

THÈSE

présentée à

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

pour obtenir le grade

DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

Gérard FILLION

Ingénieur I.E.G.

SUJET

**Etude des structures non colinéaires
induites par un champ magnétique
intense (500kOe) dans les ferrites
grenats de terres rares.**

Soutenue le 24 Septembre 1974 devant la commission d'Examen

M. L. NEEL

Président

M. G. AUBERT

M. P. CARRARA

M. C. FERT

M. R. PAUTHENET

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.	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KAHANE André	Physique générale
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Mlle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	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 Eile	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
	AMÉROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Héliène	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
	PHELIP 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

USMG

29
39
45
29
145
3

INPG 35
145 / 35
50 41
4

7000 / 1300
50 5,4

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

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité	
BESSON Jean	Electrochimie	1 à 4,1
BONNETAIN Lucien	Chimie Minérale	
BONNIER Etienne	Electrochimie, Electrometallurgie	1 à 5,4
BRISSONNEAU 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
ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. BOUYARD 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
SABONNADIÈRE 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

Le travail faisant l'objet de ce mémoire a été effectué au Laboratoire de Magnétisme du Centre National de la Recherche Scientifique de Grenoble.

J'exprime ma profonde et respectueuse gratitude à Monsieur le Professeur Néel, Membre de l'Institut, Prix Nobel de Physique et Directeur du Laboratoire, pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail et l'honneur qu'il me fait en acceptant la présidence de ce jury de thèse.

Je remercie en premier lieu Monsieur le Professeur Pauthenet, Directeur du Service National des Champs Intenses, qui a bien voulu m'accueillir dans ce Laboratoire et m'a dirigé vers la production de champs pulsés très intenses.

Je remercie vivement Monsieur Aubert, Professeur à l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble, d'avoir accepté de faire partie de ce jury et pour les discussions fructueuses et constructives que j'ai eues avec lui.

Je suis très sensible à l'honneur que me fait Monsieur le Professeur Fert, Directeur du Laboratoire de Physique des Solides de l'Université Paul Sabatier de Toulouse en acceptant de faire partie de ce jury. Qu'il soit assuré de ma profonde reconnaissance.

Je remercie très sincèrement Monsieur Carrara, Professeur à l'Université Paul Sabatier de Toulouse d'avoir accepté de juger ce travail.

Une partie de ce travail est le fruit d'une collaboration étroite avec Messieurs Féron, Hug et Morin. Qu'ils en soient ici très sincèrement remerciés.

Je tiens à remercier vivement Monsieur Lemaire, Maître de Recherches au Centre National de la Recherche Scientifique pour les judicieux conseils qu'il m'a prodigués.

Messieurs Chaussy et Berton du Centre de Recherche sur les Très Basses Températures ont accepté de modifier leur montage afin de réaliser des expériences de chaleur spécifique et d'effet magnétocalorique sur un monocristal. Je leur en suis infiniment reconnaissant.

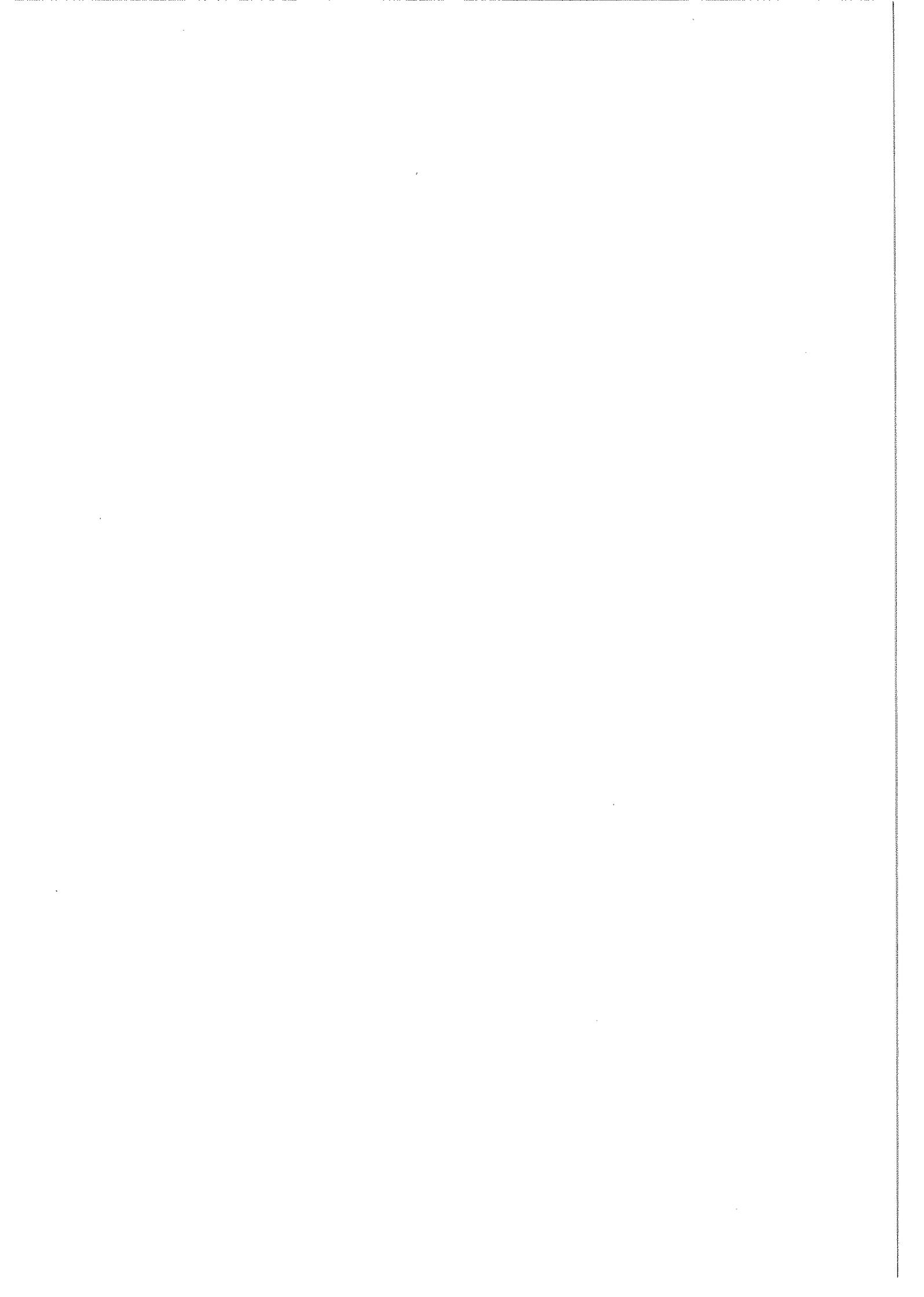
Je remercie spécialement Monsieur Filippi de m'avoir communiqué des résultats avant publication.

Je remercie tout particulièrement Monsieur Laurent qui, avec compétence et dévouement m'a aidé à résoudre les problèmes techniques qui se sont posés. Je tiens encore à exprimer ma gratitude au personnel des Services Techniques Centraux des Laboratoires et du Bureau d'Etudes. Leur aide me fut d'un précieux secours.

Que toute l'équipe informatique du Laboratoire et, particulièrement Madame Roudaut et Monsieur Siegfried, aux compétences toujours disponibles trouvent ici mes bien vifs remerciements.

Pour le soin et la compétence avec laquelle cette thèse a été dactylographiée et éditée, je remercie Mademoiselle Ménéroud, Mesdames Ambrosiano, Dmitrieff et Trévisson.

Je remercie avec une même pensée amicale tous mes camarades du Laboratoire, chercheurs et techniciens et plus particulièrement Messieurs Cros, Deportes et Rebouillat. Enfin, que toutes les personnes qui m'ont conseillé ou aidé et qui n'ont pas été expressément citées ici ne m'en portent pas grief : leur énumération serait trop longue.



T A B L E D E S M A T I È R E S

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
 <u>PREMIÈRE PARTIE :</u> <u>LES MESURES D'AIMANTATION EN CHAMPS MAGNÉTIQUES INTENSES PULSÉS</u>	
 <u>CHAPITRE I : INSTALLATION DE CHAMP MAGNETIQUE PULSE</u>	 3
1 - Généralités	3
2 - Principe et fonctionnement	5
3 - Etude des contraintes et des échauffements	11
3-1 - Fonctionnement réel du circuit	11
3-2 - Contraintes électrodynamiques	13
3-3 - Echauffements et contraintes thermiques	17
4 - Construction des bobines	23
4-1 - Bobines en hélice	23
4-2 - Bobines en fil de cuivre	29
4-3 - Essais des bobines	32
5 - Circuit générateur de courant pulsé	33
5-1 - Batterie de condensateurs	33
5-2 - Circuits de déclenchement	36
6 - Montage général	37

	Pages
<u>CHAPITRE II : MESURES D'AIMANTATION</u>	39
1 - Introduction	39
2 - Appareillage de mesure	39
2-1 - Généralités	39
2-2 - Principe et circuits électriques	41
2-3 - Disposition géométrique des enroulements de mesure	45
2-4 - Carte de champ des bobines pulsées	47
2-5 - Mesure et étalonnage du champ	49
2-6 - Dispositif expérimental	49
2-7 - Cryogénie	52
2-8 - Etalonnage de l'aimantation	53
2-9 - La compensation des bobinages de mesure	56
3 - Influence de la nature transitoire du champ pulsé sur les mesures d'aimantation	59
3-1 - Les courants de Foucault	59
3-2 - Caractère adiabatique des mesures	63
3-3 - Phénomènes d'hystérésis	69

DEUXIÈME PARTIE :LES TRANSITIONS DE PHASE INDUITES PAR UN CHAMP MAGNÉTIQUE INTENSEDANS LES GRENATS FERRIMAGNÉTIQUES DE TERRES RARES

<u>AVANT-PROPOS</u>	73
<u>GENERALITES</u>	75
<u>CHAPITRE III : DIAGRAMME DE PHASE D'UN FERRIMAGNETIQUE ISOTROPE:</u>	
<u>APPLICATION AU GRENAT DE GADOLINIUM</u>	79
1 - Les ferrimagnétiques isotropes à l'approximation du champ moléculaire. Méthode des coefficients généralisés	79
2 - Diagramme de phase d'un ferrimagnétique isotrope à deux sous-réseaux	84
2-1 - La configuration oblique	85
2-2 - Stabilité de la phase oblique	85
2-3 - Limites de la phase oblique	87
2-4 - Construction du diagramme	88
2-5 - Phases colinéaires et nature des transitions	92
2-6 - Influence des coefficients sur le diagramme	94
3 - Diagramme de phase d'un ferrimagnétique isotrope à trois sous-réseaux	94
3-1 - Cas général : la configuration oblique	94
3-2 - Cas particulier de l'aimantation nulle d'un sous-réseau	96
3-3 - Condition d'existence de la configuration oblique	97
3-4 - Propriétés générales	100
4 - Application au ferrite grenat de gadolinium	101
4-1 - Diagramme de phase de $Gd_3Fe_5O_{12}$	101
4-2 - Influence des coefficients de champ moléculaire sur le diagramme de phase	103
4-3 - Etude des aimantations et des susceptibilités	109

	Pages
4-4 - Diagramme de phase expérimental	109
4-5 - Remarque sur la détermination des coefficients d'échange	110
4-6 - Diagramme isentropique et anomalies de chaleurs spécifiques	111
5 - Résonance ferrimagnétique dans les structures non colinéaires	115
<u>CHAPITRE IV : DIAGRAMME DE PHASE D'UN FERRIMAGNETIQUE ANISOTROPE.</u>	
<u>APPLICATION AUX GRENATS D'ERBIUM ET D'HOLMIUM</u>	
1 - Détermination des structures en présence d'interactions anisotropes	117
1-1 - Généralités	117
1-2 - Remarques générales sur le diagramme de phase	120
1-3 - Description phénoménologique de l'anisotropie d'une substance à plusieurs sous-réseaux	121
1-4 - Existence et stabilité des configurations colinéaires	122
2 - Diagramme de phase des ferrites à point de compensation	125
2-1 - Modèle à deux sous-réseaux	125
2-2 - Champ appliqué parallèle à une direction de facile aimantation	126
2-3 - Champ appliqué suivant une direction de difficile aimantation	129
2-4 - Diagrammes réels	131
3 - Application aux ferrites grenats de terres rares	132
3-1 - Approximation à deux sous-réseaux	132
3-2 - Champ d'inversion et champ coercitif	136
3-3 - Diagrammes adiabatiques	137
4 - Diagrammes expérimentaux des ferrites grenats d'erbium et d'holmium	141
4-1 - ErIG	141
4-2 - HoIG	147

5 - Discussion	149
5-1 - HoIG	149
5-2 - ErIG	153
5-3 - GdIG	155
<u>CHAPITRE V : DIAGRAMME DE PHASE DU FERRITE GRENAT D'YTTERBIUM</u>	159
1 - Modèle d'énergie libre pour le ferrite grenat d'ytterbium (YbIG)	159
1-1 - Rappels sur la structure cristalline et magnétique des grenats	159
1-2 - Champ cristallin, interactions d'échange et anisotropie	161
1-3 - Anisotropie macroscopique	164
1-4 - Diagramme théorique du ferrite grenat d'ytterbium (YbIG)	167
2 - Diagrammes expérimentaux de YbIG	171
2-1 - Diagramme expérimental selon la direction [111]	171
2-1-1 - Etude en champs pulsés	171
2-1-2 - Etude en champs magnétiques statiques	174
2-1-3 - Effet magnétocalorique	179
2-1-4 - Les chaleurs spécifiques	185
2-2 - Diagrammes expérimentaux selon les directions [001] et [110]	187
2-2-1 - Etude en champs pulsés	187
2-2-2 - Etude en champs magnétiques statiques	189
3 - Discussion	192
3-1 - Accord qualitatif	192
3-2 - Champ effectif moyen sur les ions terre rare	195
3-3 - Aimantation spontanée et température de compensation	201
3-4 - Détermination des tenseurs g et G	205
<u>CONCLUSION</u>	215

A N N E X E S

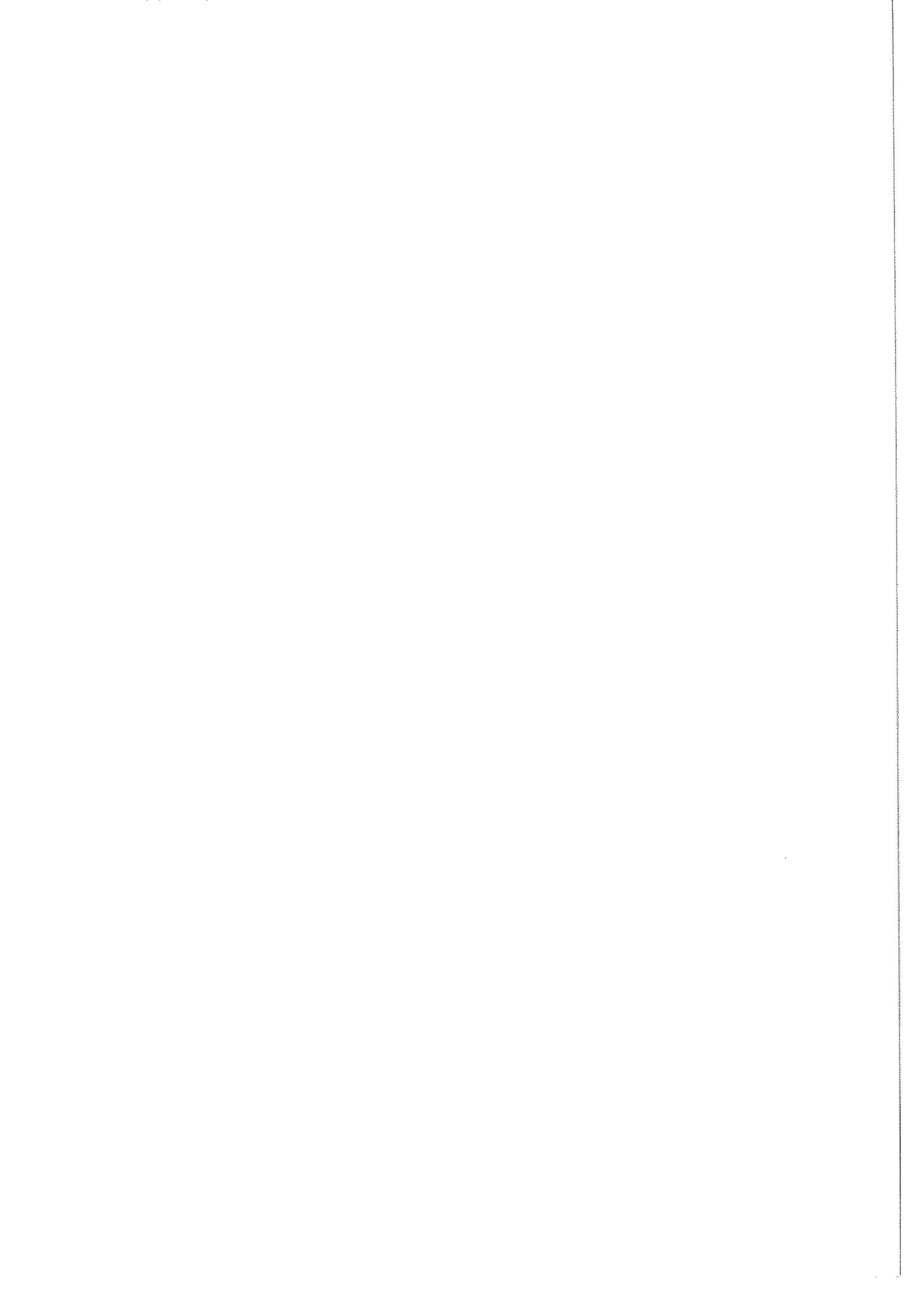
<u>ANNEXE A : CALCUL DES CONTRAINTES DANS LE PLAN MEDIAN D'UN</u>	
<u>BOBINAGE DANS L'HYPOTHESE DU REGIME ELASTIQUE</u>	A1
1 - Contraintes dues aux efforts électrodynamiques	A1
2 - Applications	A3
2-1 - Cas d'une forme Polynomiale	A3
2-2 - Cas d'une densité de courant constante	A3
2-3 - Cas d'un bobinage fretté	A5
3 - Contraintes d'origine thermique	A6
 <u>ANNEXE B : CALCULS DE BOBINAGES</u>	 B1
1 - Configuration du champ à l'intérieur d'une bobine	B1
2 - Calcul de H_0 et de ξ	B3
3 - Champ au voisinage du centre d'un bobinage cylindrique de révolution et symétrique : homogénéité	B4
4 - Coefficient de couplage échantillon-bobinages de mesure	B5
4-1 - Aire totale d'un bobinage vis-à-vis d'un champ extérieur homogène	B5
4-2 - Rapport champ/moment d'un bobinage	B7
4-3 - Coefficient de couplage	B7
4-4 - Système de bobinages compensés	B9
 <u>ANNEXE C : ANALYSE DES OSCILLOGRAMMES</u>	 C1
1 - Correction de distorsion et de linéarité d'un oscilloscope	C1
2 - Analyse des oscillogrammes	C4
 <u>ANNEXE D : EVALUATION DES EFFETS DES COURANTS DE FOUCAULT</u>	 D1

ANNEXE E : PROPRIETES DES IONS DE TERRES RARES DANS LESFERRITES GRENATS

E1

1 - Notations des sites inéquivalents et formules générales	E1
2 - Calcul des Δ_q et des moments dans les phases coaxiales	E4
3 - Développement de l'énergie libre à haute température	E5
4 - Direction de plus facile aimantation à basse température	E9
5 - Calcul des champs d'échange moyens	E9
5-1 - Définition de H_{mo}	E9
5-2 - Définition de H_{mc} à partir de l'effet magnétocalorique	E11
6 - Calcul analytique des grandeurs thermodynamiques	E12

BIBLIOGRAPHIE



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

Les interactions d'échange sont principalement responsables de l'existence d'états magnétiquement ordonnés à des températures relativement élevées. Lorsque ces interactions sont négatives, elles stabilisent une disposition antiparallèle des moments magnétiques atomiques qui présentent alors une structure antiferromagnétique ou ferrimagnétique. L'application d'un champ magnétique, s'il est suffisamment intense, provoque l'établissement d'une structure de type ferromagnétique où tous les moments sont alignés dans le sens du champ. Suivant l'importance relative de l'anisotropie et de l'échange, le changement de structure s'effectue brusquement ou progressivement par l'intermédiaire d'une configuration oblique des moments.

Pour les antiferromagnétiques, ces phénomènes sont relativement bien connus : ils correspondent au métamagnétisme et aux changements d'axe d'antiferromagnétisme. Depuis les premiers travaux de Néel et Gorter, ils ont fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales approfondies qui ont motivé, pour une large part, le développement des champs intenses.

Dans les ferrimagnétiques, de telles structures induites par le champ n'ont été mises en évidence que récemment et les études expérimentales sont encore très limitées. Ceci provient sans doute de difficultés plus grandes : d'une part les champs critiques prévus sont comparables aux champs d'échange qui pour la plupart des ferrites connus sont de l'ordre du mégaOersted ; d'autre part la présence d'ions différents, occupant souvent des sites cristallographiques inéquivalents, rend inextricables les modèles les plus simples.

Une fois de plus, les ferrites de terres rares à structure grenat réunissent un ensemble de conditions favorables qui en font des composés de choix pour cette étude du ferrimagnétisme. La situation particulière des ions terres rares et l'existence d'une tempéra-

ture de compensation laissent prévoir, pour les températures voisines, une certaine analogie de comportement avec les antiferromagnétiques et des champs de transition plus accessibles.

C'est pourquoi nous nous sommes proposés d'approfondir l'étude théorique et expérimentale des diagrammes de phases magnétiques de quelques ferrites grenats de terres rares.

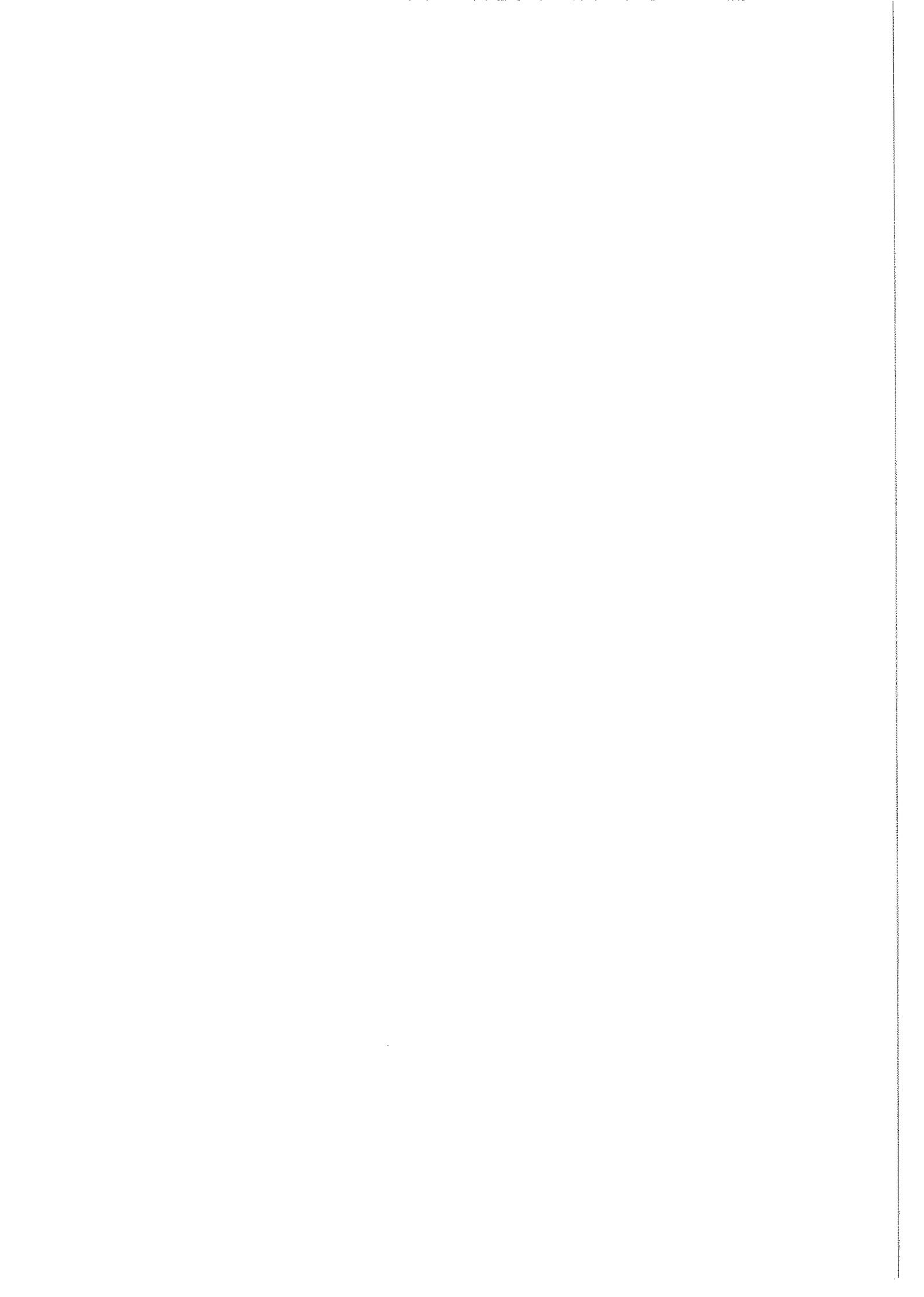
L'exposé de ce travail est divisé en deux parties :

La première partie est consacrée à l'installation de champs magnétiques pulsés que nous avons construite, ainsi qu'aux problèmes rencontrés dans les mesures d'aimantation.

Dans la deuxième partie nous développons tout d'abord la théorie des ferrimagnétiques isotropes. Nous montrons que la structure non colinéaire induite par le champ est unique dans le cas de trois sous-réseaux et qu'il est possible d'en déterminer toutes les propriétés. Le modèle est très bien vérifié en champ intense sur le ferrite grenat de gadolinium.

Ensuite l'introduction de l'anisotropie sous forme phénoménologique permet d'obtenir un bon accord qualitatif dans le cas des grenats d'erbium et d'holmium.

Enfin la situation particulièrement favorable de l'ion ytterbium qui présente un doublet fondamental bien séparé des niveaux supérieurs nous a permis une étude plus détaillée de ce grenat. Les résultats sont comparés avec un modèle de champ effectif qui tient compte de l'anisotropie des énergie Zeeman et d'échange fer-terres rares.



PREMIÈRE PARTIE

LES MESURES D'AIMANTATION EN
CHAMPS MAGNÉTIQUES INTENSES PULSÉS.



CHAPITRE I

INSTALLATION DE CHAMP MAGNÉTIQUE PULSÉ

1 - GENERALITES

Le développement des champs magnétiques pulsés est en étroite relation avec la production des champs magnétiques intenses. Jusqu'aux travaux d'Oersted, les champs obtenus par des aimants naturels ne dépassaient pas quelques centaines d'Oersteds. Depuis la découverte de l'électromagnétisme on sait que la seule méthode pour obtenir des champs plus intenses est de faire passer du courant électrique dans un bobinage. Avec l'introduction d'un noyau de fer doux, les champs peuvent atteindre 30 kOe dans un volume d'une centaine de cm^3 avec une puissance électrique modeste. Ces pièces polaires ne présentent en général plus d'intérêt dès que l'induction doit dépasser notablement la saturation du fer. Dans les bobines sans fer, le champ produit est limité par la puissance dissipée par effet Joule. Au-delà de 50 kOe l'évacuation de puissances thermiques considérables nécessite des installations très coûteuses et il n'a pas encore été possible d'atteindre 250 kOe en régime permanent. Par ailleurs, avec la technologie actuelle des bobines supraconductrices, on est limité à 150 kOe bien qu'il existe des matériaux théoriquement capables de supporter des champs plus intenses.

Pour obtenir des champs supérieurs à 250 kOe, il faut limiter la durée du champ comme l'a fait remarquer Kapitza dès 1924 [1]. De l'énergie est alors emmagasinée sous une forme mécanique, électrique ou magnétique puis transférée pendant un temps très court à un bobinage ; la puissance nécessaire est ainsi fournie de façon économi-

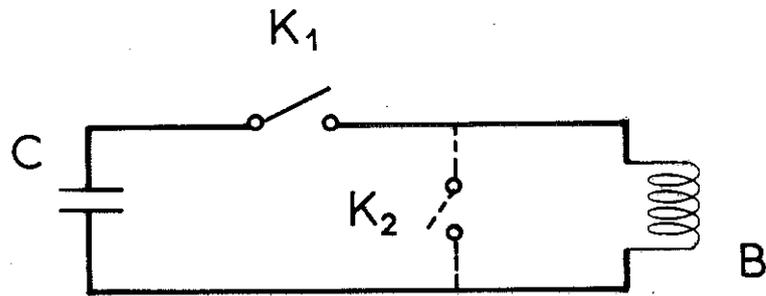


Figure 1 : Schéma de principe

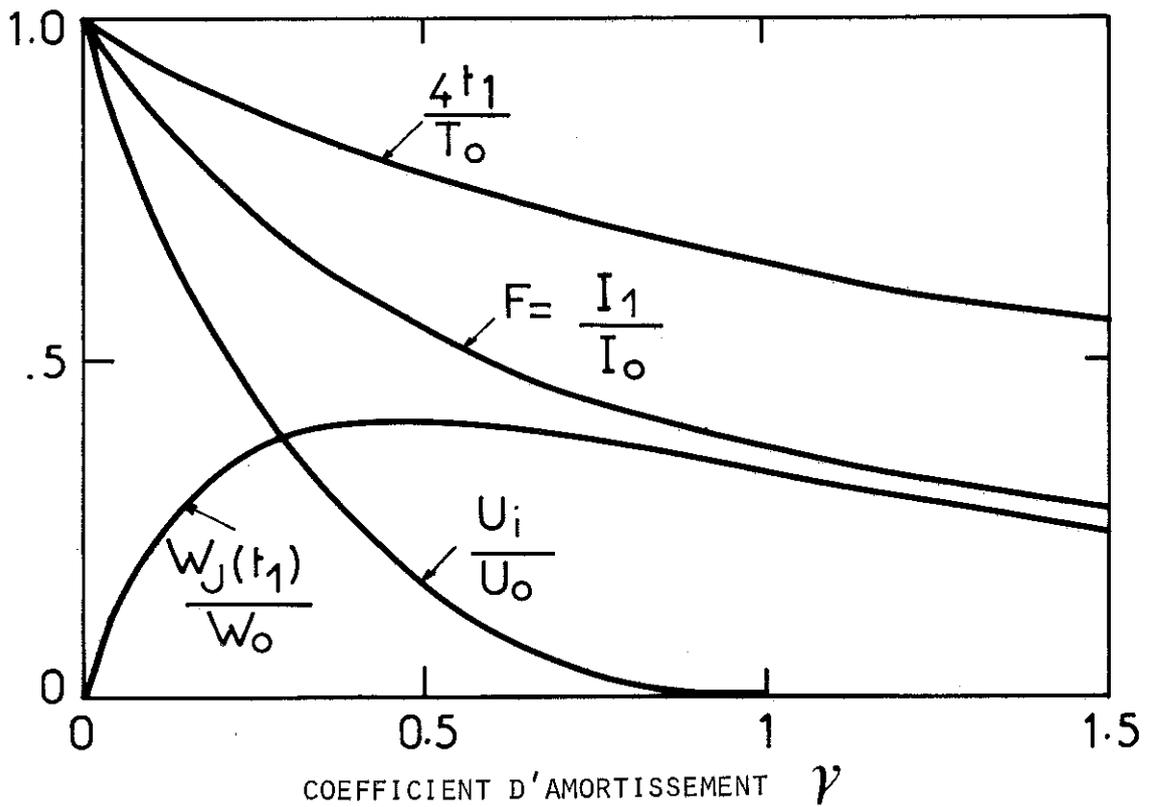


Figure 2 : Principales fonctions de l'amortissement du circuit

que. Depuis que Wall [2] a suggéré l'emploi des condensateurs, cette méthode est devenue la plus courante car, facile à mettre en oeuvre, elle présente un bon rendement énergétique.

L'utilisation de ces champs transitoires ou pulsés est assujettie à deux conditions :

- d'une part la réalisation de bobinages capables de supporter sans dommages des efforts électrodynamiques considérables,
- d'autre part la possibilité d'effectuer les mesures physiques envisagées dans des intervalles de temps très courts.

2 - PRINCIPE ET FONCTIONNEMENT

Rappelons le principe de la méthode qui correspond au schéma de la figure 1 : une bobine B et un banc de condensateurs de capacité C sont connectés par l'intermédiaire d'un interrupteur K_1 et constituent un circuit RLC [3-6]. Le banc est préalablement chargé sous une tension U_0 . L'énergie électrique stockée est :

$$W_0 = \frac{1}{2} C U_0^2 \quad (1)$$

Lorsqu'on ferme K_1 à l'instant initial $t = 0$ le courant $I(t)$ qui s'établit vérifie l'équation différentielle :

$$L \frac{d^2 I}{dt^2} + R \frac{dI}{dt} + \frac{1}{C} I = 0 \quad (2)$$

où L et R sont la self inductance et la résistance du circuit.

Le paramètre principal du circuit est le coefficient d'amortissement :

$$\gamma = \frac{R}{2} \sqrt{\frac{C}{L}} \quad (3)$$

Dans le cas idéal sans pertes ($R = 0$, $\gamma = 0$) la période du circuit oscillant est :

$$T_0 = \frac{2\pi}{\omega_0} = 2\pi\sqrt{LC} \quad (4)$$

et le courant :

$$I(t) = I_0 \sin \omega_0 t \quad (5)$$

où :

$$I_0 = U_0 \sqrt{\frac{C}{L}} = \sqrt{\frac{2W_0}{L}} \quad (6)$$

Le premier maximum de courant I_0 intervient au temps $\frac{T_0}{4}$ quand la tension aux bornes des condensateurs est nulle. Toute l'énergie est transformée sous forme d'énergie magnétique :

$$\frac{1}{2} L I_0^2 = W_0 \quad (7)$$

principalement dans le bobinage B.

En fait le circuit présente toujours une résistance finie R, et suivant que γ est plus petit ou plus grand que 1, le régime de décharge est oscillatoire amorti ou apériodique. Le premier maximum du courant I_1 est obtenu au bout du temps de montée t_1 :

$$I_1 = I_0 F(\gamma) \quad (8)$$

où $F(\gamma)$ est un facteur d'amortissement inférieur à l'unité. La proportion d'énergie transférée sous forme magnétique $W_M = \frac{1}{2} L I_1^2$, est :

$$\frac{W_M}{W_0} = \left(\frac{I_1}{I_0}\right)^2 = F^2 \quad (9)$$

Nous nous intéressons principalement au régime oscillant ($\gamma < 1$) et nous posons $\varphi = \arccos \gamma$. Les expressions de F et $\frac{4t_1}{T_0}$ s'écrivent :

$$F = \exp. (-\varphi \cotg \varphi) \quad (10)$$

$$\frac{4t_1}{T_0} = \frac{2}{\pi} \frac{\varphi}{\sin \varphi} \quad (11)$$

Elles sont représentées sur la figure 2. Le cas $\gamma > 1$ s'obtient en remplaçant systématiquement les fonctions trigonométriques circulaires par les fonctions hyperboliques correspondantes.

Une quantité importante est l'énergie W_J dissipée par effet Joule dans la résistance R, c'est-à-dire pratiquement dans la bobine. Elle s'évalue facilement à l'instant t_1 en remarquant que les condensateurs restent encore chargés sous une tension RI_1 et que l'énergie totale du circuit se conserve :

$$W_0 = W_J + \frac{1}{2} L I_1^2 + \frac{1}{2} C (RI_1)^2 \quad (12)$$

soit :

$$\frac{W_J(t_1)}{W_0} = 1 - (1 + 4\gamma^2)F^2. \quad (13)$$

On remarque sur la figure 2 que ce rapport de l'énergie dissipée à l'énergie totale reste inférieur à 0,405 à l'instant t_1 .

Un autre paramètre important est le facteur de tension inverse. Si le circuit est laissé à lui-même, le courant s'annule périodiquement aux instants $\frac{T}{2}$, T , $\frac{3T}{2}$, etc... qui correspondent à des maxima et minima de la tension U aux bornes de C .

Le premier minimum, pour $t = \frac{T}{2}$ est :

$$U_i = - U_o \exp(- \Pi \cotg \varphi) \quad (14)$$

Lorsque la tension entre les armatures des condensateurs passe de U_o à U_i , celles-ci sont soumises à des contraintes d'autant plus grandes que le rapport $\left| \frac{U_i}{U_o} \right|$ est voisin de 1, donc que γ est voisin de 0. Ce rapport détermine la durée de vie des condensateurs, c'est-à-dire le nombre de décharges admissibles pour la tension nominale. Il y a souvent intérêt à introduire dans le circuit un deuxième interrupteur K_2 qui permet de court-circuiter la bobine sur elle-même à un instant voisin de t_1 . Ce court-circuit passif est appelé "crow-bar" dans la littérature anglo-saxonne. Il réduit considérablement le facteur de tension inverse et surtout ralentit la décroissance du champ lorsque la constante de temps $\frac{L}{R}$ de la bobine est supérieure au temps de montée t_1 du circuit. Toute l'énergie W_o est finalement dissipée par effet Joule, comme lorsqu'on laisse toutes les oscillations du courant s'amortir.

Une variante du circuit consiste à remplacer l'interrupteur K_1 par un système de déclenchement unidirectionnel du type ignitron. Ceci revient à ouvrir le circuit au temps $\frac{T}{2}$ et diminue l'énergie totale dissipée dans la bobine. En effet :

$$W_J\left(\frac{T}{2}\right) = \left(1 - \left|\frac{U_i}{U_o}\right|^2\right) W_o \quad (15)$$

L'échauffement des bobines est réduit ; elles peuvent fonctionner directement dans l'hélium liquide [7,8].

Un dernier régime de fonctionnement est obtenu en introduisant un crow-bar actif, c'est-à-dire en couplant le circuit à un deuxième banc de condensateurs par l'intermédiaire d'un transformateur.

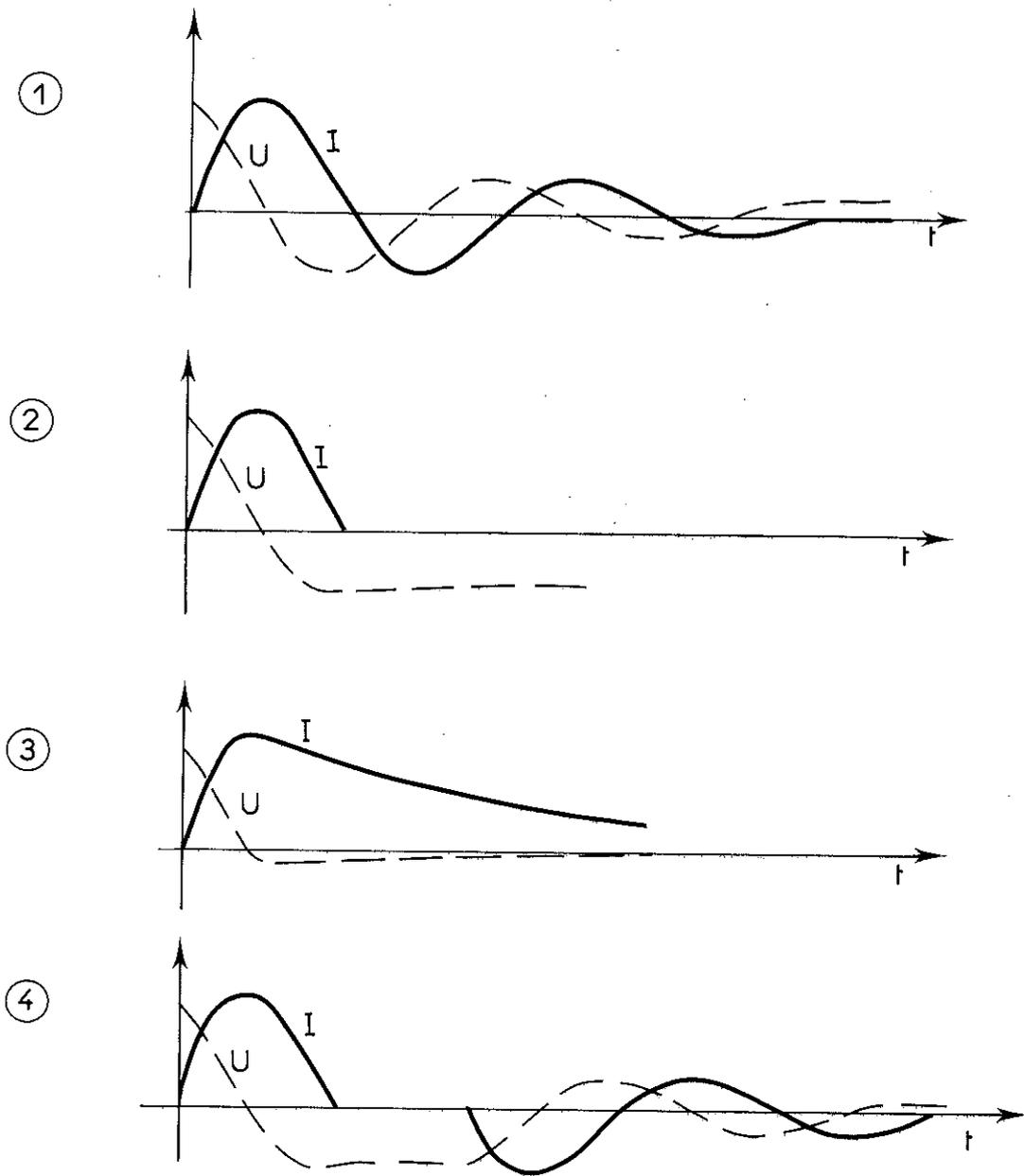


Figure 3 : Modes de fonctionnement du circuit

- ① interrupteur mécanique
- ② ignitron principal
- ③ avec "crow bar"
- ④ ignitron principal, puis interrupteur mécanique

Une énergie supplémentaire est ainsi injectée dans le circuit principal à un taux que l'on peut asservir. Le deuxième circuit, de période plus courte, est régulé par un thyatron de puissance. La tension aux bornes de la bobine peut alors suivre une loi donnée, par exemple, rester nulle ou constante selon que l'on désire un palier de champ [9] ou un taux de montée uniforme.

L'installation que nous avons construite pour les mesures d'aimantation correspond au schéma de la figure 1 et peut fonctionner selon les différents modes décrits précédemment et résumés sur la figure 3.

Choix des paramètres du circuit

La batterie de condensateurs constitue le plus gros effort financier de l'installation. Son prix est proportionnel à l'énergie disponible dont l'évaluation est basée sur la remarque suivante [10] : Le champ produit par un solénoïde épais de longueur finie n'a une valeur notable que dans le cylindre intérieur. L'énergie magnétique créée dans tout l'espace est donc voisine de la valeur $\frac{B^2}{2\mu_0} V$, où B est l'induction au centre et V le volume intérieur. En fait,

$$B = B_0 \cdot S \cdot F \quad (16)$$

$$\text{où } B_0 = \left(\frac{2\mu_0 W_0}{V} \right)^{1/2} \quad (17)$$

S est un facteur qui tient compte de la géométrie de la bobine. Il a été calculé et tabulé par Champion [11] ; pour des bobines usuelles, il est voisin de 0,6. Compte-tenu d'un facteur d'amortissement $F(\gamma) \sim 0,8$, l'induction équivalente B_0 est sensiblement le double de B. L'évaluation de W_0 se fait très rapidement sur le nomogramme de la figure 4 qui traduit la relation (17) [8]. Pour obtenir 500 kOe dans un volume de 10 cm^3 , il faut stocker une énergie de l'ordre de 50 kJ. La combinaison capacité, tension de charge la plus favorable dépend du type de bobine utilisée. Les bobines en fil de cuivre sont limitées pour de tels volumes vers 350 kOe [5,12-16] et ne sont vraiment fiables qu'au-dessous de 300 kOe. L'obstacle principal est leur mauvaise tenue mécanique. Nous avons préféré des bobines réalisées par usinage dans la masse d'un matériau plus résistant, le bronze au béryllium, qui permet théoriquement d'atteindre 600 à 700 kOe [17-20] et dont l'étude avait été commencée dans notre laboratoire [21,22]. La self-inductance

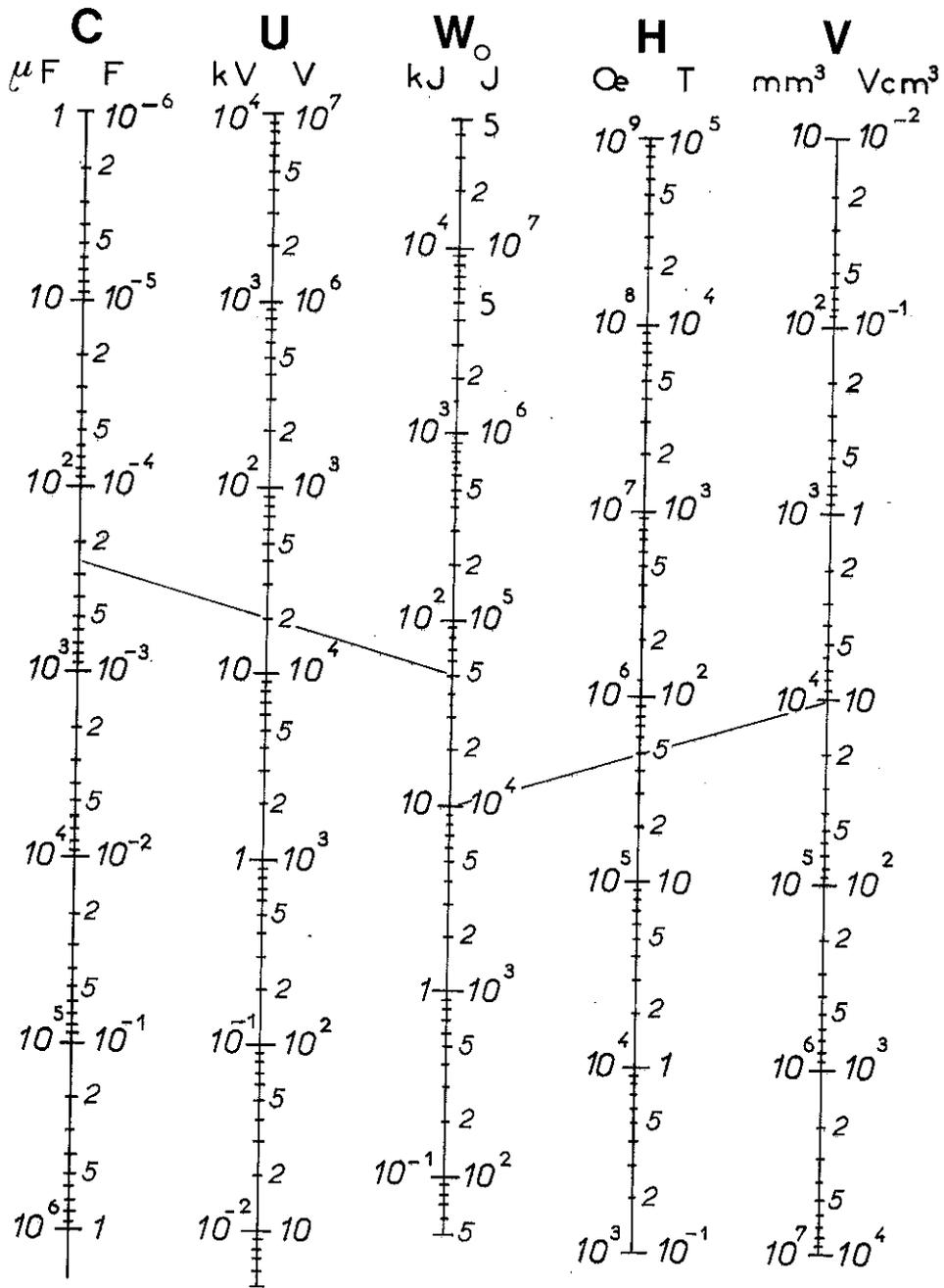


Figure 4 : Nomogramme de Cotti

de telles bobines étant faible, pour que le transfert d'énergie soit suffisamment bon, la capacité doit être faible également, comme le montre l'expression (3) du coefficient d'amortissement. Nous avons donc choisi une batterie de faible capacité ($C = 240 \mu\text{F}$) et de tension nominale élevée ($U_0 = 20 \text{ kV}$).

3 - ETUDE DES CONTRAINTES ET DES ECHAUFFEMENTS

3-1 - Fonctionnement réel du circuit

Plusieurs phénomènes physiques viennent compliquer les équations de fonctionnement du circuit réel. Le champ magnétique ne pénètre pas instantanément dans un conducteur. Il obéit, d'après la théorie de Maxwell, à une équation de diffusion analogue à celle de la chaleur. La diffusivité magnétique est définie par :

$$D_H = \frac{\rho}{\mu} \quad (18)$$

où μ et ρ sont respectivement la perméabilité magnétique et la résistivité électrique du milieu.

Pour un régime sinusoïdal établi de pulsation ω , la plus grande partie des courants électriques est limitée à une couche d'épaisseur :

$$\delta = \sqrt{\frac{2D_H}{\omega}} \quad (19)$$

C'est l'effet de peau classique : la self-inductance du circuit est diminuée alors que la résistance et les pertes sont augmentées par rapport à leurs valeurs statiques. La durée d'une décharge étant très courte, la chaleur dégagée par effet Joule n'a pas le temps d'être évacuée. L'échauffement résultant modifie les caractéristiques du conducteur et notamment sa résistivité. Une autre cause de variation des paramètres du circuit est le déplacement des conducteurs sous l'effet des efforts électrodynamiques.

Dans le cas des bobines en hélice et d'un régime oscillatoire, l'expérience montre que la loi de variation du courant en fonction du temps $I(t)$ s'écarte peu de celle d'un circuit RLC dont les paramètres restent constants. En particulier les zéros et les maxima du courant permettent de définir une pseudo-période moyenne et un coefficient d'amortissement moyen avec des écarts relatifs inférieurs

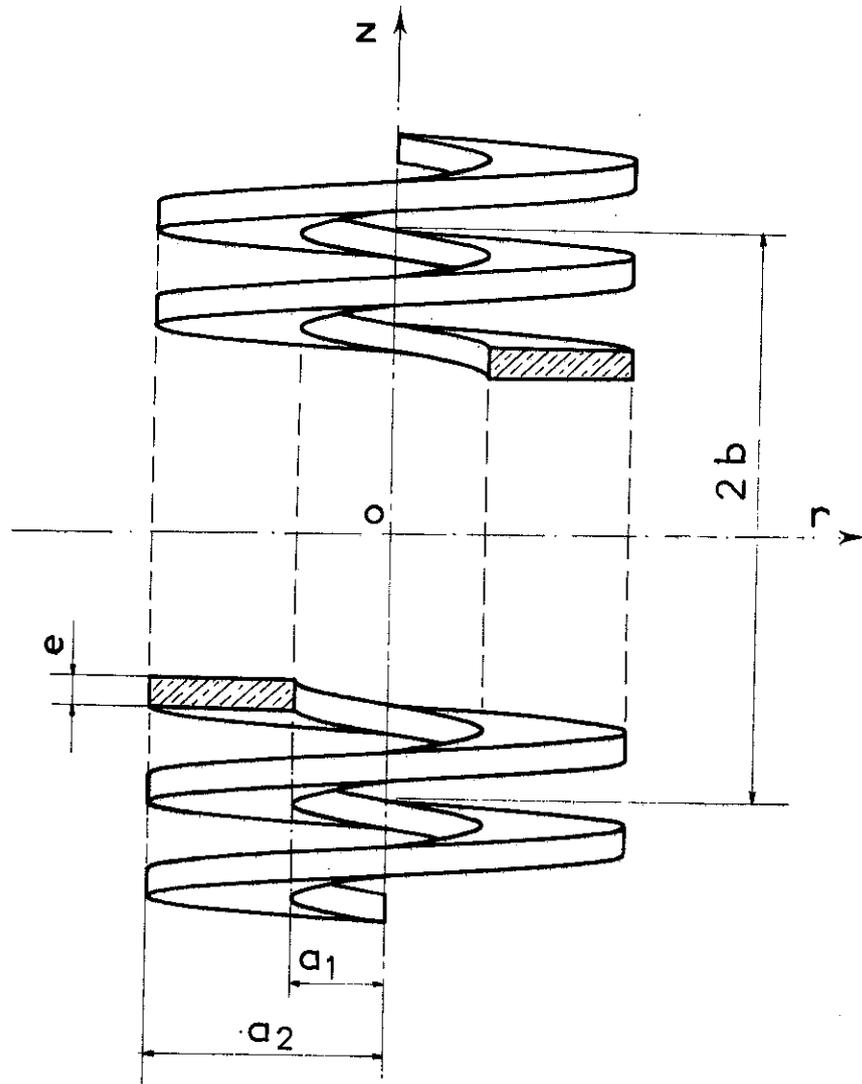


Figure 5 : Bobine en hélice

à 5 %. Par ailleurs, la variation du champ maximum mesuré au centre de la bobine en fonction de la tension de charge U des condensateurs, est linéaire jusqu'à 350 kOe et s'infléchit ensuite légèrement ; le défaut de linéarité ne dépasse pas 4 % à 500 kOe.

Pour étudier le fonctionnement des bobines, nous pouvons supposer que la variation du courant I suit une loi de décharge normale et que le rapport H/I est constant.

3-2 - Contraintes électrodynamiques

Considérons un enroulement constitué par une hélice plate en cuprobéryllium et représenté sur la figure 5. La répartition de la densité de courant en régime statique est celle d'une bobine de Bitter; elle varie comme $\frac{1}{r}$ où r est la distance à l'axe :

$$j(r) = j(a_1) \frac{a_1}{r} \quad (20)$$

Pour un régime de pulsation ω , on se ramène à un problème de révolution cylindrique en assimilant l'hélice à un milieu conducteur continu traversé par un trou cylindrique de diamètre $2a_1$. Si le diamètre extérieur et la longueur sont supposés infinis les solutions du régime sinusoïdal établi s'écrivent à l'aide de fonctions de Bessel de la variable $\sqrt{2} \frac{r}{\delta}$, où δ est l'épaisseur de peau classique [13,21-24]. La concentration des lignes de courant sur le rayon intérieur est renforcée et augmente avec ω . Lorsqu'on s'éloigne du bord intérieur, le module décroît exponentiellement et le déphasage avec le champ tend vers $\frac{\pi}{4}$, comme dans le cas d'un demi-espace conducteur. Cependant ce résultat n'est vérifié qu'après quelques oscillations, or l'instant qui nous préoccupe pour le calcul des contraintes et des échauffements est celui où le champ est maximum ($\frac{\pi}{4}$).

Pour évaluer l'influence du régime transitoire, un calcul numérique dans le cas du demi-espace conducteur montre qu'aux instants $T/4$ et $T/2$, l'épaisseur de peau est respectivement $0,78 \delta$ et $0,71 \delta$; le champ et la densité de courant ne s'annulent en aucun point, contrairement au régime stationnaire établi [25]. Ces résultats nous conduisent à une approximation plus réaliste : la variation de la densité de courant est décrite par une loi de la forme :

$$j(r) = j(a_1) \left(\frac{a_1}{r}\right)^n \quad (21)$$

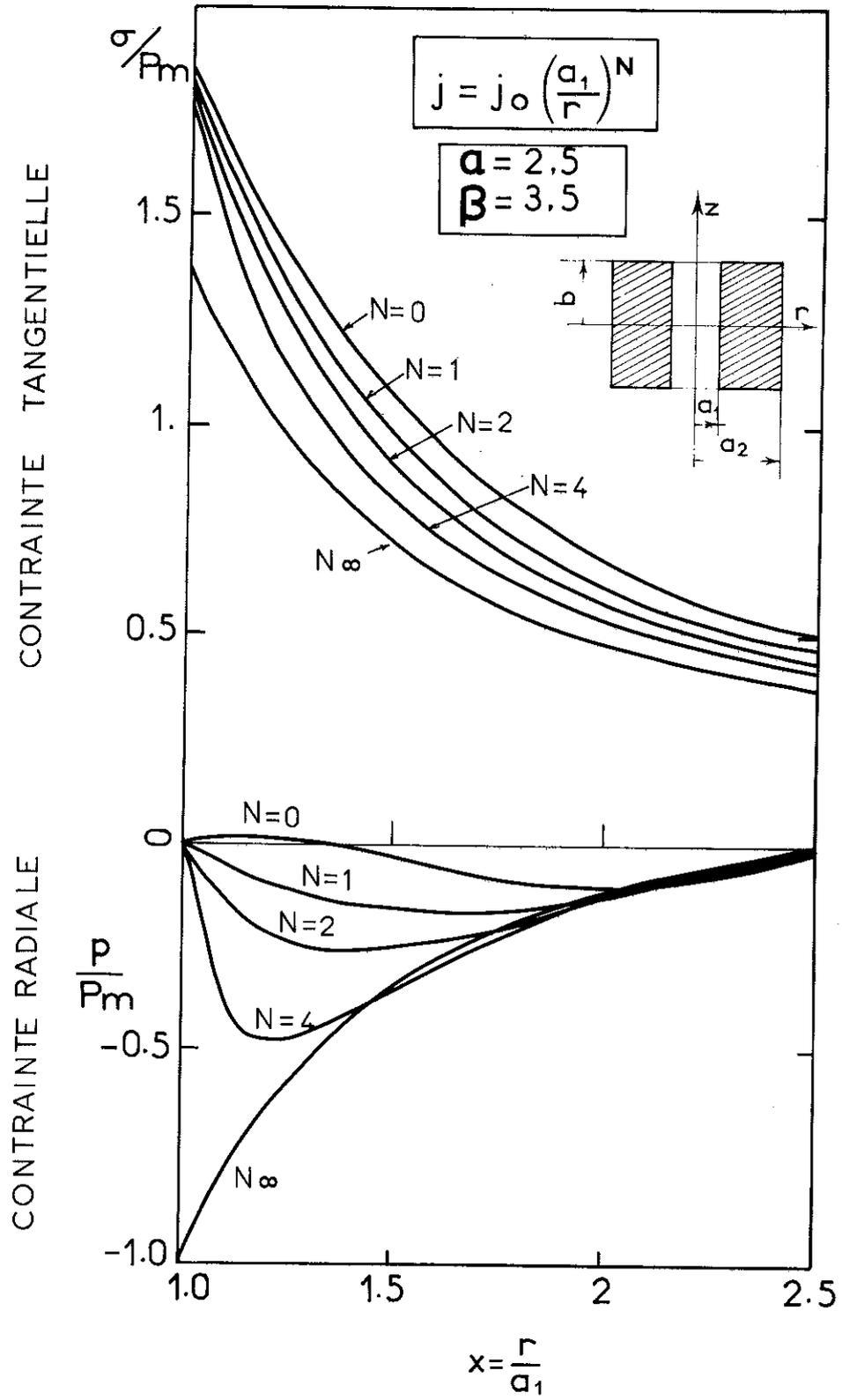


Figure 6 : Contraintes dans une bobine avec $j = j_0 \frac{a_1}{r}^n$

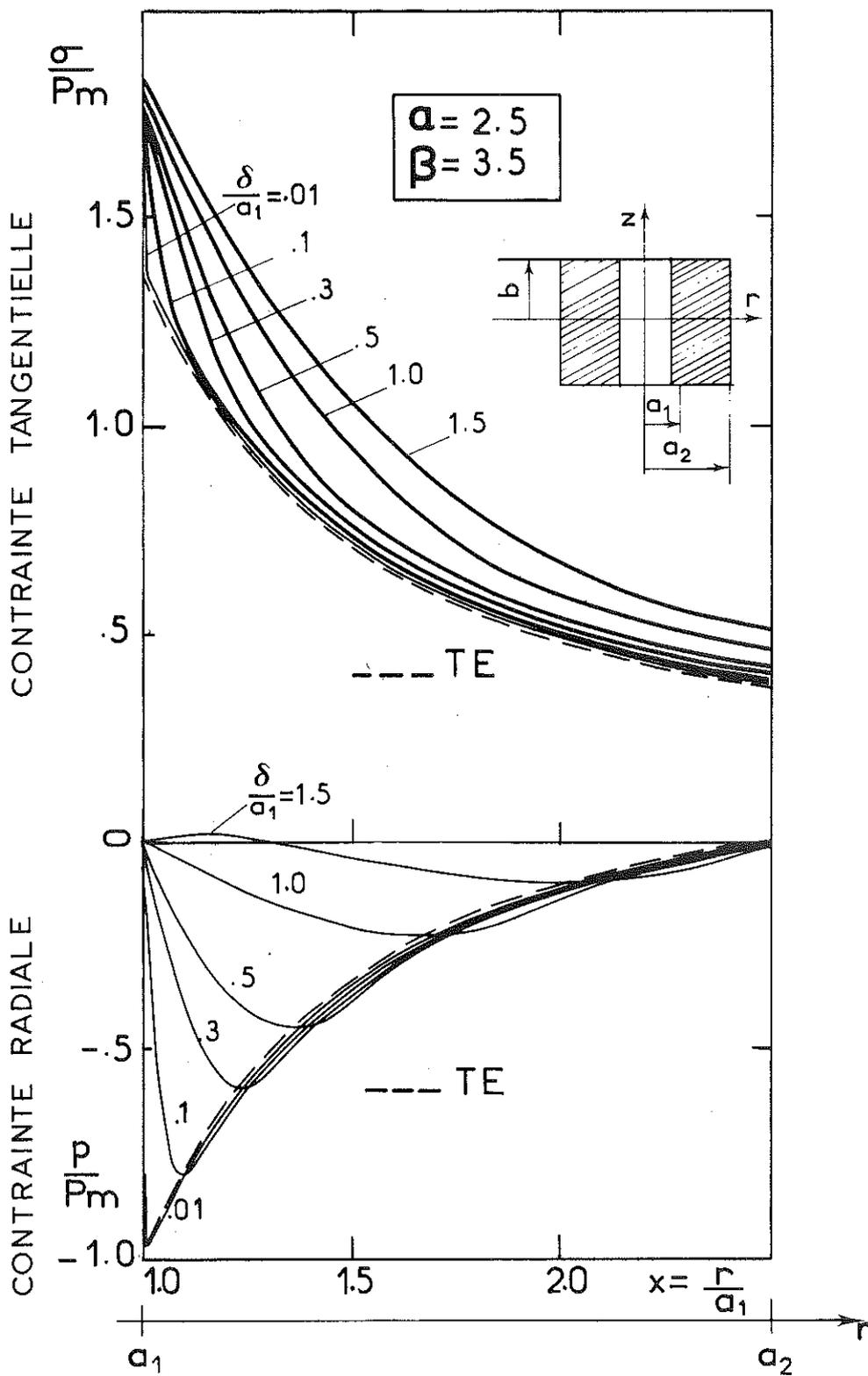


Figure 7 : Contrainte dans une bobine (approximation δ)

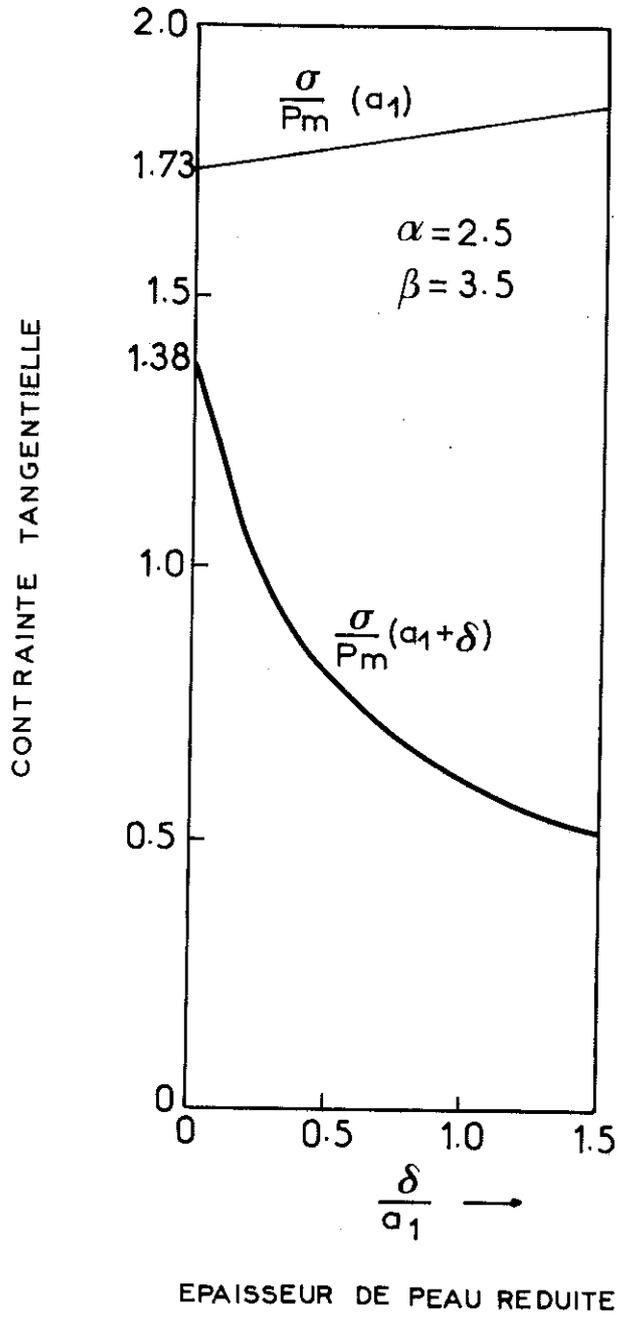


Figure 8 : Contrainte sur le rayon intérieur en fonction de l'épaisseur de peau δ

où n est un exposant variant de 1 à 5 dans le domaine de fréquence considéré. Cette répartition a l'avantage de tenir compte des conditions aux limites sur le rayon extérieur du conducteur et de se prêter facilement aux calculs. Cros [22] a montré qu'elle interprète bien les résultats expérimentaux quant aux valeurs du champ produit, de la self et de la résistance de l'enroulement. Nous l'avons utilisée pour calculer les contraintes radiales et tangentielles dans le plan médian du bobinage. Pour une géométrie de bobine donnée, nous avons fait varier n pour étudier la dépendance des contraintes avec la fréquence. Pour $n = 0$ et $n = 1$ on retrouve les résultats relatifs à une densité de courant constante et à une répartition du type Bitter. Les résultats sont comparés sur les figures 6 et 9 avec ceux de l'Approximation courante du Tube Epais (A.T.E.) soumis à une pression "magnétique" $P_m = \frac{1}{2} \mu_0 H^2$. Le détail des calculs est donné dans l'annexe A. Lorsque n augmente, la contrainte tangentielle dans les premières couches de la bobine décroît rapidement alors que dans la partie externe sa variation est analogue à celle dans un tube épais (A.T.E.).

Pour mieux tenir compte de l'effet de peau, supposons que la densité de courant soit nulle partout sauf dans la couche comprise entre les rayons a_1 et $a_1 + \delta$, où elle a une valeur constante. En faisant tendre δ vers zéro, c'est-à-dire la pulsation ω (et l'exposant n) vers l'infini, nous obtenons le résultat suivant : la contrainte tangentielle sur le rayon intérieur $\sigma(a_1)$ reste supérieure d'environ 25 % à celle de l'approximation du tube épais (figures 7 et 8) ; elle décroît très rapidement dans la mince couche qui transporte le courant pour suivre ensuite la loi de l'A.T.E. Un champ de 500 kOe est équivalent à une pression magnétique P_m de 100 kg/mm^2 (10.000 atm) ; la contrainte maximum dans la bobine étudiée est supérieure à 173 kg/mm^2 (limite haute fréquence) ; elle dépasse la charge de rupture la plus élevée des alliages cuprobéryllium ($\sim 165 \text{ kg/mm}^2$, cf. figure 11).

En fait, nous allons montrer que les échauffements provoquent des contraintes du même ordre de grandeur mais de signe contraire sur le bord intérieur.

3-3 - Echauffements et contraintes thermiques

Si l'on suppose que le dégagement de chaleur se fait sans diffusion, l'élévation de température θ en chaque point est donnée par :

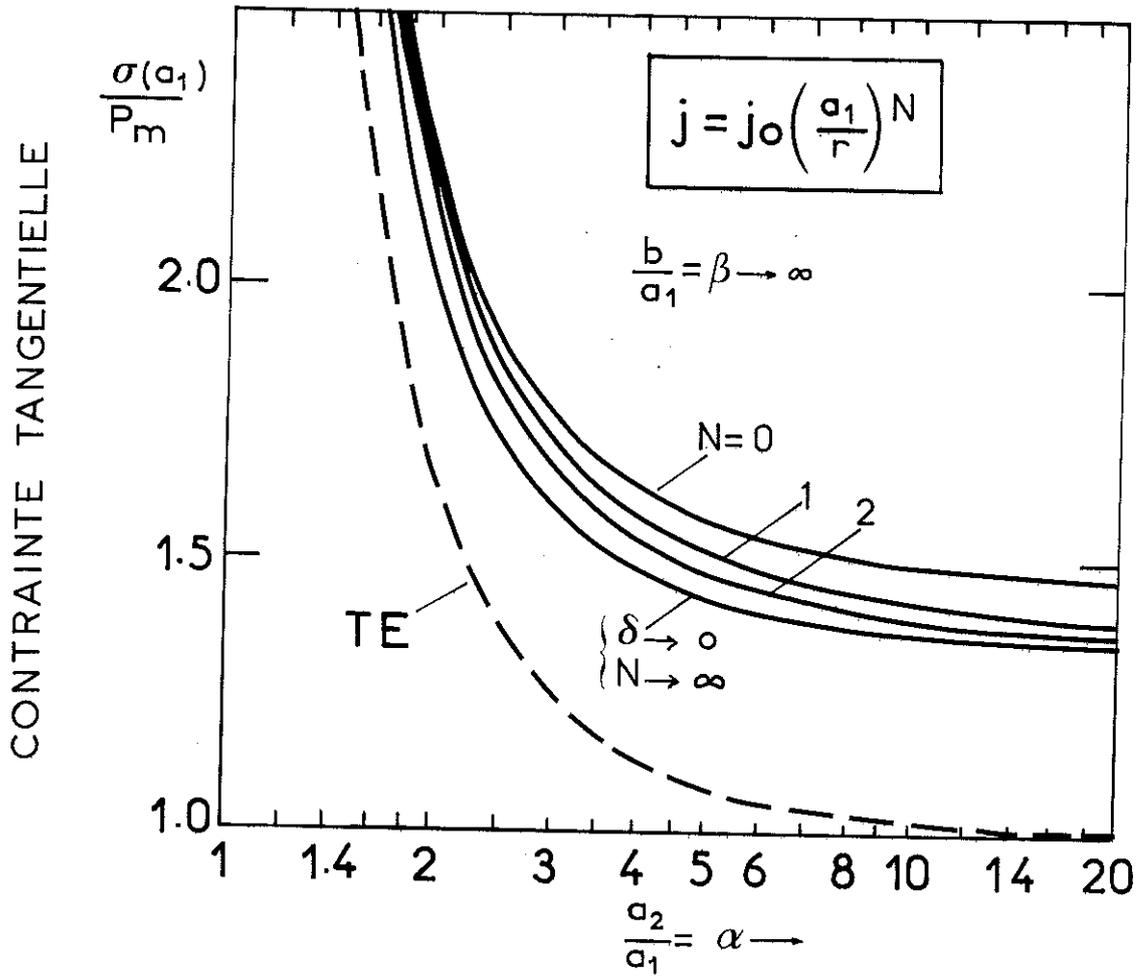


Figure 9 : Contrainte sur le rayon intérieur d'un solénoïde en fonction de α

$$\theta(r, t) = \frac{\rho}{c_v} \int_0^t j^2(r, t) dt, \quad (22)$$

où c_v est la capacité calorifique par unité de volume.

Lorsque l'épaisseur de peau classique δ est suffisamment petite devant le rayon intérieur a_1 , un premier calcul montre que les échauffements moyens sont indépendants de la valeur de δ (et donc de ω). En effet, pour un solénoïde long, la densité de courant moyenne j dans l'épaisseur de peau varie comme $\frac{H}{\delta}$ et, compte tenu de (18) et (19) nous avons :

$$\theta(a_1 + \frac{\delta}{2}, t) \sim \frac{1}{c_v} \frac{\rho}{\delta^2} \int_0^t H^2(t) dt = \frac{\mu_0}{2c_v} \frac{1}{\omega} \int_0^t H^2(t) dt. \quad (23)$$

Avec une forme sinusoïdale $H = H_0 \sin \omega t$, la température moyenne dans l'épaisseur $\frac{\delta}{2}$ quand le champ est maximum est de l'ordre de :

$$\theta(a_1 + \frac{\delta}{2}, \frac{T}{4}) \sim \frac{\pi}{4} \theta_H \quad (24)$$

où θ_H est la température définie par :

$$\theta_H = \frac{\mu_0 H_0^2}{2c_v} \quad (25)$$

Une évaluation de la température à la surface interne de la bobine est obtenue dans l'hypothèse du demi-espace conducteur, car le rayon de courbure a_1 est supérieur à δ . Sur la surface on a [26] :

$$\theta(a_1, \frac{T}{4}) = 1,63 \theta_H \quad (26)$$

$$\theta(a_1, \frac{T}{2}) = 2,18 \theta_H \quad (27)$$

alors qu'en moyenne sur l'épaisseur de peau ($0,78 \delta$) à l'instant $\frac{T}{4}$ on retrouve un résultat très voisin de (24) :

$$\theta(a_1 + 0,78 \delta, \frac{T}{4}) = 0,82 \theta_H \quad (28)$$

Un champ de 500 kOe correspond à une densité d'énergie magnétique de 10^3 J/cm^3 ; θ_H vaut alors 300 K en prenant pour valeur de la capacité calorifique c_v celle du Cu-Be à l'ambiante : $3,4 \text{ J/cm}^3/\text{K}$. L'échauffement

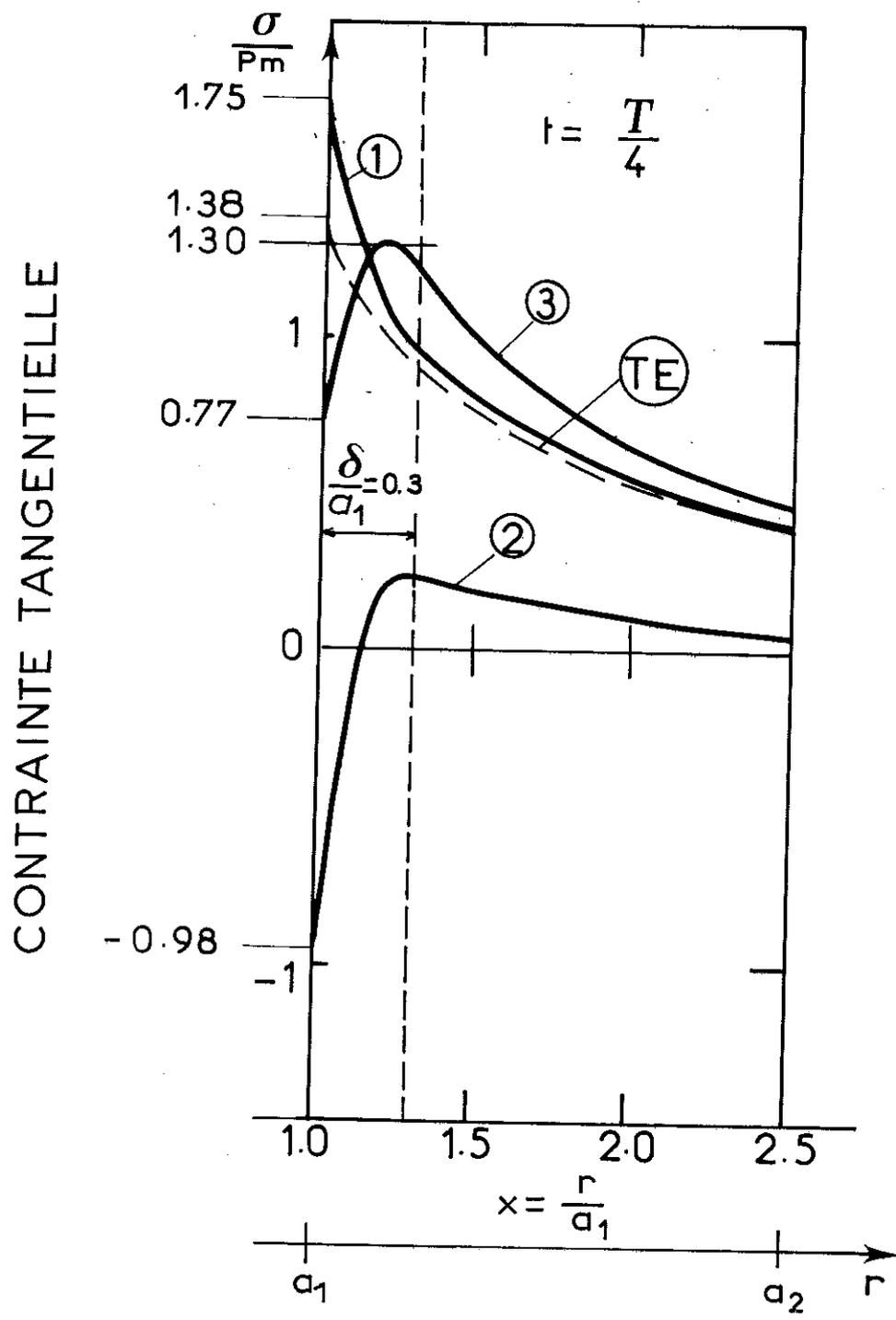


Figure 10 : Contrainte tangentielle

1 - due aux efforts électrodynamiques

2 - due aux échauffements

3 - totale

TE = approximation du tube épais soumis à la pression P_m

à la surface atteint environ 500 K à l'instant $\frac{T}{4}$. Ces résultats sont peu modifiés par l'augmentation de la résistivité ρ avec la température, puisque le rapport $\frac{\rho}{\delta^2}$ est constant, et l'erreur commise sur θ , en négligeant la variation thermique de la chaleur spécifique, est inférieure à quelques dizaines de degrés.

La contrainte tangentielle qui résulte de l'apparition d'une élévation de température sur le rayon intérieur a_1 d'un tube est donnée [27,30] par :

$$\sigma = - \alpha_d \theta E \quad (29)$$

où α_d est le coefficient de dilatation linéaire et E le module d'Young (on néglige les contraintes suivant l'axe z en supposant les spires libres de se dilater dans cette direction).

Soit, en rapportant à la pression magnétique

$$\frac{\sigma}{P_m} = - \frac{\alpha_d E \theta}{c_v \theta_H} \sim - 0,6 \cdot \frac{\theta}{\theta_H} \quad (30)$$

$$(\alpha_d = 17 \cdot 10^{-6} / K ; E = 1,2 \cdot 10^5 \text{ J/cm}^3 ; c_v = 3,4 \text{ J/cm}^3 / K).$$

Nous avons calculé la répartition des contraintes tangentielles d'origine thermique et déduit la distribution globale au moment du champ maximum pour une épaisseur de peau $\delta = 0,3 a_1$ (figure 10). La contrainte maximum est repoussée à l'intérieur du conducteur à une distance de l'ordre de $\frac{\delta}{2}$. Elle est inférieure à celle calculée dans l'approximation du tube épais soumis à la pression magnétique P_m . Les bobines en hélice sont donc capables de supporter sans frettage des champs de 600 kOe.

Pour évaluer les échauffements aux instants ultérieurs $\frac{T}{2}$, T, etc..., nous devons tenir compte de l'amortissement du circuit. L'énergie $W_{JB}(\infty)$ dissipée par effet Joule dans la bobine après amortissement complet du courant est d'après (13) :

$$W_{JB}(\infty) \sim \frac{W_{JB}(t_1)}{0,4} \quad (31)$$

L'échauffement final résultant est donc environ 2,5 fois plus grand que celui à l'instant $t_1 \neq \frac{T}{4}$. L'effet de la conductivité thermique

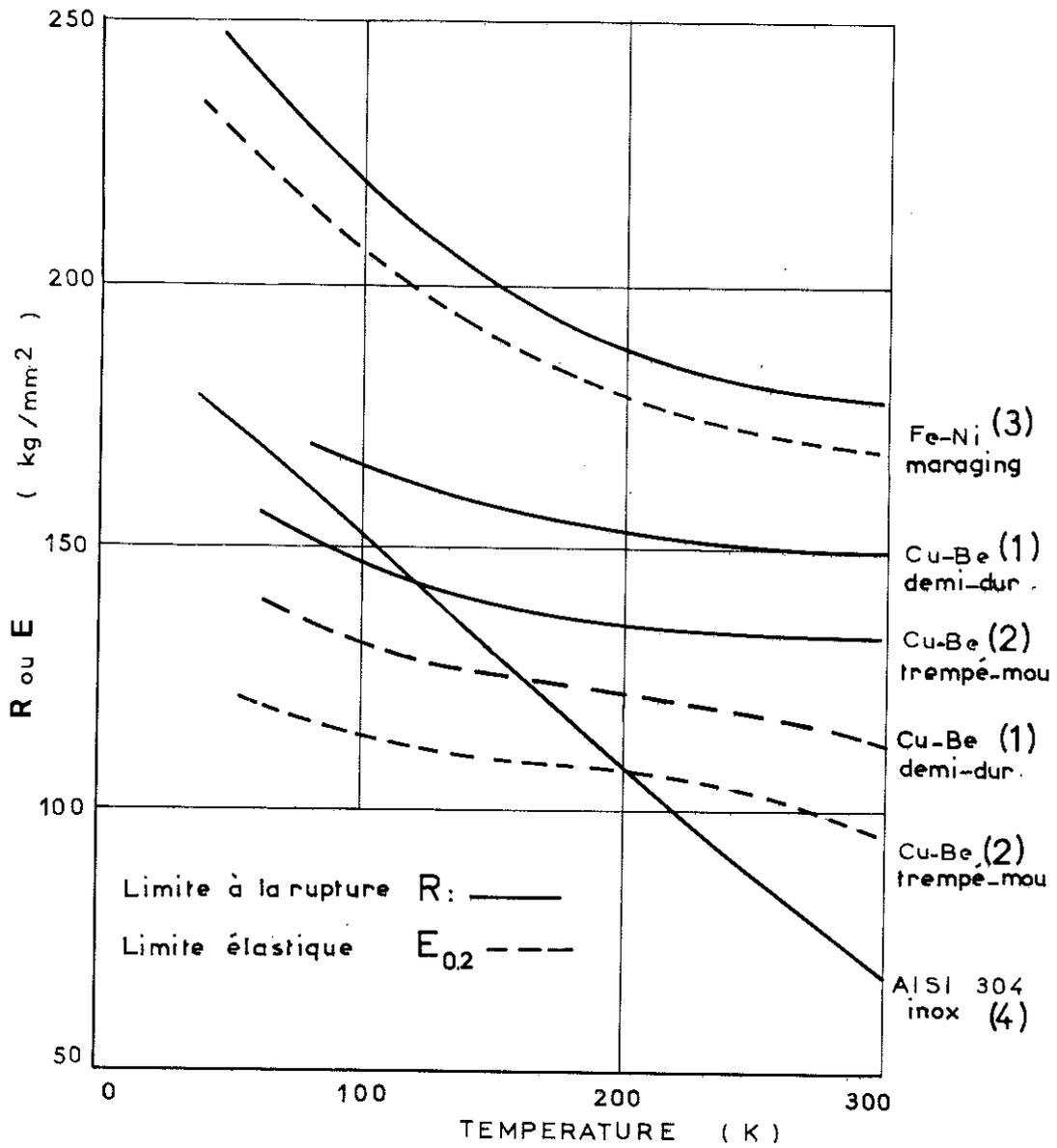


Figure 11 : Propriétés mécaniques des alliages à basses températures d'après :

- (1) documentation Berylco
- (2) documentation Pechiney
- (3) documentation aciéries d'Imphy (CAFL) (nuance "Marphy 1)
- (4) Applied Cryogenic Engineering (Wiley, 1962) p. 48

réduit d'environ 20 % la valeur des températures maximales car elles sont associées à des gradients thermiques très importants.

La température de surface en fin de décharge s'élève donc à $3\theta_H$ environ (c'est-à-dire 900 K pour 500 kOe), et ne subsiste que durant quelques millisecondes. Ces évaluations sont en accord avec les résultats de Foner et Fisher [19] : ils observent un début de fusion du bord intérieur des spires à partir de 550 kOe, indiquant que la température de 1100°C est largement atteinte, mais leurs bobines ne sont pas refroidies. Pour abaisser la température maximum nous avons plongé nos bobines dans l'azote liquide ; la température initiale est abaissée de 200 K et les propriétés mécaniques sont améliorées (figure 11). L'attente nécessaire entre deux décharges pour éviter des effets cumulatifs est réduite à quelques minutes. Malgré cela, la limite élastique du Cu-Be peut être dépassée là où la contrainte est maximum, c'est-à-dire à une profondeur de l'ordre de $\frac{\delta}{2}$. Dans le cas du Cu-Be, à l'état revenu sur trempé mou la charge de rupture est atteinte : nous observons des criques internes à 1 mm environ du bord intérieur des spires centrales, après destruction de la bobine à 400 kOe (figure 12).

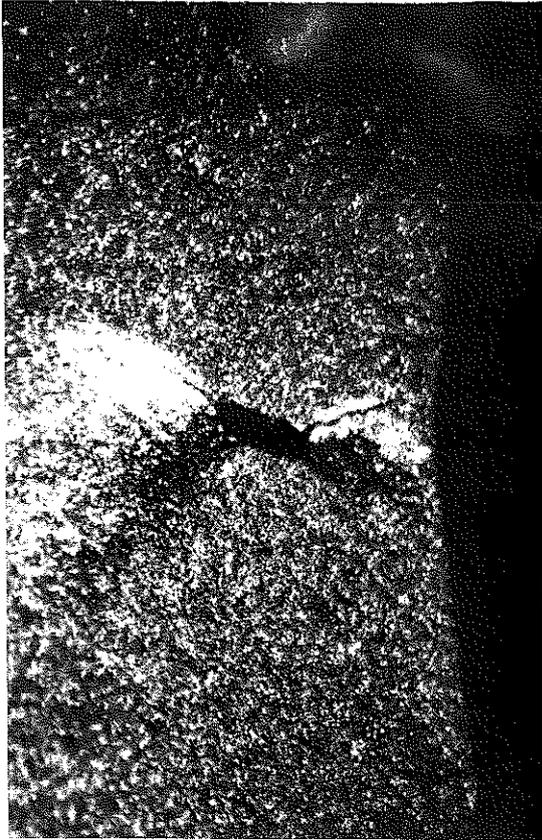
En fin de compte, ce sont les échauffements qui limitent inévitablement la fiabilité et le champ maximum produit par les bobines en hélice. Au-delà de 550 kOe, il faut admettre une destruction systématique de la bobine à chaque fois.

