ u.e.m. mole}^{-1}$ pour l'alliage 42,9 % Ni. De même pour ZrZn_2 la quantité $2\chi(0,0)T_c$ est de l'ordre de 3 à 5 fois la constante de Curie C .

Dans une théorie plus détaillée, Moriya et Kawabata [Mo 73] ont calculé l'effet des fluctuations transversales de spin sur la susceptibilité longitudinale comme une correction à l'approximation de Stoner. La contribution des fluctuations de spin, traitée dans l'approximation des phases aléatoires, conduit à une température de Curie T_c plus faible que celle obtenue dans une approximation Hartree-Fock. La susceptibilité obtenue dans ce modèle suit une loi de Curie-Weiss. Pour les alliages PtNi près de la concentration critique, la susceptibilité "nue" χ_{Pauli} varie faiblement avec la concentration en nickel. Le modèle de Moriya et Kawabata conduit alors à $T_c \sim (\chi(0,0))^{-3/4}$ au lieu de $(\chi(0,0))^{-1/2}$ pour la théorie de Edwards-Wohlfarth. Nos valeurs expérimentales conduisent à $T_c \sim \chi(0,0)^{-n}$, où $n = 0,7$, assez proche de la valeur $3/4$. D'autre part, cette théorie permet de prévoir des constantes de Curie qui dépendent peu du facteur de renforcement de Stoner et qui se comparent bien quantitativement avec les valeurs expérimentales. Remarquons toutefois que cette théorie sous sa forme actuelle ne peut être valable que dans un domaine restreint de concentration et qu'elle n'est pas capable de décrire les propriétés des alliages PtNi depuis le platine pur qui est un métal

paramagnétique à susceptibilité renforcée d'échange, jusqu'au nickel pur qui est en principe un métal fortement ferromagnétique.

Dans l'hypothèse où le magnétisme apparaîtrait sur les atomes de nickel par des effets de voisinage, on peut tenter de déterminer l'importance des amas magnétiques par comparaison de l'aimantation spontanée, obtenue par des mesures magnétiques à très basse température, à la constante de Curie relative à la susceptibilité paramagnétique mesurée dans des champs très faibles. Or pour les alliages PtNi l'aimantation varie peu en dessous de 4,2 K et les tracés de M^2 en fonction de H/M présentent peu de déviation par rapport à la linéarité, même aux faibles champs. Nous admettrons que nous obtenons un ordre de grandeur de l'importance des amas par comparaison des aimantations spontanées obtenues par des mesures magnétiques dans le voisinage de 4 K aux susceptibilités définies comme limites de susceptibilité sous champ fort H lorsque H tend vers 0. La constante de Curie C à prendre en compte est celle relative à la susceptibilité $\Delta\chi(T) = \chi_{all}(T) - \chi_{Pd}(T)(1 - c)$, où $\chi_{all}(T)$ est la susceptibilité paramagnétique de l'alliage

$$C = N_a \frac{g^2 S_a (S_a + 1) \mu_B^2}{3k} \quad (12)$$

où N_a est le nombre d'amas magnétiques, de spin effectif S_a . L'aimantation spontanée, $M(0,0)$ est donnée par :

$$M(0,0) = N_a g S_a \mu_B \quad (13)$$

A partir des résultats expérimentaux on déduirait que N_a augmente linéairement avec la concentration ($N_a = 13.10^{-3}$ par mole pour l'alliage PtNi contenant 50,2 % Ni). Par contre, la constante de Curie ne dépendant pas de la concentration c , le spin effectif S_a diminuerait rapidement avec c ($g S_a \mu_B = 30$ et $15 \mu_B$ pour les alliages contenant 42,9 et 50,2 % Ni), ce que pourrait expliquer le très grand renforcement de la susceptibilité des alliages près de la concentration critique. Notons que le moment des amas serait de 1,5 à 3 fois celui relatif aux alliages CuNi près de la concentration critique, de $10 \mu_B$ [Hi 69, Ca 69]. L'importance du moment des amas pourrait être due aux effets de polarisation, quantitativement en accord avec ceux que nous avons déjà obtenus par comparaison des courbes représentant l'aimantation spontanée à 0 K des

alliages PtNi et CuNi en fonction de la concentration (chapitre II). L'importance du moment des amas et de leur extension pourrait ainsi expliquer que les alliages PtNi près de la concentration critique apparaissent beaucoup plus homogènes que les alliages CuNi. Actuellement, cependant l'existence d'amas magnétiques dans les alliages Pt-Ni n'est pas établie, aucune de leurs propriétés physiques caractéristiques ne permettant de les mettre en évidence.

B-2 - Les alliages PdNi

1 - Résultats expérimentaux

Nous avons déduit la susceptibilité paramagnétique des alliages PdNi à partir des courbes d'aimantation sous champ intense, par mesure de la pente de la tangente à l'origine et par l'intersection des tracés de M^2 en fonction de H/M avec l'axe des H/M correspondant à χ_0^{-1} . Les valeurs de χ_0^{-1} en fonction de T sont données, figure 12, pour les alliages étudiés.

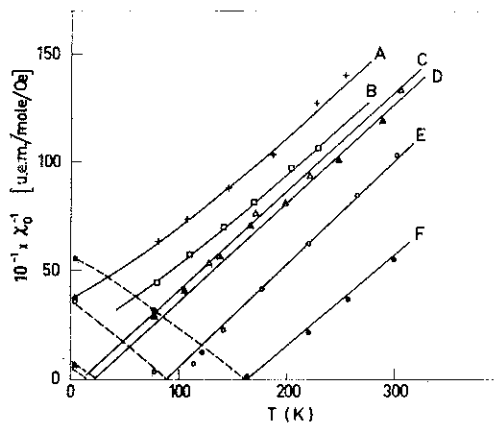


Figure 12 : Variation thermique de l'inverse de la susceptibilité paramagnétique initiale des alliages PdNi de concentration en pourcentage de Ni :
A : 1,5 ; B : 2 ; C : 2,5 ;
D : 3 ; E : 5 ; F : 10.

La susceptibilité des alliages de concentration supérieure à 2,5 % Ni suit assez bien une loi de Curie-Weiss jusqu'à la température ambiante. Par contre, la susceptibilité des alliages de concentration plus faible présente des déviations par rapport à cette loi. La constante de Curie (celle de la loi de Curie asymptotique pour les alliages les plus dilués) reste constante dans l'intervalle de concentration étudié.

Nos résultats sont en bon accord avec ceux existant antérieurement [Ma 36, Ge 58, Ch 73, Ko 61] (figure 13). La loi de Curie est bien vérifiée pour des concentrations en nickel supérieures à 2,5 % et jusqu'au nickel pur. Nous remarquons que la constante de Curie augmente lentement du palladium pur jusqu'au nickel pur (la constante de Curie du nickel est de l'ordre de 1,4 fois celle du palladium dans l'intervalle de température étudié).

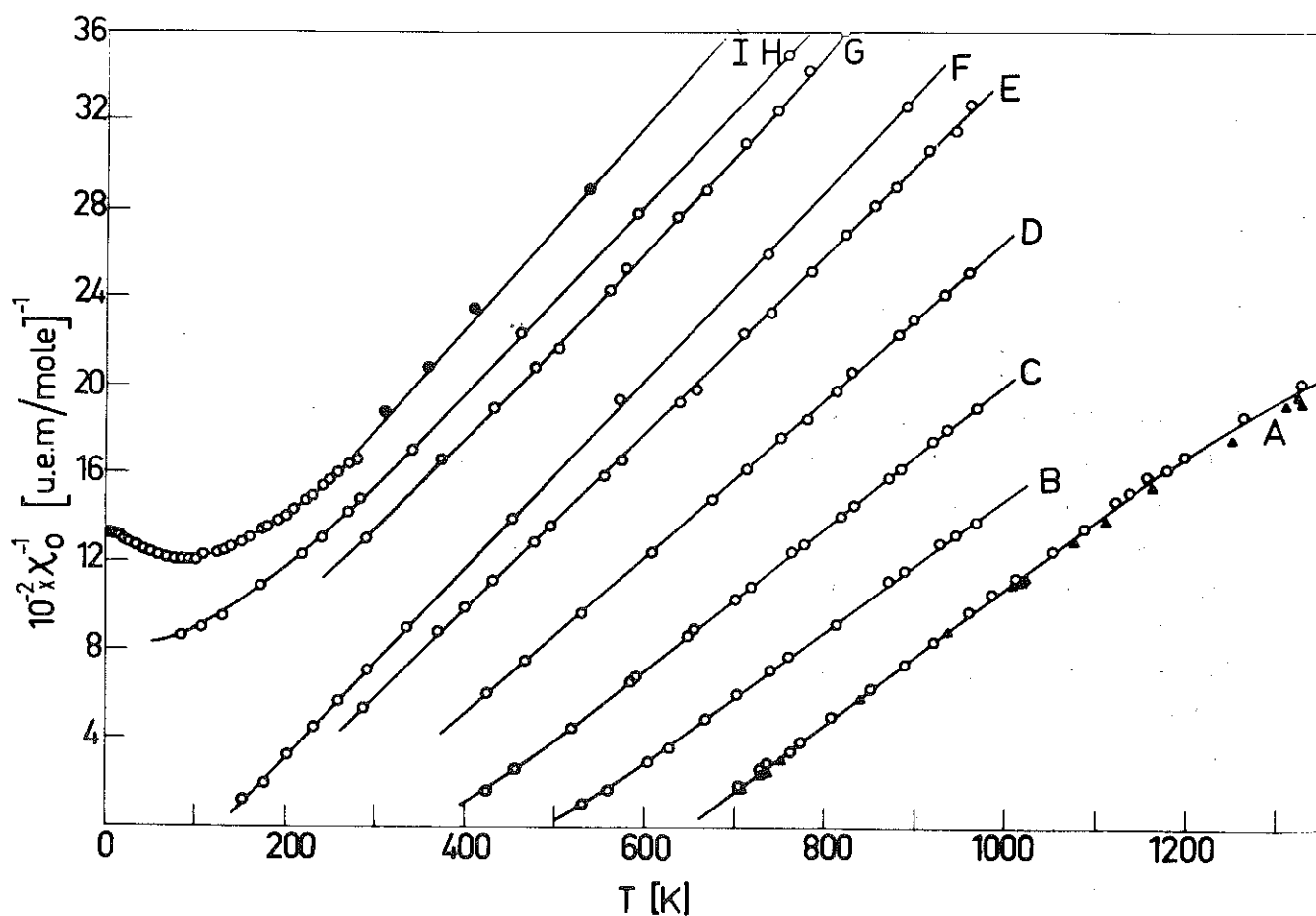


Figure 13 : Variation thermique de l'inverse de la susceptibilité paramagnétique initiale des alliages PdNi :

A : nickel pur ; B : $\text{Pd}_{0,452}\text{Ni}_{0,548}$; C : $\text{Pd}_{0,691}\text{Ni}_{0,309}$;

D : $\text{Pd}_{0,833}\text{Ni}_{0,167}$; E : $\text{Pd}_{0,913}\text{Ni}_{0,087}$; F : $\text{Pd}_{0,93}\text{Ni}_{0,07}$;

G : $\text{Pd}_{0,979}\text{Ni}_{0,021}$; H : $\text{Pd}_{0,99}\text{Ni}_{0,01}$; I : palladium pur

A : (voir figure 11) ; de B à E et G : [Ma 36] ; F et H : [Ge 58] ;

I : [Ch 73 (O), Ko 61 (●)].

2 - Discussion

Chouteau [Ch 73] a étudié la susceptibilité incrémentielle $\frac{\partial M(H,T)}{\partial H}$ à 10 kOe d'alliages PdNi de concentration comprise entre 1 et 3,5 % Ni entre 4 K et 300 K. Il suppose qu'au-dessus de la température de fluctuation des atomes de nickel isolés ($T > 25$ K) tous les atomes de nickel participent à la susceptibilité, leur moment effectif étant la valeur du moment géant à la température T

$$\mu_G(T) = \mu_{Ni}(1 + \hat{J} \chi_{Pd}(T))$$

Dans cette hypothèse, la susceptibilité $\Delta\chi$ peut s'exprimer en fonction de $\mu_G(T)^2$, comme dans le cas des alliages PdFe [Cl 62] :

$$\Delta\chi(T) = \frac{N_o c}{3k} \frac{\mu_{Ni}^2 (1 + \hat{J} \chi_{Pd}(T))^2}{T - \theta} \quad (14)$$

Il est possible de déterminer une valeur de $\hat{J}$ pour laquelle les tracés de $\frac{(1 + \hat{J} \chi_{Pd}(T))^2}{\Delta\chi(T)}$ sont linéaires en T dans la plus grande gamme de températures possible. La valeur de J ainsi trouvée, de 0,3 eV est en bon accord avec celle de 0,25 eV déterminée à partir de la valeur du moment géant des atomes de nickel dans le palladium à 0 K. D'autre part, des mesures de susceptibilité en champ faible ($H < 100$ Oe) [Ch 73], ont permis de déterminer, par comparaison avec les valeurs de l'aimantation spontanée à 0 K, des valeurs de moments géants comparables à celles que l'on peut calculer dans le modèle local. Notons que l'expression (14) est aussi obtenue dans le modèle de couplage indirect des spins localisés des atomes de nickel par l'intermédiaire de la matrice [Ta 65, Ta 66], applicable aux alliages PdNi dont le contenu en nickel est supérieur à une concentration comprise entre 5 et 10 %. Cependant, le comportement localisé apparaît à la suite d'une correction importante due à la susceptibilité du palladium. D'autre part les courbes de susceptibilité paramagnétique des alliages PdNi (figure 13) sont assez semblables à celles relatives aux alliages PtNi (figure 11). Un autre point de vue consisterait donc à considérer qu'à haute température, les alliages PdNi présentent un comportement magnétique de type homogène itinérant.

B-3 - Conclusion

La susceptibilité paramagnétique des alliages PtNi et PdNi présente une loi de variation de type Curie-Weiss. La constante de Curie, cependant, dépendant peu de la concentration, ces alliages apparaissent comme assez homogènes à haute température. D'autre part les modèles de fluctuations de spin de Doniach - Murata et Moriya-Kawabata pour les substances faiblement ferromagnétiques, rendent également compte qualitativement de la loi de Curie-Weiss.

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

- [Al 74] ALBERTS H.L., BEILLE J., BLOCH D. et WOHLFARTH E.P.
Phys. Rev., B9, 2233, 1974.
- [Be 66] BERK N.F. et SCHRIEFFER J.R.
P. R. L., 17, 433, 1966.
- [Be 72a] BESNUS M.J., GOTTEHRER Y. et MUNSCH Y.G.
Phys. Stat. Sol., 49, 597, 1972.
- [Be 72b] BESNUS M.J. et HERR A.
Phys. Lett., 39A, 83, 1972.
- [Be 74a] BEILLE J., BLOCH D. et BESNUS M.J.
J. Phys. F : Metal Phys., 4, 1275, 1974.
- [Be 74b] BEILLE J., BLOCH D. et KUENTZLER R.
Sol. Stat. Commun., 14, 963, 1974.
- [Br 68] BRINKMAN W.F., BUCHER E., WILLIAMS H.J. et MAITA J.P.
J. Appl. Phys., 39, 547, 1968.
- [Bu 60] BUDWORTH D.W., HOARE F.E. et PRESTON J.
Proc. Roy. Soc., A257, 250, 1960.
- [Bu 67] BUCHER E., BRINKMAN W.F., MAITA J.P. et WILLIAMS H.J.
P. R. L., 18, 1125, 1967.
- [Bu 70] BUCHER E., BRINKMAN W.F., MAITA J.P. et COOPER A.S.
Phys. Rev., B1, 274, 1970.
- [Ca 69] CABLE J.W., WOLLAN E.O. et CHILD H.R.
P. R. L., 22, 1256, 1969.
- [Ch 68a] CHOUTEAU G., FOURNEAUX R., GOBRECHT K. et TOURNIER R.
P. R. L., 20, 193, 1968.
- [Ch 68b] CHOUTEAU G., FOURNEAUX R. et TOURNIER R.
P. R. L., 21, 1082, 1968.