4 - CONSTRUCTION DES BOBINES

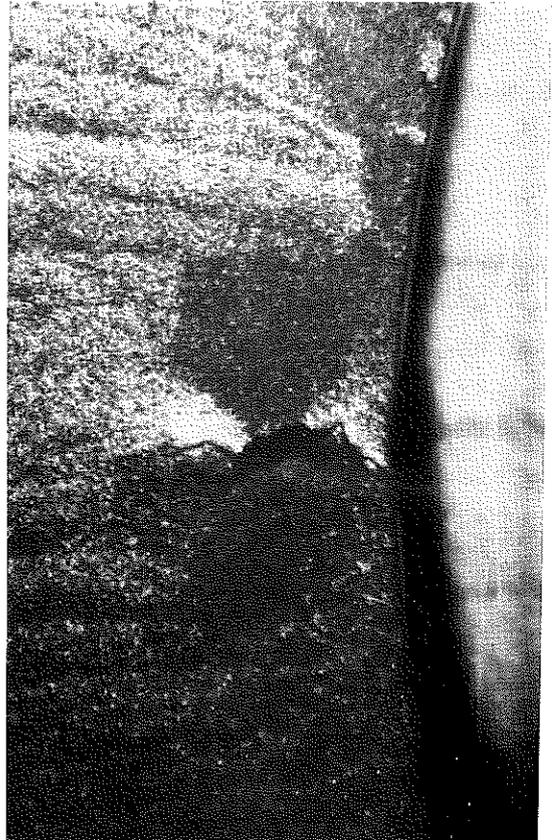
4-1 - Bobines en hélice

Elles sont réalisées à partir d'un cylindre massif de cuprobéryllium (Cu-Be) à l'état trempé : usinage d'une rainure hélicoïdale suivi d'un perçage au diamètre intérieur voulu (figure 5). Un revenu de durcissement structural de 3 h à 320°C donne à l'alliage ses propriétés mécaniques optimales.

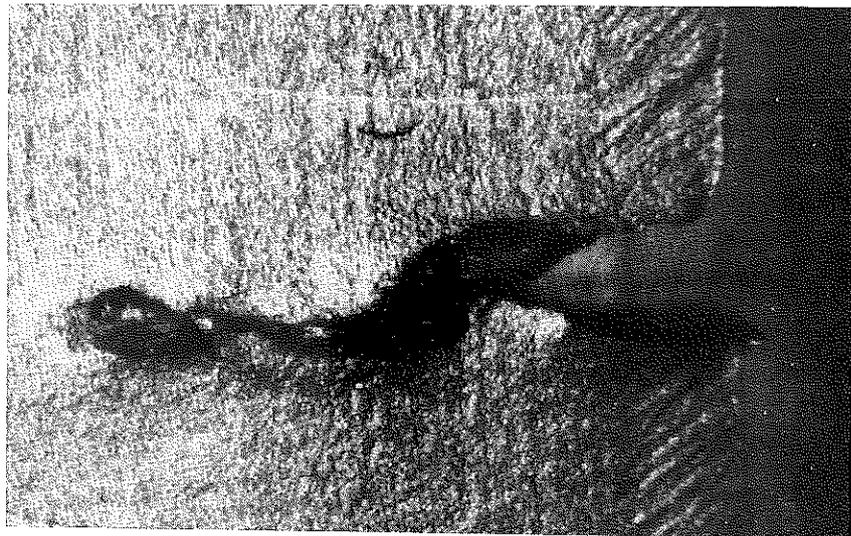
Les diamètres intérieurs sont compris entre 15 et 20 mm. Pour diminuer les contraintes d'origine électromagnétique, pour des raisons de tenue mécanique, les diamètres extérieurs doivent être les plus grands possibles. Cependant, ils sont limités à des valeurs comprises entre 50 et 60 mm. En effet :



a) -cricque interne



b) -cricque interne



c) -effet de scie magnétique

Figure 12 : Cricques internes et effet de scie magnétique (x20)

- au-delà de 40 mm de diamètre, les caractéristiques de trempe à coeur diminuent notablement ;
- les difficultés d'usinage ne permettent pas de dépasser une profondeur de rainure de 20 mm ;
- nous avons utilisé un alliage Cu-Be trempé de nuance écroui 1/2 dur qui n'était livrable qu'en 51 mm de diamètre.

L'épaisseur des spires se situe entre 1,5 et 3 mm. En-deçà, l'usinage conduit à une épaisseur non uniforme, néfaste pour l'homogénéité du champ. Au-delà, la self-inductance de la bobine devient comparable à celle du reste du circuit et le rendement énergétique diminue. Les bords intérieurs et extérieurs des spires sont arrondis et polis à la main pour diminuer les risques d'amorçage d'arc entre les spires.

Les bobines sont montées entre deux flasques en stratifié fibre de verre-époxy et serrées par six tirants en acier inoxydable. Les flasques comportent un lamage avec une rampe hélicoïdale fraisée au pas de l'hélice afin d'assurer un serrage rigoureusement axial et un encastrement des amenées de courant. Pour les bobines destinées à fonctionner au-delà de 400 kOe, on utilise deux flasques supplémentaires. Elles sont en acier de type "maraging" ainsi que les tirants et les écrous correspondants. La force totale de serrage est portée de 10 à 35 tonnes-force, ce qui correspond à une précontrainte axiale maximum de 2 daN/mm^2 . Celle-ci doit être en effet suffisamment grande pour ne pas être complètement relâchée par les contraintes électromagnétiques axiales qui tendent à comprimer la bobine.

Connections électriques

Les amenées de courant des premières bobines étaient constituées par des barres en Cu-Be brasées aux deux extrémités [13,21,22]. Elles ont donné satisfaction jusqu'à 300 kOe, mais au-delà, se sont dessoudées systématiquement. Une soudure à l'arc sous argon [19], plus homogène, est satisfaisante jusqu'à 400 kOe. La cassure se produit alors à la spire suivante. Si l'on refait l'ensemble des traitements thermiques du Cu-Be, sur la bobine complète, une fois les bornes soudées (recuit à 750°C , trempé à l'eau, puis revenu de durcissement), la bobine est coupée en son centre, là où le champ est maximum. La région voisine de la soudure est donc rendue fragile par un effet de recuit local inévitable.

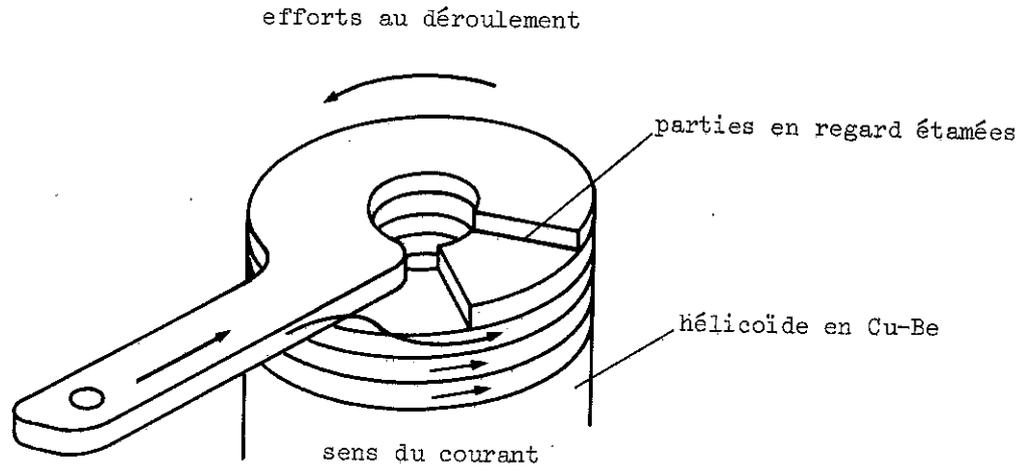


Figure 13 : Schéma de montage des bornes

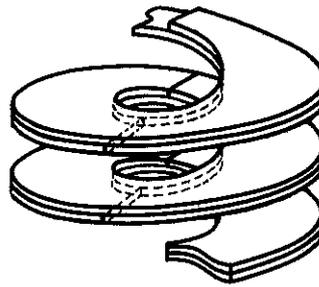


Figure 15 : Schéma de recouvrement des disques isolants

Nous avons finalement mis au point une méthode simple de contact par pression. Les bornes sont en cuivre pur, d'épaisseur 3 mm, elles se terminent par $\frac{3}{4}$ de spire. Les parties connections-bobine en regard sont préalablement étamées et le contact est établi par le serrage entre les flasques.

Les avantages de cette technique sont multiples :

- l'étamage, s'effectuant à température modérée ($< 300^{\circ}\text{C}$), ne modifie pas l'état de traitement de la bobine. L'utilisation des nuances écrouies $\frac{1}{2}$ dur et $\frac{3}{4}$ dur est alors possible. Il en résulte un gain appréciable sur les caractéristiques mécaniques ($\sim 20\%$) ;
- la plus grande plasticité du cuivre donne, lors du serrage une meilleure répartition des pressions transmises à la bobine,
- les bornes sont démontables, rendant possible l'emploi d'une frette cylindrique homogène,
- montées avec un sens d'enroulement inverse de celui de la bobine, elles tendent à s'opposer au déroulement de celle-ci sous l'effet des efforts électrodynamiques (figure 13), tout en simplifiant l'isolation de la première spire.

Isolation

La haute tension de la batterie de condensateurs et les conditions sévères de fonctionnement des bobines nous ont amené à élaborer une technique d'isolation appropriée. Avec de simples disques [21,13] découpés dans une feuille d'isolant à hautes performances les chemins de contournement sur le bord intérieur des spires sont trop faibles : lorsque la bobine est immergée dans l'azote liquide, la bonne tenue diélectrique de celui-ci, comparable à celle des huiles de transformateur (30 kV/mm) [31], est considérablement diminuée par la présence de bulles de gaz qui se forment en raison de l'échauffement de la bobine (figure 14). Il faut donc isoler le bord intérieur des spires. Les isolants réputés pour leurs qualités mécaniques tels que les tresses de fibre de verre imprégnées ou de mica, deviennent très fragiles à basses températures et sont réduits en poudre après quelques décharges. Le téflon est un isolant efficace par sa grande résistance tant au contournement qu'aux chocs thermiques mais il ne peut être utilisé seul en raison de sa faible tenue mécanique [20,22].

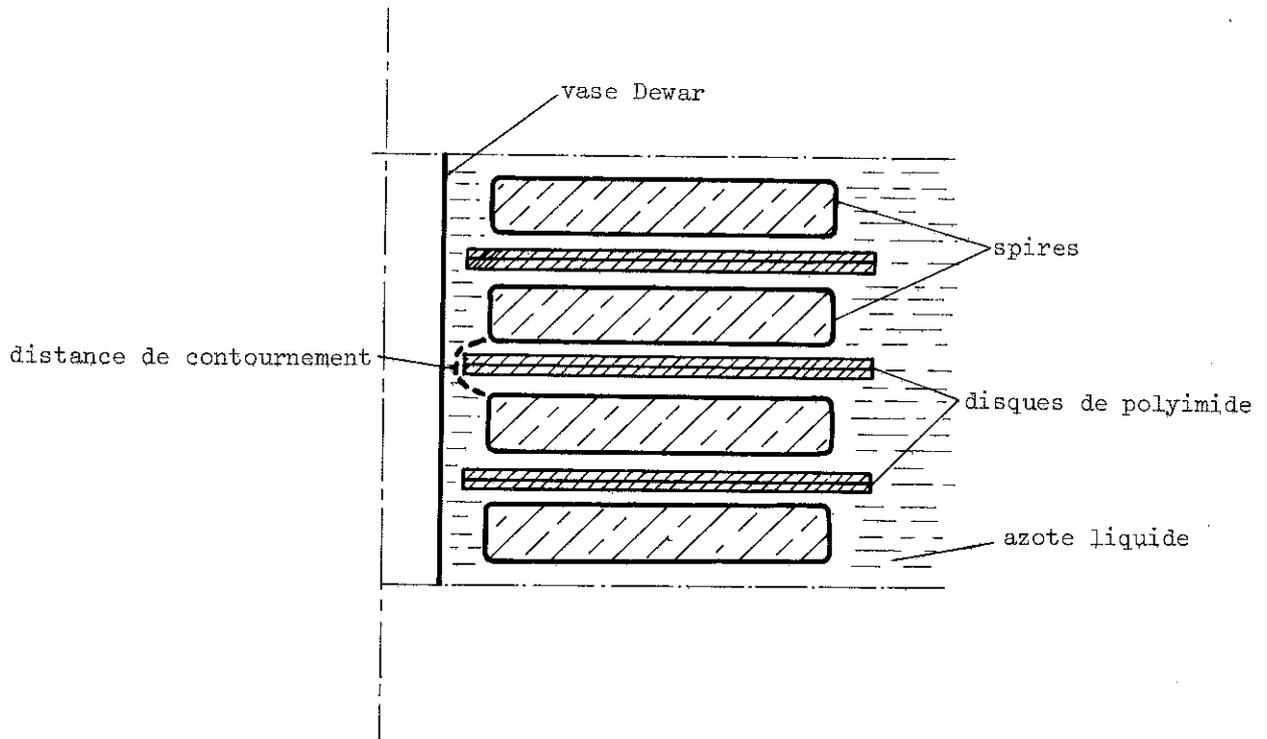


Figure 14 : Isolation simple par disques isolants (type A)

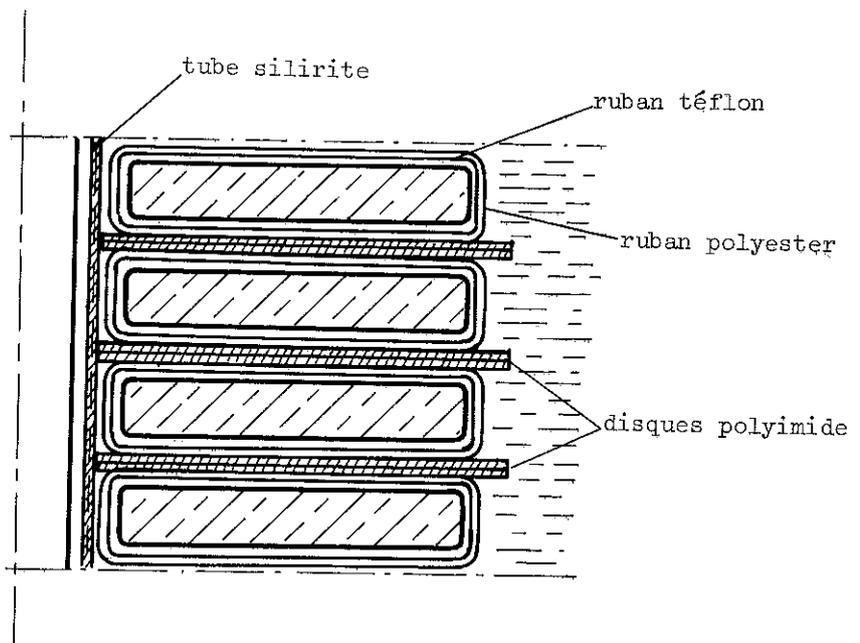


Figure 16 : Isolation mixte : ruban téflon + ruban polyester + disques kapton (type D)

L'isolation mise au point est la suivante : un premier enroulement en téflon est suivi d'un deuxième en polyester, plus solide, d'épaisseur suffisamment faible pour qu'il épouse la courbure des rayons intérieurs et extérieurs des spires. Une double hélice de disques en polyimide (kapton), à demi-recouvrement (figure 15) réalise un isolement supplémentaire d'épaisseur constante. Le ruban de polyester est adhésif. Pour sa mise en place il est neutralisé par du talc. Lors du serrage, il retrouve ses propriétés adhésives qui empêchent le glissement des isolants. Le fluage de ces derniers vers l'intérieur de la bobine est contenu par un tube en fibre de verre-époxy (figure 16). Cette méthode, sans vernis, permet de restituer aisément l'enroulement conducteur, si un défaut d'isolement est constaté. En outre, elle évite les amorçages d'arc directement dans l'azote liquide dont les effets destructifs sont très spectaculaires.

Nous avons noté que les isolements efficaces comportent tous, en contact direct avec les spires, un isolant de très haute résistance aux chocs thermiques. Ceci confirme l'existence de températures élevées à la surface intérieure des spires, supérieures à la température de décomposition de la plupart des isolants organiques. Le bon comportement du téflon tient au faible taux de carbone libre dans ses produits de décomposition. Les principales caractéristiques des bobines que nous avons construites sont rassemblées dans le tableau 1.

4-2 - Bobines en fil de cuivre

Pour obtenir des temps de montée du champ plus longs (~ 1 ms) nous avons construit deux bobines en fil de cuivre émaillé, dont la self-inductance est plus importante.

La première bobine, sans frette, a été détruite pour un champ obtenu de 240 kOe. Nous utilisons la deuxième actuellement jusqu'à 200 kOe. Le temps de montée est de 1,54 ms.

La frette a été choisie en acier pour avoir de bonnes propriétés mécaniques. Nous avons vérifié que ses propriétés magnétiques étaient sans influence sur les mesures d'aimantation.

T A B L E A U 1

Bobines en hélice de Cu-Be.

Bobine N°	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
2a ₁ (mm)	19	19	19	18	18	19	15	15	15	20
2a ₂ (mm)	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
2b ⁽¹⁾ (mm)	72	77	77	81	81	88	54	52	52	52
e (mm)	2,0	2,0	2,0	2,0	2,0	2,0	2,6	3,0	3,0	3,0
N ⁽¹⁾	34	32	32	35	35	38	18	15	15	15
Mature du bronze utilisé (2)	OH	OH	OH	OH	OH	OH	OH	$\frac{1}{2}H$	$\frac{1}{2}H$	$\frac{1}{2}H$
Temps de montée t ₁ (μs)	46	45	45	47	47	48	34	33	33	41
Champ max. d'essai (kOe)	320 ⁽³⁾	340 ⁽³⁾	365 ⁽³⁾	323 ⁽³⁾	392 ⁽³⁾	375	410	500	500	450
∅ utile (4)	16	16	16	16	16	16	12	12	12	16
Frettage (5)	-	-	-	-	A	-	-	-	-	-
Flasques métalliques (5)	AI	-	-	-	AI	-	AM	AM	AM	AM
Type de contact (6)	S _B	S _B	S _B	S _A	S _A	P	P	P	P	P
Méthode d'isolation (7)	A	B	B	C'	C	D	D	D	D	D
Etat actuel (8)	D	D	D	D	D	F	F	D	F	F

LEGENDES DU TABLEAU 1

- (1) tours électriques seulement (figure 5)
- (2) OH = trempé mou ; 1/2H = écroui demi-dur,
- (3) au moment de la destruction
- (4) \emptyset ext. Dewar : $14,5 \pm 0,5$ et $10,5 \pm 0,5$ respectivement,
- (5) AI = acier inox ; AM = acier maraging ; A = acier,
- (6) P = pression ; SA = soudure argon ; SB = brasure,
- (7) A = disques kapton ; B = tresse fibre de verre + vernis ;
C = ruban téflon + disque kapton ; C' = C + vernis ;
D = ruban téflon + ruban polyester + disques kapton,
- (8) D = détruite ; F = en fonctionnement.

LISTE DES MATERIAUX UTILISES

- cuprobéryllium à 2,5 % trempé mou (Péchiney),
- " " " demi-dur ST25 (Stainless),
- tubes et plaques en stratifié fibre de verre - résine époxy
"Silirite" type G.11 (Usines Diélectriques Delles),
- ruban téflon "Rubajoin" ép. 0,1 (Jansen),
- film de polyimide kapton[®] (Du Pont de Nemours, U.S.A.),
- ruban polyester adhésif n° 74 (3M),
- tresse fibre de verre (TVT),
- vernis silicones SISS 991,
- vernis époxy n° 18-88 (UDD),
- acier maraging "marphy 1" (aciéries d'Imphy).

Caractéristiques et matériaux utilisés

- dimensions de l'enroulement :
 - diamètre intérieur : $2a_1 = 20$ mm
 - diamètre extérieur : $2a_2 = 58$ mm
 - longueur : $2b = 80$ mm
 - nombre de spires : $N = 710$
 - fil méplat : $1,6 \times 0,8$ émaillé "polythermalèze" (UDD FIM)
 - mandrin intérieur = tube 16×20
 - enveloppe extérieure = tube 60×70
 - flasques
- } stratifié fibre de verre
} "sirilite" G 11
- imprégnation : aradilte chargée de silice (résine F205 (CIBA) à faible coefficient de dilatation)
 - frette : tube 70×100 en acier X20T hypere trempé (Aubert et Duval).

4-3 - Essais des bobines

Il est dangereux de faire fonctionner une bobine à la charge nominale prévue dès les premiers essais. Avant sa mise en service il faut donc procéder à un certain nombre de décharges préliminaires. Les défauts d'isolation endommagent généralement la bobine dès les premières décharges à faible énergie. En faisant croître progressivement la tension du banc on détermine la caractéristique champ-tension $H(U)$ de la bobine ; les derniers essais sont effectués à une tension U_{\max} supérieure de 10 % à la tension de travail prévue U_n . Ensuite, une dizaine de décharges sont faites à la tension U_n pour vérifier qu'aucune crique n'a été amorcée pour la tension U_{\max} : de telles criques provoquent rapidement la coupure de l'enroulement par un effet de "scie magnétique" ("magnetic saw effect" [17])(figure 12). Quelques décharges pour des tensions décroissantes terminent le cycle de vieillissement de la bobine. Elles permettent de s'assurer que la caractéristique $H(U)$ est réversible, c'est-à-dire que la bobine n'a conservé aucune déformation permanente appréciable, la limite élastique du matériau n'étant pas dépassée. Au cours de ces essais préliminaires, l'enroulement subit un écrouissage à froid progressif, et le fluage des isolants entraîne une meilleure répartition des contraintes. Pour compenser les effets de tassement du champ sur le bobinage les tirants doivent être resserrés après chacun des premiers cycles d'expériences et ensuite toutes les 100 décharges environ.

5 - CIRCUIT GENERATEUR DE COURANT PULSE

5-1 - Batterie de condensateurs

Elle est constituée de 16 condensateurs de choc connectés en parallèle. Les caractéristiques de chaque unité sont les suivantes :

- capacité nominale : 15 μ F,
- tension nominale : 20 kV,
- taux d'inversion : 0,9,
- durée de vie : 10^5 décharges,
- self-inductance propre : 30 nH,
- isolement papier + huile minérale chlorée,
- fabricant : Cornell Dubillier Electronics,
- type NRG.

Les connections sont faites par des câbles coaxiaux à faible self (100 nH/m) capables de 10^5 décharges de 30 kA sous 25 kV. La charge se fait pratiquement à courant constant par une alimentation comprenant : un autotransformateur "variac" 0 - 240 V, un transformateur élévateur 240 V - 15 kV eff., un pont de diode haute tension et des résistances de limitation en cas de court-circuit (figure 17). Un système de moteur et réducteur permet la télécommande du Variac depuis le pupitre de manipulation et l'ajustement très précis de la tension à la valeur désirée. La mesure de cette tension est faite directement sur l'armature commune de la batterie par un voltmètre haute tension de classe 0,2 que nous avons spécialement mis au point (figure 18). Le diviseur de tension est constitué par quarante résistances de 5 M Ω à couches métalliques de faible coefficient de température ($50 \cdot 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$). Elles sont disposées dans un boîtier rempli d'huile silicone. Par mesure de sécurité une résistance shunt de 500 k Ω est soudée à demeure afin d'éviter l'apparition d'une tension élevée sur le rack de mesure en cas de rupture du circuit.

Les grandeurs caractéristiques du circuit sont déterminées à partir du courant de décharge obtenu en court-circuitant la bobine.

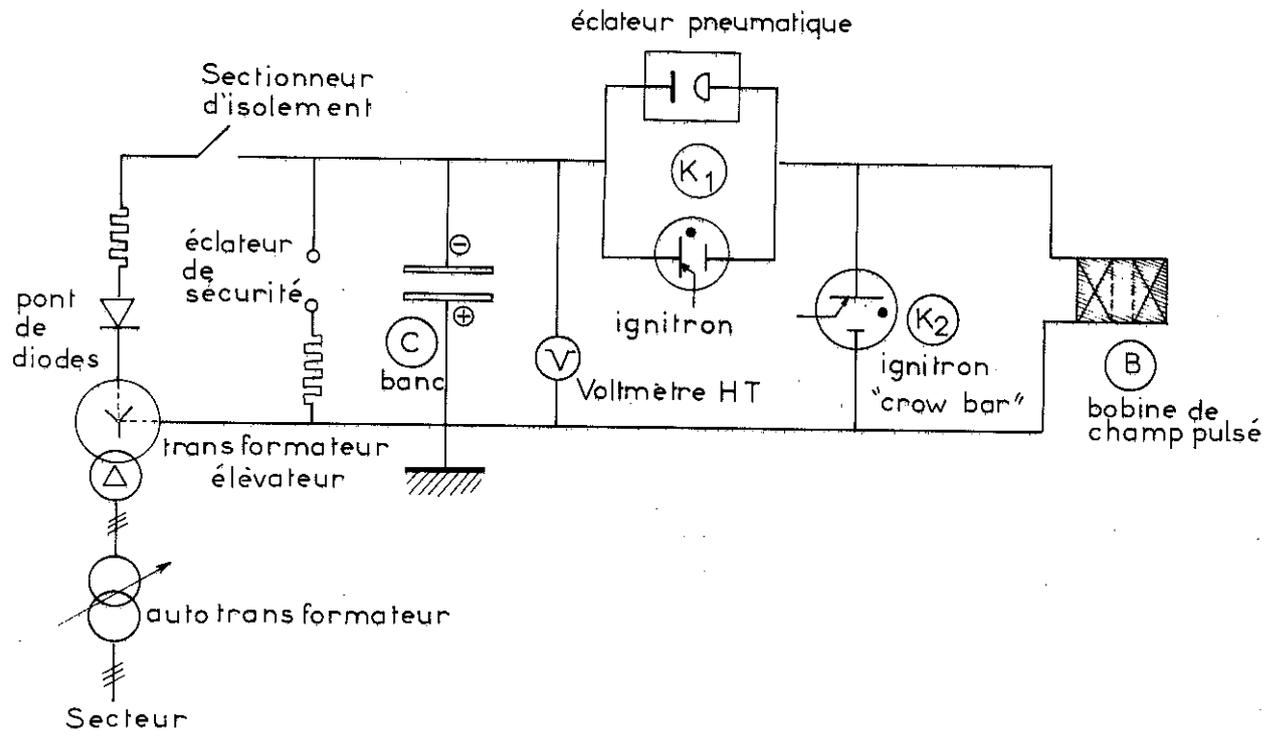


Figure 17 : Schéma général du générateur

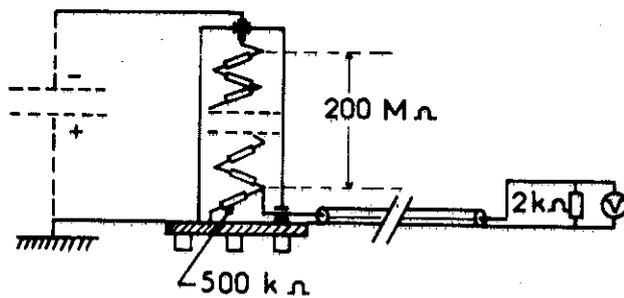


Figure 18 : Voltmètre haute tension de précision

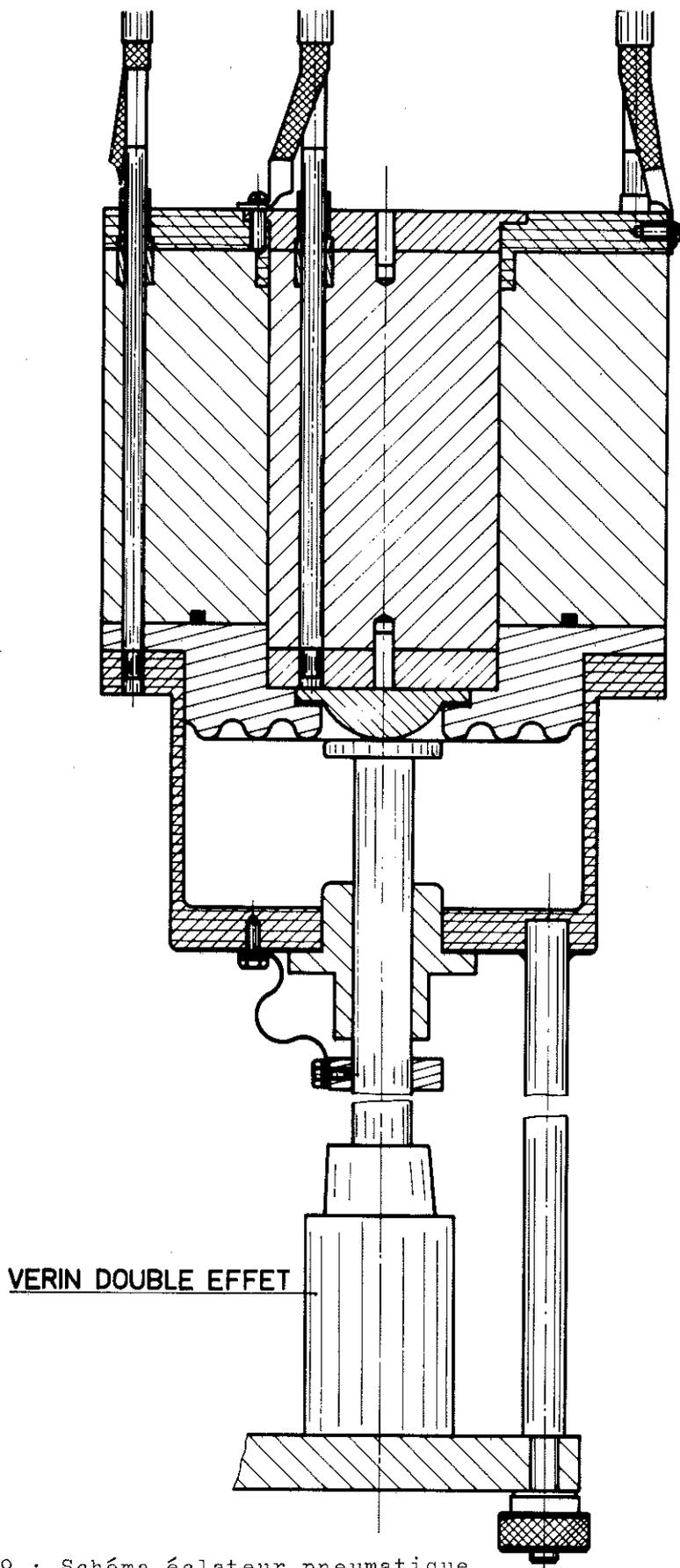


Figure 19 : Schéma éclateur pneumatique

Caractéristiques de la batterie vue des bornes de la bobine de champ

- énergie maximum : $W_0 = 46,4 \text{ kJ}$,
- capacité totale : $C = 232 \text{ } \mu\text{F}$,
- tension maximum : $U_0 = 20 \text{ kV}$,
- self-inductance : $L_B = 0,33 \text{ } \mu\text{H}$,
- résistance : $R_B = 6,3 \text{ m}\Omega$,
- période en cc : $T_{cc} = 53 \text{ } \mu\text{s}$.

5-2 - Circuits de déclenchement

L'interrupteur principal (figure 19) utilisé avec les bobines en hélice, est un éclateur mécanique commandé par un vérin pneumatique. Il s'inspire des réalisations faites pour la physique des plasmas. Sa self-inductance est faible ($\sim 150 \text{ nH}$). Il peut supporter des courants de fermeture de 300 kA et présente une grande sécurité de fonctionnement. Ses électrodes sont en alliage cuivre-tungstène (cuvritène) pour résister à l'érosion de l'arc. La commande du vérin pneumatique se fait au moyen d'électrovannes qui sont insérées dans un ensemble de circuits de sécurité prévu pour éviter toute fausse manoeuvre.

Avec les bobines en fil on peut utiliser des ignitrons du type 7050 A déclenchés par des thyristors BBC type CS 2312G0 13. La pointe de courant maximum admissible n'est plus que de 100 kA. La synchronisation du deuxième ignitron, qui court-circuite la bobine dans la méthode "crow-bar" est réalisée par une temporisation réglable à partir du début de la décharge.

Comme la succession des opérations est souvent identique d'une décharge à l'autre, un programmateur à cames réalise automatiquement un certain nombre de séquences prédéterminées. Il assure notamment la synchronisation de la caméra de l'oscilloscope, augmente la fiabilité et surtout la reproductibilité des mesures.

6 - MONTAGE GENERAL

Le schéma du montage de la bobine est représenté sur la figure 20. La bobine (B) est fixée à un plateau isolant (A) par l'intermédiaire d'une entretoise cylindrique (C). Le plateau (A) supporte également le vase Dewar en pyrex (D), la tête de vase métallique (E), le collecteur (F) des 6 câbles coaxiaux venant de l'éclateur et l'amenée de courant coaxiale (G). Un récipient à azote liquide (H) est suspendu par un système de contrepoids. Il peut être enlevé et remis rapidement pour une inspection de la bobine ou du vase Dewar. Le niveau du liquide est maintenu par un transfert automatique. Le vase Dewar, plongé directement dans l'azote liquide, ne comprend que deux parois et peut contenir un litre environ d'hélium liquide pendant une heure ou plus, selon les pertes. Le refroidissement de la bobine est assez efficace pour que l'attente entre deux décharges soit de quelques minutes seulement (à l'air ambiant il faudrait des intervalles de plusieurs dizaines de minutes). Le centrage de la bobine sur le doigt du vase Dewar, est vérifié optiquement. Le défaut d'alignement des axes est inférieur ou égal à 30' d'angle. Cette valeur doit être ajoutée à l'erreur d'orientation des échantillons monocristallins étudiés.

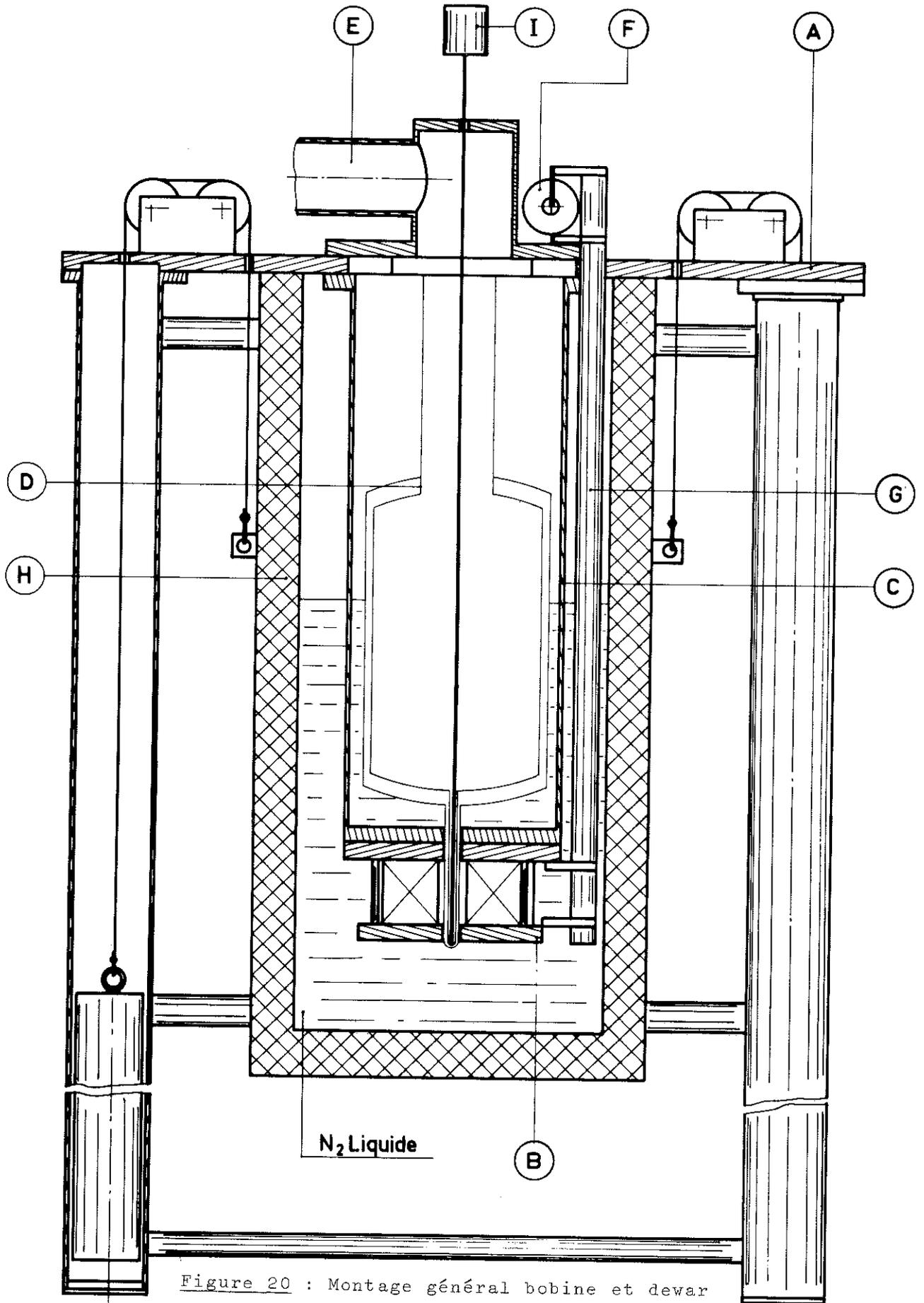
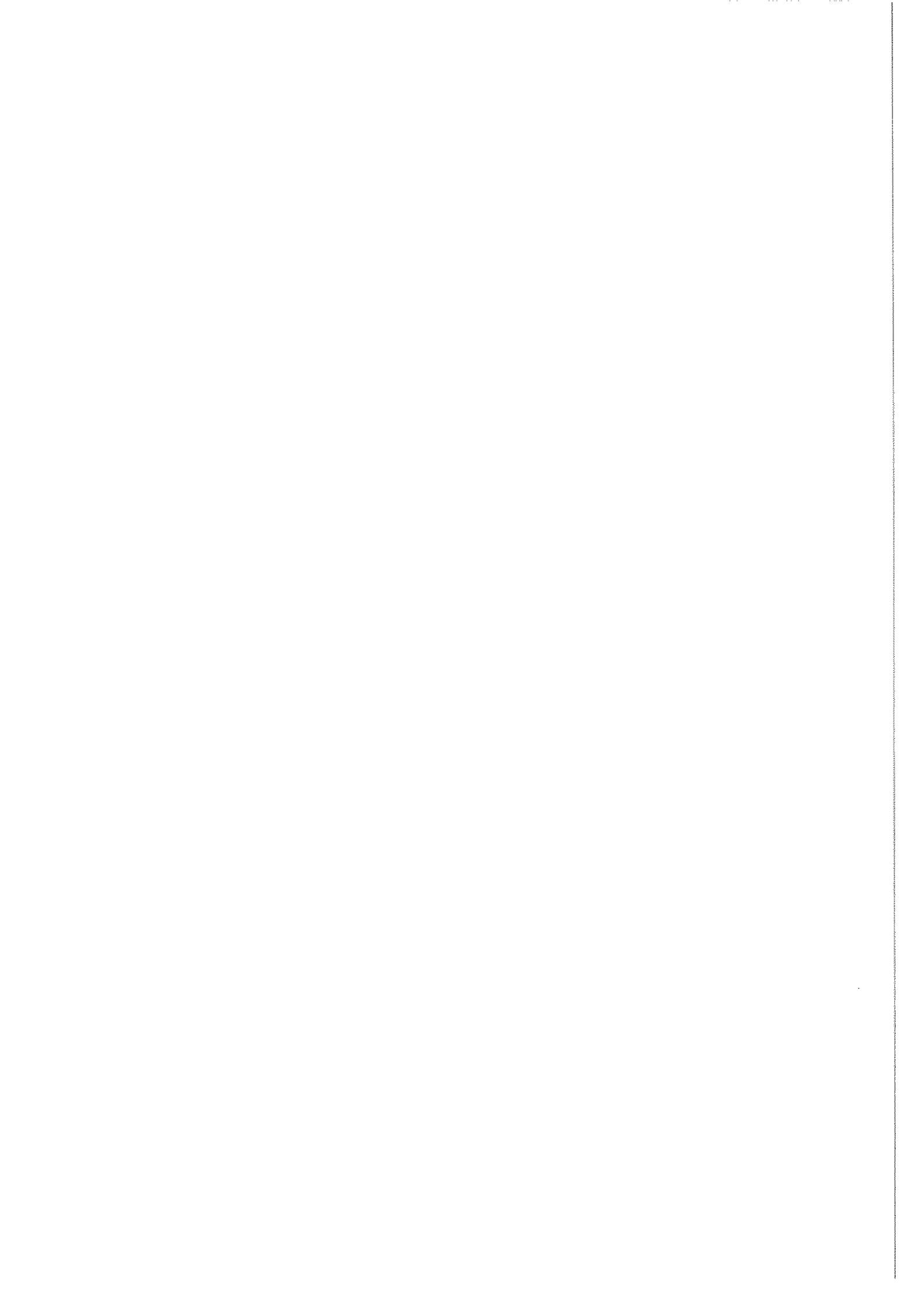


Figure 20 : Montage général bobine et dewar



CHAPITRE II

MESURES D'AIMANTATION

1 - INTRODUCTION

Parmi les différentes méthodes utilisées pour la mesure des aimantations en champs pulsés, nous avons choisi celle qui est fondée sur la variation de flux induite dans un circuit par la variation du moment de l'échantillon. En effet, les mesures de force nécessitent un champ inhomogène [1,32] et de ce fait, ne sont pas adaptées à l'étude des champs critiques de changement de phase magnétique ; l'effet Faraday optique ne convient qu'à des échantillons peu absorbants et monocristallins [33]. L'observation de certaines différences entre les mesures en champ statique et celles en champ pulsé nous a conduit à rechercher une précision comparable et à étudier l'influence de la nature transitoire du champ sur les phénomènes d'aimantation. Après une description de l'appareillage de mesure et de ses possibilités, nous examinons quelques situations particulières où les conséquences d'un champ rapidement variable sont mises en évidence.

2 - APPAREILLAGE DE MESURE

2-1 - Généralités

Dans les méthodes d'extraction en champs statiques une variation de flux liée à l'aimantation est obtenue directement par un déplacement de l'échantillon. La réduction de l'aire du circuit de mesure vis-à-vis du champ n'est alors envisagée que pour diminuer le bruit de fond provenant des petites fluctuations du champ. Dans notre

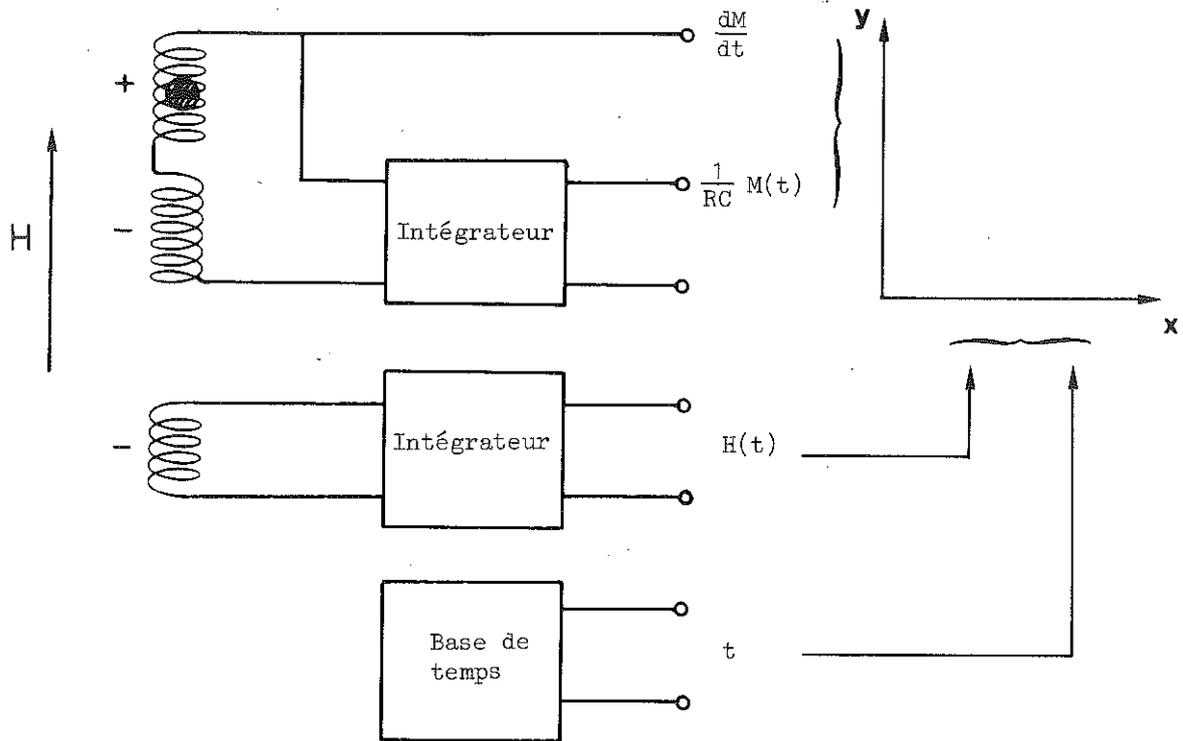


Figure 21 : Schéma d'hystérésigraphe

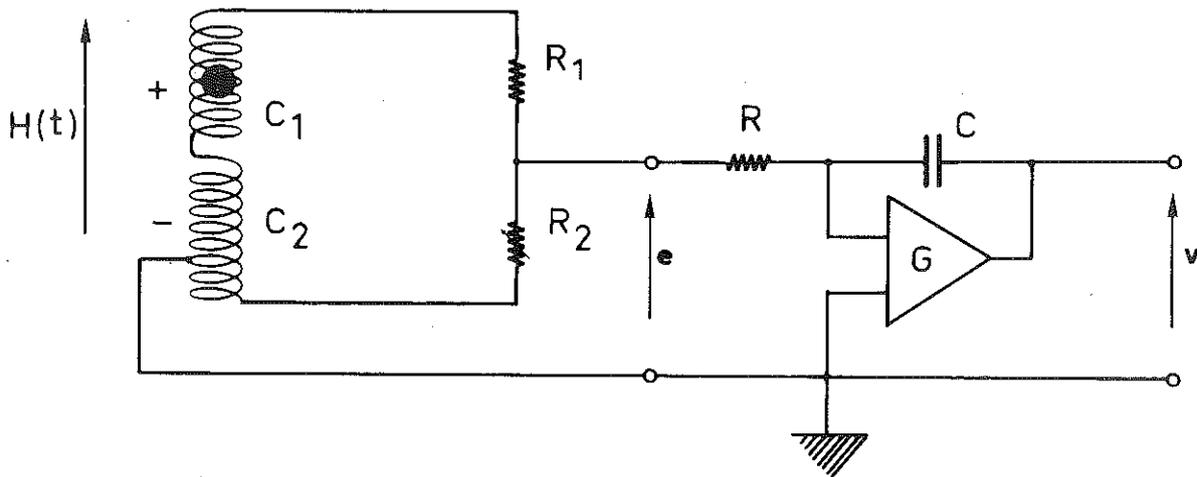


Figure 22 : Schéma de principe de compensation électrique

cas, au contraire, l'échantillon reste fixe et la variation de flux d'aimantation se fait en même temps qu'une variation beaucoup plus grande de flux du champ extérieur. Il faut d'une manière ou d'une autre retrancher cette dernière. La mesure est en quelque sorte indirecte. Toute la difficulté est de réaliser un fluxmètre dont le taux de réjection du champ extérieur soit très élevé ($\sim 10^5$). Il doit posséder, en outre, une grande bande passante pour ne pas déformer la loi de variation de l'aimantation.

Le schéma du montage est celui d'un hystérésigraphe (figure 21) : deux bobinages, dont l'un contient l'échantillon, sont reliés de façon à être parfaitement compensés vis-à-vis du champ extérieur ; ils fournissent une f.e.m. induite proportionnelle à la dérivée de l'aimantation par rapport au temps. Un troisième bobinage est le siège d'une f.e.m. directement liée à la dérivée du champ. Ces deux tensions, correctement intégrées sont visualisées sur l'écran d'un oscilloscope qui est muni d'un appareil photographique et joue ainsi le rôle d'un enregistreur XY rapide.

Notre appareillage actuel nous permet d'enregistrer les courbes d'aimantation d'échantillons sphériques dans des champs allant jusqu'à 500 kOe à toutes les températures comprises entre 1,3 et 300 K avec une précision de 1 % sur les valeurs du moment et du champ. L'erreur absolue minimum sur le moment est de 0,02 u.e.m./100 kOe jusqu'à 300 kOe, 0,1 u.e.m. à 400 kOe et 0,2 u.e.m. à 500 kOe. La bande passante est de l'ordre de 10 MHz. Le repérage des températures est effectué avec une erreur relative inférieure à 0,5 % sur toute la gamme.

2-2 - Principe et circuits électriques

Compensation des bobinages par la méthode d'opposition

La méthode la plus simple consiste à chercher une compensation naturelle en reliant en série deux enroulements de sens contraire et de surface identique [34,21,22]. Le degré de compensation de ce dispositif est limité par les imperfections de bobinage : les deux surfaces ne sont pas égales à mieux que 1 % et une correction délicate par fraction de spire ne donne guère mieux que 0,1 %. Pour améliorer la résolution du réglage nous avons adopté le principe d'une compensation électrique de façon à se ramener à l'ajustement du rapport de deux résistances (figure 22).

Quelle que soit la variante utilisée [13] on peut toujours décomposer le système en un bobinage principal C_1 contenant l'échantillon et un bobinage compensateur C_2 . Le flux total dans C_1 se compose du flux $\phi_1(H)$ du champ extérieur et du flux $\phi_1(m)$ de l'échantillon. Celui-ci est assimilé à un moment dipolaire m placé au centre O du système, d'où :

$$\phi_1 = \phi_1(H) + \phi_1(m) = \mu_0 A_1 H + \mu_0 \frac{h_1}{i_1} m \quad (32)$$

A_1 est l'aire de C_1 vis-à-vis du champ extérieur H et h_1 le champ produit par ce bobinage au point O lorsqu'il est parcouru par le courant i_1 .

H et m étant variables avec le temps, la même relation vaut pour les f.e.m. induites correspondantes :

$$e_1 = e_1(H) + e_1(m) \quad (33)$$

Il en est de même pour le circuit C_2 avec les notations correspondantes. Il suffit d'opposer les f.e.m. e_1 et e_2 avec des gains g_1 et g_2 de manière à éliminer les f.e.m. induites par le champ. Tout se passe comme si nous avions un seul circuit C avec un flux total :

$$\phi = g_1 \phi_1 - g_2 \phi_2 \quad (34)$$

et une f.e.m.

$$e = - \frac{\partial \phi}{\partial t} = g_1 e_1 - g_2 e_2 \quad (35)$$

La condition de compensation $g_1 e_1(H) - g_2 e_2(H) = 0$ se traduit par :

$$\boxed{g_1 A_1 - g_2 A_2 = 0} \quad (36)$$

et ϕ se met sous la forme :

$$\phi = \mu_0 g_1 A_1 (k_1 - k_2) m \quad (37)$$

où $k_1 = \frac{h_1}{A_1 i_1}$ et $k_2 = \frac{h_2}{A_2 i_2}$ sont les rapports champ/moment des bobines C_1 et C_2 .

Pour diverses raisons, d'ordre expérimental, qui seront étudiées au paragraphe 2.9, la compensation n'est jamais parfaite. Il subsiste un signal résiduel que nous rapportons au signal donné par le champ dans le bobinage principal C_1 . Soit en transposant pour le flux :

$$\Delta\phi = \epsilon g_1 \phi_1(H) \quad (38)$$

Avec un échantillon sphérique de rayon R et d'aimantation uniforme M par unité de volume, ϕ s'écrit finalement :

$$\phi = \mu_0 g_1 A_1 (\epsilon H + \eta M) \quad (39)$$

η est un coefficient de couplage sans dimensions qui ne dépend pas du nombre de spires :

$$\eta = \frac{4}{3} \pi R^3 (k_1 - k_2) \quad (40)$$

ϵ représente le défaut de compensation rapporté au champ ($\frac{1}{\epsilon}$ est le rapport de réjection en champ du système).

Si nous voulons une erreur inférieure à 2 u.e.m./cm³ ($2 \cdot 10^3$ A/m ou 1 % de l'aimantation du ferrite grenat d'yttrium) dans un champ de 500 kOe ($4 \cdot 10^7$ A/m), il nous faut réaliser :

$$\frac{\epsilon}{\eta} < 0,5 \cdot 10^{-4},$$

c'est-à-dire : $\epsilon < 10^{-5}$, car nous pouvons montrer facilement (annexe B) que $\eta < 0,2$. Autrement dit, le montage différentiel doit avoir un taux de réjection de mode commun supérieur à 10^5 (100 dB).

En outre, au moment du passage à zéro du champ, l'aimantation d'un ferromagnétique doux s'inverse en suivant la pente en champ démagnétisant. Le signal $\frac{dM}{dt}$ est très voisin d'un créneau de tension pendant un intervalle de temps très court, et pour qu'il ne soit pas déformé par le circuit de mesure, la bande passante doit être très large (> 1 MHz). A ces fréquences élevées, les amplificateurs et les potentiomètres ajustables introduisent des déphasages trop importants pour le niveau de compensation cherché. C'est pourquoi notre étage différentiel est un simple montage en opposition avec un pont de résistances fixes de faible temps de montée (20 ns).

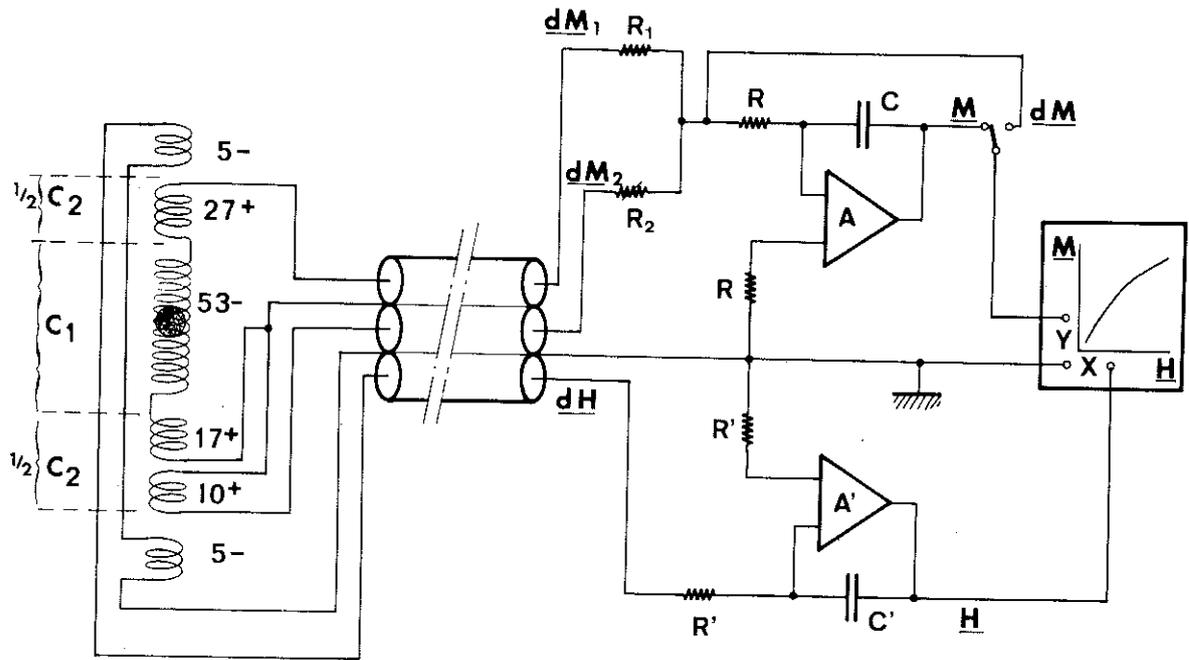


Figure 23 : Circuits de mesure

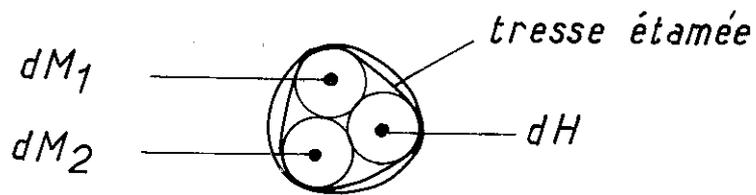


Figure 24 : Coupe du câble de transmission

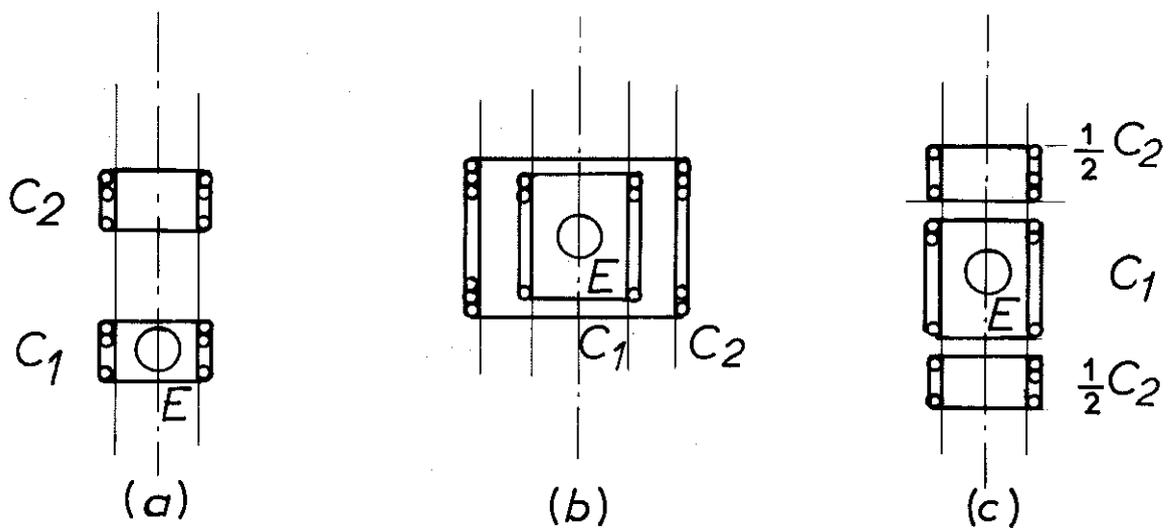


Figure 25 : Disposition des bobinages de mesure

Circuit électrique

Le schéma électrique est celui de la figure 23. Les 4/5 environ de la f.e.m. (e_1) induite dans le bobinage principal (C_1) de surface $A_1 = 10 \text{ cm}^2$ sont compensés de façon naturelle par la mise en série d'une partie du bobinage (C_2) de sens inverse. Seules les f.e.m. restantes sont opposées sur le pont de résistances (R_1, R_2). Les différences de potentiel dans les fils de connections sont ainsi réduites d'un facteur 5 par rapport à e_1 . Celle-ci atteint en effet des valeurs élevées ($\sim 3000 \text{ V}$) en début de décharge lorsque le taux de variation du champ avec le temps est maximum ($\sim 3 \cdot 10^{10} \text{ Oe/s}$). Le rapport $\frac{R_1}{R_2}$ est très voisin de l'unité, de façon à conserver la symétrie géométrique des bobinages et à opposer le mieux possible les f.e.m. parasites induites dans les fils de connection. Celles-ci, mesurées séparément, sont de l'ordre de quelques 10^{-4} du signal principal e_1 et ne sont pas en phase avec lui. Dans notre cas les gains g_1 et g_2 valent respectivement $\frac{R_2}{R_1+R_2}$ et $\frac{R_1}{R_1+R_2}$ et sont donc très peu différents de 0,5.

L'intégration des signaux est réalisée par des amplificateurs opérationnels à effet de champ montés en intégrateur de Miller. Celui de la chaîne "aimantation" (A) a un produit gain-bande passante de 15 MHz et un temps d'établissement en sortie inférieur à 1 μs ; il travaille avec une faible charge capacitive ($C = 345 \pm 1 \text{ pF}$). Sur la chaîne "champ", le produit gain-bande est plus faible (4 MHz), ce qui permet une plus grande capacité ($C' = 10085 \pm 5 \text{ pF}$). Les condensateurs sont au mica pour assurer un angle perte inférieur à 10^{-3} à 1 MHz et une grande stabilité des constantes de temps.

Pour diminuer les f.e.m. induites par le champ rayonné loin de la bobine, les signaux sont transportés par trois câbles coaxiaux torsadés et dénudés. Les âmes extérieures en contact forment une seule connection de masse (figures 23 et 24).

2-3 - Disposition géométrique des enroulements de mesure

Les bobinages de mesure ont été étudiés pour des échantillons sphériques. Ceci permet une réduction de leur encombrement et par conséquent une amélioration de leur compensation. Les trois principaux types de dispositions sont représentés sur la figure 25. Le premier (figure 25a), n'ayant pas de centre de symétrie, est très sensible aux gradients de champ provenant soit d'un défaut de centrage

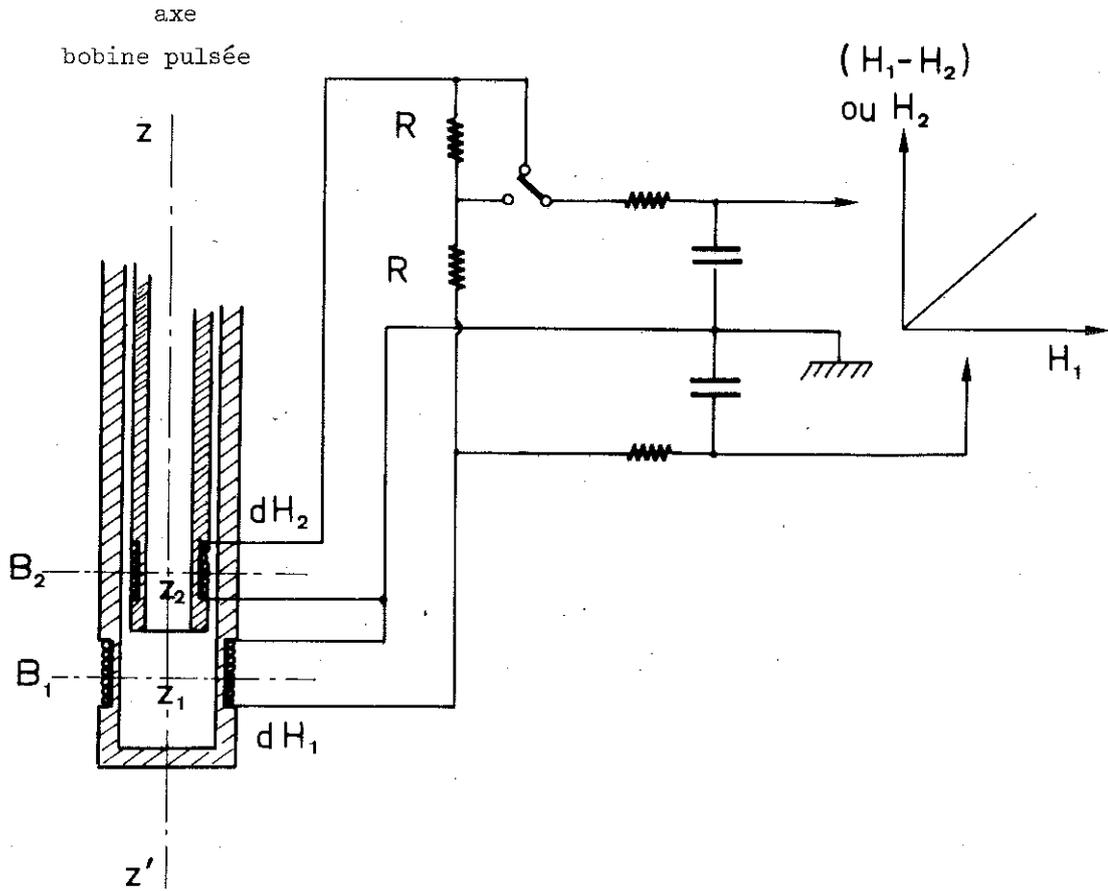


Figure 26 : Dispositif de mesure de carte de champ

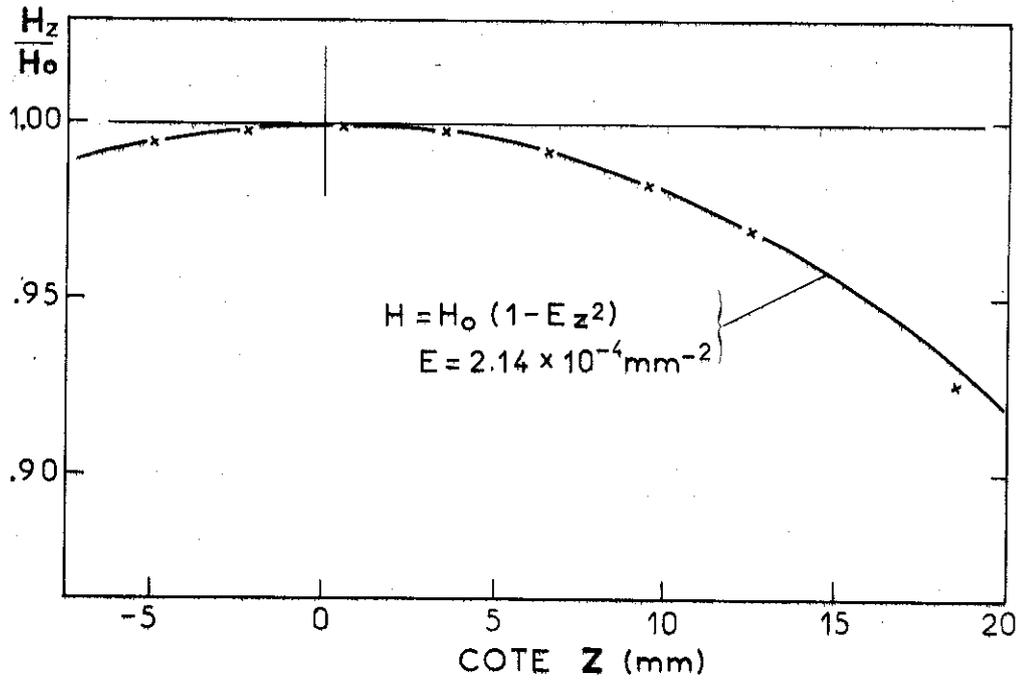


Figure 27 : Carte de champ au voisinage du centre

soit des courants de Foucault dans les pièces métalliques environnantes. Nous avons comparé les dispositions radiales (figure 25b) et axiales symétriques (figure 25c) proposées respectivement par Frowe [35] et Jacobs [34] selon les critères suivants :

- couplage maximum avec le moment de l'échantillon,
- dépendance minimum de ce couplage avec l'erreur de positionnement de l'échantillon ($\sim 0,1$ mm).

Nous montrons dans l'annexe B qu'elles sont sensiblement équivalentes de ce point de vue. La disposition radiale est susceptible d'une meilleure compensation vis-à-vis des dérivées d'ordre deux du champ par rapport aux déplacements [36], mais elle réduit de moitié le diamètre utile pour l'échantillon. C'est pourquoi nous avons préféré la disposition axiale symétrique.

2-4 - Carte de champ des bobines pulsées

Au voisinage du centre, elle est déterminée dans les conditions réelles de fonctionnement de façon très précise par une méthode différentielle dont le montage est représenté sur la figure 26. Deux petits enroulements B_1 et B_2 sont disposés dans l'axe de la bobine pulsée. Les f.e.m. induites sont opposées sur un pont de résistances analogue à celui du système de mesure d'aimantation. Les résistances sont réglées pour une bonne compensation ($< 10^{-3}$) lorsque les bobines sont situées à une même cote de référence z_1 , voisine du centre de la bobine. Quand on déplace B_2 à une cote z_2 , le signal différence une fois intégré, proportionnel à $H(z_2) - H(z_1)$, est enregistré en fonction de la tension intégrée de B_1 . Pour chaque décharge, la mesure est rapportée à un même champ $H(z_1)$. Nous avons représenté les résultats, pour l'une des bobines, sur les figures 27 et 28. On constate que le champ sur l'axe suit une loi parabolique sur la moitié de la longueur de la bobine avec une bonne précision :

$$H = H_0 (1 - Ez^2), \quad z \leq \frac{b}{2} \quad (41)$$

Pour les positions de B_2 en dehors de la bobine, le signal proportionnel à $H(z_2)$ est enregistré directement, et son déphasage par rapport à $H(z_1)$ est évalué sur l'oscillogramme bien que la courbe ne soit pas une véritable ellipse du fait de l'amortissement. Nous avons ainsi étudié l'influence des flasques métalliques de 10 mm

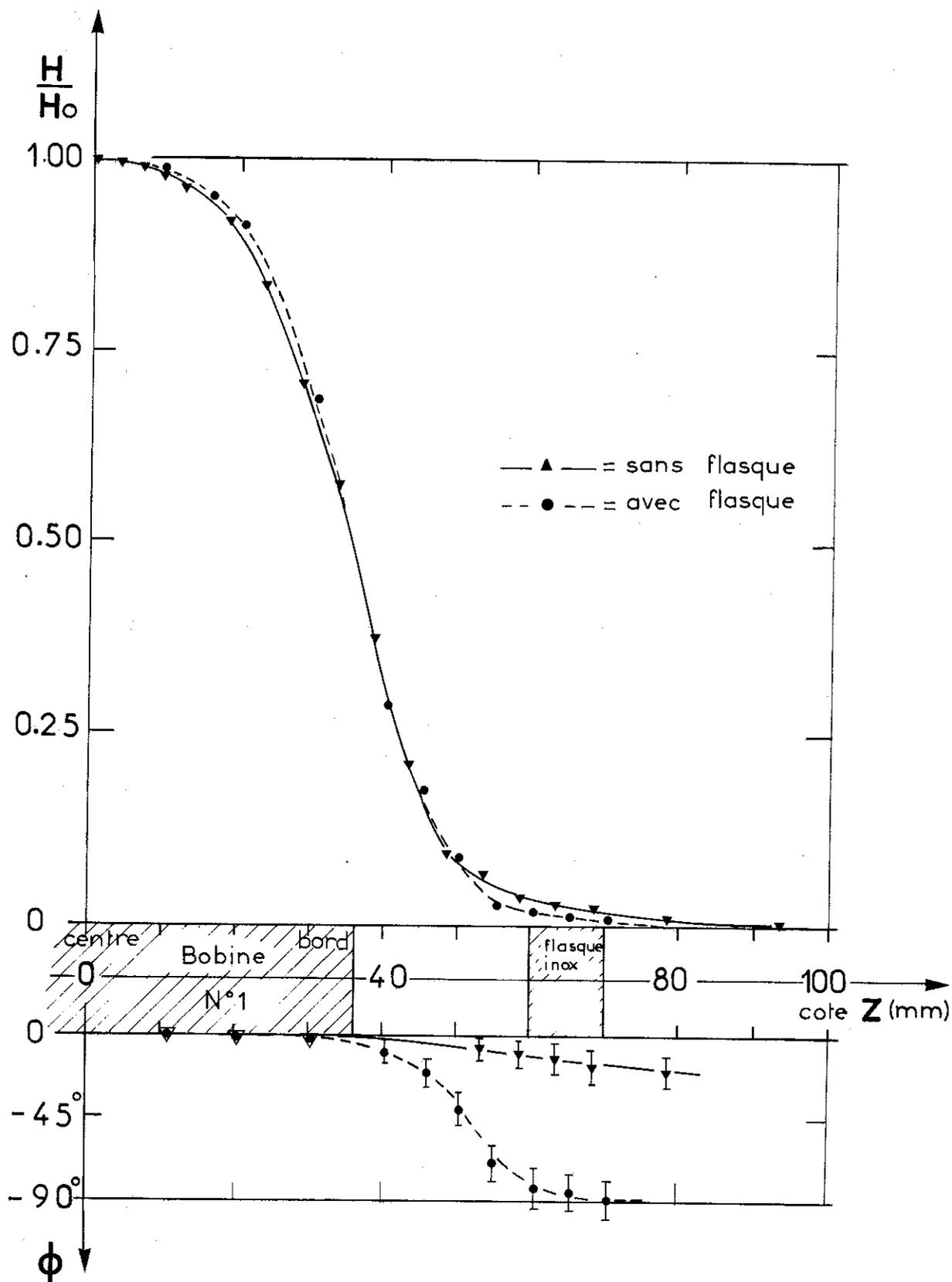


Figure 28 : Influence des flasques métalliques de la bobine sur la carte de champ

d'épaisseur. Au niveau d'une telle flasque, le déphasage atteint pratiquement 90° (figure 28). Ceci montre que la constante de temps des courants de Foucault est supérieure au temps de montée du champ. Le centre de la bobine est situé à une distance comparable au rayon de ces lignes de courant et le champ produit bien que de faible amplitude (quelques %), peut présenter un gradient ou une dérivée seconde importante avec la distance. Il en résulte un signal résiduel de compensation inévitable qui n'est pas en phase avec le champ principal.

2-5 - Mesure et étalonnage du champ

La mesure du champ se fait par 2 bobinages identiques, en série, disposés de façon symétrique à une distance a de part et d'autre de l'échantillon (figure 29). Celui-ci est placé le plus près possible du centre de la bobine à une cote z . Il est soumis à un champ $H_e = H(z)$. Le champ mesuré est $H_m = \frac{1}{2} [H(z+a) + H(z-a)]$. Dans la région où la loi parabolique (41) est valable la différence $\Delta H = H_e - H_m = H_0 E a^2$ est une constante indépendante de la position du système de mesure. L'étalonnage y gagne en simplicité et en précision. Il est effectué une fois pour toutes (pour une bobine donnée) par comparaison avec un bobinage de surface connue que l'on introduit à la place de l'échantillon. Cet enroulement, de 3 mm de long, est constitué de 42 spires de fil de cuivre émaillé ($\varnothing = 0,05$ mm) bobinées sur un tube de quartz ($\varnothing = 3,03$ mm) ; sa surface vaut 317 ± 1 mm². Il est relié à un intégrateur dont la constante de temps est connue à 0,1 % près. Les tensions de sortie de ce fluxmètre étalon et de la chaîne de mesure sont comparées à mieux que 10^{-3} près par enregistrement en XY sur l'oscilloscope à l'aide de deux tiroirs comparateurs (Tektronix, type W). La constante de proportionnalité entre la déviation horizontale et le champ magnétique est donc connue avec une précision de 0,5 %.

2-6 - Dispositif expérimental

Les enroulements de mesure sont constitués par une seule couche de fil de cuivre ($\varnothing = 71 \mu +$ émail polyimide : $\varnothing = 90 \mu$) bobinée sur un mandrin en "plexiglas" (figure 30a). Cette matière possède un coefficient de dilatation relativement faible ($\sim 35 \cdot 10^{-6}$) et permet un usinage précis des encoches et des rainures nécessaires à un positionnement rigoureux du fil. Celui-ci est maintenu en place en cours de bobinage par de la colle faite à partir de "plexiglas" dissout dans l'acétone : elle reste efficace à basse température.

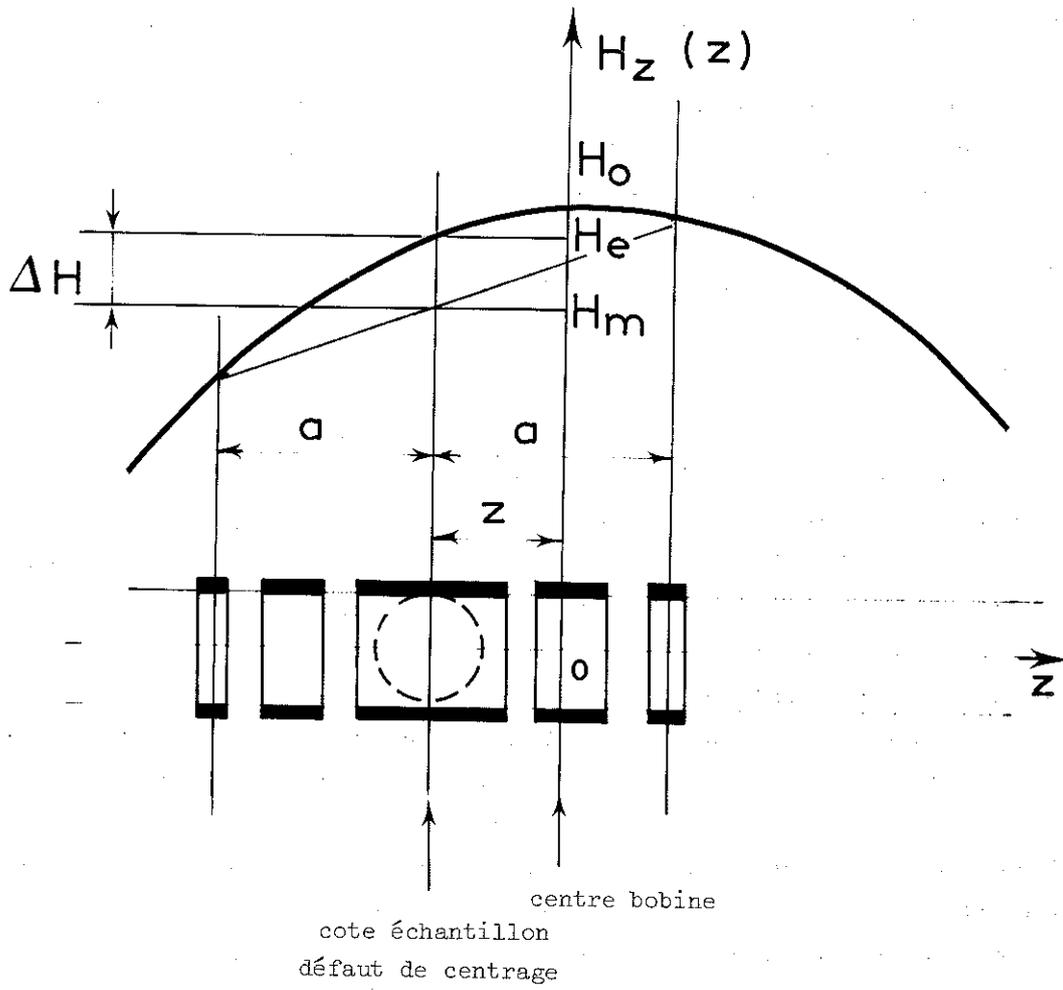


Figure 29 : Mesure du champ vu par l'échantillon



Figure 31 : Enroulement chauffant type circuit imprimé

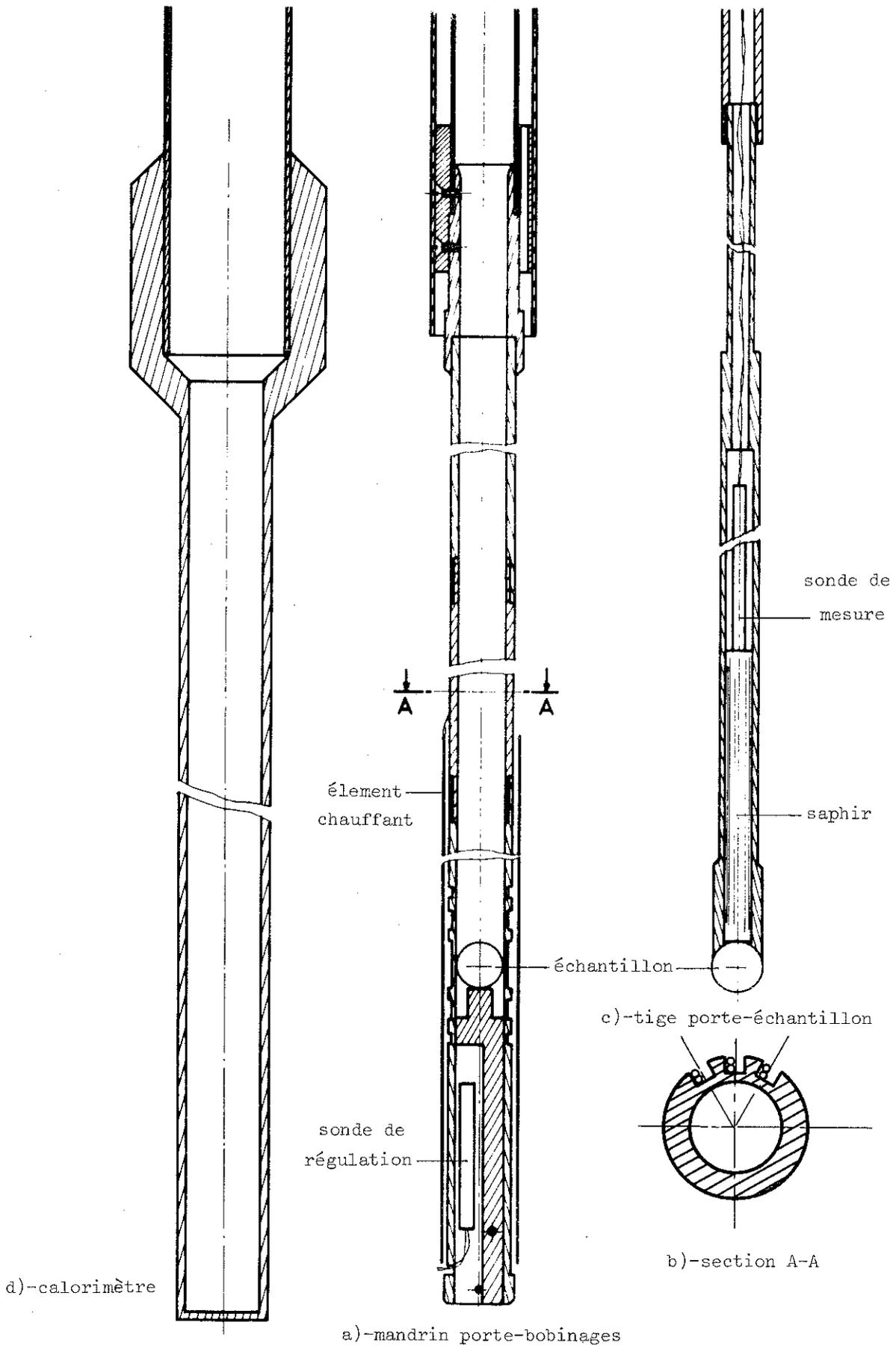


Figure 30 : Système de mesure à température variable

Un soin particulier est apporté aux fils de connection afin de réduire au maximum les surfaces qu'ils présentent à la composante radiale du champ magnétique : les fils d'un même signal sont disposés radialement l'un sur l'autre sur 200 mm dans une rainure rectiligne suivant une génératrice du mandrin (figure 30b) ; ils sont ensuite torsadés jusqu'aux passages étanches de la tête du dewar.

Les échantillons sont positionnés par rapport aux bobines de mesure par une butée qui est solidaire du mandrin porte-bobinages. Ce centrage est précis, reproductible ($\Delta z < 0,1$ mm) et indépendant de la température.

Une vis de grand diamètre permet un réglage fin de la position de l'ensemble de mesure avec une course de 50 mm. La position optimale de compensation des bobinages de mesure est ainsi accessible après chaque mise en place des bobines pulsées, et peut être rectifiée en fonction de la température.

2-7 - Cryogénie

Les températures variables sont obtenues soit par pompage sur le bain d'hélium ou d'azote liquides, soit par un système classique d'élément chauffant et d'échangeur de température. Celui-ci est un manchon en "plexiglas" (\emptyset 6,8 x 7,8) qui isole le système de mesure du bain et dans lequel on peut faire le vide ou mettre un gaz d'échange. Nous avons dû mettre au point des éléments chauffants spéciaux, car les enroulements classiques en double spires sont rapidement détruits par les tensions induites très élevées entre paires de spires. Le support est une feuille de kapton (polyimide) enroulée sur elle-même en forme de tube. On réalise soit un bobinage de fil de cuivre en accordéon dans le sens longitudinal soit, sur la feuille elle-même, un circuit imprimé à partir d'un dépôt de cuivre (figure 31).

La température est contrôlée par deux thermomètres à résistance de platine ou de carbone. Le premier, situé dans le mandrin porte-bobinages, reste fixe par rapport à l'enroulement chauffant et sert à la régulation. Le second est placé dans la tige porte-échantillon de façon à se trouver nettement en-dehors des bobinages de mesure, lorsque la tige est en position "mesure". En effet, s'il est trop près, les courants de Foucault induits dans ses bornes sont responsables d'un signal qui se superpose à celui de l'échantillon. Un bon

contact thermique avec l'échantillon est cependant obtenu par un barreau monocristallin de saphir synthétique pur sur lequel l'échantillon est directement collé (figure 30c).

L'étalonnage des thermomètres se fait de la manière suivante :

- Pour les thermosondes en platine ($R_0 = 50 \Omega$) : de 300 à 75 K on utilise les tables données par le fabricant (Comptoir Lyon-Alemand); de 75 à 30 K on se ramène à la courbe du National Bureau of Standards par une correction de résistance résiduelle mesurée à 4,2K.
- Quant aux sondes en carbone (Allen Bradley, 1/10 W, 68 Ω), la relation empirique [37] :

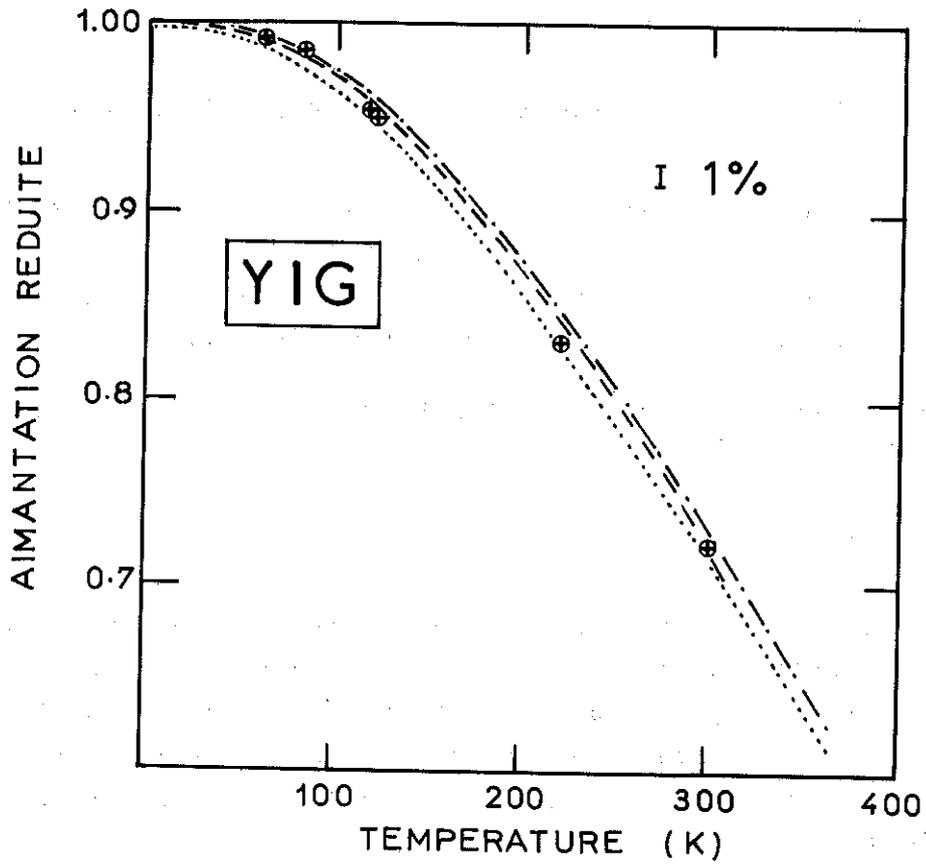
$$\frac{1}{T} = a \text{ Log } R + b + \frac{c}{\text{Log } R} \quad (42)$$

entre la température T et la résistance R est utilisée au-dessous de 30 K. Les coefficients a, b et c sont déterminés par une méthode de moindres carrés à partir de 4 points (T, R) mesurés dans l'hélium et l'hydrogène liquides sous pression réduite. Celle-ci est stabilisée à 0,1 Torr près par un régulateur de pression (manostat cartésien).

2-8 - Etalonnage de l'aimantation

La déviation verticale sur l'oscillogramme M(H) est directement proportionnelle à chaque instant au moment de l'échantillon étudié. La constante d'échelle est déterminée par comparaison avec un échantillon d'une substance connue, dont le moment est préalablement étalonné en champ statique. Nous avons choisi le ferrite grenat d'yttrium (YIG), sous forme de monocristal sphérique, pour de nombreuses raisons :

- c'est un composé chimiquement bien défini, très stable, et peu fragile,
- des monocristaux de taille suffisante sont disponibles (Cristal-Tec, C.E.N. Grenoble) avec un taux d'impureté très faible (< 10 ppm en métaux de transition 3d autres que Fe et < 20 ppm en métaux terres rares),
- c'est un bon isolant électrique : aucun courant de Foucault n'est à craindre.



..... Anderson [46]
-.-.- { Geller et coll. [44]
Gonano et coll. [47]
- - - - Zotov et coll. [48]
⊕ nos mesures

Figure 32 : Variation thermique de l'aimantation du YIG

- bien que les largeurs de raie de résonance soient très petites, les temps de relaxation sont suffisamment courts (quelques nanosecondes) pour ne pas perturber la forme de la courbe d'aimantation,
- l'anisotropie de l'aimantation et l'anisotropie magnétocristalline sont faibles [38,39]. La saturation expérimentale est atteinte dans quelques kOe et une orientation précise n'est pas nécessaire,
- la susceptibilité superposée à l'aimantation spontanée est très petite : à 4,2 K elle ne vaut que $21 \cdot 10^{-7}$ CGS dans 10 kOe et tend vers $1,1 \cdot 10^{-7}$ en champs intenses (> 50 kOe) [40]. L'accroissement relatif d'aimantation lorsque le champ appliqué passe de 10 kOe à 50 kOe est inférieur à $5 \cdot 10^{-4}$ et $5 \cdot 10^{-3}$ respectivement à 4,2 K et 300 K [40,41]. La détermination de l'aimantation spontanée est donc facile et très précise.

Le moment de notre sphère de référence ($\phi : 3,48$ mm) est mesuré à 4,2 K par une méthode d'extraction dans un aimant supraconducteur [40,42]. L'étalon est un monocristal sphérique de nickel. En prenant pour l'aimantation du nickel la valeur de 58,53 u.e.m./g à 4,2 K, nous trouvons un moment spontané de $4,360 \pm 0,004$ u.e.m. correspondant à $4,993 \pm 0,005 \mu_B$ par atome de fer. Cette valeur est très proche de la valeur attendue ($5,02 \pm 0,01 \mu_B$) d'après les mesures du facteur g des ions fer [43]. Nous avons vérifié que la courbe en champ extérieur suit la droite de champ démagnétisant d'une sphère jusque vers 800 Oe, aussi bien en champ statique que dans les champs pulsés les plus rapides.

La variation thermique de l'aimantation spontanée du YIG a fait l'objet de nombreuses études. Les plus récentes se recourent à 1 % près [44-48]. Les valeurs que nous avons mesurées en champ pulsé sont en bon accord (figure 32). Elles montrent que la correction de dilatation du support de bobinage doit être inférieure à 0,5 % entre 0 et 300 K et peut donc être négligée. Ce résultat confirme l'évaluation directe que l'on peut faire de cette correction en remarquant que le coefficient de couplage vis-à-vis du moment de l'échantillon varie comme l'inverse d'une longueur. En pratique, suivant le domaine de température envisagé, il suffit d'étalonner la chaîne de mesure à l'une des températures suivantes : 4,2 , 77 ou 300 K.

2-9 - La compensation des bobinages de mesure

Afin de réduire l'importance du signal résiduel de compensation, nous avons cherché à en connaître les facteurs prépondérants. Les nombreux essais que nous avons effectués pour cela, ne sauraient être décrits ici et nous n'en donnerons que les conclusions. Bien qu'il soit difficile de les séparer dans la pratique, il faut distinguer deux sortes de défauts de compensation :

- a - Les défauts "apparents" qui sont surajoutés par les circuits de mesure. Ils se traduisent par un déphasage dont l'élimination est délicate mais ne pose pas de problème de principe.
- b - Les défauts "à la source" dont l'origine se situe au niveau des bobinages de mesure. Ils sont les effets d'une même cause fondamentale : la carte de champ évolue avec le temps au cours de la décharge, en raison de la nature transitoire des champs magnétiques et des courants mis en jeu. Ceci se manifeste de plusieurs façons différentes :
 - des courants de Foucault sont induits dans toutes les pièces métalliques environnantes. Ils produisent une distribution de champ qui n'a pas la même géométrie ni la même phase que le champ principal de la bobine. Ceci est particulièrement net au niveau des flasques métalliques (figure 28) et les f.e.m. induites dans les fils de connection ne sont pas en phase avec le signal de mesure du champ ;
 - la répartition des lignes de courant de la bobine pulsée se modifie par déplacement des spires sous l'effet des efforts électrodynamiques. On vérifie que le défaut de compensation dépend beaucoup de l'état de serrage de la bobine ;
 - la distribution des lignes de courant dans une bobine en hélice varie, du fait du régime transitoire et des échauffements. C'est pourquoi l'on ne peut obtenir une compensation qui soit bonne à la fois pendant la première alternance du courant et pendant les suivantes ;
 - un déplacement relatif de la bobine de champ par rapport aux bobinages de mesure est probable mais n'a pu être mis en évidence directement ;
 - le défaut d'alignement des axes du système de mesure et de la bobine rend le système de bobinage dissymétrique vis-à-vis de la dépendance radiale du champ et un déplacement latéral du man-

drin-support a autant d'effet sur la compensation qu'un déplacement axial. C'est pour cette raison que la compensation est très mauvaise lorsque le système de mesure se trouve, ainsi que la bobine, directement plongé dans l'azote liquide. Celui-ci transmet les vibrations de la bobine au système de mesure et provoque également de petits déplacements par son ébullition.

Pour atteindre une bonne compensation, il faut donc prendre un certain nombre de précautions parmi lesquelles :

- un bon serrage de la bobine,
- une fixation rigide de celle-ci,
- une disposition aussi symétrique que possible des pièces métalliques importantes,
- une réduction des surfaces parasites entre les fils de connexion,
- un bon centrage.

Malgré cela le défaut de compensation ne peut être rendu très inférieur à 10^{-4} . Jusque vers 250 kOe, les effets de courants de Foucault prédominent et le signal résiduel a la forme caractéristique d'une spirale aplatie. Au-delà, la forme est de plus en plus irrégulière et ce sont les effets de déplacement qui deviennent prépondérants.

Nous avons donc été amenés à mettre au point une méthode pour retrancher de la mesure le signal observé sans échantillon, et ceci dans les meilleures conditions. L'erreur finale est ainsi réduite au manque de reproductibilité du défaut de compensation. L'échantillon est monté sur une tige indépendante qui se déplace à l'intérieur du support des bobinages de mesure. Des oscillogrammes $M(H)$ sont enregistrés sur film Polaroid (type 107-3000 ASA) alternativement lorsque l'échantillon est en place (position "mesure") et lorsqu'il est éloigné de quelques centimètres (position "compensation"). Sur chaque courbe obtenue, les coordonnées d'un certain nombre de points sont relevées avec une grande précision à l'aide d'une platine à déplacements X et Y micrométriques et d'un viseur à réticule. Ces points sont ensuite corrigés des différents défauts de linéarité, de distorsion et de dérive de l'ensemble oscilloscope-appareil photographique selon une procédure originale dont nous donnons le détail dans l'annexe C. La soustraction de deux courbes parallèlement à l'axe Y est alors effectuée dans de bonnes conditions, quelles que soient leurs positions sur l'écran cathodique.

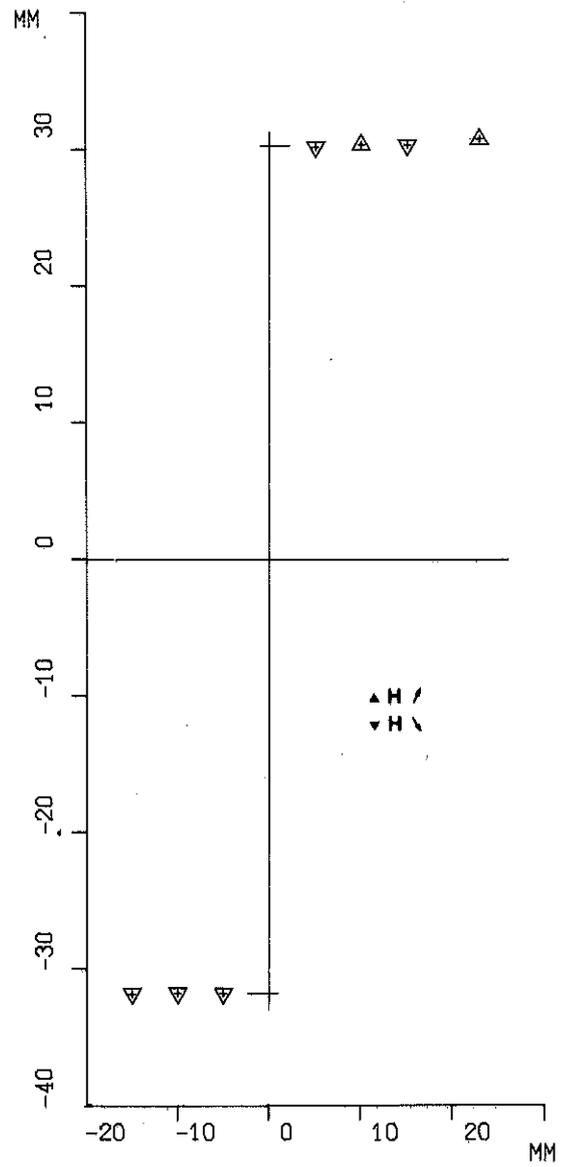
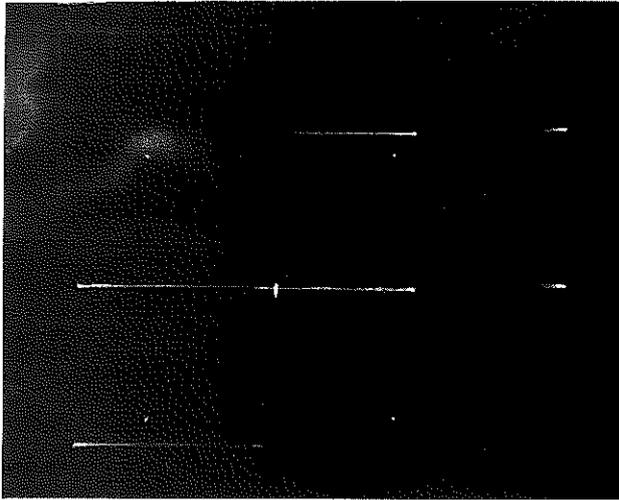


Figure 33 : Oscillogramme et relevé de courbe de YIG

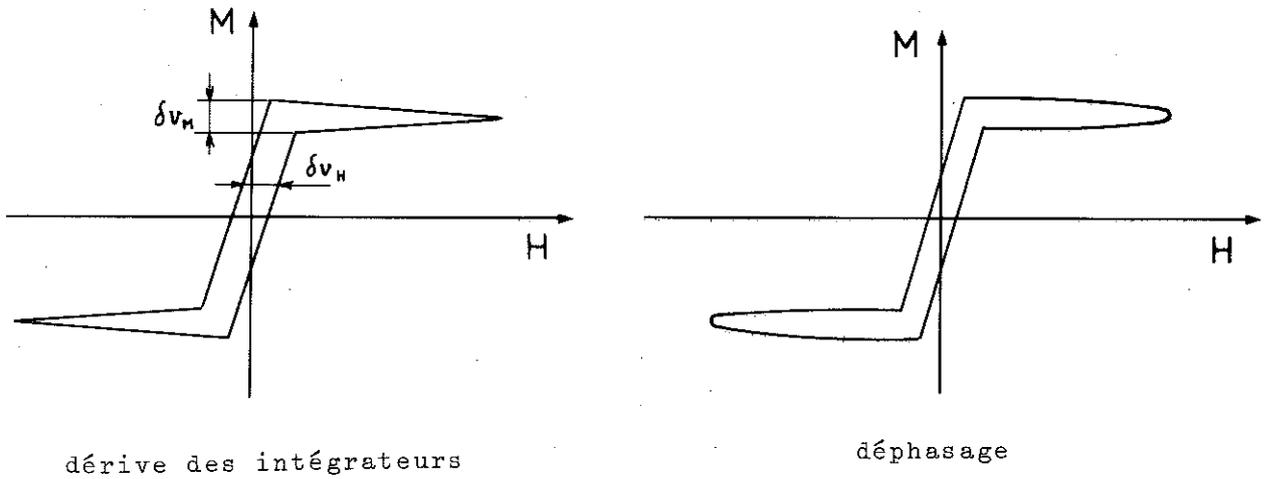


Figure 34 : Effet de déphasage et de dérive des intégrateurs

La forme particulièrement bien définie de la courbe d'aimantation du YIG nous a permis d'évaluer le degré de reproductibilité du défaut de compensation dans les conditions réelles de fonctionnement. Jusqu'à 150 kOe environ de champ maximal, le signal observé sans échantillon se superpose exactement à la courbe d'aimantation à la précision des erreurs de lecture (figure 33). Dans des champs plus intenses il apparaît un résidu (non reproductible) entre le signal "mesure" et le signal "compensation" qui est plus grand que la reproductibilité de chaque signal. Ceci s'explique par un léger déplacement radial de l'ensemble de mesure, permis par les jeux nécessaires à l'emboîtement des différents tubes et provoqué par le déplacement de la tige porte-échantillon entre les deux positions de mesure. C'est finalement cette non reproductibilité apparente qui limite la précision des mesures.

Dans la pratique on opère de la façon suivante : on cherche la position des bobinages de mesure qui rend minimum l'épaisseur de la boucle de compensation selon l'axe vertical (M) sans se préoccuper de son inclinaison sur l'axe horizontal (H). Ensuite le signal est rendu à peu près horizontal en ajustant le rapport du pont de résistances.

Notons enfin que la courbe d'aimantation du YIG nous permet de vérifier le bon fonctionnement et les réglages de la chaîne de mesure ; en particulier une dérive des intégrateurs ou un déphasage entre les signaux M et H sont immédiatement détectés (figure 34).

L'estimation des erreurs de mesure en fonction du champ maximal est résumée dans le tableau 2.

3 - INFLUENCE DE LA NATURE TRANSITOIRE DU CHAMP PULSE SUR LES MESURES

D'AIMANTATION

3-1 - Les courants de Foucault

Nous pouvons distinguer trois sortes d'effets dus aux courants de Foucault :

- a - les courants induits par le champ pulsé dans la bobine et les pièces métalliques avoisinantes sont responsables en partie de la mauvaise compensation des bobinages de mesure;

T A B L E A U 2

a) Erreurs sur les aimantations

H (kOe)	$\Delta\chi_v \times 10^5$ (uem/cm ³ /Oe)	$\Delta\chi \times 10^6$ (uem/g/Oe)	Δm (uem)	ΔM (uem/cm ³ =10 ³ A/m)
100	1	2	0,02	1
200	1	2	0,04	2
300	1	2	0,06	3
400	1,2	2,5	0,1	5
500	2	4	0,2	10

Nota : Les grandeurs ΔM , $\Delta\chi_v$ et $\Delta\chi$ sont évaluées pour un échantillon typique, de 20 mm³ de volume, pesant 0,1 g.

La précision ne peut être meilleure que 1 %, c'est-à-dire 2 fois l'erreur relative de lecture.

b) Erreur sur le champ

étalonnage : 0,5 %

lecture : 0,5 %

- b - les courants induits dans la bobine par la variation rapide du moment de l'échantillon sont à l'origine d'un effet analogue à un effet d'image magnétique ;
- c - les courants induits dans l'échantillon lui-même, lorsqu'il est conducteur, produisent, d'une part, un échauffement par effet Joule et créent d'autre part un champ magnétique qui se retranche de celui de la bobine pulsée. La distribution de ce champ n'est pas homogène, en particulier à l'intérieur de l'échantillon, et surtout, elle est équivalente à un moment diamagnétique induit qui se superpose au moment de l'échantillon.

Le premier effet ne dépend pas de la présence de l'échantillon. Il se trouve éliminé lorsqu'on retranche de la mesure, le signal enregistré sans échantillon. Par contre les deux derniers modifient directement le moment qui est mesuré. Leur importance dépend essentiellement du rapport entre un certain temps τ , qui caractérise l'amortissement des courants induits, et le temps de montée t_1 du champ magnétique. Ce temps τ est également, à un facteur près, le temps caractéristique de diffusion du champ magnétique dans les conducteurs concernés.

Montrons rapidement que l'effet d'image magnétique (b) est négligeable. Il est maximum lorsque le temps caractéristique d'amortissement des courants de Foucault est beaucoup plus grand que le temps de la mesure. L'effet de la masse conductrice de la bobine est alors équivalente à celle d'un milieu diamagnétique parfait. Le problème est donc tout à fait semblable à celui rencontré dans la mesure d'un moment lorsque le champ est produit par une bobine supraconductrice. Rebouillat [40] a montré que l'effet d'image $\frac{\Delta m}{m}$ est alors inférieur ou égal à 10^{-4} . La géométrie de son dispositif étant très semblable à la nôtre, nous pouvons raisonnablement penser qu'il en est de même dans notre cas.

Lorsque l'échantillon est conducteur, il est le siège de courants induits dont l'amortissement fait intervenir une distribution de constantes de temps. La plus grande d'entre elles, τ , devient rapidement prépondérante. On peut montrer par un calcul très simple reproduit dans l'annexe D, que les différents effets produits dépendent du paramètre $\omega\tau$, où ω est la pulsation du champ magnétique.

Si $\omega\tau$ est voisin de l'unité, le champ ne pénètre qu'en partie à l'intérieur de l'échantillon ; ceci revient à dire que l'intensité d'aimantation diamagnétique équivalente qui est développée dans le volume de l'échantillon correspond à une fraction importante du champ ; elle est alors supérieure d'un ordre de grandeur à l'aimantation propre de l'échantillon. De plus la densité d'énergie qui est dissipée est de l'ordre de la densité d'énergie magnétique comme nous l'avons déjà vu au chapitre précédent. L'échauffement qui en résulte peut être considérable.

Il est donc essentiel que $\omega\tau$ soit très petit devant 1 ; dans ce cas les effets sont proportionnels à $\omega\tau$ (voir annexe D). Trois conditions différentes sont à respecter pour que les courants induits puissent être négligés dans les mesures d'aimantation :

- a - le champ à l'intérieur de l'échantillon ne doit pas différer du champ extérieur de plus de 1 %. Ceci impose $\omega\tau < 10^{-2}$;
- b - l'aimantation induite doit être du même ordre que les autres erreurs. Pour qu'elle ne dépasse pas 1 u.e.m./cm³ dans un champ de 100 kOe il faut $\omega\tau < 10^{-4}$;
- c - l'échauffement produit doit être acceptable. A la température ambiante où la chaleur spécifique est de l'ordre de 1 J/cm³ cette condition est en général moins restrictive que la précédente. Par contre à très basse température, où les chaleurs spécifiques sont couramment inférieures à 0,01 J/cm³, une valeur $\omega\tau$ de 10^{-5} entraîne déjà un échauffement de quelques dixièmes de degré. La condition (c) devient donc prépondérante.

Expérimentalement, sur la courbe d'aimantation enregistrée, les courants de Foucault dans l'échantillon se traduisent par une ellipse superposée analogue à une ellipse de déphasage. Son amplitude est inversement proportionnelle à la résistivité de l'échantillon et peut servir à une estimation de cette dernière [52-54]. Une correction est possible si l'amplitude de l'ellipse n'est pas trop grande. Elle nous a permis d'étudier des échantillons en poudre dont la résistivité est de l'ordre de 10 $\mu\Omega$ cm [55]. Cependant une telle correction ne peut être précise, du fait de phénomènes non linéaires comme la variation de perméabilité magnétique ou la magnétorésistance de l'échantillon. C'est pour cette raison que nous avons abandonné l'étalonnage à partir de l'aimantation du nickel.

3-2 -Caractère adiabatique des mesures

Lors d'un processus d'aimantation isotherme, l'échantillon échange de la chaleur avec le milieu extérieur. Dans une expérience de champ pulsé, les variations de l'aimantation peuvent être suffisamment rapides pour que cet échange d'énergie n'ait pas lieu. En effet, l'égalisation des températures de l'échantillon et de son environnement à partir d'un déséquilibre initial, se fait avec une constante de temps τ_{th} . Si celle-ci est très supérieure au temps de montée t_1 du champ magnétique, le processus est adiabatique. Dans ce cas, la température de l'échantillon évolue avec le champ magnétique appliqué : c'est l'effet magnétocalorique. Pour évaluer son importance, il faut déterminer les courbes $T(H)$ définies par la condition

$$S(H, T) = c^{te} \quad (43)$$

L'expression de la pente de ces courbes isentropes dans une phase homogène découle directement de la condition (43) :

$$\frac{dT}{dH} \Big|_S = - \frac{T}{C_H} \left(\frac{\partial S}{\partial H} \right)_T = - \frac{T}{C_H} \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H ; \quad (44)$$

C_H est la chaleur spécifique totale à champ constant, dont la contribution principale à haute température est celle des phonons du réseau cristallin. Lors d'une transition du premier ordre, la courbe isentrope suit la ligne de coexistence de phase. La variation de température est produite par mise en jeu d'une chaleur latente $T\Delta S$. On remarquera que cela correspond toujours à un étalement en champ de la transition (figure 35). En général, la variation de température ne sera importante que dans les deux situations suivantes :

- Le système est magnétiquement peu saturé ; l'application d'un champ magnétique provoque une grande variation des paramètres d'ordre comme l'aimantation et donc de l'entropie. C'est le cas notamment au voisinage d'une température d'ordre.
- La température est suffisamment basse pour que la chaleur spécifique du réseau soit très faible.

D'autre part, le temps de relaxation thermique global τ_{th} , dépend de plusieurs processus élémentaires liés aux différents transferts d'énergie entre les sous-systèmes. En particulier, on peut défini-

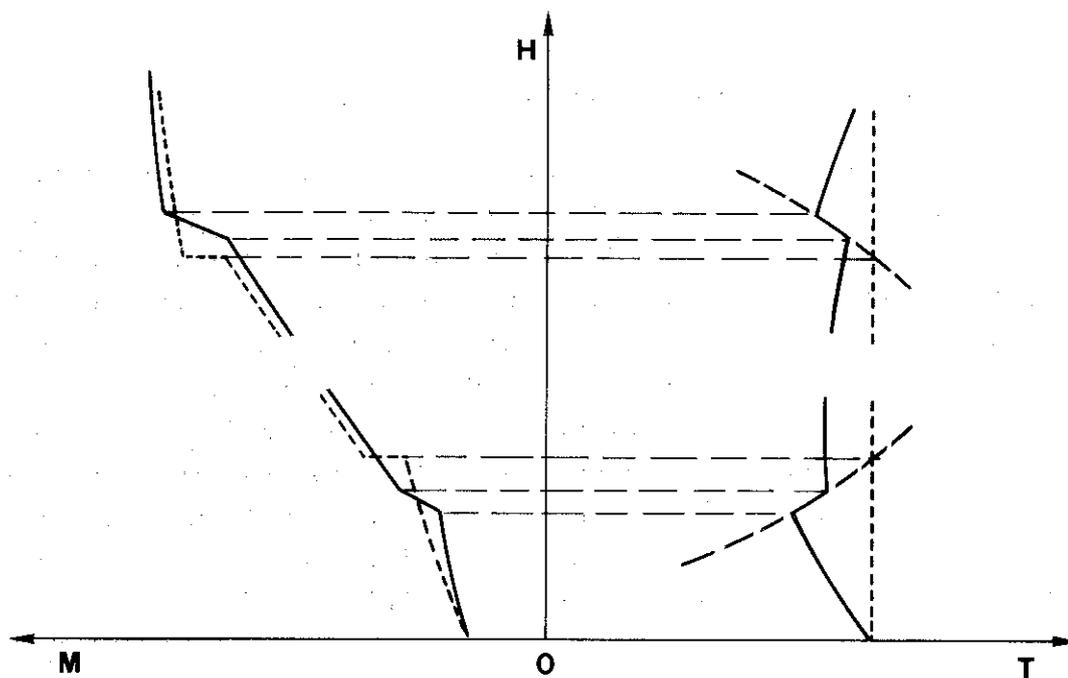


Figure 35 : Etallement en champ d'une transition du 1^{er} ordre pour un système magnétique isolé thermiquement

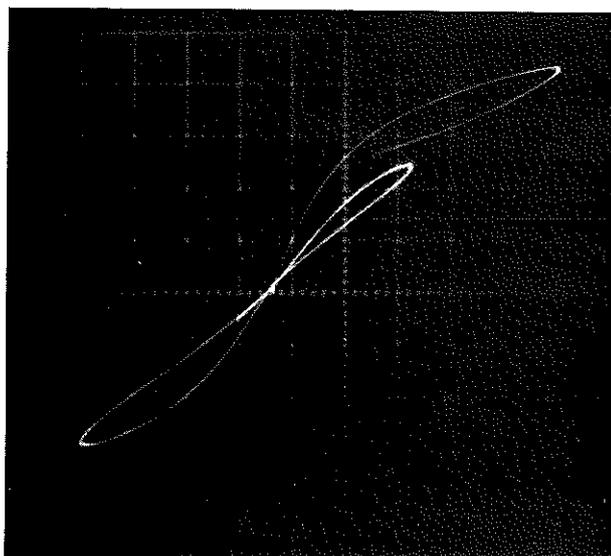


Figure 37 : Courbe d'aimantation de GdGaG

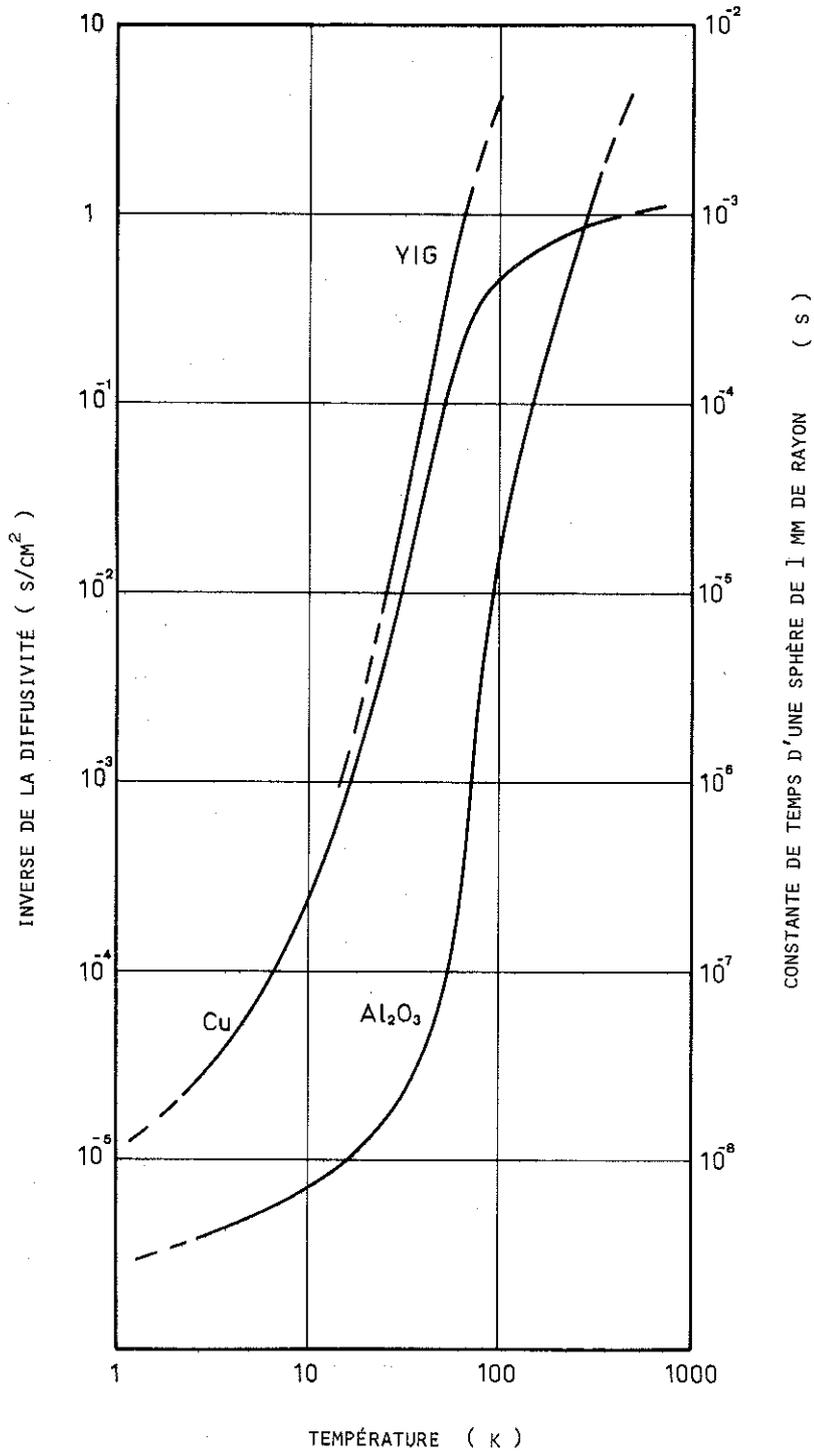


Figure 36

(D'après les valeurs de conductibilité thermique rassemblées par White [56] (saphir et Cu 99.999) et Slack et Oliver [57] (YIG).)

nir généralement :

- un temps τ_2 de mise en équilibre du système des spins ;
- un temps τ_1 de relaxation entre les spins et le réseau ;
- un temps τ_c lié à la résistance thermique de contact entre le réseau et le milieu environnant ;
- un temps τ_d correspondant à la diffusion de la chaleur dans l'échantillon.

Toutes ces constantes de temps varient énormément avec la température et il peut se faire que l'une d'elle soit comparable au temps de montée t_1 du champ magnétique. Nous aurons alors affaire à des transformations polytropiques intermédiaires entre les transformations isothermes et adiabatiques (au sens thermodynamique, pour le système comprenant les spins et le réseau). En général, sauf dans les états paramagnétiques, les temps τ_1 et τ_2 sont très courts et nous aurons à considérer seulement τ_c et τ_d . Ce dernier se calcule d'après les équations de diffusion de la chaleur [50, 51] ; il se met sous la forme :

$$\tau_d = g \cdot \frac{a^2}{D_{th}} \quad ; \quad (45)$$

g est un facteur de forme géométrique qui vaut $\frac{1}{\pi^2}$ pour une sphère ; a est une dimension caractéristique de l'échantillon (rayon de la sphère) ; D_{th} est la diffusivité thermique du matériau définie par

$$D_{th} = \frac{K}{C} \quad (46)$$

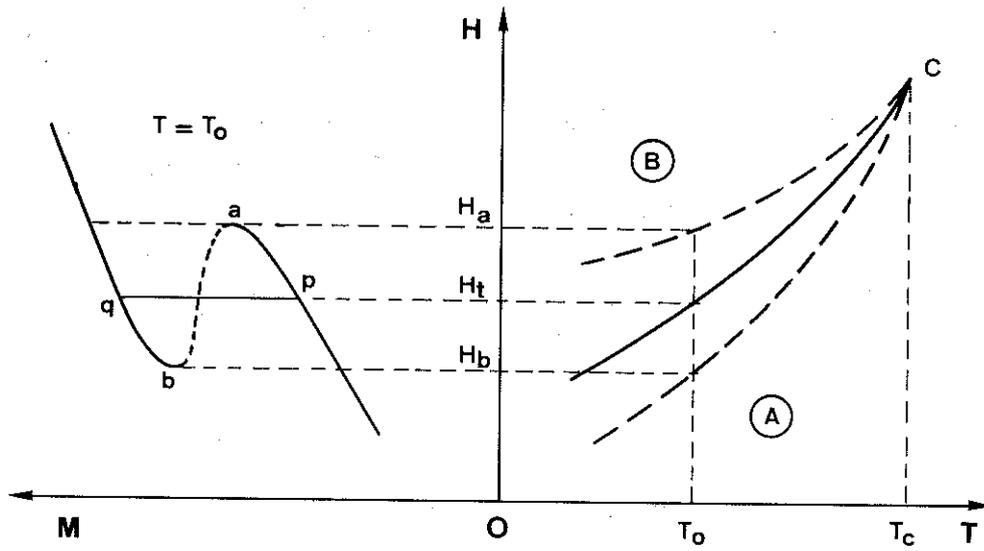
où K est la conductibilité thermique et C la chaleur spécifique. K et C varient très rapidement avec la température et il en est de même de $\frac{1}{D_{th}}$ dont nous avons représenté les variations pour diverses substances sur la figure 36. D'après les mesures de Slack et coll. [57] les courbes $\frac{1}{D_{th}}(T)$ pour les différents grenats s'écartent peu de celle de YIG. Pour ce dernier, lorsque $T > 100$ K et $a = 1$ mm, τ_d est supérieur à 10^{-3} s : au-dessus de 100 K, nos mesures seront donc certainement adiabatiques. Pour les températures inférieures à 10 K, les températures τ_d atteignent seulement quelques μ s et ne limitent plus le temps de réponse global.

Dans notre expérience, un temps de relaxation du même ordre de grandeur que le temps de montée du champ t_1 se traduit par une courbe d'aimantation en forme de boucle, de façon analogue à un déphasage entre les signaux M et H . Nous avons observé un tel phénomène à 4,2 K sur $GdAlO_3$ en poudre et sur un monocristal de $Gd_3Ga_5O_{12}$ ($GdGaG$) (figure 37). Ces deux composés sont paramagnétiques et il est probable

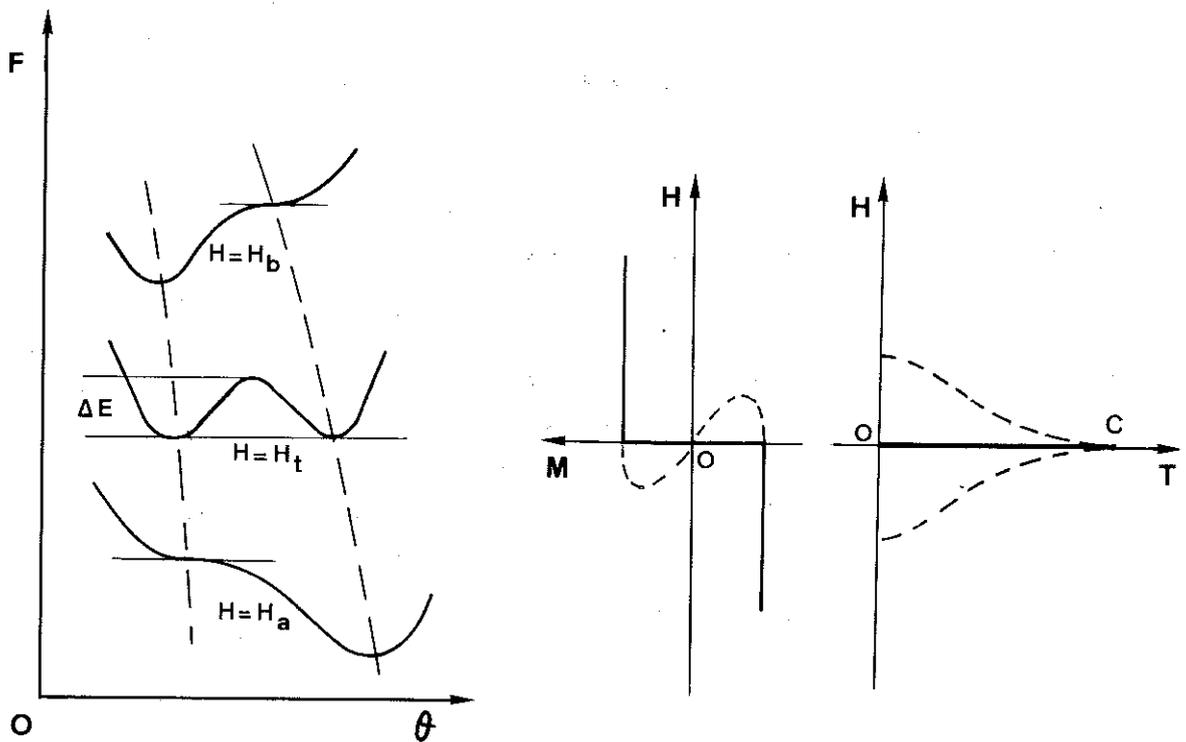
qu'il s'agisse d'un temps de relaxation spin-réseau comme dans le cas de $\text{CuCs}_2(\text{SO}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ étudié par de Vries et coll. [58]. Cependant, l'interprétation de nos courbes n'est pas aisée car ces temps de relaxation dépendent fortement de la température et du champ magnétique qui varient pendant l'expérience. Dans toutes nos mesures sur les ferrites grenats les courbes d'aimantation sont parfaitement réversibles dans la région du champ maximum ; le dernier point de la courbe est toujours un point de rebroussement sans aucun arrondi visible, et cela quel que soit le champ maximum. Nous pouvons donc en conclure qu'il n'y a pas de temps de relaxation voisin de 50 μs (bobine en hélice) ou de 1,5 ms (bobine en fil).

Peu d'études expérimentales ont montré directement l'influence de l'effet magnétocalorique sur les diagrammes de phase observés en champ pulsé. A notre connaissance, la seule étude approfondie est celle de Blazey et coll. [59]. Ces auteurs ont déterminé d'une part, les diagrammes isothermes du composé antiferromagnétique GdAlO_3 et, d'autre part les diagrammes pulsés correspondants. Ils ont observé des écarts de température sur la position des lignes de transition de phase allant jusqu'à 0,5 K près de la température de Néel (3,9 K). Ils ont pu interpréter ces écarts par un effet magnétocalorique calculé d'après leur modèle de champ moléculaire.

Pour notre part, nous avons effectué des mesures directes d'effet magnétocalorique sur le ferrite grenat d'ytterbium. Elles nous ont permis de construire le diagramme adiabatique et de vérifier que c'est bien ce dernier qui est observé en champ pulsé. Ces mesures sont détaillées au chapitre V de ce mémoire (figure 109, §3.2). Ce résultat nous montre que c'est la résistance thermique de contact entre l'échantillon et son support qui limite en fin de compte la cinétique des échanges thermiques avec le milieu extérieur. Nous vérifierons également au cours de l'étude des autres grenats que l'effet magnétocalorique est suffisamment faible à haute température, soit pour être négligeable (étude de GdIG au chapitre III), soit pour faire l'objet d'une correction (chapitre IV).



a)-cas général



b)-évolution des minima locaux de F

c)-ferromagnétisme

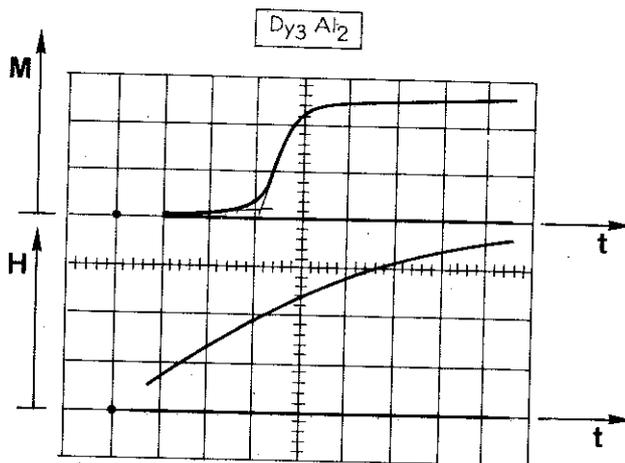
Figure 38 : Schémas relatifs aux transition du 1^{er} ordre

3-3 - Phénomènes d'hystérésis

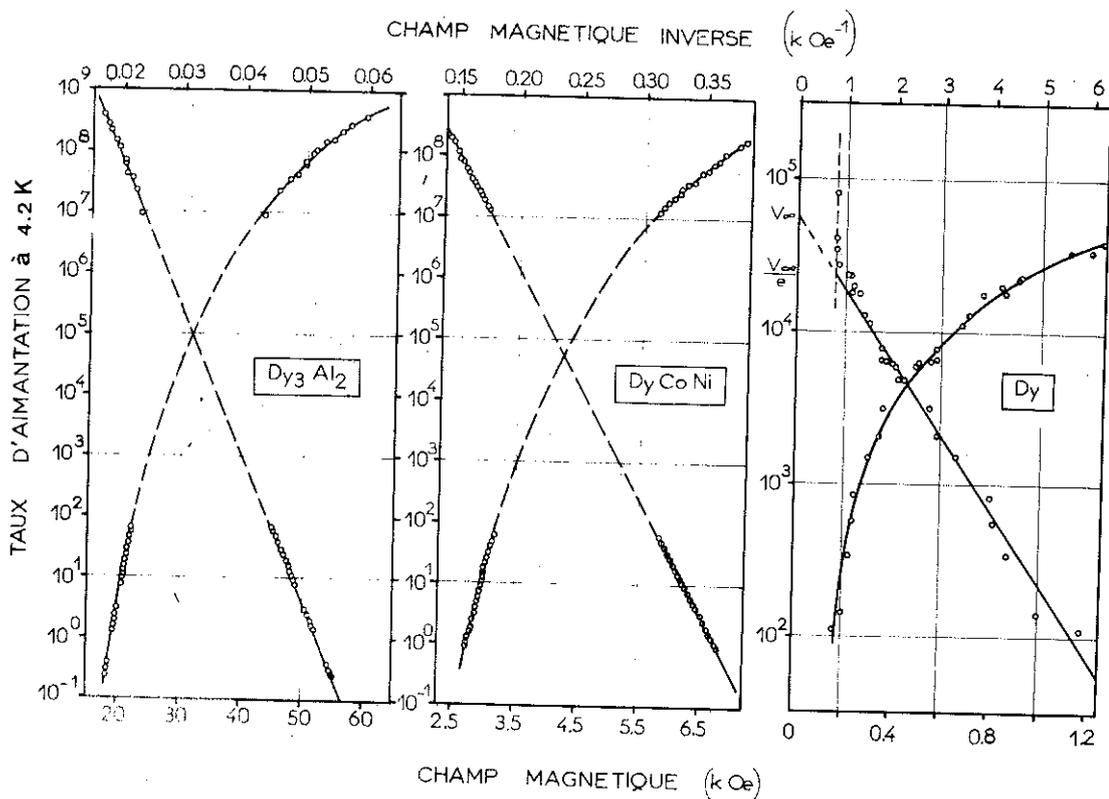
Au cours de l'étude qui va suivre, nous aurons l'occasion d'observer plusieurs transitions de phase qui présentent tous les caractères des transitions du 1er ordre. Elles sont accompagnées, lors des mesures en champ pulsé, d'un hystérésis important. La différence entre les champs de transition observés en champ croissant et en champ décroissant atteint dans certains cas 15 kOe. Une telle augmentation de l'hystérésis en champ pulsé par rapport à celle observée en champ continu a déjà été remarquée par Jacobs [60] dans l'étude de la transition métamagnétique de FeCl_2 . Ce phénomène semblait nouveau. En effet, la théorie de Néel des transitions métamagnétiques et de "spin-flopping" des antiferromagnétiques prévoit bien l'existence d'états métastables entre deux champs critiques supérieurs et inférieurs de part et d'autre du champ de transition H_t . Mais Néel [61] faisait remarquer que de tels états ne seraient sans doute pas observés pour la raison suivante : un certain nombre de défauts d'homogénéité jouent le rôle de centres de nucléation et la transition se produit dès que le champ atteint la valeur H_t , par croissance de la nouvelle phase et déplacement de la paroi de séparation.

L'étude plus approfondie de Callen et coll. [62], à l'aide de fonctions de Green, montre qu'un traitement plus exact ne change pas la nature du problème ; elle confirme que les champs critiques supérieurs et inférieurs sont les champs d'instabilité pour les modes uniformes des ondes de spin, c'est-à-dire les champs pour lesquels la fréquence de résonance de ces modes devient nulle. Quel que soit le modèle utilisé, nous sommes donc en présence du schéma classique des transitions du 1er ordre (figure 38).

L'état d'équilibre de chaque phase est défini par un minimum local de l'énergie libre F par rapport à certains paramètres. Dans les transitions de réorientation de spin qui nous préoccupent, ces paramètres seront les angles qui permettent de décrire la structure magnétique. Au ne température T_0 , les énergies libres à l'équilibre F_A et F_B des deux phases sont égales pour un champ H_t . Les phases A et B sont respectivement stables jusqu'à des champs H_a et H_b pour lesquels l'un des minima locaux disparaît en même temps que la barrière de potentiel qui les sépare. Lorsqu'un champ magnétique supérieur à H_a ou inférieur à H_b , est appliqué le système évolue spontanément quel que soit son



(a)



(b)

Figure 39

état initial vers le seul état stable possible, l'intervalle de temps nécessaire étant très court. Au contraire, si le champ appliqué se trouve dans l'intervalle $H_a - H_b$, l'état initial étant stable, il peut persister un certain temps avant que la nucléation et la croissance de l'autre phase ne soient importantes. Il faut donc s'attendre avec des champs appliqués rapidement variables à un effet de trainage qui se traduit par l'observation d'un hystérésis dont l'amplitude augmente avec la vitesse du champ.

La compréhension de ces phénomènes est grandement facilitée si l'on remarque que le retournement de l'aimantation d'un ferromagnétique n'est qu'un cas particulier de transition de réorientation du 1er ordre. La ligne de coexistence des deux phases correspondant aux deux orientations possibles de l'aimantation spontanée est alors confondue avec l'axe des températures et le champ H_t est nul (figure 38b). H_a et H_b sont les champs coercitifs calculés pour un échantillon monodomaine parfait. D'autre part, une étude détaillée de Mitsek [63] montre que les problèmes de nucléation sont également très semblables dans les antiferromagnétiques et dans les ferromagnétiques. Elle confirme en particulier que les parois à 180° entre domaines sont des centres naturels de nucléation pour la phase oblique (spin flop) comme l'avait suggéré Néel.

Nous pouvons donc penser que des phénomènes semblables existent dans les transitions de phase des ferrimagnétiques ; c'est sans doute pour cela que nous n'avons pas observé d'hystérésis dans l'étude de ces transitions en champs statiques (cf chapitre V).

En ce qui concerne les mesures en champs pulsés, nous avons observé une augmentation de l'hystérèse avec la vitesse d'application du champ. Une étude quantitative de cette dépendance n'a pu être faite car les variations sont en général très faibles et la précision sur les différences sont insuffisantes. Les domaines de température où la dépendance est la plus marquée sont ceux où le champ de transition varie fortement avec la température. Les variations dues à un léger manque de reproductibilité de la température, sont alors du même ordre de grandeur que celles qu'il faut étudier.

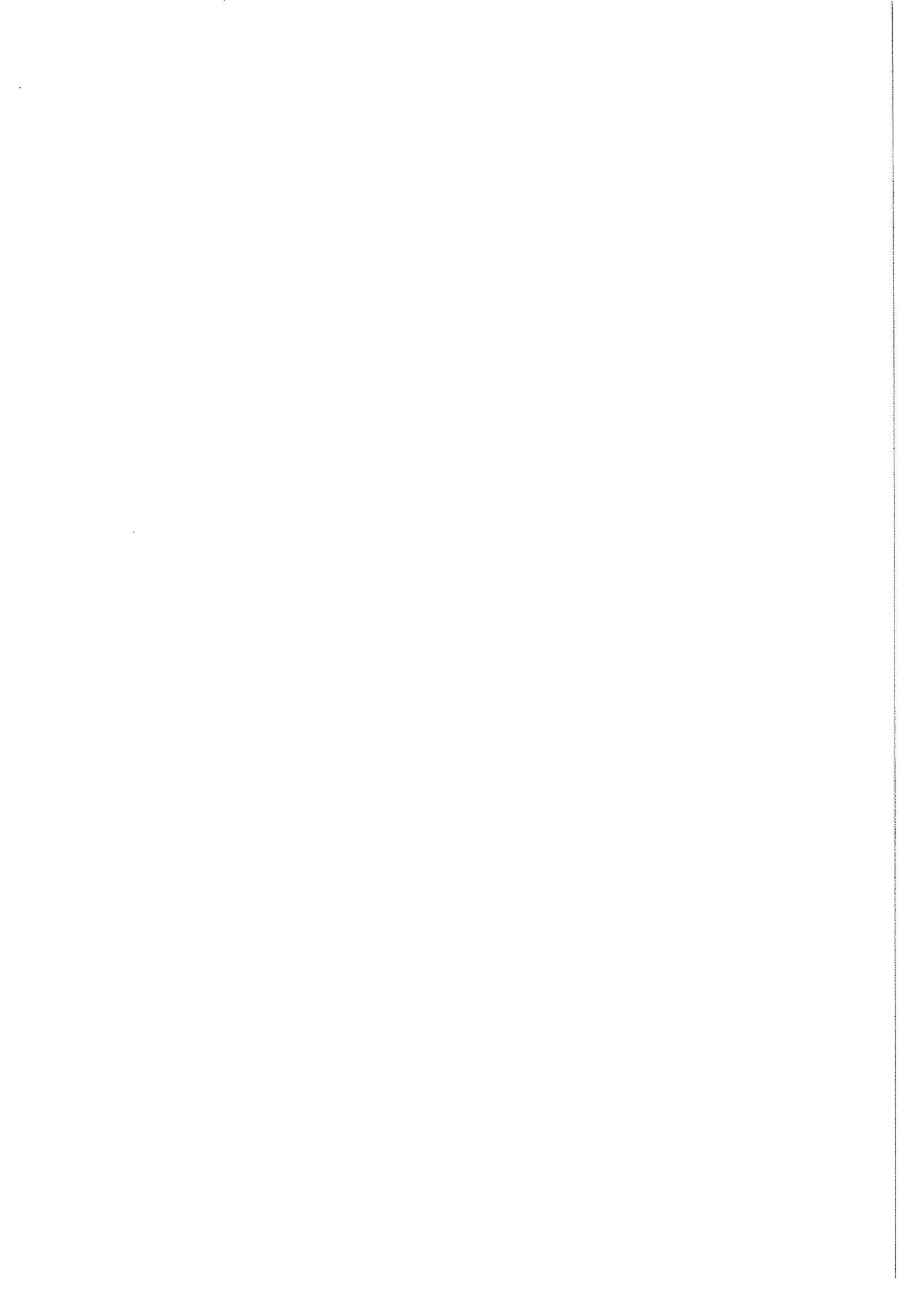
Nous montrerons cependant au chapitre IV que, dans le cas du ferrite grenat d'holmium, le champ d'inversion de la structure coliné-

aire observé en champs pulsés est très proche du champ d'instabilité calculé. Ce n'est pas le cas du ferrite grenat de gadolinium dont l'anisotropie est d'un ordre de grandeur plus faible. Il semble donc que la limite de stabilité ne soit approchée que si l'anisotropie est suffisamment grande.

Ceci semble également confirmé par l'étude quantitative que nous avons effectuée sur des composés ferromagnétiques à forte anisotropie comme Dy_3Al_2 et $DyNiCo$. Pour ceux-ci, les constantes de temps du phénomène sont assez grandes pour être observées en champs quasi-statiques. Ceci nous a permis, en reliant les mesures en champs pulsés et les mesures en champs continus, de couvrir une grande gamme de vitesse [64]. Nous voyons sur la figure 39 que ces mesures s'interprètent bien par une loi empirique de la forme :

$$\frac{dM}{dt} = A \exp \left(- \frac{H}{H_0} \right) \quad (47)$$

où H_0 est une constante. La comparaison avec les résultats de Egami [65] sur le dysprosium métallique montre que la constante H_0 est reliée aux constantes d'anisotropie et, qu'à partir d'une certaine vitesse d'application du champ, le champ seuil reste constant et caractérise un champ de propagation intrinsèque aux parois entre domaines. La loi (47) correspond donc à une cinétique de nucléation. Barbara [66] a montré que ce champ de propagation intrinsèque atteint une valeur comparable au champ d'anisotropie lorsque la paroi ne s'étend que sur une seule distance interatomique. Pour les ferromagnétiques, il est donc peu vraisemblable qu'on puisse atteindre la limite de stabilité. D'autre part, à des températures de quelques degrés K, l'activation thermique devenant inefficace, la nucléation doit se faire par effet tunnel quantique [67, 68]. Il serait donc intéressant de chercher dans quelles conditions la loi (47) est applicable au lieu d'une loi de trainage classique comme celle observée par Schlachetzki [69], et si elle reste valable à toute température.



DEUXIÈME PARTIE

LES TRANSITIONS DE PHASE INDUITES PAR UN CHAMP MAGNÉTIQUE INTENSE

DANS LES GRENATS FERRIMAGNÉTIQUES DE TERRES RARES

AVANT-PROPOS

Une partie de ce travail, concernant les grenats ferrimagnétiques de terres rares, a été faite en collaboration étroite avec Gérard Hug qui a soutenu sa thèse le 23 mars 1972 en faisant état des résultats expérimentaux déjà acquis.

Nous reprenons un grand nombre d'entre eux en leur donnant une interprétation différente à la lumière des nouveaux résultats qui ont été obtenus depuis.

L'essentiel du chapitre III a fait l'objet d'une publication au Journal de Physique [70]. Notre souci en l'incorporant à notre manuscrit a surtout été d'en rendre l'exposé plus complet et de donner une certaine unité à notre mémoire ; les résultats de la théorie isotrope étant souvent utilisés dans les chapitres suivants.

G É N É R A L I T É S

Les ferrimagnétiques forment la catégorie des substances magnétiques dont les propriétés ont été expliquées les dernières puisque ce n'est qu'en 1948 que Néel [71] en fit une théorie. Huit ans plus tard, Tyablikov [72] montre que l'alignement complet des moments dans un champ intense doit se produire par rotation progressive de ceux-ci entre deux champs limites avec une susceptibilité constante. Cette idée est reprise par Schlömann [73,74] en 1958, puis par certains auteurs russes. En particulier Gusev et Pakomov [75-77] s'intéressent aux configurations stables d'un système à trois sous-réseaux. Perthel [78-80] et Munschy [81,82] traitent le cas de deux sous-réseaux en présence d'une anisotropie cubique et uniaxe.

Toutes ces études théoriques sont faites dans le voisinage immédiat du zéro absolu et le mérite revient à Clark et Callen, en 1968, d'avoir calculé en fonction de la température et du champ le diagramme de phase d'un ferrimagnétique isotrope à deux sous-réseaux [83]. Ils ont apporté les premières preuves expérimentales de l'existence d'une structure non colinéaire induite par le champ. De telles structures résultent d'un compromis entre l'énergie d'échange, l'énergie Zeeman et l'anisotropie magnétocristalline. Leur étude permet de préciser ces différentes interactions. Cependant, malgré les travaux ultérieurs de Clark et de ses collaborateurs d'une part [84-88], de Belov et de son groupe d'autre part [89-91], les expériences en ce domaine sont encore peu nombreuses et leur confrontation avec des modèles simples est restée très qualitative.

C'est pourquoi, nous avons entrepris d'approfondir expérimentalement et théoriquement l'étude des diagrammes de phase des ferrites grenats de terres rares. Ceux-ci ont un certain nombre d'avantages :

- L'occupation des trois sites cristallographiques par les ions Fe^{3+} et terres rares est bien définie.
- Les propriétés magnétiques connues s'expliquent bien en admettant l'existence d'un couplage d'échange faible entre les ions terres rares et les ions Fe^{3+} , alors que le couplage entre les ions Fe^{3+} des deux sites est fort.
- Les interactions entre terres rares sont négligeables.
- Le moment orbital des ions Fe^{3+} étant nul, toute l'anisotropie magnétocristalline pourra être attribuée aux seuls ions terres rares.
- De plus, la plupart de ces ferrites possèdent une température de compensation (ou d'inversion) pour laquelle l'aimantation spontanée s'annule. Ceci implique l'existence de structures non colinéaires dans des champs faibles.

Dans le chapitre III, nous développons la théorie des ferrimagnétiques isotropes dans le cadre d'une approximation de champ moléculaire. Les propriétés des différentes configurations et la construction du diagramme de phase sont établies pour les systèmes à trois sous-réseaux magnétiques. La mesure en champ pulsé des champs de transition du ferrite grenat de gadolinium fournit une vérification quantitative de ce modèle.

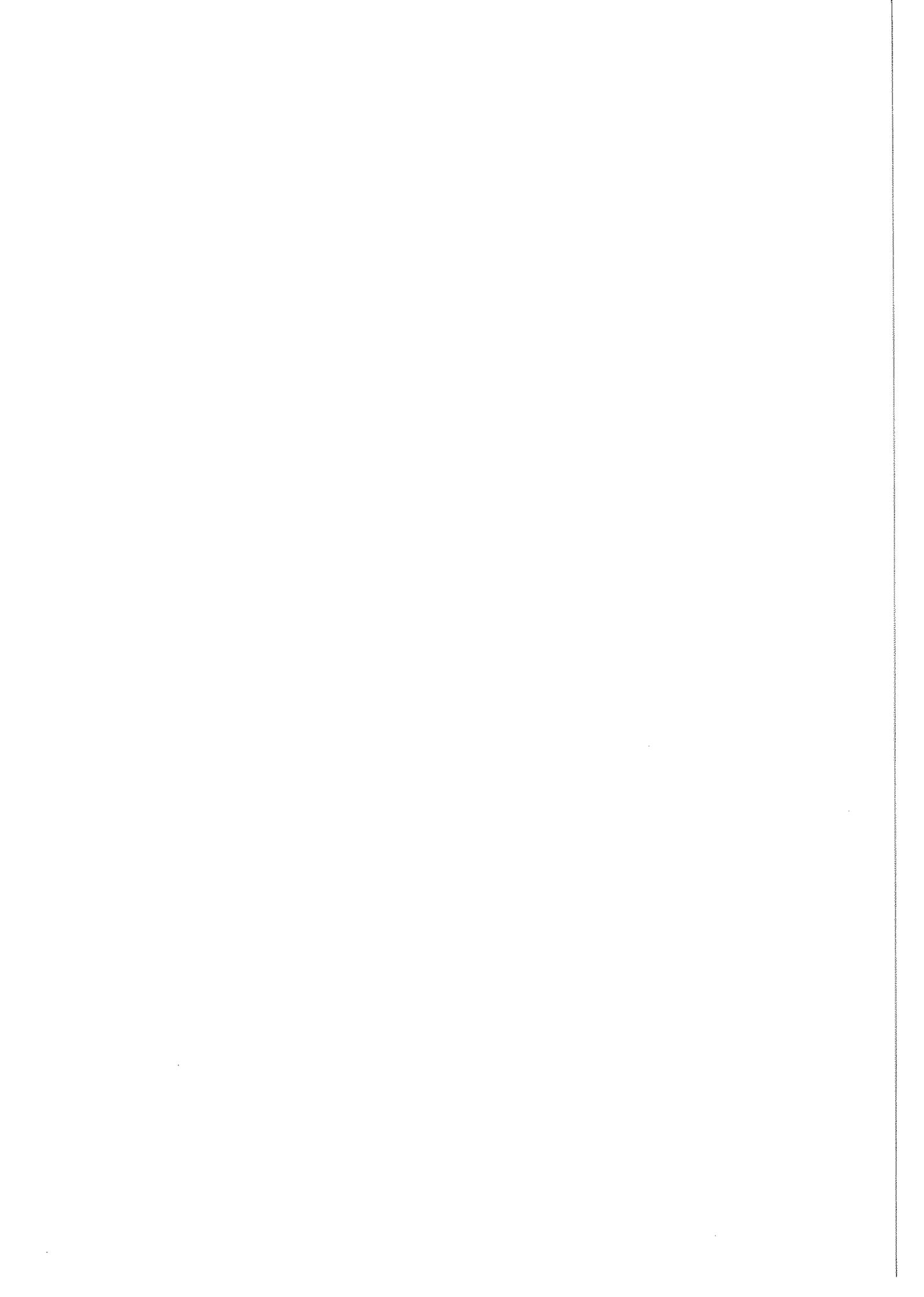
Dans le chapitre suivant, nous tenons compte de l'anisotropie magnétocristalline qui, dans les grenats ferrimagnétiques de terres rares, provient en grande partie de l'anisotropie des interactions d'échange fer-terres rares. Le cas général ne peut plus être traité analytiquement comme le cas isotrope précédent et les propriétés des configurations obliques ne sont accessibles que par un calcul numérique. Cependant, l'allure du diagramme de phase peut être déduit de l'étude des limites de stabilité des configurations colinéaires lorsqu'un champ magnétique est appliqué selon une direction de haute symétrie du cristal. Pour cela, nous utiliserons la notion de champ d'anisotropie qui traduit de façon commode le comportement du système vis-à-vis des faibles écarts à la direction d'équilibre considérée. Comme il est prévisible, l'influence de l'anisotropie se manifeste surtout au voisinage de la température de compensation du fait de la faible valeur du moment spontané. Les champs de transition, mesurés

sur des monocristaux de grenats d'erbium et d'holmium, pour différentes orientations du champ appliqué, sont interprétés dans le cadre de ces approximations.

Le dernier chapitre est consacré à l'étude détaillée du grenat d'ytterbium. En effet, dans ce composé la situation se présente de façon très favorable tant sur le plan expérimental que théorique :

- Le doublet fondamental des ions Yb^{3+} est bien séparé des niveaux supérieurs [92,93].
- L'anisotropie de son énergie Zeeman, due au champ cristallin, et celle des interactions d'échange sont relativement bien connues [94,95].
- La température de compensation est très basse (8 K) et l'ensemble du diagramme de phase doit être situé en-dessous de 20 K.
- A ces températures, les sous-réseaux d'ions fer sont saturés, ce qui simplifie notablement les calculs.
- La forte anisotropie d'échange provoque l'apparition sous champ de plusieurs structures non colinéaires.

Pour caractériser les transitions entre les différentes configurations, des expériences en champs pulsés sont complétées par des études d'aimantation, de chaleurs spécifiques et d'effet magnétocalorique en champs quasi-statiques. Ces résultats sont comparés au modèle microscopique de champ effectif proposé par Wolf [96] où sont inclus les effets de l'anisotropie du champ cristallin et des interactions d'échange. Nous discutons de la possibilité, pour ce modèle, d'expliquer avec précision l'ensemble des expériences faites sur le grenat d'ytterbium.



CHAPITRE III

DIAGRAMME DE PHASE D'UN FERRIMAGNÉTIQUE ISOTROPE :

APPLICATION AU GRENAT DE GADOLINIUM

1 - LES FERRIMAGNÉTIQUES ISOTROPES A L'APPROXIMATION DU CHAMP

MOLECULAIRE. METHODE DES COEFFICIENTS GENERALISES

Considérons une substance où les interactions des ions magnétiques sont décrites par un hamiltonien de spin fictif qui comprend un terme d'échange isotrope de type Heisenberg-Dirac et un terme Zeeman :

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_a \sum_{b \neq a} J_{ab} \vec{\sigma}_a \cdot \vec{\sigma}_b - \mu_B \sum_a g_a \vec{H}' \cdot \vec{\sigma}_a \quad (1)$$

$\vec{\sigma}_a$ et g_a sont respectivement le spin et le facteur de décomposition spectroscopique de l'ion du site a ; \vec{H}' est le champ magnétique interne et μ_B le magnéton de Bohr.

Dans l'approximation du champ moléculaire $\vec{\sigma}_a$ et $\vec{\sigma}_b$ sont remplacés par leurs valeurs moyennes $\langle \vec{\sigma}_a \rangle$ et $\langle \vec{\sigma}_b \rangle$ et les différents sous-réseaux sont définis par invariance de translation :

$$\langle \vec{\sigma}_a \rangle = \langle \vec{\sigma}_i \rangle \quad \forall a \in \text{sous-réseau } \{i\}.$$

Tout se passe comme si le moment $\vec{\mu}_a = g_a \mu_B \vec{\sigma}_a$ de chaque site a du sous-réseau $\{i\}$ était soumis au champ effectif :

$$\vec{H}_i = \vec{H}' + \sum_{b \neq a} J_{ab} \langle \vec{\sigma}_b \rangle \quad (2)$$

dont les fluctuations sont négligées et qui fixe la direction de quantification sur ce site.

Si N_i est le nombre de sites du sous-réseau $\{i\}$ son aimantation macroscopique \vec{M}_i est :

$$\vec{M}_i = N_i \vec{\mu}_i = N_i g_i \mu_B \langle \vec{\sigma}_i \rangle ; \quad (3)$$

l'aimantation totale étant $\vec{M} = \sum_i \vec{M}_i$. Nous devons supposer l'échantillon sphérique pour ne pas introduire d'anisotropie de forme ; l'énergie de champ démagnétisant est alors simplement : $E_d = \frac{1}{2} D M^2$ et la constante de champ démagnétisant D est un scalaire positif. L'énergie magnétique totale se met sous la forme [72,75] :

$$E = - \frac{1}{2} \sum_{i,j} n_{ij}^! \vec{M}_i \cdot \vec{M}_j - \sum_i \vec{H}^! \cdot \vec{M}_i + \frac{1}{2} D M^2 \quad (4)$$

où les coefficients de champ moléculaire $n_{ij}^!$ et les constantes d'échange J_{ab} sont reliés par [76,77] :

$$\left\{ \begin{aligned} n_{ij}^! &= \frac{1}{N_i N_j g_i g_j \mu_B^2} \sum_{a \in \{i\}} \sum_{\substack{b \in \{j\} \\ \neq a}} J_{ab} \\ &= \frac{1}{N_j g_i g_j \mu_B^2} \sum_{\substack{b \in \{j\} \\ \neq a}} J_{ab} \end{aligned} \right. \quad (5)$$

Nous supposons que ces relations sont valables à toute température et nous admettons que la relation entre la moyenne statistique du moment $\vec{\mu}_i$ et le champ effectif \vec{H}_i a la forme :

$$\frac{\overline{\vec{\mu}_i}}{\mu_i} = B_i \left(\frac{\vec{\mu}_i \cdot \vec{H}_i}{kT} \right) \quad (6)$$

La fonction B_i est monotone ; elle s'identifie avec une fonction de Brillouin si l'état fondamental des ions du type i est un multiplet non perturbé. Pour raisonner sur des valeurs macroscopiques il faut introduire les fonctions thermodynamiques standards.

En premier lieu, l'entropie du système magnétique est une fonction additive par rapport aux différents sous-réseaux. Pour chacun d'eux, elle ne dépend que du degré d'ordre qui est représenté par

le rapport $\frac{M_i}{M_{i0}}$ du module de l'aimantation $M_i = N_i \cdot \overline{\mu_i}$ à l'aimantation à saturation absolue $M_{i0} = N_i \cdot \mu_i$. Elle a pour expression [97] :

$$S = - \sum_i N_i k \int_0^{\frac{M_i}{M_{i0}}} B_i^{-1}(x) dx \quad (7)$$

où k est la constante de Boltzmann et B_i^{-1} la fonction inverse de la fonction B_i . On vérifie aisément à partir de cette expression de l'entropie que, pour un champ appliqué \vec{H} et une température T , les aimantations \vec{M}_i sont celles qui rendent minimale l'énergie libre $G = E - TS$. En effet, l'annulation des variations de G donne les équations d'équilibre :

$$\vec{H}_i \wedge \vec{u}_i = 0 \quad (8)$$

$$\frac{M_i}{M_{i0}} = B_i \left(\frac{\mu_i}{kT} \vec{H}_i \cdot \vec{u}_i \right) \quad (8')$$

Les vecteurs unitaires \vec{u}_i étant définis par

$$\vec{M}_i = M_i \cdot \vec{u}_i \quad (9)$$

Ces relations (8) et (8') sont équivalentes à (2) et (6) car les champs effectifs sont identiques à ceux qui sont définis plus haut :

$$\vec{H}_i = - \frac{1}{M_i} \frac{\partial G}{\partial \vec{u}_i} = \vec{H} + \sum_j (n'_{ij} - D) \vec{M}_j \quad (10)$$

$$\vec{H}_i = \vec{H}' + \sum_j n'_{ij} \vec{M}_j$$

Remarquons que, pour tenir compte du champ démagnétisant, nous pouvons utiliser de nouveaux coefficients de champ moléculaire $n'_{ij} = n_{ij} - D$ de façon à garder aux expressions (10) la même forme en champ externe qu'en champ interne.

La symétrie de la matrice des coefficients n'_{ij} conduit directement, à partir des expressions (8), (9) et (10), à la relation $\vec{H} \wedge \vec{M} = 0$. Elle traduit la propriété de l'aimantation totale \vec{M} d'un système magnétique isotrope d'être toujours colinéaire au champ appliqué \vec{H} .

L'inverse de la susceptibilité est donc un scalaire positif $\lambda(H,T)$ défini par :

$$\boxed{\vec{H} = \lambda \vec{M}} \quad (11)$$

De même les aimantations \vec{M}_i sont colinéaires aux champs effectifs \vec{H}_i et les relations (8) sont équivalentes aux équations :

$$\boxed{\vec{H}_i = \lambda_i \vec{M}_i} \quad (12)$$

où les scalaires $\lambda_i(H,T)$ jouent le rôle de multiplicateurs de Lagrange.

Définissons des coefficients de champ moléculaire généralisés

$$\boxed{\lambda_{ij} = n_{ij} + \lambda} \quad (13)$$

Les équations de champ moléculaire s'écrivent alors :

$$V_i \left\{ \begin{array}{l} \sum_j (\lambda_{ij} - \lambda_i \delta_{ij}) \vec{M}_j = 0 \\ M_i = M_{io} B_i \left(\frac{\mu_i \lambda_i M_i}{kT} \right) \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (14) \\ (14') \end{array}$$

Le champ \vec{H} n'y apparaît plus explicitement, mais seulement par l'intermédiaire du paramètre λ . Le problème de la recherche des configurations d'équilibre des \vec{M}_i est donc formellement le même avec ou sans champ magnétique appliqué.

Nous pouvons discuter les solutions du problème en utilisant la nature vectorielle des équations (14). Les relations qui permettent de calculer les λ_i sont obtenues en écrivant les conditions de compatibilité entre les coefficients $\lambda'_{ij} = \lambda_{ij} - \lambda_i \delta_{ij}$ pour que le système des équations vectorielles (14) soit vérifié.

Soit n le nombre de sous-réseaux. La matrice A des coefficients λ'_{ij} définit une application linéaire f de R^n dans R^n . Les vecteurs \vec{M}_i peuvent être considérés canoniquement comme des vecteurs de

R^n appartenant au sous-espace R^3 . Soient d , le rang du système des vecteurs \vec{M}_i , c'est-à-dire la dimension du sous-espace engendré A , et r le rang de la matrice A qui est par définition le rang de l'application f . Les équations (14) expriment que A est contenu dans le noyau $f^{-1}\{0\}$ de f . La dimension du noyau étant égale à $n-r$, on en déduit les deux inégalités :

$$\left\{ \begin{array}{l} d \leq 3 \quad (ACR^3) \\ d \leq n-r \quad (ACf^{-1}\{0\}) \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (15) \\ (15') \end{array}$$

Si $r = n$ on retrouve le fait que les équations (14) n'admettent que la solution triviale pour les \vec{M}_i : $d = 0$. Lorsque le système des vecteurs \vec{M}_i est colinéaire ($d = 1$), coplanaire ($d = 2$) ou quelconque ($d = 3$), le rang r est au plus égal à $n-d$ et les relations cherchées entre les λ_{ij} sont obtenues en écrivant que tous les déterminants mineurs d'ordre $n-d+1$ de la matrice A sont nuls. Ceci n'est pas toujours possible. Dans le cas général, lorsque tous les n_{ij} sont différents, l'ordre minimum des mineurs non nuls de la matrice A , et par suite le rang r de celle-ci, n'est pas quelconque. La condition (15) sur le rang des systèmes de vecteurs \vec{M}_i est alors restrictive si $n - r \leq 3$ et impose à ces derniers d'être coplanaires.

De façon plus précise, pour les premières valeurs de n , nous avons les situations suivantes :

1 - Configuration colinéaire ($d = 1$)

$$\left. \begin{array}{l} \bullet n = 2 \quad , \quad r = 1 \\ \bullet n = 3 \quad , \quad r = 2 \\ \bullet n = 4 \quad , \quad r = 3 \\ \bullet \dots \quad , \quad \dots \end{array} \right\} \text{ solutions toujours possibles}$$

2 - Configuration non colinéaire mais coplanaire ($d = 2$)

$$\left. \begin{array}{l} \bullet n = 2 \quad , \quad r = 0 \\ \bullet n = 3 \quad , \quad r = 1 \\ \bullet n = 4 \quad , \quad r = 2 \\ \bullet \dots \quad , \quad \dots \end{array} \right\} \begin{array}{l} \text{n'existe que sous champ} \\ \text{solutions possibles sans} \\ \text{restriction sur les } n_{ij} \end{array}$$

3 - Configuration ni colinéaire, ni coplanaire (d = 3)

$$\left. \begin{array}{l} \bullet n = 3 \quad , \quad r = 0 \\ \bullet n = 4 \quad , \quad r = 1 \\ \bullet \dots \quad , \quad \dots \end{array} \right\} \begin{array}{l} \text{ces solutions n'existent qu'avec} \\ \text{certaines conditions sur les } n_{ij}. \end{array}$$

Par exemple, dans le premier cas, il faut que $n_{12} = n_{13} = n_{23}$ et dans le second $n_{12} = n_{13} = n_{14}$ d'une part et $n_{23} = n_{24} = n_{34}$ d'autre part [98]. Ces relations ne sont physiquement vraisemblables que si les ions sont de même nature. Elles correspondent à des cas particuliers de décomposition en plusieurs sous-réseaux.

Nous nous intéressons uniquement aux situations à deux et trois sous-réseaux avec des ions de types différents et des interactions distinctes entre chacun d'eux. La discussion précédente montre que les configurations sont alors soit coplanaires, soit colinéaires et nous verrons dans les paragraphes suivants que leur résolution complète est possible. Nous examinerons donc d'abord le cas des ferrimagnétiques isotropes à deux sous-réseaux puis nous appliquerons cette méthode des coefficients généralisés aux systèmes à trois sous-réseaux. Nous montrerons que ce dernier cas constitue une bonne approximation de la structure des grenats ferrimagnétiques à haute température.

2 - DIAGRAMME DE PHASE D'UN FERRIMAGNETIQUE ISOTROPE A DEUX

SOUS-RESEAUX

Les équations (14) et (14') s'écrivent explicitement pour deux sous-réseaux :

$$\left\{ \begin{array}{l} (n_{11} + \lambda - \lambda_1) \vec{M}_1 + (n_{12} + \lambda) \vec{M}_2 = 0 \\ (n_{12} + \lambda) \vec{M}_1 + (n_{22} + \lambda - \lambda_2) \vec{M}_2 = 0 \end{array} \right. \quad (16)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} M_1 = M_{10} B_1 \left(\frac{\mu_1 \lambda_1 M_1}{kT} \right) \\ M_2 = M_{20} B_2 \left(\frac{\mu_2 \lambda_2 M_2}{kT} \right) \end{array} \right. \quad (16')$$

en se souvenant que : $\vec{H} = \lambda(\vec{M}_1 + \vec{M}_2)$.

2-1 - La configuration oblique

Pour que la configuration des moments \vec{M}_1 et \vec{M}_2 ne soit pas colinéaire, avec cependant des modules M_1 et M_2 strictement positifs, il faut que l'on ait :

$$\begin{aligned}\lambda &= -n_{12} > 0 \\ \lambda_1 &= n_{11} - n_{12} > 0 \\ \lambda_2 &= n_{22} - n_{12} > 0\end{aligned}\quad (17)$$

Les conséquences immédiates pour une telle configuration sont :

- a - Le coefficient n_{12} doit être négatif et tel que la configuration stable en champ nul soit du type ferrimagnétique. L'existence d'une structure oblique ne peut donc résulter que d'un compromis entre l'action du champ magnétique appliqué qui tend à aligner tous les moments parallèlement à lui-même et des interactions d'échange qui imposent une disposition antiparallèle en son absence.
- b - La susceptibilité $\frac{1}{\lambda}$ est une constante indépendante du champ et de la température dans la mesure où le coefficient n_{12} l'est aussi.
- c - A la même approximation les modules M_1 et M_2 des aimantations sont indépendants du champ H et ne dépendent que de la température. Il en est de même pour l'entropie et les intensités des champs effectifs agissant sur chaque sous-réseau.

2-2 - Stabilité de la phase oblique

Pour examiner la stabilité d'une telle structure non colinéaire, il suffit de considérer les déplacements de \vec{M}_1 et \vec{M}_2 dans le plan qui les contient ainsi que \vec{H} , en remarquant que la condition qui leur impose de rester dans ce plan assure la stabilité pour les déplacements hors du plan. Orientons celui-ci par le choix d'un vecteur unitaire normal \vec{n} et repérons les vecteurs \vec{M}_1 et \vec{M}_2 par leurs coordonnées polaires (M_1, θ_1) et (M_2, θ_2) ; les angles sont comptés à partir de \vec{H} pris comme axe origine (figure 40). Les équations d'équilibre à une température donnée sont :

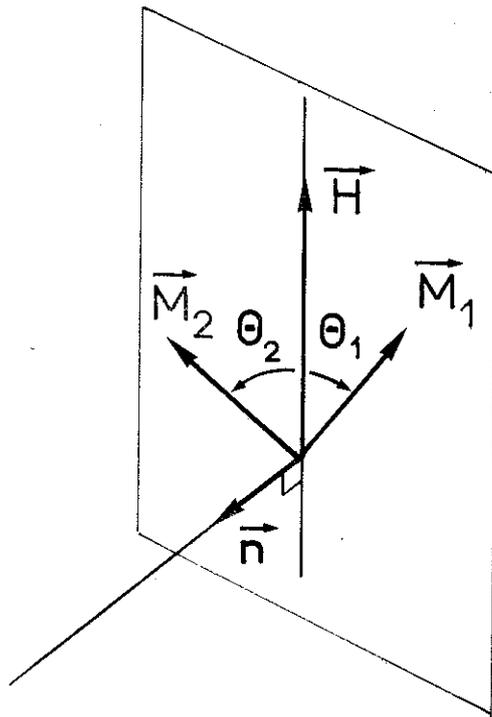


Figure 40 : Configuration coplanaire oblique

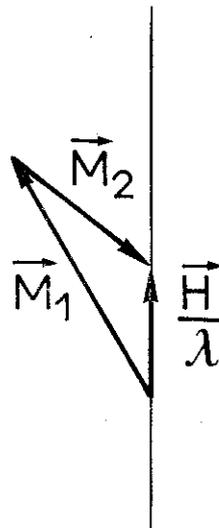


Figure 41 : Relation vectorielle dans la zone oblique

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial E}{\partial \theta_1} = \vec{n} \cdot \left[(n_{12} \vec{M}_2 + \vec{H}) \wedge \vec{M}_1 \right] = 0 \\ \frac{\partial E}{\partial \theta_2} = \vec{n} \cdot \left[(n_{12} \vec{M}_1 + \vec{H}) \wedge \vec{M}_2 \right] = 0 \end{array} \right. \quad (18)$$

d'où :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1^2} = (n_{12} \vec{M}_2 + \vec{H}) \cdot \vec{M}_1 = -n_{12} M_1^2 > 0 \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_2^2} = (n_{12} \vec{M}_1 + \vec{H}) \cdot \vec{M}_2 = -n_{12} M_2^2 > 0 \end{array} \right. \quad (19)$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1 \partial \theta_2} = -n_{12} \vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2 \quad (20)$$

Le déterminant de stabilité s'écrit donc simplement :

$$\Delta = \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1^2} \cdot \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_2^2} - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1 \partial \theta_2} \right)^2 = n_{12}^2 M_1^2 M_2^2 \left[1 - \cos^2(\theta_2 - \theta_1) \right] \quad (21)$$

Il est toujours positif ou nul et, compte tenu de (19), la structure oblique est toujours stable lorsque $\theta_2 - \theta_1$ est strictement différent de 0 ou π .

2-3 - Limites de la phase oblique

Dans cette phase, nous venons de voir que, d'après (16'), les modules des aimantations M_1 et M_2 ne dépendent que de la température. Plus précisément : chaque sous-réseau se comporte comme un ferromagnétique en champ nul auquel on peut associer une température critique :

$$T_{c_i} = \frac{S_{i+1}}{3S_i} \frac{\mu_i}{k} \lambda_i M_{i0}, \quad i = 1, 2 \quad (22)$$

et une aimantation spontanée M_i telle que :

$$M_i = M_{i0} B_i \left(\frac{3S_i}{S_{i+1}} \cdot \frac{T_{c_i}}{T} \cdot \frac{M_i}{M_{i0}} \right). \quad (23)$$

La structure non colinéaire ne peut donc exister que si la température T est inférieure à la plus petite des températures critiques T_{c_i} .

Pour une température donnée, le champ appliqué \vec{H} doit être tel que la relation $\frac{\vec{H}}{-n_{12}} = \vec{M}_1 + \vec{M}_2$ entraîne l'existence d'un angle $\theta_2 - \theta_1$, entre \vec{M}_1 et \vec{M}_2 , différent de 0 ou Π (figure 41). Il faut nécessairement :

$$-1 \leq \cos(\theta_2 - \theta_1) \leq +1 \quad (24)$$

avec la condition équivalente pour les champs limites

$$-n_{12} |M_1 - M_2| \leq H \leq -n_{12}(M_1 + M_2). \quad (25)$$

Les angles se calculent immédiatement par les relations des triangles; par exemple :

$$\cos(\theta_2 - \theta_1) = \frac{\left(\frac{H}{n_{12}}\right)^2 - M_1^2 - M_2^2}{2M_1M_2}. \quad (26)$$

2-4 - Construction du diagramme

Cherchons d'abord le lieu des points (H,T) où l'une des deux aimantations est nulle, M_2 par exemple. Dans ce cas \vec{M}_1 est colinéaire à \vec{H} , mais M_1 varie encore comme dans la phase oblique, car (16) et (16') se résument à :

$$\left\{ \begin{array}{l} M_1 = M_{10} B_1 \left(\frac{3S_1}{S_1+1} \cdot \frac{T_{c1}}{T} \cdot \frac{M_1}{M_{10}} \right) \\ H = -n_{12}M_1 \\ T_{c2} \leq T \leq T_{c1} \end{array} \right. \quad (27)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{c1} = \frac{S_1+1}{3S_1} \frac{\mu_1}{k} (n_{11} - n_{12})M_{10}, \\ T_{c2} = \frac{S_2+1}{3S_2} \frac{\mu_2}{k} (n_{22} - n_{12})M_{20}. \end{array} \right. \quad (28)$$

Considérons dans le plan (H,T) la ligne M_1^* , définie par (27) et son homologue M_2^* définie par :

$$\left\{ \begin{array}{l} M_2 = M_{20} B_2 \left(\frac{3S_2}{S_2+1} \cdot \frac{T_{c2}}{T} \cdot \frac{M_2}{M_{20}} \right) \\ H = -n_{12}M_2 \end{array} \right. \quad (27')$$

Elles représentent, au facteur $-n_{12}$ près, les variations de M_1 et M_2 dans la phase oblique. Les limites de cette phase, définies par les égalités dans (25), s'en déduisent par la construction graphique simple représentée sur la figure 42.

En choisissant les indices 1 et 2 tels que $T_{c1} > T_{c2}$, deux cas sont possibles suivant que $M_{10} > M_{20}$ (figure 42a) ou le contraire (figure 42b). La distinction essentielle est, pour le deuxième cas, l'existence d'un point de compensation T_c et la possibilité d'observer la phase oblique dans des champs très faibles. Dans le premier cas, le champ critique le plus bas est peu différent de $-n_{12}(M_{10}-M_{20})$. Pour le ferrite grenat d'yttrium, par exemple, le coefficient n_{12} est de l'ordre de $-0,5 \cdot 10^6$ Oe/ μ_B , $M_{10} = 15 \mu_B$ et $M_{20} = 10 \mu_B$ ce qui donne un champ critique supérieur à $2,5 \cdot 10^6$ Oe.

Remarquons que la limite de la phase oblique, a une tangente verticale, pour $T = T_{c2}$, au point d'intersection C avec la ligne M_1^* . La forme du diagramme y est parabolique puisqu'au voisinage de T_{c2} M_2 varie comme $|T - T_{c2}|^{1/2}$.

Cherchons à placer la température d'ordre T_N par rapport à T_{c1} et T_{c2} . Pour cela, considérons les développements haute température :

$$M_i = \frac{C_i}{T} (H + \sum_j n_{ij} M_j) \quad (29)$$

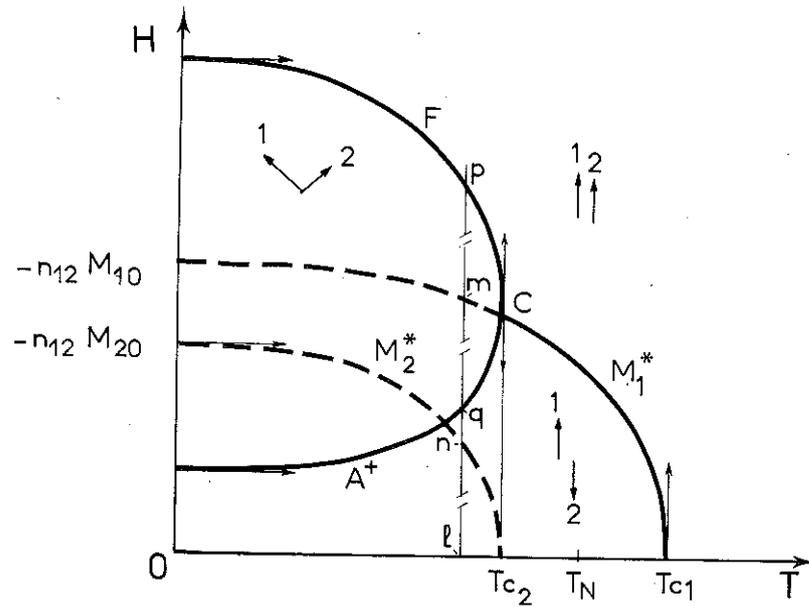
Soit encore, en champ nul :

$$\sum_j (n_{ij} - \delta_{ij} \cdot \frac{T}{C_i}) M_j = 0 \quad (30)$$

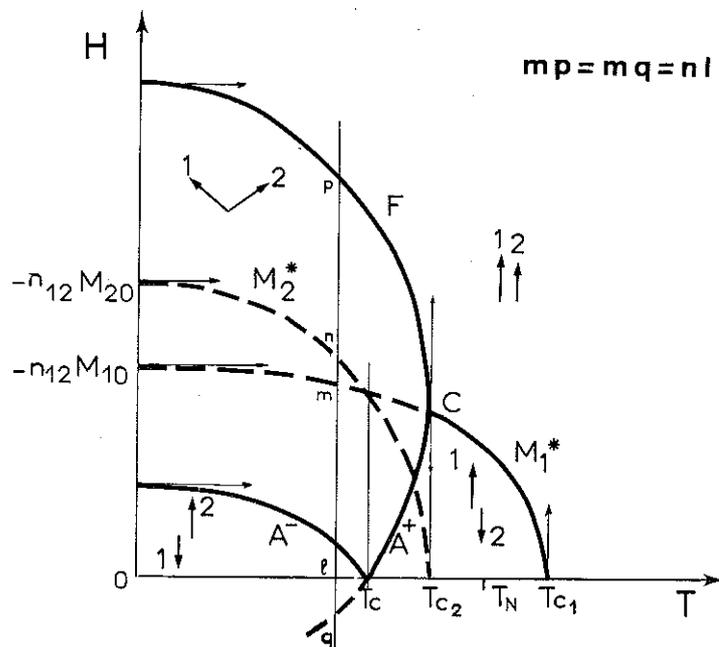
où C_i est la constante de Curie du sous-réseau i.