- [Ch 73] CHOUTEAU G.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1973.
- [Cl 62] CLOGSTON A.M., MATTHIAS B.J., PETER M., WILLIAMS H.J.,
CORENZWITZ E. et SHERWOOD R.C.
Phys. Rev., 125, 541, 1962.
- [Co 70] COCHRANE R.W., GRAHAM G.M.
Canad. J. Phys., 48, 264, 1970.
- [Do 65] DONIACH S. et WOHLFARTH E.P.
Phys. Lett., 18, 209, 1965.
- [Do 66] DONIACH S. et ENGELSBERG S.
P. R. L., 17, 750, 1966.
- [Do 67] DONIACH S. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., A296, 442, 1967.
- [Ed 68] EDWARDS D.M. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., London, 303, 127, 1968.
- [Fa 44] FALLOT M.
J. Phys. Radium, 5, 153, 1944.
- [Ga 68] GARDNER W.E., SMITH T.F., HOWLETT B.W., CHU C.W. et
SWEEDLER A.
Phys. Rev., 166, 577, 1968.
- [Ge 58] GERSTENBERG D.
Ann. Phys. Lpz, 7, 236, 1958.
- [Gi 72] GILLESPIE D.J., MACKLIET C.A. et SCHINDLER A.I.
Boulder Conf. Low Temp. Phys., 1972.
- [Ha 68] HAHN A. et WOHLFARTH E.P.
Helv. Phys. Acta, 41, 857, 1968.
- [Ha 64] HATHERLY M., HIRAKAWA K., LOWDE R.D., MALLET J.F.,
STRINGFELLOW M.W. et TORRIE B.H.
Proc. Phys. Soc., 84, 55, 1964.
- [He 51] HERRING C. et KITTEL C.
Phys. Rev., 81, 869, 1951.

- [He 66a] HEINIGER F., BUCHER E. et MÜLLER J.
Phys. Kondens. Mat., 5, 243, 1966.
- [He 66b] HERRING C.
Magnetism, Vol. IV (Edited by Rado G.T. et Suhl H.)
Academic Press, New York, London, 228, 1966.
- [Hi 69] HICKS T.J., RAINFORD B., KOUVEL J.S. LOW G.G. et COMLY J.B.
P. R. L., 22, 531, 1969.
- [Kn 71] KNAPP G.S., VEAL B.W. et CULBERT H.V.
Int. J. Magnetism, 1, 93, 1971.
- [Ko 61] KOJIMA H., TEBBLE R.S. et WILLIAMS D.E.G.
Proc. Roy. Soc., 260A, 237, 1961.
- [Ko 74] KORTEKAAS T.F.M., FRANSE J.J.M. et HÖLSCHER
Phys. Lett., 48A, 305, 1974.
- [Ku 70] KUENTZLER R.
Thèse d'Etat, Université de Strasbourg, 1970.
- [Le 68] LEDERER P. et MILLS D.L.
P. R. L., 20, 1036, 1968.
- [Ma 36] MANDERS C.
Ann. Phys. Paris, 11, 167, 1936.
- [Ma 70] MACKLIET C.A., SCHINDLER A.I. et GILLESPIE D.J.
Phys. Rev., B1, 3283, 1970.
- [Me 68] MENZINGER F., CAGLIOTI G., SHIRANE G., NATHANS R.,
PICKART S.J. et ALPERIN H.A.
J. Appl. Phys., 39, 455, 1968.
- [Mi 73] MIEDEMA A.R.
J. Phys. F., 3, 1803, 1973.
- [Mo 73] MORIYA T. et KAWABATA A.
J. Phys. Soc. Japan, 34, 639, 1972.
- [Mu 72] MURATA K.K. et DONIACH S.
P. R. L., 29, 285, 1972.

- [No 61] NOSE H.
J. Phys. Soc. Japan, 16, 2475, 1961.
- [Og 67] OGAWA S. et SAKAMOTO N.
J. Phys. Soc. Japan, 22, 1214, 1967.
- [Sc 61] SCHRODER K.
J. Appl. Phys., 32, 880, 1961.
- [Sc 67] SCHINDLER A.I. et RICE M.J.
Phys. Rev., 164, 759, 1967.
- [Sc 68] SCHRIEFFER J.R.
J. Appl. Phys., 39, 642, 1968.
- [Sc 73] SCHINKEL C.J., de BOER F.R. et de HON B.J.
J. Phys. F. : Metal Phys., 3, 1463, 1973.
- [Sk 68] SKALSKI S., GARDNER W.E. et BUDNICK J.J.
Phys. Lett., 26A, 326, 1968.
- [Sm 70] SMITH T.F., GARDNER W.E., MONTGOMERY H.
J. Phys. C : Metal Phys., Suppl. n° 3, S370, 1970.
- [St 68] STRINGFELLOW M.W.
J. Phys. C (Proc. Phys. Soc.), 1, 1699, 1968.
- [Su 38] SUCKSMITH W. et PEARCE R.R.
Proc. Roy. Soc., A167, 189, 1938.
- [Th 64] THOMPSON E.D., WOHLFARTH E.P. et BRYANS A.C.
Proc. Phys. Soc., 83, 59, 1964.
- [Ta 65, 66] TAKAHASHI T. et SHIMIZU M.
J. Phys. Soc. Japan, 20, 26, 1965 ; 21, 681, 1966.
- [Ve 64] VEAL B.W. et RAYNE J.A.
Phys. Rev., 135A, 442, 1964.
- [Wa 69] WANG S.Q., EVENSON W.E. et SCHRIEFFER J.R.
P. R. L., 23, 92, 1969.
- [Wh 70] WHITE G.K. et PAWLOWICZ A.T.
J. Low Temp. Phys., 2, 631, 1970.

- [Wh 72] WHITE G.K.
J. Phys. F. : Metal Phys., 2, L30, 1972.
- [Wo 65] WOHLFARTH E.P.
Phys. Lett., 15, 106, 1965.
- [Wo 68] WOHLFARTH E.P.
J. Appl. Phys., 39, 1061, 1968.
- [Wo 69] WOHLFARTH E.P.
Phys. Lett., 28A, 569, 1969.
- [Wo 70] WOHLFARTH E.P. et de CHATEL P.F.
Physica, 48, 477, 1970.
- [Wo 74a] WOHLFARTH E.P.
Phys. Lett., 47A, 125, 1974.
- [Wo 74b] WOHLFARTH E.P.
C. R. Acad. Sc. Paris, B278, 271, 1974.
- [Wo 74c] WOHLFARTH E.P.
Comments on Sol. Stat. Phys., 6, 1974.

CHAPITRE IV

EFFETS DE LA PRESSION HYDROSTATIQUE SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

DES ALLIAGES PdNi ET PtNi

IV-1 - INTRODUCTION

Les premières études sous pression des propriétés magnétiques des métaux ont été effectuées sur le fer, le nickel ou le cobalt. On s'attend dans ce cas, en accord avec l'expérience, à des effets très faibles. Ainsi, par exemple, l'aimantation du nickel décroît de $-2,4 \cdot 10^{-4}$ par kilobar [Ta 62], en même temps que son point de Curie augmente de $+0,32$ K par kilobar [Le 66]. La variation de l'aimantation du nickel est interprétée par Mathon [Ma 72] comme étant associée à des transferts s-d et la variation du point de Curie par Lang et Ehrenreich [La 68] comme dépendant de certains paramètres, dont le plus important est la largeur de bande W des électrons d. D'après Heine [He 67], la largeur de bande est supposée ne dépendre que de la distance interatomique R (W proportionnel à R^{-5} , ce qui entraîne $\frac{\partial \ln W}{\partial \ln V} = -\frac{5}{3}$). La bande s'élargit uniformément quand le cristal est comprimé, ce qui provoque une décroissance de la densité d'états au niveau de Fermi N_F . L'interaction effective entre électrons U , est proportionnelle à la largeur de bande ; d'autre part, T_c est proportionnel à U . On en déduit $\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = -5/3$ ou $\frac{\partial T_c}{\partial p} = \frac{5}{3} K T_c$.

On s'attend à des effets plus importants dans le cas de substances présentant un faible moment ferromagnétique, par exemple des substances où le ferromagnétisme résulte d'une faible polarisation ferromagnétique des bandes d, ce qui semble être le cas pour les alliages PtNi dans le voisinage de la concentration critique.

On prévoit aussi une variation rapide avec la pression des propriétés magnétiques des alliages dilués PdNi. Dans le cadre d'un modèle local, en effet [Ch 73], le magnétisme apparaît sur les atomes de nickel ayant un voisinage particulier ; la pression agit sur la polarisation de la matrice non magnétique. La variation avec la pression de la susceptibilité du palladium est importante, et nous attendons également une forte variation avec la pression de la susceptibilité des atomes de nickel non magnétiques. A plus forte concentration, d'après les mesures magnétiques à la pression ambiante, les spins localisés des atomes de nickel semblent couplés par l'intermédiaire de la matrice [Ta 65, Ta 66, Ki 66, Do 67, Ki 70]. Nous examinerons si la variation de l'aimantation avec la pression est compatible avec ce modèle. Ces expériences sur les alliages PdNi seront à rapprocher d'études réalisées sur d'autres alliages où existent des moments géants, tels que les alliages PdFe [Fa 68, Mo 71], PdCo [Ho 69], PtCo et PtFe [Me 74].

IV-2 - LES ALLIAGES PdNi

A - Résultats expérimentaux

A-1 - Variation avec la pression de la susceptibilité du palladium

Afin de connaître les propriétés magnétiques de la matrice pure, nous avons déterminé la variation de la susceptibilité du palladium en fonction de la pression à 40 K. Ces conditions nous ont permis d'effectuer des changements de pression à température constante jusqu'à 4 kbar. Les résultats sont présentés, figure 1. L'aimantation de l'échantillon est du même ordre de grandeur que celle de la cellule haute pression et la variation relative avec la pression est faible (1,4 % à 4 kbar).

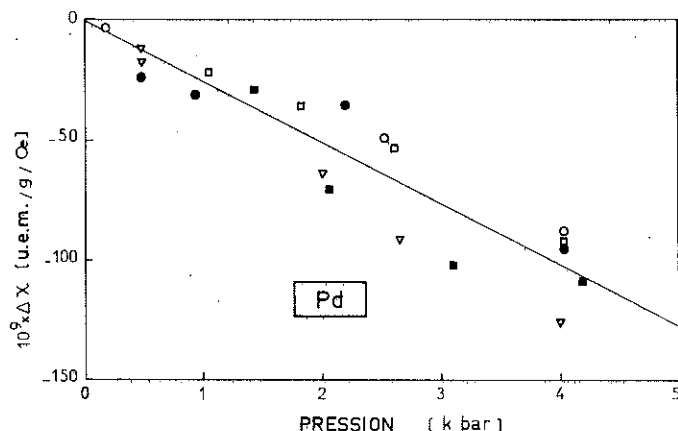


Figure 1 : Variation de la susceptibilité du palladium avec la pression.

La susceptibilité du palladium varie linéairement avec la pression au taux de $\frac{1}{\chi_{Pd}} \frac{\partial \chi_{Pd}}{\partial p} = - (3,45 \pm 0,05) \cdot 10^{-3} \text{ [kbar]}^{-1}$. A partir de la compressibilité du palladium, $0,534 \cdot 10^{-3} \text{ [kbar]}^{-1}$ [Br 35], nous déduisons la variation en volume $\frac{\partial \ln \chi_{Pd}}{\partial \ln V} = + 6,5 \pm 1$. Cette valeur est à comparer à la valeur +4,4 obtenue par Averbuch et Segransan [Av 71] à l'aide des mesures de magnétostriction longitudinale à 4,2 K de Fawcett [Fa 70, Fa 71] et des mesures de magnétostriction transversale à 4,2 K de Keller et al [Ke 70]. Par ailleurs, Dekhtyar et al [De 71] ont déterminé $\frac{\partial \ln \chi_{Pd}}{\partial \ln V} = +3$, à la température ambiante par des mesures d'aimantation sous pression.

A-2 - Détermination de l'aimantation spontanée, de la température de Curie et de la susceptibilité en fonction de la pression pour les alliages PdNi

Nous avons mesuré l'aimantation en fonction du champ magnétique jusqu'à 50 kOe et de la pression jusqu'à 7 kbar, à diverses températures entre 4,2 et 60 K des alliages de concentration : 1,5, 2, 2,5, 3, 3,5, 4, 5, 10, 15 % Ni [Be 74a, Be 74b].

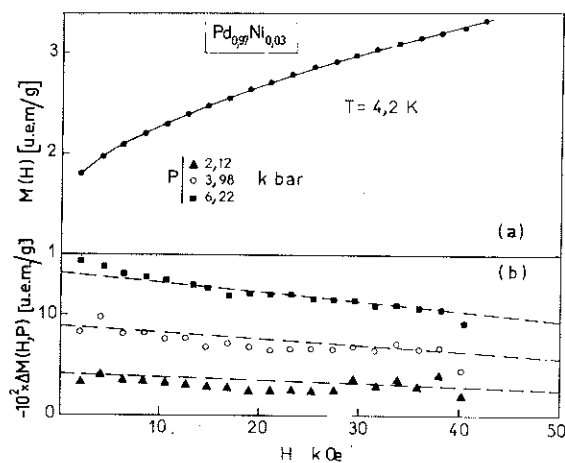
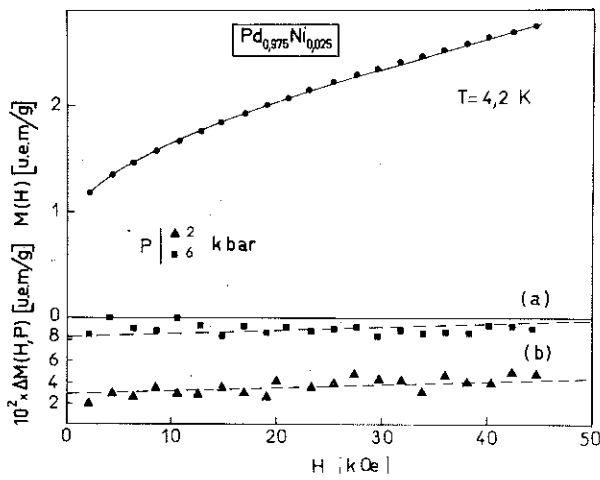
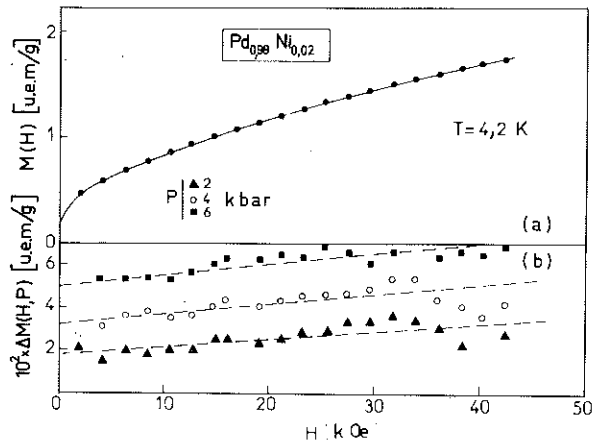


Figure 2 : Alliages

$\text{Pd}_{0.98}\text{Ni}_{0.02}$, $\text{Pd}_{0.975}\text{Ni}_{0.025}$
et $\text{Pd}_{0.99}\text{Ni}_{0.03}$ à 4,2 K.

(a) Aimantation M en fonction
du champ magnétique H ,

(b) Variation en fonction
du champ magnétique H de
 $\Delta M(H,T,p) = M(H,T,p) - M(H,T,0)$.
pour différentes
pressions p .