Pour qu'il existe une solution où les M_j ne soient pas tous nuls, il faut que le déterminant des coefficients soit nul. La température d'ordre est la plus grande des racines de l'équation :

$$\Delta(T) = \begin{vmatrix} n_{11} - \frac{T}{C_1} & n_{12} \\ n_{12} & n_{22} - \frac{T}{C_2} \end{vmatrix} = 0 \quad (31)$$

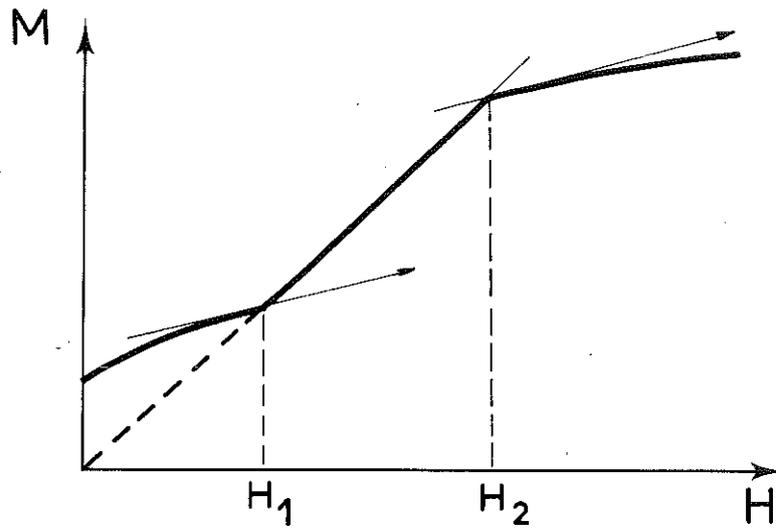


a) diagramme sans point de compensation



b) diagramme avec point de compensation

Figure 42 : Diagrammes de phase d'un ferrimagnétique à 2 sous-réseaux



c) courbe d'aimantation typique

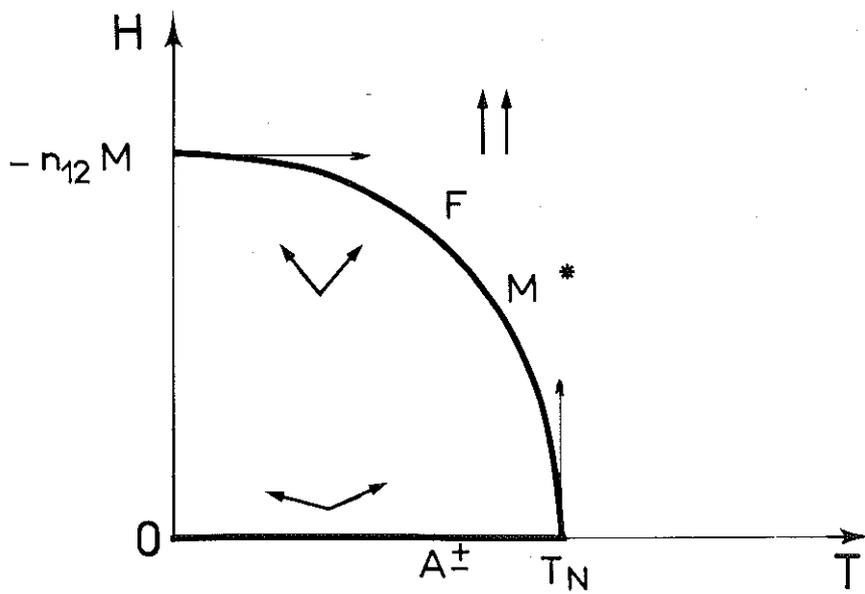


Figure 43 : Diagramme de phase d'un antiferromagnétique isotrope

Or les équations (28) s'écrivent également :

$$T_{c_1} = C_1(n_{11} - n_{12})$$

$$T_{c_2} = C_2(n_{22} - n_{12})$$

On vérifie aisément que, si $T_{c_1} > T_{c_2}$, alors $\Delta(T_{c_1}) > 0$ et $\Delta(T_{c_2}) < 0$, donc : T_N est comprise entre T_{c_2} et T_{c_1} .

Remarque : Si les deux sous-réseaux sont équivalents, alors les courbes M_1^* et M_2^* sont identiques, les points C , T_N , T_{c_1} et T_{c_2} sont confondus ; le diagramme est celui d'un antiferromagnétique isotrope (figure 43).

2-5 - Phases colinéaires et nature des transitions

Lorsque la structure est colinéaire, les valeurs algébriques des aimantations \bar{M}_1 et \bar{M}_2 comptées selon la direction du champ appliqué \vec{H} , sont solution du système d'équations :

$$\begin{aligned} \bar{M}_1 &= M_{10} B_1 \left[\frac{\mu_1}{kT} (H + n_{11}\bar{M}_1 + n_{12}\bar{M}_2) \right] \\ \bar{M}_2 &= M_{20} B_2 \left[\frac{\mu_2}{kT} (H + n_{12}\bar{M}_1 + n_{22}\bar{M}_2) \right] \end{aligned} \quad (32)$$

Une discussion analytique directe des solutions de ce système non linéaire n'est pas possible. Cependant, il est facile de voir que les seules solutions où l'aimantation totale est dans le sens du champ appliqué correspondent aux configurations F, A+ et A- du tableau 3.

La phase oblique et les lignes à aimantation nulle du diagramme permettent de déterminer les domaines (H,T) de chaque configuration colinéaire stable. En effet, lorsqu'on fait varier H ou T de façon à se déplacer de l'intérieur de la zone oblique vers sa limite d'existence, les angles θ_1 et θ_2 tendent vers 0 ou π et les cosinus tendent vers +1 ou -1 simultanément. La configuration devient colinéaire et constitue une solution des équations (32). A la limite, la stabilité de la phase colinéaire est la même que celle de la phase oblique : elles sont toutes les deux instables. La limite de la phase oblique est donc une ligne de points de transition du second ordre au sens de la théorie de Landau. Les transitions s'effectuent avec un

T A B L E A U 3

Configurations colinéaires à 2 sous-réseaux

configuration	signes de :			
	\bar{M}_1	\bar{M}_2	$M = \bar{M}_1 + \bar{M}_2$	
			$M_1 > M_2$	$M_1 < M_2$
F	+	+	+	+
A ⁺	+	-	+	-
A ⁻	-	+	-	+
N	-	-	-	-

changement de symétrie par passage de la structure la plus générale (possédant la symétrie la plus basse : coplanaire) à une structure colinéaire de symétrie plus élevée (coaxiale). L'un des angles de la structure oblique joue le rôle de paramètre d'ordre. Il faut donc s'attendre à des fluctuations importantes de ces angles au voisinage immédiat du point de transition.

La limite de la zone oblique se décompose en deux arcs de courbe, (F) et (A), qui correspondent aux configurations F et A⁺ ou A⁻, selon les signes correspondants de $\cos \theta_1$ et $\cos \theta_2$. Lorsqu'il existe un point de compensation T_c , celui-ci dédouble l'arc (A) en (A⁺) et (A⁻), les configurations des moments étant inverses l'une de l'autre (T_c est souvent appelée la température d'inversion [99]).

Le point C est un point critique particulier. En effet, comme en tous les points de la ligne M_1^* l'un des sous-réseaux est totalement désaimanté ($M_2 = 0$) puisque le champ effectif est nul par compensation exacte du champ moléculaire et du champ extérieur. Les moments de ce sous-réseau auront non seulement des fluctuations en direction mais aussi des fluctuations importantes en grandeur.

2-6 - Influence des coefficients sur le diagramme

La position des lignes du diagramme dépend directement des coefficients d'interaction propres à chaque sous-réseau. La susceptibilité dans la phase oblique est une mesure directe de n_{12} . La détermination expérimentale de l'abscisse T_{c2} du point C fournit une valeur de n_{22} et la valeur T_N donne finalement le coefficient n_{11} . A la température T_{c1} , la susceptibilité paramagnétique a la même valeur $-n_{12}$ que dans la phase oblique. Rappelons qu'à 2 sous-réseaux, la structure en champ nul est nécessairement colinéaire. Comme pour les ferromagnétiques, dès qu'un champ est appliqué, il n'y a pas de distinction fondamentale entre la phase haute température dite paramagnétique et la phase ferrimagnétique colinéaire. Il faut noter cependant que, pour des températures comprises entre T_N et T_{c1} , l'application d'un champ provoque la polarisation de l'un des sous-réseaux en sens inverse. Ce phénomène n'a pas encore été mis en évidence expérimentalement. Il ne peut pas être décelé par des mesures d'aimantation ou de susceptibilité qui ne présentent aucune particularité au passage de la ligne $M_2 = 0$.

Dans tout ce qui précède, la seule restriction sur les coefficients n_{ij} est qu'ils ne dépendent pas explicitement des aimantations, ni en module ni en direction. Rien n'interdit de tenir compte d'une variation de ces coefficients avec la température ou même avec le champ.

3 - DIAGRAMME DE PHASE D'UN FERRIMAGNETIQUE ISOTROPE A TROIS

SOUS-RESEAUX

3-1 - Cas général : la configuration oblique

Les équations de champ moléculaire s'écrivent à l'aide des coefficients généralisés : $\lambda_{ij} = n_{ij} + \lambda$

$$\left\{ \begin{array}{l} (\lambda_{11} - \lambda_1) \vec{M}_1 + \lambda_{12} \vec{M}_2 + \lambda_{31} \vec{M}_3 = 0 \\ \lambda_{12} \vec{M}_1 + (\lambda_{22} - \lambda_2) \vec{M}_2 + \lambda_{23} \vec{M}_3 = 0 \\ \lambda_{31} \vec{M}_1 + \lambda_{23} \vec{M}_2 + (\lambda_{33} - \lambda_3) \vec{M}_3 = 0 \end{array} \right. \quad (33)$$

$$M_i = M_{i0} B_i \left(\frac{\mu_i \lambda_i M_i}{kT} \right), \quad i = 1, 2, 3. \quad (33')$$

Rappelons que λ est défini par :

$$\vec{H} = \lambda \vec{M} = \lambda (\vec{M}_1 + \vec{M}_2 + \vec{M}_3) \quad (34)$$

et que le coefficient de champ démagnétisant est inclus dans les λ_{ij} .

Les conditions de compatibilité pour l'existence d'une structure non colinéaire sont obtenues en annulant tous les déterminants d'ordre 2 de la matrice des coefficients du système (33). Elles se ramènent à :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_1 = \lambda_{11} - \frac{\lambda_{31} \lambda_{12}}{\lambda_{23}} \\ \text{et permutations circulaires sur } 1, 2, 3. \end{array} \right. \quad (35)$$

Le système (33) se réduit alors à l'unique équation :

$$\frac{\vec{M}_1}{\lambda_{23}} + \frac{\vec{M}_2}{\lambda_{31}} + \frac{\vec{M}_3}{\lambda_{12}} = 0 \quad (36)$$

λ n'est plus une constante connue à deux sous-réseaux, mais, au contraire, va jouer le rôle de paramètre principal dans la discussion.

Pour calculer les grandeurs thermodynamiques de la phase oblique, il est avantageux de faire le changement de variables

$$(H, T) \rightarrow (\lambda, T).$$

En effet, les coefficients λ_i et λ_{ij} ne dépendent que de λ . Il en est donc de même des modules M_i pour une température donnée : chacune des équations (33') est analogue à celle qui détermine l'aimantation spontanée d'un ferromagnétique dont le coefficient de champ moléculaire λ_i dépend d'un paramètre λ .

Calculons les cosinus des angles θ_{ij} entre deux vecteurs aimantation \vec{M}_i et \vec{M}_j . Posons pour cela :

$$\left\{ \begin{array}{l} l_1 = \frac{M_1}{\lambda_{23}} \\ \text{et permutations circulaires des indices } 1, 2, 3. \end{array} \right. \quad (37)$$

D'après (36) il vient immédiatement :

$$\left\{ \begin{array}{l} \cos \theta_{12} = \frac{\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2}{M_1 M_2} = \frac{l_3^2 - l_1^2 - l_2^2}{2l_1 l_2} \\ \text{et permutations circulaires.} \end{array} \right. \quad (38)$$

L'aimantation totale M se calcule aisément :

$$M^2 = M_1^2 \frac{(n_{23} - n_{31})(n_{23} - n_{12})}{(n_{23} + \lambda)^2} + \text{perm. circ.} \quad (39)$$

Si l'on se fixe la température T et une valeur de λ , la structure est entièrement déterminée : l'aimantation \vec{M} s'obtient à partir des M_i et des $\cos \theta_{ij}$ par une simple construction géométrique (celle du triangle correspondant à la relation (36) fournit les directions relatives des vecteurs \vec{M}_i). La disposition est unique à une symétrie de révolution près autour de $\vec{H} = \lambda \vec{M}$.

Il est commode d'introduire pour chaque sous-réseau une température critique fictive T_{c_i} qui ne dépend que de λ ; de façon à pouvoir écrire les équations (33') sous la forme :

$$M_i = M_{i0} B_i \left(\frac{3S_i}{S_i+1} \cdot \frac{T_{c_i}}{T} \cdot \frac{M_i}{M_{i0}} \right) \quad (40)$$

En notant C_i les constantes de Curie paramagnétiques de chaque sous-réseau, les relations suivantes sont immédiates :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_i = \frac{S_i+1}{3S_i} \cdot \frac{\mu_i M_{i0}}{k} \\ T_{c_i}(\lambda) = C_i \lambda_i(\lambda) \end{array} \right. \quad (41)$$

Remarquons dès maintenant que la variation des modules des aimantations (appelée "paraprocess" par les auteurs russes) entraîne, dans la phase oblique, une variation de l'entropie. L'effet magnéto-calorique n'est pas nul contrairement au cas de deux sous-réseaux.

3-2 - Cas particulier de l'aimantation nulle d'un sous-réseau

Supposons par exemple que \vec{M}_1 soit nul, le système (33) devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_{12} \vec{M}_2 + \lambda_{31} \vec{M}_3 = 0 \\ (\lambda_{22} - \lambda_2) \vec{M}_2 + \lambda_{23} \vec{M}_3 = 0 \\ \lambda_{23} \vec{M}_2 + (\lambda_{33} - \lambda_3) \vec{M}_3 = 0 \end{array} \right. \quad (42)$$

Les aimantations \vec{M}_2 et \vec{M}_3 sont nécessairement colinéaires. Les conditions de compatibilité pour les coefficients conduisent aux mêmes expressions que (35) pour λ_2 et λ_3 . Il en est donc de même pour les modules M_2 et M_3 et les températures critiques $T_{c_2}(\lambda)$ et $T_{c_3}(\lambda)$ qui se calculent avec les mêmes formules que dans la phase oblique.

3-3 - Condition d'existence de la configuration oblique

- a - Pour une valeur de λ , la température T doit être inférieure à la plus petite des températures critiques $T_{c_i}(\lambda)$.
- b - Les cosinus des angles θ_{ij} doivent être simultanément compris entre -1 et +1.

Cette dernière condition se ramène pour chacun des cosinus à la même inégalité dont le premier membre se met sous la forme d'un produit de quatre facteurs :

$$(l_1 + l_2 + l_3)(l_2 + l_3 - l_1)(l_3 + l_1 - l_2)(l_1 + l_2 - l_3) \geq 0 \quad (43)$$

La nullité de chaque facteur définit dans le plan (λ, T) un arc de courbe de la limite de la phase oblique. Le changement de signe devant l'un des l_i se traduit par une simple permutation entre les quatre facteurs et laisse globalement invariant leur produit. De plus, comme les coefficients λ_{ij} ($j \neq i$) ne peuvent s'annuler quand λ varie, les l_i gardent un signe constant ; la permutation Π qui consiste à passer de leurs valeurs absolues à leurs valeurs algébriques est unique et le facteur qui correspond à la somme des valeurs absolues ne s'annule jamais. La limite est donc constituée par trois arcs de courbes seulement.

On vérifie facilement que sur chacun de ces arcs, la structure est devenue colinéaire avec une configuration relative unique, définie par les signes des $\cos \theta_{ij}$. Les quatre configurations relatives possibles sont représentées sur la figure 44. A chacune d'elles correspondent deux configurations absolues, définies par les dispositions des M_i par rapport au champ, c'est-à-dire par les signes de leurs valeurs algébriques suivant l'axe orienté par \vec{H} . Comme dans la phase oblique l'aimantation totale \vec{M} est toujours dans le sens du champ, la configuration absolue de la phase colinéaire limite est également celle qui correspond à $\vec{M} \cdot \vec{H} > 0$. L'ensemble des configurations est consigné dans le tableau 4.

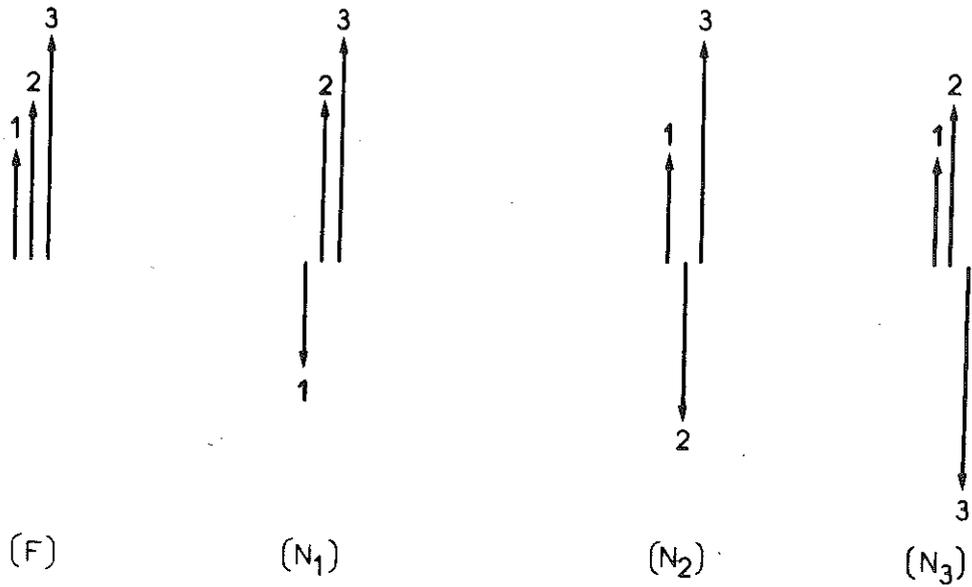


Figure 44 : Configurations relatives à 3 sous-réseaux

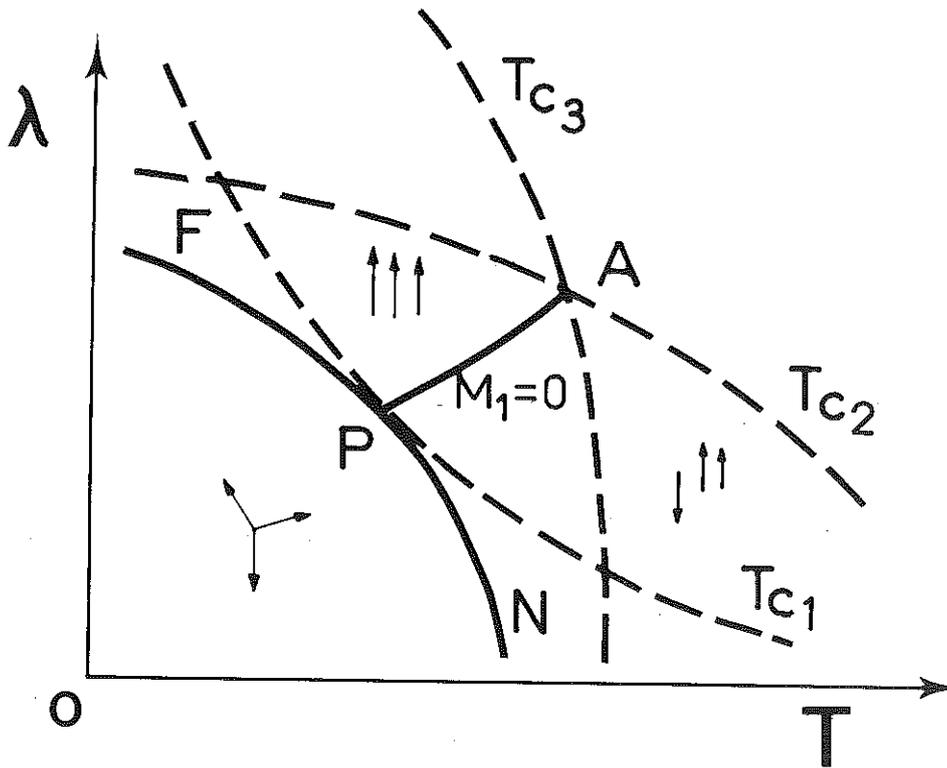


Figure 45 : Ligne du plan (λ, T) où l'aimantation d'un sous-réseau est nulle

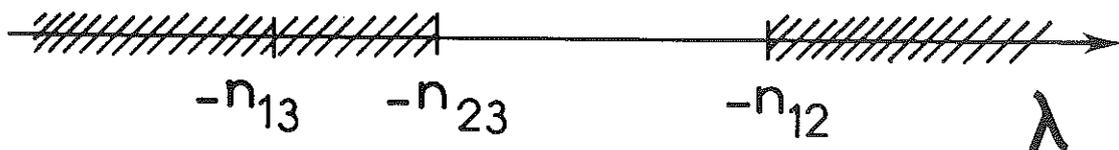


Figure 46 : Intervalle de variation permis pour λ dans GdIG

T A B L E A U 4

Configurations colinéaires à 3 sous-réseaux

Configurations absolues	signes de						Configurations relatives
	\bar{M}_1	\bar{M}_2	\bar{M}_3	$\cos\theta_{12}$	$\cos\theta_{23}$	$\cos\theta_{31}$	
F	+	+	+	+	+	+	F
N_1^+	-	+	+	-	+	-	N_1
N_1^-	+	-	-				
N_2^+	+	-	+	-	-	+	N_2
N_2^-	-	+	-				
N_3^+	+	+	-	+	-	-	N_3
N_3^-	-	-	+				
N	-	-	-	+	+	+	F

D'autre part, si l'un des modules M_i devient nul, les facteurs de (43) deviennent identiques 2 à 2 et deux seulement s'annulent en même temps : par exemple, pour $M_1 = 0$, ceux des arcs F et N_1 . Les deux arcs F et N_1 , les courbes $M_1 = 0$ et $T = T_{c_1}(\lambda)$ concourent donc en un même point P. En ce point la courbe T_{c_1} est tangente aux deux arcs F et N_1 : en effet, lorsque $T \rightarrow T_{c_1}$, $\frac{\partial M_1}{\partial \lambda}$ et $\frac{\partial M_1}{\partial T}$ divergent comme $[T - T_{c_1}(\lambda)]^{-1/2}$ et par conséquent :

$$\lim_{\rightarrow P} \left(\frac{dT}{d\lambda} \right)_{(F)} = \lim_{\rightarrow P} \left(\frac{dT}{d\lambda} \right)_{(N_1)} = \left[\frac{dT_{c_1}(\lambda)}{d\lambda} \right]_P \quad (44)$$

La situation est donc celle de la figure 45. Il faut remarquer que la ligne à aimantation nulle se termine nécessairement au point d'intersection A des deux autres lignes de températures critiques.

En résumé : il existe une seule configuration oblique des moments, et par continuité, trois seulement parmi les quatre configurations colinéaires relatives possibles. Celles-ci sont séparées par deux lignes où l'aimantation d'un sous-réseau est nulle. Le diagramme de phase (λ, T) est donc complètement déterminé par une discussion analytique qui n'aurait pas été possible directement sur le système d'équation des structures colinéaires. Le diagramme (H, T) s'en déduit directement. La transformation $\lambda \leftrightarrow H$ est biunivoque dans la phase oblique et pour les lignes à aimantation nulle. En ce qui les concerne, les deux diagrammes seront topologiquement semblables.

3-4 - Propriétés générales

Les transitions entre configurations obliques et colinéaires sont du second ordre ; elles rentrent dans la catégorie des transitions continues avec changement de symétrie de la théorie de Landau. Comme dans le cas de deux sous-réseaux, la ligne des points de transition est à la fois, une limite d'existence pour la configuration oblique et une limite de stabilité pour les deux configurations de part et d'autre. En effet, si l'on cherche l'équation de la limite avec les variables H et T , on trouve [100] ;

$$0 = H^2 + H \left[n_{12} (\bar{M}_1 + \bar{M}_2) + \odot \right] + (\bar{M}_1 + \bar{M}_2 + \bar{M}_3) (n_{12} n_{31} \bar{M}_1 + \odot) \quad (45)$$

(\odot = permutation circulaire sur 1, 2, 3)

C'est également la condition d'instabilité de la phase colinéaire [101].

Les lignes à aimantation nulle ne sont pas des lignes de transition de phase, car toutes les dérivées de l'énergie libre sont continues et la symétrie axiale est conservée. Elles sont au nombre de deux au maximum.

Contrairement au cas à deux sous-réseaux, il peut exister une structure non colinéaire en champ nul ($\lambda = 0$) si l'un des trois arcs limites coupe l'axe des températures à une valeur positive. De telles structures "en étoile", déjà proposées par Niessen [102], ont été mises en évidence et étudiées récemment par Boucher [103] dans les ferrites spinelles, elles généralisent les structures de Yafet et Kittel [104].

Le point de compensation, s'il existe, et le point d'ordre ne sont pas des points particuliers dans le diagramme (λ, T) . Le premier est situé sur l'un des arcs de la limite entre phases. Il correspond à l'inversion globale de la configuration. La position du point d'ordre peut être discutée en utilisant les courbes $T_{c_i}(\lambda)$. La température d'ordre T_N est, en effet, la plus grande racine de l'équation séculaire

$$\Delta(T) = \left| n_{ij} - \delta_{ij} \frac{T}{C_i} \right| = 0 \quad (46)$$

Considérons le déterminant :

$$\Delta'(\lambda, T) = \left| \lambda_{ij} - \delta_{ij} \frac{T}{C_i} \right| \quad (47)$$

Au point d'intersection des courbes $T_{c_2}(\lambda)$ et $T_{c_3}(\lambda)$ de coordonnées λ_1 et T_1 , ce déterminant est nul :

$$\Delta'(\lambda_1, T_1) = 0 \quad (48)$$

en le développant, on en déduit que $\Delta(T_1)$ est du signe de $T_1 - T_{c_1}(\lambda_1)$. Il en est de même pour les autres points d'intersection, ce qui permet de séparer les racines de $\Delta(T)$. Il faut aussi remarquer que les lignes à aimantation nulles aboutissent à deux de ces points d'intersection où l'on a : $M = 0$ et $\lambda \neq 0$ donc $H = 0$; ce sont donc des points de l'axe des températures du diagramme (H, T) qui sont nécessairement dans le domaine paramagnétique au-delà de T_N . La structure colinéaire qui s'établit spontanément en champ nul à la température T_N est la seule configuration colinéaire pour $H = 0$ et $T < T_N$ (au sens de configuration relative car s'il existe un point de compensation T_c c'est la configuration inverse qui est stable en dessous de T_c). Ce résultat est à rapprocher du théorème de Villain [97] pour les antiferromagnétiques.

4 - APPLICATION AU FERRITE GRENAT DE GADOLINIUM

4-1 - Diagramme de phase de $Gd_3Fe_5O_{12}$

Le modèle développé s'applique bien aux ferrites grenats de terres rares puisque leurs propriétés montrent l'existence de trois sous-réseaux bien distincts et en particulier au ferrite grenat de gadolinium (GdIG) dont l'anisotropie magnétocristalline est très faible. Nous devons utiliser des coefficients de champ moléculaire

déterminés dans un modèle équivalent ; nous adopterons ceux de Pauthenet [41] qui donnent un bon accord quantitatif. Nous noterons 1, 2 et 3 les sous-réseaux correspondant aux sites 16a, 24d et 24c de la structure O_h^{10} , occupés respectivement par des ions Fe^{3+} et Gd^{3+} suivant le tableau 5.

T A B L E A U 5

Correspondances

indice	site	ions	moment (μ_B)	nombre d'atomes ($Gd_3Fe_5O_{12}$)
1	16a	Fe^{3+}	5	2
2	24d	Fe^{3+}	5	3
3	24c	Gd^{3+}	7	3

Les coefficients n_{ij} correspondants sont donnés dans le tableau 6.

T A B L E A U 6

Coefficients de champ moléculaire de $GdIG$
valeurs de Pauthenet
($kOe/\mu_B/mole Gd_3Fe_5O_{12}$)

n_{ij}	1	2	3
1	- 246	- 519	- 10,5
2	- 519	- 149	- 28
3	- 10,5	- 28	- 5,6

L'intervalle de variation de λ se trouve être entre $-n_{23}$ et $-n_{12}$ (figure 46) et les signes des λ_{ij} sont constants :

$$\lambda_{12} < 0 \quad ; \quad \lambda_{23} > 0 \quad ; \quad \lambda_{31} > 0$$

Dans la discussion précédente, le facteur qui correspond à la somme des modules est N_3 . C'est donc la configuration relative (N_3) qui n'apparaîtra pas dans le diagramme. Ceci provient de la très forte valeur négative de n_{12} qui interdit à cette configuration d'être stable en champ faible. Le diagramme dans le plan (λ, T) est représenté sur la figure 47 et sa transposition dans le plan (H, T) sur la figure 48 avec les notations correspondantes. La phase non colinéaire est limitée par les arcs (F) , (N_1) et (N_2) . Au point d'intersection P de (F) et de (N_1) l'aimantation du sous-réseau fer octaédrique (1) est nulle, de même à l'intersection Q de (N_1) et (N_2) l'aimantation du sous-réseau terre rare (3) est nulle.

Du fait des très fortes interactions d'échange le diagramme calculé s'étend dans des champs extrêmement intenses de l'ordre d'une dizaine de MégaOersteds. Dans de tels champs, l'énergie Zeeman devient comparable à la séparation entre le multiplet fondamental et le premier multiplet excité des ions Gd^{3+} et Fe^{3+} considérés. Les approximations faites, notamment l'utilisation des fonctions de Brillouin pour calculer les aimantations, ne sont plus valables. La partie supérieure du diagramme n'est donnée qu'à titre indicatif. Le point de compensation se trouve sur la branche N_2 alors que la température d'ordre est comprise entre les températures des points B et C.

4-2 - Influence des coefficients de champ moléculaire sur le diagramme de phase

Il est intéressant de voir l'évolution du diagramme lorsque les valeurs des coefficients de champ moléculaire varient. En effet, ceux-ci ne sont pas connus avec une très grande précision, et leur détermination à partir des propriétés en champs faibles est un problème dont la solution n'est pas unique. Les valeurs données par plusieurs auteurs sont rassemblées à titre d'exemple dans le tableau 7 :

- Aléonard [105] a déterminé un ensemble de coefficients qui rendent compte de la variation thermique de la susceptibilité paramagnétique.

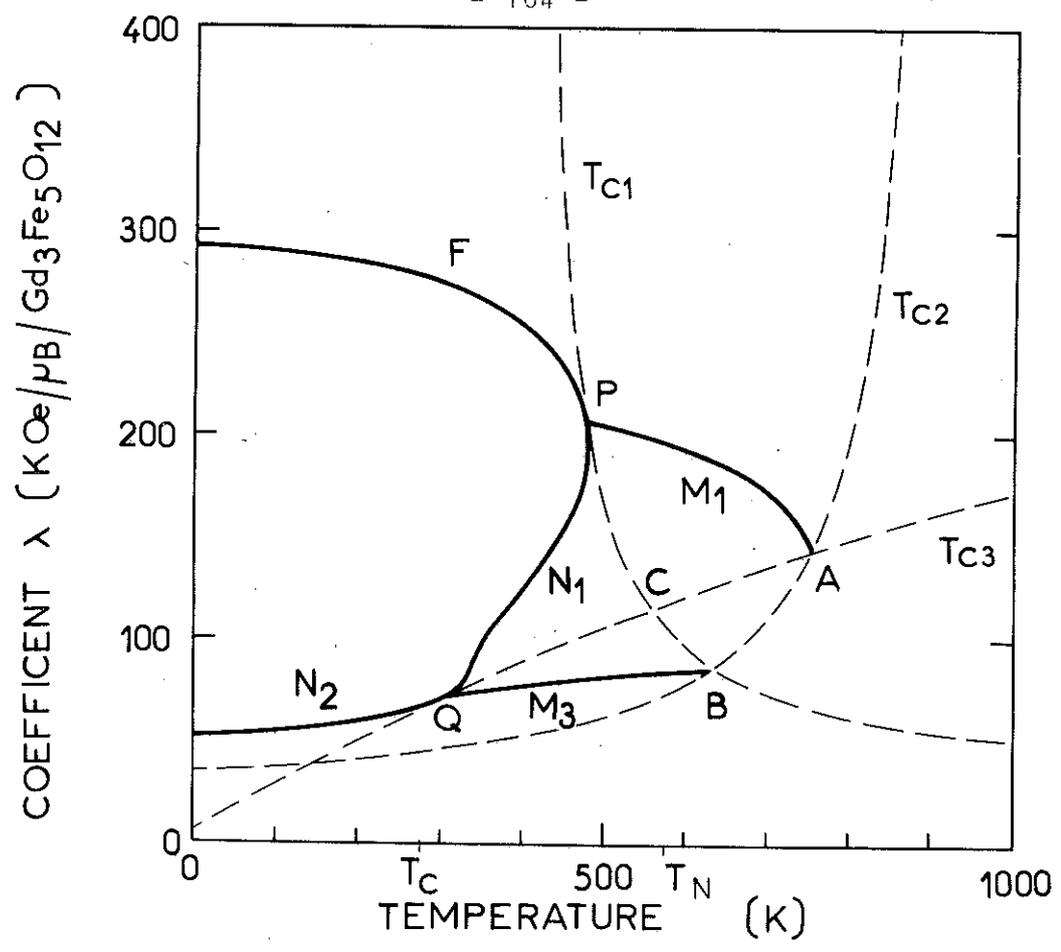


Figure 47 : Diagramme de phase de GdIG dans le plan (λ , T)

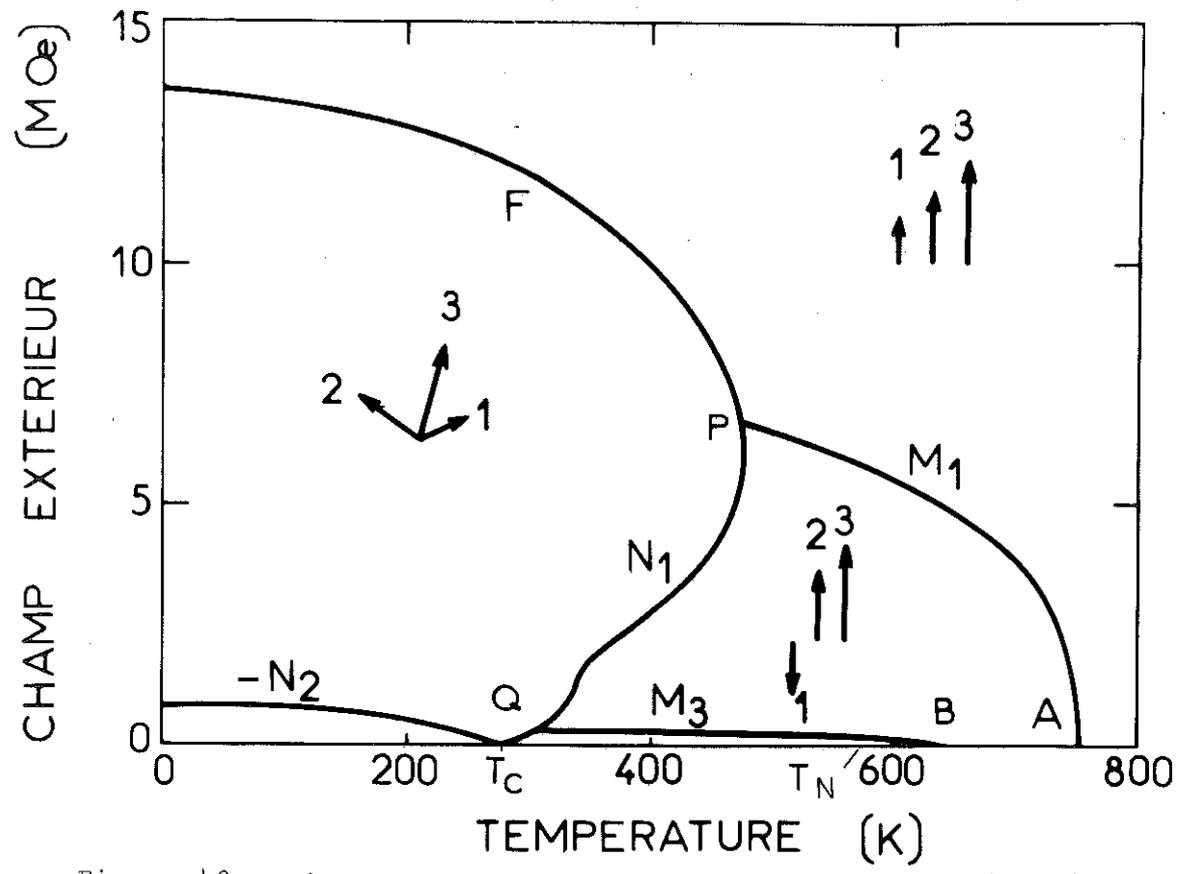


Figure 48 : Diagramme de phase de GdIG dans le plan (H, T)

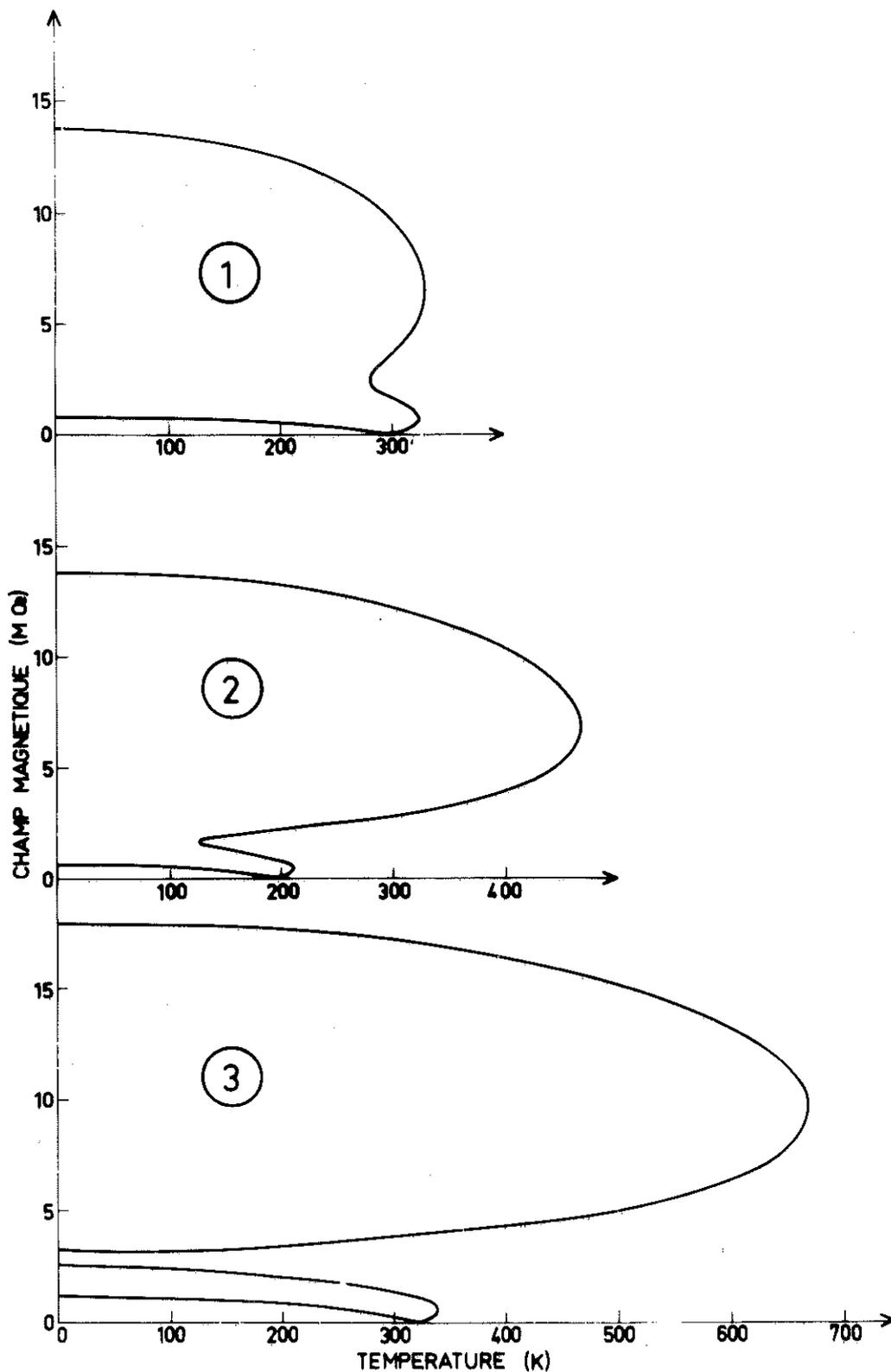


Figure 49 : Diagrammes de phase de GdIG calculés d'après les coefficients de champ moléculaire de différents auteurs (cf. tableau 7) : 1 - Anderson
2 - Aléonard
3 - Harris et Meyer

- Pauthenet [41] et Anderson [106] ont donné des solutions des équations de champ moléculaire qui reproduisent la variation thermique de l'aimantation spontanée.
- Harris et Meyer [107] ont analysé leurs mesures de chaleurs spécifiques à basse température dans un modèle d'onde de spin.

T A B L E A U 7

Coefficients de champ moléculaire de GdIG
(valeurs de différents auteurs)

	n_{12}	n_{11}	n_{22}	n_{13}	n_{23}	n_{33}
	n_{ad}	n_{aa}	n_{dd}	n_{ac}	n_{dc}	n_{cc}
Pauthenet [41]	- 519	- 246	- 149	- 10,5	- 28	- 5,6
Aléonard [105]	- 540	- 262	- 148	- 6,7	- 19	0
Harris, Meyer [107]	- 678	- 271	- 90	- 37	- 50	0
Anderson [106]	- 537	- 360	- 171	- 4,7	- 24	- 1,2

Les diagrammes calculés avec les coefficients de Anderson, Aléonard et Harris sont tracés sur la figure 49. Les différences essentielles sont en champ fort où il peut apparaître deux phases obliques distinctes, qui correspondent successivement à la rotation du sous-réseau terre rare (3) puis à celle du sous-réseau fer octaédrique (1). Un résultat analogue a été trouvé pour $T = 0$ K et dans le cas particulier où $n_{23} = n_{31}$ [77]. Dans les grenats ce dernier cas n'est pas très vraisemblable puisqu'au contraire il semble bien établi que les interactions d'échange fer-terre rare sont prépondérantes avec les ions Fe^{3+} des sites d (n_{23}, n_{31}) [108].

Les différences en champ faible se trouvent dans la position du point de compensation et la pente du diagramme qui varie légèrement en ce point.

Etant donné l'échelle des champs, il semble difficile d'étudier la partie supérieure du diagramme, néanmoins il devrait être possible de vérifier l'existence de deux phases obliques par des me-

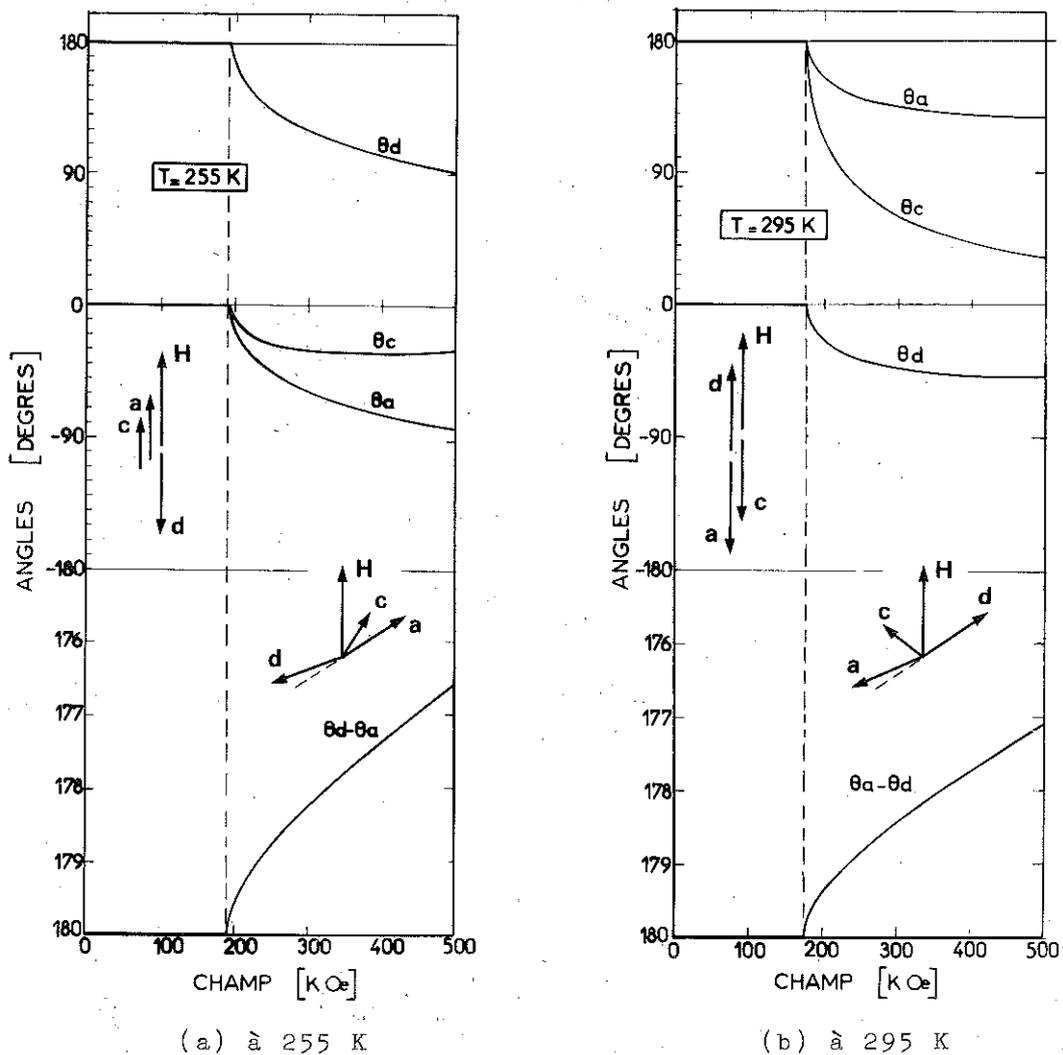


Figure 50 : Variation des angles par rapport au champ des différents sous-réseaux

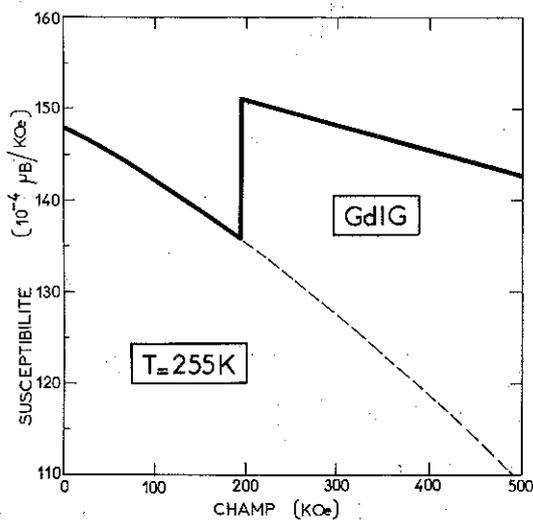


Figure 51 : Anomalie de susceptibilité de GdIG à la transition

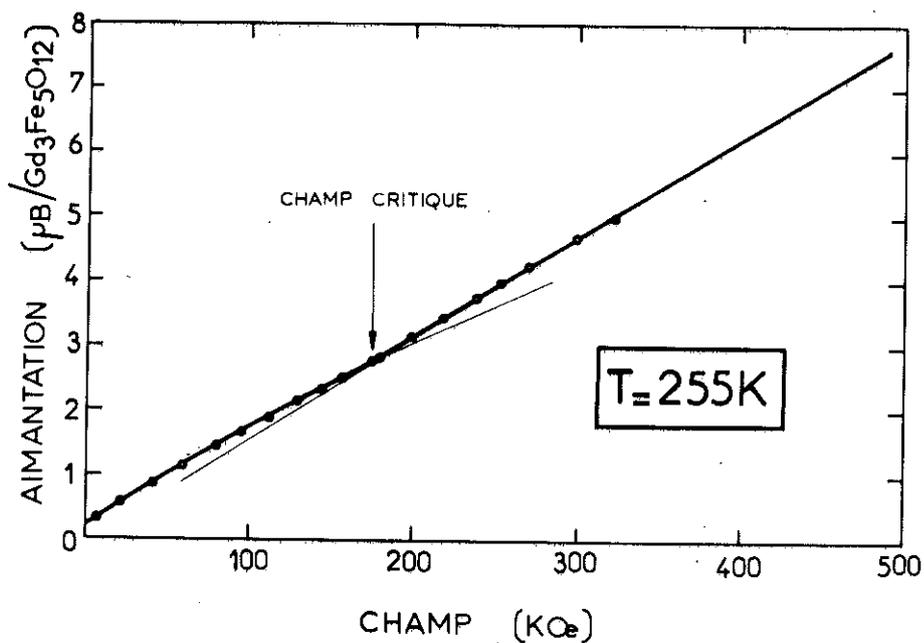


Figure 52 : Courbe d'aimantation :

o o o : points expérimentaux relevés sur l'oscillogramme
 — : courbes calculées

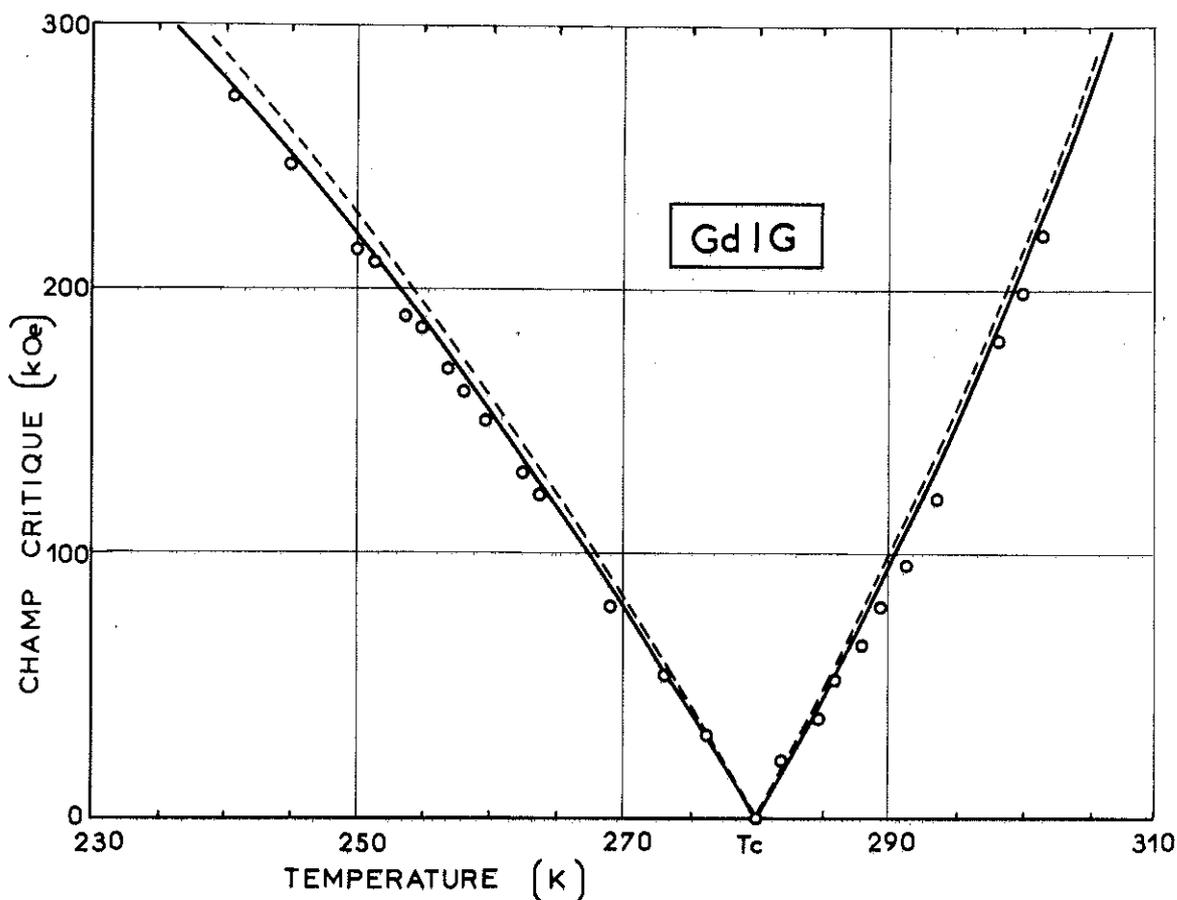


Figure 53 : Diagramme expérimental de GdIG

o o : points expérimentaux en champ pulsé
 --- : diagramme calculé dans l'hypothèse isotherme
 — : diagramme théorique adiabatique $H_c(T_0)$ (cf. fig. 54)

sures d'effet Faraday optique dans des champs de plusieurs Méga-Oersteds produits par compression de flux. Pour notre part, nous avons étudié la partie qui se trouve au voisinage du point de compensation ($T_c = 280$ K) entre 240 et 300 K et mesuré les champs de transition jusqu'à 300 kOe.

4-3 - Etude des aimantations et des susceptibilités

Nous allons analyser de façon plus détaillée le comportement des sous-réseaux lors du passage en zone oblique. Au-dessous de T_c , le sous-réseau gadolinium est dans le sens du champ appliqué alors qu'au-dessous il est en sens contraire, la configuration N_2 étant inversée globalement. Cependant, l'évolution sous champ de la configuration colinéaire et la transition en phase oblique s'effectue de façon presque similaire de part et d'autre de T_c . Comme il fallait s'y attendre, les angles varient très rapidement au voisinage immédiat de la transition (figure 50) car ils jouent le rôle de paramètre d'ordre dans le modèle de Landau des transitions du second ordre.

Nous avons calculé, toujours avec les coefficients de Pauthenet, les courbes d'aimantation et de susceptibilité différentielle à 255 K (figures 51 et 52) qui montrent le changement de susceptibilité pour un champ critique de 190 kOe et une décroissance plus faible dans la zone oblique. Etant donné les variations très faibles des modules des aimantations, l'augmentation de susceptibilité est due essentiellement à l'apparition des angles dans la phase oblique.

4-4 - Diagramme de phase expérimental

Nous avons mesuré l'aimantation d'une sphère monocristalline de GdIG orientée suivant la direction [111] dans des champs magnétiques pulsés jusqu'à 400 kOe et dans un intervalle de température de 60 K autour du point de compensation.

Les courbes obtenues montrent assez nettement un changement de loi d'aimantation, caractéristique de la transition pour une valeur critique H_c du champ appliqué. Nous avons reporté, à titre d'exemple, les points expérimentaux à 255 K sur la figure 52 : l'accord entre l'expérience et la courbe calculée est excellent.

La variation du champ critique en fonction de la température initiale de l'échantillon permet de tracer un diagramme de phase expérimental (figure 53). Le point de compensation définit par l'intersection des deux branches de courbe est ainsi évalué avec une bonne précision à $280 \pm 0,5$ K.

La pente de la ligne de transition au point de compensation vaut 8 kOe/K. Elle est en assez bon accord avec celle (10 kOe/K) que Bernasconi et Kuse [101] ont obtenue à partir de mesures d'effet Faraday dans des champs inférieurs à 10 kOe.

L'accord est moins bon avec le diagramme déterminé par Levitin et al [91]. Leurs mesures de magnétostriction en champs pulsés très rapides (jusqu'à 240 kOe) sur des polycristaux, sont cependant beaucoup moins précises que les nôtres et l'accord est meilleur en champs intenses (> 100 kOe) que près du point de compensation.

Les aimantations spontanées et les susceptibilités superposées dans la phase colinéaire initiale sont très proches de celles mesurées par Pauthenet [41]. Notre valeur de $\frac{1}{\chi}$ pour $T = T_c$ est de 72 ± 3 kOe/ μ_B dans la phase colinéaire (par extrapolation) et de 66 ± 3 kOe/ μ_B dans la phase oblique.

Par contre, nos résultats sont en contradiction avec ceux de Rode et Vedyayev [109]. Ces auteurs trouvent des susceptibilités 7 fois trop petites et une aimantation spontanée beaucoup trop faible pour un champ de transition de 70 kOe et une température ambiante non précisée.

4-5 - Remarque sur la détermination des coefficients d'échange

Nous avons retenu pour ces coefficients les valeurs données par Pauthenet pour les raisons suivantes : elles donnent une température de compensation calculée de 278 K et ce sont celles qui reproduisent le mieux la variation thermique de l'aimantation spontanée M_s au voisinage de T_c . Sur la figure 53, pour comparer les pentes, nous avons fait coïncider le point de compensation calculé avec le point expérimental par une translation uniforme de 2 K sur la température. En principe, l'équation de la limite (45), où les coefficients de champ moléculaire n_{ij} ($i \neq j$) interviennent explicitement, constitue une relation supplémentaire pouvant aider à déterminer ces coefficients.

Nous avons tenté d'améliorer l'accord en cherchant un meilleur ensemble de coefficients. Nos données sont les courbes expérimentales $M_S(T)$ et $H_C(T)$ au voisinage de T_C . Les coefficients de champ moléculaire sont supposés indépendants de la température. Deux programmes de calcul fondés sur le principe des moindres carrés ont été mis en oeuvre avec deux algorithmes de résolution différents (Simplexe [110] et Newton [111]). Nous nous sommes rapidement convaincus que la solution de ce problème n'est pas unique, confirmant en cela les études analogues antérieures [106, 112]. Il semble que ce résultat négatif trouve son origine dans la nature exponentielle des fonctions de Brillouin, associée à des données expérimentales d'une précision insuffisante : en effet, à l'aide des mêmes programmes de calcul nous avons traité des courbes théoriques calculées à partir d'un ensemble de coefficients choisis de façon vraisemblable. Lorsque toute la précision du calculateur (CAE 510) est conservée (8 décimales) les deux méthodes redonnent les coefficients de départ avec trois chiffres significatifs et au bout d'une convergence déjà très lente. Par contre, si les données sont tronquées à 4 décimales les méthodes ne convergent plus vers une solution et fournissent des coefficients fantaisistes. Un résultat analogue a été constaté dans un problème de cinétique de diffusion faisant intervenir plusieurs exponentielles pures [113]. En résumé, les données disponibles ne sont pas assez précises pour déterminer directement les six coefficients de champ moléculaire du modèle.

4-6 - Diagramme isentropique et anomalies de chaleurs spécifiques

Les mesures en champs pulsés étant adiabatiques, nous allons examiner l'effet magnétocalorique, c'est-à-dire l'évolution de la température d'un échantillon isolé thermiquement lorsqu'il est soumis à l'action du champ magnétique. Cela revient à chercher les courbes isentropes du plan (H, T).

En tenant compte de la contribution du réseau cristallin $S_R(T)$ et de l'expression (7) de la partie magnétique, l'entropie totale s'écrit :

$$S(H, T) = S_R(T) - \sum_i N_i k \int_0^{M_i/N_i \mu_i} B_i^{-1}(x) dx \quad (49)$$

La pente de l'isentrope $S(H, T) = c^{te}$ est donc :

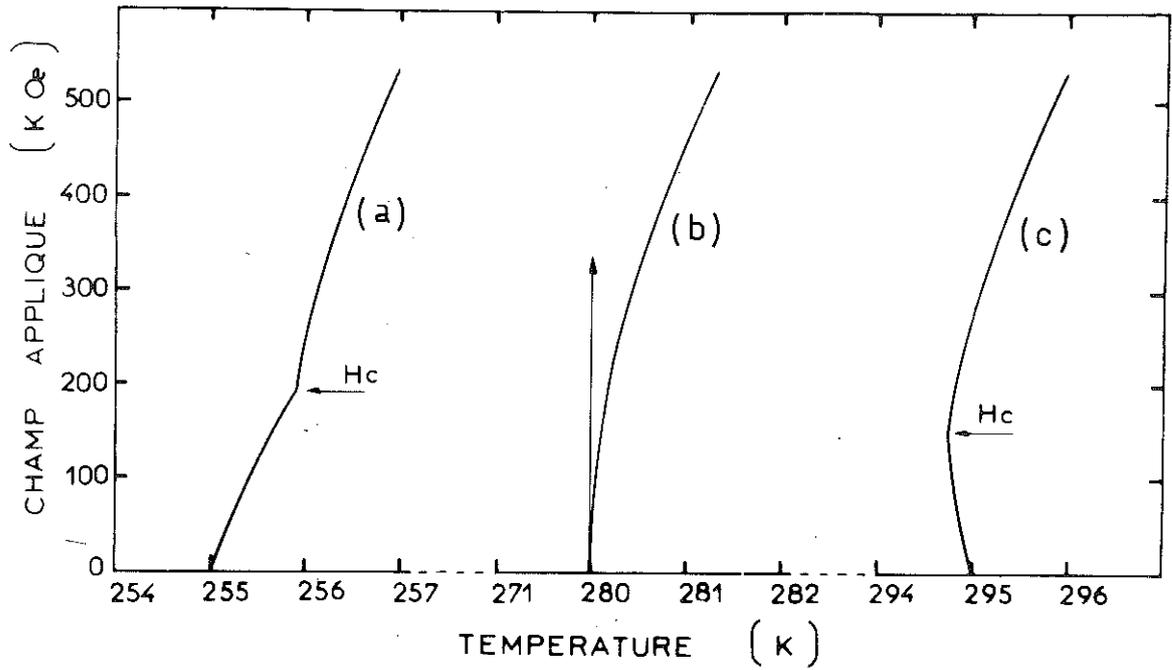


Figure 54 : Isentropes de GdIG calculées pour trois températures initiales différentes :

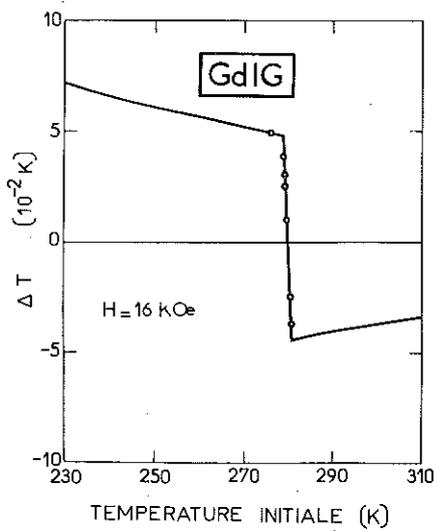


Figure 55 :

Effet magnétocalorique de GdIG de 0 à 16 kOe

— : courbe calculée

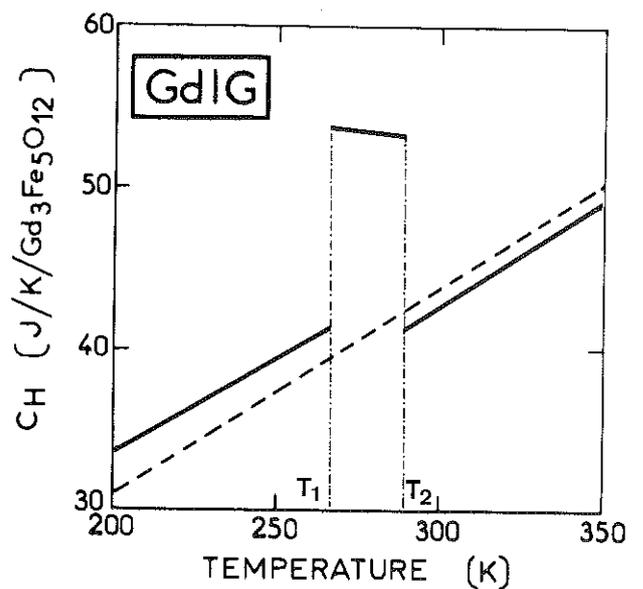
oo : points expérimentaux de Belov [115]

Figure 56 :

Chaleur spécifique magnétique théorique de GdIG au voisinage du point de compensation :

--- : courbe en champ nul

— : courbes pour $H = 100 \text{ kOe}$



$$\left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_S = \frac{- \sum_i H_i \left(\frac{\partial M_i}{\partial H}\right)_T}{C_R + C_H} \quad (50)$$

où C_R est la chaleur spécifique de réseau ($= T \frac{dS_R}{dT}$) et C_H la partie magnétique de la chaleur spécifique à champ constant

$$C_H = - \sum_i H_i \left(\frac{\partial M_i}{\partial T}\right)_H \quad (51)$$

Par intégration numérique de (50) à partir d'une température initiale T_0 , on obtient l'isentrope correspondante [$S(H,T) = S(0, T_0)$].

Dans les phases colinéaires il faut résoudre directement le système des trois équations non linéaires à trois inconnues M_1 , M_2 et M_3 .

Dans la phase oblique, le problème se simplifie beaucoup si l'on calcule d'abord l'isentrope dans le plan (λ, T) en opérant le changement de variable $H \rightarrow \lambda$. La pente de l'isentrope devient :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial \lambda}\right)_S = \frac{\sum_i H_i \left(\frac{\partial M_i}{\partial \lambda}\right)_T}{C_R - \sum_i H_i \left(\frac{\partial M_i}{\partial T}\right)_\lambda} \quad (52)$$

Nous avons effectué les calculs dans le cas du grenat de gadolinium au voisinage du point de compensation. La chaleur spécifique du réseau est supposée suivre une loi de Debye avec une température caractéristique $\Theta_D = 500$ K. Le programme de calcul, utilise, pour l'intégration pas à pas, une méthode de Runge-Kutta du cinquième ordre, et, pour la résolution des systèmes d'équations non linéaires, la méthode de Newton [111]. Trois isentropes caractéristiques sont représentées sur la figure 54.

Nous remarquons :

- Le changement de signe de l'effet magnétocalorique dans la phase colinéaire, de part et d'autre du point de compensation. Ceci provient de la contribution prépondérante du sous-réseau gadolinium, qui étant donné le champ effectif plus faible agissant sur lui, est le plus sensible à l'action du champ extérieur. L'application du champ entraîne l'aimantation ou la désaimantation de ce sous-réseau suivant qu'il est dans le même sens ($T_0 < T_c$, figure 54a) ou de sens contraire ($T_0 > T_c$, figure 54c).

- La pente initiale verticale de l'isentrope au point de compensation (figure 54b). Ce résultat se démontre rigoureusement dans le cas général, car, en utilisant le fait que dS est une différentielle totale, le numérateur de (52) se met sous la forme :

$$\sum_i H_i \left(\frac{\partial M_i}{\partial \lambda} \right)_T = - T M \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_\lambda \quad (53)$$

Au point de compensation, $M = 0$ donc $\left(\frac{\partial T}{\partial \lambda} \right)_S = 0$ et comme $\left(\frac{\partial H}{\partial \lambda} \right)_S \neq 0$, il s'ensuit : $\left(\frac{\partial T}{\partial H} \right)_S = 0$ qui est la propriété cherchée.

- L'effet magnétocalorique positif (échauffement) dans la phase oblique où la pente devient en champ intense du même ordre de grandeur que dans la phase colinéaire.
- Le changement de pente caractéristique à la transition qui peut être utilisé pour sa mise en évidence expérimentale [20].

Pour les comparer avec les mesures de Belov et autres [114, 115], nous avons reporté sur la figure 55 les écarts de température calculés pour un champ passant de 0 à 16 kOe, en fonction des températures initiales T_0 . Nous constatons un accord satisfaisant à condition de faire coïncider les points de compensation.

A partir des isentropes calculées, nous avons construit le diagramme adiabatique apparent $H_c(T_0)$. Le fait qu'il soit en meilleur accord avec l'expérience (figure 53) est significatif de la nature adiabatique des mesures en champ pulsé. L'écart entre les deux diagrammes est du même ordre de grandeur que celui qui est obtenu en faisant varier les coefficients de champ moléculaire.

Les variations théoriques du terme magnétique C_H de la chaleur spécifique à champ constant sont représentées sur la figure 56. Pour un champ donné, par exemple 100 kOe, la phase oblique existe pour les températures comprises entre T_1 et T_2 . Pour ces deux températures la transition se traduit par une discontinuité finie de l'ordre de 12 J/K/mole ce qui représente 2,5 % environ de la chaleur spécifique totale. Dans la phase oblique, entre T_1 et T_2 , la variation de C_H avec la température est en sens contraire de celui calculé dans les phases colinéaires. De plus, le calcul [70] montre qu'il dépend très peu du champ magnétique, de telle sorte que la discontinuité

tend vers une valeur voisine de 12 J/K/mole quand H tend vers 0, l'intervalle $T_2 - T_1$ tendant également vers 0.

5 - RESONANCE FERRIMAGNETIQUE DANS LES STRUCTURES NON COLINEAIRES

Nous allons montrer comment le formalisme développé jusqu'ici peut servir au calcul des fréquences de résonance ferrimagnétique dans les structures non colinéaires.

Les équations du mouvement pour les vecteurs \vec{M}_i sont :

$$\frac{1}{\gamma_i} \frac{d\vec{M}_i}{dt} = \vec{M}_i \wedge \vec{H}_i, \quad i = 1, \dots, r \quad (54)$$

où γ_i est le rapport gyromagnétique du sous-réseau i , et \vec{H}_i le champ effectif comme précédemment. Remarquons que la solution d'équilibre statique définie par $\frac{d\vec{M}_i}{dt} = 0$ est rigoureusement la même que celle qui a été calculée dans les paragraphes précédents. Cherchons les solutions stationnaires de pulsation ω lorsqu'on superpose au champ statique \vec{H}_0 un champ radiofréquence \vec{h} de faible amplitude. Les nouvelles grandeurs instantanées sont :

$$\vec{M}_i = (M_i + dM_i) \vec{u}_i + m_i d\vec{u}_i \quad (55)$$

$$\vec{H} = H \vec{u}_0 + h d\vec{u}_0 \quad (56)$$

$$\vec{H}_i = (H_i + dH_i) \vec{u}_i + \sum_j n_{ij} m_j d\vec{u}_j + h d\vec{u}_0 \quad (57)$$

en notant : M_i, H_i, H leurs valeurs statiques, \vec{u}_i les vecteurs unitaires à l'équilibre et $d\vec{u}_i$ les vecteurs unitaires de déplacement azimuthal. En remplaçant dans (54) et en ne conservant que les termes du premier ordre, on montre que chaque \vec{M}_i a un mouvement de précession autour de sa direction d'équilibre avec une vitesse angulaire $\epsilon_i \omega$ ($\epsilon_i = \pm 1$ suivant le sens de précession) :

$$\sum_j \left[\left(\frac{\epsilon_i \omega}{\gamma_i} + H_i \right) \delta_{ij} - n_{ij} M_i \right] m_j \vec{u}_i \wedge d\vec{u}_j = h M_i \vec{u}_i \wedge d\vec{u}_0 \quad (58)$$

La discussion des équations d'équilibre nous a montré que le système des vecteurs \vec{M}_i et \vec{H} étant coplanaire. Il existe donc un vecteur unitaire \vec{n} normal à ce plan tel que à un facteur de phase près :

$$d\vec{u}_j = \vec{n} \wedge \vec{u}_j \quad j = 0, 1, \dots, r, \quad (59)$$

$$\text{et } \vec{u}_i \wedge d\vec{u}_j = (\vec{u}_i, \vec{u}_j) \vec{n}$$

En utilisant les notations précédentes :

$$\frac{H_i}{M_i} = \lambda_i ; \vec{u}_i \cdot \vec{u}_j = \cos \theta_{ij} ; \vec{u}_i \cdot \vec{u}_0 = \cos \theta_i ;$$

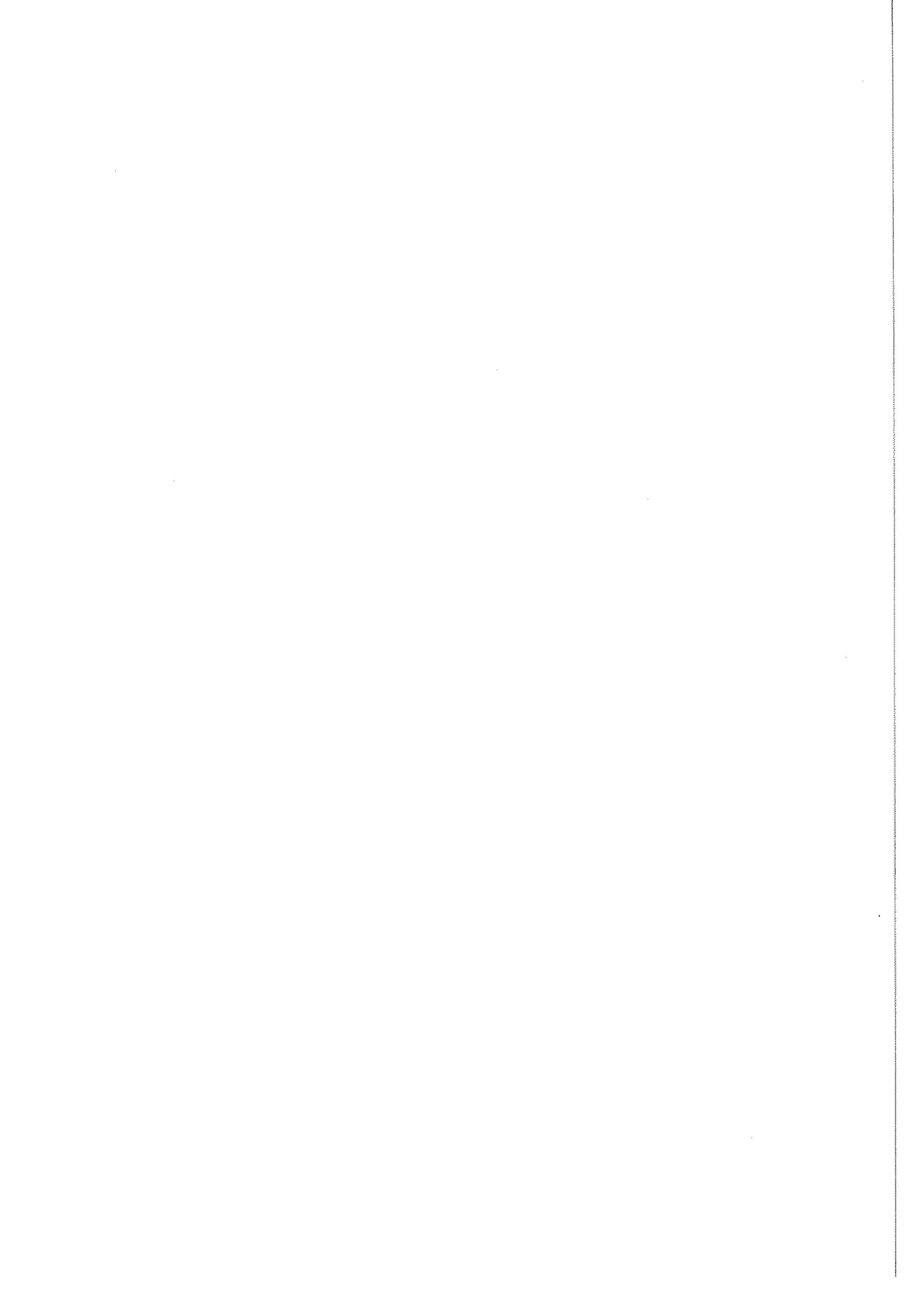
on obtient en projection sur \vec{n}

$$\sum_j \left[\left(\frac{\omega}{\gamma_i M_i} + \lambda_i \right) \delta_{ij} - n_{ij} \cos \theta_{ij} \right] m_j = h \cos \theta_i \quad (60)$$

Les fréquences propres du système de moments s'obtiennent pour $h = 0$ en annulant le déterminant des coefficients des inconnues m_j .

Lorsque la configuration oblique tend vers une configuration colinéaire tous les $\cos \theta_{ij}$ deviennent égaux à +1 ou -1. Nous retrouvons les équations classiques de Dreyfus [116]. Les conséquences sont les suivantes :

- Dans la structure non colinéaire, les fréquences de résonance sont solutions de deux équations de degré n en ω de manière tout à fait analogue au cas colinéaire.
- Il y a continuité des branches de résonance au passage d'une structure à l'autre.
- Les équations permettent de calculer les courbes (ω, H) en utilisant les expressions des λ_i et des $\cos \theta_{ij}$ en fonction du paramètre λ .



CHAPITRE IV

DIAGRAMME DE PHASE D'UN FERRIMAGNÉTIQUE ANISOTROPE.

APPLICATION AUX GRENATS D'ERBIUM ET D'HOLMIUM

1 - DETERMINATION DES STRUCTURES EN PRESENCE D'INTERACTIONS ANISOTROPES

1-1 - Généralités

Si le ferrite grenat de gadolinium peut souvent être considéré comme isotrope, ce n'est pas le cas des autres composés et nous devons améliorer le modèle précédent. Pour tenir compte du couplage des moments magnétiques avec le réseau cristallin, on introduit habituellement dans l'énergie libre un terme anisotrope d'énergie magnéto-cristalline.

Rappelons les deux mécanismes principaux qui sont à l'origine de cette anisotropie :

- a - une interaction directe entre chaque moment magnétique et le cristal par couplage électrostatique des orbitales électroniques avec le champ cristallin des ions environnants. C'est l'anisotropie locale, attachée à chaque site, qui se traite par un modèle à un ion,
- b - une interaction indirecte par le fait que le couplage entre les moments dépend non seulement de leur disposition relative mais aussi de leur orientation par rapport aux axes cristallins.

Le mécanisme a) autorise, dans l'hypothèse du champ moléculaire, une séparation en contributions indépendantes des différents sous-réseaux [117]. Quelques auteurs ont utilisé cette simplification pour aborder l'étude des diagrammes de phase des ferrimagnétiques anisotropes [81,82,118-121]. Malgré cela, les calculs sont complexes et conduisent en fait à une résolution numérique du problème.

D'autre part, toutes les études expérimentales concernent les grenats de terres rares dans lesquels le mécanisme b) est prépondérant, du fait de l'anisotropie des interactions d'échange [122-127]. Les conséquences pour la recherche des configurations non colinéaires stables sont les suivantes :

- Des termes d'anisotropie à deux ions apparaissent et le nombre de paramètres du modèle augmente considérablement (pour les grenats, dix sont parfois nécessaires [127]).
- Leur détermination demande un grand nombre d'expériences de type différent et notamment les données expérimentales habituelles sur l'anisotropie sont insuffisantes [38,128].
- La résolution des équations d'équilibre n'est pas possible analytiquement et le calcul des énergies libres des différentes configurations se fera numériquement.
- Les différents sites des ions terres rares dans les grenats ne sont pas équivalents et l'anisotropie induit une structure non colinéaire des moments terres rares même en l'absence de champ [129-131].

Pour une comparaison quantitative avec l'expérience, chaque composé doit donc faire l'objet d'une étude particulière. Nous montrerons au chapitre V que dans le cas du grenat d'ytterbium un modèle à 6 paramètres seulement est capable d'expliquer tous les faits expérimentaux avec une bonne précision.

Dans ce chapitre nous nous limiterons à l'étude de la stabilité des configurations colinéaires. En effet, lorsque les moments font des angles très voisins de 0 ou π avec le champ magnétique appliqué suivant un axe de symétrie du cristal, l'anisotropie peut se traduire simplement au moyen d'un champ effectif supplémentaire, appelé champ d'anisotropie, et cela quelle que soit son origine. L'étude de la stabilité de ces configurations est donc possible. Nous allons

montrer qu'elle permet de discuter simplement la plupart des propriétés essentielles du diagramme de phase et de les comparer à l'expérience de façon semi-quantitative.

En ce qui concerne les grenats, nous continuerons à considérer les ions terres rares comme formant un seul sous-réseau magnétique. Cette approximation, (d'autant mieux justifiée, que la température sera plus élevée), ne change pas la nature du problème : lorsque les aimantations des ions fer sont alignés suivant un axe de symétrie du cristal, il est clair que le moment résultant des ions terre rare l'est aussi. Cette situation se conserve si le champ magnétique est également appliqué suivant cet axe. Le caractère essentiel de la phase que nous avons appelée colinéaire jusqu'à maintenant est donc en fait de posséder une symétrie axiale. Dans le cas isotrope les deux notions sont identiques et la distinction n'était pas nécessaire : si les moments sont colinéaires entre eux ils sont colinéaires au champ appliqué \vec{H} et le système a la symétrie de révolution. En présence d'anisotropie, c'est-à-dire d'interaction avec le cristal il faut considérer les symétries de l'ensemble cristal + champ magnétique.

Si chaque sous-réseau possède une structure véritablement colinéaire, comme nous l'avons supposé jusqu'ici, et si son moment résultant est aligné avec un axe de symétrie, nous aurons encore une symétrie de révolution, quand le champ est nul ou dirigé suivant cet axe.

Si la structure de chaque sous-réseau est plus complexe, par exemple conique, ou si plusieurs sous-réseaux se correspondent par symétrie, lorsque le moment résultant de ce sous-réseau ou de cet ensemble de sous-réseaux est aligné avec un axe de symétrie cristalline, le système magnétique est invariant dans les opérations de symétrie liées à cet axe. Il en est de même lorsque cette configuration est un état d'équilibre stable en présence d'un champ magnétique appliqué suivant cette même direction. Nous continuerons de parler dans ce cas de configuration colinéaire, le mot colinéaire étant pris dans un sens global, dans la mesure où cela n'entraîne pas de confusion. Lorsqu'il sera nécessaire de lever toute ambiguïté, nous employerons le terme plus approprié de configuration coaxiale. Une configuration oblique désignera toujours une situation caractérisée par l'absence de symétrie axiale.

1-2 - Remarques générales sur le diagramme de phase

Les différentes énergies d'interaction sont en général du même ordre de grandeur dans les ferrimagnétiques que dans les ferromagnétiques ou les antiferromagnétiques. Des températures d'ordre de quelques centaines de degré Kelvin correspondent à des énergies d'échange de 10^8 erg/cm³ environ. Les énergies d'anisotropie varient généralement de 10^4 à 10^6 erg/cm³. Enfin l'énergie de couplage d'une aimantation de 500 u.e.m./cm³ avec un champ appliqué de $2 \cdot 10^4$ Oe atteint 10^7 erg/cm³.

Supposons qu'en l'absence de champ extérieur, les interactions d'échange imposent une configuration ferrimagnétique colinéaire de direction Δ . Celle-ci s'oriente suivant l'une des directions d'énergie magnétocristalline minimale. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, deux cas se présentent suivant la grandeur de M_s :

a - si M_s est important, le comportement sera voisin de celui des ferromagnétiques. Lorsque \vec{H} n'est pas appliqué selon la direction initiale Δ , l'alignement complet de M_s sur le champ aura lieu dans quelques kOe tout au plus. Tant que les moments ne sont pas parallèles au champ H , leurs directions diffèrent peu d'une direction moyenne. La structure n'est pas rigoureusement colinéaire : nous avons affaire à une phase oblique en champ faible. Si le champ est appliqué selon un axe de symétrie, l'alignement de tous les moments suivant H correspond à l'établissement d'une configuration colinéaire pour un champ assez modéré H_1 .

Lorsque l'intensité du champ augmente, il arrive que son énergie de couplage avec les moments soit du même ordre de grandeur que les énergies d'échange : la structure colinéaire devient instable au profit d'une structure oblique pour un champ H_2 . L'énergie d'anisotropie modifie peu le bilan énergétique et H_2 sera très voisin du champ seuil calculé dans l'hypothèse isotrope. De même la configuration ferromagnétique apparaîtra pour un champ H_3 presque identique à celui du diagramme isotrope.

b - si M_s est faible, voire nulle, le couple exercé sur les moments par un champ modéré, est comparable au couple de rappel dû à l'anisotropie. La situation est celle des antiferromagnétiques. La plus grande valeur de la susceptibilité dans la phase oblique, que l'on peut noter χ_{\perp} par analogie, rend au contraire favorable

une configuration où tous les moments sont presque perpendiculaires au champ. Le comportement sera très différent suivant les orientations du champ et, notamment, la phase oblique pourra rester stable jusqu'au champ H_3 .

Par conséquent, nous aurons deux situations bien distinctes suivant l'existence, ou non, d'un point de compensation :

- Pour les ferrites sans point de compensation, la phase non colinéaire induite par le champ n'existe qu'en champs très intenses et le diagramme de phase est très peu modifié. Suivant les directions de difficile aimantation, il apparaît un premier champ critique dans les champs faibles qui marque la fin de la rotation de l'aimantation spontanée.
- Lorsqu'il existe un point de compensation, le diagramme est profondément modifié dans la région de celui-ci.

Nous limiterons notre étude à ce dernier cas, le plus intéressant, qui est réalisé dans les ferrites grenats de terres rares.

1-3 - Description phénoménologique de l'anisotropie d'une substance à plusieurs sous-réseaux

Supposons que les moments magnétiques soient répartis en plusieurs sous-réseaux distincts avec une direction moyenne identique sur chaque site du même sous réseau. Le terme d'énergie magnétocristalline E_a dépend des directions \vec{u}_i , des aimantations macroscopiques \vec{M}_i des différents sous-réseaux, par rapport aux axes du cristal. Nous admettrons que la partie isotrope de l'énergie libre a la même forme que précédemment. On montre [132] que les nouvelles équations d'équilibre sont :

$$(\vec{H}_{i0} - \frac{1}{M_i} \frac{\partial}{\partial \vec{u}_i} E_a) \wedge \vec{u}_i = 0, \quad (61)$$

$$M_i = N_i \mu_i B_i \left(\frac{\mu_i}{kT} \vec{H}_{i0} \cdot \vec{u}_i \right) + \Delta M_i, \quad (62)$$

avec
$$\vec{H}_{i0} = \vec{H} + \sum_j n_{ij} \vec{M}_j \quad (63)$$

et les notations déjà utilisées.

Le module de l'aimantation ne s'exprime plus par une simple fonction de Brillouin [133]. Cependant le terme correctif ΔM_i , dont l'expression est compliquée, est en général petit [39,132] devant le premier terme de (62). Il pourra être le plus souvent négligé en première approximation. L'effet de l'anisotropie se réduit essentiellement à un effet d'orientation.

Tout se passe comme si le cristal exerçait un couple $\vec{\Gamma}_{a_i}$ sur le moment \vec{M}_i par l'intermédiaire d'un champ fictif d'anisotropie :

$$\vec{H}_{a_i} = - \frac{1}{M_i} \frac{\partial}{\partial \vec{u}_i} E_a \quad (64)$$

$$\vec{\Gamma}_{a_i} = \vec{M}_i \wedge \vec{H}_{a_i} \quad (65)$$

Le couple qui doit être appliqué sur le cristal pour maintenir sa position est :

$$\vec{\Gamma}_m = - \sum_i \vec{\Gamma}_{a_i} \quad (66)$$

1-4 - Existence et stabilité des configurations colinéaires

Dans une phase colinéaire de direction Δ , pour un champ H donné, la partie anisotrope de E_a est une fonction des cosinus directeurs du vecteur unitaire \vec{k} de Δ :

$$\vec{u}_i = \pm \vec{k} \cdot \vec{V}_i \Rightarrow E_a = A_0(H,T) + A(H,T,\vec{k}) \quad (67)$$

En l'absence de champ, la fonction $A(0,T,\vec{k})$ est invariante dans les opérations de symétrie du cristal. Ses extrema correspondent à des vecteurs \vec{k} dirigés suivant les axes de symétrie d'ordre supérieur ou égal à 2 : ce sont donc les seules directions de facile aimantation possibles [78-80]. En présence d'un champ magnétique appliqué \vec{H} , une configuration colinéaire ne peut exister que si \vec{H} est dirigé selon un axe de symétrie. Si cet axe est une direction de difficile aimantation en champ nul, la phase colinéaire n'est stable que si le champ est suffisamment intense.

Soit \vec{k}_0 le vecteur unitaire de l'un de ces axes. La fonction $A(H,T,\vec{k})$ possède un extremum pour $\vec{k} = \vec{k}_0$. Pour de petits écarts angulaires θ_i des aimantations \vec{M}_i par rapport à \vec{k}_0 , le développement de E_a ne contient que des termes pairs en θ_i , par raison de symétrie. Il a donc la forme :

$$E_a = A_0 + A(\vec{k}_0) + \sum_i A_i \frac{\theta_i^2}{2} + o(\theta_i^4) \quad (68)$$

ou encore :

$$E_a = A_0 + A(\vec{k}_0) + \sum_i A_i (1 - \vec{k}_0 \cdot \vec{u}_i) + o(\theta_i^4) \quad (69)$$

donc, d'après (64) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{H}_{a_i} = \frac{A_i}{M_i} \vec{k}_0 \\ E_a = E_0 - \sum_i \vec{H}_{a_i} \cdot \vec{M}_i \\ E_0 = A_0(H, T) + A(H, T, \vec{k}_0) + \sum_i A_i(H, T, \vec{k}_0) \end{array} \right. \quad (70)$$

Les équations qui permettent de trouver les directions \vec{u}_i à l'équilibre sont les mêmes que dans le cas isotrope si l'on remplace le champ effectif \vec{H}_{i0} par un nouveau champ effectif :

$$\vec{H}_i = \vec{H}_{i0} + \vec{H}_{a_i} \quad (71)$$

il existe toujours d'après (61) un scalaire $\lambda_i(H, T)$ tel que $\vec{H}_i = \lambda_i \vec{M}_i$.

Ces relations sont valables pour de petites déviations par rapport aux axes de symétrie. A cet ordre d'approximation les \vec{M}_i appartiennent au plan défini par \vec{H} et \vec{k}_0 . Enfin les conditions de résonance ont la même forme que précédemment (chap. III, § 5).

$$\text{dét} \left| \left(\frac{\epsilon_i \omega}{\gamma_i M_i} + \lambda_i \right) \delta_{ij} - \epsilon_{ij} n_{ij} \right| = 0 \quad (72)$$

Le critère de stabilité des configurations colinéaires correspondant à une fréquence de résonance nulle est donc :

$$\text{dét} \left| \lambda_i \delta_{ij} - \epsilon_{ij} n_{ij} \right| = 0 \quad (73)$$

ou, en prenant les valeurs algébriques suivant Δ orientée par \vec{k}_0 :

$$\text{dét} \left| \bar{H}_i \delta_{ij} - \epsilon_{ij} n_{ij} \bar{M}_i \right| = 0 \quad (74)$$

Rappelons que $\epsilon_{ij} = \cos \theta_{ij} = \pm 1$ suivant que \vec{M}_i et \vec{M}_j sont parallèles ou antiparallèles.

Explicitons les cas de deux et trois sous-réseaux :

à 2 sous-réseaux :

$$\begin{vmatrix} H + \bar{H}_{a_1} + n_{12} \bar{M}_2 & - \epsilon_{12} n_{12} \bar{M}_1 \\ - \epsilon_{12} n_{12} \bar{M}_2 & H + \bar{H}_{a_2} + n_{12} \bar{M}_1 \end{vmatrix} = 0$$

soit :

$$H^2 + H \left[\bar{H}_{a_1} + \bar{H}_{a_2} + n_{12} (\bar{M}_1 + \bar{M}_2) \right] + n_{12} (\bar{H}_{a_1} \bar{M}_1 + \bar{H}_{a_2} \bar{M}_2) + \bar{H}_{a_1} \bar{H}_{a_2} = 0 \quad (75)$$

à 3 sous-réseaux :

$$\begin{aligned} H^3 + H^2 \left[\bar{H}_{a_1} + \bigcirc + n_{12} (\bar{M}_1 + \bar{M}_2) + \bigcirc \right] \\ + H \left[\bar{H}_{a_1} \bar{H}_{a_2} + \bigcirc + n_{12} (\bar{M}_1 + \bar{M}_2) (\bar{H}_{a_1} + \bar{H}_{a_2}) + \bigcirc + (\bar{M}_1 + \bar{M}_2 + \bar{M}_3) (n_{12} n_{31} \bar{M}_1 + \bigcirc) \right] \\ + \bar{H}_{a_1} \bar{H}_{a_2} \bar{H}_{a_3} + \bar{H}_{a_1} \bar{H}_{a_2} (n_{31} \bar{M}_1 + n_{23} \bar{M}_2) + \bigcirc + \bar{H}_{a_1} \bar{M}_1 (n_{12} n_{31} \bar{M}_1 + \bigcirc) + \bigcirc = 0 \end{aligned} \quad (76)$$

(+ \bigcirc = somme sur les permutations circulaires des indices 1, 2, 3).

Ces critères de stabilité appellent quelques remarques :

- Les courbes $H(T)$, définies par les différentes racines de ces équations, ne sont pas facilement calculables car il faut résoudre simultanément le système d'équations (62) qui donnent les valeurs des aimantations \bar{M}_i .
- Les quantités ϵ_{ij} n'apparaissent pas : les relations sont valables, en notation algébrique, pour toutes les structures colinéaires possibles. A chaque configuration correspond une équation différente donc une famille de courbes distinctes.
- En l'absence d'anisotropie ($H_{a_1} = H_{a_2} = H_{a_3} = 0$) nous retrouvons évidemment les courbes du diagramme isotrope. On notera qu'au passage à la limite, l'une des racines tend vers zéro et le degré de l'équation est abaissé d'une unité.

2 - DIAGRAMME DE PHASE DES FERRITES A POINT DE COMPENSATION

2-1 - Modèle à deux sous-réseaux

Etant donné la difficulté de calculer les propriétés des configurations obliques, il n'est pas possible de calculer les champs de transition thermodynamiques qui sont définis par l'égalité des énergies libres des deux phases. En étudiant les limites de stabilité des phases colinéaires, nous ne pouvons espérer qu'un accord qualitatif. Les faits essentiels pourront se discuter dans un modèle à deux sous-réseaux. Nous verrons ensuite comment l'on peut s'y ramener dans le cas des ferrites grenats.

En reprenant les notations du chapitre III, et en supposant $|M_{20}| > |M_{10}|$, les configurations colinéaires possibles sont :

$$\begin{aligned} F & : \bar{M}_1 > 0 & \bar{M}_2 > 0 \\ A^+ & : \bar{M}_1 > 0 & \bar{M}_2 < 0 & (T > T_c) \\ A^- & : \bar{M}_1 < 0 & \bar{M}_2 > 0 & (T < T_c) \end{aligned}$$

A température finie, la susceptibilité différentielle dans les phases A^- et A^+ n'est généralement pas négligeable puisque l'aimantation de l'un des sous-réseaux est en sens contraire du champ. Pour en tenir compte, nous appellerons M_s l'aimantation totale spontanée en champ nul, et nous poserons formellement :

$$\bar{M}_1 + \bar{M}_2 = \bar{M}_s(T) + \chi H \quad (77)$$

où χ est positif et représente la susceptibilité superposée moyenne entre 0 et H. En notant toujours $\lambda = -n_{12} > 0$ nous poserons pour simplifier les expressions :

$$\begin{aligned} \alpha & = \lambda \chi \quad (0 < \alpha < 1) \\ A & = \bar{H}_{a_1} \bar{M}_1 + \bar{H}_{a_2} \bar{M}_2 \\ H_A & = \bar{H}_{a_1} + \bar{H}_{a_2} \quad (\text{dans la configuration } A^+) \\ H_F & = \bar{H}_{a_1} + \bar{H}_{a_2} \quad (\text{dans la configuration } F) \\ h^2 & = \bar{H}_{a_1} \bar{H}_{a_2} \end{aligned} \quad (78)$$

Nous introduisons également un champ d'anisotropie effectif :

$$H_a = \frac{A}{M_s} \quad (79)$$

et, pour comparaison, le champ seuil du diagramme isotrope correspondant :

$$H_s = \lambda(\bar{M}_1 + \bar{M}_2) = \frac{\lambda \bar{M}_s}{1-\alpha} \quad (80)$$

Pour une direction "facile" A est positif. Au passage du point de compensation l'inversion de la configuration change H_A en $-H_A$: nous noterons donc ϵH_A avec $\epsilon = -1$ pour $T < T_c$ et $\epsilon = +1$ pour $T > T_c$ de façon à traiter simultanément les configurations A^- et A^+ .

2-2 - Champ appliqué parallèle à une direction de facile aimantation

L'équation de la limite de la phase colinéaire s'écrit :

$$\boxed{H^2 (1-\alpha) - H(\lambda M_s + \epsilon H_A) - \lambda A + h^2 = 0} \quad (81)$$

ou encore :

$$H = \frac{1}{2} \left[\frac{\lambda M_s + \epsilon H_A}{1-\alpha} + \sqrt{\left(\frac{\lambda M_s + \epsilon H_A}{1-\alpha} \right)^2 + \frac{4(\lambda A - h^2)}{1-\alpha}} \right] \quad (82)$$

Loin du point de compensation le terme λM_s est prépondérant ($\lambda M_s \gg H_a$) le premier champ d'instabilité est :

$$H_2^\pm \neq H_s + H_a \pm \frac{H_A}{1-\alpha} > H_s \quad (83)$$

Alors qu'au voisinage du point de compensation les deux branches de la limite se coupent en un point (T_0, H_0) tel que :

$$\begin{aligned} \lambda M_s(T_0) + \epsilon H_A(T_0) &= 0 \quad (T_0 \neq T_c) \\ H_0 &= \sqrt{\frac{\lambda A - h^2}{1-\alpha}} \end{aligned} \quad (84)$$

Le champ d'instabilité de la phase ferromagnétique est :

$$H_3 \neq H_s + H_a + \frac{H_F}{1-\alpha} < H_s \quad (85)$$

Enfin lorsque l'aimantation M_2 est nulle,

$$(M_2 = 0 \quad H_{a_2} = 0, h = 0, H_A = \bar{H}_{a_1}, H_a = \frac{\bar{H}_{a_1}}{1-\alpha}) :$$

$$H_3 = H_2^+ = \lambda \bar{M}_1 + 2 \frac{\bar{H}_{a_1}}{1-\alpha} \quad (86)$$

Le point C est donc pratiquement le même que dans le cas isotrope, avec pour coordonnées :

$$H_{c_2} \neq \lambda M_1 \quad (87)$$

$$T_{c_2} = \lambda C_2 = \frac{S_2 + 1}{3S_2} \frac{N_2 \mu_2^2}{k}$$

La forme du diagramme est représentée sur la figure 57.

Précisons le voisinage du point de compensation et montrons qu'il existe une ligne de transition du premier ordre qui sépare les deux configurations inverses pour $H \leq H_0$. En effet, la limite de stabilité $H_2^-(T)$ de la configuration A^- se prolonge au delà de T_c . Le champ H_2^- est alors le champ critique de renversement, par rotation à l'unisson de cette configuration, pour un monodomaine dont l'aimantation spontanée se trouve initialement en sens contraire du champ appliqué. Il en est de même pour la configuration A^+ dont la courbe H_2^+ se prolonge pour $T < T_c$. Dans la région du plan (H, T) située entre l'axe des températures et les deux courbes limites pour $H_2^\pm \leq H_0$, les deux phases issues des deux configurations inverses sont métastables l'une par rapport à l'autre.

Dans le voisinage immédiat de T_c nous pouvons considérer les développements limités suivants :

$$M_s(T) = d |T - T_c| \quad (d > 0) \quad (88)$$

$$(\bar{M}_1 + \bar{M}_2)^+ = d(T - T_c) + aH + bH^2 + cH^3 + \dots$$

$$(\bar{M}_1 + \bar{M}_2)^- = -d(T - T_c) + aH - bH^2 + cH^3 + \dots$$

Pour une température donnée, les variations correspondantes des énergies libres des deux phases, quand le champ H est appliqué, sont données par :

$$\Delta G = - \int_0^H (\bar{M}_1 + \bar{M}_2) dH \quad (89)$$

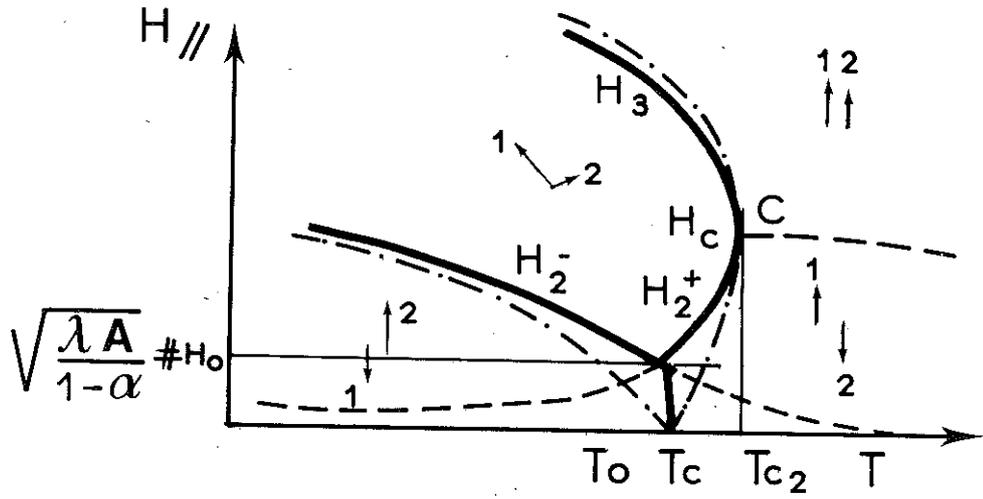


Figure 57 : Diagramme anisotrope suivant un axe "facile"

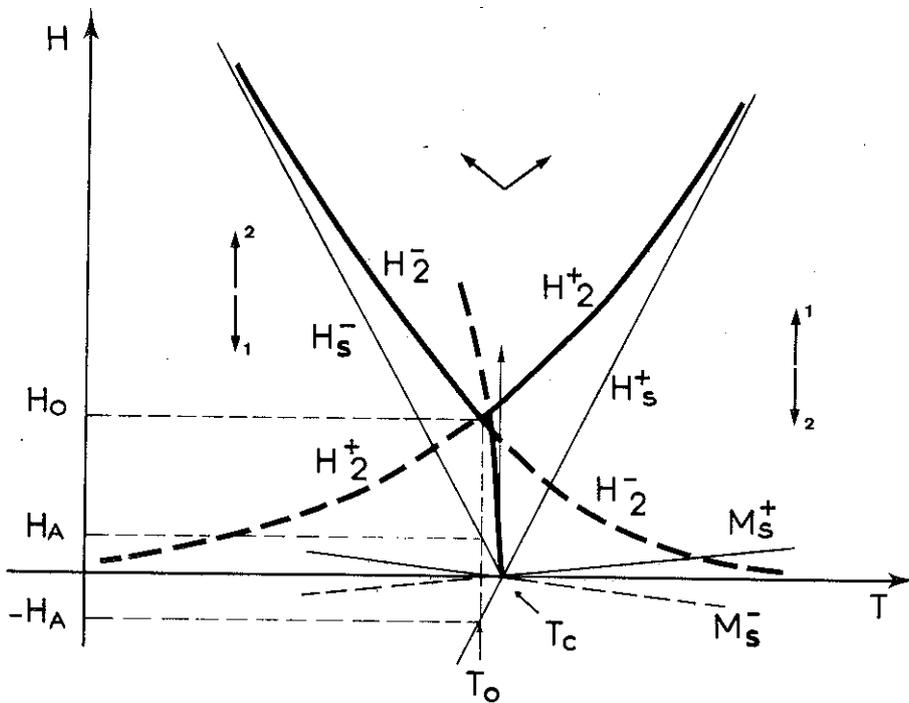


Figure 58 : Voisinage de T_c suivant un axe "facile"

Les deux énergies libres G^+ et G^- sont égales si $\Delta G^+ = \Delta G^-$, c'est-à-dire :

$$T - T_c = - \frac{b}{3d} H^2 \quad (90)$$

Cette condition définit une ligne de transition de phase du premier ordre, avec une tangente verticale au point de compensation, et une allure parabolique. Les discontinuités d'aimantation et d'entropie à la transition sont respectivement

$$\Delta M = \frac{4}{3} b H^2 \quad (91)$$

$$\Delta S = 2 b H$$

Le détail des courbes au voisinage du point de compensation est schématisé sur la figure 58.

2-3 - Champ appliqué suivant une direction de difficile aimantation

Les champs d'anisotropie prennent de nouvelles valeurs H'_{a_1} et H'_{a_2} de telle sorte que $\bar{H}'_{a_1} \bar{M}_1 + \bar{H}'_{a_2} \bar{M}_2 = A$ soit négatif. Pour garder des valeurs positives nous poserons $A' = -A$ et nous primerons les grandeurs dont les valeurs ont changé par rapport au cas précédent. En faisant les substitutions $A \rightarrow -A'$, $H_A \rightarrow H'_A$, $h^2 \rightarrow h'^2$, l'équation de la limite devient :

$$H^2(1 - \alpha) - H(\lambda M_S + \epsilon H'_A) + \lambda A' + h'^2 = 0 \quad (92)$$

Elle n'a de racines en H que si :

$$(\lambda M_S + \epsilon H'_A)^2 - 4(\lambda A' + h'^2)(1 - \alpha) \geq 0 \quad (93)$$

Pour la température de compensation et en champ faible cette condition n'est pas vérifiée ($M_S(T_c) = 0$ si l'on néglige l'anisotropie de l'aimantation) : la configuration oblique reste stable jusqu'en champs intenses. L'égalité dans (33) définit de part et d'autre de T_c deux températures limites T'_- et T'_+ pour lesquelles l'équation a la même racine double :

$$H'_0 = \sqrt{\frac{\lambda A' + h'^2}{1 - \alpha}} \quad (94)$$

Ces températures vérifient :

$$H_s(T'_\pm) = 2H'_0 \mp \frac{H'_A}{1-\alpha} \quad (95)$$

d'où la disposition géométrique de la figure 59.

Loin du point de compensation, pour λM_s suffisamment grand, les champs d'instabilité de la phase colinéaire sont :

$$H_1^{\pm} \neq H'_a \left(1 \mp \frac{H'_A}{\lambda M_s} \right) \quad , \quad (96)$$

$$H_2^{\pm} \neq H'_s - H'_a \pm \frac{H'_A}{1-\alpha} \quad , \quad (97)$$

$$H_3^{\pm} \neq H'_s - H'_a + \frac{H'_F}{1-\alpha} \quad , \quad (98)$$

avec $H'_a = \frac{A'}{M_s} \ll \lambda M_s$.

Le diagramme aura donc l'allure représentée sur la figure 60.

2-4 - Diagrammes réels

Le champ de transition thermodynamique H_{th} est en principe celui qui correspond à l'égalité des énergies libres des deux phases. Si la transition est du deuxième ordre, c'est celui que nous avons calculé, puisque les deux phases sont toutes les deux instables. Par contre, si la transition est du premier ordre, H_{th} est compris entre les limites d'instabilité des deux phases.

Dans le cas d'une anisotropie uniaxe, avec une seule direction "facile", il est clair que les deux limites seront du même côté du diagramme isotrope et la forme des courbes est conservée.

Pour une symétrie cubique, il existe plusieurs directions "faciles" équivalentes. En champ nul, elles donnent lieu à des phases colinéaires qui sont toutes également stables, car elles correspondent à des "puits" de la partie anisotrope de l'énergie. Si l'aimantation spontanée est importante, l'énergie de champ démagnétisant impose une subdivision de l'échantillon en domaines ferrimagnétiques et les différentes phases coexistent. Un champ très faible, appliqué suivant l'un des axes "faciles", est suffisant pour qu'une seule phase (A) reste stable : celle qui correspond à la direction du champ. Par

contre, au point de compensation, l'aimantation spontanée est nulle et la situation est tout à fait analogue à celle des antiferromagnétiques cubiques. Les différentes phases (B) issues d'une direction "facile" autre que celle du champ se trouvent en situation "perpendiculaire" et restent stables. C'est au contraire la phase A "parallèle" au champ qui devient instable au profit des autres pour $H \approx H_0$. Le diagramme de stabilité de la phase A sera bien conforme aux figures 57 et 58 ($H_{//}$) alors que celui des phases de type B correspondra aux figures 59 et 60 (H_{\perp}). Dans le cas d'une anisotropie de symétrie cubique, plusieurs phases obliques différentes peuvent être métastables dans la région du point de compensation. La ligne de transition thermodynamique peut donc se placer de façon quelconque par rapport au diagramme isotrope.

3 - APPLICATION AUX FERRITES GRENATS DE TERRES RARES

3-1 - Approximation à deux sous-réseaux

Etant donné le très fort couplage d'échange entre les ions fer, ceux-ci peuvent être considérés comme un seul sous-réseau équivalent dont l'aimantation M_{Fe} ne dépend que de la température [41]. Le coefficient de champ moléculaire équivalent avec le sous-réseau des ions terre rare est défini dans une configuration colinéaire par :

$$n = \frac{n_{31} \bar{M}_1 + n_{23} \bar{M}_2}{\bar{M}_1 + \bar{M}_2} \quad (99)$$

avec les mêmes notations que pour le grenat de gadolinium (voir tableau 5, chapitre III). Par ailleurs, les courbes d'aimantation $M(H)$ dans les phases colinéaires [41,134,135] sont bien traduites par une loi du type :

$$M = M_s(T) + \chi_0(T) H \quad (100)$$

Cependant, nous ne pouvons pas appliquer ce modèle à deux sous-réseaux sans précaution, près de la température de compensation. En effet, Pauthenet [41] a montré que la susceptibilité superposée $\chi_0(T_c)$ est égale en première approximation à $-\frac{1}{n}$. Ceci conduit à une valeur de $\alpha = 1$ dans le modèle précédent. Autrement dit la phase colinéaire serait toujours stable et le champ H_0 tendrait vers l'infini. Il nous faut donner deux significations distinctes à n et λ : n est lié au champ moléculaire qui agit sur les ions terres rares dans la phase colinéaire alors que λ est défini dans la zone oblique et doit, en fait être évalué dans un modèle à 3 sous-réseaux.

De façon plus précise, considérons l'équation qui permet de calculer l'aimantation \bar{M}_R du sous-réseau terre rare dans une approximation haute température :

$$\bar{M}_R = \frac{C_2}{T} (n \bar{M}_{Fe} + n' \bar{M}_R + H) \quad (101)$$

où n' représente l'interaction entre les ions terre rare.

On en déduit :

$$\frac{d\bar{M}_R}{\bar{M}_R} = \frac{dH}{n \bar{M}_{Fe} + H} \quad (102)$$

Au point de compensation $\bar{M}_R + \bar{M}_{Fe} = 0$, donc la susceptibilité différentielle initiale χ_0 prend la valeur :

$$\chi_0(T_c) = \left(\frac{d\bar{M}_R}{dH} \right)_{\substack{H=0 \\ T=T_c}} = - \frac{1}{n(T_c)} \quad (103)$$

Ce résultat est valable quel que soit le nombre de sous-réseaux considérés pour les ions fer et avec une constante de Curie C_2 qui n'est pas nécessairement celle des ions terre rare libres.

Par contre, si nous reprenons le calcul du modèle à trois sous-réseaux isotropes pour $T = T_c$ et $H = 0$, les deux relations suivantes sont vérifiées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\bar{M}_1}{n_{23} + \lambda} + \frac{\bar{M}_2}{n_{31} + \lambda} + \frac{\bar{M}_3}{n_{12} + \lambda} = 0 \\ \bar{M}_1 + \bar{M}_2 + \bar{M}_3 = 0 \end{array} \right. \quad (104)$$

d'où l'on déduit, compte-tenu de (99) :

$$n = \frac{(n_{23} + \lambda)(n_{31} + \lambda)}{n_{12} + \lambda} - \lambda \quad (105)$$

Nous retrouvons ici une condition de stabilité de la phase oblique :
 $n + \lambda < 0$. Elle exprime simplement que la susceptibilité dans la phase oblique ($\frac{1}{\lambda}$) est plus grande que dans la phase colinéaire ($-\frac{1}{n}$).

Si on fait l'application numérique avec les coefficients déjà utilisés pour le grenat de gadolinium, on trouve :

$$\lambda = 67,5 \text{ kOe}/\mu_B/\text{mole}, \quad n = -72,4, \quad \text{et} \quad \sqrt{\frac{1}{1-\alpha}} = 3,85. \quad (106)$$

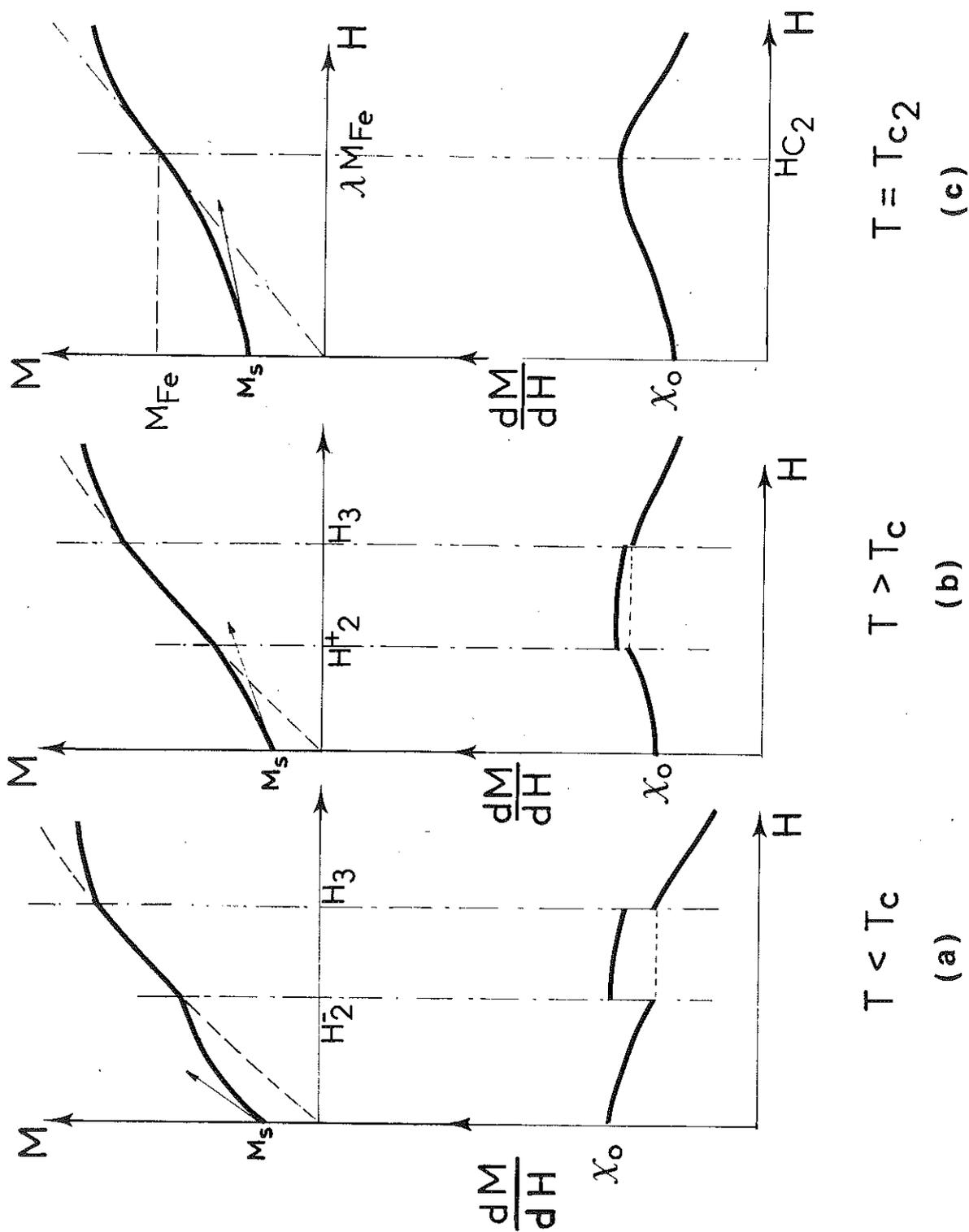


Figure 61 : Forme des courbes d'aimantation théoriques pour les grenats

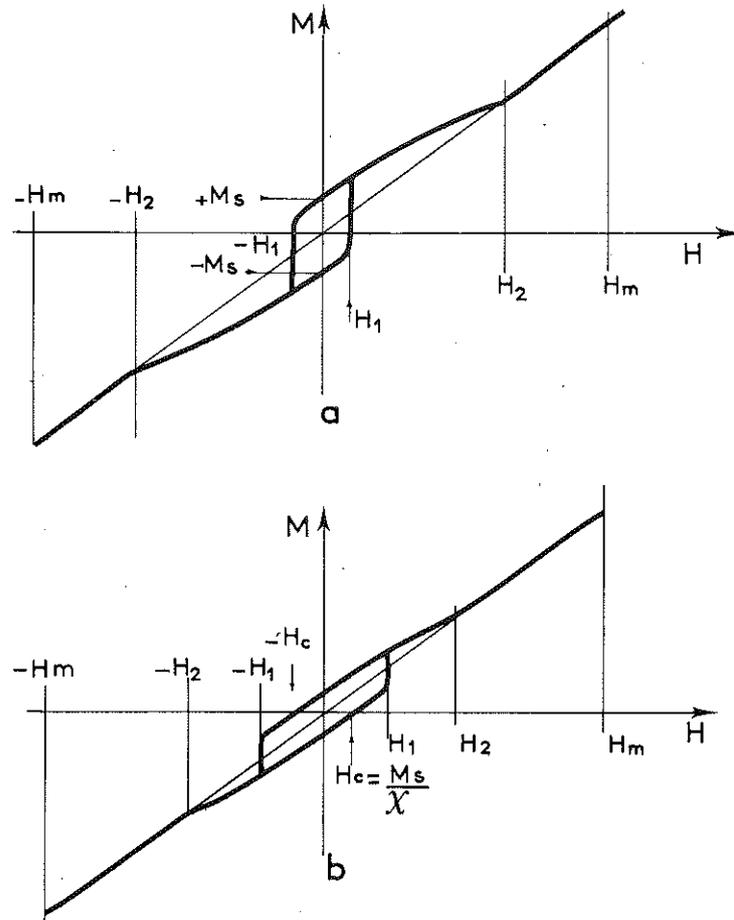


Figure 62 : Forme des cycles d'aimantation près de T_c

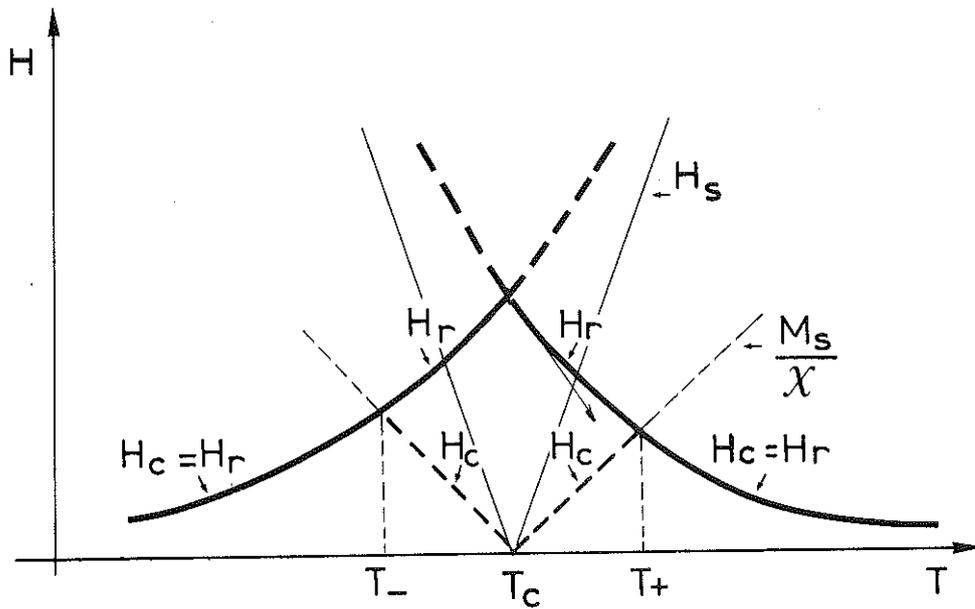


Figure 63 : Champ d'inversion et champ coercitif près de T_c

La formule $H_0 = \sqrt{\lambda A}$ donnant le champ seuil au point de compensation n'est donc valable qu'aux très basses températures lorsque $\alpha \neq 0$. Son utilisation pour des températures de compensation élevées [89, 118, 119, 136-138] conduit à une estimation beaucoup trop faible.

D'autre part la température critique T_{c_2} et la température de compensation sont très proches, car elles vérifient :

$$\begin{aligned} T_{c_2} &= C_2 [n' - n(T_{c_2})] \\ T_c &= C_2 [n' - n(T_c)] \end{aligned} \quad (107)$$

La faible différence de susceptibilité entre les deux phases rend difficile l'observation des champs critiques par mesure d'aimantation pour des températures voisines et supérieures à la température de compensation. En effet, la susceptibilité χ_0 diminue avec la température suivant une loi de Curie-Weiss et devient inférieure à $\frac{1}{\lambda}$ qui varie peu. Les courbes $M(H)$ et $\frac{dM}{dH}(H)$ prévues, qui sont du type (a) pour $T < T_c$ figure 61, deviennent du type (b). Les anomalies diminuent d'importance et disparaissent à la température critique T_{c_2} (figure 61c).

3-2 - Champ d'inversion et champ coercitif

A proximité de T_c les cycles d'aimantation entre deux valeurs de champ $+H_m$ et $-H_m$ pour des échantillons monodomains sont schématisés sur la figure 62. Le champ d'inversion de la structure $H_r \equiv H_2^+$ n'est pas nécessairement identique au champ coercitif H_c . Ce dernier est habituellement défini comme le champ inverse qui annule l'aimantation rémanente. Dans notre cas, cette dernière est égale à l'aimantation spontanée M_s . Les deux champs sont identiques, si $|H_r|$ est inférieur à $\frac{M_s}{\chi} \neq |nM_s|$ [138]. Dans le cas contraire H_c est égal à $\frac{M_s}{\chi}$ et tend vers zéro quand T tend vers T_c (figure 63). Il présente alors peu d'intérêt puisqu'il n'est défini que sur les courbes d'aimantation, alors que H_r peut être mis en évidence directement par des phénomènes liés à la rotation des moments, comme l'effet Faraday optique. Remarquons que, loin du point de compensation, ce champ H_r tend vers la valeur $H_a = \frac{A}{M_s}$ des ferromagnétiques.

3-3 - Diagrammes adiabatiques

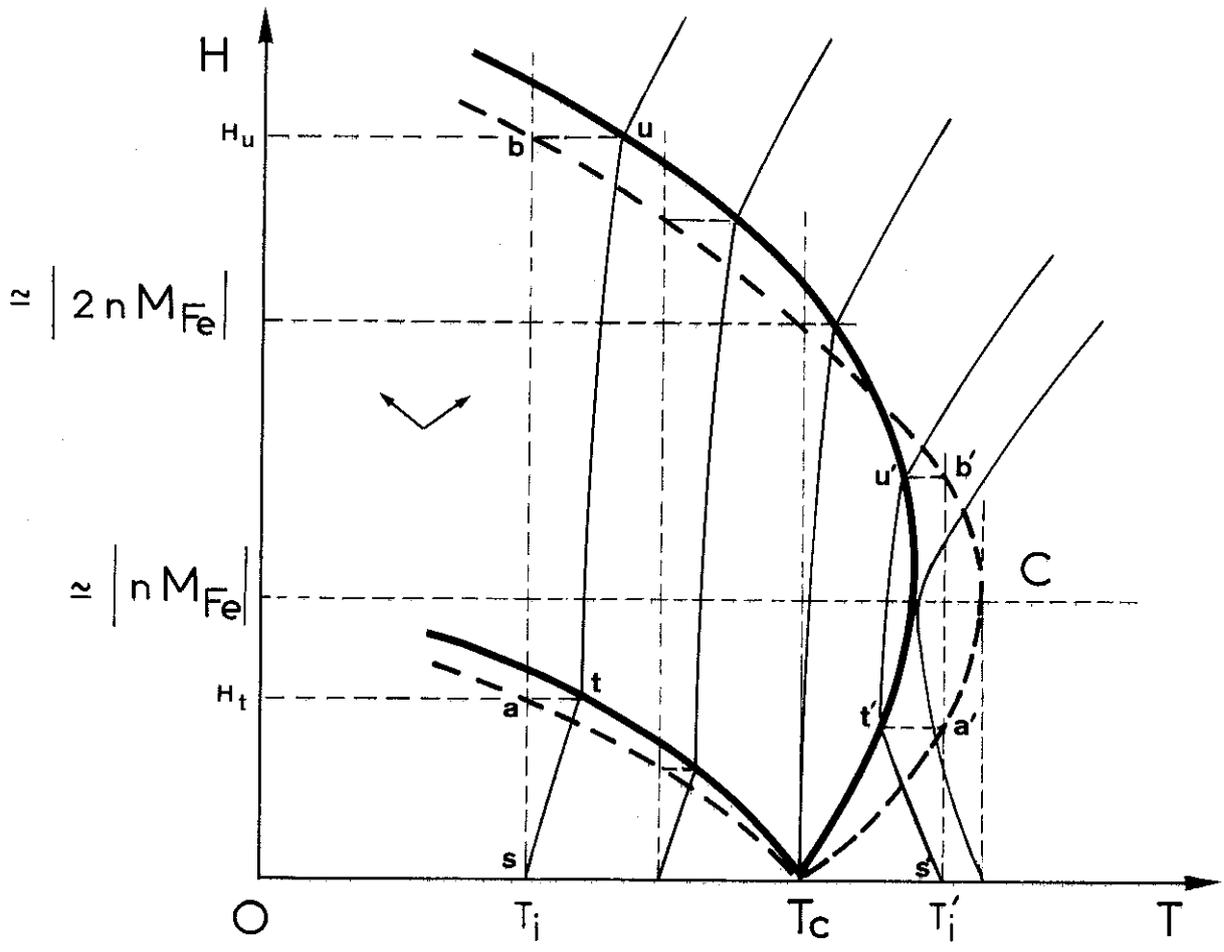
Pour interpréter les mesures en champ pulsé, il faut évaluer les différences entre les diagrammes déterminés par des mesures isothermes et ceux qui sont observés dans des conditions adiabatiques. Le calcul de l'effet magnétocalorique que nous avons effectué pour le grenat de gadolinium nous permet, par analogie, une comparaison qualitative. En effet, les mesures de Belov et ses collaborateurs [90,115] montrent que les caractéristiques essentielles du diagramme isotrope sont conservées en présence d'anisotropie ; à savoir :

- Dans une phase oblique et en champ faible (~ 15 kOe), la température ne varie pas avec le champ. L'effet magnétocalorique est nul.
- Dans une phase colinéaire, la variation de la température est linéaire. La dérivée $\frac{dT}{dH}$ est positive en dessous de T_c et négative au-dessus (tant que $\left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_H$ est positif).

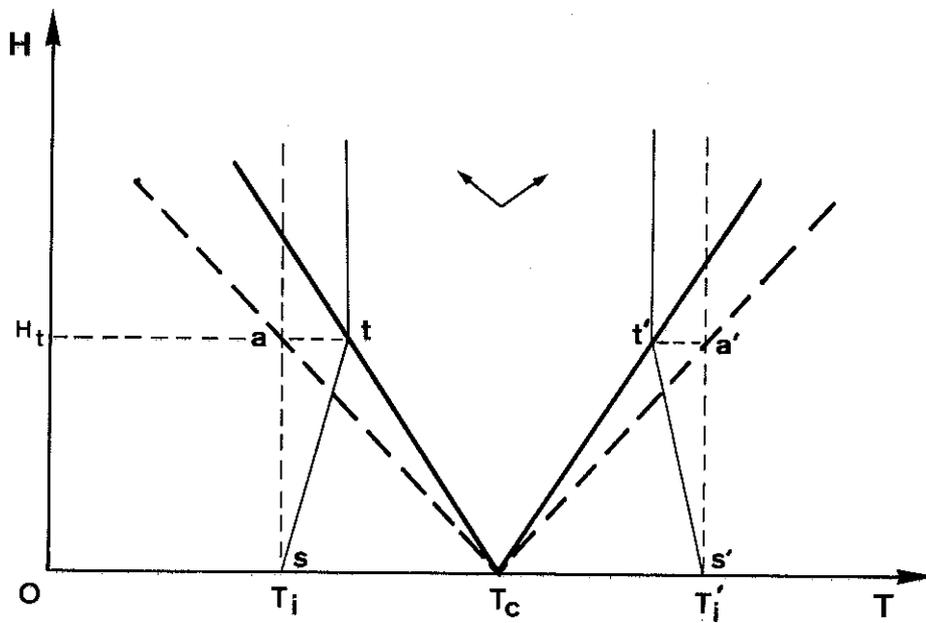
La construction approximative des courbes isentropes $T(H)$ permet de placer les lignes de transition du diagramme adiabatique apparent, par rapport aux lignes du diagramme isotherme. La figure 64 correspond au cas isotrope. Pour une température initiale T_i , lorsqu'un champ magnétique est appliqué adiabatiquement, le point représentatif du système dans le plan (H,T) décrit l'arc de courbe st ; au point t , le changement de phase se produit à la température T_t et à un champ critique H_t correspondant au diagramme isotherme. En champ pulsé, on mesure T_i et H_t de sorte que le diagramme apparemment observé passe par le point a . Si l'on suppose la transition du 2e ordre ou la chaleur latente négligeable, la température évolue dans la phase oblique, selon la courbe tu . Le deuxième champ de transition observé pour la température initiale T_i est H_u .

En présence d'anisotropie, la construction n'est pas changée pour une direction "facile" (figure 65a) ; par contre, pour une direction "difficile", l'effet magnétocalorique étant nul dans la phase oblique initiale, les points t et a de la ligne de transition inférieure sont confondus pour $T < T_1^-$ et $T > T_1^+$. Les températures T_1 sont celles des points 1^- et 1^+ dont la tangente a la même pente que les isentropes dans la phase colinéaire.

Evaluons l'ordre de grandeur des corrections à apporter aux mesures en champ pulsé pour une comparaison quantitative. Appelons h_t

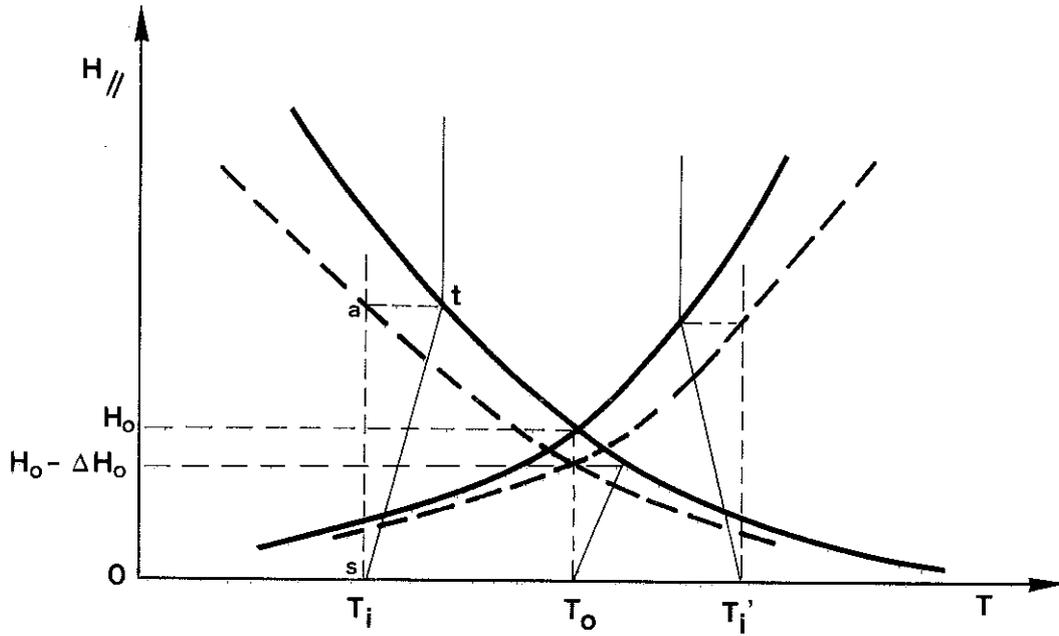


a) en champs intenses

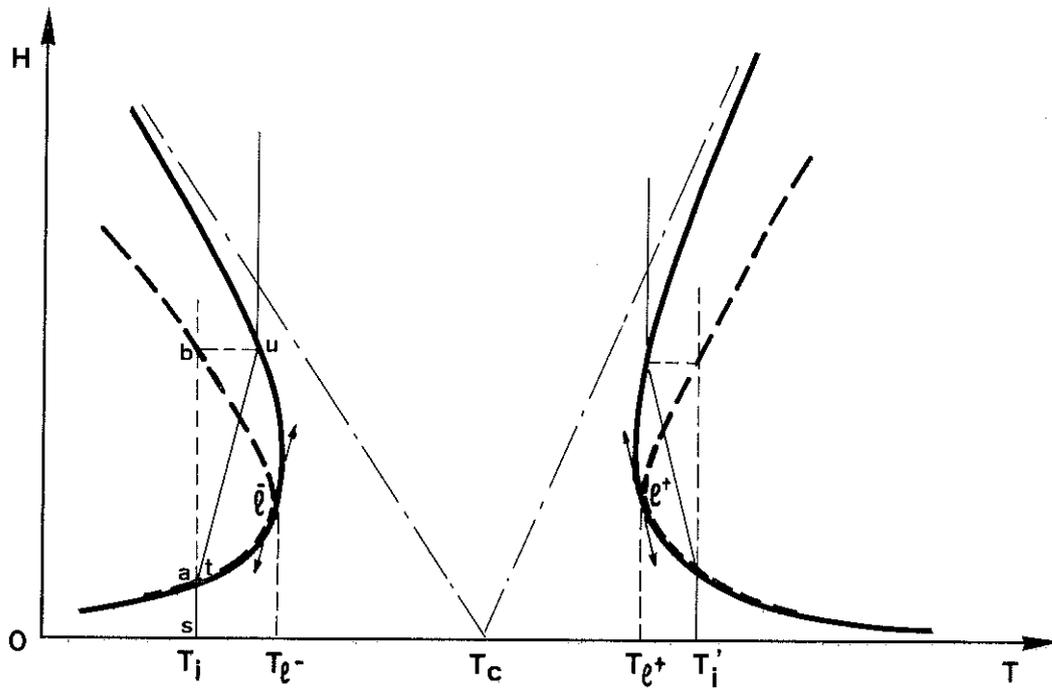


b) au voisinage immédiat du point de compensation

Figure 64 : Diagramme adiabatique théorique : cas isotrope



a) direction "facile"



b) direction "difficile"

Figure 65 : Diagramme adiabatique anisotrope près du point de compensation : — isotherme
 --- adiabatique apparent

et h_a les pentes du diagramme isotrope isotherme et adiabatique apparent. Soit m , l'inverse de la pente des isentropes en phase colinéaire

$$m = \left(\frac{dT}{dH} \right)_s \quad (107)$$

D'après la construction de la figure 64b on trouve facilement la relation entre h_t et h_a :

$$h_t = \frac{h_a}{1 - m h_a} \quad (108)$$

Suivant une direction "facile" la pente de la tangente à la limite de stabilité est très voisine de $h_t/2$. La différence relative entre les deux déterminations du champ seuil minimum H_0 (figure 65a) est en première approximation :

$$\frac{\Delta H_0}{H_0} \approx \frac{m h_t}{2 + m h_t} = \frac{m h_a}{2 - m h_a} \quad (109)$$

Suivant une direction difficile, l'intervalle de température passe de la valeur $\Delta T' = T'_- - T'_+$ à la valeur $\Delta T' = T''_- - T''_+$ (figure 65b). Sa variation est du second ordre en $m h_t$. D'après les valeurs de m connues [115], il faut s'attendre à ce que $m h_t$ ne dépasse pas 0,2 ; seule une correction sur H_0 sera donc éventuellement nécessaire pour une estimation des coefficients A et A' liés aux dérivées secondes de l'anisotropie. Ces derniers sont en effet reliés aux quantités directement mesurables H_0 et $\Delta T'$. En supposant des variations linéaires de H_s et M_s en fonction de la température au voisinage de T_c

$$H_s = h_t |T - T_c| \quad (110)$$

$$M_s = d |T - T_c|$$

et en négligeant les termes h^2 et h'^2 devant λA et $\lambda A'$ on obtient :

$$A = \frac{d}{h_t} H_0^2 \quad (111)$$

$$A' = h_t d \left(\frac{\Delta T'}{4} \right)^2 \quad (112)$$

La dernière approximation revient à négliger H_a^2 devant $2H_e H_a$ pour un antiferromagnétique ; elle sera toujours justifiée dans les grenats étudiés.

Le diagramme en champ pulsé permet une estimation direction du champ moléculaire agissant sur les ions terre rare. Dans un processus adiabatique, l'entropie totale reste constante ; comme le module de l'aimantation des sous-réseaux fer ne varie pratiquement pas, il en est de même de leur entropie ; l'entropie et le module de l'aimantation du sous-réseau terre rare doivent également rester constants. Pour une même isentrope (figure 64a) de température initiale $T_i \approx T_c$ nous pouvons écrire que le champ effectif total H_R qui agit sur les ions terre rare est le même pour les deux champs critiques H_t et H_u :

$$H_R = H_t + |n M_{Fe}| = H_u - |n M_{Fe}|$$

d'où :

$$H_u - H_t = 2 |n M_{Fe}| \quad (113)$$

pour $T_i > T_c$ on a de même :

$$H_t + H_u = 2 |n M_{Fe}| \quad (113)'$$

Ceci sera d'autant mieux vérifié que T sera proche de T_c et que l'effet magnétocalorique dans la phase oblique sera petit : le champ $H_u(T_i = T_c)$ est donc à quelques % près égal à $2 |n M_{Fe}|$.

4 - DIAGRAMMES EXPERIMENTAUX DES FERRITES GRENATS D'ERBIUM ET D'HOLMIUM

Nous avons étudié les variations d'aimantation, sous champ magnétique pulsé, d'échantillons monocristallins sphériques, pour plusieurs directions du champ appliqué. Les transitions de phase magnétiques sont mises en évidence par les changements caractéristiques de la susceptibilité différentielle. Nous avons pris comme définition du champ critique la valeur du champ où la susceptibilité a son maximum ou à défaut, sa variation la plus rapide. Les mesures sont faites sur les deux premières alternances du champ pulsé.

4-1 - ErIG

Les différents champs critères observés pour les trois directions principales d'application du champ ($[110]$, $[111]$ et $[001]$) sont reportées sur les figures 66, 67 et 68. Pour toutes les lignes de transition, aucune hystérèse n'a été mise en évidence. Elle est donc inférieure, si elle existe, à 2 kOe environ.

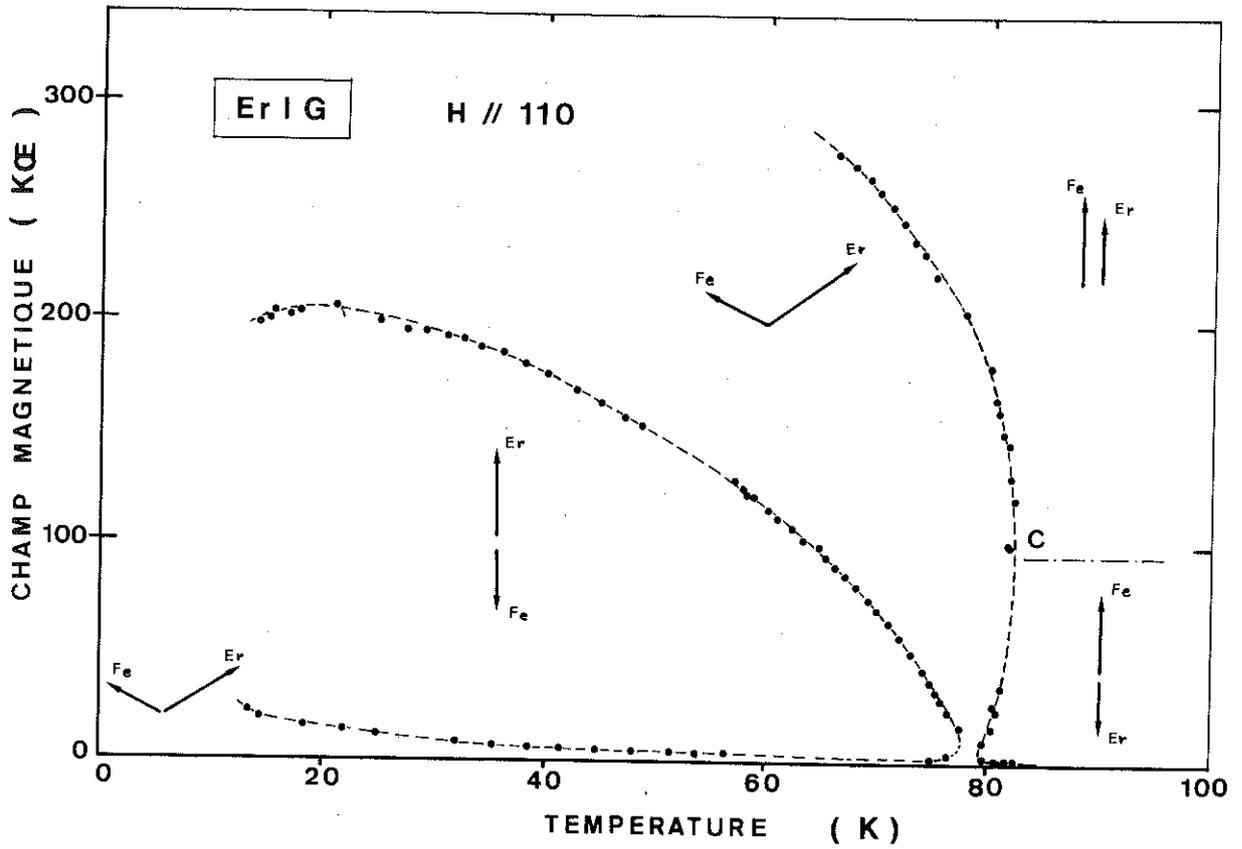


Figure 66 : Diagramme expérimental en champ pulsé de ErIG suivant [110]

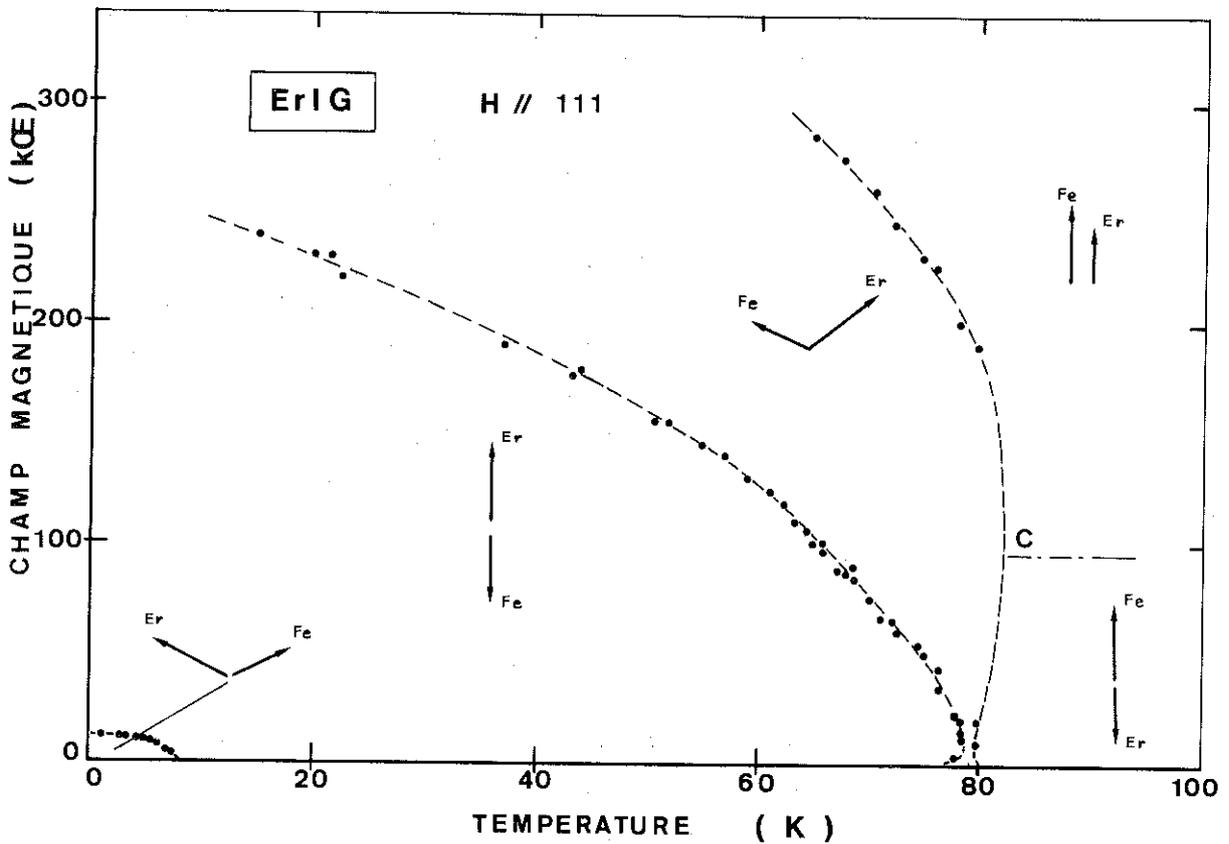


Figure 67 : Diagramme expérimental en champ pulsé de ErIG suivant [111]

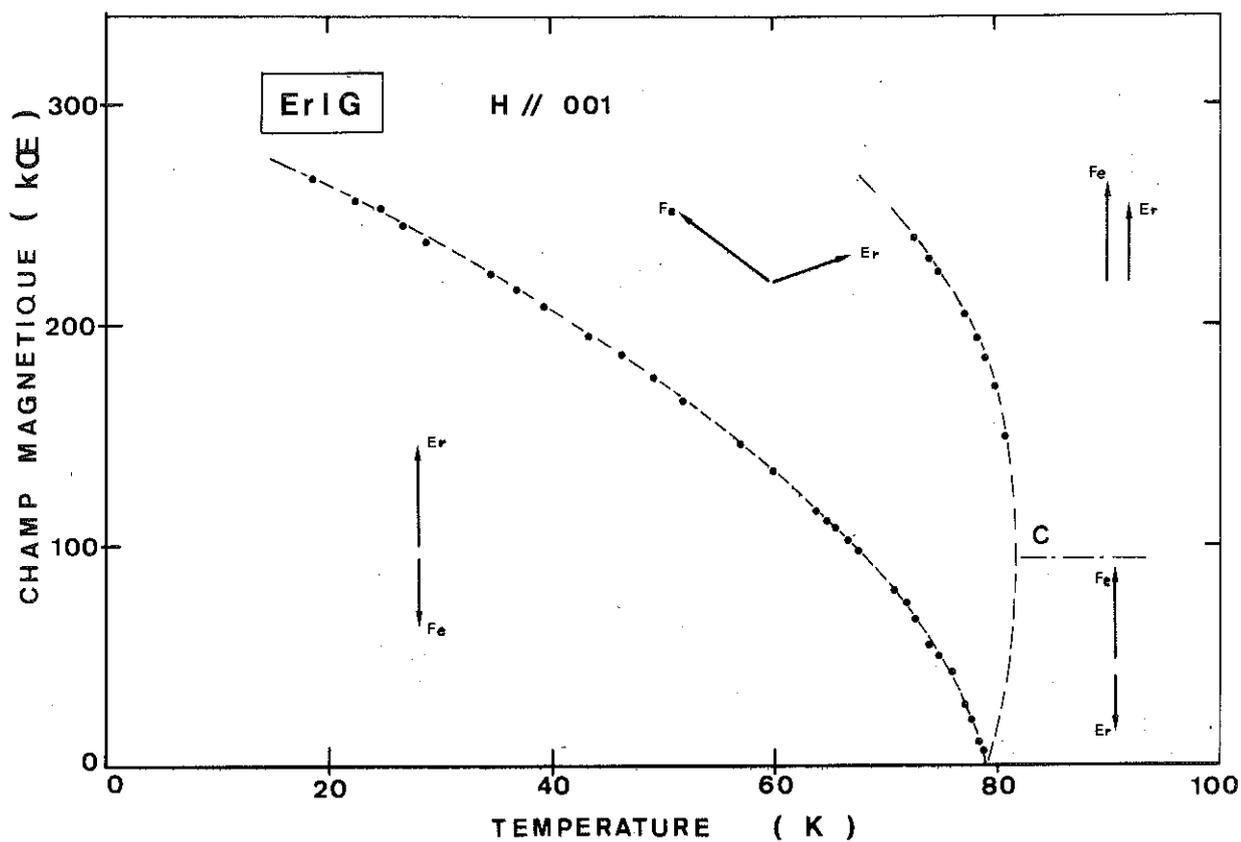


Figure 68 : Diagramme expérimental en champ pulsé de ErIG suivant [001]

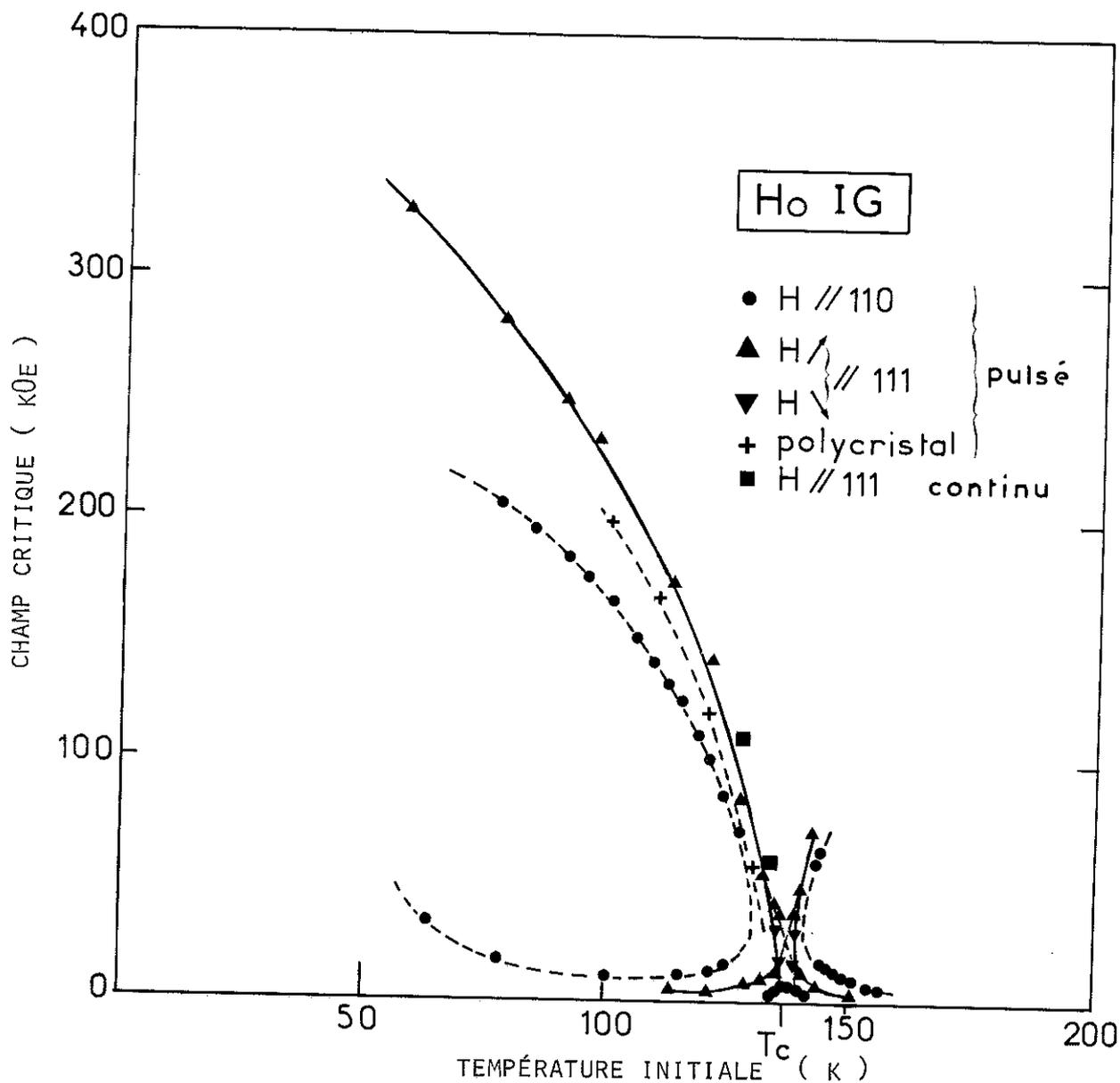


Figure 69 : Diagrammes expérimentaux de HoIG

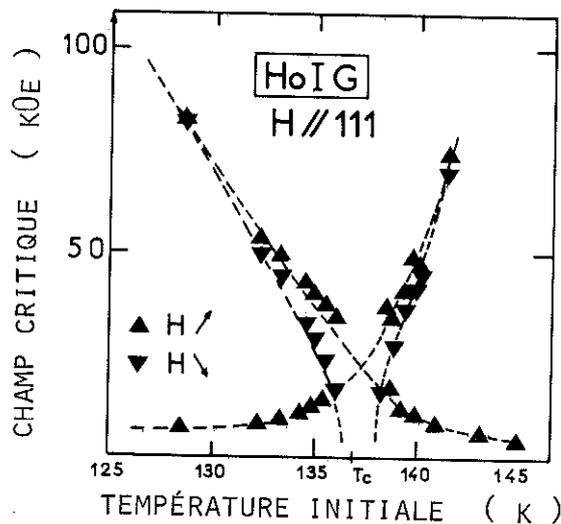


Figure 72 : Diagramme expérimental au voisinage du point de compensation

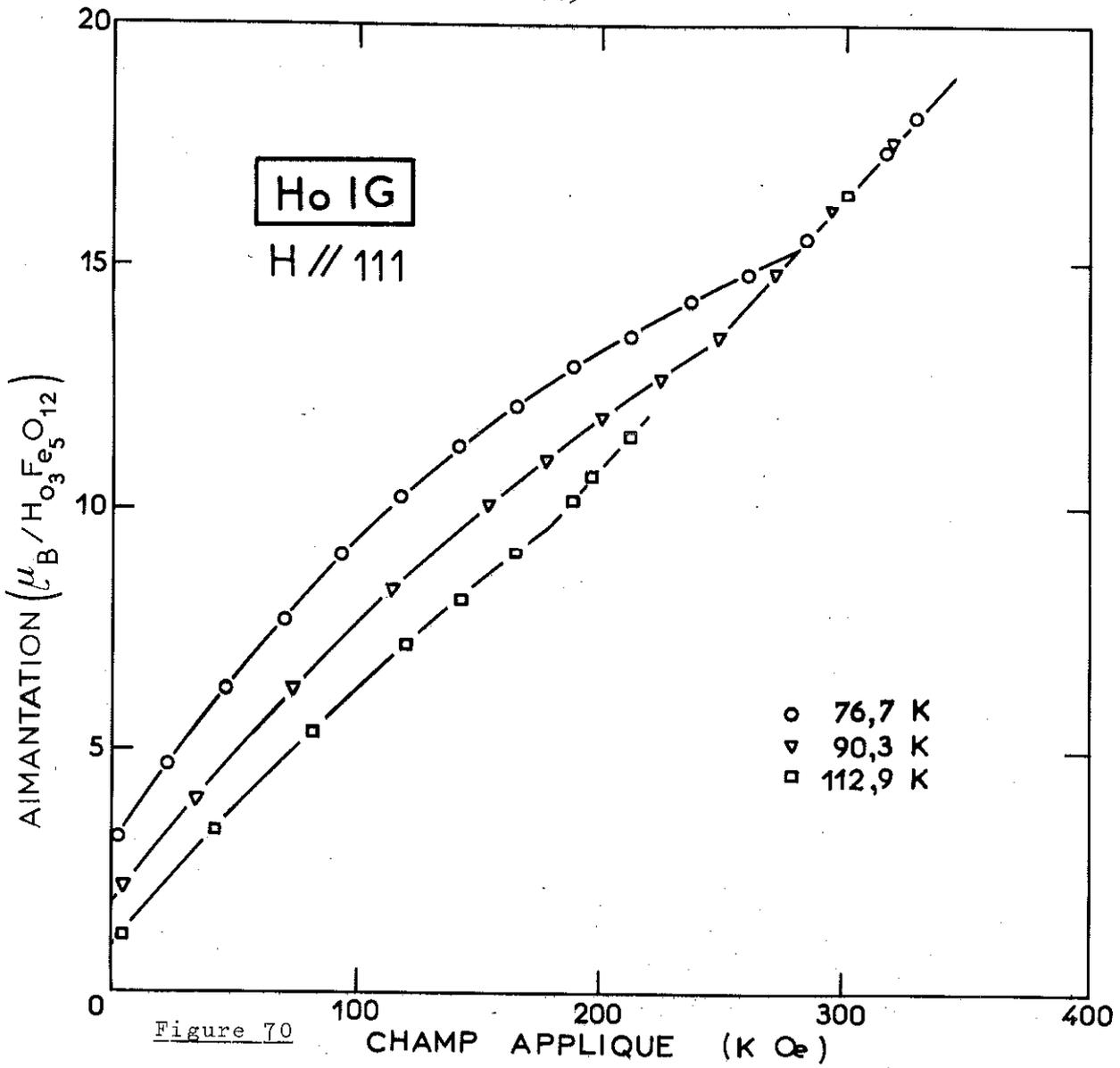


Figure 70

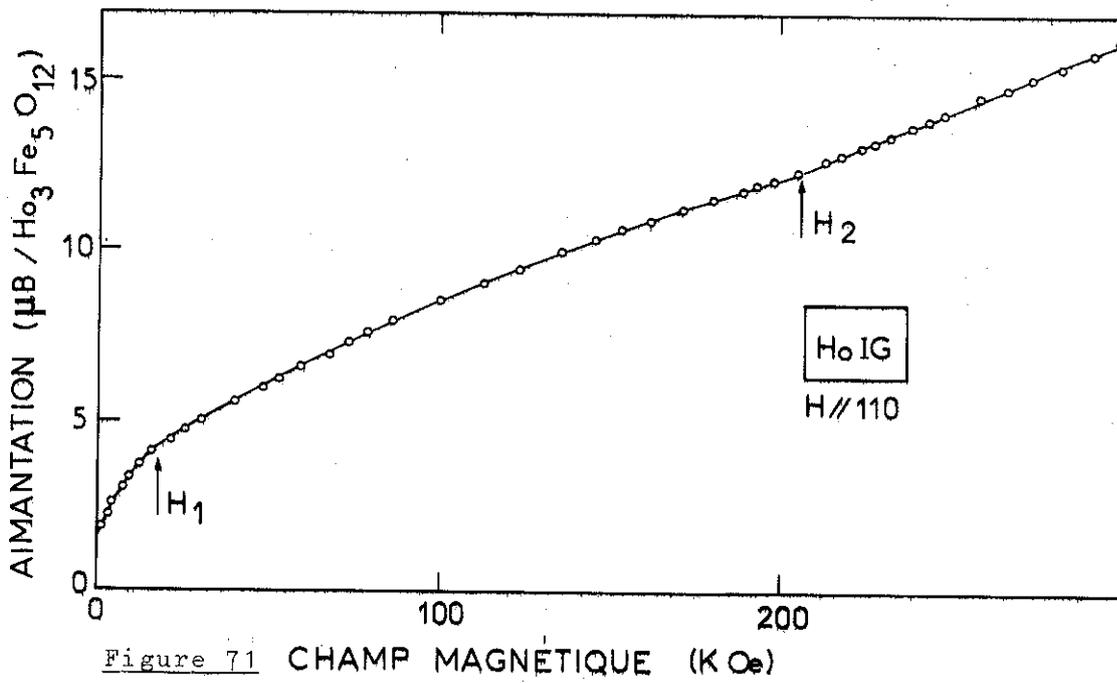


Figure 71

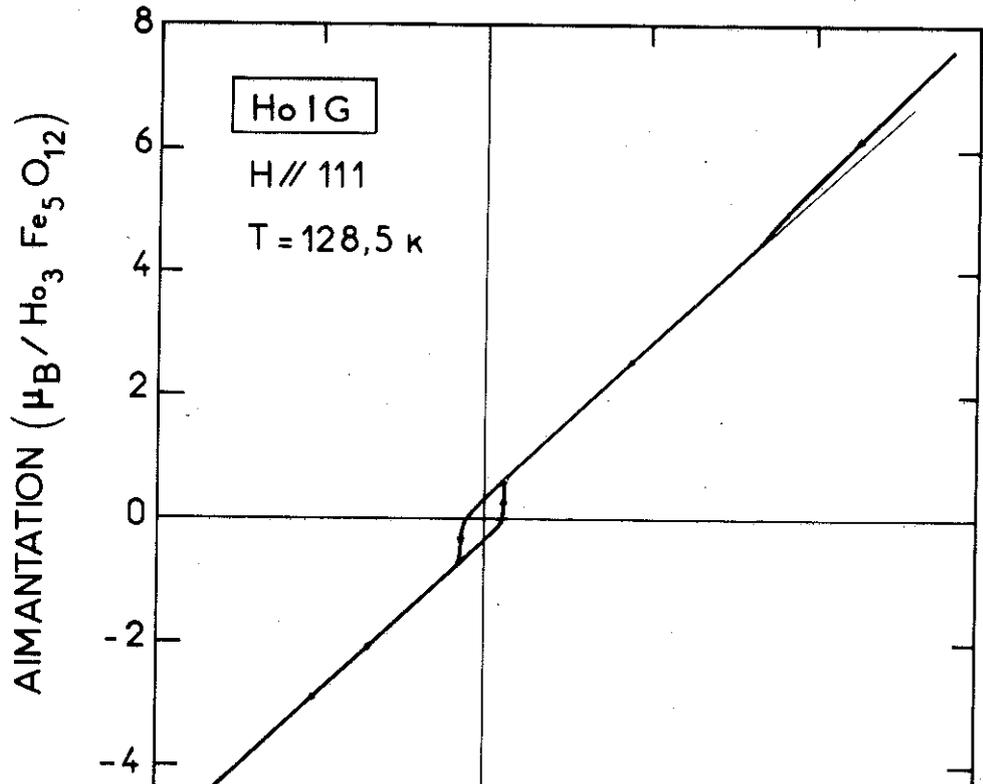


Figure 73

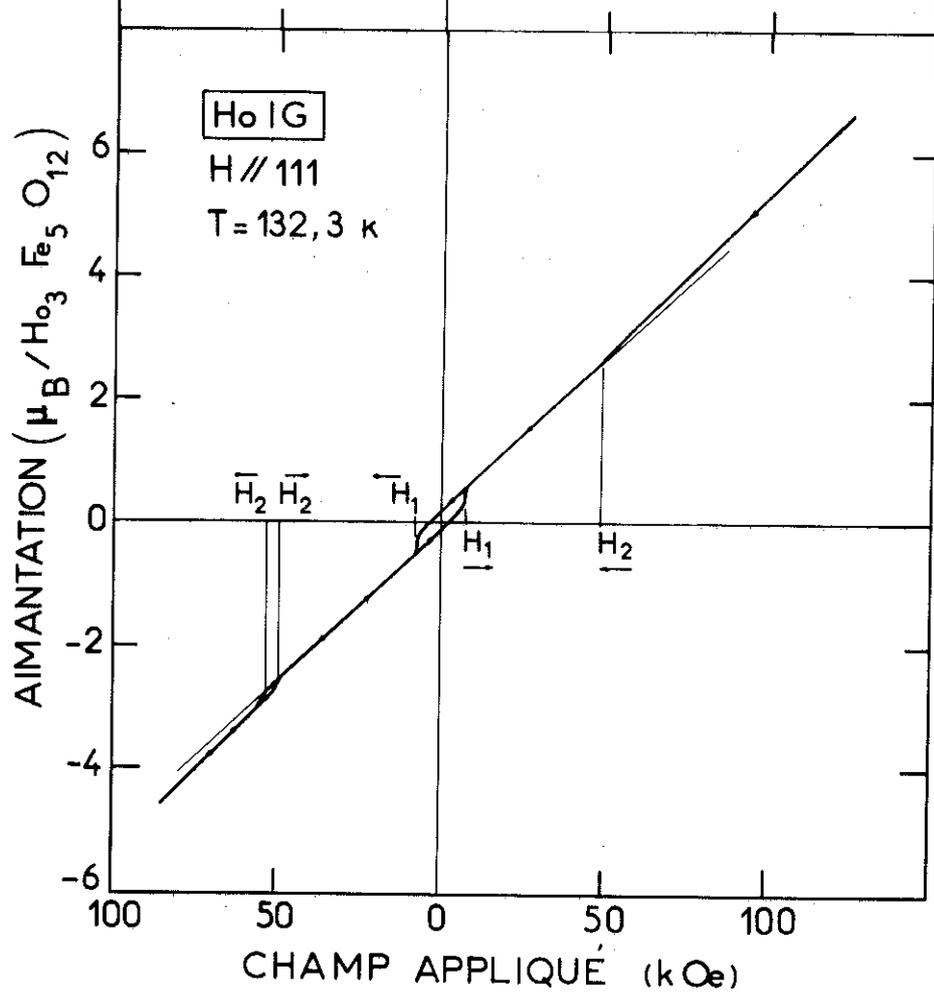


Figure 74

Suivant [110] (figure 66) on distingue trois arcs de courbe H_1 , H_2 , H_3 qui correspondent bien au schéma que nous avons prévu pour un axe de difficile aimantation (figure 60). Les transitions sur H_1 et H_2 sont très nettes entre 30 et 70 K alors que le saut de susceptibilité est assez faible sur H_3 ; au-delà de 300 kOe il n'est plus possible de le distinguer parmi le défaut de compensation.

Selon [111] (figure 67) l'arc H_1 est limité aux températures inférieures à 8 K environ et il est totalement absent pour la direction [001] (figure 68). Ailleurs, s'il existe, il est inférieur au champ démagnétisant et le seul pic de susceptibilité observé correspond au passage de l'aimantation de $-M_s$ à $+M_s$ pour $H \neq 0$.

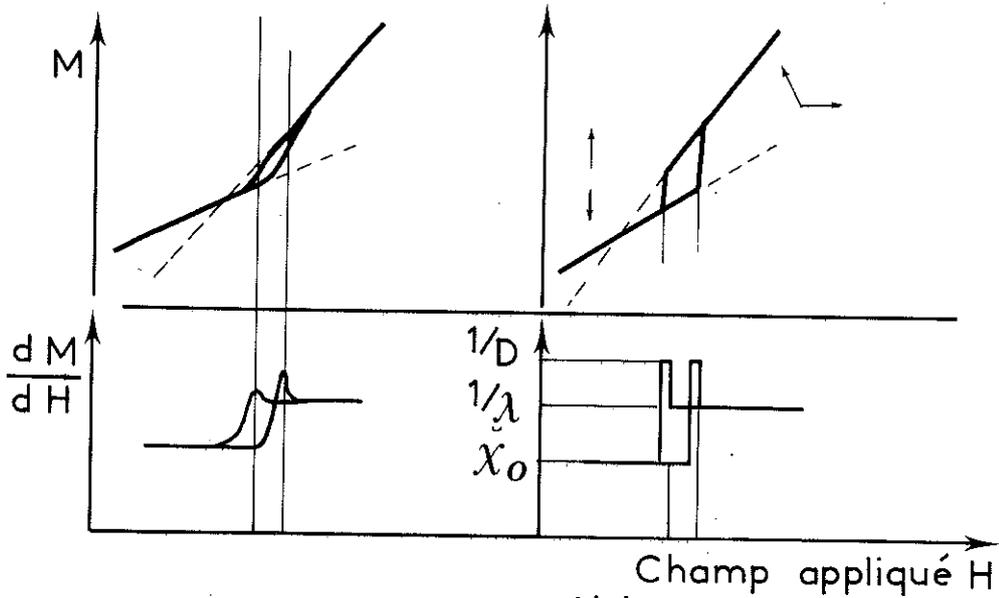
Dans un intervalle de température de 1 K autour du point de compensation, les anomalies sont évanescentes en champs faibles et aucune transition n'est observable en dessous de H_3 (~ 190 kOe).

4-2 - HoIG

Les champs critiques pour les directions [111] et [110] du champ appliqué sont reportés en fonction de la température initiale sur la figure 69. Les champs critiques supérieurs analogues à ceux de la branche H_3 de ErIG n'ont pas pu être mis en évidence de façon certaine.

Pour les températures suffisamment basses, les transitions sont bien visibles sur les courbes d'aimantation comme on peut s'en rendre compte sur les figures 70 et 71 où nous avons tracé quelques courbes d'aimantation typiques. Celles-ci montrent toutes dans les champs intenses, une partie linéaire dont la pente $\frac{1}{\lambda}$ varie très peu avec la température.

Près du point de compensation, suivant [111] il apparaît un hystérésis qui augmente au fur et à mesure que la température se rapproche de T_c . L'étude détaillée du diagramme au voisinage du point de compensation a été possible en distinguant les transition en champs croissants et en champs décroissants (figure 72). La zone "morte" où l'on ne détecte plus aucune variation rapide de la susceptibilité s'étend de 136 à 138,5 K. La forme des courbes d'aimantation est alors celle des figures 73 et 74. Sur cette dernière le champ de renversement $H_r = H_1$ de la structure est supérieur au champ coercitif habituel.



(a) courbes expérimentales (b) courbes théoriques

Figure 75 : Hystérésis et transition du 1er ordre

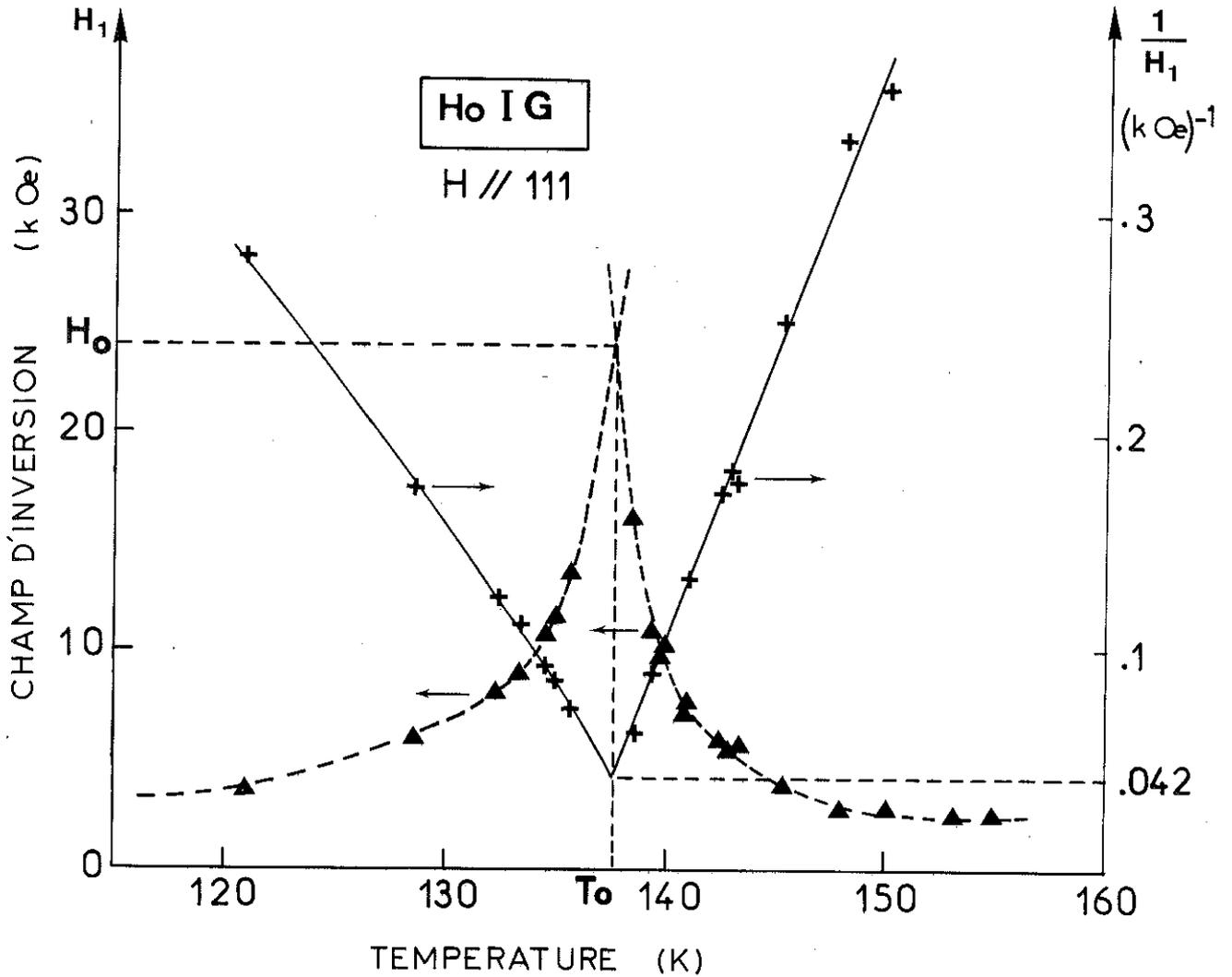


Figure 76 : Champ d'inversion de HoIG suivant [111]

5 - DISCUSSION

Parmi les trois composés que nous avons étudiés jusqu'ici, le ferrite grenat d'holmium est celui dont l'énergie d'anisotropie est la plus grande et qui présente les phénomènes les plus marqués. Aussi nous commencerons par l'examen des résultats qui le concernent.

5-1 - HoIG

Nous constatons tout d'abord un accord très satisfaisant avec les résultats obtenus par Levitin et ses collaborateurs sur des polycristaux [91]. Leurs valeurs des champs critiques sont déterminées essentiellement par détection en champ pulsé de l'anomalie de magnétostriction associée à la rotation rapide des moments magnétiques dans la phase oblique. Elles sont moins précises puisqu'elles correspondent, en fait, à une distribution continue de champs critiques et, par conséquent, à des effets plus étalés en champ. Leurs valeurs moyennes, reportées sur la figure 69, sont bien situées entre nos mesures pour les deux directions [111] et [110]. La pente moyenne h_a du diagramme adiabatique vaut 8,5 kOe/K au point de compensation.

L'allure des diagrammes montre que [111] est une direction de facile aimantation et [110] une direction "difficile". Ceci confirme les mesures de couple de Pearson [38]. De plus à basse température, l'accroissement très net de l'écart entre les deux diagrammes ainsi que l'augmentation du premier champ seuil suivant [110], est conforme à une variation très importante de l'anisotropie, beaucoup plus rapide que celle de l'aimantation spontanée. Il est probable qu'en dessous de 50 K, la phase colinéaire selon [110] n'existe plus, car nous n'observons plus de transition. Dans la partie des courbes d'aimantation qui correspond à la configuration colinéaire, on observe le comportement paramagnétique des ions terres rares avec un effet de saturation (figures 70 et 71).

Examinons le voisinage du point de transition :

- Les figures 73 et 74 montrent que les transitions au champ H_2 sont du premier ordre, avec un caractère d'autant plus marqué que la température se rapproche de T_c . Si l'on agrandit les courbes au voisinage du champ H_2 on obtient l'allure caractéristique de la figure 75a qui correspond au schéma théorique de la figure 75b.