Nous présentons, figure 2, les courbes d'aimantation à 4,2 K des alliages contenant 2, 2,5, 3 % Ni. Nous avons aussi reporté la variation en fonction du champ magnétique de la différence $\Delta M(H, T, p)$ entre l'aimantation à la pression p et l'aimantation à la pression atmosphérique :

$$\Delta M(H, T, p) = M(H, T, p) - M(H, T, 0).$$

On constate que dans les limites de la dispersion expérimentale $\Delta M(H, T, p)$ est une fonction linéaire du champ magnétique H . La pente correspondante est d'autre part proportionnelle à la pression. On peut donc décrire les résultats par la relation :

$$\Delta M(H, 0, p) = \Delta M(0, 0, p) + \frac{\partial \chi_{all}}{\partial p} p H,$$

où $\Delta M(0, 0, p)$ est la variation sous l'effet de la pression p de l'aimantation spontanée et $\frac{\partial \chi_{all}}{\partial p}$ la dérivée par rapport à la pression de la susceptibilité sous champ fort de l'alliage. Comme nous l'avons déjà discuté, chapitre II, nous déterminons T_c à l'aide des tracés de M^2 en fonction de H/M , dans une gamme de champs entre 20 et 50 kOe. De tels tracés sous différentes pressions et à température variable (figures 3 et 4) permettent de déterminer la variation de la température de Curie T_c avec la pression. Un ordre de grandeur de la précision obtenue pour $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ est donné, pour l'alliage 3 % Ni, par la comparaison de la détermination en champ faible ($H < 20$ kOe) :

$\frac{\partial T_c}{\partial p} = -0,44$ K/kbar et de la détermination en champ fort ($H > 20$ kOe) : $\frac{\partial T_c}{\partial p} = -0,54$ K/kbar. Remarquons cependant que les tracés de M^2 en fonction de H/M sont beaucoup plus linéaires pour des concentrations supérieures à 3 % Ni.

Sous pression, l'allure des courbes représentant M^2 en fonction de H/M reste inchangée ; en particulier, leur pente en champ fort dépend peu de la pression, comme elle dépend peu de la température et de la concentration. A partir du même type de courbes, obtenues à 4,2 K et sous différentes pressions, on définit la variation avec la pression de l'aimantation spontanée de l'alliage (figure 5 pour l'alliage 3,5 % Ni). Nous obtenons ainsi des valeurs de $\frac{\partial M(0, 0)}{\partial p}$ très voisines de celles déterminées directement à partir des mesures d'aimantation. Nous avons tracé, figures 6 et 7, les variations en fonction de la pression hydrostatique, de l'aimantation spontanée et de la température de Curie des Alliages.

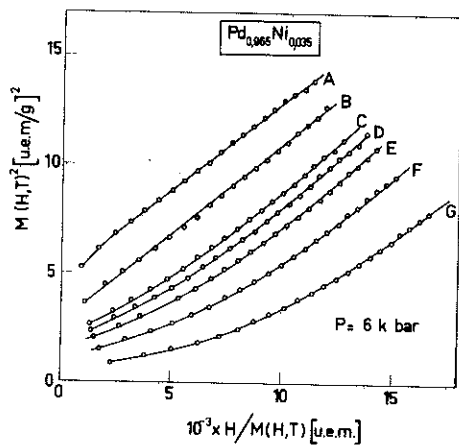


Figure 3 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage

$Pd_{0.965}Ni_{0.035}$ sous 6 kbar :

(A : 4,2 K ; B : 18,5 K ;
C : 29 K ; D : 31,8 K ;
E : 35,6 K ; F : 43 K ;
G : 51,5 K).

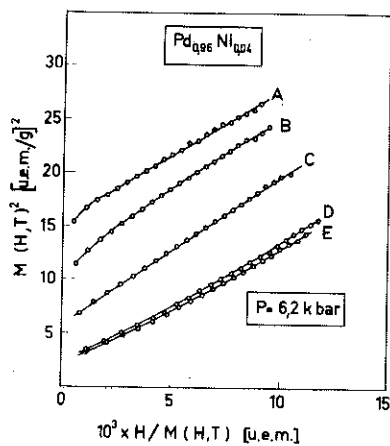


Figure 4 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage

$Pd_{0.96}Ni_{0.04}$ sous 6,2 kbar :

(A : 4,2 K ; B : 20 K ;
C : 36,5 K ; D : 50,4 K ;
E : 51,5 K).

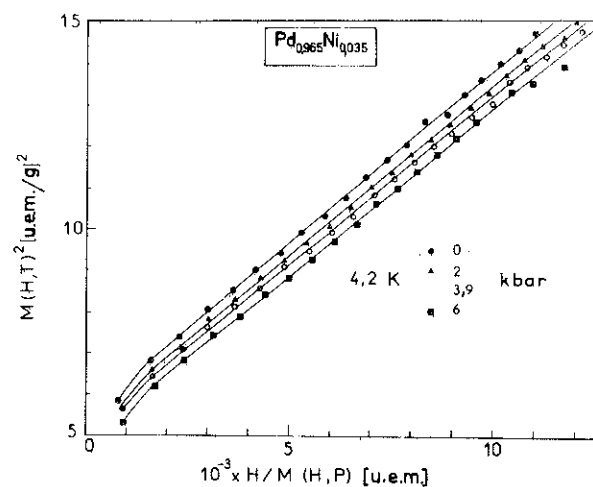


Figure 5 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $\text{Pd}_{0.965}\text{Ni}_{0.035}$ à 4,2 K et sous différentes pressions.

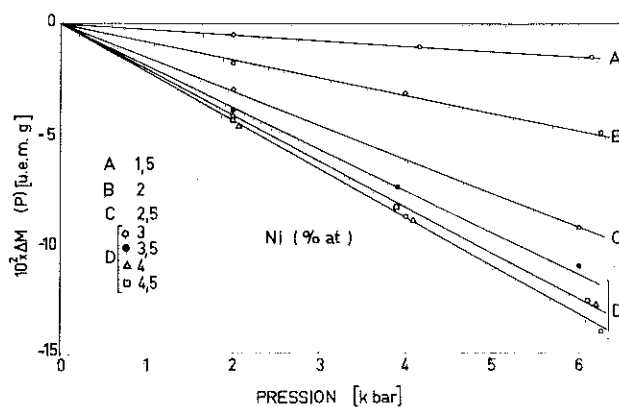


Figure 6 : Variation de l'aimantation spontanée à 0 K en fonction de la pression de divers alliages PdNi de concentration comprise entre 1,5 et 5 % Ni.

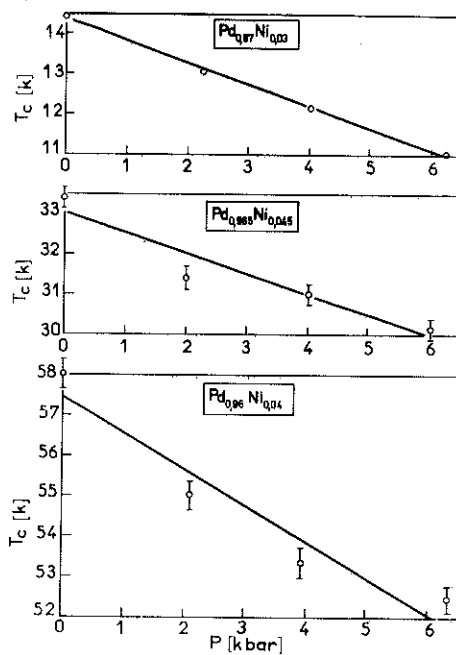


Figure 7 : Variation de la température de Curie des alliages PdNi contenant 3, 3,5, 4 % Ni en fonction de la pression.

La figure 8 représente, en fonction de la concentration en nickel, les dérivées par rapport à la pression p de l'aimantation spontanée et de la température de Curie, ainsi que l'aimantation spontanée et la température de Curie elles-mêmes pour comparaison. La courbe décrivant $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$ (figure 8c) possède un minimum dans une zone de concentration autour de 20 % Ni. En dessous de 10 % Ni, il apparaît des déviations par rapport au comportement linéaire avec un minimum entre 3 et 5 % Ni. Cette zone de concentration correspond au changement de pente dans la variation de l'aimantation spontanée $M(0,0)$ avec la concentration (figure 8a). La courbe représentant $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ (figure 8d) présente aussi au-dessous de 10 % Ni de fortes déviations par rapport au comportement observé pour les concentration supérieures. Ces déviations correspondent à un changement dans l'allure de la variation de la température de Curie T_c avec la concentration (figure 8b). Nous attribuons les effets de renforcement observés à faible concentration à la disparition du moment magnétique sur les atomes de nickel.

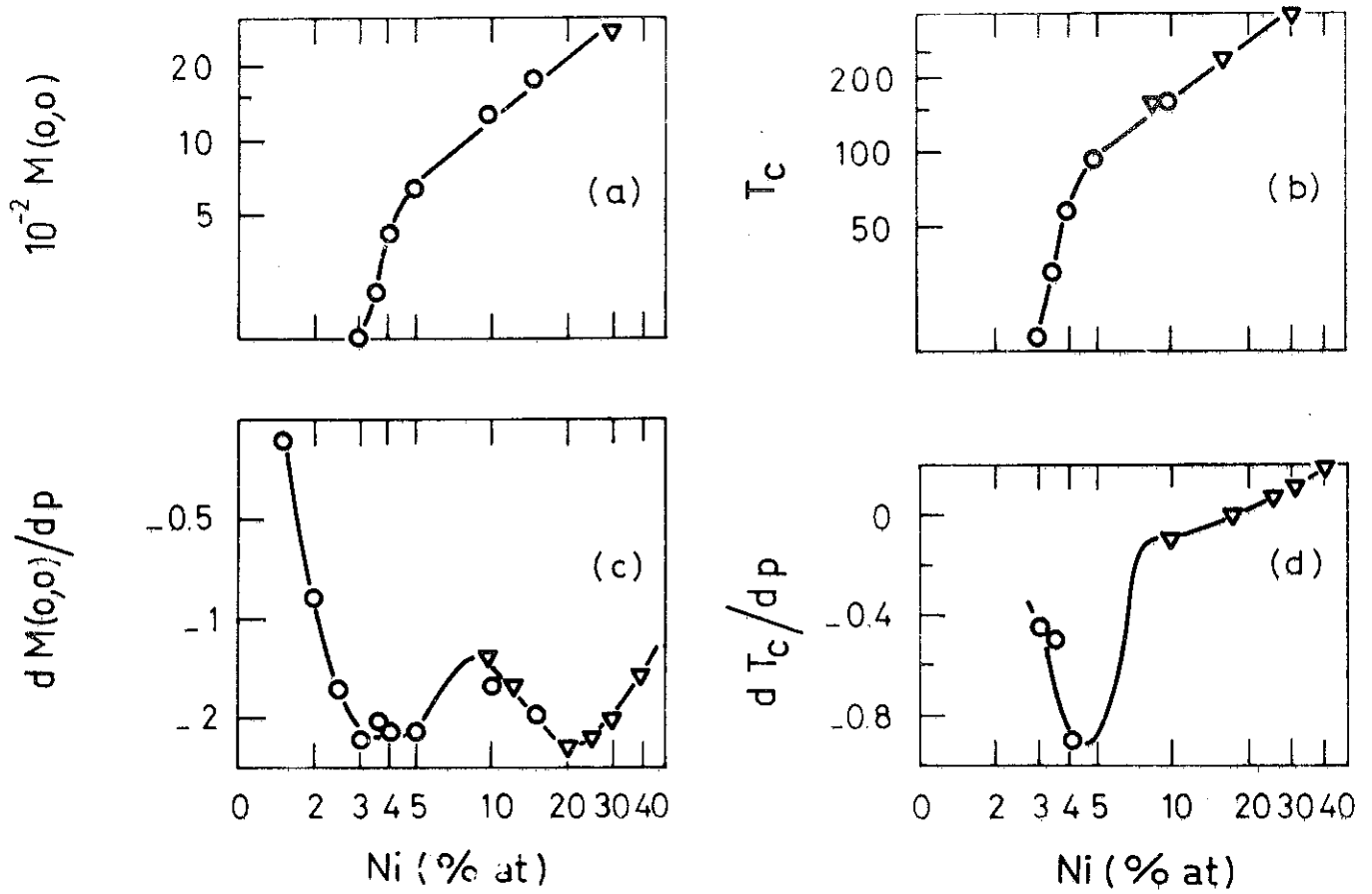


Figure 8 : Variation, en fonction de la concentration en nickel, de l'aimantation spontanée à 0 K (∇ : [Sa 32]) (a) ; de la température de Curie (∇ : [Ma 37]) (b) ; de la dérivée par rapport à la pression de l'aimantation spontanée à 0 K (∇ : [To 73]) (c) ; et de la température de Curie (∇ : [Ta 68]) (d) (nos résultats : o ; unités : u.e.m./mole, K, kbar). (échelles logarithmiques).

Nous pouvons observer la variation de $\frac{\partial \chi_{all}}{\partial p}$ à la figure 9. Celle-ci est assez complexe ; elle présente un minimum entre 1,5 et 2 % Ni, un maximum autour de 3 % Ni et une valeur nulle pour 2,5 % environ.

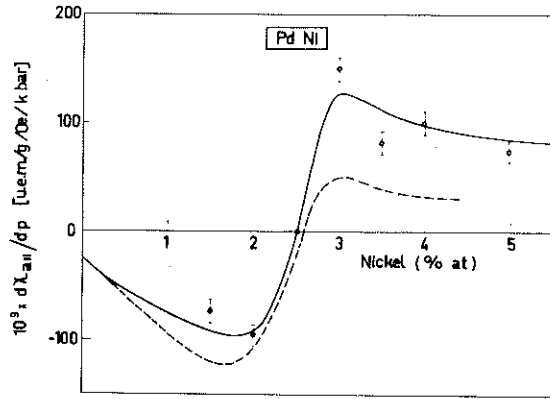


Figure 9 : Dérivée de la susceptibilité sous champ magnétique par rapport à la pression, en fonction de la concentration, pour les alliages PdNi : expérience (traits pleins), calcul à partir des valeurs expérimentales de $M(0,0)$ et $\partial M(0,0)/\partial p$ (tirets).

B - Etude des alliages de concentration comprise entre 10 et 20 % Ni

Entre 10 et 20 % Ni, la dérivée par rapport à la pression de l'aimantation à saturation $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$ varie de façon à peu près proportionnelle à la concentration comme le montrent les résultats expérimentaux de Tokunaga et al [To 73], en accord avec les nôtres [Be 74a].

Les alliages PdNi dans cette zone de concentration peuvent être décrits dans un modèle où les spins localisés des atomes de nickel sont couplés par l'intermédiaire de la matrice. La variation de l'aimantation spontanée $M(0,0)$ et de la température de Curie T_c sont alors données respectivement par :

$$M(0,0) = N_O \cdot c \cdot \mu_{Ni} (1 + \hat{J} \chi_{Pd}) \quad (1)$$

et

$$T_c = N_O \cdot c \cdot g^2 \cdot \mu_B^2 \cdot S(S+1) \cdot \frac{\hat{J}^2 \chi_{Pd}(T_c)}{3k} \quad (2)$$

avec des notations déjà définies.

En dérivant l'équation (1) par rapport à la pression, on trouve que $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$ doit être proportionnel à la concentration, ce qui est observé expérimentalement. Au-delà de 20 % Ni, l'aimantation induite des atomes de palladium se sature et le moment apparent par atome de nickel diminue ainsi que $\left| \frac{\partial M(0,0)}{\partial p} \right|$.

Si la susceptibilité de la matrice χ_{Pd} ne dépendait pas de la température, l'équation (2) conduirait à une variation linéaire de T_c et $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ avec la concentration. La dépendance en température de χ_{Pd} va nous permettre d'expliquer la variation expérimentale observée pour $\frac{\partial T_c}{\partial p}$.

Entre 150 et 450 K, la susceptibilité du palladium pur est décrite par :

$$\chi_{Pd}(T) = \frac{C}{T + \Theta}$$

où C et Θ sont connus (chapitre II). Cette forme simple de χ_{Pd} nous a précédemment permis, grâce à l'équation (2) d'obtenir une expression analytique de la température de Curie en fonction de la concentration, en accord avec l'expérience entre 5 et 30 % Ni ($T_c = \frac{\Theta}{2} [(1 + Ac)^{1/2} - 1]$). Par dérivation par rapport à la pression on aboutit à l'équation suivante :

$$\frac{\partial T_c}{\partial p} = C_1 [(1 + Ac)^{1/2} - 1] [C_2 - (1 + Ac)^{-1/2}] \quad (3)$$

où C_1 et C_2 s'expriment à partir de $\frac{\partial \ln C}{\partial \ln V}$, $\frac{\partial \ln \Theta}{\partial \ln V}$ et $\frac{\partial \ln J}{\partial \ln V}$.

Le meilleur ajustement obtenu pour les points expérimentaux correspondant à des concentrations entre 17,5 et 40 %, donne $C_1 = 0,57$ K/kbar et $C_2 = 0,38$. Ces valeurs sont à comparer à celles obtenues pour les alliages PdCo de concentration comprise entre 5 et 15 % Co : $C_1 = 0,62$ K/kbar et $C_2 = 0,54$ [Ho 69]. La courbe d'équation (3) est représentée, figure 10 ; elle a été prolongée (traits discontinus) jusqu'à $c = 0$.

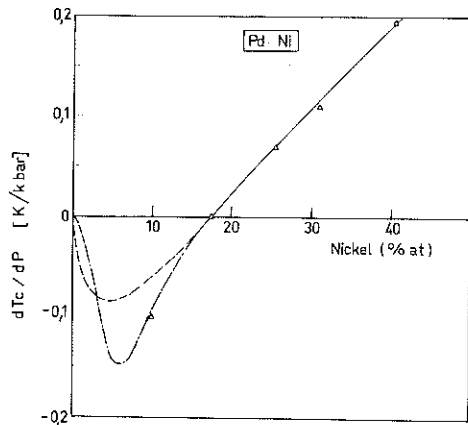


Figure 10 : Courbe théorique représentant la variation en fonction de la concentration de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ obtenue :

- à partir de l'expression de $\chi_{Pd}(T)$ pour $T > 150$ K (traits pleins et tirets)
- à partir de l'expression de $\chi_{Pd}(T)$ pour $T < 150$ K (tirets discontinus)

points expérimentaux : [Ta 68].

Nous pouvons déterminer les paramètres $\frac{\partial \ln C}{\partial \ln V}$, $\frac{\partial \ln \theta}{\partial \ln V}$ et $\frac{\partial \ln J}{\partial \ln V}$. La dérivée logarithmique de l'équation (2) par rapport au volume, compte tenu de l'expression analytique de $\chi_{Pd}(T)$, conduit à l'équation :

$$\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = \frac{T_c + \theta}{2T_c + \theta} \left[2 \frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} + \frac{\partial \ln C}{\partial \ln V} \right] - \frac{\theta}{2T_c + \theta} \frac{\partial \ln \theta}{\partial \ln V} \quad (4)$$

Une autre relation entre les différents paramètres est fournie par la variation thermique de $\frac{\partial \ln \chi_{Pd}}{\partial \ln V}$, dont la valeur est connue à la température ambiante ($\frac{\partial \ln \chi_{Pd}}{\partial \ln V} \approx 3$) [De 71] :

$$\frac{\partial \ln \chi_{Pd}}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln C}{\partial \ln V} - \frac{\theta}{\theta + 300} \frac{\partial \ln \theta}{\partial \ln V} \quad (5)$$

On peut donc, à partir des valeurs expérimentales de $\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V}$ pour deux concentration et de la valeur expérimentale de $\frac{\partial \ln \chi_{Pd}}{\partial \ln V}$ à 300 K obtenir les valeurs des différents paramètres :

$$\frac{\partial \ln C}{\partial \ln V} = -1,7 ; \quad \frac{\partial \ln \theta}{\partial \ln V} = -9,4 ; \quad \frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} = -1,7.$$

Remarquons que les paramètres C_1 et C_2 peuvent être déterminés à partir des valeurs expérimentales de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ obtenues pour les alliages de concentration 17,5 et 25,5 % Ni et que la courbe ainsi définie est en accord avec les points expérimentaux jusqu'à 40 % Ni (figure 10).

En dessous de 10 % Ni, il apparaît de fortes déviations par rapport aux valeurs déduites des calculs précédents. Cependant, nous avons cherché à prévoir la variation de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ en admettant que l'équation (2) reste valable pour des concentrations inférieures à 10 % Ni. Nous avons adopté l'expression analytique suivante [Mi 70a,b] pour décrire x_{Pd} à basse température, au-dessous de 150 K :

$$x_{Pd}(T) = x_{Pd}(0) \left(1 - m \left(\frac{T}{T_0}\right)^2 \ln \left(\frac{T}{T_0}\right)^2\right) \quad (6)$$

avec $m = 0,282$ et $T_0 = 132$ K [Ch 73].

Il est possible alors, à l'aide des équations (2) et (6) de calculer la température de Curie T_c en fonction de la concentration c . On peut calculer également la valeur de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ en fonction de la concentration c , les paramètres $\frac{\partial \ln m}{\partial \ln V}$ et $\frac{\partial \ln T_0}{\partial \ln V}$ étant fixés. Nous avons déterminé ces deux paramètres à l'aide des valeurs expérimentales obtenues pour les alliages de concentration 10 et 17,5 %. A la figure 10, nous avons représenté la variation de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ ainsi obtenue en tirets discontinus. Les points expérimentaux présentent des écarts importants par rapport à cette courbe, montrant que le modèle ne s'applique plus aux faibles concentrations.

Par dérivation par rapport à la pression, des équations (1) et (2), on obtient les relations suivantes :

$$\frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V} = \frac{\hat{J} x_{Pd}(0)}{1 + \hat{J} x_{Pd}(0)} \left[\frac{\partial \ln x_{Pd}(0)}{\partial \ln V} + \frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} \right] \quad (7)$$

et

$$\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln x_{Pd}(T_c)}{\partial \ln V} + 2 \frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} \quad (8)$$

où l'on suppose que la variation de l'intégrale d'échange J avec la pression dépend peu de la température. Dans la zone de température où la variation thermique de χ_{Pd} est donnée par une équation analogue à (6) de la forme :

$$\chi_{Pd}(T) = \chi_{Pd}(0) (1 - \alpha(T)),$$

on peut exprimer la variation avec le volume de χ_{Pd} par :

$$\frac{\partial \ln \chi_{Pd}(T)}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln \chi_{Pd}(0)}{\partial \ln V} + \frac{\chi_{Pd}(T) - \chi_{Pd}(0)}{\chi_{Pd}(T)} \frac{\partial \ln \alpha(T)}{\partial \ln V} \quad (9)$$

Or le palladium a la même susceptibilité à 170 K environ qu'au zéro absolu. D'après l'équation précédente :

$$\frac{\partial \ln \chi_{Pd}(T=170 \text{ K})}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln \chi_{Pd}(0)}{\partial \ln V}.$$

La température de Curie de l'alliage de concentration 10 % Ni étant de l'ordre de 160 K, il est possible d'exprimer $\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V}$ pour cet

alliage en fonction de $\frac{\partial \ln \chi_{Pd}(0)}{\partial \ln V}$ et $\frac{\partial \ln J}{\partial \ln V}$. Pour cet alliage

$\frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V} = 2,55$ [Be 74a] et $\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = 1,55$ [Ta 68]. On en déduit, à l'aide des équations (7) et (8) :

$$\frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} = -1,4 \text{ et } \frac{\partial \ln \chi_{Pd}(0)}{\partial \ln V} = +4.$$

La valeur obtenue pour $\frac{\partial \ln J}{\partial \ln V}$ est en bon accord avec celle que l'on a déduit de la variation avec la concentration de $\partial T_c / \partial p$ entre 17,5 et 40 % Ni ($\frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} = -1,7$). Nous pouvons faire une comparaison avec les valeurs trouvées pour la variation avec le volume de l'intégrale d'échange relative au cobalt dans les alliages PdCo

($\frac{\partial \ln J_{Co}}{\partial \ln V} = -1,6$ [Me 74]) et au fer dans les alliages PdFe

($\frac{\partial \ln J_{Fe}}{\partial \ln V} = -1,4$ d'après les mesures de Fawcett et al [Fa 68] sur l'alliage PdFe, 0,3 % Fe, à partir de la valeur

$\frac{\partial \ln \chi_{Pd}(0)}{\partial \ln V} = 4,5$). Par ailleurs, nous avons trouvé pour $\frac{\partial \ln \chi_{Pd}(0)}{\partial \ln V}$ une valeur qui se compare bien à celle déduite de la mesure directe de la variation de χ_{Pd} avec la pression.

Un modèle de couplage indirect des spins localisés par l'intermédiaire de la matrice permet ainsi d'expliquer les variations des dérivées par rapport à la pression de l'aimantation spontanée $M(0,0)$ et de la température de Curie. Remarquons que le modèle donne de des valeurs correctes de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ jusqu'à des températures de Curie élevées, de l'ordre de 400 K, ce qui est vérifié aussi pour les alliages PdCo [Ho 69].

C - Etude des alliages PdNi de concentration inférieure à 10 % Ni

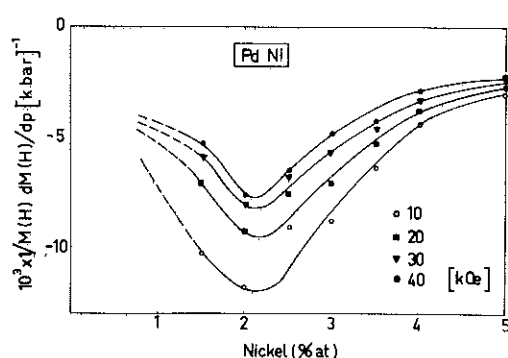


Figure 11 : Variation en fonction de la concentration de $1/M(H) \frac{\partial M(H)}{\partial p}$ à 4,2 K des alliages PdNi pour différentes valeurs du champ magnétique.

Pour les alliages de concentration comprise entre 1,5 et 10 % Ni, $\partial M(0,0)/\partial p$ a une variation anormale par rapport à celle observée entre 10 et 20 % Ni (figure 8). Dans cette zone de concentration, nous avons représenté (figure 11) la variation relative de l'aimantation à 4,2 K pour différentes valeurs du champ magnétique. Toutes les courbes présentent un minimum au voisinage de 2,5 % Ni et ont, au signe près, l'allure générale des courbes représentant la variation relative de susceptibilité ou de chaleur spécifique électronique en fonction de la concentration [Ch 68]. Nous avons analysé le comportement magnétique sous pression des alliages PdNi dans cette gamme de concentration à l'aide du modèle local précédemment décrit [Ch 73].

Nous avons d'abord cherché à évaluer l'effet de la pression sur la susceptibilité χ_1 d'un atome de nickel isolé dans une matrice de palladium et sur la susceptibilité χ_2 d'un atome de nickel ayant un autre atome de même nature proche voisin [Be 74b].

C-1 - Détermination de l'effet de la pression sur les susceptibilités χ_1 et χ_2

Les mesures de résistivité électrique sous pression pour des concentrations inférieures à 1 % Ni [Be 73] donnent les informations nécessaires pour calculer $\frac{\partial \text{Ln } \chi_1}{\partial \text{Ln } V}$. En effet, le modèle de fluctuations locales de spin [Le 68] conduit à une résistivité :

$$\rho(c) = \rho_0(c) + A(c) T^2 \quad (10)$$

où $A(c)$ est une fonction linéaire de la concentration en nickel

$$A(c) = A(0) \{1 + [(\delta U/U_0)\alpha]^2 \gamma c\} \quad (11)$$

Dans cette expression, U_0 et $U_0 + \delta U$ sont, respectivement, l'interaction de Coulomb intraatomique sur les atomes de palladium, et au site de l'impureté ; α est relié à δU et à la susceptibilité du palladium appelée χ_0 dans ce paragraphe.

$$\alpha = [1 - \delta U \chi_0]^{-1} \quad (12)$$

Dans l'approximation des électrons libres, γ est proportionnel à $n_d \alpha_0^2$, où α_0 est le facteur de renforcement de Stoner de la susceptibilité de la matrice et n_d est le nombre de trous d par atome de la matrice. Nous supposons d'autre part que la pression ne conduit pas à un transfert d'électrons entre les bandes s et d . Dans ces hypothèses

$$\frac{\partial \text{Ln } \gamma}{\partial \text{Ln } V} = 2 \frac{\partial \text{Ln } \alpha_0}{\partial \text{Ln } V} \quad (13)$$

et

$$\frac{\partial \text{Ln } A(c)}{\partial \text{Ln } V} - \frac{\partial \text{Ln } A(0)}{\partial \text{Ln } V} = \frac{A(c) - A(0)}{A(c)} \left(2 \frac{\partial \text{Ln } (\alpha \delta U)}{\partial \text{Ln } V} + \frac{\partial \text{Ln } U_0}{\partial \text{Ln } V} + 2 \frac{\partial \text{Ln } \alpha_0}{\partial \text{Ln } V} \right) \quad (14)$$

la valeur expérimentale de $\left[\frac{\partial \ln A(c)}{\partial \ln V} - \frac{\partial \ln A(0)}{\partial \ln V} \right] / \frac{A(c) - A(0)}{A(c)}$ déterminée à partir des mesures de Beyerlein et Lazarus est de l'ordre de 22.

Outre l'équation (14), nous disposons d'une équation supplémentaire donnée par la variation expérimentale de la susceptibilité du palladium, que l'on considère comme une susceptibilité de spin renforcée :

$$\chi_o = 2 N_o N_F \mu_B^2 \alpha_o \quad (15)$$

où N_F est la densité d'états au niveau de Fermi. Par dérivation de l'équation (15) :

$$\frac{\partial \ln \chi_o}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V} + \frac{\partial \ln \alpha_o}{\partial \ln V} \quad (16)$$

ou

$$\frac{\partial \ln \chi_o}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V} + (\alpha_o - 1) \left[\frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V} + \frac{\partial \ln U_o}{\partial \ln V} \right] \quad (17)$$

Suivant Heine [He 67] on peut prendre 5/3 comme une valeur raisonnable de $\frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V}$ pour un métal d.

À partir de notre valeur expérimentale pour $\frac{\partial \ln \chi_o}{\partial \ln V}$, on déduit des équations (16) et 17) :

$$\frac{\partial \ln \alpha_o}{\partial \ln V} = 4,8 \quad \text{et} \quad \frac{\partial \ln U_o}{\partial \ln V} = -1,2.$$

L'équation (14) conduit donc à

$$\frac{\partial \ln(\alpha \delta U)}{\partial \ln V} = 5.$$

Dans le modèle de fluctuations locales de spin, le renforcement de la susceptibilité au site de l'impureté est :

$$\frac{1}{\chi_o} \frac{\partial \chi(c)}{\partial c} = \frac{\chi_1}{\chi_o} = (\alpha \delta U) \chi_o \quad (18)$$

$$\text{d'où :} \quad \frac{\partial \ln \chi_1}{\partial \ln V} = 2 \frac{\partial \ln \chi_o}{\partial \ln V} + \frac{\partial \ln(\alpha \delta U)}{\partial \ln V} \quad (19)$$

Le résultat numérique est :

$$\frac{\partial \text{Ln } \chi_1}{\partial \text{Ln } V} = 18 \pm 5.$$

Nous supposons que $\frac{\partial \text{Ln } \chi_1}{\partial \text{Ln } V} \approx \frac{\partial \text{Ln } \chi_2}{\partial \text{Ln } V}$, ce qui sera justifié par la suite.

Les résultats précédents ont été obtenus à partir de la valeur expérimentale de $\frac{\partial \text{Ln } \chi_0}{\partial \text{Ln } V}$ et ne sont pas très différents de ceux obtenus à partir de $\frac{\partial \text{Ln } \chi_0}{\partial \text{Ln } V} = 4,5$ [Av 71].