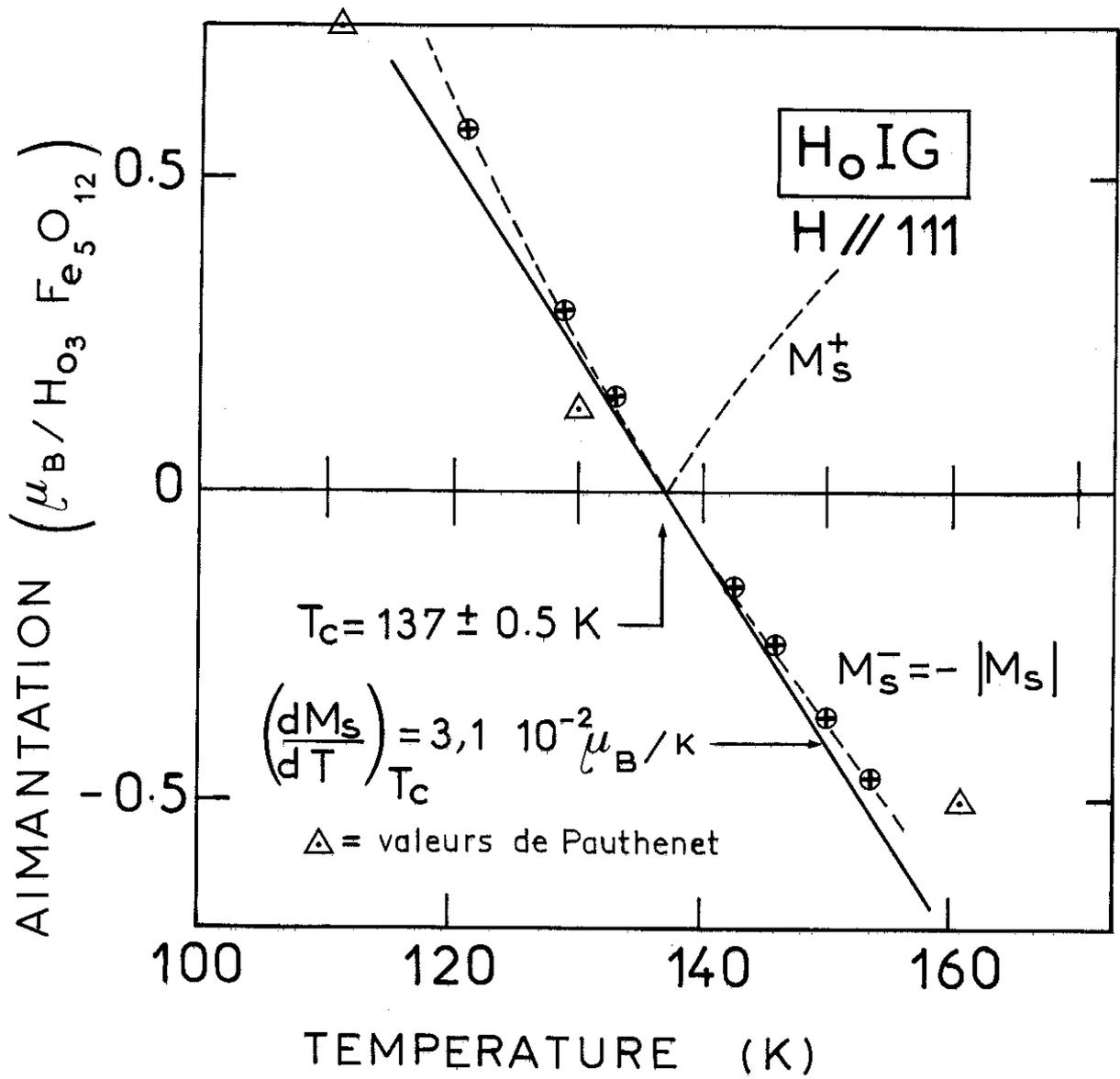


Figure 77 : Variation thermique de l'aimantation spontanée

- Le premier champ de transition H_1 observé à la seconde et à la troisième alternance du champ pulsé, correspond sans ambiguïté à l'inversion de la structure colinéaire. Les variations thermiques de H_1 se placent bien dans le prolongement de celles de H_2 de part et d'autre de T_c (figure 72). Nous pouvons donc supposer qu'elles sont les manifestations expérimentales des limites de stabilité que nous avons calculées pour les deux configurations A^+ et A^- (figures 58 et 63). La transition H_1 est toujours très bien localisée alors que la transition H_2 a tendance à s'étaler quand $T \rightarrow T_c$. De plus, sur la figure 76, nous avons reporté les variations thermiques de H_1 et de son inverse $\frac{1}{H_1}$; la très faible courbure de $\frac{1}{H_1}(T)$ permet une détermination assez précise de H_0 et T_0 par extrapolation. Les valeurs ainsi trouvées sont : $H_0 = 24$ kOe et $T_0 = 137,6$ K.
- D'après les cycles d'aimantation observés au voisinage de T_c , nous avons tracé la variation de l'aimantation spontanée $M_s(T)$ (figure 77). La température de compensation ainsi définie vaut 137,0 K et la pente $d = \left(\frac{dM_s}{dT}\right)_{T_c}$ est évaluée à $3,1 \cdot 10^{-2} \mu_B/K$. Bien que l'erreur absolue sur la température soit de l'ordre de 1 K, la précision relative est bien meilleure. La différence observée entre T_0 et T_c est donc significative.
- Les mesures d'effet magnétocalorique de Belov [115] nous permettent d'estimer le coefficient $m = \left(\frac{dT}{dH}\right)_s$ à $5 \cdot 10^{-3}$ K/kOe. La pente H_t du diagramme isotherme est donc 5 % plus élevée; elle vaut 9 kOe/K. La correction sur H_0 est de l'ordre de 2,5 % et nous adopterons comme valeur isotherme : $H_0 = 25$ kOe. On en déduit la valeur du coefficient A d'après la formule (111) :

$$A = A([111]) = 1,20 \text{ J/mole} = 8,5 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3.$$
- Pour la direction [110] l'écart $\Delta T'$ est de l'ordre de 10 ± 1 K; d'après (112) le coefficient A' vaut donc :

$$A' = -A([110]) = 0,975 \text{ J/mole} = 6,8 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3.$$
- Les relations entre les coefficients A et les constantes usuelles K_1, K_2, K_3 du développement en fonction des cosinus directeurs s'écrivent [139] pour les différentes directions :

$$\left\{ \begin{array}{l} A([001]) = + 2K_1 \\ A([111]) = - \frac{4}{3} \left(K_1 + \frac{K_2}{3} \right) \\ A([110]) = \begin{cases} + K_1 + \frac{K_2}{2} - \frac{K_3}{2} & \text{(déplacement dans le plan } 1\bar{1}0) \\ - 2K_1 - K_3 & \text{(déplacement dans le plan } 001) \end{cases} \end{array} \right. \quad (114)$$

Dans notre cas nous avons, en se limitant aux deux premières constantes,

$$\left\{ \begin{array}{l} A = - \frac{4}{3} \left(K_1 + \frac{K_2}{3} \right) \\ A' = - \left(K_1 + \frac{K_2}{2} \right) \end{array} \right. \quad (114)'$$

On en déduit :

$$K_1 = - 0,75 \text{ J/mole} = - 5,2 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$$

$$K_2 = - 0,45 \text{ J/mole} = - 3,1 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$$

La valeur de K_1 ainsi trouvée est en très bon accord avec celle mesurée par Pearson [38] ($K_1 = 5 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$). Ce résultat doit cependant être considéré avec prudence car une faible variation de A ou A' entraîne une grande variation de K_2 . Dans l'hypothèse où K_2 est supposé négligeable on obtient deux déterminations de K_1 qui restent voisines et encore comparables à celle de Pearson :

$$K_1 = - \frac{3}{4} A = - 0,9 \text{ J/mole}$$

$$K_1 = - A' = - 0,975 \text{ J/mole.}$$

Nous pouvons donc conclure que notre détermination du champ H_0 par la variation du champ de renversement est très proche de la valeur théorique. Par conséquent les champs de renversement observés en champs pulsés correspondent effectivement aux champs d'instabilité d'un monodomaine.

Rappelons que les champs coercitifs observés dans les méthodes quasi-statiques sont de l'ordre de 50 Oe pour tous les grenats [29-31]. Ceci montre bien qu'une différence d'énergie très faible est suffisante pour qu'il y ait nucléation de domaines inverses et croissance de ceux-ci par propagation des parois créées. Dans notre cas, la nucléation des domaines correspondant à la phase inverse n'a donc pas le temps de se faire.

5-2 - ErIG

L'allure très semblable des diagrammes près du point de compensation montre que l'anisotropie est beaucoup plus faible que dans le cas de HoIG, et ceci est en accord avec les mesures de couple [38]. Comme il n'a pas été possible de mettre en évidence les lignes de transitions près de T_c de façon aussi précise que pour HoIG, il ne nous est pas permis de conclure immédiatement quant à la nature "facile" ou "difficile" des axes [111] et [001]. Seul, le diagramme suivant [110] indique sans ambiguïté que cet axe est de difficile aimantation (figure 66). A basse température, l'existence d'une ligne de transition en dessous de 8 K pour la direction [111] (figure 67) montre que la configuration colinéaire correspondante n'est pas stable dans cette région du plan H, T ; la direction de facile aimantation ne pouvant être que [001]. Ceci est conforme aux observations de Orlich et Hufner [126] et de Belyaeva et coll. [143, 144] ; ces auteurs ont constaté, à 4,2 K, que la direction des moments des ions fer est [001] en champ nul et s'aligne avec [111] pour un champ appliqué de 1 kOe dans cette direction. Si nous comparons à une même température T ($< T_c$) les champs critiques H_2^- pour les trois directions étudiées (figure 78), nous constatons qu'ils sont situés relativement entre eux de la même façon quelle que soit la température :

$$H_2^- ([001]) > H_2^- ([111]) > H_2^- ([110])$$

Si l'anisotropie du sous-réseau terre rare est prépondérante, c'est-à-dire si $|H_{a_2}| \gg |H_{a_1}|$, la différence entre le champ de transition H_2^- pour la direction \vec{k} et le champ de transition H_s du cas isotrope se met sous la forme :

$$H_2^- (\vec{k}) - H_s \approx \frac{A(\vec{k})}{M_s} \frac{M_1}{M_2} \quad (115)$$

où M_1 et M_2 sont les valeurs des aimantations des sous-réseaux à la transition. Le rapport $\frac{M_1}{M_2}$ varie peu avec la direction et, par conséquent :

$$A([001]) > A([111]) > A([110])$$

Nous savons déjà que $A([110])$ est négatif. De plus, entre 8 et 60 K, le fait qu'aucun champ critique H_1 n'est observé prouve que ce dernier doit être inexistant ou inférieur au champ démagnétisant. Or, l'écart $H_2^- ([001]) - H_2^- ([111])$ est de plusieurs kOe ; nous pouvons en déduire

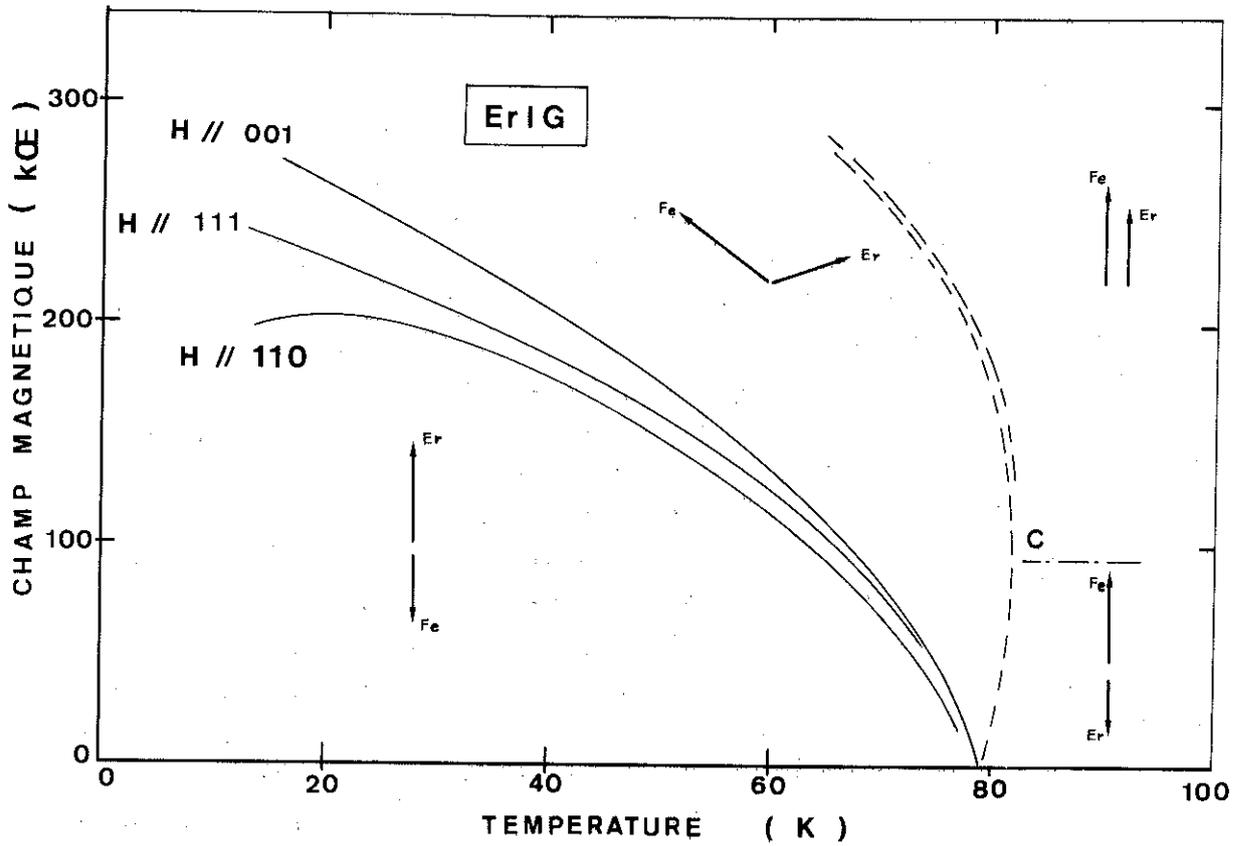


Figure 78 : Comparaison des champs critiques H_2 de ErIG selon les trois directions étudiées.

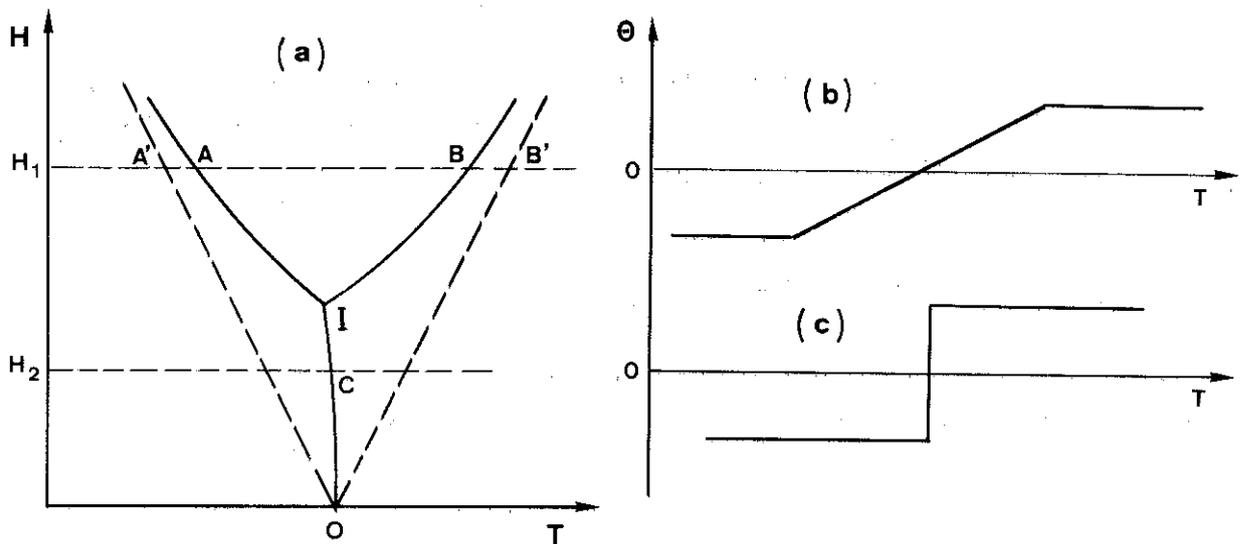


Figure 79 : Schéma pour l'effet Faraday à champ constant selon une direction "facile"

que A ($[001]$) est positif. D'après Pearson [38], à très basse température, K_1 est positif et K_2 est négatif ($\frac{K_2}{K_1} \approx -6$). Les relations précédentes montrent que la constante K_1 , ainsi que A ($[001]$) restent positifs jusque près du point de compensation. L'autre coefficient A ($[111]$) doit rester positif ou très faiblement négatif, ce qui implique $\frac{K_2}{K_1} \leq -3$. Le changement d'axe facile vers 8 K se produit lorsque $\frac{K_2}{K_1}$ passe par la valeur -9 . Ceci provient de la décroissance avec la température de la constante K_1 qui change de signe à une température voisine du point de compensation [38]; la constante K_2 reste négative. Au-dessus de 8 K la direction $[111]$ est la plus stable, mais la phase selon $[001]$ reste métastable.

La partie du diagramme, pour les températures voisines de T_c nous permet d'évaluer le champ effectif d'échange agissant sur les ions erbium. Les trois branches supérieures sont très voisines et la valeur moyenne du champ supérieur est $192 \text{ kOe} \pm 8$, ce qui donne :

$$H_k = 96 \pm 4 \text{ kOe}$$

Cette valeur est en bon accord avec celle de Levitin [91]. Elle est supérieure à celle que l'on peut déduire de la susceptibilité au point de compensation. Il semble donc que la température de 80 K soit trop basse pour pouvoir appliquer cette dernière approximation. Remarquons également que le moment n'est certainement pas celui de l'ion libre. Les différentes valeurs que l'on peut déduire de nos mesures sont résumées dans le tableau 8.

5-3 - GdIG

A la lumière de ces résultats sur HoIG et ErIG, nous pouvons reconsidérer l'interprétation des mesures en champs faibles sur GdIG. La constante K_1 de GdIG pour $T = T_c$, n'a pas été déterminée avec une grande précision dans la littérature. Les mesures de couple de Pearson [38] et celles de résonance de Geschwind [145] montrent néanmoins que la contribution des ions gadolinium est faible devant celle des ions Fe^{3+} et favorise également l'axe $[111]$. Nous pouvons donc adopter la plus récente détermination de la constante K_1 de YIG comme valeur par défaut [39] :

$$K_1 = -7,5 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$$

Si nous supposons la constante K_2 négligeable, le champ H_0 vaut 14 kOe .

Cette valeur élevée, malgré la faible anisotropie est due à la forte valeur de l'échange. Nous n'avons pas observé de champ de renversement de cet ordre de grandeur près du point de compensation. Cependant, un certain nombre de faits expérimentaux tendent à montrer que le diagramme de phase réel, observé de façon quasi-statique a une forme comparable à celle de la figure 79:

- Les mesures d'effet Faraday à champ constant montrent [146, 101] que l'inversion de la rotation du plan de polarisation se fait de façon différente selon que le champ est inférieur ou supérieur à 4,5 kOe. Dans le deuxième cas, la variation de l'angle de rotation est linéaire avec la température dans un domaine de température qui augmente avec le champ. En dessous de 4,5 kOe, au contraire, la courbe $\theta(T)$ présente un point d'inflexion à tangente verticale pour $T = T_c$. La rotation Faraday dépend directement de la projection de l'aimantation des ions fer sur la direction du faisceau lumineux. Dans la phase oblique, et pour un champ donné H_1 , le modèle à deux sous-réseaux prévoit une variation linéaire de cette projection avec la température entre les deux points A et B (figure 79). Pour un champ H_2 , l'inversion de la structure a lieu au point C. Les courbes d'effet Faraday théoriques sont celles des figures 79b et 79c. Les courbes expérimentales confirment donc l'existence d'un point triple tel que I dont l'ordonnée vaut 4,5 kOe environ.

- Les mesures d'effet magnétocalorique de Belov et coll. [115] montrent également une forme de diagramme similaire ; l'extrapolation des deux branches du diagramme donnant la même valeur ($4,5 \pm 1$ kOe) pour le champ correspondant au point I.

La différence entre la pente du diagramme que nous avons observée en champs intenses (8 kOe/K) et celle (10 kOe/K) de Bernasconi et Kuse [101] déterminée par effet Faraday à 10 kOe s'explique donc aisément. Leur pente correspond au segment OB sur la figure 79 alors que la nôtre est pratiquement identique à celle du diagramme isotrope et correspond au segment OB'.

T A B L E A U 8

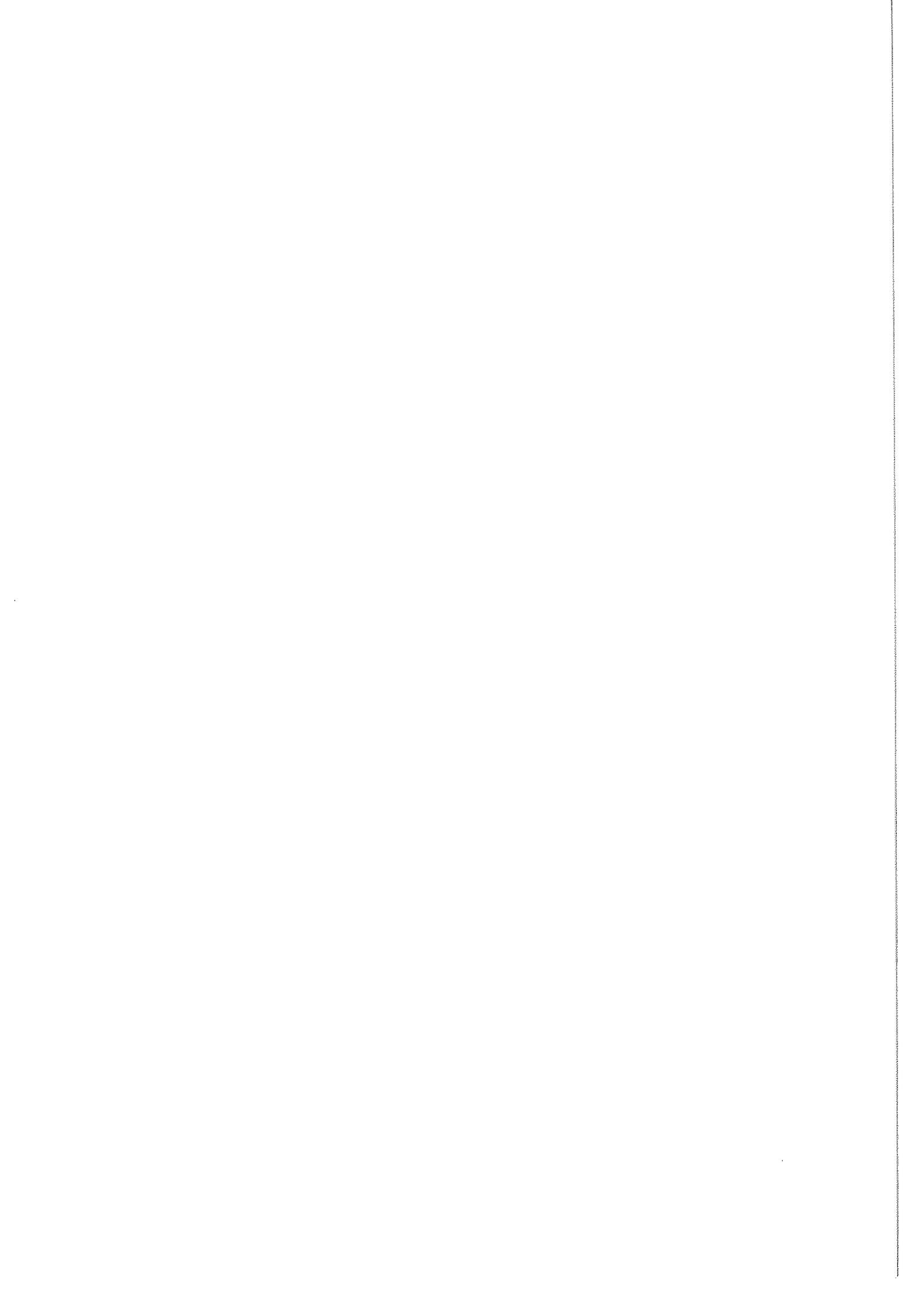
Valeurs de différents paramètres au point de compensation

	ErIG	HoIG	GdIG	unités
T_c	79	137	280	K
$d = \left(\frac{\Delta M_s}{\Delta T} \right)_{T_c}$	5,2	3,1	1,0	$10^{-2} \mu_B / \text{mole} / K$
$h_a = \left(\frac{\Delta H_s}{\Delta T} \right)_{T_c}$	12	8,5	8	$kOe / \mu_B / \text{mole}$
$\lambda (T_c)$	15,5	18,7	66	$kOe / \mu_B / \text{mole}$
$\frac{1}{\chi //} (T_c)$	16,5	20	72	$kOe / \mu_B / \text{mole}$
$H_{\text{eff.}} (1)$	96 (2)	94± (3)	266 (3)	kOe

(1) champ effectif agissant sur les ions terre rare.

(2) déterminé d'après les champs critiques au point de compensation.

(3) déterminé d'après la valeur de $\frac{1}{\chi //} (T_c)$.



CHAPITRE V

DIAGRAMME DE PHASE DU FERRITE GRENAT D'YTTERBIUM

1 - MODELE D'ENERGIE LIBRE POUR LE FERRITE GRENAT D'YTTERBIUM (YbIG)

Pour étudier le ferrite grenat d'ytterbium, nous devons faire intervenir de façon plus détaillée la structure complexe des ferrites grenats de terres rares. Nous en rappellerons les traits essentiels avant de développer le modèle microscopique d'énergie libre proposé par Wolf [96]. Nous étudierons ensuite dans quelle mesure ce modèle rend compte de l'anisotropie phénoménologique observée à haute température, et de la description qui en a été faite au chapitre précédent.

1-1 - Rappels sur la structure cristalline et magnétique des grenats

Les grenats ferrimagnétiques de terres rares sont des composés essentiellement ioniques qui cristallisent dans le système cubique centré [147,148] ; leur groupe d'espace est $Ia\bar{3}d(O_h^{10})$. La maille élémentaire contient 8 formules $R_3Fe_5O_{12}$ où R représente un atome de la série des terres rares. La répartition des 160 ions sur les différents sites cristallographiques est bien définie et invariable pour toute la série : tous les cations sont en positions particulières alors que les 96 ions oxygène sont en position générale dépendant de 3 paramètres x, y, z . 16 ions Fe^{3+} occupent les sites [16a], entourés chacun par 6 ions oxygène disposés suivant un octaèdre. 24 ions Fe^{3+} occupent les sites (24d) avec un environnement tétraédrique de 4 ions oxygène. Enfin les 24 ions terre rare sont sur les sites {24c} : l'entourage de 8 ions oxygène forme un dodécaèdre rappelant un cube distordu. Nous admettrons pour l'instant que la symétrie ponctuelle de ce site est orthorhombique (D_2), les axes binaires étant

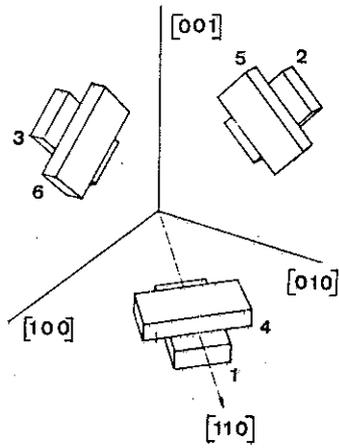


Figure 80 : Sites inéquivalents des terres rares

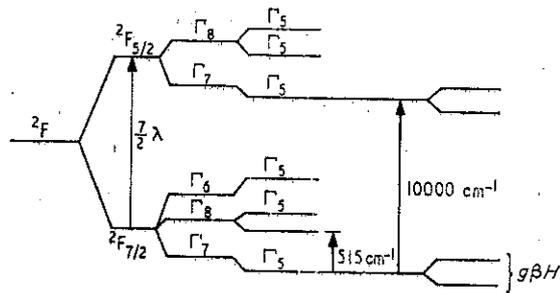


Figure 81 : Décomposition du multiplet fondamental des ions terre rare

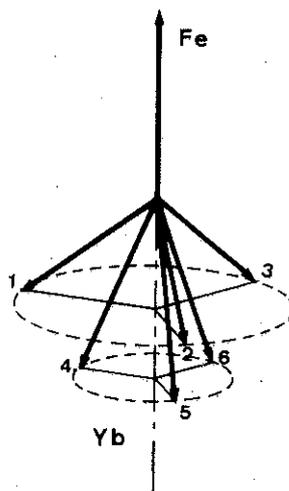


Figure 82 : Structure non colinéaire coaxiale

parallèles aux directions [001] et [110] et à celles qui s'en déduisent par permutation circulaire des indices.

Les symétries de la maille réduisent finalement à 6 le nombre de sites dont la disposition spatiale des axes binaires n'est pas équivalente. Ils sont représentés schématiquement sur la figure 80 (d'après Dillon et Walker [149]). Les systèmes d'axes locaux se correspondent 3 par 3 par rotation de $\frac{2\pi}{3}$ autour de la direction [111] et 2 par 2 par rotation de $\frac{\pi}{2}$ autour des axes quaternaires communs. Nous sommes donc en présence de 6 sous-réseaux magnétiques distincts, d'ions terre rare.

1-2 - Champ cristallin, interactions d'échange et anisotropie

En ce qui concerne les ions Fe^{3+} et Gd^{3+} qui sont dans un état S, ou l'ion Eu^{3+} dans un état singulet, l'effet du champ cristallin est absolument négligeable devant les autres termes d'énergie. Par contre, pour les autres ions terres rares, le champ cristallin de symétrie D_2 lève totalement la dégénérescence des multiplets J en donnant des doublets ou des singulets selon que les ions sont de Kramers (Sm, Dy, Er, Yb) ou non (Tb, Ho, Tm). De nombreuses études de champ cristallin ont montré que la décomposition des niveaux se fait généralement selon le schéma de la figure 81, établi dans le cas de l'ytterbium [93]. La séparation des niveaux due au champ cristallin étant de quelques centaines de cm^{-1} , l'utilisation de fonctions de Brillouin dans l'approximation du champ moléculaire ne sera valable qu'à haute température ($T > \sim 200$ K). A basse température, seuls les niveaux les plus bas sont à considérer, et on peut utiliser un hamiltonien à un ion avec un spin fictif \vec{S} . Le terme d'énergie Zeeman s'écrit alors :

$$- \mu_B \vec{H} \cdot \vec{g} \cdot \vec{S} \quad (116)$$

Le pseudo-facteur g est un tenseur anisotrope qui ne contient que trois valeurs principales g_x, g_y, g_z du fait de la symétrie orthorhombique des sites c.

L'étude comparée des divers grenats [41, 105] a montré que les interactions d'échange sont de trois types bien distincts :

- Les interactions (Fe-Fe) sont très fortes, de l'ordre de 500 K (350 cm^{-1}) ; elles sont responsables de la température de Curie élevée et de l'ordre ferrimagnétique des ions Fe^{3+} sur les sites a et d. Elles sont pratiquement isotropes et constituent la meilleure illustration du ferrimagnétisme de Néel et de l'hamiltonien d'Heisenberg avec le YIG.
- Entre terres rares les interactions (R-R) sont très faibles, inférieures à 1 cm^{-1} et pourront être généralement négligées.
- Enfin les interactions (Fe-R) sont de l'ordre de 50 K (35 cm^{-1}) et ne sont pas isotropes. Dans la mesure où elles sont plus faibles que l'interaction du champ cristallin, elles peuvent être traitées par un hamiltonien de spin du type Heisenberg.

A basse température, les sous-réseaux fer sont saturés ; tous les ions Fe^{3+} ont leurs spins alignés dans une direction \vec{u} . Le terme d'échange peut donc se mettre sous la forme :

$$- \vec{M}_{\text{Fe}} \cdot A \cdot \vec{S} \quad (117)$$

où \vec{M}_{Fe} est l'aimantation résultante des ions fer selon \vec{u} .

Dans l'approximation classique du champ moléculaire, cette interaction d'échange serait représentée par un champ effectif \vec{H}_{eff} agissant sur le spin \vec{S} comme le champ extérieur \vec{H} , l'énergie d'échange s'écrivant alors :

$$- \mu_B \vec{H}_{\text{eff}} \cdot g \cdot \vec{S} = - \mu_B \lambda \vec{M}_{\text{Fe}} \cdot g \cdot \vec{S} \quad (118)$$

En fait, il a été démontré [150,151] que les interactions d'échange n'ont pas, en général, la même anisotropie que les interactions du type Zeeman avec un véritable champ extérieur. Les tenseurs A et g ne se correspondent pas par une simple constante multiplicative. Il faut tenir compte de la vraie nature tensorielle du champ effectif d'échange.

Finalement, la contribution aux énergies Zeeman et d'échange des ions terre rare d'un même site q se représentent par un hamiltonien de spin fictif à un ion [96] :

$$\mathcal{H}_q = - \mu_B \vec{H} \cdot g_q \cdot \vec{S}_q - \vec{u} \cdot G_q \cdot \vec{S}_q \quad (119)$$

Avec ces notations, le tenseur d'échange G_q a les dimensions d'une énergie, alors que g_q est sans dimension. Ils se correspondent simplement par symétrie et s'expriment de façon unique dans chaque système d'axe locaux xyz. La symétrie D_2 leur impose alors une forme diagonale:

$$g = \begin{bmatrix} g_x & 0 & 0 \\ 0 & g_y & 0 \\ 0 & 0 & g_z \end{bmatrix} \quad G = \begin{bmatrix} G_x & 0 & 0 \\ 0 & G_y & 0 \\ 0 & 0 & G_z \end{bmatrix}$$

La direction de quantification du site q est la direction du vecteur :

$$\vec{\Delta}_q = (\mu_B \vec{H} g + \vec{u} G)_q \quad (120)$$

dont les composantes dans les axes locaux sont (en omettant l'indice q)

$$\Delta_\alpha = \mu_B H_\alpha g_\alpha + u_\alpha G_\alpha \quad (\alpha = x, y, z) \quad (121)$$

L'énergie pour un doublet de spin fictif $S = \frac{1}{2}$ est :

$$E = E_0 \pm \frac{1}{2} \Delta \quad (122)$$

avec
$$\Delta = |\vec{\Delta}| = \sqrt{\Delta_x^2 + \Delta_y^2 + \Delta_z^2} \quad (123)$$

Les composantes du moment magnétique suivant les mêmes axes sont :

$$\mu_\alpha = - \frac{\partial E}{\partial H_\alpha} = + \frac{1}{2} \frac{\partial \Delta}{\partial H_\alpha} = \frac{1}{2} \frac{g_\alpha \Delta_\alpha}{\Delta} \mu_B \quad (124)$$

et se réduisent en champ nul à :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta_\alpha^0 = u_\alpha G_\alpha \\ \mu_\alpha^0 = \frac{u_\alpha g_\alpha G_\alpha}{2 \sqrt{\sum_\alpha u_\alpha^2 G_\alpha^2}} \mu_B \end{array} \right. \quad (125)$$

Ainsi l'anisotropie des tenseurs g et G a pour conséquences immédiates:

- l'anisotropie de la grandeur des moments magnétiques et celle de l'énergie dépendent fortement du champ extérieur H de façon non triviale ; de plus, elles ne favorisent pas nécessairement les mêmes directions [96].

- Les moments des différents sites terres rares ne sont pas parallèles à la direction \vec{u} de l'aimantation fer. Leur structure magnétique à basse température est non colinéaire [129-131].

Dans la plupart des grenats, l'anisotropie de l'énergie, en l'absence de champ, impose la direction [111] comme direction de facile aimantation des ions Fe^{3+} . L'arrangement des moments des terres rares se présente comme un "double parapluie" d'axe [111]. En effet, si la direction \vec{u} est selon [111] les six sites se décomposent en deux classes de 3 sites : à l'intérieur de chaque classe les moments ont la même grandeur, font le même angle avec l'axe [111] et se correspondent par une rotation de $\frac{2\pi}{3}$ autour de cet axe (figure 82). En l'absence de champ magnétique appliqué, cette structure non colinéaire des terres rares subsiste avec les mêmes angles depuis 0 K jusqu'à une température telle, que les premiers niveaux excités commencent à être peuplés. Ensuite, elle évolue graduellement au fur et à mesure du peuplement des niveaux supérieurs jusqu'à devenir presque entièrement colinéaire pour des températures supérieures à l'écartement du multiplet J fondamental [152]. Par contre, il est facile de voir que cette structure se déforme à toute température dès l'application d'un champ magnétique, donnant lieu à une susceptibilité non nulle même à 0 K [153]. Si un champ faible \vec{H} est appliqué selon l'axe facile [111], la symétrie globale du système ne change pas et en particulier \vec{M}_{Fe} reste colinéaire à \vec{H} . Mais, dès que la direction de \vec{H} s'écarte de l'axe, il est évident que la symétrie est rompue et en particulier \vec{M}_{Fe} n'est plus colinéaire à \vec{H} . Comme la structure est entièrement déterminée si l'on connaît la direction \vec{u} de \vec{M}_{Fe} , celle-ci apparaît comme le paramètre fondamental de la discussion ; en particulier l'état d'équilibre du système des moments sous l'action d'un champ s'obtiendra en cherchant la direction \vec{u} qui rend minimum l'énergie libre du système. La phase stable ainsi trouvée possède une symétrie axiale ou non selon que \vec{u} et \vec{H} sont colinéaires ou non. Nous utiliserons désormais le terme de phase coaxiale pour désigner la phase de symétrie axiale.

1-3 - Anisotropie macroscopique

Nous allons voir dans quelle mesure le formalisme microscopique précédent se ramène au formalisme habituel de l'anisotropie magnétique. La contribution à l'énergie libre des terres rares est :

$$F_R = - kT \sum_{q=1}^6 N_q \text{Log} 2 \text{Ch} \frac{\Delta q}{2kT} \quad (126)$$

A haute température

Pour $x < 2$, la fonction $\text{Log Ch } x$ est développable en série entière :

$$\text{Log Ch } x = \frac{x^2}{2} - \frac{x^4}{12} + \frac{x^6}{45} - \frac{17}{2520} x^8 + \dots \quad (127)$$

En champ nul, les Δq sont des fonctions homogènes de degré 1 aussi bien vis-à-vis des cosinus directeurs de \vec{u} que des valeurs principales G_α . Chaque terme en x^{2n} , après sommation sur les six sites, fournit un polynôme homogène de degré $2n$ en $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ d'une part et G_x, G_y, G_z d'autre part. Les deux groupes de variables se séparent en faisant apparaître les polynômes symétriques des cosinus directeurs P_{21} qui servent de base au développement habituel pour la symétrie cubique :

$$\begin{aligned} P_2 &= \alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 \equiv 1 \\ P_4 &= \alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2 \\ P_6 &= \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 \\ &\text{etc...} \end{aligned} \quad (128)$$

Après regroupement des termes et identification avec

$$F_R = 6kT \text{Log } 2 + \sum_1 K_1 P_{21+2}, \quad (129)$$

on obtient les coefficients d'anisotropie sous la forme d'un développement en polynômes homogènes en G_x, G_y, G_z :

$$K_1 = \sum_{n \geq 1} (kT)^{1-2n} Q_{n,1+1} \quad (130)$$

Si T est suffisamment grand, les premiers termes sont prépondérants :

$$\begin{aligned} K_0 &= \frac{Q_{1,1}}{kT} + \frac{Q_{2,1}}{(kT)^3} + \frac{Q_{3,1}}{(kT)^5} + \dots \\ K_1 &= \frac{Q_{2,2}}{(kT)^3} + \frac{Q_{3,2}}{(kT)^5} + \dots \\ K_2 &= \frac{Q_{3,3}}{(kT)^5} + \dots \end{aligned} \quad (131)$$

Le calcul des premiers $Q_{n,1}$ est détaillé dans l'annexe E (§ 3).

L'écartement moyen Δ des niveaux peut être défini par :

$\Delta = \sqrt{\frac{1}{3} (G_x^2 + G_y^2 + G_z^2)}$. Les coefficients d'anisotropie seront bien définis par les premiers termes de leur développement dès que le rapport entre deux termes consécutifs sera petit devant 1, soit $\frac{1}{3} \left(\frac{\Delta}{kT}\right)^2 \ll 1$. Pour la plupart des grenats, Δ est de l'ordre de 50 K (35 cm⁻¹) ; aussi pour des températures supérieures à 100 K les constantes K_1 et K_2 sont essentiellement déterminées par les termes $Q_{2,2}$ et $Q_{3,3}$. La discussion des signes de K_1 et K_2 en fonction des valeurs relatives de G_x , G_y et G_z est alors facile. Les résultats de cette discussion sont consignés dans l'annexe E ; ils sont sensiblement différents de ceux de Sivardière et Tchéou [154] qui n'ont considéré que le terme $Q_{2,2}$.

Lorsqu'un champ magnétique extérieur \vec{H} est appliqué les formules sont encore valables si la phase est coaxiale ($\vec{M}_{Fe} // \vec{H}$), à condition de remplacer systématiquement les composantes G_α par $E_\alpha = G_\alpha \pm Hg_\alpha$, (avec le signe + ou - selon que le champ H agit dans le même sens ou en sens contraire de l'échange). Il s'en suit immédiatement que les coefficients K_1 dépendent du champ par l'intermédiaire du tenseur g.

Enfin, les composantes G_α dépendent de la température par l'intermédiaire de la variation thermique de l'aimantation des ions fer :

$$G_\alpha(T) = \frac{M_{Fe}(T)}{M_{Fe}(0)} \cdot G_\alpha(0) \quad (132)$$

Cette variation ne peut se mettre sous une forme analytique simple. Cependant, en première approximation, l'anisotropie du tenseur G se conserve ; les termes $Q_{n,1}$ gardent un signe constant et l'effet se réduit à un facteur de température multiplicatif. L'aimantation résultante M_R des ions terre rare varie comme $\text{th} \frac{\Delta}{2kT}$ qui est, à ces températures, équivalent à $\frac{\Delta}{2kT}$. L'anisotropie de l'énergie d'échange fournit donc une contribution aux coefficients d'anisotropie macroscopiques K_1 , dont la variation en fonction de l'aimantation du sous-réseau est très différente de celle d'une anisotropie locale à un ion

$$\begin{cases} K_1 \sim T(M_R)^4 \sim (M_R)^3 \\ K_2 \sim T(M_R)^6 \sim (M_R)^5 \end{cases} \quad (133)$$

Ceci ne modifie pas les approximations qui ont été faites au chapitre IV.

A basse température, c'est-à-dire pour $kT < \frac{\Delta}{4}$, le développement précédent n'est plus valable et il faut comparer directement les valeurs de F_R . La limite quand T tend vers 0 est simplement :

$$F_R = - \frac{1}{2} \sum_q \Delta q \quad (134)$$

La discussion des différents axes "faciles" en fonction de l'anisotropie du tenseur G est également faite dans l'annexe E. Cette discussion à $T = 0$ et celle à haute température sont peut différentes, exception faite des changements d'axe "facile" qui dépendent du rapport $\frac{K_2}{K_1}$ qui varie alors comme $\frac{1}{T^2}$. Inversement, la disposition relative des composantes du tenseur G pourra être discutée à partir de la connaissance de l'axe de facile aimantation.

1-4 - Diagramme théorique du ferrite grenat d'ytterbium (YbIG)

Les études de champ cristallin [92,93,155] ont montré que le multiplet $^2F_{7/2}$ des ions Yb^{3+} est décomposé en quatre doublets de Kramers. Le fondamental est situé à 550 cm^{-1} environ du premier excité et cette grande séparation rend négligeables les perturbations au second ordre. La température de compensation est très basse ($< 8 \text{ K}$) et l'aimantation spontanée très faible ($0,07 \mu_B$ [83]) à la température de l'hélium liquide. L'aimantation résultante des six ions Yb^{3+} dépasse donc de peu celle des ions Fe^{3+} . L'écartement moyen du fondamental dû à l'échange fer-terre rare est de 18 K (25 cm^{-1}) d'après les mesures de chaleurs spécifiques [107,156]. On en déduit des ordres de grandeur du champ effectif moyen (160 kOe) et de la température critique (18 K) du modèle isotrope à deux sous-réseaux. La partie intéressante du diagramme (H, T) est donc située en dessous de 20 K et entre 0 et 350 kOe . A ces températures, l'aimantation des ions fer, que l'on suppose être la même que celle du grenat d'yttrium, YIG, reste saturée à mieux que 2 pour mille [47] et peut être considérée comme constante. D'après le modèle précédent, l'énergie libre totale s'écrit :

$$F = - kT \sum_{q=1}^6 \text{Log} 2 \text{Ch} \frac{\Delta q}{2kT} - M_{Fe} \vec{u} \cdot \vec{H} \quad (135)$$

le second terme représente l'énergie de couplage des ions fer avec le champ extérieur. Nous négligeons les interactions entre les ions de terre rare et les répercussions de leur aimantation sur celle des ions fer. La très faible anisotropie de ceux-ci, assimilée à celle de YIG, est également négligée.

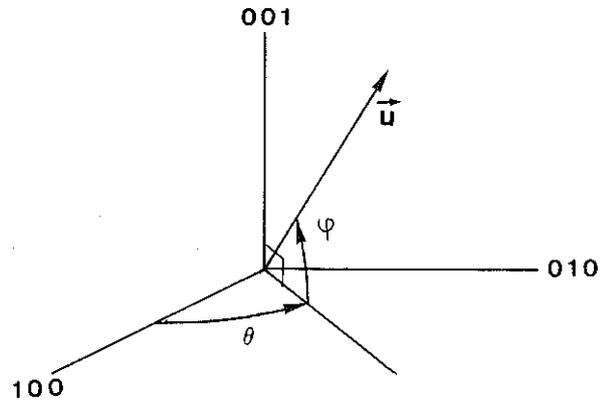


Figure 83 : Angles définissant la direction \vec{u}

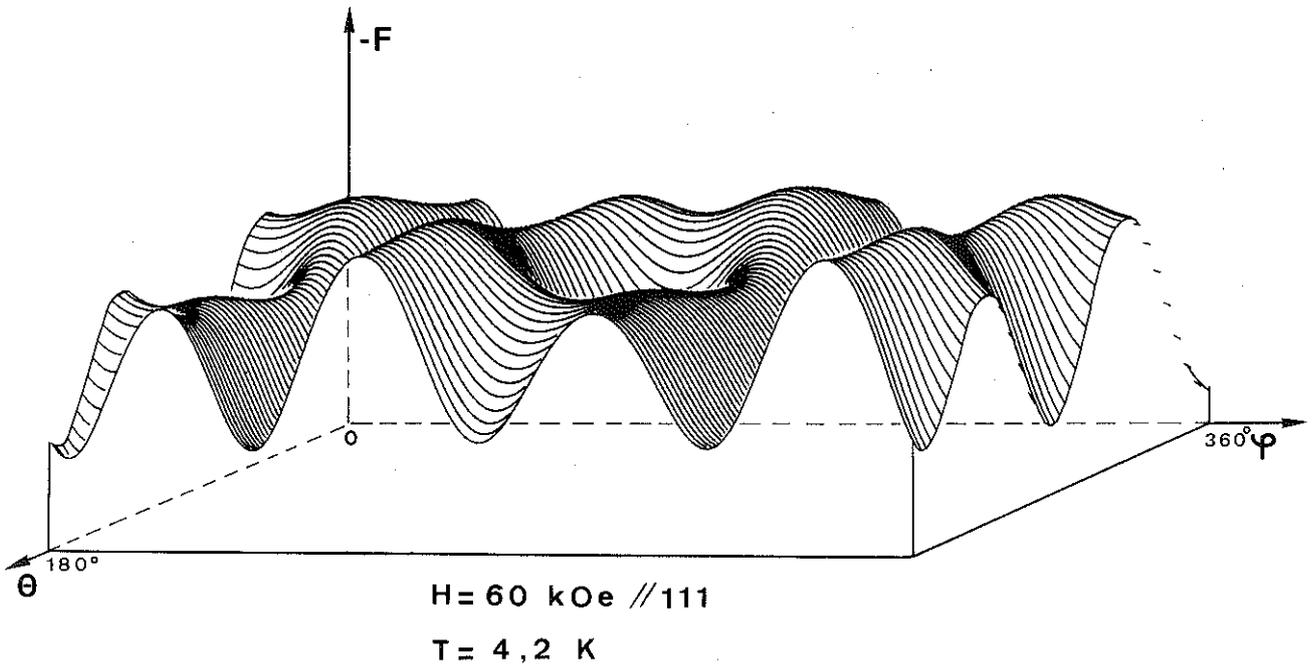


Figure 84 : Surface d'énergie libre - $F(\theta, \varphi)$

La direction \vec{u} est définie en coordonnées sphériques par deux angles θ et φ (figure 83). Les configurations d'équilibre pour \vec{H} et T donnés s'obtiennent en cherchant les minima de F par rapport à θ et φ . Ceci ne peut se faire que par un calcul numérique à partir de valeurs connues des tenseurs g et G du modèle. Celles de g sont déduites indirectement par des mesures de résonance paramagnétique sur des ions Yb^{3+} dilués dans des grenats non magnétiques. Avec les aluminates et les gallates d'yttrium et de lutécium, les valeurs principales de g varient peu d'un composé à l'autre [157-159] et peuvent donc être considérées comme une première approximation. L'étude spectroscopique de la décomposition du niveau fondamental dans YbIG donne les valeurs du tenseur G [151].

Pour la recherche des minima de F quand la direction du champ \vec{H} est quelconque, Alben a utilisé une méthode de gradient [160]. Cependant, lorsque le champ est appliqué suivant un axe de symétrie nous pouvons employer une méthode plus simple qui conduit à des résultats plus précis. En effet, les minima locaux, s'ils existent, doivent se correspondre par les opérations de symétrie relatives à cet axe. Comme en champ nul les directions de facile aimantation sont les axes [111] ; il y aura en général, en champ faible, 8 minima que l'on pourra considérer comme issus de ces huit directions [111] par continuité. Nous avons vérifié ceci pour plusieurs valeurs de T et de H dans les directions [001] et [111] de la façon suivante : toutes les directions \vec{u} ont été explorées pour des valeurs de H et T données, en faisant varier θ et φ respectivement de 0 à 90° et de 0 à 360° par pas de 3°. Pour se rendre compte facilement qu'aucune singularité particulière n'est présente et que tous les minima sont obtenus pour $\theta = 45^\circ$ (plan $1\bar{1}0$). La surface $F(\theta, \varphi)$ a été tracée à l'aide d'un programme de visualisation de surface mis au point par R. Siegfried. Une de ces surfaces est représentée sur la figure 84. Ainsi les calculs se simplifient pour ces deux directions qui sont les plus importantes du point de vue expérimental. Il ne reste plus qu'un paramètre (φ) et la détermination des minima se fait de façon très précise en cherchant les racines de $\frac{\partial F}{\partial \varphi} = 0$. En outre, les différentes grandeurs thermodynamiques dérivées de F , ont des expressions analytiques simples, et sont calculables directement sans avoir recours à une différentiation numérique moins précise. On notera que pour la direction [110] les minima ne sont plus situés nécessairement dans le plan de symétrie $1\bar{1}0$.

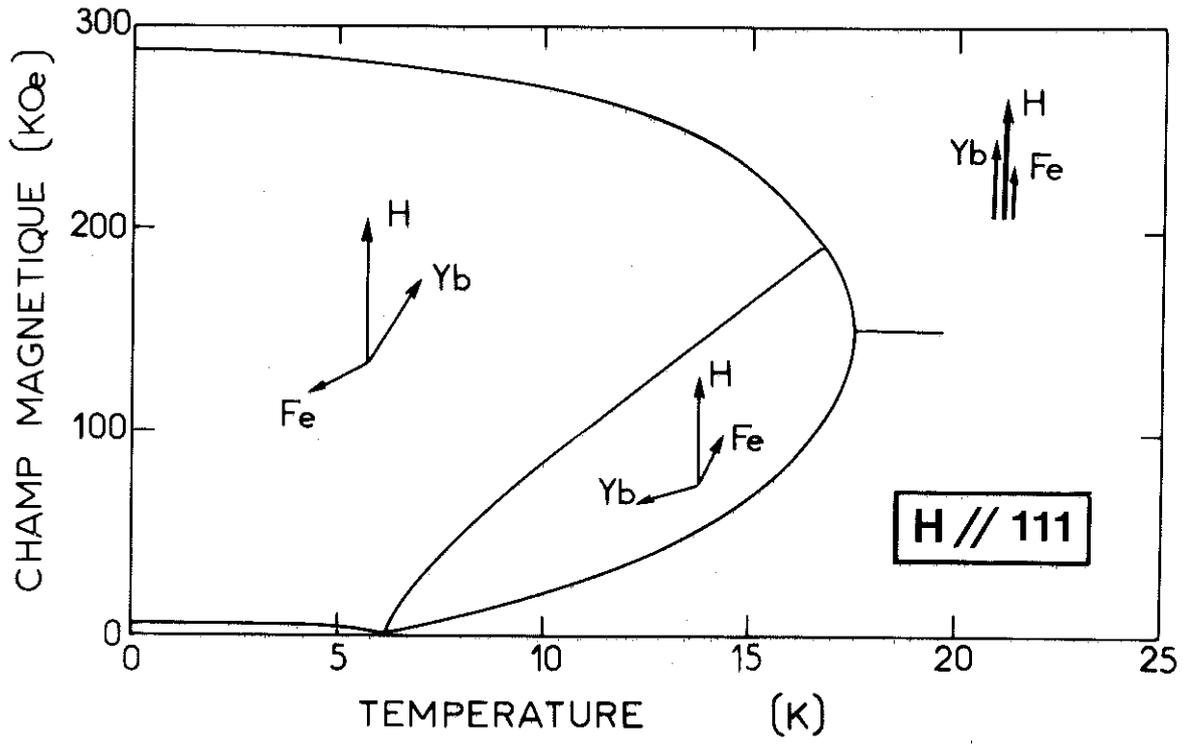


Figure 85 : Diagramme théorique de YbIG selon [111]

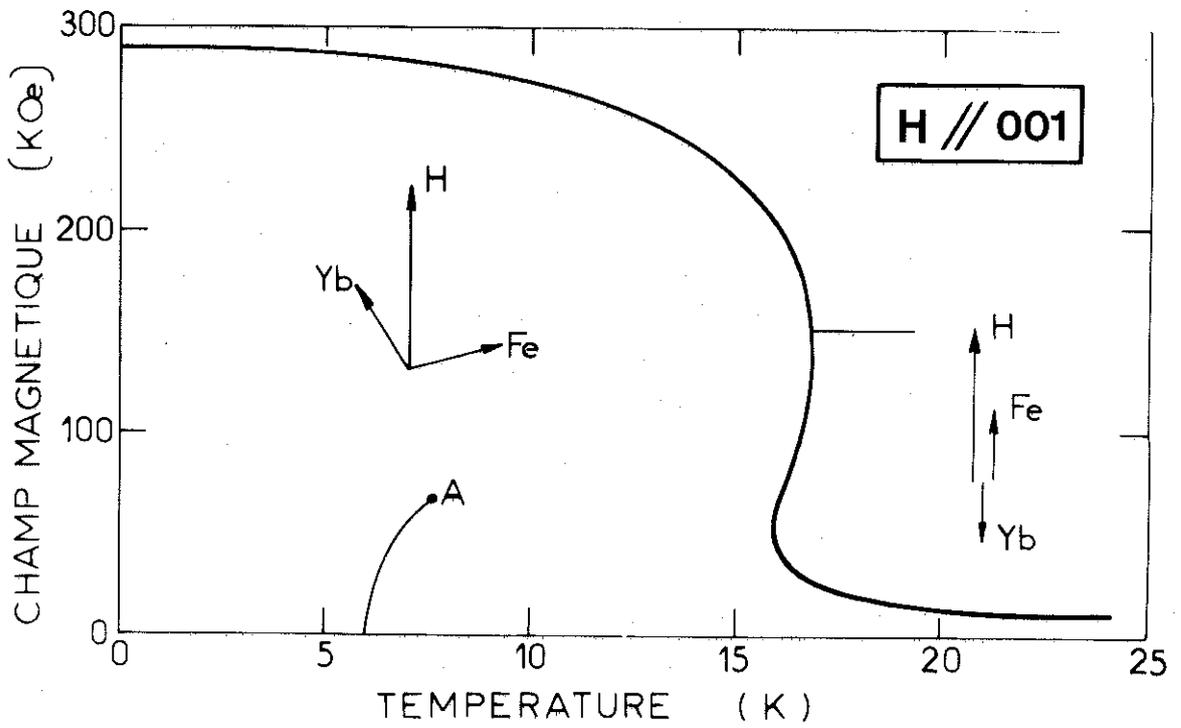


Figure 86 : Diagramme théorique de YbIG selon [001]

Les diagrammes théoriques ont été ainsi calculés pour les directions [111] et [001] du champ appliqué, en utilisant l'un des ensembles de coefficients g et G déterminés par Wickersheim [151] et choisis de façon qu'il existe un point de compensation [160]. Ils sont en accord avec ceux calculés par Alben et sont représentés sur les figures 85 et 86. Leur allure générale est analogue à celles que nous avons observées pour les grenats d'holmium et d'erbium. Parmi les caractéristiques essentielles il faut noter l'apparition de deux phases obliques distinctes séparées par une ligne de transitions du premier ordre, aboutissant au point de compensation. Ces transitions sont du type liquide-gaz car il n'y a pas de changement de symétrie. Selon [001] la ligne se termine par un point critique isolé A, alors que pour la direction [111], elle rejoint la ligne de transition entre phase oblique et phase coaxiale. Il faut rappeler que ces diagrammes sont calculés dans l'hypothèse d'un échantillon monodomaine et que les transitions sont définies par l'égalité des énergies libres des deux phases.

2 - DIAGRAMMES EXPERIMENTAUX DE YbIG

Nos mesures ont été faites sur trois monocristaux obtenus par la méthode de flux : deux ont été taillés en forme de sphère ($\varnothing \sim 3,8$ mm) pour les mesures en champs pulsés et le troisième, plus gros, laissé sous sa forme brute pour les études calorimétriques.

2-1 - Diagramme expérimental selon la direction [111]

2-1-1 - Etude en champs pulsés

Les anomalies de la susceptibilité différentielle $\frac{dM}{dH}$ au passage des transitions entre les différentes structures sont observées sur le signal $\frac{dM}{dt}$. Elles permettent de construire le diagramme de phase en reportant les champs critiques correspondants en fonction de la température initiale de l'échantillon (figure 87).

Au-dessus de 8 K, on observe trois anomalies dont l'amplitude décroît régulièrement au fur et à mesure que la température augmente. La plus marquée correspond à la ligne de transition inférieure, elle apparaît de façon nette jusque vers 28 K. Sur la branche intermédiaire l'anomalie consiste en un léger "pic" qui devient à peine discernable au-delà de 20 K. Le champ critique supérieur correspond à une diminution brusque de la susceptibilité et la valeur mesurée est

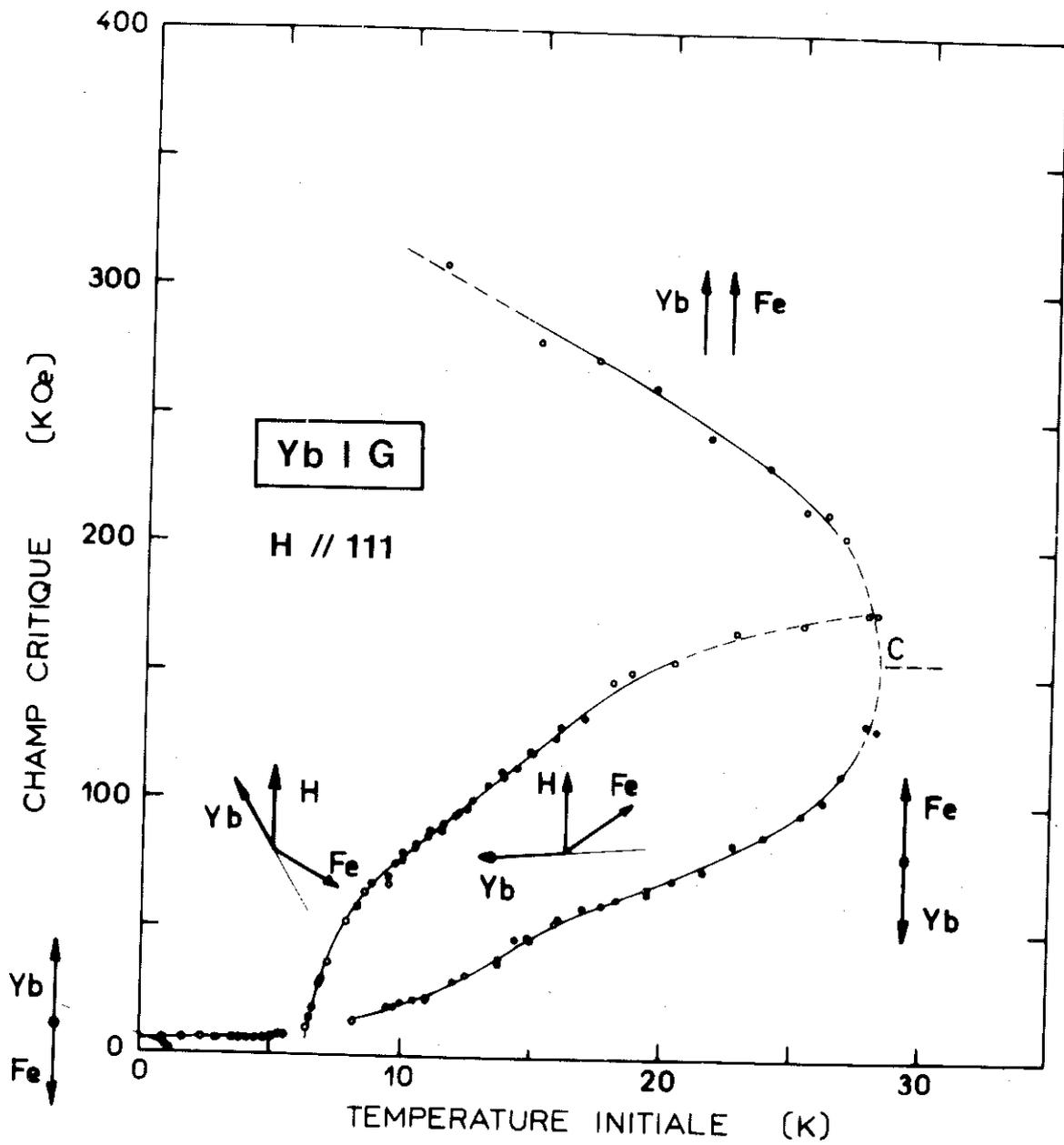


Figure 87 : Diagramme expérimental en champ pulsé de YbIG suivant [111] détermination en champ croissant seulement

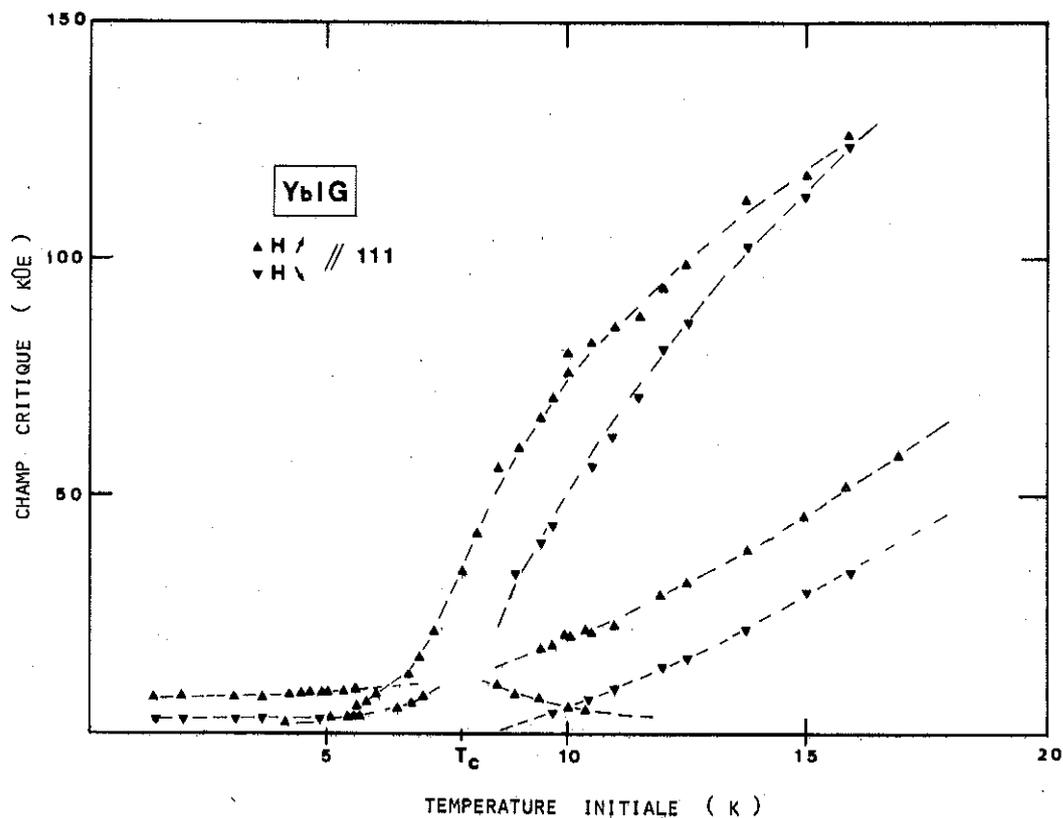


Figure 88 : Diagramme et hystérèse près du point de compensation

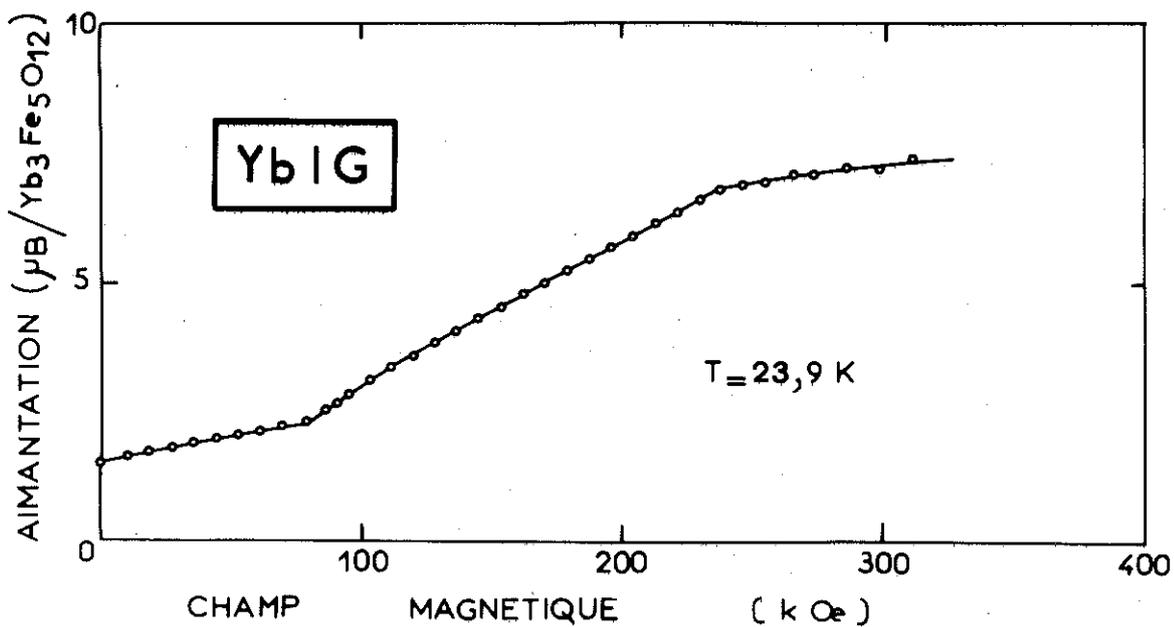


Figure 89 : Courbe d'aimantation en champ pulsé à 23,9 K

la même en champs croissants et en champs décroissants. Au contraire, pour les deux autres, on observe un hystérésis important, surtout vers les basses températures où il atteint 15 kOe (figure 88). Les courbes d'aimantation ont la forme caractéristique attendue (figure 89) : entre les deux champs critiques extrêmes, l'aimantation est approximativement proportionnelle au champ appliqué. La transition intermédiaire, qui n'est jamais visible sur ces courbes, sépare donc deux configurations obliques dont les propriétés sont très voisines.

Au-dessous de 7 K, une seule anomalie de susceptibilité est observée avec un hystérésis important (~ 5 kOe) et un champ critique moyen de l'ordre de 5 kOe (figure 88). La transition supérieure n'a pas été mise en évidence de façon certaine, car le saut de susceptibilité diminue avec la température et devient inférieur aux irrégularités du signal de mesure.

Au voisinage immédiat du point de compensation les lignes de transition interfèrent et la situation est assez complexe. On observe jusqu'à trois champs critiques en champs croissants. Le premier correspond, comme dans HoIG, au passage d'une structure coaxiale à la structure coaxiale inverse ; le second se produit au passage coaxiale-oblique. Il existe un domaine de température immédiatement en-dessous du point de compensation où, seul le troisième champ critique est observable (figure 88).

2-1-2 - Etude en champs magnétiques statiques

Nous avons effectué des mesures d'aimantation très précises par une méthode d'extraction dans un aimant supraconducteur [40,42]. La température de l'échantillon est mesurée avec une précision de l'ordre de 1 % à l'aide d'un thermomètre à résistance carbone (Allen Bradely 68 Ω). Une deuxième sonde de carbone sert à la régulation de cette température qui est reproductible à quelques mK près au cours d'un même cycle d'expériences.

Les courbes d'aimantation isothermes permettent d'étudier les lignes inférieures du diagramme qui sont peu inclinées sur l'axe des températures. Elles ont toutes la même forme (figures 90 à 92) : un premier palier permet de définir une aimantation spontanée ; il est suivi d'une variation plus rapide au voisinage du champ de transition ; puis d'une partie linéaire à peu près identique d'une courbe à l'autre, ce qui est caractéristique d'une phase oblique. En dessous de 9 K l'aimantation rémanente est égale à l'aimantation spontanée et

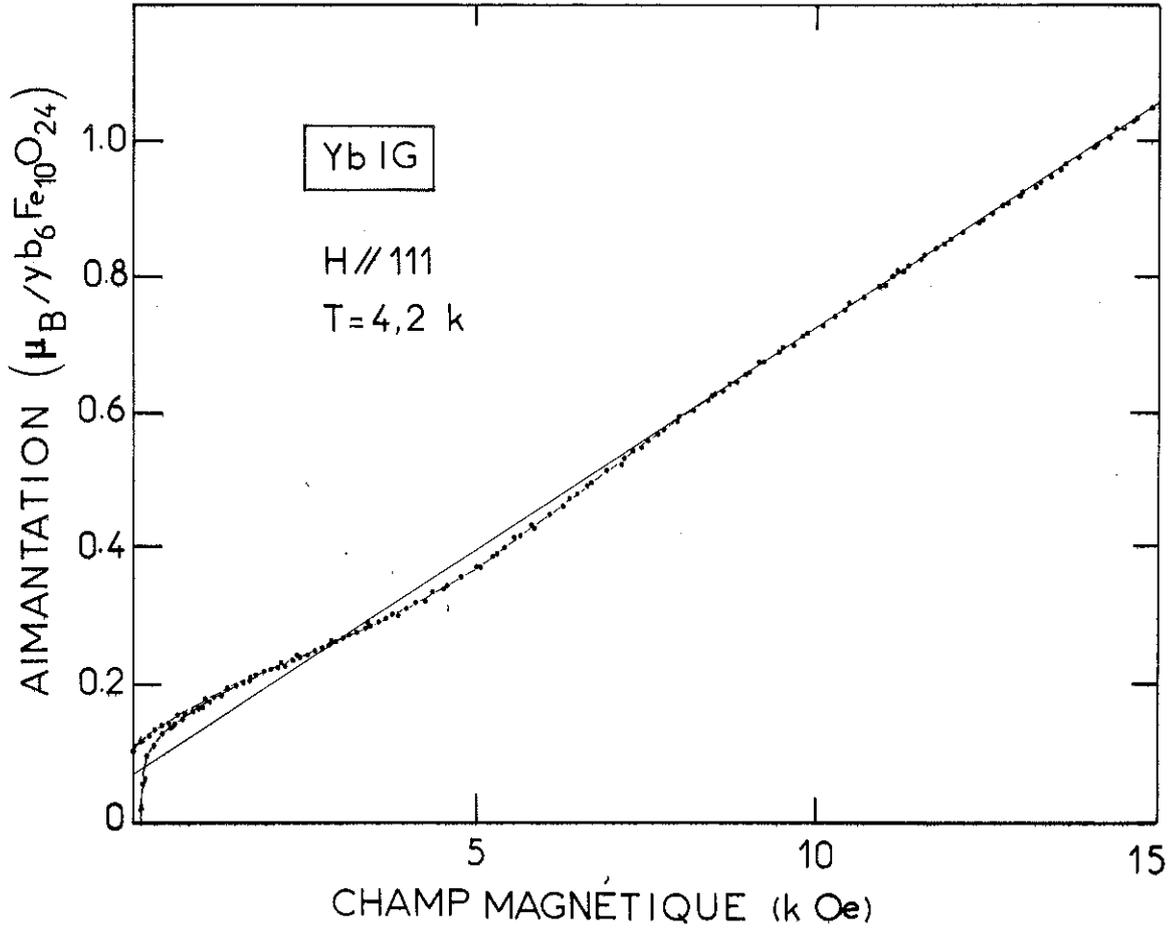


Figure 90 : Courbe d'aimantation isotherme à 4,2 K

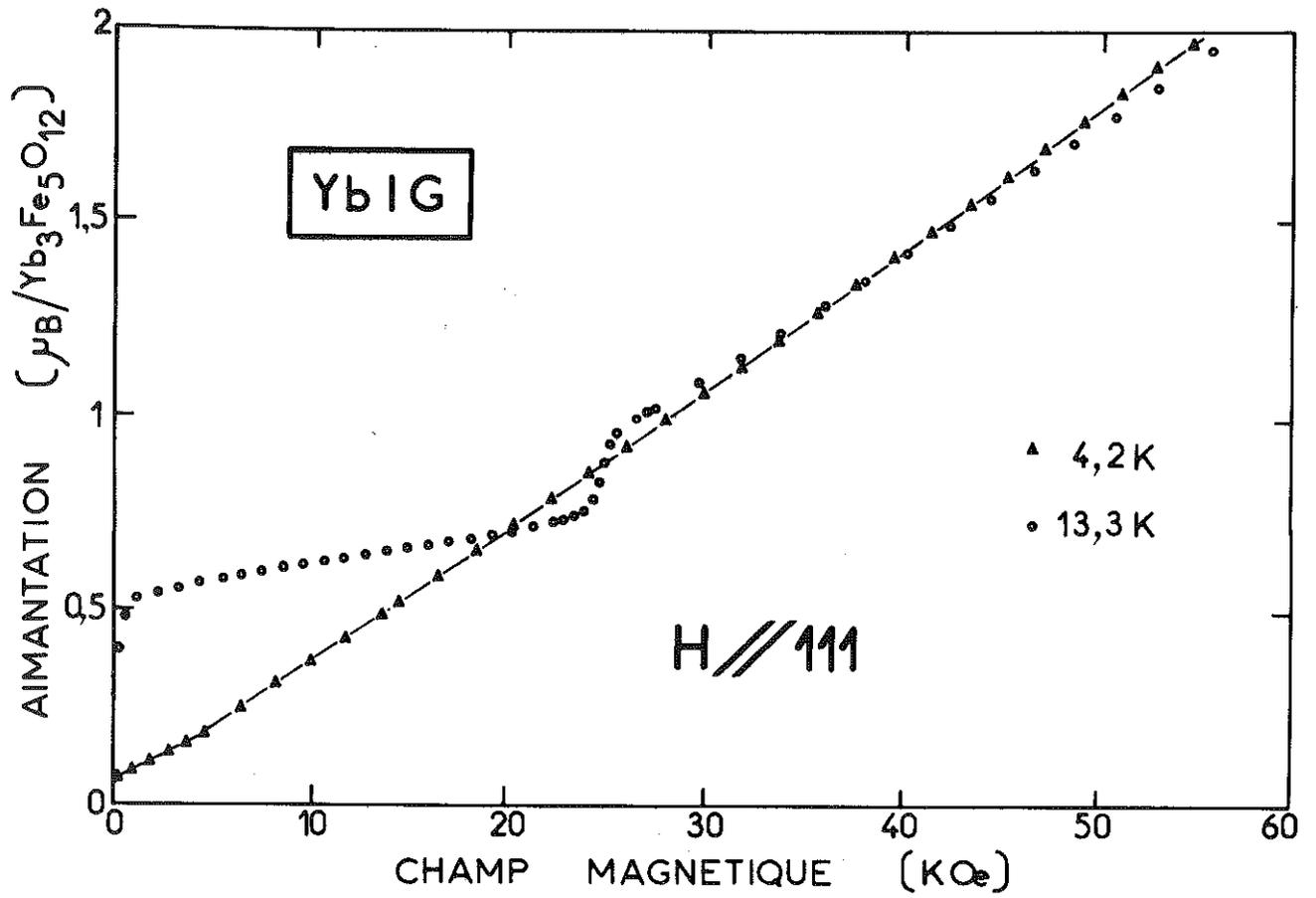
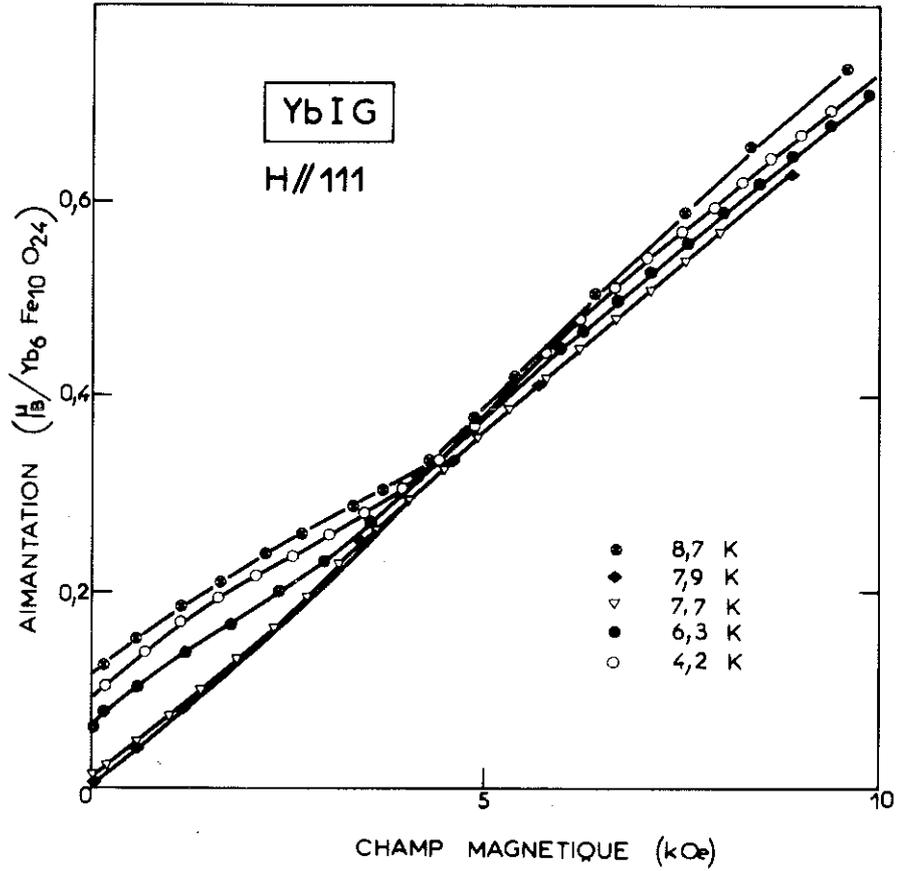
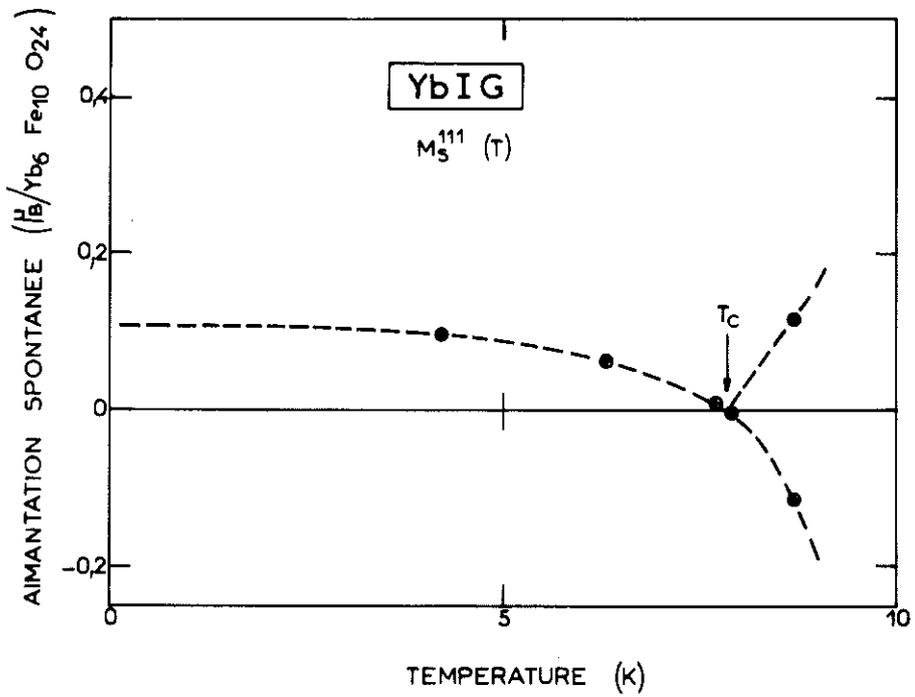


Figure 91 : Courbes d'aimantation isothermes



a) Courbes d'aimantation isothermes



b) Variation thermique de l'aimantation spontanée

Figure 92

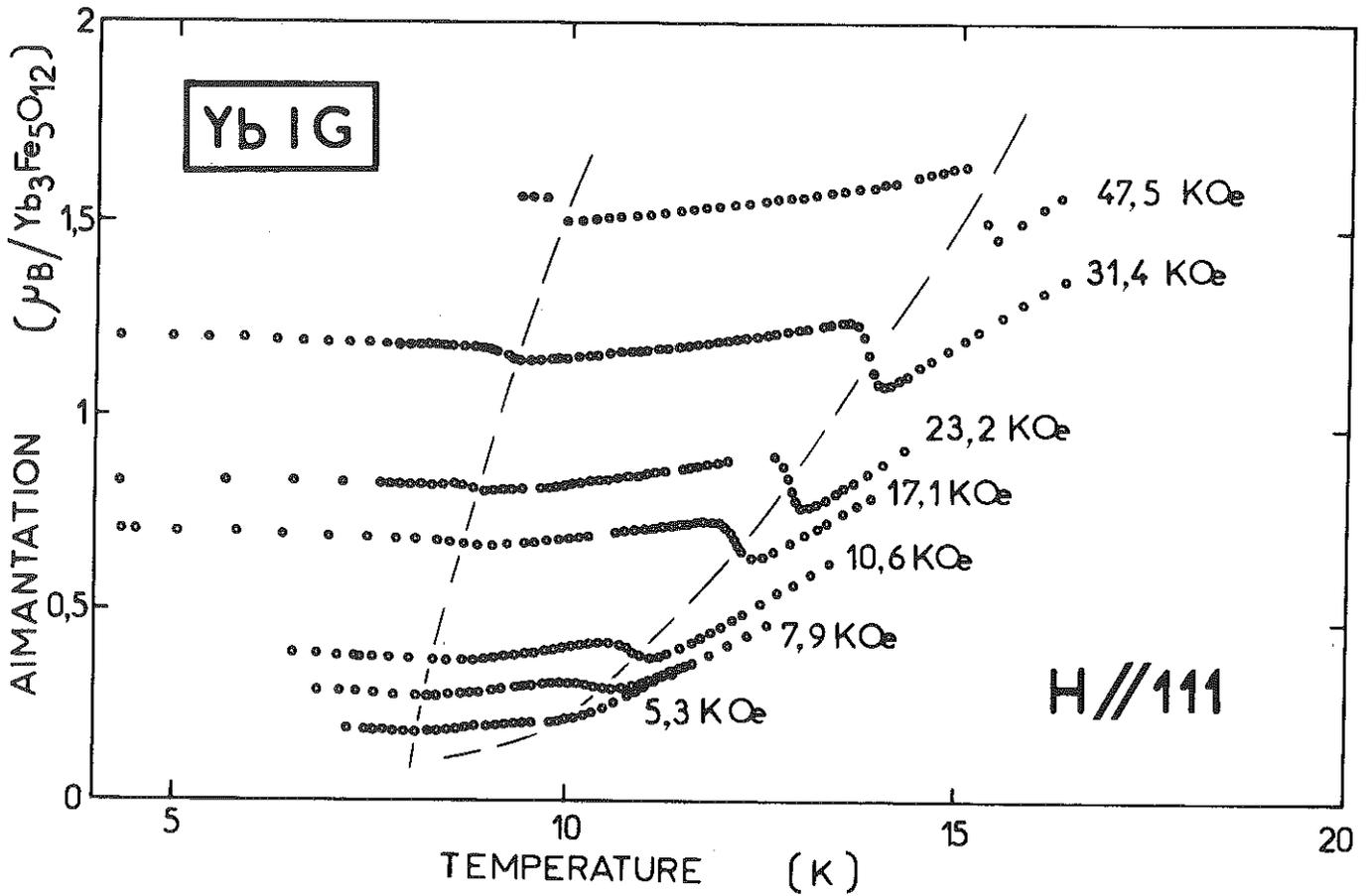


Figure 93 : Variation thermique de l'aimantation de YbIG à champ constant selon [111]

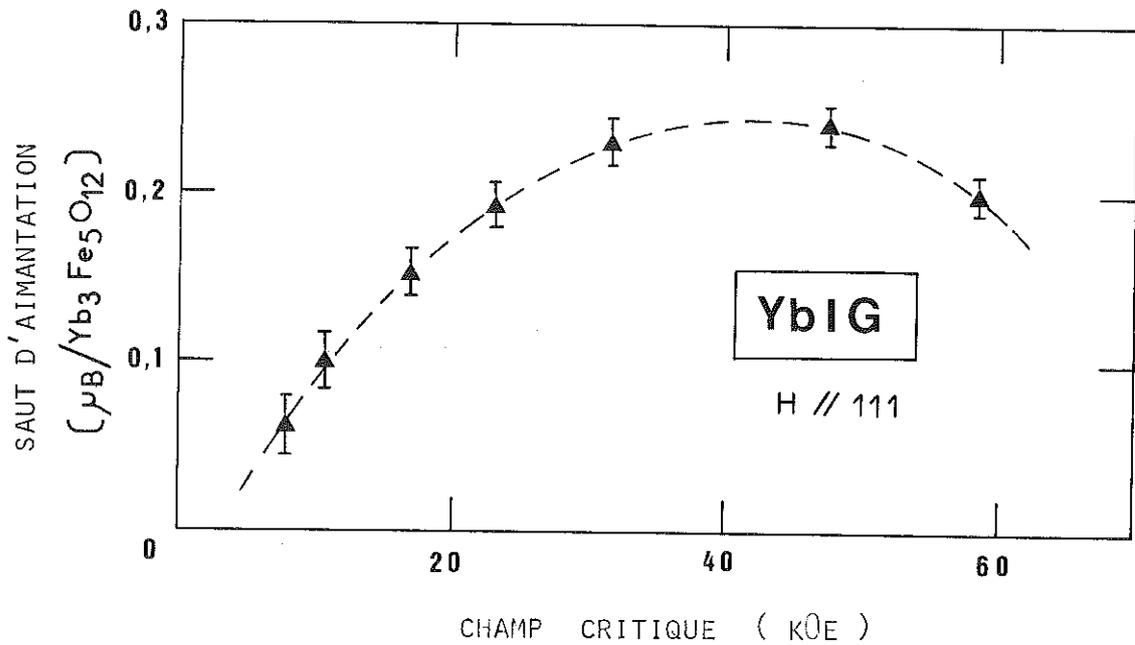


Figure 94 : Variation du saut d'aimantation à la transition du 1er ordre phase coaxiale - phase oblique suivant [111]

sa variation montre de façon claire l'existence d'une température de compensation $T_c = 7,85 \pm 0,1$ K (figure 92b). La transition s'étale sur 2 kOe environ et le champ critique moyen correspondant au maximum de la susceptibilité différentielle passe par un minimum de 3 kOe au point de compensation. Le champ coercitif est inférieur à 150 Oe. Ces mesures sont en bon accord avec celles de Clark et Callen [83] bien que nos valeurs soient plus élevées dans la phase coaxiale.