C-2 - Calcul de la variation avec la pression de l'aimantation spontanée à 0 K des alliages PdNi de concentration inférieure à 3 % Ni

Nous utilisons pour le calcul le modèle local de Chouteau et Tournier exposé chapitre II. Nous prenons comme paramètre la variation avec le volume du rayon de polarisation R , $\frac{\partial \text{Ln } R}{\partial \text{Ln } V}$ et celle du moment géant μ_G associé à un atome de nickel magnétique $\frac{\partial \text{Ln } \mu_G}{\partial \text{Ln } V}$. Le paramètre q qui caractérise la forme de la polarisation autour d'un atome de nickel magnétique correspond à l'inverse de la longueur de corrélation de l'alliage. D'après Kadanoff et al [Ka 67], q varie comme $\chi_{\text{alliage}}^{-1/2}$. Nous avons pris, pour les alliages dilués :

$$\frac{\partial \text{Ln } q}{\partial \text{Ln } V} = - \frac{1}{2} \frac{\partial \text{Ln } \chi_{\text{Pd}}}{\partial \text{Ln } V} \quad (20)$$

Il est possible de calculer la variation avec le volume du rayon de la sphère centrée sur un groupe d'atomes de nickel magnétiques, à l'intérieur de laquelle les atomes de nickel porteurs d'un moment induit sont saturés (r_1 pour les atomes de nickel isolés et r_2 pour les atomes de nickel dans une paire). Pour cela on considère que le moment induit μ d'un atome de nickel est proportionnel au moment géant des trois atomes de nickel qui le polarisent, à la distance r , et à sa propre susceptibilité. On en déduit la variation avec la pression de la distance $r_\alpha(p)$ à partir de laquelle le moment induit $\mu(p, r_\alpha)$ est maximum et égal au moment géant $\mu_G(p)$ d'un atome de nickel saturé. On trouve :

$$\frac{\partial \text{Ln } r_\alpha}{\partial \text{Ln } V} = \frac{1}{1+qr_\alpha} \frac{\partial \text{Ln } \chi_\alpha}{\partial \text{Ln } V} - \frac{qr_\alpha}{1+qr_\alpha} \frac{\partial \text{Ln } q}{\partial \text{Ln } V} \quad (21)$$

avec $\alpha = (1,2)$.

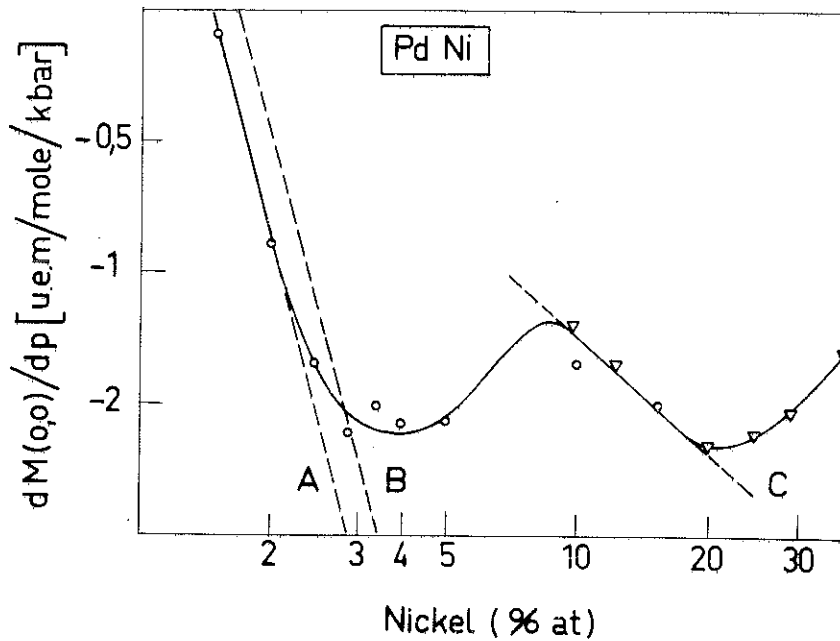


Figure 12 : Dérivée de l'aimantation spontanée à 0 K par rapport à la pression en fonction de la concentration : modèle local d'apparition du ferromagnétisme (A, B), modèle de couplage indirect des spins localisés des atomes de nickel (C) (V : [To 73]).

De l'équation (21), on peut déduire la variation avec le volume du nombre d'atomes de nickel saturés autour du groupe de trois atomes de nickel :

$$\frac{\partial \ln Z_{\alpha}}{\partial \ln V} = 3 \frac{\partial \ln r_{\alpha}}{\partial \ln V} - 1 \quad (22)$$

avec $\alpha = (1,2)$.

Les moments μ_1^{ind} et μ_2^{ind} induits par un groupe de trois atomes de nickel magnétiques sur les atomes de nickel isolés ou inclus dans une paire, sont donnés par l'équation (4), chapitre II. On peut montrer, en dérivant cette équation par rapport à la pression que la variation en fonction du volume du moment induit est :

$$\frac{\partial \text{Ln } \mu_{\alpha}^{\text{ind}}}{\partial \text{Ln } V} = \frac{1}{I_{\alpha}} \left[r^2 e^{-qr} \frac{\partial \text{Ln } r}{\partial \text{Ln } V} \right]_{r_{\alpha}}^R + \frac{\partial \text{Ln } \chi_{\alpha}}{\partial \text{Ln } V} + \frac{\partial \text{Ln } \mu_G}{\partial \text{Ln } V} - \frac{1}{I_{\alpha}} q \frac{\partial \text{Ln } q}{\partial \text{Ln } V} \int_{r_{\alpha}}^R r^2 e^{-qr} dr \quad (23)$$

où $I_{\alpha} = \int_{r_{\alpha}}^R r e^{-qr} dr$ avec $\alpha = (1, 2)$.

A l'aide de l'expression de $\frac{\partial \text{Ln } Z_{\alpha}}{\partial \text{Ln } V}$ et $\frac{\partial \text{Ln } \mu_{\alpha}^{\text{ind}}}{\partial \text{Ln } V}$ ($\alpha = 1, 2$) on peut calculer la variation en fonction du volume de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, avec comme paramètres les variations en fonction des distances interatomiques du rayon de polarisation : $\frac{\partial \text{Ln } R}{\partial \text{Ln } V}$ et du moment géant associé à une atome de nickel magnétique : $\frac{\partial \text{Ln } \mu_G}{\partial \text{Ln } V}$. Nous avons trouvé que les résultats dépendaient peu de la valeur de $\partial \text{Ln } \mu_G / \partial \text{Ln } V$. Nous avons pris $\partial \text{Ln } \mu_G / \partial \text{Ln } V = \partial \text{Ln } M(0,0) / \partial \text{Ln } V = 2,33$ pour les alliages dont la dérivée de l'aimantation spontanée par rapport à la pression est proportionnelle à la concentration. Les points expérimentaux représentant $\partial M(0,0) / \partial p$ pour les alliages de concentration comprise entre 1,5 et 3 % Ni sont situés entre les deux courbes calculées pour $\partial \text{Ln } \mu_G / \partial \text{Ln } V = +30$ et $\partial \text{Ln } \mu_G / \partial \text{Ln } V = +7$ (courbes A et B, figure 12). Au delà de 3 % Ni les nuages de polarisation autour des groupes magnétiques se recouvrent et le calcul surestime l'effet de la pression sur l'aimantation à saturation.

Nous avons déterminé $\partial \text{Ln } R / \partial \text{Ln } V$ de la même manière que $\frac{\partial \text{Ln } r_{\alpha}}{\partial \text{Ln } V}$:

$$\frac{\partial \text{Ln } R}{\partial \text{Ln } V} = \frac{1}{qR + 1} \left[\frac{\partial \text{Ln } \mu_G}{\partial \text{Ln } V} + \frac{\partial \text{Ln } \chi_1}{\partial \text{Ln } V} - qR \frac{\partial \text{Ln } q}{\partial \text{Ln } V} \right] \quad (24)$$

A partir des valeurs expérimentales, on trouve $\frac{\partial \text{Ln } R}{\partial \text{Ln } V} \approx 7$, qui correspond à la courbe B de la figure 12. On obtient ainsi, à partir de la valeur calculée $\frac{\partial \text{Ln } R}{\partial \text{Ln } V} \approx 7$ une description correcte de $\partial M(0,0) / \partial p$ pour les alliages de concentration c comprise entre 1,5 et 3 %, compte-tenu des approximations faites.

La région des faibles concentrations ($c < 3 \text{ \% Ni}$) correspond à l'apparition du magnétisme sur les atomes de nickel. Une partie de ces atomes peut évoluer, sous pression, d'un état magnétique vers un état non magnétique, d'où l'importance des effets observés. Au-delà de $3 \text{ \% Ni}$, le nombre d'atomes susceptibles de changer d'état magnétique sous pression diminue, ce qui explique l'extrémum de $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$ mis en évidence pour des concentrations comprises entre 3 et $5 \text{ \% Ni}$.

C-3 - Calcul de la variation avec la pression de la susceptibilité de l'alliage

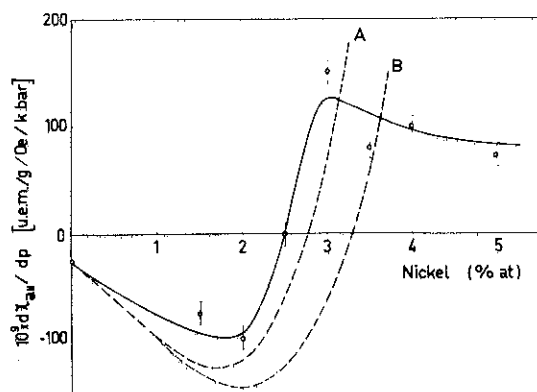


Figure 13 : Dérivée de la susceptibilité sous champ magnétique par rapport à la pression, en fonction de la concentration, pour les alliages PdNi : expérience (trait plein), modèle local d'apparition du magnétisme (tirets - A : $\frac{\partial \ln \mu_G}{\partial \ln V} = 6,4$; B : $\frac{\partial \ln \mu_G}{\partial \ln V} = 2,33$)

Nous adoptons un modèle simplifié, justifié par les mesures de susceptibilité à la pression ambiante [Ch 73] : tout atome de nickel situé à l'intérieur d'une sphère de polarisation est saturé et présente une susceptibilité nulle. La susceptibilité de l'alliage est proportionnelle au nombre d'atomes de nickel situés en dehors de cette sphère. Dans ce modèle, le nombre d'atomes de nickel participant à la susceptibilité est :

$$n = N_0 c - \frac{M(0,0)}{\mu_G} \quad (25)$$

Les atomes de nickel isolés ou inclus dans une paire ont des susceptibilités χ_1 ou χ_2 . L'expression de la susceptibilité est dans ce modèle :

$$\Delta\chi = \chi_{all} - \chi_{Pd} = \frac{n}{N_0} \left[\frac{c_1}{c} \chi_1 + \frac{c_2}{c} \chi_2 \right] \quad (26)$$

A partir de cette équation, il est possible de calculer la variation avec la pression de la susceptibilité de l'alliage

$$\frac{\partial \chi_{all}}{\partial p} = \frac{\partial \chi_{Pd}}{\partial p} + \Delta\chi \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial p} - K \frac{n}{N_0} \left[\frac{c_1}{c} \chi_1 \frac{\partial \ln \chi_1}{\partial \ln V} + \frac{c_2}{c} \chi_2 \frac{\partial \ln \chi_2}{\partial \ln V} \right] \quad (27)$$

où K est la compressibilité et

$$\frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial p} = \frac{1}{n} \frac{M(0,0)}{\mu_G} \left[\frac{1}{\mu_G} \frac{\partial \mu_G}{\partial p} - \frac{1}{M(0,0)} \frac{\partial M(0,0)}{\partial p} \right] \quad (28)$$

La courbe représentant la variation de $\frac{\partial \chi_{all}}{\partial p}$, calculée d'après les valeurs de l'aimantation à saturation $M(0,0)$ et de sa variation avec la pression données par le modèle local est dessinée en traits discontinus, figure 13, pour deux valeurs du paramètre $\frac{\partial \ln \mu_G}{\partial \ln V}$ (A : $\frac{\partial \ln \mu_G}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V} = 6,4$ pour l'alliage $Pd_{0,95}Ni_{0,05}$; B : $\frac{\partial \ln \mu_G}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V} = 2,33$ pour les alliages dont la variation de l'aimantation spontanée à 0 K avec la pression est proportionnelle à la concentration). Comme pour l'aimantation spontanée $M(0,0)$ et pour $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$, les valeurs calculées présentent qualitativement la même allure que les valeurs expérimentales pour les alliages de concentration inférieure à 3 ou 3,5 % Ni, avec un minimum dans la zone de concentration entre 1,5 et 2 %. Nous notons cependant un décalage assez important de la courbe B par rapport à la courbe expérimentale.

Nous avons représenté, figure 9, en traits discontinus, la courbe calculée $\frac{\partial \chi_{all}}{\partial p}$ à partir des valeurs expérimentales de $M(0,0)$ et $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$. On obtient ainsi un accord satisfaisant avec l'expérience, avec un minimum dans le voisinage de 1,5 % Ni, une valeur nulle près de 2,5 % Ni et un maximum autour de 3 % Ni. Les valeurs calculées sont plus faibles que les valeurs expérimentales pour les alliages de concentration supérieure à 3 % Ni.

L'équation (27) permet de comprendre la variation de la susceptibilité avec la pression, due à la compétition de deux effets. Le deuxième terme du membre de droite de (27) a une contribution positive : il traduit le fait que la pression, en augmentant le nombre d'atomes de nickel non magnétiques augmente la susceptibilité. Le troisième terme a une contribution négative et traduit la variation négative de la susceptibilité du palladium et des atomes de nickel non magnétiques avec la pression.

A partir du résultat expérimental, $\frac{\partial \chi_{all}}{\partial p} = 0$ pour l'alliage de concentration 2,5 % Ni et de la valeur $\frac{\partial \ln \chi_1}{\partial \ln V} = 18$, on trouve, à partir de l'équation (27) : $\frac{\partial \ln \chi_1}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln \chi_2}{\partial \ln V}$, ce qui confirme l'hypothèse précédemment admise.

D- Conclusion

Les études magnétiques sous pression mettent en évidence dans les alliages dilués PdNi deux zones de concentration où le comportement magnétique est différent. A faible concentration ($c < 3$ % Ni), le magnétisme apparaît de façon très inhomogène par la création d'amas magnétiques induisant des moments géants, ce qui se traduit par une décroissance très rapide de $\frac{\partial M(0,0)}{\partial p}$ avec la concentration. Dans cette zone, un modèle local d'apparition du magnétisme donne une description correcte des propriétés magnétiques sous pression. Pour les alliages de concentration supérieure à 10 % Ni, les effets de la pression peuvent être compris dans le cadre d'un modèle où les moments localisés sur les atomes de nickel sont couplés de façon indirecte par l'intermédiaire des électrons de la matrice.

IV-3 - LES ALLIAGES PtNi

Nous avons montré précédemment que le modèle du faible ferromagnétisme itinérant permettait d'interpréter les propriétés magnétiques à la pression ambiante des alliages PtNi ferromagnétiques, le paramètre essentiel étant la variation avec la température et la concentration du paramètre A de Landau. Le coefficient B est en première approximation indépendant de la température et de la concentration. Nous avons entrepris [Be 73a, Al 74] d'étudier l'effet de la pression sur les propriétés magnétiques de ces alliages afin de préciser :

- 1 - Les variations de l'aimantation spontanée à 0 K, $M(0,0)$, de la température de Curie T_c , et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ avec les distances interatomiques et les relations entre elles,
- 2 - Les variations des coefficients de Landau A et B avec les distances interatomiques,
- 3 - La variation de la concentration critique d'apparition du ferromagnétisme avec la pression.

A - Traitement thermodynamique du modèle du faible ferromagnétisme itinérant

A-1 - Relations caractéristiques entre les variations par rapport aux distances interatomiques de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c , et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$

L'équation de Stoner s'écrit, en tenant compte de l'effet de la pression :

$$M^2(0,T,p) = M^2(0,0,p) \left[1 - \frac{T^2}{T_c^2(p)} \right] \quad (29)$$

L'aimantation spontanée sous pression, $M(0,0,p)$ est donc proportionnelle à la température de Curie sous pression, $T_c(p)$. D'autre part, si le paramètre B varie peu avec la température, la concentration et la pression, le carré de l'aimantation spontanée à la température T et sous pression p doit rester proportionnel à $\chi(0,T,p)^{-1}$ d'après la relation :

$$B = \left[2 M^2(0,T,p) \chi(0,T,p) \right]^{-1}$$

Enfin $M^2(0,T,p)$ est proportionnel à $-A(T,p)$, car :

$$M^2(0,T,p) = -A(T,p)/B.$$

On en déduit donc les relations entre les variations avec les distances interatomiques de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c , de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ et du coefficient de Landau $A(0,0)$:

$$2 \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V} = 2 \frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = - \frac{\partial \ln \chi(0,0)}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln (-A(0,0))}{\partial \ln V} \quad (30)$$

A-2 - Variation de la dérivée par rapport à la pression de la température de Curie T_c

Exprimons l'énergie libre compte-tenu de l'énergie élastique et de l'énergie magnétoélastique, à l'aide de l'expression des coefficients de Landau dans la théorie du faible ferromagnétisme itinérant :

$$F = \frac{-1}{4\chi(0,0)} \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right) M^2(H,T,p) + \frac{1}{8\chi(0,0)M^2(0,0,0)} M^4(H,T,p) - HM(H,T,p) + \frac{\omega^2}{2K} - C\omega \left[M^2(H,T,p) - M^2(0,T,p) \right] \quad (31)$$

Ecrivant que le coefficient de $M^2(H,T,p)$ est nul pour une température $T = T_c(p)$, on trouve :

$$T_c^2(p) = T_c^2(0) (1 - 4K C \chi(0,0)p) \quad (32)$$

Le produit $\chi(0,0)T_c^2(0)$ dépendant peu de la concentration, la théorie prévoit une variation parabolique de la température de Curie en fonction de la pression [Wo 69, Wo 70]. A partir de l'équation (32), on déduit :

$$\frac{\partial T_c}{\partial p} = -2K C \chi(0,0) T_c \quad (33)$$

et à l'aide de l'expression de la susceptibilité initiale :

$$\chi(0,0) = \frac{\mu_B^2 N_F T_F^2}{T_c^2}$$

on trouve :

$$\frac{\partial T_c}{\partial p} = - \frac{\alpha}{T_c} \quad (34)$$

où $\alpha = 2K C \mu_B^2 N_F T_F^2$.

L'équation (34) est l'expression de la loi de variation parabolique de la température de Curie avec la pression en fonction des paramètres de bande. Dans une série d'alliages, où la variation de α est faible vis-à-vis de celle de T_c , on prévoit que $\partial T_c / \partial p$ varie de façon inversement proportionnelle à T_c .

A-3 - Effets dus à la magnétostriction

La variation d'énergie libre, sous l'effet du champ magnétique appliqué, à la pression ambiante, peut s'exprimer comme :

$$\Delta F = \frac{1}{2} A(T,0) \left[M^2(H,T,0) - M^2(0,T,0) \right] + \frac{B}{4} \left[M^4(H,T,0) - M^4(0,T,0) \right] - HM(H,T,0) + \frac{\Delta V^2}{2K} \quad (35)$$

où ΔV est la variation de volume associée à la magnétostriction forcée. En minimisant la variation d'énergie libre ΔF par rapport au volume, on trouve :

$$\Delta V = - \frac{1}{2} K \frac{\partial A(0,0)}{\partial V} \left[M^2(H,T,0) - M^2(0,T,0) \right] \quad (36)$$

$$\text{puisque } \frac{\partial A(T,0)}{\partial V} = \frac{\partial A(0,0)}{\partial V} .$$

M étant l'aimantation par unité de volume, la variation relative de volume due à l'effet de magnétostriction peut s'écrire :

$$\omega = \frac{\Delta V}{V} = - \frac{1}{2} K \frac{\partial A(0,0)}{\partial \omega} \left[M^2(H,T,0) - M^2(0,T,0) \right] \quad (37)$$

La constante $C = - \frac{1}{2} \frac{\partial A(0,0)}{\partial \omega}$ est appelée constante de couplage magnétoélastique.

On peut ainsi exprimer la variation relative de volume due à l'effet du champ magnétique sous la forme :

$$\omega = KC \left[M^2(H,T,0) - M^2(0,T,0) \right] \quad (38)$$

On s'attend à une variation de volume due à la magnétostriction proportionnelle au carré de l'aimantation.

A-4 - Dilatation thermique

La contribution magnétique du coefficient de dilatation thermique s'obtient à partir de la variation d'énergie libre entre 0 K et la température T :

$$\Delta F = \frac{A(0,T)}{2} M^2(0,T) - \frac{A(0,0)}{2} M^2(0,0) + \frac{B}{4} \left[M^4(0,T) - M^4(0,0) \right] + \frac{\omega^2}{2K} \quad (39)$$

En minimisant ΔF par rapport à ω :

$$\omega = KC \left[M^2(0,T) - M^2(0,0) \right] = - KC M^2(0,0) \frac{T^2}{T_c^2} \quad (40)$$

$$\text{et } \beta_m = \frac{\partial \omega}{\partial T} = - 2K C \frac{M^2(0,0)}{T_c^2} T \quad (41)$$

où β_m est le coefficient de dilatation thermique magnétique en volume.

On prévoit donc pour le coefficient b_m relatif à β_m ($\beta_m = b_m T$ à basse température) une variation en fonction de la concentration faible, à l'intérieur d'une même série d'alliages.

B - Résultats expérimentaux

B-1 - Variation avec la pression de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$

A partir de la variation de $M^2(H,T,p)$ en fonction de $H/M(H,T,p)$ déterminée à diverses températures et à diverses pressions, on peut déterminer la variation de $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)$ avec la pression.

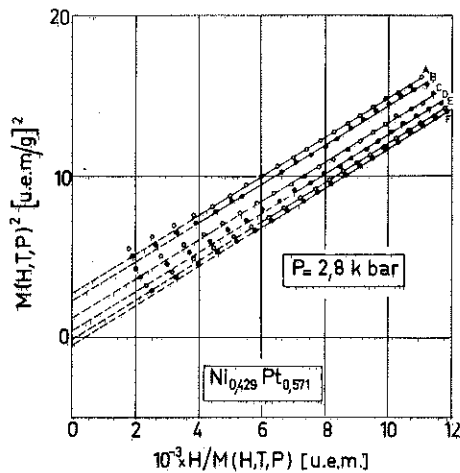


Figure 14 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage

$Pt_{0,571}Ni_{0,429}$ sous 2,8 kbar

(A : 4,2 K ; B : 7,9 K ;
C : 13,8 K ; D : 17,2 K ;
E : 20,4 K ; F : 22,4 K.)

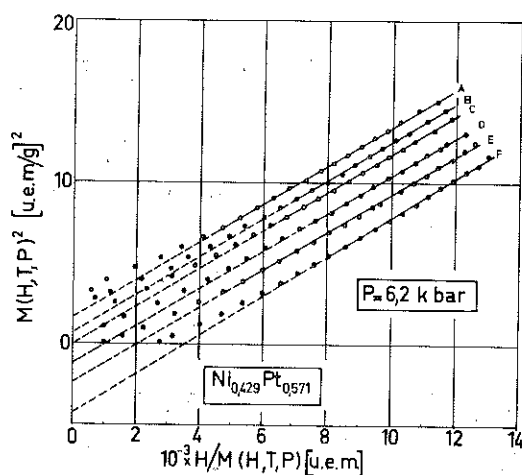


Figure 15 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $Pt_{0,571}Ni_{0,429}$ sous 6,2 kbar
(A : 4,2 K ; B : 10,1 K ;
C : 14,8 K ; D : 20 K ;
E : 24,8 K ; F : 29,9 K.)

Nous présentons, figures 14 et 15, les tracés de M^2 en fonction de H/M pour deux pressions différentes et à température variable. Nous constatons que leur allure est la même qu'à la pression ambiante. A température fixe, ils subissent une translation en fonction de la pression (figures 16 et 17), sous pression $M^2(0,0)$ et $1/\chi(0,0)$ restent donc proportionnels.

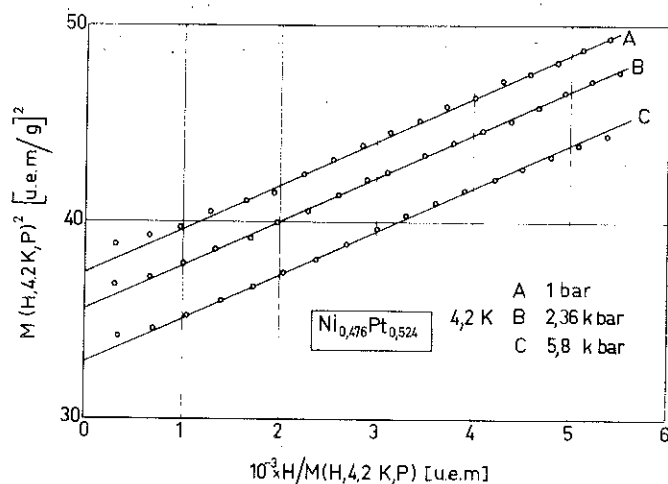


Figure 16 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $Pt_{0,524}Ni_{0,476}$ à 4,2 K et sous différentes pressions.

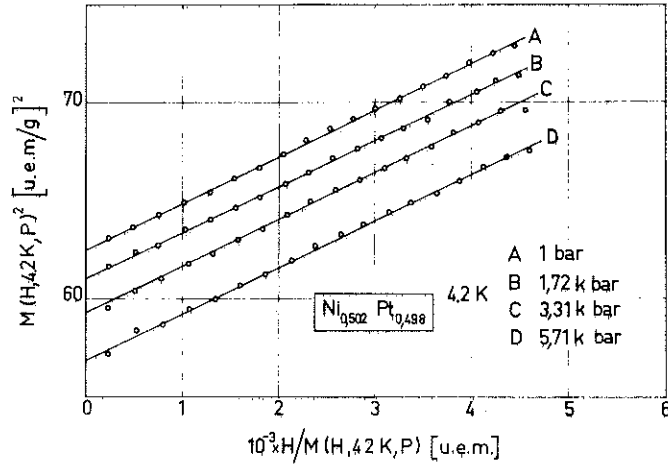


Figure 17 : M^2 en fonction de H/M pour l'alliage $Pt_{0,498}Ni_{0,502}$ à 4,2 K et sous différentes pressions.

D'autre part, l'intersection $I(T)$ des tracés de M^2 en fonction de H/M avec l'axe des M^2 suit, sous pression, une loi de variation quadratique en T (figure 18). Les droites représentant $M^2(0, T)$ en fonction de T^2 se déplacent parallèlement en fonction de la pression et l'aimantation spontanée $M(0, 0)$ reste proportionnelle à la température de Curie T_c . La relation (30) est donc bien vérifiée.

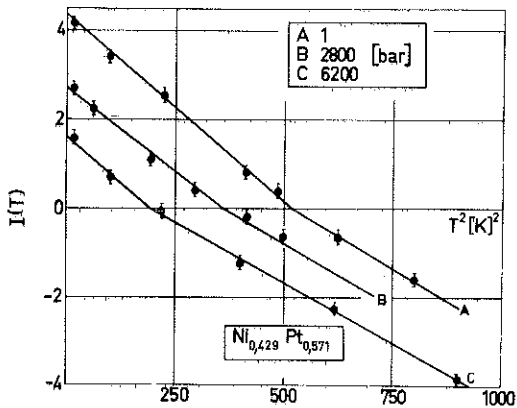


Figure 18 : Variation de $I(T)$ (voir texte) en fonction de T^2 , sous différentes pressions pour l'alliage $Pt_{0,429}Ni_{0,571}$.

Nous avons représenté, figures 19 et 20, les variations expérimentales obtenues pour $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)$ en fonction de la pression.

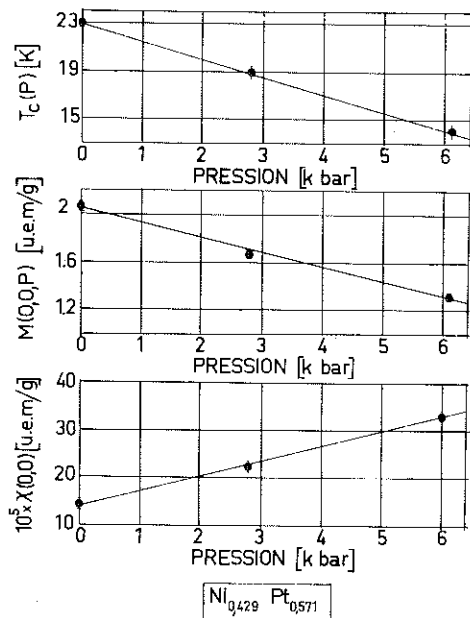


Figure 19 : Variation, en fonction de la pression, de la température de Curie, de l'aimantation spontanée à 0 K et de la susceptibilité initiale sous champ fort pour l'alliage $Pt_{0.571}Ni_{0.429}$.

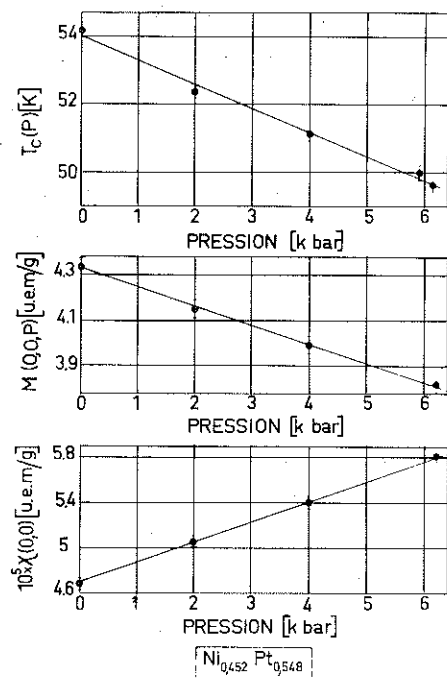


Figure 20 : Variation, en fonction de la pression, de la température de Curie, de l'aimantation spontanée à 0 K, et de la susceptibilité initiale sous champ fort pour l'alliage $Pt_{0.548}Ni_{0.452}$.

T A B L E A U 1

Valeurs caractéristiques des variations avec la pression de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c et de la susceptibilité ferromagnétique initiale des alliages PtNi.

c	0,429	0,452	0,476	0,502
$\partial M(0,0) / \partial p$ [u.e.m./mole kbar]	- 16,5	- 11	- 8,6	- 8,1
$\partial T_c / \partial p$ [K/kbar]	- 1,5	- 0,7		
$10^5 \partial \chi(0,0) / \partial p$ [u.e.m./mole kbar]	420	23	7,4	4,2
$\frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V}$	135	44	24	18
$\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V}$	150	29		
$\frac{\partial \ln \chi(0,0)}{\partial \ln V}$	-490	- 84	- 43	- 39
$10^{-6} M^2(0,0) \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V}$ [u.e.m./mole] ²	11	15	15	18
$10^{-4} T_c^2 \frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V}$ [K] ²	8,0	8,6		
$10^{-4} \chi(0,0)^{-1} \frac{\partial \ln \chi(0,0)}{\partial \ln V}$ [u.e.m./mole] ⁻¹	- 2,5	- 1,3	- 1,1	- 1,6

Les résultats sont rassemblés tableau 1. La compressibilité a été obtenue par interpolation linéaire en fonction de la concentration entre celle du nickel pur ($0,53 \cdot 10^{-6} \text{ bar}^{-1}$) et celle du platine pur ($0,36 \cdot 10^{-6} \text{ bar}^{-1}$). On observe un bon accord entre les résultats expérimentaux et ceux prévus par l'équation (30).