La très grande stabilité des bobines supraconductrices permet d'obtenir aisément les variations thermiques de l'aimantation à champ constant. Celles-ci sont mieux adaptées à l'étude des lignes du diagramme dont la pente est voisine de la verticale. Le réseau des courbes iso-champs est représenté sur la figure 93. Les transitions se manifestent par des sauts d'aimantation d'autant plus grands que le champ est plus élevé. Nos mesures sont en bon accord qualitatif avec celles de Levinson et coll. [88]. Leurs courbes sont déplacées par rapport aux nôtres, d'environ 2 K vers les basses températures, et les transitions ne sont pas mises en évidence de façon nette. La résolution de nos mesures est suffisamment bonne pour :

- prouver l'existence de la transition entre phases obliques,
- déterminer la variation du saut d'aimantation le long de la ligne de transition entre phases colinéaire et oblique (figure 94).

Aucune hystérèse n'a été observée, aussi bien en champ qu'en température.

2-1-3 - Effet magnétocalorique

Le monocristal utilisé ($m = 1,79$ g) a une forme approximativement cylindrique suivant un axe [111]. Il est serré dans un collier en cuivre qui supporte deux résistances de carbone (68 Ω , Allen Bradley), l'une pour la mesure des températures et l'autre pour le chauffage ; l'ensemble est suspendu dans un calorimètre par quatre fils en nylon. Un contact thermique entre l'échantillon et le calorimètre peut être établi par l'intermédiaire d'une languette en cuivre (figure 95). L'orientation exacte de l'axe [111] suivant la direction du champ est difficile à obtenir car elle est réalisée par le réglage de la longueur des fils de suspension ; l'erreur d'orientation peut atteindre cinq degrés. Cependant, la bonne reproductibilité des mesures d'un cycle d'expériences à l'autre montre que cette orientation n'est pas modifiée lors du refroidissement de l'ensemble.

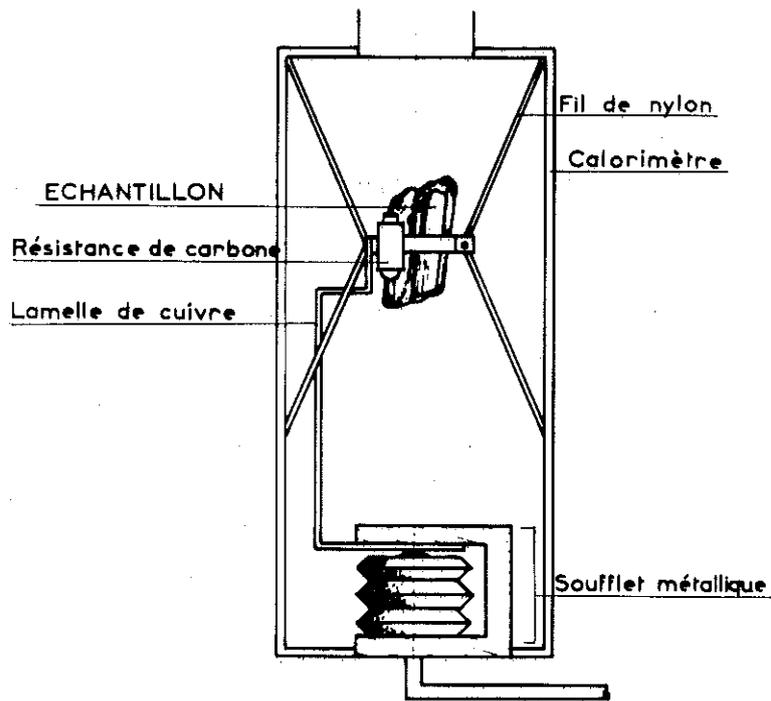


Figure 95 : Schéma de montage du calorimètre pour les mesures de chaleurs spécifiques et d'effet magnétocalorique

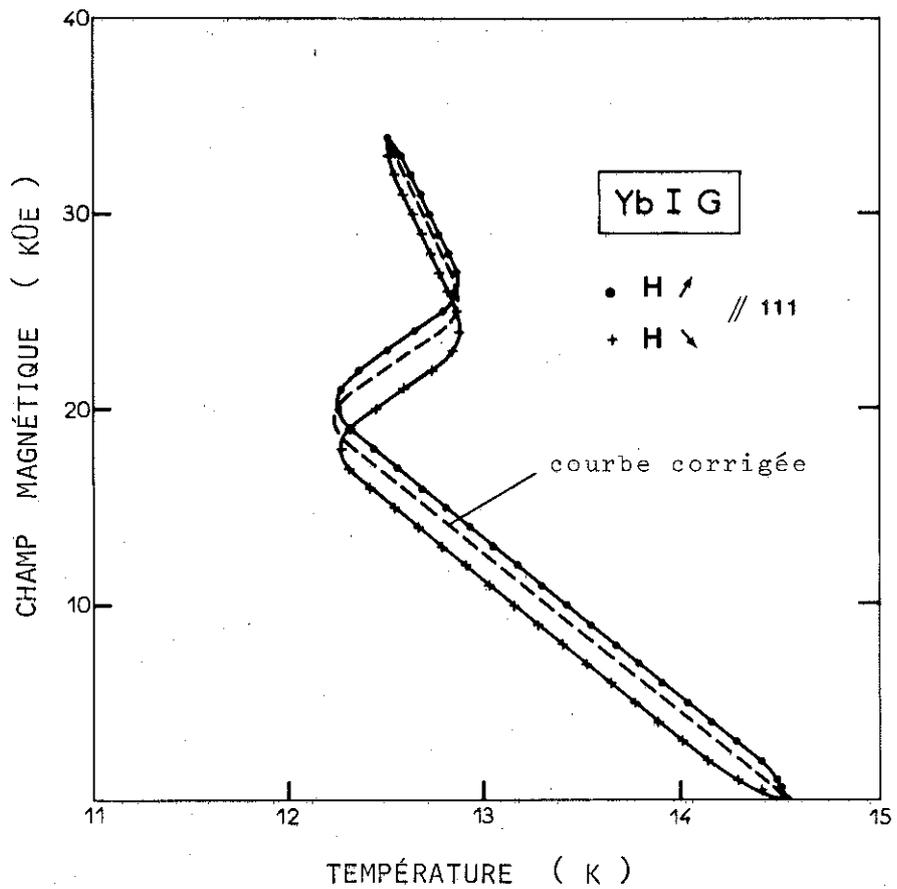


Figure 96 : Courbe expérimentale d'effet magnétocalorique

Le champ magnétique est créé par une bobine supraconductrice et sa stabilité sur une période de 10 heures est de 10 Oe. L'orientation du cristal n'est pas modifiée lors de l'application du champ car la languette du contact thermique, liée rigidement au cristal ne touche le calorimètre à aucun moment.

L'étalonnage de la température est réalisé à l'aide d'un thermomètre à gaz pour différentes valeurs du champ appliqué de façon à tenir compte de l'effet magnétorésistif de la résistance de carbone. L'erreur absolue est de l'ordre de 0,01 K.

Pour diminuer les échanges thermiques avec le milieu extérieur, un écran est disposé entre le calorimètre et le bain d'hélium ; sa température est maintenue constamment aussi proche que possible de celle de l'échantillon. L'enregistrement de l'évolution de la température de l'échantillon à champ constant permet de corriger les effets des échanges thermiques résiduels.

En champ nul, l'échantillon est porté à la température initiale voulue puis isolé thermiquement. Il est alors soumis à une variation linéaire très lente du champ au taux de 1 à 2 kOe par minute. La température de l'échantillon et le champ magnétique sont enregistrés en continu en fonction du temps.

Au début de la variation du champ, on observe sur l'évolution de la température un régime transitoire de type exponentiel dont la constante de temps est estimée à 40 secondes. Ce temps de réponse est sans doute lié à la propagation de la chaleur entre l'échantillon et la résistance thermométrique par l'intermédiaire des contacts mécaniques avec le collier. En régime permanent, les isentropes expérimentales sont parallèles à l'isentrope théorique pour laquelle l'échantillon et le thermomètre seraient en équilibre thermique à chaque instant. Le décalage en température est proportionnel à la vitesse de variation du champ, à la pente de l'isentrope et à la constante de temps. Les isentropes théoriques peuvent donc être construites facilement à partir des courbes expérimentales. On constate alors que les courbes en champ croissant et en champ décroissant sont confondues : le décalage observé entre courbes montantes et courbes descendantes n'est qu'un effet d'appareillage et, en fait, l'hystérésis intrinsèque à l'échantillon est inexistant (figure 96).

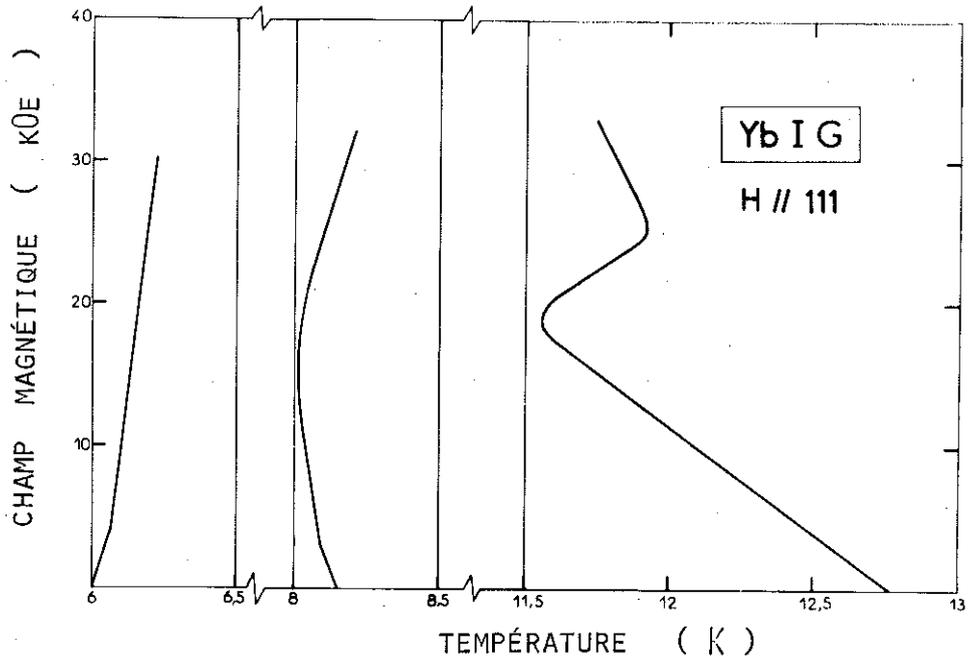


Figure 97 : Courbes isentropes caractéristiques

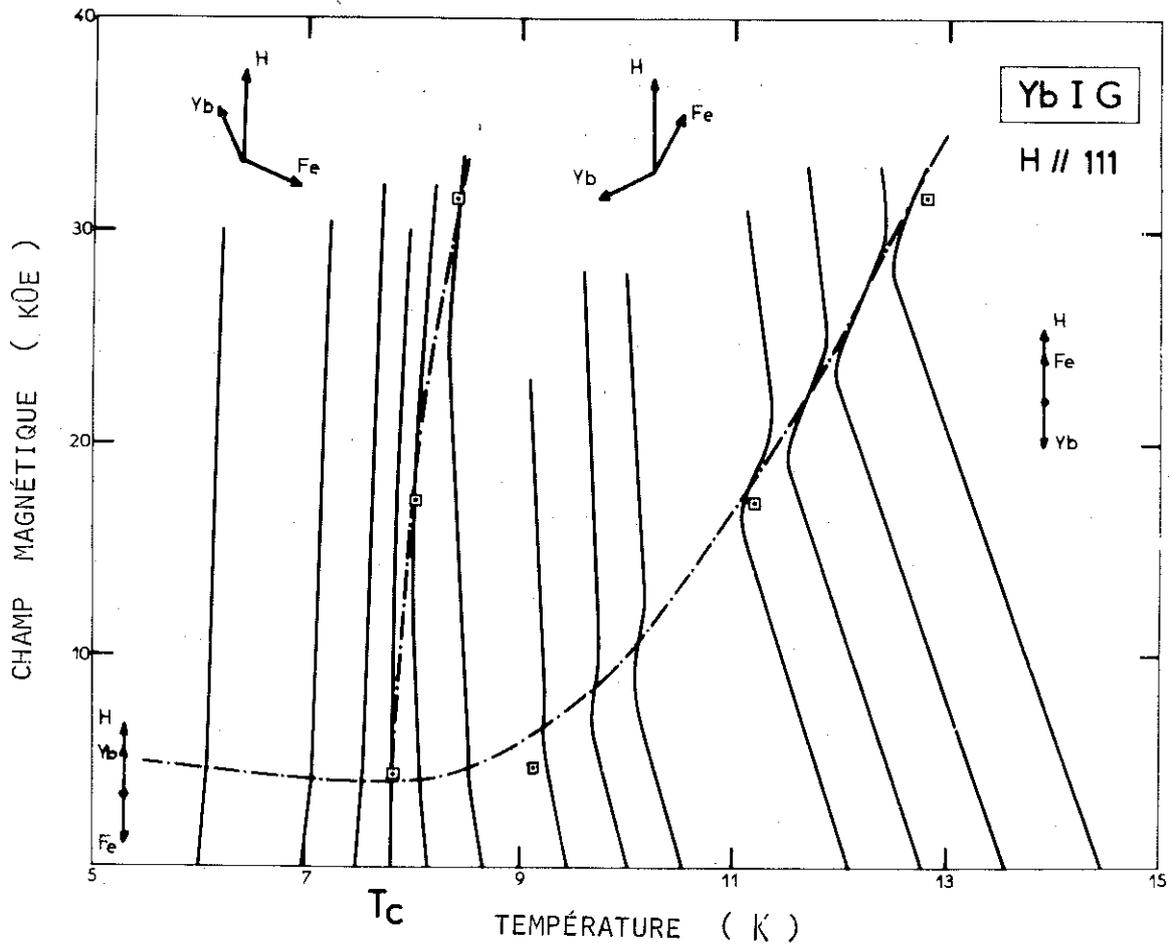


Figure 98 : Ensemble des isentropes expérimentales

Trois isentropes typiques sont représentées sur la figure 97. Pour une température initiale de 12,8 K on observe trois comportements bien distincts. D'abord un refroidissement important de l'échantillon, correspondant à une désaimantation des ions terre rare, montre que le champ appliqué s'oppose à l'action du champ d'échange dû aux ions fer ; ensuite un échauffement rapide qui caractérise un changement de phase avec dégagement d'une chaleur latente ; puis un refroidissement beaucoup plus faible que le premier dans la phase oblique. Avec une température initiale de 6 K, le passage de la phase coaxiale à la phase oblique n'est plus marqué que par un changement de pente à 4,2 kOe ; cette pente est devenue positive en champ faible : l'action du champ extérieur s'ajoute à celle du champ d'échange et les ions terre rare s'aimantent. Sur l'isentrope intermédiaire de température initiale 8,15 K nous notons la présence de deux changements de pente : l'un à 3,5 kOe, caractéristique de la transition entre structures coaxiale et oblique ; l'autre plus étalé correspondant au passage d'une configuration oblique à l'autre.

L'ensemble des courbes obtenues, représentées sur la figure 98, permet une construction assez précise du diagramme de phase. L'inversion de la pente initiale des isentropes vers 8 K est une preuve directe de l'existence d'un point de compensation avec l'inversion globale de la structure. Nous remarquons que l'inclinaison des paliers intermédiaires (par exemple pour la température initiale 12,8K) n'est pas identique à celle de la ligne de transition coaxiale-oblique. Cet étalement de la transition a déjà été observé sur les sauts d'aimantation (figure 94).

L'écart de température mesuré est inversement proportionnel à la capacité calorifique de l'ensemble expérimental (collier + échantillon). Dans la gamme de températures étudiée, la capacité calorifique du collier n'est pas négligeable devant celle de l'échantillon (à 18 K, elle en représente les 19 %). Il faut en tenir compte pour accéder à l'effet magnétocalorique propre à l'échantillon qui est nécessairement plus grand que l'effet mesuré. Malgré cela, la pente des isentropes ($\sim 0,07$ K/kOe) entre 12 et 15 K est environ 50 % supérieure à celle mesurée antérieurement sur des polycristaux [84,86]. L'effet magnétocalorique est donc plus faible pour les directions du champ appliqué, autres que [111]. Ceci est en accord avec le fait que l'on prévoit, en général un effet plus petit pour une configuration oblique.

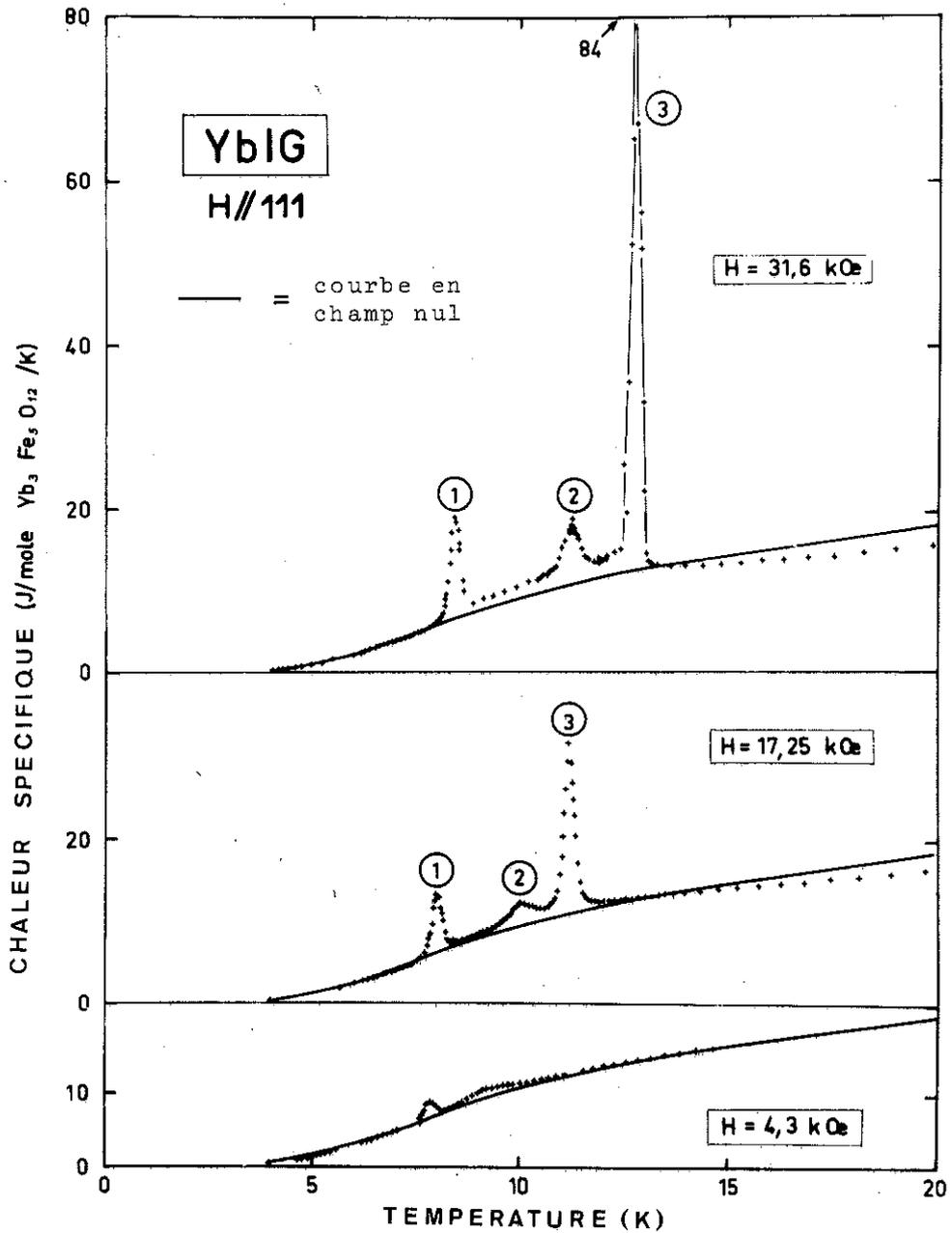
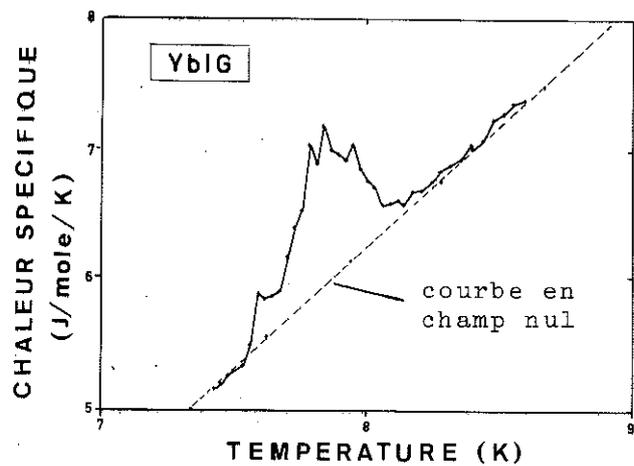


Figure 99 : Chaleurs spécifiques à champ constant

Figure 100 :
Courbe de chaleur
spécifique à 1,7 kOe



2-1-4 - Les chaleurs spécifiques

Le montage expérimental est identique à celui décrit précédemment (figure 94).

Les valeurs que nous avons obtenues en champ nul [156] sont légèrement supérieures à celles de Harris et Meyer [107] et la courbe ne présente pas d'autre particularité qu'une "bosse" très étalée qui s'explique par une contribution de type Schottky du doublet fondamental des ions Yb^{3+} .

Les résultats sous champ [17] sont donnés sur les figures 99 et 100. Les anomalies observées, de forme approximativement triangulaire, ont une hauteur d'autant plus grande que le champ est plus élevé. Elles sont caractéristiques des transitions du premier ordre. Les anomalies ① et ③ peuvent être attribuées aux deux changements de phase déjà observés sur les mesures d'aimantation et notamment les isochamps (figure 93). L'origine de la transition supplémentaire ② est sans doute un effet d'un défaut d'orientation probable de l'échantillon. Les calculs montrent, en effet, que lorsque le champ est appliqué suivant une direction voisine de [111], la ligne de transition coaxiale-oblique se dédouble et il apparaît trois phases obliques au lieu de deux. Nous avons pu vérifier sur les courbes d'aimantation isochamp du même cristal, qu'il n'existe que deux sauts d'aimantation observables lorsque l'échantillon est parfaitement orienté, alors qu'un troisième, très faible apparaît pour une désorientation de quelques degrés.

Pour un champ de 1,7 kOe, il subsiste une seule anomalie qui présente une structure plus complexe (figure 100). Elle correspond à la rotation des moments de 180° qui accompagne l'inversion de la configuration au passage de la température de compensation. Elle montre que cette rotation se fait par sauts successifs entre les différentes directions [111] qui sont favorisées par l'anisotropie, et donnent lieu à autant de phases métastables près du point de compensation. Nous avons donc affaire à une suite de transitions du premier ordre localisées dans un intervalle étroit de températures.

Les maxima de chaleurs spécifiques fournissent une détermination très précise des températures de transition. Celles-ci sont en excellent accord avec le diagramme obtenu par effet magnétocalorique

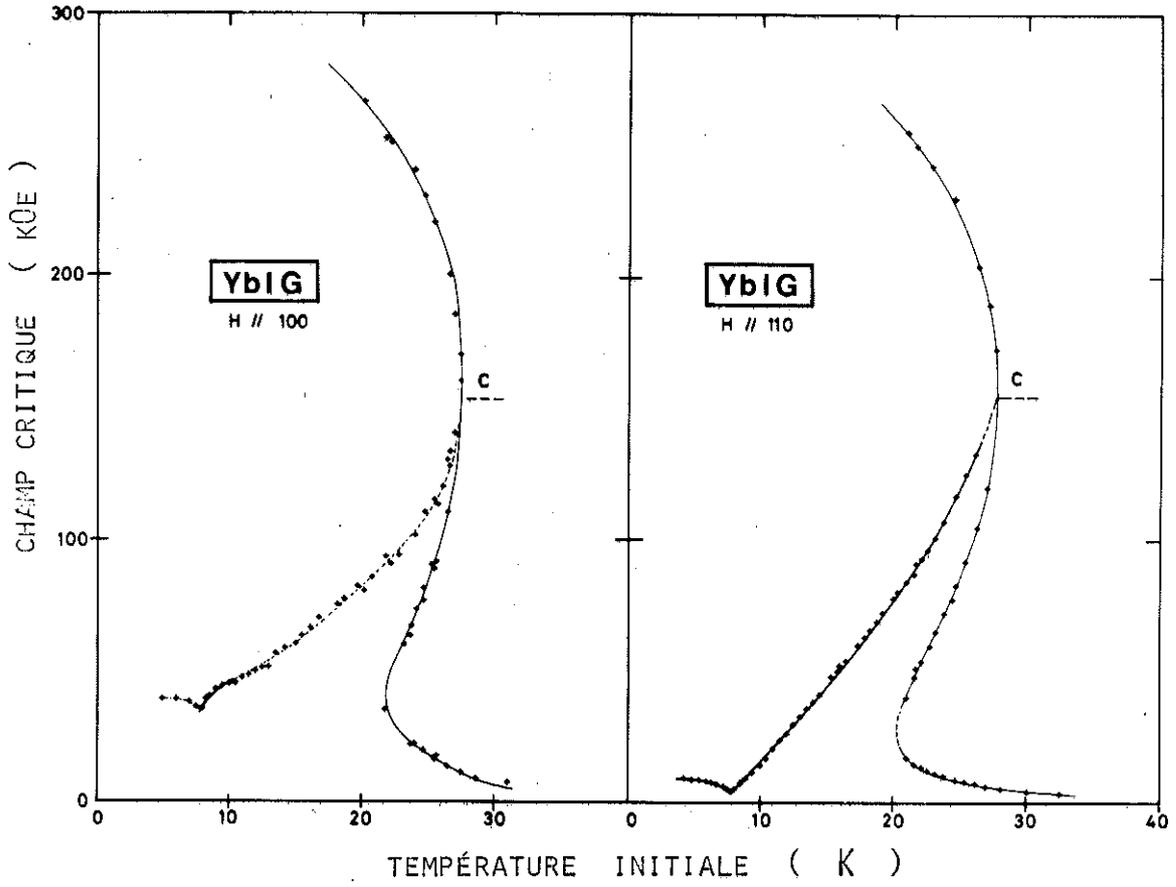


Figure 101 : Diagramme en champ pulsé suivant [001] et [110]

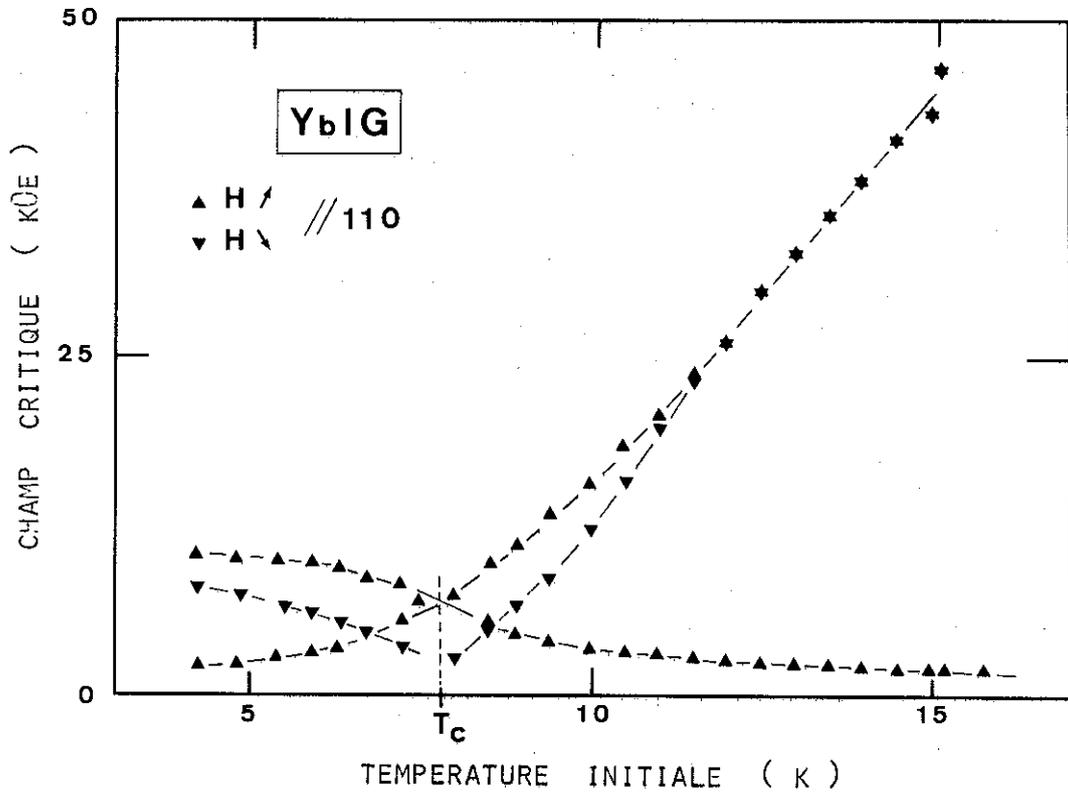


Figure 102 : Diagramme et hystérésis près du point de compensation pour la direction [110]

(figure 98). L'ensemble de ces mesures calorimétriques permet d'évaluer les variations d'entropie ΔS ainsi que les pentes $\frac{dH_c}{dT}$ le long des lignes de transition. L'application de la formule de Clapeyron donne alors des valeurs calculées du saut d'aimantation ΔM qui sont à comparer avec celles qui sont observées. Les différentes valeurs pour la transition ③ sont données dans le tableau suivant:

T A B L E A U 9

H_c (kOe)	T (K)	$\frac{dH_c}{dT}$ (kOe/K)	ΔS (J/K/mole)	ΔM (μ_B /mole $Yb_3Fe_5O_{12}$)	
				calculé	mesuré
31,6	12,8	12	1,45	0,216	0,23
17,25	11,2	7	0,55	0,14	0,15

Un aussi bon accord doit être néanmoins considéré avec prudence à cause des erreurs faites dans l'évaluation de $\frac{dH_c}{dT}$ et de ΔS ; notamment il est probable que pour une orientation correcte, les anomalies ② et ③ soient confondues, augmentant ainsi ΔS .

2-2 - Diagrammes expérimentaux selon les directions [001] et [110]

2-2-1 - Etude en champs pulsés

Les champs de transition observés sont reportés en fonction de la température initiale sur la figure 101.

La transition supérieure est du même type que celle que nous avons observé suivant [111], avec un point anguleux sur la courbe d'aimantation et le décrochement qui lui correspond dans la variation de la susceptibilité différentielle.

A des températures initiales supérieures à 27,6 K, un seul champ critique, vers 10 kOe, sépare deux parties distinctes dans la courbe d'aimantation. Par analogie avec le diagramme de HoIG et ErIG suivant une direction difficile, nous pouvons l'attribuer à la fin de la rotation de l'aimantation de la direction [111] vers celle du champ et à l'établissement de la phase coaxiale.

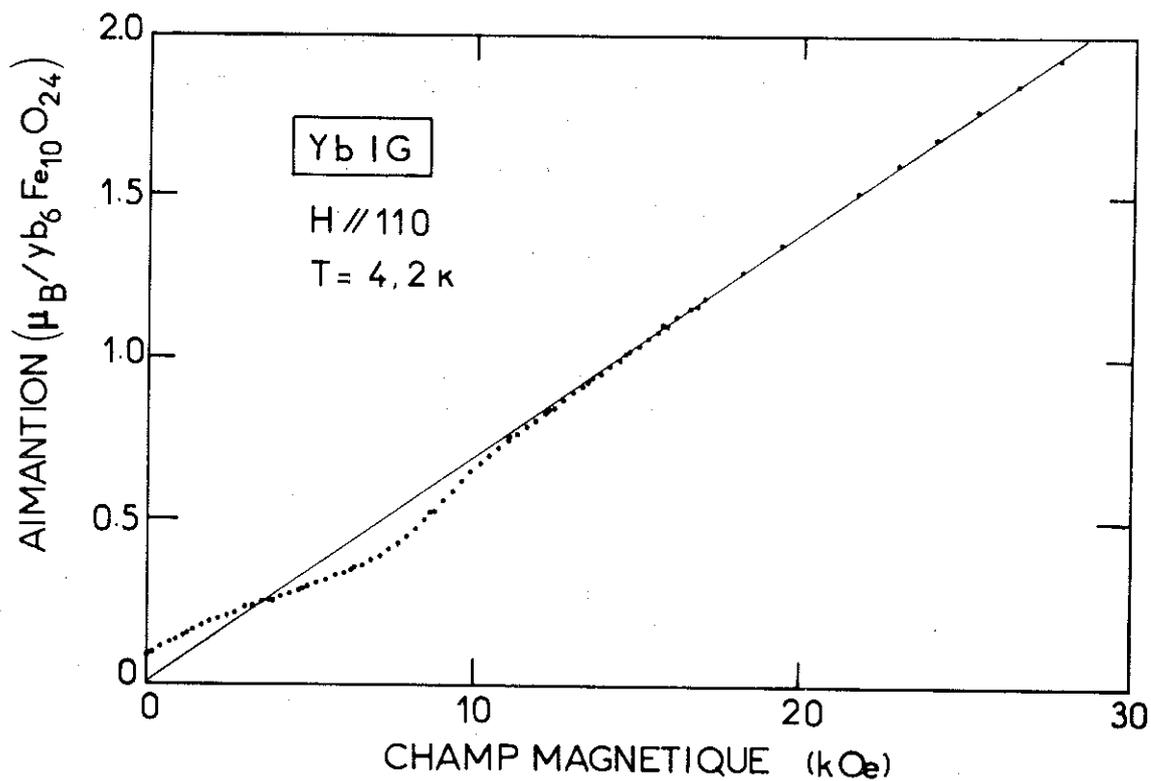


Figure 103 : Courbe d'aimantation à 4,2 K selon [110]

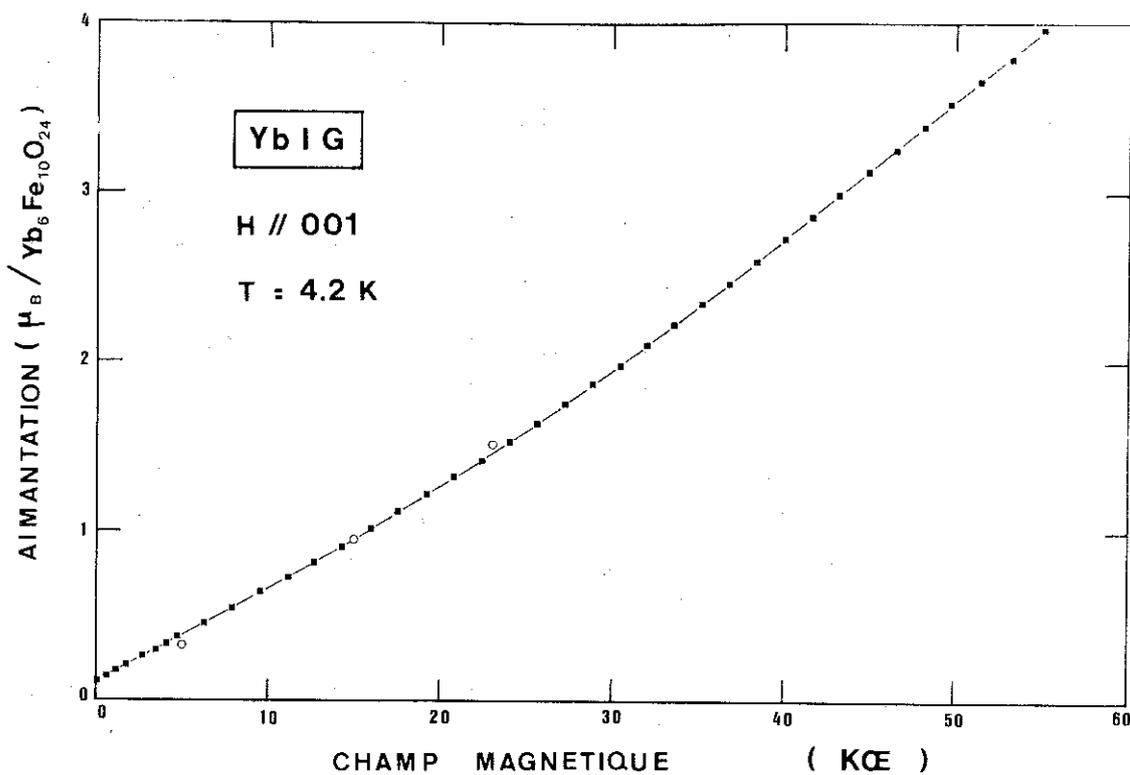


Figure 104 : Courbe d'aimantation à 4,2 K selon [001]

En dessous de 27,6 K, un deuxième champ critique est observé, marquant la fin de cette phase colinéaire. Lorsque la température diminue, ces deux champs critiques se rapprochent ; ils ne se manifestent plus que par des points anguleux dans la courbe de susceptibilité différentielle ; puis ils disparaissent pour une température d'environ 20 K laissant place à une variation continue de la susceptibilité. La limite de la configuration coaxiale a bien la même forme que celle que nous avons déjà observée pour les autres grenats lorsque le champ est appliqué selon une direction "difficile".

Les différences entre les diagrammes suivant les directions [110] et [001] se manifestent surtout à l'intérieur de la région où les configurations sont obliques.

Suivant [110], nous observons très nettement une transition du premier ordre caractérisée par un "pic" de susceptibilité à toutes les températures étudiées. Un hystérésis apparaît près du point de compensation, le détail du diagramme en champs croissants et en champs décroissants étant donné sur la figure 102.

Suivant [001], cette transition du premier ordre n'existe de façon nette qu'entre 8 et 10 K. En dehors de ce domaine étroit de température, la susceptibilité différentielle montre seulement un maximum plus ou moins étalé dont la variation thermique correspond à la ligne en pointillé sur la figure 101. Cette ligne n'est pas une véritable ligne de transition mais seulement un prolongement de la ligne de coexistence observée entre 8 et 10 K.

2-2-2 - Etude en champs magnétiques statiques

Nous avons utilisé le même dispositif expérimental que précédemment (méthode d'extraction dans un aimant supraconducteur) en nous intéressant plus particulièrement aux transitions entre phases obliques.

Les courbes d'aimantation isothermes à la température de l'hélium liquide (figures 103 et 104) montrent l'existence d'une transition pour la direction [110] vers 9 kOe et au contraire l'absence de transition pour la direction [001].

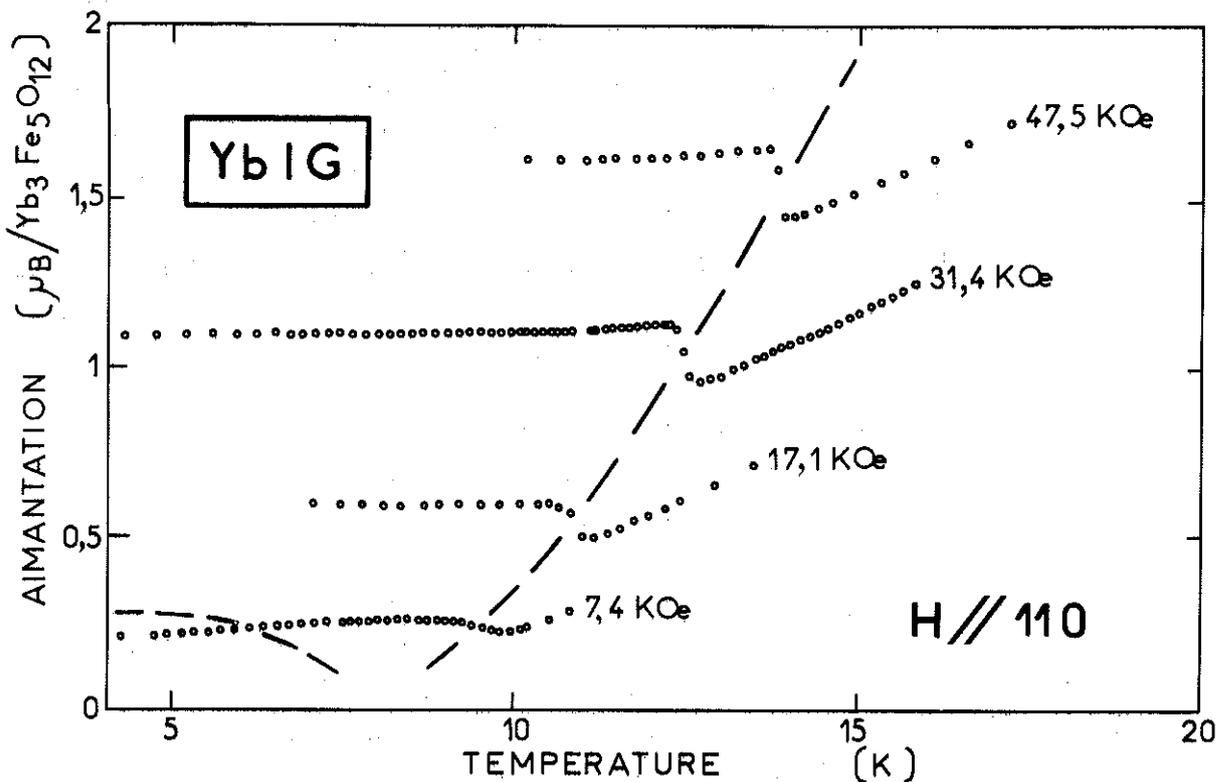


Figure 105 : Variation thermique de l'aimantation de YbIG à champ constant selon [110]

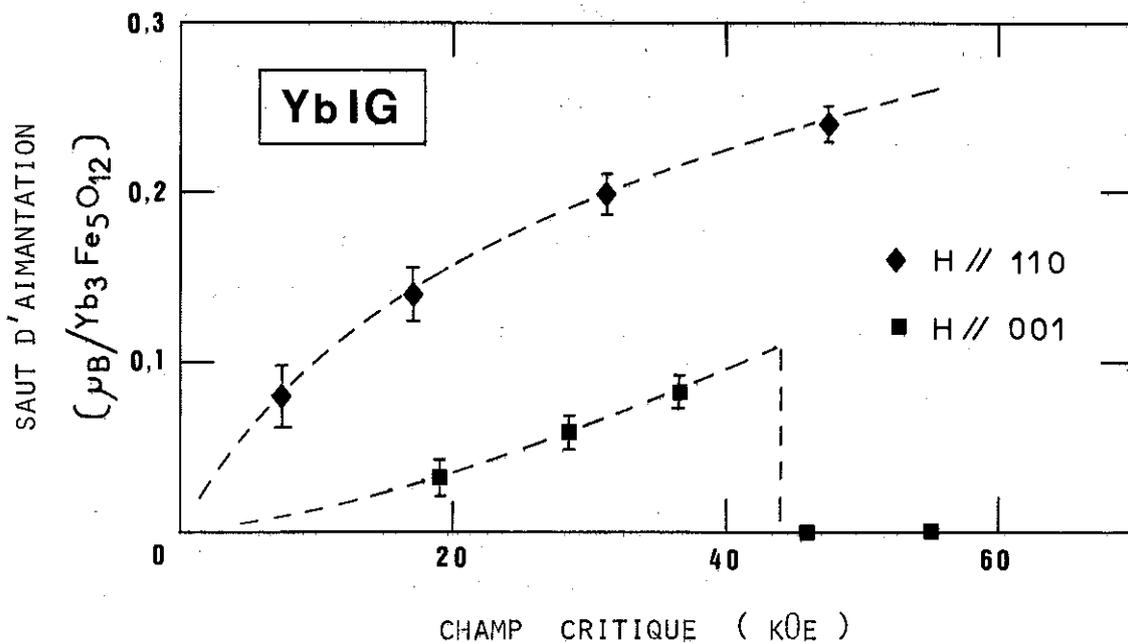


Figure 107 : Variation du saut d'aimantation aux transitions du 1er ordre entre phases obliques selon [001] et [110]

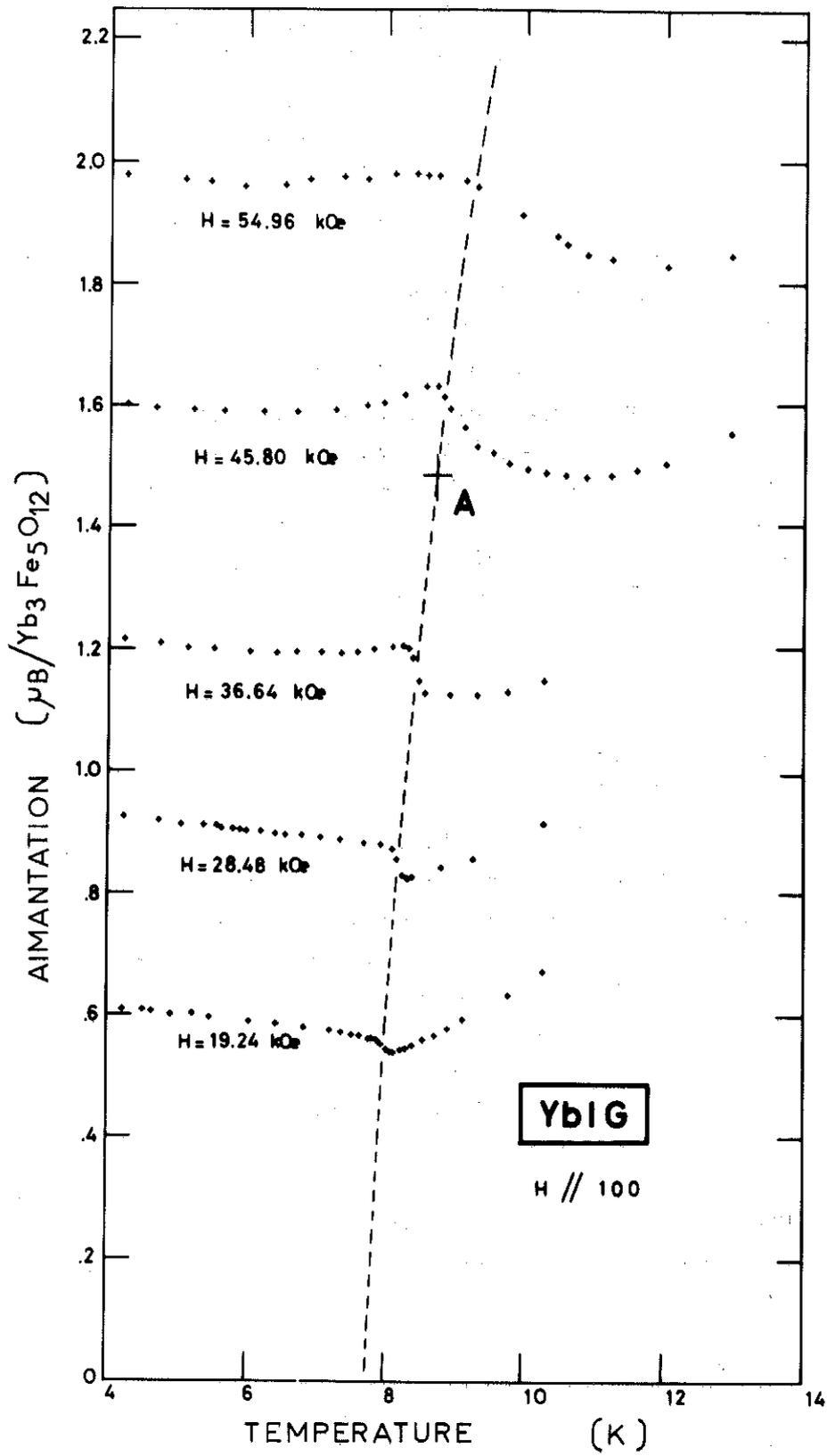


Figure 106 : Variation thermique de l'aimantation de YbIG à champ constant selon [001]

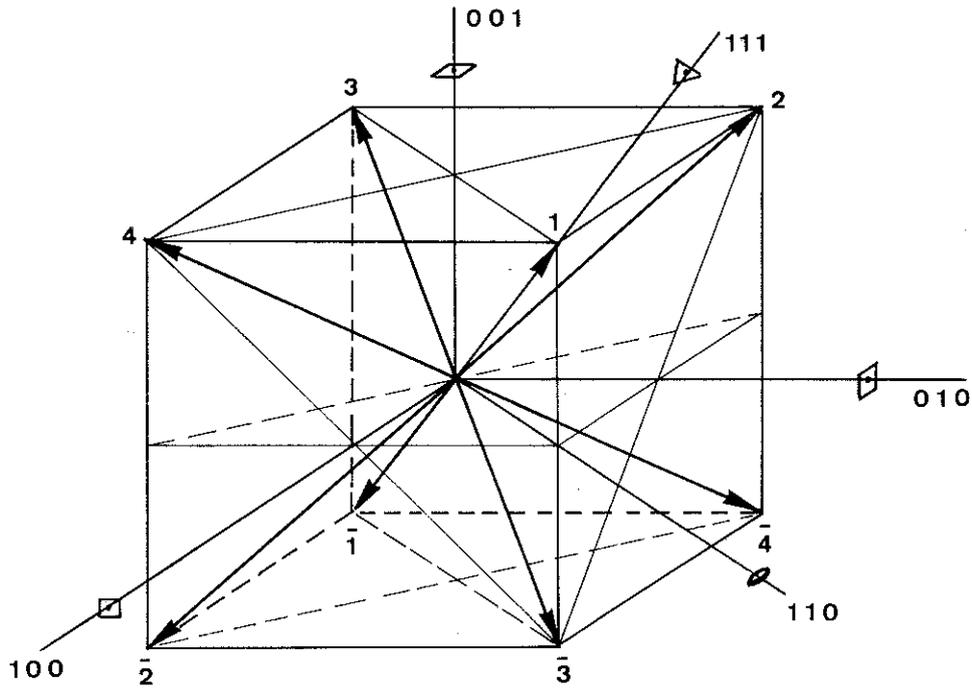
Les courbes tracées à champ constant sont les plus intéressantes car les sauts d'aimantation ΔM correspondant aux changements de phase oblique sont particulièrement bien visibles (figures 105 et 106). Suivant [110], ΔM augmente continuellement avec le champ et l'allure de la courbe laisse prévoir un maximum vers 75 kOe (figure 107). Ceci tend à montrer que la nature de la transition (1er ordre) ne change pas en champs intenses et confirme les mesures en champ pulsé. Par contre, suivant [001], le saut d'aimantation ΔM commence par croître avec l'intensité du champ puis disparaît brusquement : l'isochamp tracée à 45,8 kOe (figure 106) ne présente plus qu'un seul point anguleux qui s'estompe rapidement quand le champ augmente comme le montre la courbe à 54,96 kOe. Nous pouvons donc en conclure que la transition du premier ordre disparaît au profit d'un passage continu entre les deux phases obliques. La ligne de coexistence de ces deux phases distinctes en champ faible se termine donc bien, comme le prévoit le modèle théorique, par un point critique tout à fait analogue à celui du changement de phase liquide-gaz (figure 86).

3 - DISCUSSION

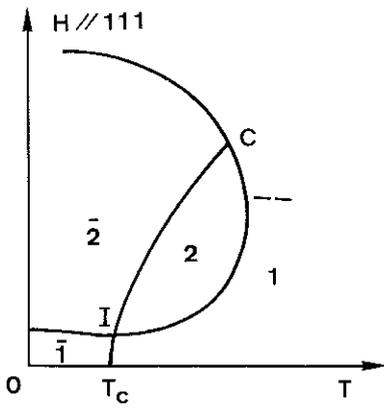
3-1 - Accord qualitatif

Nous avons constaté que l'accord entre les diagrammes expérimentaux et les diagrammes théoriques est qualitativement très bon. En effet, d'une part les lignes de transition observées ont bien l'allure prévue et, d'autre part, le caractère du 1er ordre est bien mis en évidence là où le modèle indique des discontinuités notables pour les diverses grandeurs. Cet accord n'est pas remis en cause si l'on change les valeurs des composantes des tenseurs g et G dans d'assez larges proportions, à condition de maintenir les axes ternaires comme directions de facile aimantation et, dans la mesure où l'existence d'un point de compensation est conservé [119]. Il reste donc à savoir si un accord quantitatif est possible, c'est-à-dire s'il existe un ensemble de composantes qui rendent compte avec précision, des valeurs prises par les différentes grandeurs thermomagnétiques.

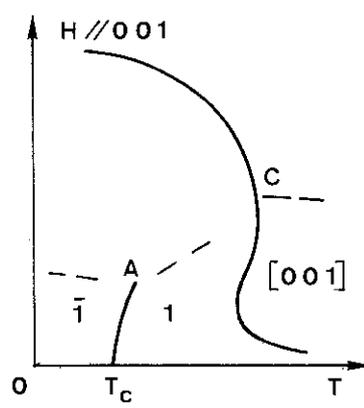
Pour faciliter la confrontation avec le calcul, il est commode de simplifier la description des différentes phases en présence. Le paramètre fondamental étant la direction \vec{u} de l'aimantation des ions fer, l'anisotropie de l'énergie libre F se traduit par l'exis-



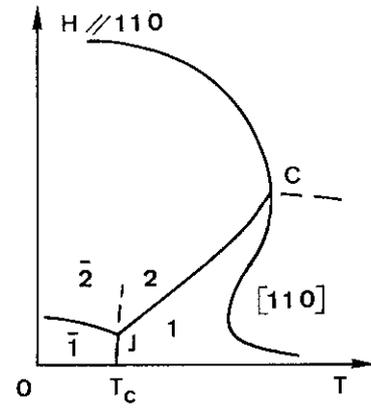
(a)



(b)



(c)



(d)

Figure 108 : Désignation des différentes phases.

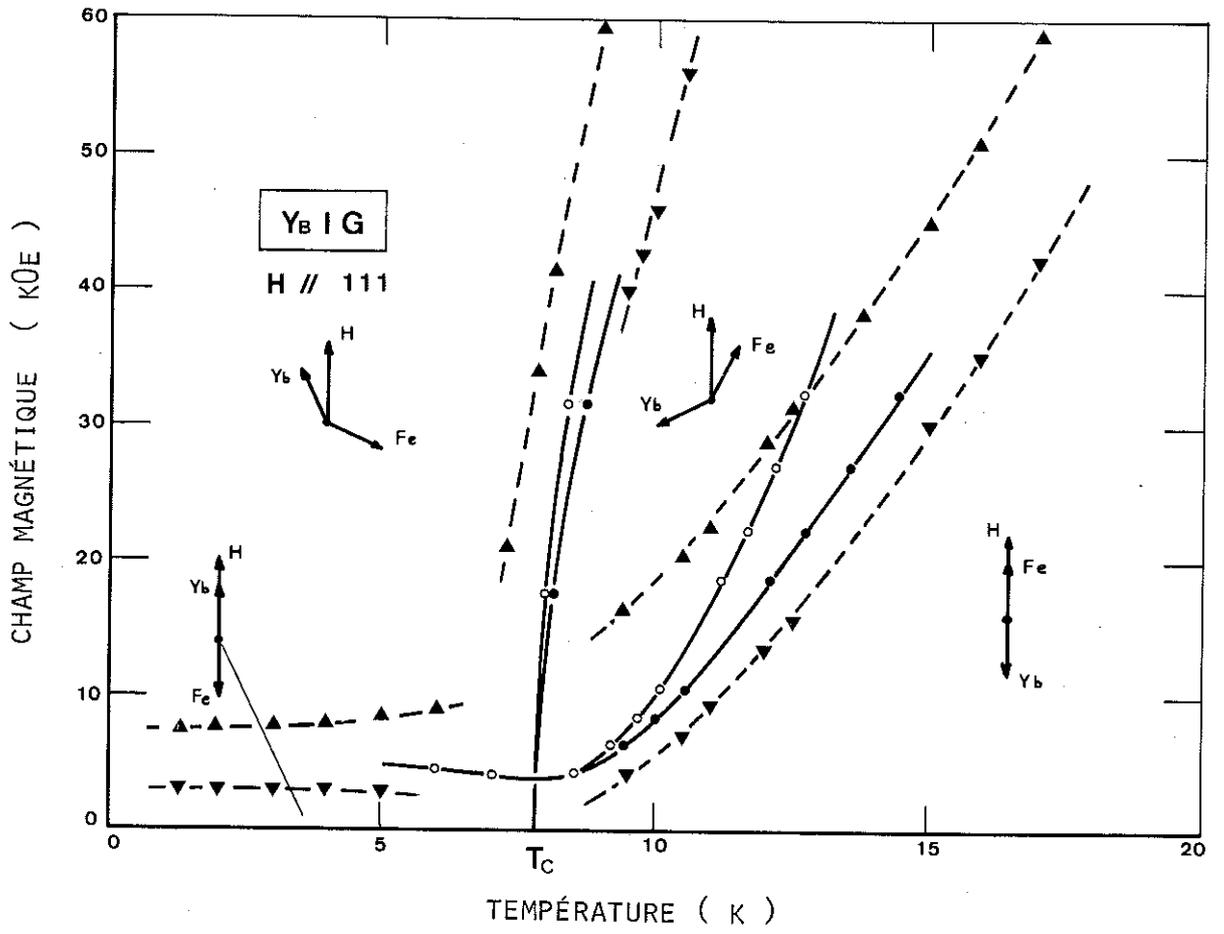


Figure 109 : Comparaison des diagrammes adiabatiques et pulsés.

tence de "puits" de potentiel pour certaines directions de \vec{u} ; chaque phase stable correspond à un minimum local de F ; en champ nul, tous les minima locaux correspondent aux différents axes ternaires du cristal. Lorsqu'on applique un champ extérieur suivant une direction donnée, ces minima évoluent de façon continue et on peut donc désigner chacun d'eux par la direction de l'axe qui lui correspond en champ nul. Cette identification n'est pas toujours possible en champs intenses, car plusieurs minima peuvent venir se confondre, par contre, elle est unique en champs faibles. Nous avons donc affecté les différents axes ternaires d'un numéro qui servira à désigner la phase correspondante (figure 108a). Les domaines d'existence des phases les plus stables sont alors représentés schématiquement sur les figures 108b, c et d.

3-2 - Champ effectif moyen sur les ions terre rare

Nos mesures permettent de déterminer le champ d'échange moyen qui agit sur les ions Yb^{3+} . Ce champ peut se définir de plusieurs manières différentes. Dans une approximation à deux sous-réseaux, où les ions terre rare sont traités globalement comme un seul sous-réseau, ces définitions sont équivalentes ; dans le modèle à six sous-réseaux, elles n'ont de sens que dans les phases coaxiales et de plus, leur signification est différente et ne conduit pas aux mêmes valeurs. Nous les examinerons successivement suivant le type de mesures qui servent à les déterminer.

3-2-1 - Détermination en champs pulsés

L'évaluation d'un premier champ effectif moyen se fait à partir des diagrammes obtenus en champs intenses pulsés, en utilisant la nature adiabatique des mesures.

Les mesures d'effet magnétocalorique nous permettent, en effet, de construire, à partir des isentropes, le diagramme qui doit être observé dans l'hypothèse adiabatique pour une direction du champ magnétique selon $[111]$ (figure 109) ; la position des transitions est définie par le milieu du palier ou le point d'inflexion des isentropes, de façon à pouvoir être comparée d'une part au maximum de la chaleur spécifique et, d'autre part, au maximum de la susceptibilité différentielle observée en champs pulsés. Les champs critiques observés montrent que, malgré l'hystérésis, la pente du diagramme en champs pulsés correspond bien à celle de l'hypothèse adiabatique. Nous pouvons alors

faire le même raisonnement que pour ErIG au chapitre IV (p. 141) : pour $T > T_c$, le champ d'échange moyen est égal à la demi-somme des champs de transition entre phases coaxiales et obliques. Ceci revient à dire qu'au voisinage du point critique C, la limite de la phase coaxiale a une allure parabolique, son diamètre conjugué par rapport à l'axe OH étant horizontal. Cette propriété est vérifiée par les points expérimentaux ; elle permet de définir par construction le sommet C de la courbe. On constate que ses coordonnées sont les mêmes pour les trois diagrammes (figures 87 et 101).

$$H_{cp} = 155 \pm 5 \text{ kOe}$$

$$T_{cp} = 27,6 \pm 0,3 \text{ K}$$

Remarquons que la valeur de la température critique $T_{c_2} \neq T_{cp}$, déduite de la valeur de H_{cp} dans le modèle à deux sous-réseaux, serait de 18 K dans l'hypothèse isotherme. L'effet magnétocalorique atteint donc 10 K pour une température initiale de 28 K.

3-2-2 - Détermination à partir de l'effet magnétocalorique

Les ions fer étant complètement saturés, la variation de l'entropie magnétique provient uniquement de la variation d'aimantation des ions terre rare. Si nous avons affaire à un seul sous-réseau d'ions Yb^{3+} soumis à un champ effectif H_{eff} et si la chaleur spécifique du réseau cristallin est supposée négligeable, le rapport $\frac{H_{\text{eff}}}{T}$ doit rester constant dans un processus adiabatique ; dans une phase colinéaire, $H_{\text{eff}} = H \pm H_{mc}$, en appelant H_{mc} le champ d'échange moyen dû aux ions fer ; par suite :

$$\frac{dT}{dH} = \frac{T}{H \pm H_{mc}} \quad (136)$$

La pente initiale des isentropes $\left(\frac{dT}{dH}\right)_0$ varie linéairement avec la température initiale. Le coefficient de proportionnalité est égal à $\pm \frac{1}{H_{mc}}$; il change de signe au point de compensation avec l'inversion de la structure.

La pente initiale théorique du système magnétique, comme s'il était seul, est obtenue en multipliant la pente observée par le rapport $\frac{C_R + C_H}{C_H}$ de la chaleur spécifique totale au terme magnétique. Ce dernier s'évalue expérimentalement à partir de nos mesures en champ nul en retranchant le terme de réseau C_R qui est évalué d'après les mesures de Harris et Meyer [107] sur le ferrite grenat de lutécium (LuIG). Les résultats sont reportés sur la figure 110. La variation linéaire est vérifiée entre 10 K et 15 K ; on en déduit une valeur expérimentale du champ H_{mc} :

$$H_{mc} = 162 \pm 5 \text{ kOe}$$

A titre de comparaison, nous avons effectué la même transformation pour les mesures de Clark et Callen [84] sur des polycristaux. Leur pente, moins élevée, indique un effet magnétocalorique moins grand suivant les directions du champ appliqué autres que [111].

Le calcul avec le modèle à six sous-réseaux d'ions Yb^{3+} inéquivalents donne également une variation linéaire pour $\left(\frac{dT}{dH}\right)$. Avec le groupe de composantes de g et G que nous avons utilisé pour calculer les diagrammes théoriques, H_{mc} vaut 149,5 kOe. On peut montrer que H_{mc} s'exprime simplement en fonction, d'une part des écartements des niveaux d'énergie observés suivant [111] en champ nul et, d'autre part, de l'aimantation spontanée résultante des ions terre rare M_{111}^0 selon cette même direction (cf annexe E § 5-2) :

$$H_{mc} = \frac{3N}{2} \frac{\Delta_a^0 + \Delta_b^0}{M_{111}^0} \quad (137)$$

Etant donné que M_{111}^0 est légèrement supérieur à $10 \mu_B$, la valeur expérimentale de H_{mc} correspond à une valeur moyenne $\frac{\Delta_a^0 + \Delta_b^0}{2}$ des interactions d'échange supérieure d'environ 7 % à celle qui est prise en compte dans le calcul. Pour améliorer l'accord avec l'expérience, nous verrons au § 3-4 qu'il faut effectivement prendre des valeurs plus grandes pour les composantes du tenseur G comme l'avait déjà suggéré Alben [160].

3-2-3 - Détermination à partir de la désaimantation des ions terre rare

Dans une phase coaxiale, au-dessus de la température de com-

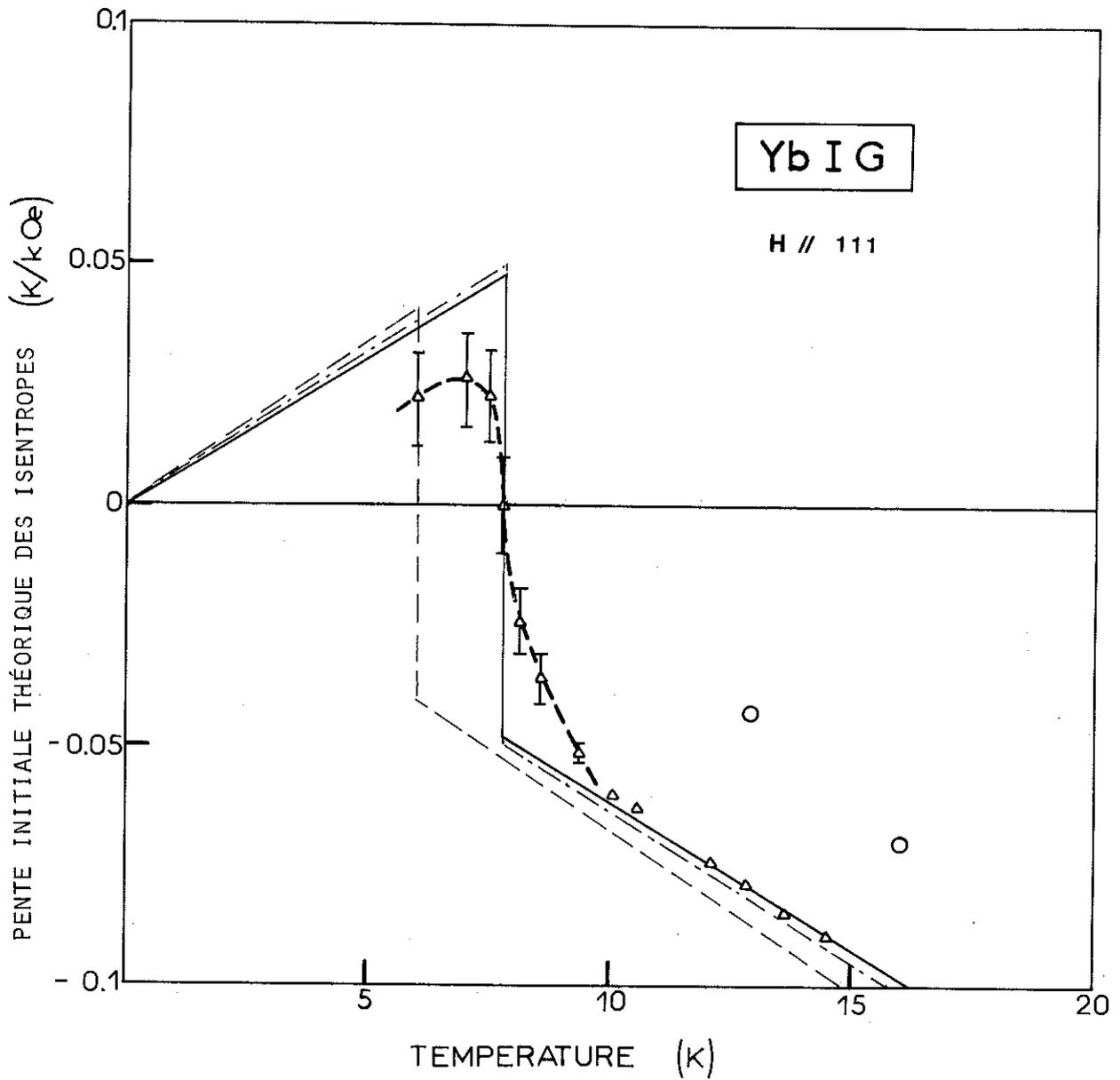


Figure 110 : — — courbe théorique, coefficients de Wickersheim
-.-.- courbe théorique, nos coefficients
— courbe expérimentale
o points de Clark et Callen [84].

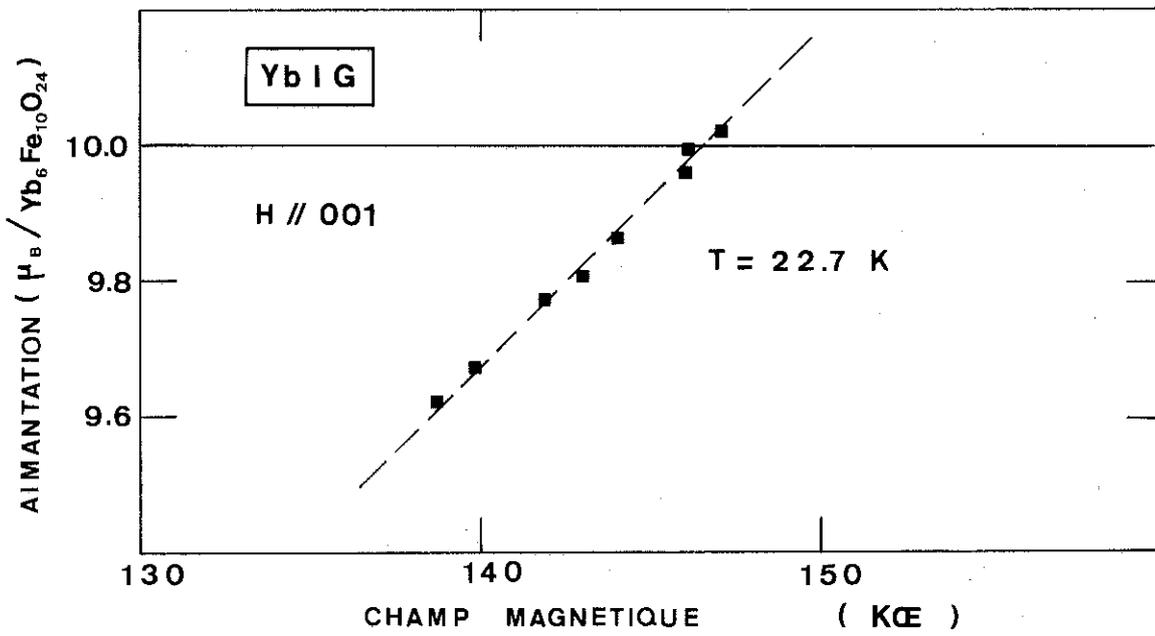
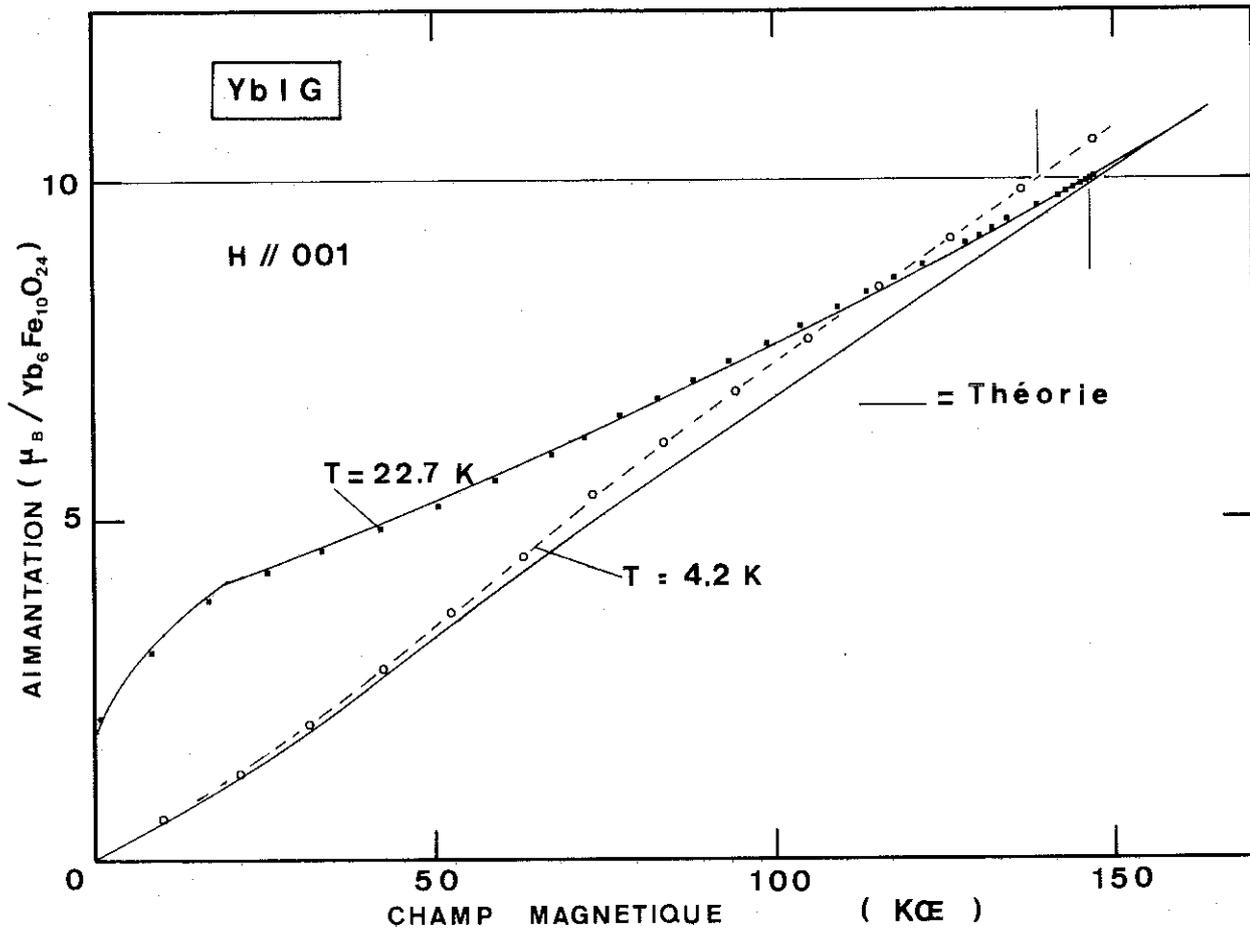


Figure 111

pensation, l'aimantation résultante \vec{M}_{tu} des ions terre rare est dirigée en sens inverse du champ appliqué \vec{H} . Celui-ci agit donc en sens contraire du champ d'échange provenant des ions fer et l'augmentation de l'aimantation du ferrite est due à la diminution de M_{tu} avec le champ. M_{tu} s'annule pour un champ H_{mo} . Dans un modèle à deux sous-réseaux, H_{mo} est égal au champ d'échange nM_{Fe} de sorte que le champ effectif total soit nul. Le point représentatif dans le diagramme (H, T) est situé sur une ligne à aimantation nulle que nous avons étudiée dans les chapitres précédents. Cette propriété a déjà été utilisée par plusieurs auteurs [91, 162] pour déterminer nM_{Fe} à diverses températures et il est intéressant d'en vérifier la validité.

Dans le modèle à six sous-réseaux d'ions Yb^{3+} , il faut remarquer que c'est seulement la résultante M_{tu} qui s'annule par compensation des aimantations \vec{M}_q sur les six sites inéquivalents. Par exemple, selon [111], les \vec{M}_q forment deux "parapluies" renversés dont les résultantes s'opposent exactement. Chacun des sous-réseaux reste ordonné et il n'y aura pas de fluctuations critiques comme le laisserait penser le modèle simple.

Nous montrons dans l'annexe E (§ 5-1), que le champ H_{mo} est relié directement aux valeurs des composantes des tenseurs g et G par une expression différente de celle de H_{mc} :

$$H_{mo} = \frac{g_x G_x + g_y G_y + g_z G_z}{\mu_B (g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)} \quad (138)$$

De plus, il ne dépend pas de la direction d'application du champ. Nous avons entrepris une mesure très précise de H_{mo} en utilisant l'installation de champs continus du Service National des Champs Intenses. La courbe d'aimantation, tracée à 22,7 K (figure 111) de façon à se trouver dans une phase coaxiale, donne la valeur :

$$H_{mo} = 146,5 \pm 0,5 \text{ kOe}$$

Il est à remarquer qu'à 4,2 K dans une phase oblique, le champ correspondant à H_{mo} , c'est-à-dire pour lequel l'aimantation totale est égale à $10 \mu_B$, est notablement plus faible ($139 \pm 0,5$ K), cette dernière valeur étant identique à celle de Clark et Callen [83].

3-3 - Aimantation spontanée et température de compensation

Lorsqu'on compare la courbe d'aimantation à 4,2 K suivant [111] avec le modèle théorique, on constate un désaccord très net : la susceptibilité initiale calculée est d'un ordre de grandeur plus petite que celle qui est observée (figure 112) ; les sauts d'aimantation à la transition sont également très différents. Ce désaccord existe quelles que soient les valeurs utilisées pour les composantes de g et G . Par contre, quand le champ est appliqué suivant l'axe quaternaire [001], l'accord est satisfaisant. L'explication doit être cherchée dans un processus d'aimantation particulier à la direction [111], provenant de la coexistence de plusieurs phases métastables en champ faible.

En effet, un échantillon refroidi en champ nul à 4,2 K doit comporter huit types de domaines correspondants aux huit orientations d'axe ternaire possibles pour l'aimantation spontanée. Quand un champ est appliqué suivant l'axe quaternaire [001], il y a d'abord disparition des domaines dont l'orientation est contraire au champ (ils correspondent aux phases {1}, {2}, {3} et {4} de la figure 108 puisque $T < T_c$) ; ensuite, les quatre domaines restants sont équivalents par symétrie ; ils continuent de coexister pour toute valeur du champ. Cependant, leur équivalence permet de ne considérer qu'un seul type de domaine, et le comportement sera identique à celui calculé comme si l'échantillon était monodomaine. L'observation d'une aimantation rémanente montre simplement que le champ démagnétisant n'est pas suffisamment grand pour imposer l'apparition des domaines en sens inverse. L'extrapolation en champ nul de la courbe d'aimantation définit une valeur M_0 (001) qui est reliée à l'aimantation spontanée M_s par :

$$M_0 (001) = \frac{M_s}{\sqrt{3}} \quad (139)$$

Quand le champ est appliqué suivant l'axe ternaire [111], après disparition des domaines d'orientation contraire, il subsiste deux phases différentes : la première ($\{\bar{1}\}$) dont l'aimantation spontanée est dirigée suivant [111] et la seconde constituée par trois types de domaines correspondants aux trois phases équivalentes par symétrie : {3}, $\{\bar{2}\}$ et $\{\bar{4}\}$ (figure 108). En-dessous de 4 kOe environ, c'est la phase $\{\bar{1}\}$ qui est la plus stable et qui doit croître en volume aux dépens des autres ; au-delà du champ de transition calculé, elle

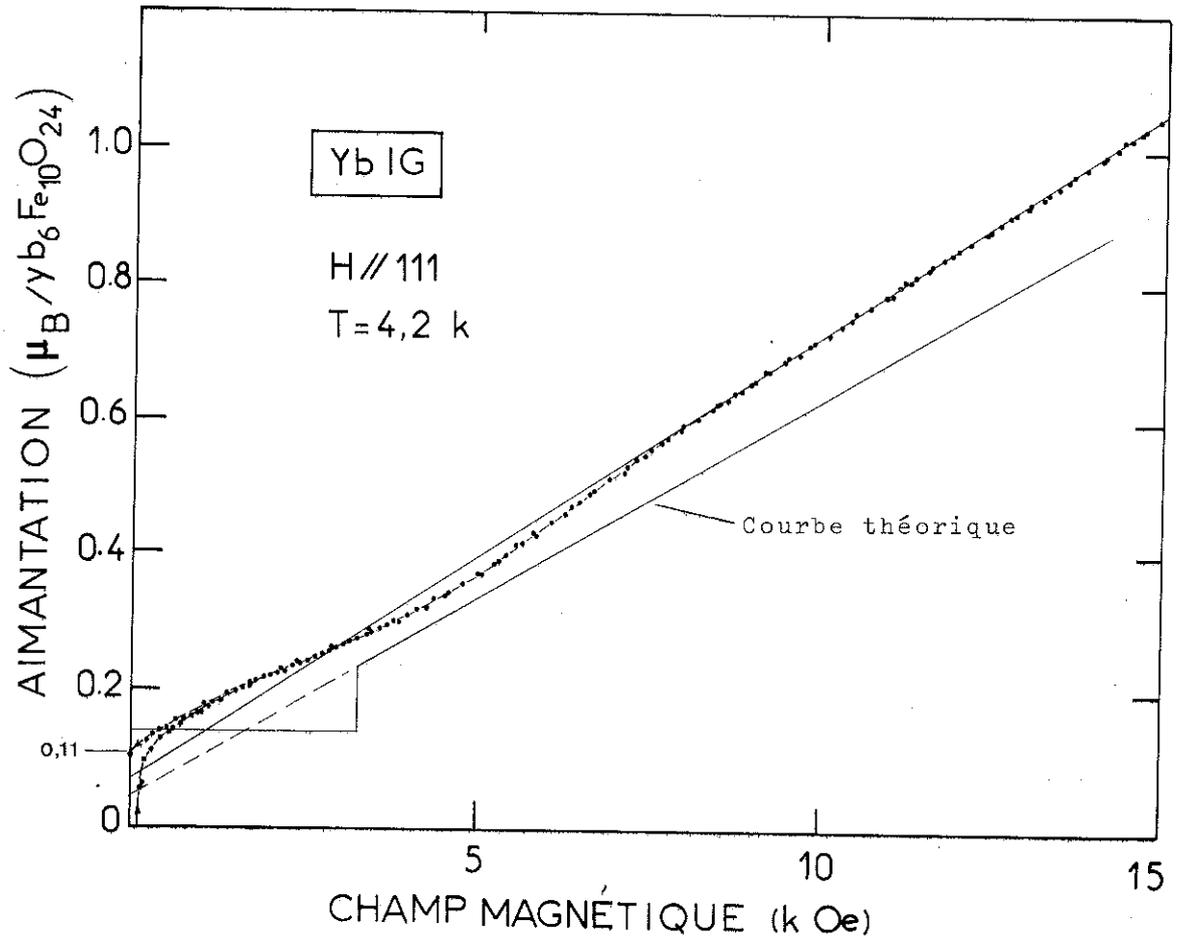


Figure 112 :

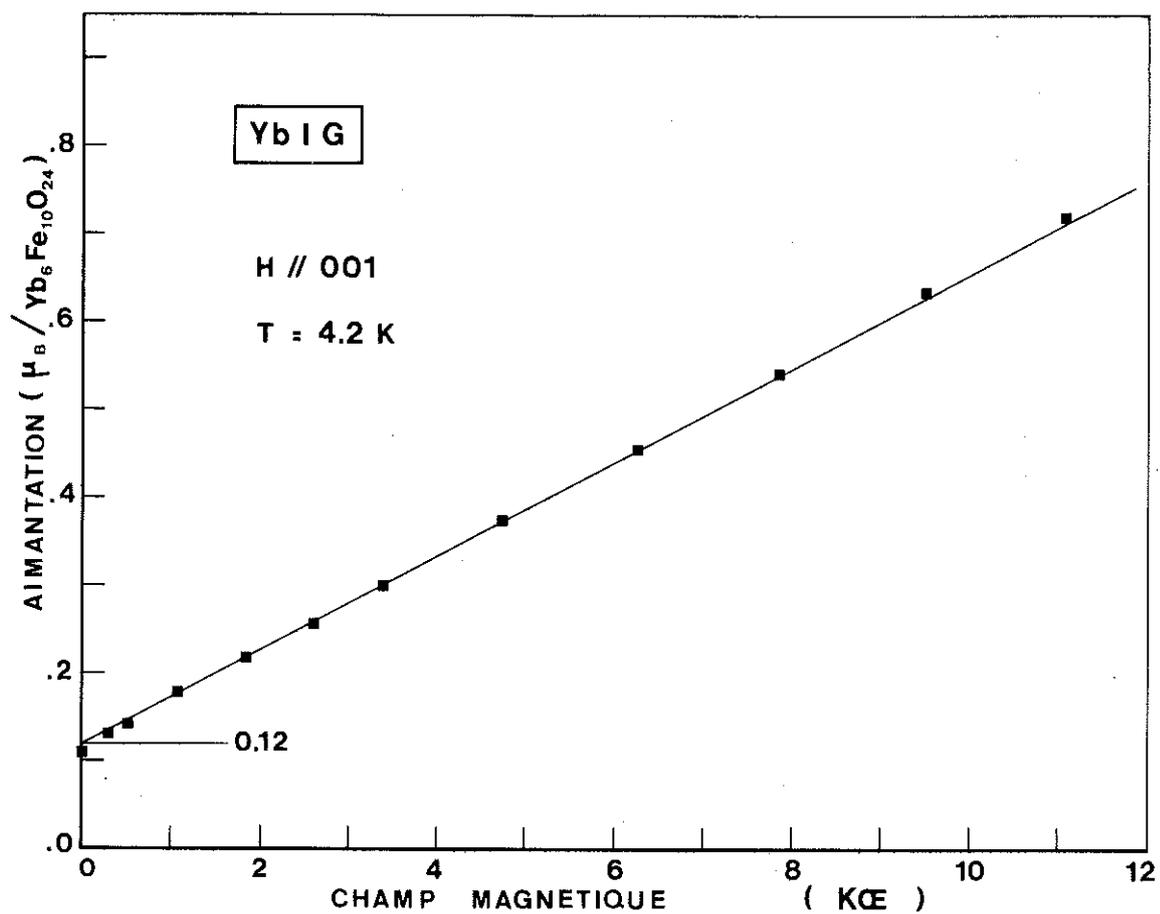


Figure 113 :

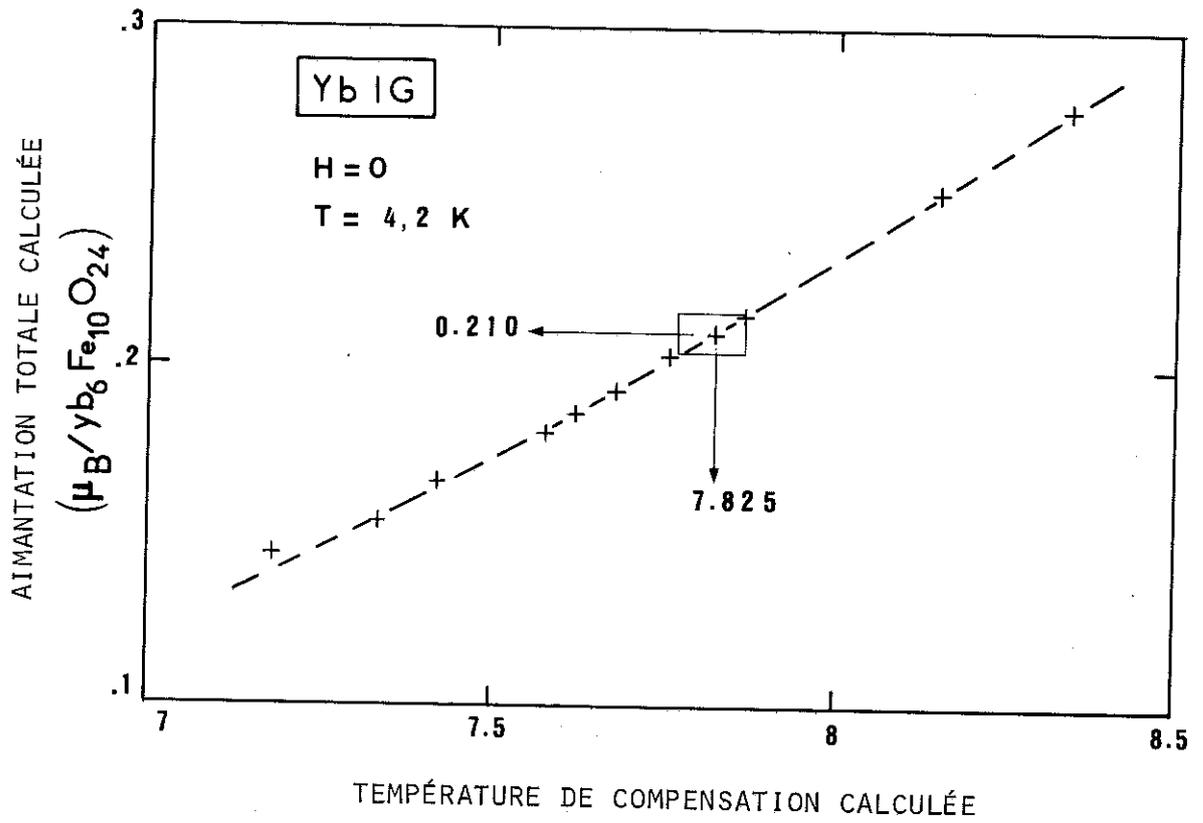


Figure 114

doit au contraire disparaître, les phases équivalentes {3}, {2̄} et {4̄} étant alors favorisées. L'aimantation M_o (111) extrapolée à $H = 0$ ne correspond pas à l'aimantation M_s puisque les valeurs expérimentales sont (figures 112 et 113) :

$$M_o(111) = 0,11 \mu_B / Yb_6 Fe_{10} O_{24}$$

$$M_o(001) = 0,12 \mu_B / Yb_6 Fe_{10} O_{24}$$

et la relation (139) n'est pas vérifiée. La vraie valeur de l'aimantation spontanée est nécessairement :

$$M_s = \sqrt{3} M_o(001) = 0,21 \mu_B / \text{mole } Yb_6 Fe_{10} O_{24}$$

Une valeur de $M_o(111)$ voisine de $\frac{M_s}{2}$ indique une équipartition approximative de l'échantillon entre les quatre phases dirigées suivant le champ ({1̄}, {3}, {2̄} et {4̄}). La forte susceptibilité initiale observée est donc due essentiellement à la présence des autres phases que {1̄} ; elle correspond bien aux 3/4 environ de celle de la phase oblique.