D'autre part, la quantité $T_c^2 \frac{\partial \text{Ln } T_c}{\partial \text{Ln } V}$ varie peu de l'alliage 42,9 %Ni à l'alliage 45,2 %Ni, en accord avec l'équation (34) ; il en est de même pour les quantités $M^2(0,0) \frac{\partial \text{Ln } M(0,0)}{\partial \text{Ln } V}$ et $\chi^{-1}(0,0) \frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V}$ (tableau 1).

Récemment, Kortekaas et al [Ko 74a] ont déterminé la magnétostriction en volume d'alliages PtNi près de la concentration critique. La magnétostriction varie de façon linéaire avec $M^2(H,T)$ en accord avec l'équation (38) (figure 21).

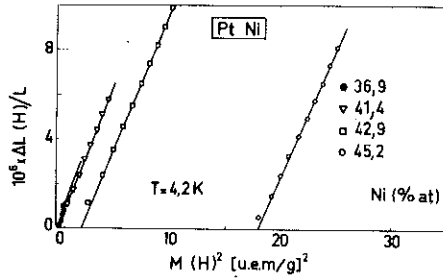


Figure 21 : Variation de la magnétostriction longitudinale $\frac{\Delta l}{l}$ en fonction du carré de l'aimantation pour divers alliages PtNi.

On peut comparer les résultats de nos mesures d'aimantation sous pression aux mesures de magnétostriction. A partir de l'expression de l'énergie libre sous pression (31) on déduit :

$$\frac{\partial T_c}{\partial p} = - 2K C \left[\frac{\partial A}{\partial T} \Big|_{T_c} \right]^{-1} \quad (42)$$

On peut déduire, des mesures d'aimantation et des mesures de $\frac{\partial T_c}{\partial p}$, $K C = 3,2 \cdot 10^{-6}$ et $2,7 \cdot 10^{-6} \text{ (u.e.m./g)}^{-2}$ pour les alliages 42,9 et 45,2 % Ni. Ces valeurs sont à comparer à $3,6 \cdot 10^{-6}$ et $3,4 \cdot 10^{-6} \text{ (u.e.m./g)}^{-2}$ obtenues par les mesures de magnétostriction [Ko 74b].

D'autre part, à l'aide de mesures de dilatation thermique [Ko 74a, Ko 74b] Kortekaas et al ont déduit à partir de la formule (41) des valeurs de KC de $3,5 \cdot 10^{-6}$ et $4,2 \cdot 10^{-6}$ (u.e.m./g) $^{-2}$ pour les deux alliages précédents, en assez bon accord avec les valeurs que nous avons obtenues précédemment.

Remarquons que les valeurs $T_c \frac{\partial T_c}{\partial p}$ trouvées sont respectivement 34,5 et 37,9 ($K^2 \text{ kbar}^{-1}$) à comparer à des valeurs comprises entre 20 et 36 pour les alliages Ni_3Al [Fr 73] et comprises entre 36,5 et 42 pour $ZrZn_2$ [Wa 69, Sm 71, Hu 73].

B-2 - Variation avec la pression de la concentration critique

On peut déterminer la variation avec la pression de la concentration critique en mesurant $M(0,0)$, T_c et $1/\chi(0,0)$ en fonction de la concentration sous diverses pressions. On déduit ainsi expérimentalement $\frac{\partial c_F}{\partial p} = +10^{-3} \text{ kbar}^{-1}$. Comme $M^2(0,0,p)$, $T_c^2(p)$, $\chi^{-1}(0,0,p)$ sont proportionnels à $c - c_F(p)$, il vient :

$$2 \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V} = 2 \frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = - \frac{\partial \ln \chi(0,0)}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln(c - c_F)}{\partial \ln V} \quad (43)$$

Nous avons tracé, figure 22, la courbe représentant $\frac{\partial \ln(c - c_F)}{\partial \ln V}$ déterminée à partir de la valeur expérimentale de $\frac{\partial c_F}{\partial p}$. Nous avons aussi porté sur cette figure les points représentant les valeurs expérimentales de $2 \frac{\partial \ln M(0,0)}{\partial \ln V}$, $2 \frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V}$ et $-\frac{\partial \ln \chi(0,0)}{\partial \ln V}$. La relation (43) est bien vérifiée pour les alliages étudiés et l'ensemble des résultats expérimentaux peut se déduire d'un seul paramètre : la variation de la concentration critique avec la pression.

B-3 - Conclusion

- 1 - Les courbes représentant $M^2(H,T,p)$ en fonction de $H/M(H,T,p)$ restent rectilignes et parallèles sous pression, ce qui signifie que le coefficient de Landau B varie peu avec la pression.
- 2 - Les relations caractéristiques entre les variations en fonction des distances interatomiques de $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)$ prévues par la théorie du faible ferromagnétisme itinérant sont vérifiées.
- 3 - Les mesures d'aimantation sous pression, de magnétostriction et de dilatation thermique, peuvent s'analyser à l'aide de cette théorie.

- 4 - La variation avec la pression de la concentration critique c_F permet de rendre compte de la variation avec la pression de $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)$.

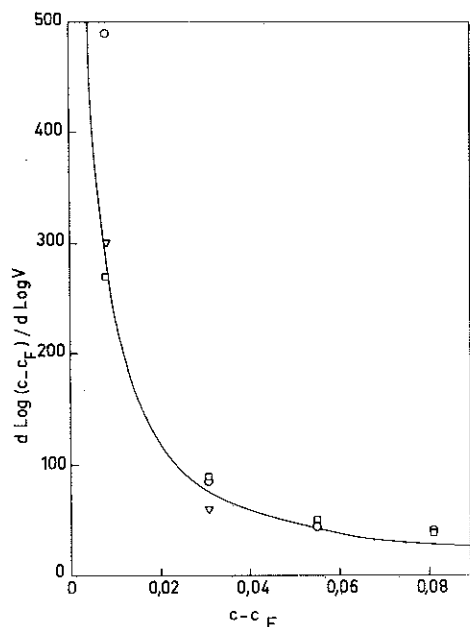


Figure 22 : Variation de $\frac{\partial \text{Ln}(c - c_F)}{\partial \text{Ln } V}$ calculée à partir de $\frac{\partial c_F}{\partial p} = 10^{-3} \text{ kbar}^{-1}$ et à partir des valeurs expérimentales de $2 \frac{\partial \text{Ln } M(0,0)}{\partial \text{Ln } V}$ ($\square$) ; $2 \frac{\partial \text{Ln } T_c}{\partial \text{Ln } V}$ (∇), et $\frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V}$ ($\circ$).

C - Etude de certains paramètres atomiques

C-1 - Prévisions théoriques

Edwards et Wohlfarth [Ed 68] ont donné les expressions de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c et de la susceptibilité initiale ferromagnétique $\chi(0,0)$ en fonction des paramètres de bande, en particulier de la densité d'états au niveau de Fermi N_F et de ses dérivées successives. Ainsi $T_c = T_F \sqrt{\bar{U}} - 1$

$$\text{où } T_F^2 = \frac{\pi^2 k^2}{6} \left[\left(\frac{N'_F}{N_F} \right)^2 - \frac{N''_F}{N_F} \right] \quad (44)$$

et $\bar{U} = U N_F$.

En suivant Shiga [Sh 69], nous posons :

$$\begin{aligned} Z &= E/W \\ g(Z) &= N(E)W \end{aligned} \quad (45)$$

où $N(E)$ est la densité d'états correspondant à l'énergie E et où W est la largeur de bande. Si l'on considère qu'il n'y a pas de transfert s-d, on peut faire l'hypothèse que la largeur de bande est inversement proportionnelle à la densité d'états [La 68] et que le produit $W N(E)$ ne dépend pas de la pression. On a alors :

$$\left(\frac{N_F'}{N_F}\right)^2 - \frac{N_F''}{N_F} = \frac{1}{W^2} \left(\frac{g'(Z)}{g(Z_F)} \Big|_{Z_F} - \frac{g''(Z)}{g(Z_F)} \Big|_{Z_F} \right)$$

où Z_F est la valeur de Z au niveau de Fermi.

On trouve donc :

$$\frac{\partial \ln T_F}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln W}{\partial \ln V} = - \frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V}$$

$$\text{d'où : } \frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = - \frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V} + \frac{1}{2} \frac{\partial \ln(\bar{U}-1)}{\partial \ln V} \quad (46)$$

D'autre part, Kanamori [Ka 63] a estimé l'interaction de Coulomb effective U suivant l'expression :

$$U = \frac{U_b}{1 + \gamma \frac{U_b}{W}} \quad (47)$$

où U_b est l'interaction de Coulomb "nue", calculée sans tenir compte de l'effet des corrélations et γ est une constante indépendante de la pression, compte tenu de l'hypothèse que $W.N(E)$ ne dépend pas de la pression.

On en déduit :

$$\frac{\partial \ln \bar{U}}{\partial \ln V} = \frac{U}{U_b} \frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V} \quad (48)$$

et

$$\boxed{\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln V} = \frac{\partial \ln N_F}{\partial \ln V} \left[-1 + \frac{1}{2} \frac{U}{U_b} \frac{\bar{U}}{\bar{U}-1} \right]} \quad (49)$$

D'après Edwards et Wohlfarth [Ed 68], par ailleurs

$$\zeta_o = \frac{M(0,0)}{n N \mu_B} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\hbar}{n} N_F k_B T_c \quad (50)$$

où N est le nombre d'atomes et n est le nombre d'électrons ou de trous par atome. On peut déduire facilement de l'équation (50) :

$$\boxed{\frac{\partial \text{Ln } M(0,0)}{\partial \text{Ln } V} = \frac{1}{2} \frac{\partial \text{Ln } N_F}{\partial \text{Ln } V} \frac{U}{U_b} \frac{\bar{U}}{\bar{U}-1}} \quad (51)$$

A partir de l'expression de la susceptibilité initiale dans l'état ferromagnétique :

$$\chi(0,0) = \frac{N N_F \mu_B^2}{\bar{U}-1} \quad (52)$$

on peut connaître la variation en fonction du volume de $\chi(0,0)$:

$$\boxed{\frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V} = \frac{\partial \text{Ln } N_F}{\partial \text{Ln } V} \left[1 - \frac{U}{U_b} \frac{\bar{U}}{\bar{U}-1} \right]} \quad (53)$$

On constate donc que pour des alliages faiblement ferromagnétiques, près de la concentration critique où le facteur de renforcement de Stoner S est très grand, les relations de proportionnalité suivantes sont satisfaites :

$$2 \frac{\partial \text{Ln } M(0,0)}{\partial \text{Ln } V} = 2 \frac{\partial \text{Ln } T_c}{\partial \text{Ln } V} = - \frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V} \quad (54)$$

d'après l'expression (51), près de la concentration critique où

$$\bar{U} \approx 1, \quad \frac{\partial \text{Ln } M(0,0)}{\partial \text{Ln } V} \approx \frac{U}{U_b} S \frac{\partial \text{Ln } N_F}{\partial \text{Ln } V} \quad (55)$$

Si l'on prend $\frac{\partial \text{Ln } N_F}{\partial \text{Ln } V} \approx \frac{5}{3}$ qui est une valeur raisonnable pour les métaux d [He 67], on trouve :

$$\frac{\partial \text{Ln } M(0,0)}{\partial \text{Ln } V} \approx \frac{5}{3} S \frac{U}{U_b}. \quad (56)$$

C-2 - Analyse des résultats expérimentaux

A partir des mesures de susceptibilité et de chaleur spécifique nous avons déduit les valeurs suivantes de $\bar{U}$: 1,004 ; 1,012 ; 1,020 ; 1,033 pour les alliages de concentration 42,9, 45,2, 47,6 et 50,2 % Ni. Les valeurs de $\frac{\partial \text{Ln } \bar{U}}{\partial \text{Ln } V}$ obtenues à partir des valeurs de $\bar{U}$ et des variations avec le volume de $M(0,0)$, T_c et $\chi(0,0)$ sont proches de 1,1 pour tous les alliages considérés. Cette valeur est à comparer à 1,15, valeur obtenue pour ZrZn_2 [Wo 71].

A partir de la valeur de $\frac{\partial \text{Ln } \bar{U}}{\partial \text{Ln } V}$, on déduit, à l'aide de (48) $\frac{U}{U_b} = 0,65$ pour les alliages étudiés. Ce résultat ne peut être considéré que comme un ordre de grandeur en raison de l'imprécision sur la valeur de $\bar{U}$, déterminée à partir des mesures de susceptibilité et de chaleur spécifique.

Il est cependant possible d'obtenir la valeur de $\frac{U^2}{U_b}$ indépendamment des expériences de chaleur spécifique. En effet, à partir des équations (52), (54) et (56) :

$$\frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V} = - \frac{5}{3} \frac{U^2}{U_b} \frac{\chi(0,0)}{N \bar{U} \mu_B^2} \quad (57)$$

$$\text{D'où} \quad \frac{U^2}{U_b} = - \frac{3}{5} \frac{N \mu_B^2}{\chi(0,0)} \frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V} \quad (57)$$

On peut déterminer une valeur de $\frac{U^2}{U_b}$ pour les alliages étudiés à partir des valeurs expérimentales de $\chi(0,0)$ et de $\frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V}$ car la quantité $\frac{1}{\chi(0,0)} \frac{\partial \text{Ln } \chi(0,0)}{\partial \text{Ln } V}$ varie peu avec la concentration. On trouve $\frac{U^2}{U_b} \approx 0,28$ eV qui est compatible avec les valeurs $\bar{U} \approx 0,44$ eV et $\frac{U}{U_b} \approx 0,65$.

Si l'on considère que le terme $\bar{U}$ dépend des deux variables concentration c et pression p , le long de la ligne critique où $\bar{U} = 1$, à 0 K :

$$dU = \left. \frac{\partial \bar{U}}{\partial c_F} \right|_p dc_F + \left. \frac{\partial \bar{U}}{\partial p} \right|_c dp = 0,$$

$$\text{d'où : } \frac{\partial c_F}{\partial p} = - \frac{\left. \frac{\partial \bar{U}}{\partial p} \right|_c}{\left. \frac{\partial \bar{U}}{\partial c} \right|_p} = K \frac{\partial \text{Ln } \bar{U}}{\partial \text{Ln } V} / \left. \frac{\partial \bar{U}}{\partial c} \right|_p \quad (58)$$

avec $K = 0,43.10^{-3} [\text{kbar}]^{-1}$ et $\frac{\partial \text{Ln } \bar{U}}{\partial \text{Ln } V} = 1,1$.

La valeur de $\frac{\partial \bar{U}}{\partial c}$ peut être estimée à 0,65 par interpolation linéaire entre la valeur 0,58 pour le platine pur et la valeur 1,23 pour le nickel pur [Wo 68]. On obtient alors $\frac{\partial c_F}{\partial p} = + 0,75.10^{-3} [\text{kbar}]^{-1}$ en bon accord avec la valeur expérimentale $\frac{\partial c_F}{\partial p} = +1.10^{-3} [\text{kbar}]^{-1}$.

D - Conclusion

Un traitement thermodynamique du faible ferromagnétisme itinérant nous a permis d'expliquer les relations entre les variations avec les distances interatomiques de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$ et de discuter leur amplitude. Ces grandeurs se ramènent à un paramètre unique qui est la variation avec la pression de la concentration critique d'apparition du ferromagnétisme. Celle-ci augmente de 1 % pour 10 kbar environ. Ce paramètre a pu être relié aux variations de l'interaction d'échange de Coulomb moyenne U avec la concentration et avec la pression. Les valeurs des paramètres atomiques trouvées sont cohérentes entre elles et ont pu être comparées à celles relatives à d'autres composés faiblement ferromagnétiques tels que ZrZn_2 .

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

- [Al 74] ALBERTS H.L., BEILLE J., BLOCH D. et WOHLFARTH E.P.
Phys. Rev. B, 9, 2233, 1974.
- [Av 71] AVERBUCH P.G. et SEGRANSAN P.J.
Phys. Rev. B, 4, 2067, 1971.
- [Be 73a] BEILLE J., BLOCH D., WOHLFARTH E.P.
Phys. Lett., 43A, 207, 1973.
- [Be 73a] BEYERLEIN R.A. et LAZARUS D.
Phys. Rev., 7, 7, 1973.
- [Be 74a] BEILLE J.
Phys. Lett., 49A, 63, 1974.
- [Be 74b] BEILLE J. et CHOUTEAU G.
J. Phys. F : Metal Phys., à paraître, 1974.
- [Ch 68] CHOUTEAU G., FOURNEAUX R., GOBRECHT K., TOURNIER R.
P. R. L., 20, 193, 1968.
- [Ch 73] CHOUTEAU G.
Thèse d'Etat, Université de Grenoble, 1973.
- [De 71] DEKHTYAR Y.A., PANFILOV A.S., SVECHKAREV I.V., FEDCHENKO R.G.
Sov. Phys. J.E.T.P., 33, 185, 1971.
- [Do 67] DONIACH S. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., 296, 442, 1967.
- [Ed 68] EDWARDS D.M. et WOHLFARTH E.P.
Proc. Roy. Soc., A303, 127, 1968.

- [Fa 68] FAWCETT D.B., McWHAN D.B., SHERWOOD R.C. et SARACHIK M.P.
Sol. Stat. Commun., 6, 509, 1968.
- [Fa 70] FAWCETT E.
Phys. Rev., B 2, 3887, 1970.
- [Fa 71] FAWCETT E.
Phys. Rev., B 3, 3023, 1971.
- [Fr 73] FRANSE J.J.M., BUIS N., KORTEKAAS T.F.M.
Proc. Int. Conf. on Magnetism, Moscou, 1973.
- [He 67] HEINE V.
Phys. Rev., 153, 673, 1967.
- [Ho 69] HOLZAPFEL W.B., COHEN J.A., DRICKAMER H.G.
Phys. Rev., 187, 657, 1969.
- [Hu 73] HUBER J.G., MAPLE M.B., WOHLLEBEN D.
Proc. Int. Conf. on Magnetism, Moscou, 1973.
- [Ka 63] KANAMORI J.
Progr. Theor. Phys., 30, 275, 1963.
- [Ka 67] KADANOFF L.P., GÖTZE W., HAMBLÉN D., HECHT R., LEWIS E.A.S.,
PALCIANSKAS V.V., RAYL M., SWIFT J., ASPNES D. et KANE J.
Rev. Mod Phys., 39, 395, 1967.
- [Ke 70] KELLER R., ORTELLI J., PETER M.
Phys. Lett., A31, 376, 1970.
- [Ki 66] KIM D.J.
Phys. Rev., 149, 434, 1966.
- [Ki 70] KIM D.J.
Phys. Rev., B 1, 3725, 1970.
- [Ko 74a] KORTEKAAS T.F.M., FRANSE J.J.M. et HÖLSCHER H.
Phys. Lett., A48, 305, 1974.
- [Ko 74b] KORTEKAAS T.F.M., FRANSE J.J.M. et HÖLSCHER H.
Phys. Lett. A, à paraître, 1974.
- [La 68] LANG N.D. et EHRENREICH H.
Phys. Rev., 168, 605, 1968.

- [Le 66] LEGER J.M., SUSSE C., EPAIN R. et VODAR B.
Sol. Stat. Commun., 4, 197, 1966.
- [Le 68] LEDERER P. et MILLS D.L.
Phys. Rev., 165, 837, 1968.
- [Ma 37] MARIAN V.
Ann. Phys., Paris, 7, 513, 1937.
- [Ma 72] MATHON J.
J. Phys. F : Metal Phys., 2, 159, 1972.
- [Me 74] MEIER J.S., CHRISTOE C.W., WORTMANN G. et HOLZAPFEL W.B.
Sol. Stat. Commun., 15, 485, 1974.
- [Mi 70a] MISAWA S.
Phys. Lett., 32A, 153, 1970.
- [Mi 70b] MISAWA S.
Phys. Lett., 32A, 541, 1970.
- [Mo 71] MOLLER H.S. et DRICKAMER H.G.
J. Phys. Chem. Solids, 32, 745, 1971.
- [Sa 32] SADRON C.
Ann. Phys., Paris, 17, 371, 1932.
- [Sh 69] SHIGA M.
Sol. Stat. Commun., 7, 559, 1969.
- [Sm 71] SMITH T.F., MYDOSH J.A., WOHLFARTH E.P.
Phys. Rev. Lett., 27, 1732, 1971.
- [Ta 62] TATSUMOTO E., FUJIWARA H., TANGE H. et KATO Y.
Phys. Rev., 128, 2179, 1962.
- [Ta 65] TAKAHASHI T. et SHIMIZU M.
J. Phys. Soc. Japan, 20, 26, 1965.
- [Ta 66] TAKAHASHI T. et SHIMIZU M.
J. Phys. Soc. Japan, 21, 681, 1966.

- [Ta 68] TATSUMOTO E., FUJIWARA H., OKAMOTO T. et FUJII H.
J. Phys. Soc. Japan, 25, 1734, 1968.
- [To 73] TOKUNAGA T., TANGE H. et GOTO M.
J. Phys. Soc. Japan, 34, 1103, 1973.
- [Wa 69] WAYNE R.C., EDWARDS L.R.
Phys. Rev., 188, 1042, 1969.
- [Wo 68] WOHLFARTH E.P.
J. Inst. Math. Appl., 4, 359, 1968.
- [Wo 69] WOHLFARTH E.P.
J. Phys. C : Proc. Phys. Soc. London, 2, 68, 1969.
- [Wo 70] WOHLFARTH E.P.
Colloque Int. C.N.R.S., 188, 363, 1970.
- [Wo 71] WOHLFARTH E.P. et BARTEL L.C.
Phys. Lett., A34, 303, 1971.

C O N C L U S I O N

Ce travail a nécessité la mise au point d'un appareillage permettant des mesures d'aimantation très précises (résolution de 2.10^{-3} u.e.m.) sous pression hydrostatique jusqu'à 8 kbar et sous champ jusqu'à 65 kOe. Les principaux résultats obtenus sont les suivants :

1 - Alliages PtNi

a - Les mesures d'aimantation sous champ intense montrent que les alliages PtNi près de la concentration critique d'apparition du ferromagnétisme c_F sont homogènes. Les relations de proportionnalité entre l'aimantation spontanée à 0 K, la température de Curie et la susceptibilité en champ fort prévues par la théorie du faible ferromagnétisme itinérant sont bien vérifiées.

b - Les mesures d'aimantation à basse température nous ont permis d'obtenir les coefficients de dispersion des ondes de spin. Nous avons pu également préciser, à partir des mesures de chaleur spécifique à basse température, l'homogénéité des alliages et mettre en évidence l'absence d'effets importants de paramagnons en dessous de la concentration critique c_F . Une part importante de la variation avec la concentration du coefficient de chaleur spécifique électronique γ a été décrite en termes de bande, une contribution non négligeable à la décroissance du coefficient γ dans le domaine ferromagnétique étant liée à l'apparition du magnétisme dans les alliages. Enfin, les susceptibilités paramagnétiques sont bien décrites à l'aide d'une théorie de fluctuations de spin comme celle de Doniach et Murata ou Moriya et Kawabata.

c - Nous avons pu, à l'aide des mesures d'aimantation sous pression vérifier que les relations de proportionnalité entre l'aimantation spontanée à 0 K, la température de Curie et la susceptibilité en champ fort, prévues par la théorie du faible ferromagnétisme itinérant étaient conservées sous pression. Les valeurs expérimentales de la variation avec la pression de ces grandeurs fondamentales peuvent être décrites à partir de la variation avec la pression de la concentration critique d'apparition du ferromagnétisme.

2 - Alliages PdNi

a - Les mesures d'aimantation sous champ intense nous ont permis de montrer que les alliages PdNi, très inhomogènes pour des concentrations inférieures à 5 % Ni deviennent plus homogènes pour des concentrations supérieures. La température de Curie des alliages de concentration supérieure à 5 % Ni est décrite dans le cadre d'un modèle où les spins localisés des atomes de nickel sont couplés de façon indirecte par l'intermédiaire des électrons itinérants de la matrice. Dans les alliages de concentration inférieure à 5 % Ni, les effets dus aux atomes de nickel non magnétiques sont très importants et le modèle local de Chouteau et Tournier [Ch 73] donne une description convenable des propriétés magnétiques.

b - Le coefficient de dispersion des ondes de spin, D, déduit des mesures d'aimantation à basse température, est en accord qualitatif avec celui que l'on peut calculer à partir des mesures directes sur les alliages PdFe.

c - Le comportement des alliages PdNi sous pression est très intéressant. La dérivée par rapport à la pression de l'aimantation spontanée à $T = 0$ K présente deux minima dans sa variation avec la concentration c entre 0 et 25 % Ni ; elle dépend linéairement de c entre 10 et 20 % Ni. En dessous de 10 % Ni, on observe de forts écarts au comportement observé à concentration plus élevée. Il en est de même pour les valeurs de la dérivée par rapport à la pression de la température de Curie qui passent par un minimum prononcé autour de 3 % Ni. Il a été possible de décrire les propriétés magnétiques des alliages de concentration supérieure à 10 %, dans une zone limitée, dans un modèle où les spins localisés des atomes de nickel sont couplés par l'intermédiaire de la matrice. Les écarts observés à plus faible concentration sont attribués à la disparition du magnétisme

sur les atomes de nickel. Une interprétation a été donnée dans le cadre d'un modèle local d'apparition du ferromagnétisme. Ce modèle permet aussi de comprendre l'allure très particulière de la dérivée par rapport à la pression de la susceptibilité sous champ fort de l'alliage. Celle-ci est nulle pour 2,5 % Ni, minimale aux alentours de 1,5 % Ni et présente un maximum au voisinage de 3 % Ni.

Nous nous proposons d'étudier, dans une étape ultérieure, par la méthode de diffusion des neutrons les excitations collectives à basse température dans les alliages ferromagnétiques PdNi et PtNi, en collaboration avec des chercheurs de l'Institut Laue-Langevin. Il sera ainsi possible de faire une comparaison avec les renseignements déduits des mesures magnétiques statiques. Il sera d'autre part intéressant d'étudier par les mêmes techniques de diffusion des neutrons l'homogénéité des alliages PtNi au voisinage de la concentration critique, pour apprécier l'importance des amas magnétiques et déterminer le moment magnétique aux sites du platine et du nickel.

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	5

CHAPITRE I

LES MESURES D'AIMANTATION SOUS PRESSION HYDROSTATIQUE

I-1 - <u>Introduction</u>	7
I-2 - <u>Description du montage expérimental</u>	8
A - L'appareillage pour les mesures d'aimantation à température variable	8
A-1 - La bobine de champ magnétique supraconductrice	10
A-2 - La mesure d'aimantation	12
A-3 - La régulation de température	12
B - L'appareillage générateur de pression et les circuits de mesure et de contrôle	13
B-1 - Production de la pression	13
B-2 - La chambre de pression	13
B-3 - Calcul des enceintes	16
B-4 - Technique de changement de pression	17
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	21

C H A P I T R E I I

LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES EN CHAMP FORT DES ALLIAGES PdNi ET PtNi

	Pages
II-1 - <u>Apparition du magnétisme dans les alliages des</u> <u>éléments de transition de la première série avec</u> <u>le platine ou le palladium</u>	23
II-2 - <u>Etude de l'aimantation spontanée des alliages PdNi</u> <u>et PtNi : Description dans un modèle local</u>	26
A - Les échantillons	26
B - Mesure d'aimantation sous champ magnétique intense	27
C - L'apparition du ferromagnétisme dans les alliages PdNi	27
D - Description de l'aimantation spontanée des alliages PtNi dans un modèle local	30
II-3 - <u>Les alliages PtNi, faibles ferromagnétiques homogènes,</u> <u>Les alliages PdNi, faibles ferromagnétiques inhomogènes</u>	33
A - Les alliages PtNi	33
A-1 - Aimantation sous champ fort et coefficients de Landau	33
A-2 - La théorie du faible ferromagnétisme itinérant	37
A-3 - Conclusion	42
B - Les alliages PdNi	43
B-1 - Discussion de l'homogénéité des alliages PdNi	43
B-2 - Description des propriétés magnétiques des alliages PdNi de concentration supérieure à 5 % Ni	47
B-3 - Conclusion	49
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	51

C H A P I T R E I I I

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

	Pages
III-1 - <u>Introduction</u>	57
III-2 - <u>Variation thermique de l'aimantation à basse température</u>	57
A - La théorie des ondes de spin	59
A-1 - Excitations de Stoner et excitations collectives en fonction de la température et du champ magnétique	59
A-2 - Effets de la magnétostriction	60
B - Résultats expérimentaux	65
B-1 - Détails expérimentaux	65
B-2 - Analyse des résultats	65
C - Analyse des résultats	70
C-1 - Les alliages PtNi	70
C-2 - Les alliages PdNi	71
III-3 - <u>Expériences de chaleur spécifique à basse température sur les alliages PtNi</u>	73
A - Résultats expérimentaux	74
B - Discussion	75
III-4 - <u>Evolution thermique des coefficients de Landau pour les alliages PtNi et susceptibilités paramagnétiques des alliages PtNi et PdNi</u>	79
A - Variation thermique des coefficients de Landau A et B pour les alliages PtNi	79

	Pages
B - Susceptibilité paramagnétique des alliages PtNi et PdNi	81
B-1 - Les alliages PtNi	81
B-2 - Les alliages PdNi	86
B-3 - Conclusion	89
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	91

C H A P I T R E I V

EFFETS DE LA PRESSION HYDROSTATIQUE SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES ALLIAGES PdNi ET PtNi

	Pages
IV-1 - <u>Introduction</u>	97
IV-2 - <u>Les alliages PdNi</u>	98
A - Résultats expérimentaux	98
A-1 - Variation avec la pression de la suscepti- bilité du palladium	98
A-2 - Détermination de l'aimantation spontanée, de la température de Curie et de la susceptibi- lité en fonction de la pression pour les alliages PdNi	99
B - Etude des alliages de concentration comprise entre 10 et 20 % Ni	106
C - Etude des alliages PdNi de concentration inférieure à 10 % Ni	111
C-1 - Détermination de la pression sur les susceptibilités χ_1 et χ_2	112
C-2 - Calcul de la variation avec la pression de l'aimantation spontanée à 0 K des alliages PdNi de concentration inférieure à 3 % Ni	114
C-3 - Calcul de la variation avec la pression de la susceptibilité de l'alliage	117
D - Conclusion	119

	Pages
IV-3 - <u>Les alliages PtNi</u>	119
A - Traitement thermodynamique du modèle du faible ferromagnétisme itinérant	120
A-1 - Relations caractéristiques entre les variations par rapport aux distances inter-atomiques de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$	120
A-2 - Variation de la dérivée par rapport à la pression de la température de Curie T_c	121
A-3 - Effets dus à la magnétostriction	122
A-4 - Dilatation thermique	122
B - Résultats expérimentaux	123
B-1 - Variation avec la pression de l'aimantation spontanée $M(0,0)$, de la température de Curie T_c , et de la susceptibilité initiale $\chi(0,0)$	123
B-2 - Variation avec la pression de la concentration critique	129
B-3 - Conclusion	129
C - Etude de certains paramètres atomiques	130
C-1 - Prévisions théoriques	130
C-2 - Analyse des résultats expérimentaux	133
D - Conclusion	134
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	135
<u>CONCLUSION</u>	139