La nouvelle valeur de M_s permet d'expliquer une autre divergence entre le calcul et l'expérience au sujet de la position de la température de compensation T_c . On peut montrer, en effet, que ces deux quantités sont très liées. Nous avons calculé M_s et T_c pour plusieurs groupes de composantes de g et G choisis de telle sorte que :

1) - les champs H_{mc} et H_{mo} calculés soient respectivement compris dans les intervalles 155 - 160 kOe et 145 - 150 kOe ;

2) - les niveaux Δ_a^o et Δ_b^o restent égaux à 23,2 cm^{-1} et 26,4 cm^{-1} qui sont les valeurs expérimentales de Buchanan et Clark [87] observées à une température de 7,6 K. Les points calculés (M_s , T_c) se disposent approximativement sur une courbe régulière (figure 114). Nous constatons ainsi que nos valeurs expérimentales de M_s , T_c , H_{mc} , H_{mo} sont très cohérentes avec le modèle utilisé.

3-4 - Détermination des tenseurs g et G

Nous avons adopté au début de l'étude, un ensemble de composantes qui proviennent des mesures de Wickersheim [94, 123], c'est-à-dire d'une part des mesures de résonance paramagnétique des ions Yb^{3+} dilués dans du grenat de gallium et d'yttrium (YGaG) et, d'autre part,

T A B L E A U 10

(1)	LuAlG (LA)	YAlG (YA)	LuGaG (LG)	YGaG (YG)	LuIG (LF)	YIG (YF)	YbIG (YbF)	Références
g_x	3.842	3.87	3.653	3.73				[157]
g_y	3.738	3.78	3.559	3.60				
g_z	2.594	2.47	2.994	2.85				
Trg	10.174	10.12	10.206	10.18				
a_o	11.906	12.000	12.188	12.280	12.290	12.376	12.302	[163] (2)
d_4	1.760	1.761	1.852	1.849	1.868	1.866	1.861	
d_6	1.939	1.937	1.987	1.995	2.019	2.019	2.007	
d_8	2.383	2.432	2.393	2.428	2.385	2.434	2.417	
d_{80}	2.276	2.303	2.303	2.338	2.326	2.356	2.335	

(1) abrégations figure 115 - (2) notations référence [163]

a_o = paramètre de la maille cubique

distances cations-anions : $d_4 = M^{3+}(d) - O^{2-}$,

$d_6 = M^{3+}(a) - O^{2-}$; $d_8 = (Yb^{3+} - O^{2-})_1$

$d_{80} = (Yb^{3+} - O^{2-})_2$; $M^{3+} = Al^{3+}, Ga^{3+}, Fe^{3+}$

des mesures spectroscopiques directes sur YbIG à 78 K. Avec ces valeurs, les écarts les plus importants entre les valeurs calculées et l'expérience concernent la position de la température de compensation (5,92 K au lieu de 7,82 K), l'aimantation spontanée à 4,2 K : ($0,069 \mu_B$ au lieu de $0,21 \mu_B$) et l'interaction d'échange moyenne. Nous avons donc cherché à savoir si l'accord quantitatif pouvait être amélioré ou si, au contraire, le modèle était incapable de rendre compte avec précision de l'expérience. Etant donné la nature très différente des données expérimentales disponibles, il est difficile de mettre en oeuvre une méthode d'affinement. D'autant plus que les calculs d'un seul minimum de l'énergie libre et des grandeurs qui s'y rapportent demandent environ 10 secondes à l'unité centrale d'un ordinateur I.B.M. 360-65, compte tenu du fait que nous employons une procédure simplifiée. Comme de toute façon il fallait déterminer quel poids il fallait affecter à chaque type de résultats d'expérience, nous avons cherché quelles étaient les plus fiables de manière à pouvoir s'en servir comme pivots et considérer les autres comme des tests de vérification. Nous avons ainsi retenu :

a) La valeur de l'aimantation spontanée que nous avons mesurée, les déterminations antérieures étant erronées; elle fournit en fait le moment résultant des ions Yb^{3+} avec une grande précision puisque l'on mesure seulement une différence petite devant la grandeur à mesurer.

b) Les écarts entre niveaux d'énergies déterminés par absorption infra-rouge en champ nul à 7,6 K par Buchanan et Clark [87]. D'une part, ils confirment les résultats antérieurs de Sievers et Tinkham [95]. D'autre part, une faible variation avec la température n'étant pas écartée [95], ils ont l'avantage d'être mesurés aux températures qui nous intéressent.

c) La valeur de H_{mo} que nous avons déterminée.

Ceci nous donne, en principe, quatre relations entre les composantes. Une cinquième est trouvée en remarquant que la trace $\text{Tr}g$ du tenseur g est remarquablement constante pour tous les groupes de valeurs expérimentales de g_x g_y g_z (tableau 10). Ceci est conforme aux calculs de champ cristallin [93, 155], dans lesquels la trace est rigoureusement constante ($\frac{72}{7}$) aux ordres d'approximations utilisés. En fixant cette valeur, il ne reste plus qu'un paramètre disponible qui pourra être soit g_z , soit G_z , par exemple.

T A B L E A U 11

Composantes expérimentales du tenseur G (en cm^{-1})

G_x	G_y	G_z	Δ_a^o	Δ_b^o	Références
29,9	25,7	11,6	25,3	22,0	[123] Wickersheim
30,6	26,1	11,8	25,9	22,4	[94] Wickersheim et White
31,8	27,4	11,0	26,7	23,1	[95] Sievers et Tinkham
			26,4	23,2	[87] Buchanan et Clark

T A B L E A U 12

		Calculé	Mesuré
$\epsilon_x = 3,75$	$G_x = 31,15 \text{ cm}^{-1}$	$M_{111}^o = 10,22 \frac{\mu_B}{\text{mole}}$	$10,22 \frac{\mu_B}{\text{mole}}$
$\epsilon_y = 3,65$	$G_y = 27,06 \text{ cm}^{-1}$	$H_{mo} = 146,4 \text{ kOe}$	$146,5 \text{ kOe}$
$\epsilon_z = 3,10$	$G_z = 12,25 \text{ cm}^{-1}$	$H_{mc} = 155,35 \text{ kOe}$	162 kOe
$\text{Tr}g = 10,5$	$\Delta_a^o = 26,4 \text{ cm}^{-1}$	$H_{cp} = 156 \text{ kOe}$	155 kOe
	$\Delta_b^o = 23,2 \text{ cm}^{-1}$	$T_c = 7,82 \text{ K}$	
	$\mu_a^o = 1,854 \mu_B$ $\mu_b^o = 1,801 \mu_B$	$([111], \vec{\mu}_a^o) = 22,3^\circ$ $([111], \vec{\mu}_b^o) = 20,1^\circ$	

Un premier groupe d'essais effectués avec des valeurs de Trg comprises entre 10,18 et 10,23 montrent qu'un accord n'est pas possible :

. Si l'on veut garder la même disposition relative des composantes principales de g , on est conduit à des valeurs de G_z comprises entre 15 et 21 cm^{-1} . Ceci n'est pas possible car, selon Sievers et Tinkham [95], une telle valeur aurait été nécessairement détectée dans leur expérience. Ces auteurs, n'ayant rien observé en-dessous de 12 cm^{-1} , ont pu affirmer que, à 48 K, G_z est inférieur à cette valeur. D'autre part, la variation avec la température ne peut excéder 1 à 2 cm^{-1} .

. Si l'on conserve une disposition relative des composantes G_x , G_y , G_z voisine de celles de Wickersheim ou Sievers et Tinkham (cf tableau 11) avec $G_z < 13 \text{ cm}^{-1}$, on s'aperçoit qu'il n'existe de solution que pour des valeurs plus grandes que Trg .

Une expérience toute récente est venue confirmer que cette deuxième alternative doit être suivie : en effet, Filippi [164] a mesuré l'aimantation à saturation du gallate d'ytterbium à structure grenat (YbGaG) ; ses valeurs, sur deux montages différents sont 10,464 et 10,512 $\mu_B/\text{Yb}_6\text{Ga}_{10}\text{O}_{24}$. En admettant la propriété de conservation de la trace du tenseur g pour les différentes matrices à structure grenat, nous sommes conduits à prendre la valeur $\text{Trg} = 10,5$ dans notre cas. Il nous reste alors à choisir parmi plusieurs groupes de valeurs pour les composantes de g .

Notre choix est fondé sur la remarque suivante : Hutchings et Wolf [93] ont montré dans une étude remarquable de champ cristallin sur les ions Yb^{3+} , que les variations des composantes principales de g étaient étroitement liées à celles des positions des ions oxygène dans les quatre matrices étudiées (LuAlG , LuGaG , YAlG , YGaG). Leur calcul est capable de prédire des valeurs g_x , g_y , g_z , dont la disposition relative est exactement celle qui est mesurée par résonance paramagnétique. Il y a donc une corrélation entre la disposition de l'environnement en ions oxygène du site terre rare (24 c) et la disposition relative des composantes de g . La déformation de cet environnement ne peut se ramener à la variation d'un seul paramètre. Cependant, si nous reportons les différentes distances $\text{Yb}^{3+} - \text{O}^{2-}$ et $\text{M}^{3+} - \text{O}^{2-}$ en fonction du paramètre de la maille a_0 des composés (figure 115), nous constatons une disposition semblable des graphes. En effectuant une opération identique pour les valeurs g_x , g_y , g_z déterminées par les mêmes auteurs (figure 116), nous

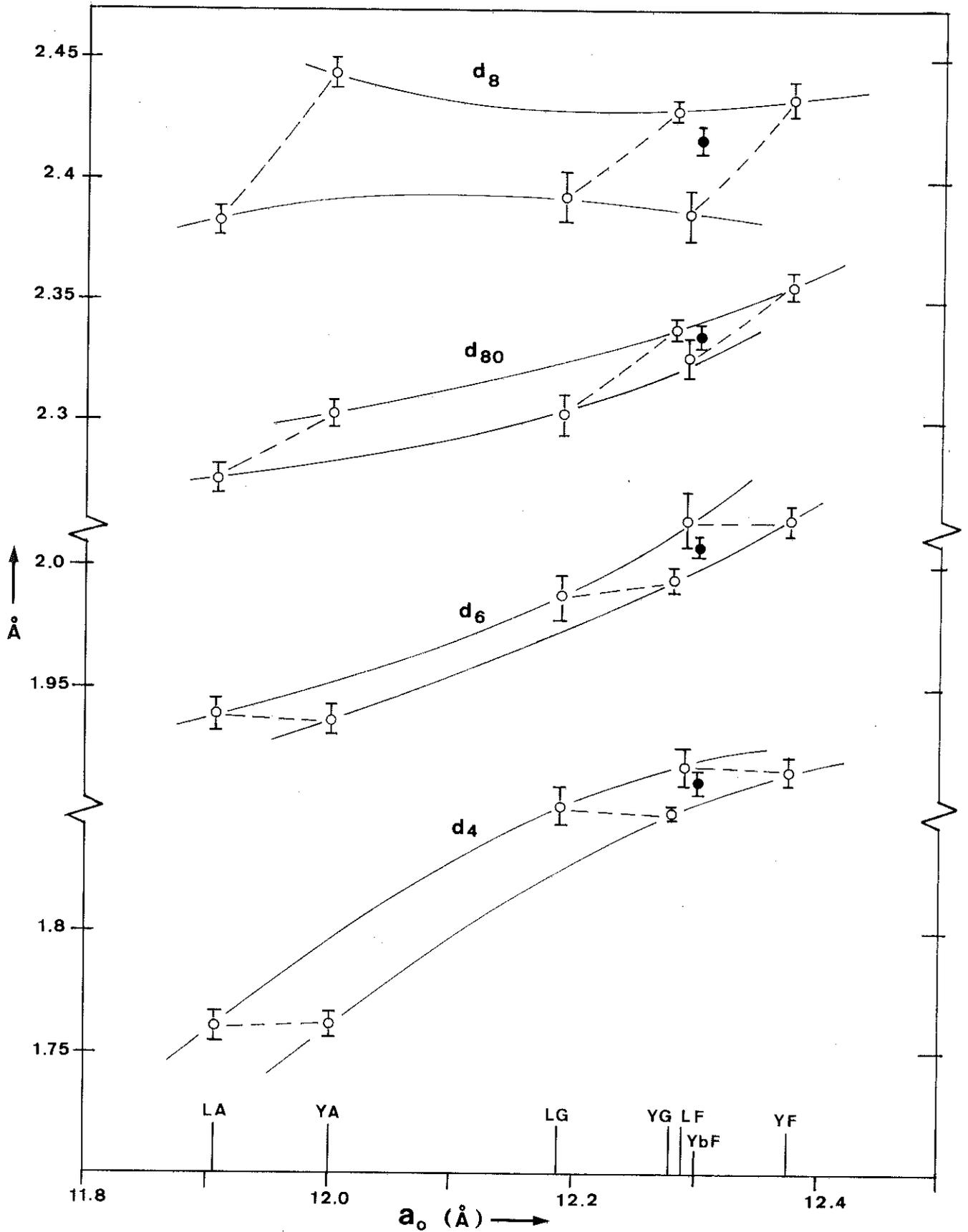


Figure 115 : Variations de distances anions-cations avec le paramètre de la maille.

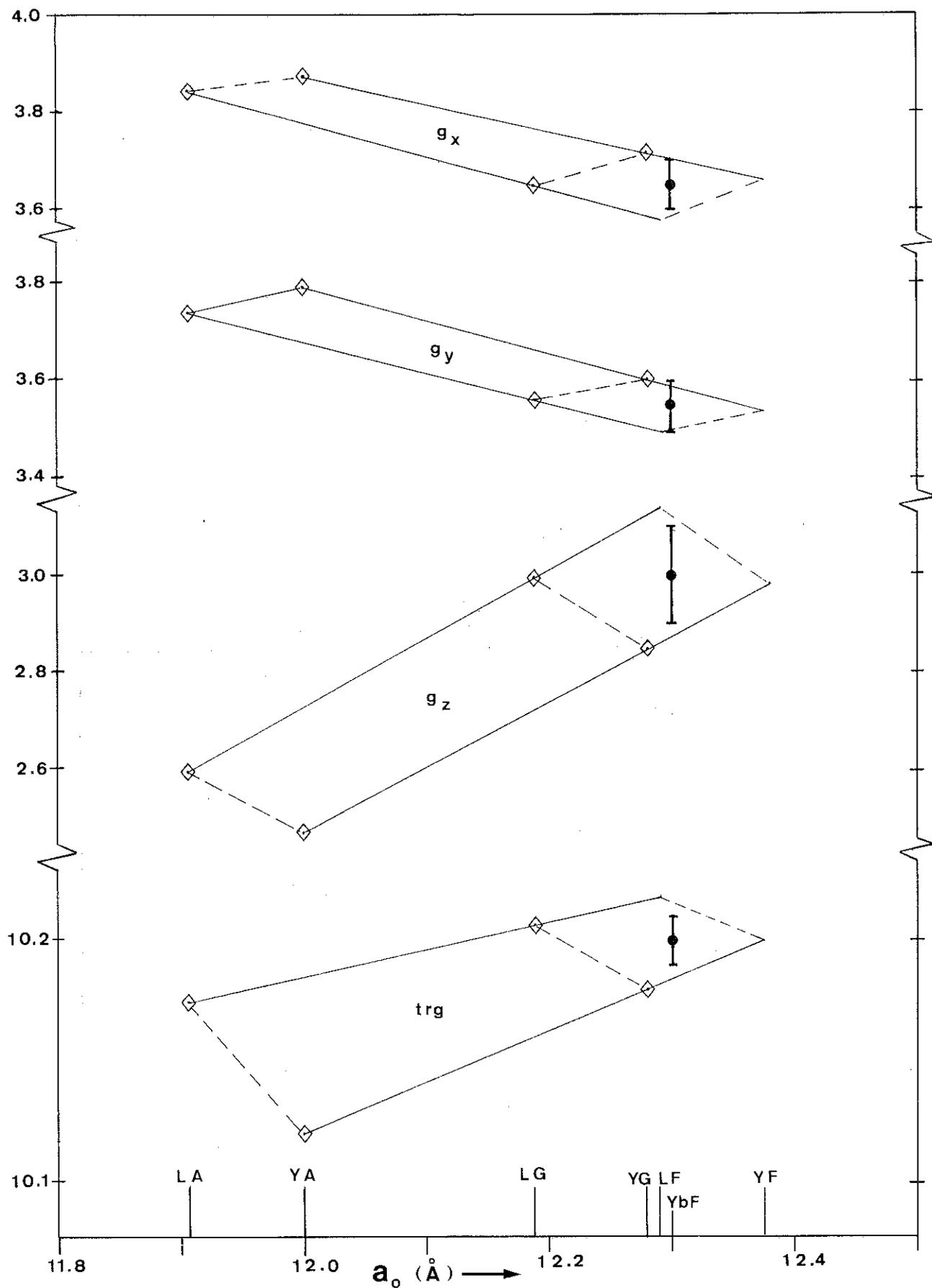


Figure 116 : Variations des composantes du tenseur g avec les paramètres de la maille.

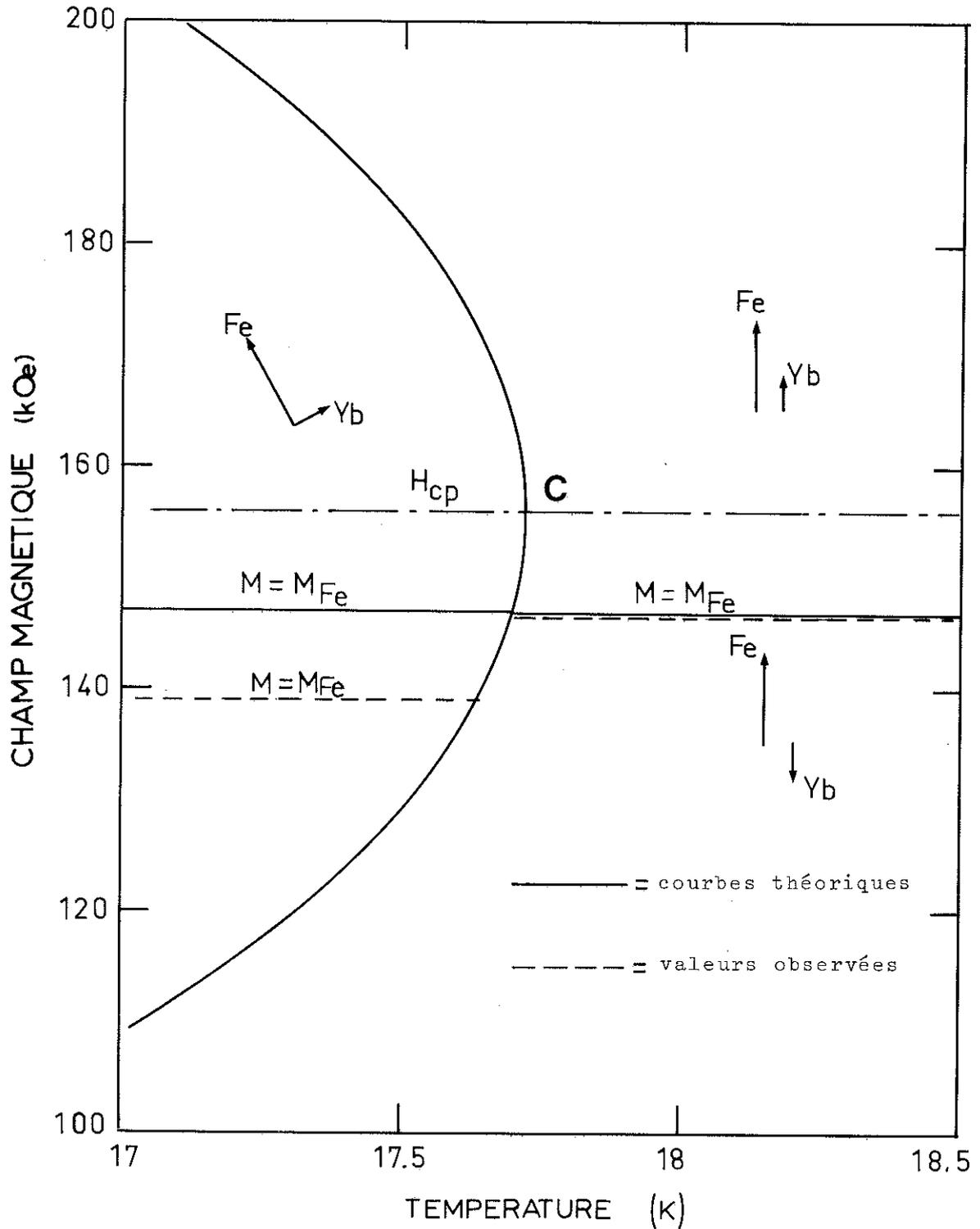


Figure 117 : Diagramme de phase au voisinage du point C calculé avec $g_x = 3,75$, $g_y = 3,65$, $g_z = 3,10$

$$G_x = 31,15 \text{ cm}^{-1}, G_y = 27,06 \text{ cm}^{-1}, G_z = 12,25 \text{ cm}^{-1}$$

remarquons que les graphes obtenus sont encore semblables. Ceci nous permet d'affirmer que la disposition relative de g_x , g_y et g_z dans YbIG doit être beaucoup plus proche de celle de LuGaG que de celle de YGaG qui est généralement adoptée en raison de la valeur plus voisine de a_0 . Les valeurs que nous pouvons extrapoler de cette façon, à partir des données de résonance sont :

$$g_x = 3,65 \pm 0,05, \quad g_y = 3,55 \pm 0,05, \quad g_z = 3,00 \pm 0,10, \quad \text{Trg} = 10,20 \pm 0,01$$

En effectuant une homothétie pour garder la même disposition et se ramener à la trace mesurée sur YbGaG, nous obtenons :

$$\begin{aligned} g_x &= 3,75 \pm 0,05 \\ g_y &= 3,65 \pm 0,05 \\ g_z &= 3,10 \pm 0,10 \\ \text{Trg} &= 10,50 \pm 0,05 \end{aligned}$$

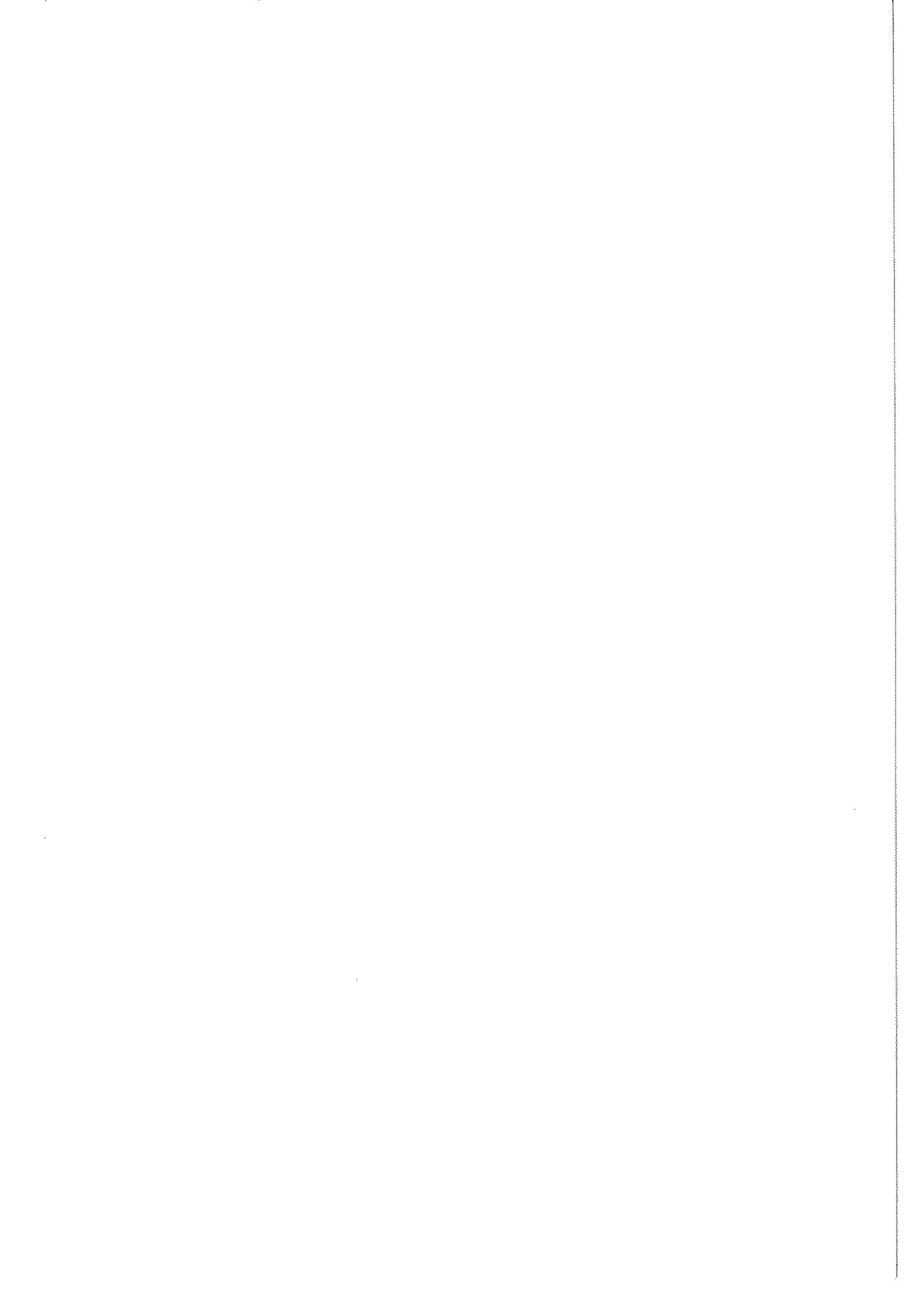
On en déduit les composantes du tenseur G

$$\begin{aligned} G_x &= 31,15 \\ G_y &= 27,06 \text{ (cm}^{-1}\text{)} \\ G_z &= 12,25 \end{aligned}$$

A partir de ces valeurs, nous avons calculé le diagramme de phase suivant [111] près du point C (figure 117) ; celui-ci a pour ordonnée $H_{cp} = 156 \text{ kOe}$, en très bon accord avec les mesures en champs pulsés. D'une manière générale, l'accord est excellent dans les phases coaxiales, en particulier, les moments des ions Yb^{3+} sont presque identiques ainsi que les angles qu'ils font avec [111] à 4,2 K et $H = 0$ (cf tableau 12), conformément aux récentes déterminations de Tchéou [152] par diffraction neutronique. Cet accord est moins bon dans les phases obliques comme on peut le voir sur la figure 111. La susceptibilité expérimentale est plus grande que celle qui est calculée. L'étude du modèle à trois sous-réseaux étudié au chapitre III nous permet de donner une explication simple de cette dernière divergence : la susceptibilité supplémentaire observée provient d'un léger découplage entre les sous-réseaux fer des sites a et d. Car elle est de l'ordre de grandeur de $\frac{1}{n}$. On devrait donc pouvoir améliorer le modèle en considérant que la direction \vec{u} calculée est celle du sous-réseau fer des sites tétraédriques (d) puisqu'ils sont responsables de la plus grande partie des interactions d'échange avec les ions terre rare [165]. La direction des ions fer des sites a s'en déduit en première approximation en calculant le faible écart angulaire entre ces deux sous-réseaux qui est dû à leur position oblique par rapport au champ.

Nous devons signaler que les valeurs de l'aimantation spontanée et de la température de compensation doivent être très sensibles à la présence d'impureté ou à un défaut de stoechiométrie. Si ce dernier est négligeable, par contre la substitution de plomb à la place des atomes de terre rare dans les cristaux obtenus par les méthodes de flux peut atteindre 1 à 2 % [57, 161]. Le fait que nous trouvons des valeurs plus élevées que les autres auteurs semble indiquer une meilleure qualité du cristal. L'effet de la substitution est de modifier les valeurs apparentes de g dans les mêmes proportions.

Remarquons enfin qu'un si bon accord n'a sans doute été possible que parce que la magnétostriction est peu importante dans YbIG [166]; elle n'entraîne qu'une très faible déformation de la symétrie du site terre rare. Celle-ci reste donc très proche de la symétrie orthorhombique D_2 dont nous avons pu utiliser les propriétés simplificatrices. Ceci n'est pas vérifié pour tous les grenats, en particulier, les grenats de terbium et de dysprosium.



C O N C L U S I O N

Dans ce mémoire nous avons approfondi l'étude expérimentale et théorique des structures non colinéaires induites par un champ magnétique dans les ferrites grenats de terres rares. Nous avons notamment mis en oeuvre des champs magnétiques pulsés très intenses. Nous pensons avoir apporté les contributions suivantes :

a - Dans le domaine des mesures en champ pulsé

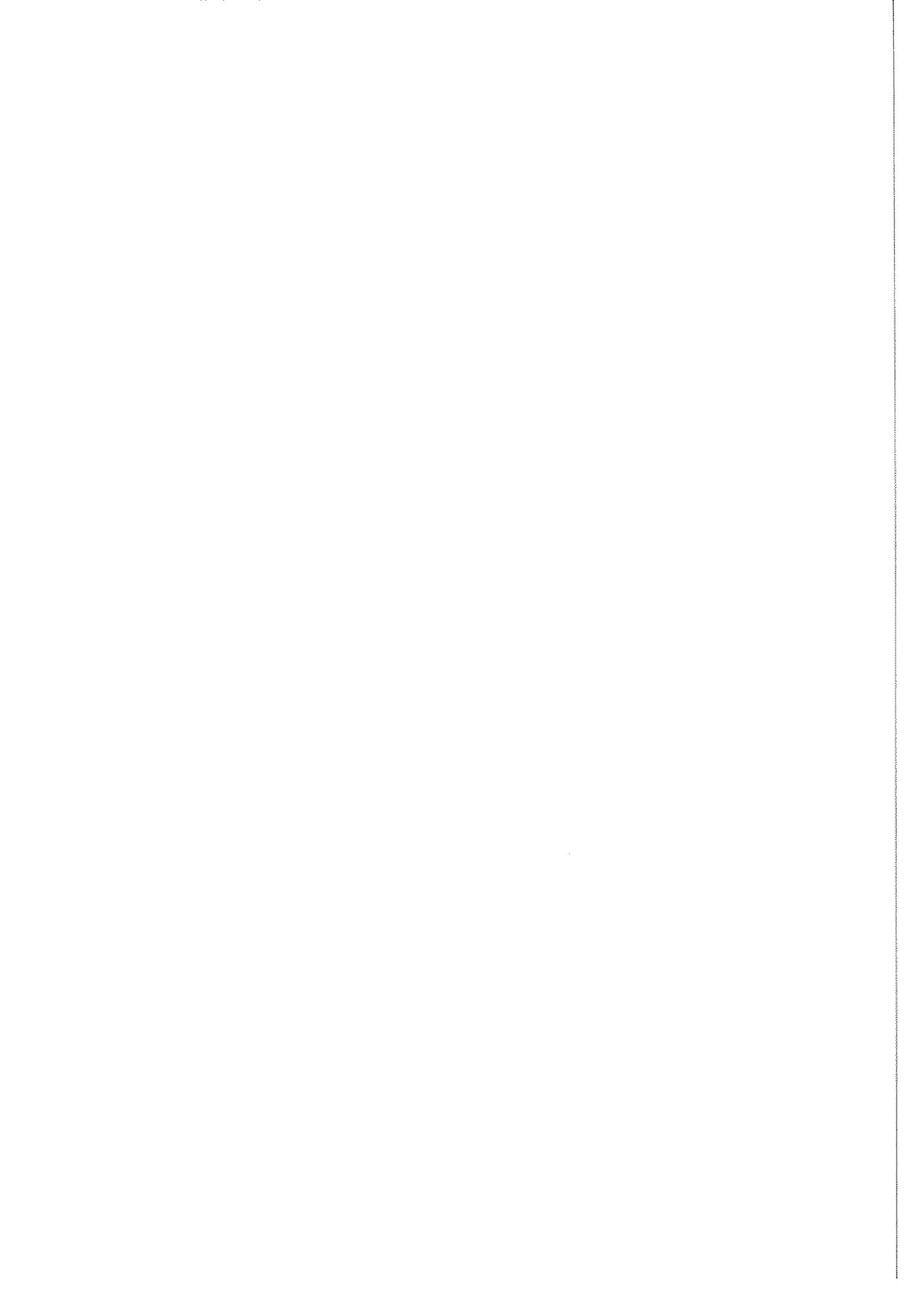
- La construction d'un appareillage de champs pulsés de haute performance, tant par l'intensité des champs obtenus (500 kOe) que par la précision des mesures.
- La mise en évidence du caractère adiabatique des mesures jusqu'aux basses températures.
- Une analyse de l'augmentation de l'hystérèse observée en champs pulsés lors des transitions du premier ordre.

b - Dans l'étude des ferrites grenats de terres rares

- Une méthode de résolution des équations de champ moléculaire qui nous a permis d'analyser les propriétés des diagrammes de phase magnétiques des ferrimagnétiques isotropes à deux et trois sous-réseaux et notamment celles de la phase non colinéaire induite par le champ magnétique.
- La vérification précise du modèle à trois sous-réseaux par la détermination expérimentale du diagramme de phase en champ intense d'un monocristal de ferrite grenat de gadolinium.
- L'observation pour la première fois des champs critiques supérieurs prévus pour les ferrites d'erbium et d'ytterbium.

- La mise en évidence de l'influence de l'anisotropie magnéto-cristalline sur la stabilité des structures colinéaires au voisinage du point de compensation.
- Une étude expérimentale détaillée du diagramme de phase magnétique du ferrite grenat d'ytterbium (YbIG) selon trois directions principales du cristal.
- Une explication cohérente de toutes les propriétés de YbIG qui conduit à attribuer de nouvelles valeurs principales au tenseur traduisant l'action du champ cristallin sur les ions Yb^{3+} dans ce composé.

Nous avons ainsi montré que les mesures en champs pulsés apportent de précieux renseignements dans l'étude des transitions magnétiques. L'analyse des diagrammes de phase et le succès du modèle d'échange anisotrope dans le cas de YbIG, nous permettent d'envisager des progrès importants dans l'interprétation des propriétés des autres ferrites.



ANNEXES

ANNEXE A

CALCUL DES CONTRAINTES DANS LE PLAN MÉDIAN

D'UN BOBINAGE DANS L'HYPOTHÈSE DU RÉGIME ÉLASTIQUE

1 - CONTRAINTES DUES AUX EFFORTS ELECTRODYNAMIQUES

Le matériau est supposé homogène, de module d'élasticité E et de coefficient de Poisson η . Les contraintes axiales et de cisaillement sont nulles dans le plan médian. Le problème étant de révolution, les équations sont celles des enveloppes épaisses [27] et se réduisent à : (voir figure A1)

$$r + \frac{p - \sigma}{r} + \frac{dp}{dr} = 0 \quad (A1)$$

p et σ sont les contraintes radiale et azimutale et f la densité de force volumique radiale :

$$f = \frac{dF}{dv} = \vec{j} \wedge \vec{B} = \mu_0 \vec{j} \wedge \vec{H} \quad (A2)$$

Les équations de compatibilité entre déformations et contraintes se traduisent par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma = \frac{E}{1 - \eta^2} \left(\frac{u}{r} + \eta \frac{du}{dr} \right) \\ p = \frac{E}{1 - \eta^2} \left(\frac{du}{dr} + \eta \frac{u}{r} \right) \end{array} \right. \quad (A3)$$

où u est le déplacement radial.

Il s'agit de déterminer la fonction $u(r)$ qui joue le rôle de fonction génératrice. De (A1) et (A3) on tire :

$$\frac{d^2 u}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{du}{dr} - \frac{u}{r^2} = - \frac{1 - \eta^2}{E} f(r) \quad (A4)$$

La solution générale de l'équation sans second membre est :

$$u = C_1 r + \frac{C_2}{r} \quad (A5)$$

et la méthode de variation des constantes donne finalement :

$$u = \lambda_1 r + \frac{\lambda_2}{r} - \frac{1-\eta^2}{E} \cdot \frac{1}{r} \int r \int f \, dr \quad (A6)$$

où λ_1 et λ_2 sont des constantes.

Passons en coordonnée réduite $x = \frac{r}{a_1}$ et posons :

$$s(x) = \frac{u}{a_1} \quad (A7)$$

$$g(x) = -\frac{a_1}{x} \int x \int f(x) \, dx \quad (A8)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} A = \frac{E}{1-\eta} \lambda_1 \\ B = \frac{E}{1+\eta} \frac{\lambda_2}{a_1^2} \end{array} \right. \quad (A9)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} R(x) = \frac{dg}{dx} + \eta \frac{g}{x} \\ T(x) = \frac{g}{x} + \eta \frac{dg}{dx} \end{array} \right. \quad (A10)$$

Les contraintes et le déplacement radial se mettent alors sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} p(x) = A - \frac{B}{x^2} + R(x) \\ \sigma(x) = A + \frac{B}{x^2} + T(x) \\ s(x) = \frac{1}{E} \left[(1-\eta)Ax + (1+\eta) \frac{B}{x} + (1-\eta^2) g(x) \right] \end{array} \right. \quad (A11)$$

La connaissance de la fonction $g(x)$ et les conditions aux limites

$$p(1) = -p_i \quad (A12)$$

$$p(\alpha) = -p_e$$

permettent de déterminer les constantes A et B.

2 - APPLICATIONS

2-1 - Cas d'une forme polynomiale

Cherchons la forme de $g(x)$ lorsque

$$a_1 f(x) = \sum_{-\infty}^{+\infty} \gamma_K x^K \quad (A13)$$

Il vient facilement :

$$g(x) = -\frac{1}{2}(\gamma_{-1}x - \gamma_{-3}x^{-1})\text{Log } x - \sum_{\substack{K \neq -1 \\ K \neq -3}} \frac{\gamma_K x^{K+2}}{(K+1)(K+3)} \quad (A14)$$

et

$$R(x) = -\frac{1}{2}(\gamma_{-1} - \gamma_{-3}x^{-2}) - \frac{1}{2}[(1+n)\gamma_{-1} + (1-n)\gamma_{-3} x^{-2}] \text{Log } x - \sum \frac{K+2+n}{(K+1)(K+3)} \gamma_K x^{K+1} \quad (A15)$$

$$T(x) = -\frac{n}{2}(\gamma_{-1} - \gamma_{-3}x^{-2}) - \frac{1}{2}[(1+n)\gamma_{-1} - (1-n)\gamma_{-3} x^{-2}] \text{Log } x - \sum \frac{1+(K+2)n}{(K+1)(K+3)} \gamma_K x^{K+1} \quad (A16)$$

Ces formules généralisent les résultats de Léon et Kuznetzov [28,29] ; elles sont valables pour les valeurs négatives de K et permettent ainsi de traiter les cas de répartition en $\frac{1}{r^n}$. (A12) conduit à :

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{\alpha^{2-1}} \left[p_i - \alpha^2 p_e + R(1) - \alpha^2 R(\alpha) \right] \\ B &= \frac{\alpha^2}{\alpha^{2-1}} \left[p_i - p_e + R(1) - R(\alpha) \right] \end{aligned} \quad (A17)$$

2-2 - Cas d'une densité de courant constante

$$j = \frac{NI}{\Sigma} = \frac{\xi_0 H_0}{(\alpha-1) a_1}$$

$$H = H_1 - \int_{a_1}^r j dr = H_0 (1+h) - \xi_0 H_0 \frac{x-1}{\alpha-1}$$

$$\mu_0 j H(x) = \frac{\mu_0 H_0^2}{a_1} \left(\frac{\xi_0}{\alpha-1} \right)^2 (q-x)$$

avec $q = 1 + \frac{\alpha-1}{\xi_0} (1+h).$

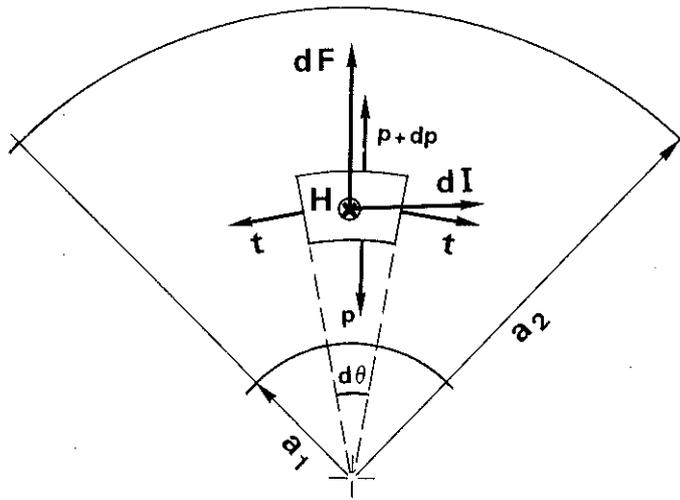


Figure A1 : Schéma pour le calcul des contraintes

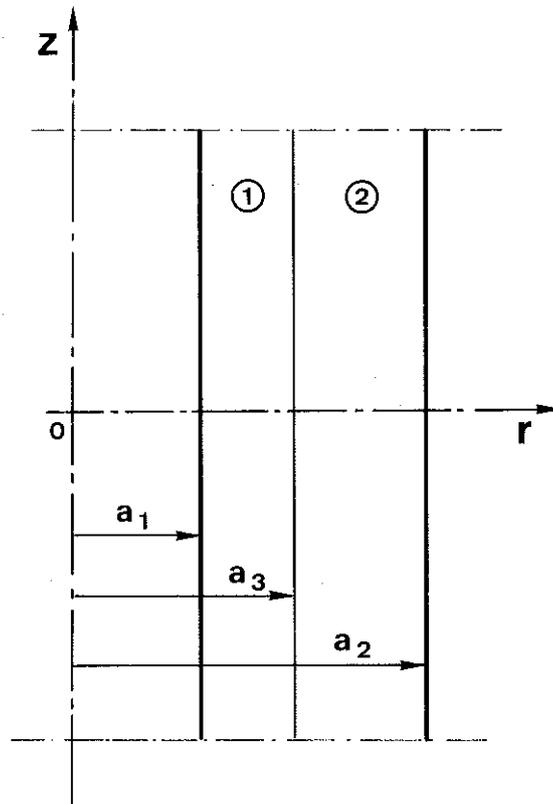


Figure A2

Soit $P_m = \mu_0 \frac{H_0^2}{2}$ la pression magnétique et $v_0 = 2P_m \left(\frac{\xi_0}{\alpha-1}\right)^2$

$$a_1 f(x) = v_0 (q-x)$$

$$g(x) = v_0 \left(\frac{x^3}{8} - q \frac{x^2}{3}\right)$$

$$R(x) = v_0 \left(\frac{3+n}{8} x^2 - q \frac{2+n}{3} x\right)$$

$$T(x) = v_0 \left(\frac{1+3n}{8} x^2 - q \frac{1+2n}{3} x\right)$$

Remarque : pour un solénoïde long

$$\left. \begin{array}{l} \text{si } \alpha \rightarrow 1 \\ \text{et } \beta \rightarrow \infty \end{array} \right\} \text{alors } \left\{ \begin{array}{l} \frac{\alpha-1}{\xi_0} \rightarrow 1 \text{ et } q \rightarrow 1 \\ h \rightarrow 0 \\ v_0 \rightarrow 2P_m \end{array} \right.$$

2-3 - Cas d'un bobinage fretté

Considérons deux milieux cylindriques juxtaposés ① et ② avec les mêmes notations que précédemment (mais affectées des indices 1 et 2 respectivement), figure A2. Dans le second, la densité de force volumique est supposée identiquement nulle. Soit d le décalage origine entre le rayon extérieur du premier cylindre et le rayon extérieur du deuxième avant frettage.

Posons : $\gamma = \frac{a_3}{a_1}$ et $\Delta = \frac{d}{a_1}$.

Les conditions aux limites sont :

pour le rayon a_1 : $p_1(1) = -p_i$

a_2 : $p_2(\alpha) = -p_e$

$$a_3 \left\{ \begin{array}{l} p_1(\gamma) = p_2(\gamma) \\ s_1(\gamma) = s_2(\gamma) - \Delta \end{array} \right. \begin{array}{l} \text{(continuité de } p) \\ \text{(continuité du déplacement radial)} \end{array}$$

Le système s'écrit sous forme matricielle

$$\begin{bmatrix} +1 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & +1 & -\frac{1}{\alpha^2} \\ +1 & -\frac{1}{\gamma^2} & -1 & +\frac{1}{\gamma^2} \\ \frac{1-\eta_1}{E_1} \gamma & \frac{1+\eta_1}{E_1} \gamma & -\frac{1-\eta_2}{E_2} \gamma & -\frac{1+\eta_2}{E_2} \gamma \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_1 \\ B_1 \\ A_2 \\ B_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -p_i - R(1) \\ -p_e \\ -R(\gamma) \\ -\Delta - \frac{1-\eta_1^2}{E_1} g(\gamma) \end{bmatrix}$$

et sa résolution fournit les constantes A_1 , B_1 , A_2 et B_2 . Dans chaque milieu les contraintes et le déplacement radial sont donnés par (A11).

Ce calcul permet de traiter le problème des contraintes dans une bobine en hélice lorsque l'effet de peau est important : il suffit de décomposer radialement la bobine en deux parties : une partie interne entre a_1 et $a_2 = a_1 + \delta$ où passe la totalité du courant, et une partie externe qui joue uniquement un rôle mécanique.

Les valeurs correspondant au cuprobéryllium à la température de l'azote liquide sont :

$$E_1 = E_2 = 13400 \text{ daN/mm}^2$$

$$\eta_1 = \eta_2 = 0,355$$

et pour $H_0 = 500 \text{ kOe}$, P_m vaut 100 daN/mm^2

3 - CONSTRAINTES D'ORIGINE THERMIQUE

Une distribution de température non uniforme $\theta(r)$ provoque des contraintes supplémentaires [27,30] données par :

$$p = \alpha_d E. \frac{1}{r^2} \left[\frac{r^2 - a_1^2}{a_2^2 - a_1^2} \int_{a_1}^{a_2} r \theta(r) dr - \int_{a_1}^r r \theta(r) dr \right]$$

$$\sigma = \alpha_d E. \frac{1}{r^2} \left[\frac{r^2 - a_1^2}{a_2^2 - a_1^2} \int_{a_1}^{a_2} r \theta(r) dr + \int_{a_1}^r r \theta(r) dr - r^2 \theta(r) \right]$$

(la contrainte suivant l'axe Oz est considérée comme nulle). La distribution $\theta(r)$ est analogue à celle du carré de la densité de courant $j^2(r)$; α_d est le coefficient de dilatation linéaire.

A N N E X E B

CALCULS DE BOBINAGES

1 - CONFIGURATION DU CHAMP A L'INTERIEUR D'UNE BOBINE

Considérons une bobine possédant un axe de symétrie de révolution zz' et un plan de symétrie xOy (figure B1). Nous nous intéressons plus particulièrement au champ dans le plan xOy .

A l'intérieur du bobinage où il existe une densité de courant

$$\vec{j} \quad \begin{cases} j_r = 0 \\ j_\theta = j(r) \\ j_z = 0 \end{cases}$$

La relation $\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \vec{j}$ doit être vérifiée.

Soit :

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \frac{\partial H_z}{\partial \theta} - \frac{\partial H_\theta}{\partial z} &= j_r \\ \frac{\partial H_r}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial r} &= j_\theta \\ \frac{\partial (rH_\theta)}{\partial r} - \frac{\partial H_r}{\partial \theta} &= j_z \end{aligned} \quad (B1)$$

la symétrie de révolution autour de zz' impose :

$$H_\theta \equiv \frac{\partial H_z}{\partial \theta} \equiv \frac{\partial H_r}{\partial \theta} \equiv 0$$

donc $j_r \equiv 0$.

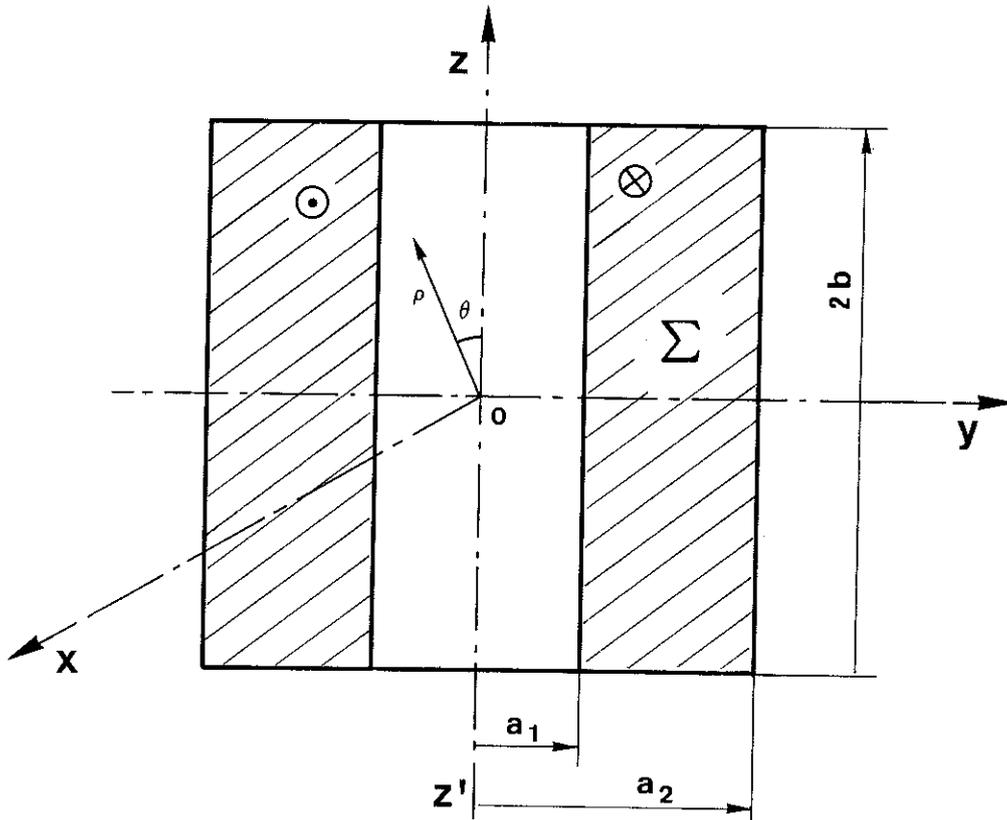


Figure B1

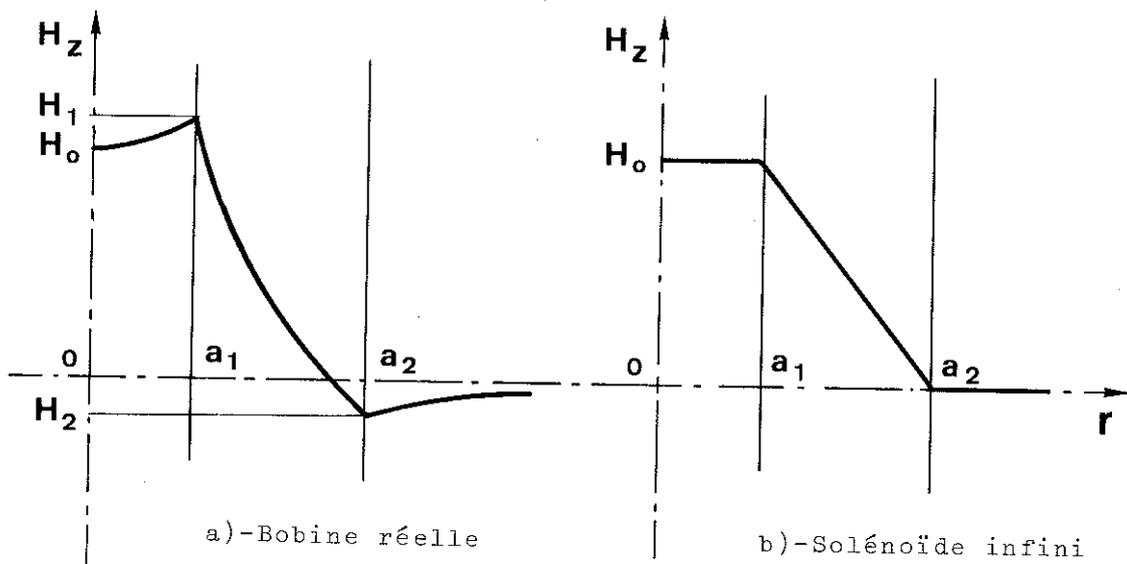


Figure B2 : Répartition de $H(r,0)$

Le système (B1) se réduit donc à :

$$\frac{\partial}{\partial z} H_r(r, z) - \frac{\partial}{\partial r} H_z(r, z) = j(r) \quad (B2)$$

La symétrie par rapport au plan xOy entraîne en outre :

$$\frac{\partial}{\partial z} H_r(r, 0) = 0$$

finalement :

$$\frac{d}{dr} H_z(r, 0) = - j(r)$$

ou encore :

$$H_z(r, 0) = H_z(a_1, 0) - \int_{a_1}^r j(r) \cdot dr.$$

Posons :

$$H_0 = H_z(0, 0)$$

$$H_1 = H_z(a_1, 0)$$

$$H_2 = H_z(a_2, 0)$$

$$H_1 - H_2 = \int_{a_1}^{a_2} j(r) \cdot dr = \frac{NI}{2b} = \xi H_0$$

L'allure de la courbe $H_z(r, 0)$ est donnée sur la figure B2).

2 - CALCUL DE H_0 ET DE ξ

La contribution a H_0 de la ligne de courant en (r, z)

$$d^2 H_z = \frac{1}{2} \frac{r^2}{(z^2 + r^2)^{3/2}} \cdot j \, dr \, dz$$

$$\begin{aligned} \text{d'où : } H_z(0, z) &= \frac{1}{2} \int_{a_1}^{a_2} j \, r^2 \cdot \int_{z-b}^{z+b} \frac{dz}{(z^2 + r^2)^{3/2}} \\ &= \frac{1}{2} \int_{a_1}^{a_2} j \left[\frac{z+b}{\sqrt{(z+b)^2 + r^2}} - \frac{z-b}{\sqrt{(z-b)^2 + r^2}} \right] dr. \end{aligned}$$

$$H_0 = b \int_{a_1}^{a_2} \frac{j(r)}{\sqrt{b^2+r^2}} dr$$

$$\xi = \frac{\frac{NI}{2b}}{H_0} = \frac{\int_{a_1}^{a_2} j dr}{\int_{a_1}^{a_2} \frac{j b dr}{\sqrt{b^2+r^2}}}$$

Soit $j = j_0 \left(\frac{a_1}{r}\right)^n$ et ξ_n les quantités correspondantes.

Si on pose :

$$l_0(\alpha, \beta) = \text{Log} \frac{\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}}{1 + \sqrt{1 + \beta^2}} = \arg \text{Sh} \frac{\alpha}{\beta} - \arg \text{Sh} \frac{1}{\beta}$$

et

$$l_1(\alpha, \beta) = \text{Log} \alpha \frac{\beta + \sqrt{1 + \beta^2}}{\beta + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} = \arg \text{Sh} \beta - \arg \text{Sh} \frac{\beta}{\alpha}$$

$$n = 0 \quad \xi_0 = \frac{\alpha - 1}{\beta l_0}$$

$$n = 1 \quad \xi_1 = \frac{\text{Log} \alpha}{l_1}$$

$$n = 2 \quad \xi_2 = \frac{\beta(\alpha - 1)}{\alpha \sqrt{1 + \beta^2} - \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}}$$

3 - CHAMP AU VOISINAGE DU CENTRE D'UN BOBINAGE CYLINDRIQUE DE REVOLUTION ET SYMETRIQUE: HOMOGENEITE

Le développement à partir du champ au centre H_0 se fait à l'aide de polynomes de Legendre (réf. [5], p. 232)

$$H_z(\rho, \theta) = H_0 \left[1 - \sum_{n=1}^{\infty} E_{2n} \left(\frac{\rho}{a_1}\right)^{2n} P_{2n}(\cos \theta) \right] \quad (B3)$$

avec

$$E_{2n} = - \frac{1}{H_0} \frac{1}{(2n)!} \left[\frac{d^{2n} H_z(z, 0)}{dz^{2n}} \right]_{z=0} \quad (B4)$$

Le champ suivant l'axe est :

$$H_z(z, 0) = H_0 \left[1 - E_2 \left(\frac{z}{a_1} \right)^2 - E_4 \left(\frac{z}{a_1} \right)^4 - E_6 \left(\frac{z}{a_1} \right)^6 - \dots \right] \quad (B5)$$

Le champ dans le plan médian

$$H_z(r, \frac{\pi}{2}) = H_0 \left[1 + \frac{1}{2} E_2 \left(\frac{r}{a_1} \right)^2 - \frac{3}{8} E_4 \left(\frac{r}{a_1} \right)^4 + \frac{5}{16} E_6 \left(\frac{r}{a_1} \right)^6 \dots \right] \quad (B6)$$

Sur le bord intérieur du bobinage :

$$H_1 = H_0 \left[1 + \frac{1}{2} E_2 - \frac{3}{8} E_4 + \frac{5}{16} E_6 + \dots \right] \quad (B7)$$

$$H_1 = H_0 [1 + h] \quad (B8)$$

Remarquons que les coefficients E_{2n} dépendent de la répartition de densité de courant dans les bobinages. Ils n'ont été calculés que pour les deux cas particuliers les plus courants, à savoir les bobinages à densité de courant constante ($j = j_0$) et les bobines de Bitter ($j = j_0 \frac{a_1}{r}$) [5]. Le coefficient E_2 est en général prépondérant et l'on peut voir sur la figure B3 qu'il dépend essentiellement de la coordonnée réduite β . Il varie donc peu avec la loi de répartition de densité de courant qui intervient en pondérant plus ou moins la coordonnée α .

La formule la plus utile pour une estimation est celle du solénoïde mince :

$$E_{\alpha \rightarrow 1} = \frac{3}{2} (1 + \beta^2)^{-2} \quad (B9)$$

Pour le calcul des efforts électrodynamiques il suffit de remarquer que dans les cas usuels : $\beta \geq 2$ et $h < 0,04$ et en première approximation on prendra $h = 0$ sans grande erreur.

4 - COEFFICIENT DE COUPLAGE ECHANTILLON-BOBINAGES DE MESURE

4-1 - Aire totale d'un bobinage vis-à-vis d'un champ extérieur

homogène

$$A = \int_{\Sigma} \Pi r^2 \cdot \frac{N}{\Sigma} dr dz = 2b \cdot \frac{N}{\Sigma} \cdot \int_{a_1}^{a_2} \Pi r^2 dr$$

$$= \frac{2N}{3} b (a_2^3 - a_1^3) \cdot \frac{N}{\Sigma}$$

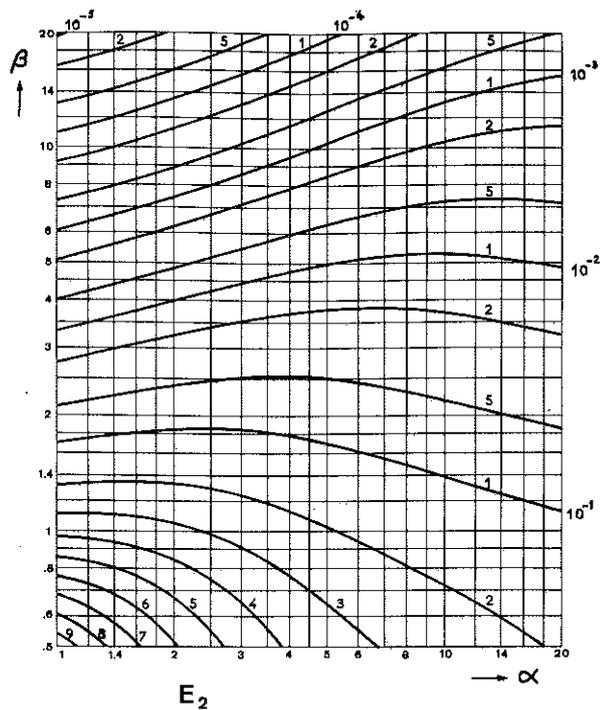


Figure B3 : Coefficient d'homogénéité E_2 d'un bobinage épais
à densité de courant constante

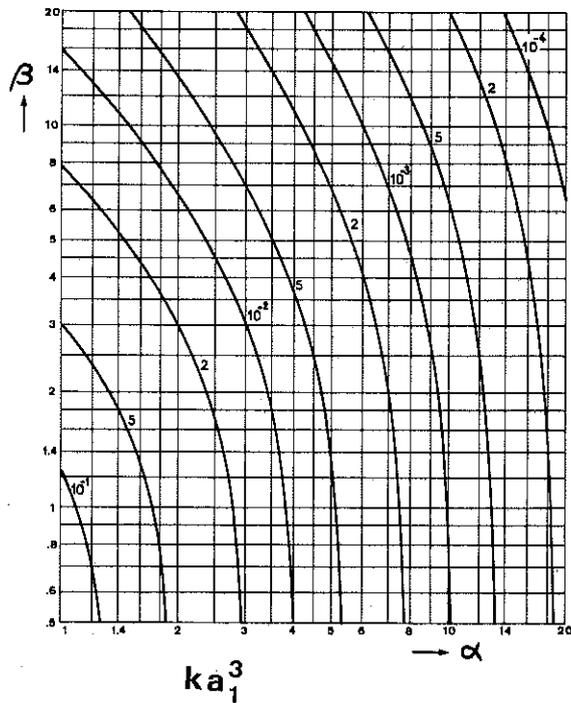


Figure B4 : Rapport Champ/Moment d'un bobinage épais
à densité de spires constante

où N est le nombre total de spires et $\Sigma = 2b(a_2 - a_1)$ la surface de la section droite

$$A = \frac{\Pi}{3} \frac{a_2^3 - a_1^3}{a_2 - a_1} N = \frac{\Pi}{3} (a_2^2 + a_1 a_2 + a_1^2) N$$

avec les notations habituelles

$$A = \frac{\Pi}{3} N a_1^2 \frac{\alpha^3 - 1}{\alpha - 1}$$

4-2 - Rapport champ/moment d'un bobinage

Si le bobinage est parcouru par un courant i, son moment total est :

$$\mu = Ai.$$

Le champ au centre pour une densité de courant constante étant

$$h = \frac{Ni}{2b} \frac{1}{\xi_0} = \frac{Ni}{2a_1} \frac{1}{\beta \xi_0}$$

Le rapport champ sur moment du bobinage est :

$$k = \frac{h}{\mu} = \frac{3}{2\Pi a_1^3 (\alpha^3 - 1)} \text{Log} \frac{\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}}{1 + \sqrt{1 + \beta^2}}$$

Pour un bobinage de mesure comportant peu de couches, l'expression se réduit à :

$$k(\alpha \rightarrow 1) = \frac{1}{2\Pi a_1^3} \frac{1}{\sqrt{1 + \beta^2}}$$

Les variations de k sont représentées sur la figure B4.

4-3 - Coefficient de couplage

Si un échantillon sphérique de rayon R est placé au centre et possède une aimantation uniforme M, le flux correspondant à travers le bobinage est

$$\phi = \mu_0 A \eta M$$

où η est le coefficient de couplage qui ne dépend que de la géométrie du bobinage et du facteur de foisonnement $f = \left(\frac{R}{a_1}\right)^3$

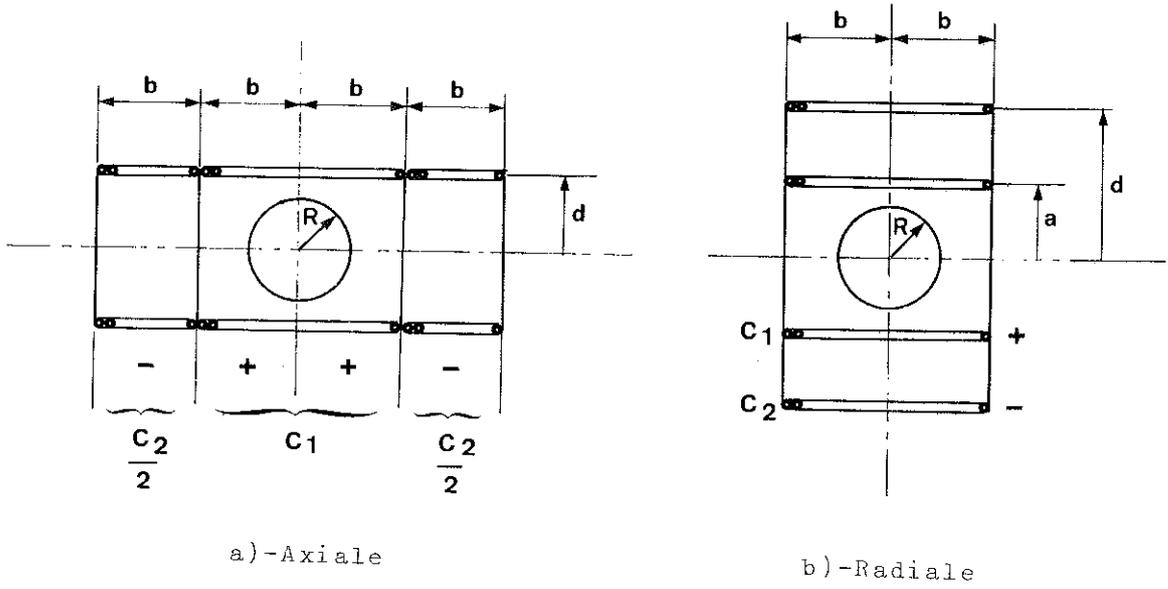


Figure B5 : Disposition des bobinages de mesure

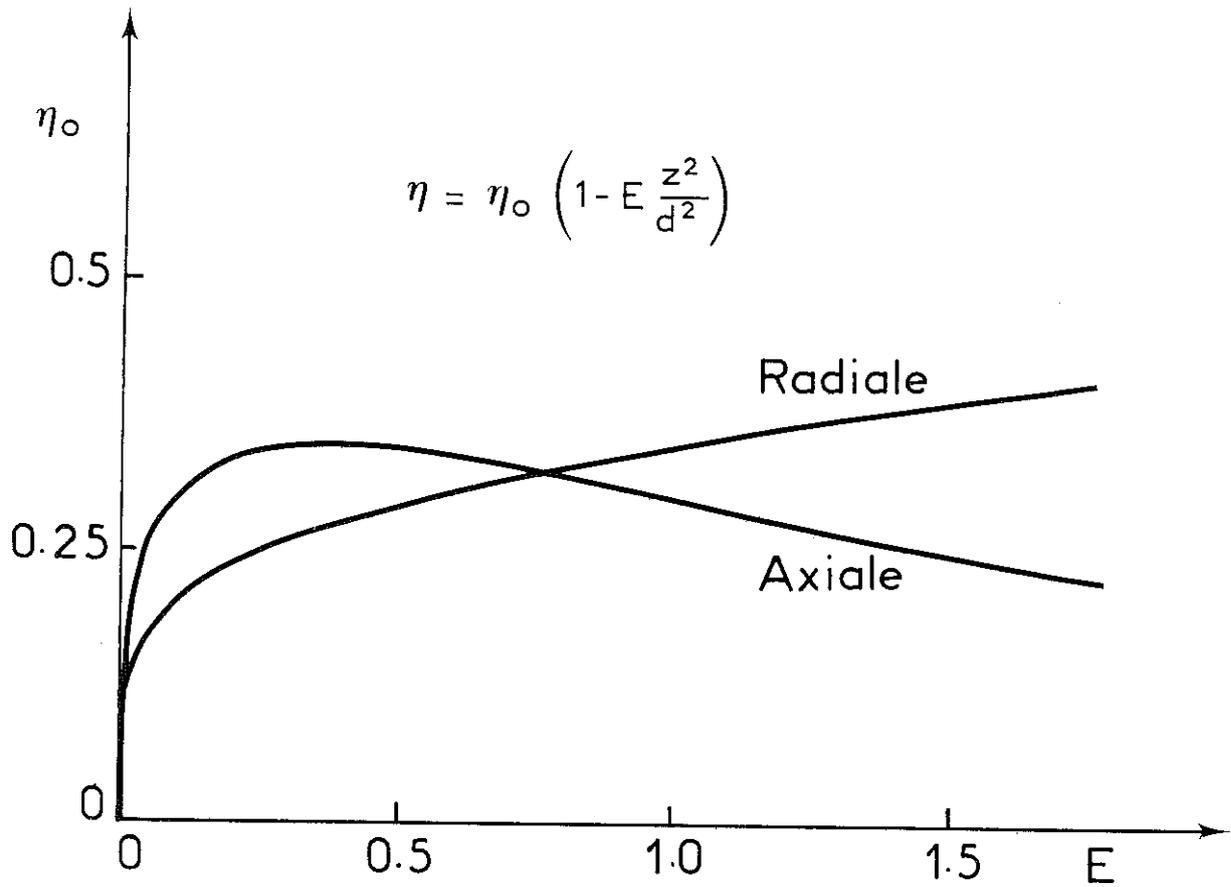


Figure B6 : Coefficient de couplage en fonction du coefficient d'erreur de position

$$\eta = \frac{2f}{\alpha^3 - 1} \operatorname{Log} \frac{\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}}{1 + \sqrt{1 + \beta^2}} = \frac{4\pi}{3} R^3 k = \frac{4\pi}{3} f \cdot ka_1^3$$

4-4 - Système de bobinages compensés

Considérons un système de deux bobinages compensés C_1 et C_2 avec des rapports champ/moment k_1 et k_2 .

La réalisation de la mesure d'un moment m situé au centre du système est déterminée par le rapport :

$$\frac{\phi}{\mu_0 A_1 m} = k_1 - k_2$$

où ϕ est le flux total dû au moment m à travers le système.

Pour un échantillon sphérique d'aimantation uniforme M

$$m = \frac{4}{3} \pi R^3 M$$

et il faut donc chercher la géométrie des bobinages qui rend maximum le coefficient η défini par :

$$\eta = \frac{\phi}{\mu_0 A_1 M} (k_1 - k_2) \cdot \frac{4}{3} \pi R^3.$$

D'autre part sa variation en fonction de la position z de l'échantillon par rapport au centre du système peut être évaluée à partir des développements des champs h_1 et h_2 de chaque bobinage en se limitant au 2e ordre :

$$h_1 = h_{10} (1 - E_1 z^2)$$

$$h_2 = h_{20} (1 - E_2 z^2)$$

$$k_1 - k_2 = \frac{h_1}{A_1 i_1} - \frac{h_2}{A_2 i_2} = (k_{10} - k_{20}) \left(1 - \frac{E_1 k_{10} + E_2 k_{20}}{k_{10} - k_{20}} z^2\right)$$

E_1 et E_2 variant peu avec l'épaisseur des bobinages. Nous nous limiterons à des solénoïdes minces pour la discussion qui suit. Enfin nous supposons fixé un diamètre utile disponible $2d$, et une densité de spires uniforme.

$$\text{En mettant } \eta \text{ sous la forme } \eta_0 \left(1 - E \frac{z^2}{d^2}\right)$$

les expressions de η_0 et E s'obtiennent facilement :

a - disposition axiale : le seul paramètre est $\beta = \frac{b}{d}$ (figure B5)

$$\eta_0 = \frac{4}{3} \left(\frac{R}{d}\right)^3 \left(\frac{1}{\sqrt{1+\beta^2}} - \frac{1}{\sqrt{1+4\beta^2}} \right)$$

$$E = \frac{3}{4} \frac{(1+\beta^2)^{-5/2} - \frac{2}{\sqrt{1+4\beta^2}} - \frac{1}{\sqrt{1+\beta^2}} \left[(1+\beta^2)^{-2} - (1+4\beta^2)^{-2} \right]}{\frac{1}{\sqrt{1+\beta^2}} - \frac{1}{\sqrt{1+4\beta^2}}}$$

b - disposition radiale : il intervient en plus le paramètre $x = \frac{a}{d}$

$$\eta_0 = \frac{2}{3} \left(\frac{R}{a}\right)^3 \left[\frac{x}{\sqrt{x^2+\beta^2}} - \frac{x^3}{\sqrt{1+\beta^2}} \right]$$

$$E = \frac{3}{2} \frac{(x^2+\beta^2)^{-5/2} - (1+\beta^2)^{-5/2}}{\frac{1}{x^2 \sqrt{x^2+\beta^2}} - \frac{1}{\sqrt{1+\beta^2}}}$$

On se ramène au seul paramètre β en remarquant que η_0 est maximum pour une valeur de x , racine de l'équation :

$$9x^4(x^2 + \beta^2)^3 = \beta^4(1 + \beta^2)$$

Les variations de η_0 en fonction de E sont tracées sur la figure B6 en supposant les foisonnements $\left(\frac{R}{a}\right)^3$ et $\left(\frac{R}{d}\right)^3$ égaux à l'unité. Pour que l'erreur de positionnement ne dépasse pas 1 ‰ en admettant un décalage possible z de 0,1 mm avec un diamètre utile $2d \sim 6$ mm, il faut $E \leq 1$. On voit que la sensibilité des deux systèmes est sensiblement équivalente et la valeur de η_0 ne dépasse pas 0,35 avec le foisonnement maximum.

A N N E X E C

ANALYSE DES OSCILLOGRAMMES

1 - CORRECTION DE DISTORSION ET DE LINEARITE D'UN OSCILLOSCOPE

Nous supposerons l'orthogonalité des traces verticales et horizontales parfaitement réglées ainsi que leur parallélisme avec les traits du quadrillage ("graticule") du tube cathodique. Ceci permet de repérer le spot P par rapport au centre du quadrillage dans un système d'axes XOY (figure C1). Les coordonnées de P sont donc les déviations comptées à partir du centre. Nous appellerons X' et Y' leurs valeurs lues sur l'enregistrement photographique, X et Y leurs valeurs réelles, proportionnelles à la d.d.p. à mesurer. Il s'agit de déterminer les deux fonctions d'erreur x(X) et y(Y) définies par les écarts entre valeurs lues et valeurs vraies :

$$X = X' + x(X)$$

$$Y = Y' + y(Y)$$

Le principe de notre méthode est le suivant : un signal carré venant du calibrateur interne de l'oscilloscope attaque la voie X de façon à donner deux spots très fins distants d'environ 2,5 mm. Ces deux spots sont centrés successivement sur chaque intersection du quadrillage et photographiés. Les distances mesurées $\Delta X'$ pour les différentes positions sont rapportées à la valeur lue $\Delta X'_0$ au centre, de façon à obtenir une mesure approchée de la dérivée de la fonction d'erreur,

$$\frac{dx}{dX} \approx 1 - \frac{\Delta X'}{\Delta X'_0}$$

La fonction d'erreur s'en déduit par intégration. On opère de même pour la voie Y. Les résultats des mesures permettent de vérifier l'hypothèse $\frac{\partial}{\partial Y} \left(\frac{dx}{dX} \right) = \frac{\partial}{\partial X} \left(\frac{dy}{dY} \right) = 0$ que nous avons faite a priori. Un exemple est donné sur la figure C2, où chaque point est une moyenne

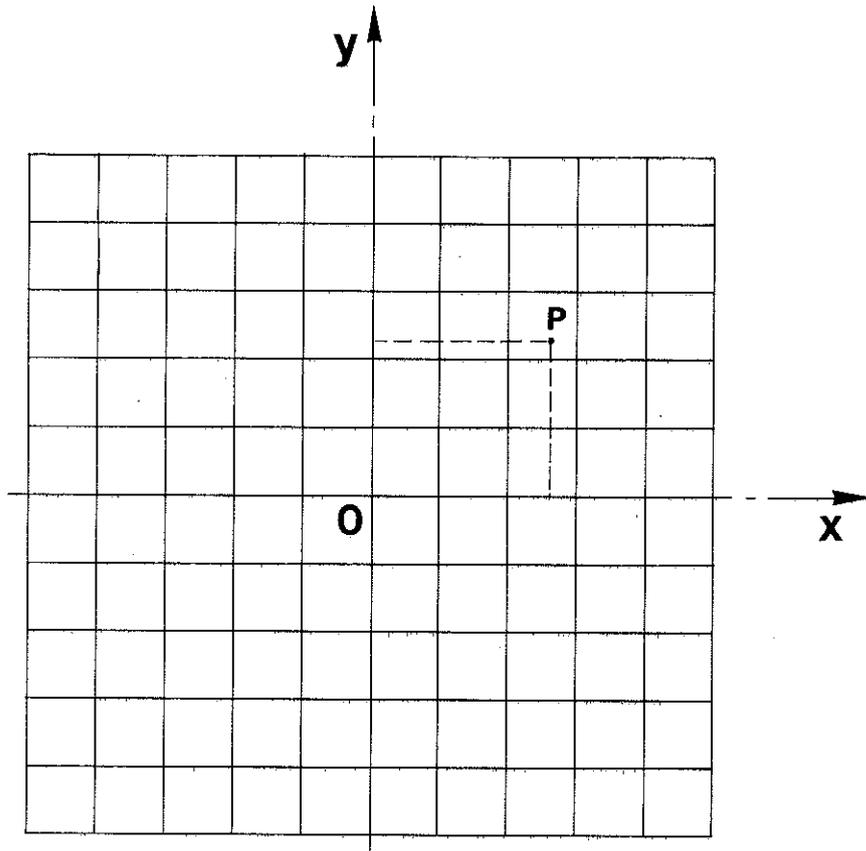


Figure C1 : Ecran de l'oscilloscope

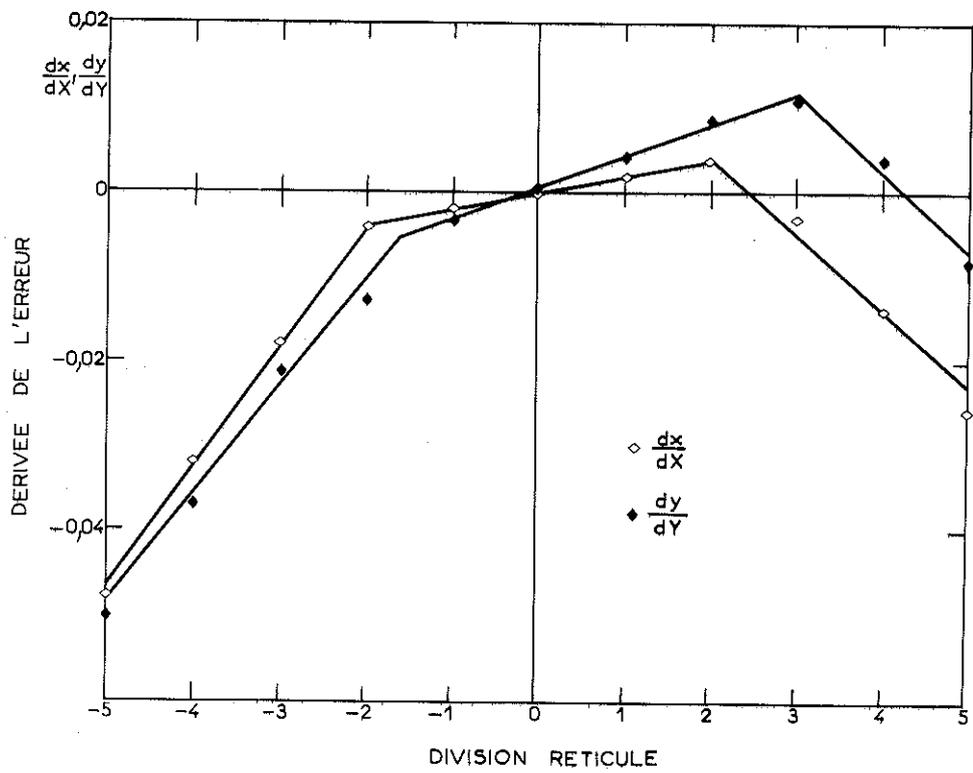


Figure C2 : Courbes d'erreur différentielle

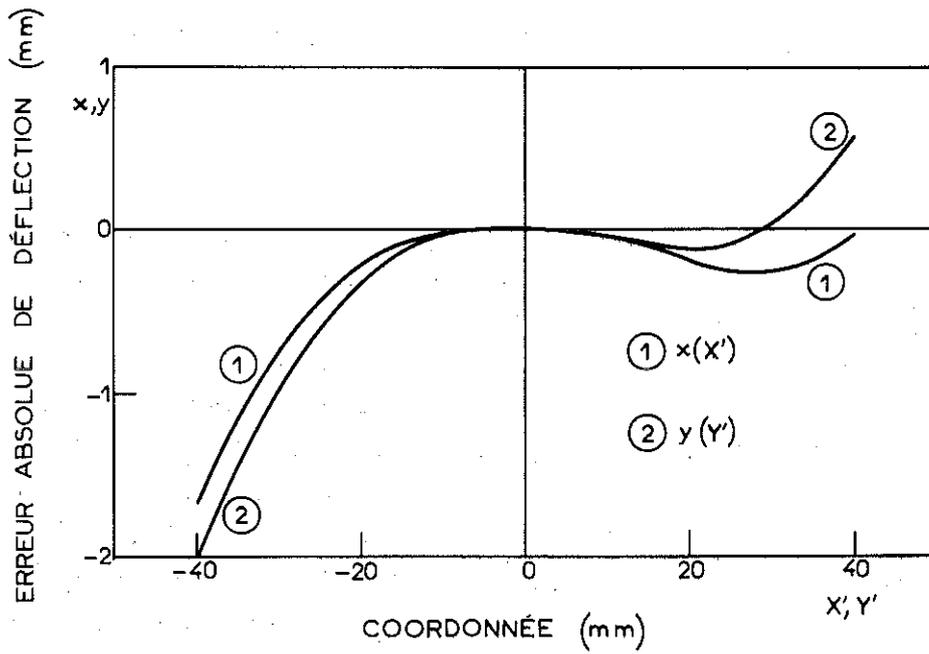


Figure C3 : Courbes d'erreur absolue

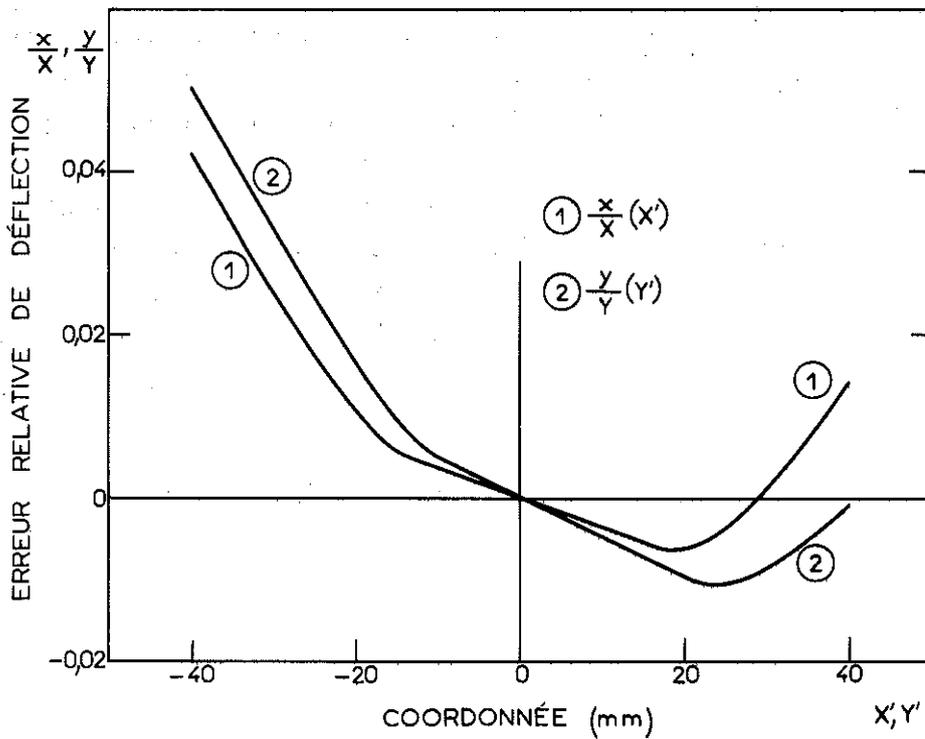


Figure C4 : Courbes d'erreur relative

obtenue sur dix mesures. Les courbes se représentent bien par des portions de droite. Les courbes de correction absolue et relative qu'on en déduit sont celles des figures C3 et C4.

2 - ANALYSE DES OSCILLOGRAMMES

Le problème posé est de retrancher correctement point par point deux arcs de courbes ("mesure" et "compensation") enregistrés sur le film Polaroid. On s'arrange pour que le spot au repos, apparaisse au départ de chaque courbe sous la forme d'un point très fin qui sera pris comme origine. On relève les coordonnées des origines O' et O'' , de plusieurs points $P_1 \dots P_{n-1}$, $P'_1 \dots P'_{q-1}$ et enfin des points P_n et P'_q qui correspondent au champ maximum pour chacun des arcs de courbe. Ces coordonnées sont corrigées des défauts de l'oscilloscope d'après les courbes d'erreurs précédentes. Ensuite, une translation amène en coïncidence les origines O' et O'' des deux courbes. Dans le cas où les deux enregistrements ont été faits avec un champ maximum légèrement différent, une homothétie de centre O'' est appliquée à la courbe "compensation" de façon à ce que l'abscisse du point P'_q soit identique à celle du point P_n . On retranche alors à l'ordonnée y_p du point P_p de la courbe "mesure" d'abscisse x , l'ordonnée y'_p du point de la courbe "compensation" de même abscisse x_p obtenu par interpolation à partir des points relevés les plus voisins. Toutes ces opérations sont effectuées par un programme de calcul numérique à partir des coordonnées brutes des différents points. Les courbes ne sont pas nécessairement sur le même film. De plus, pour chacune d'elles on enregistre les spots produits par le calibrateur interne de l'oscilloscope de façon à éliminer la dérive du gain des tiroirs d'entrée et à utiliser la stabilité en tension du calibrateur qui est très bonne ($< 0,5 \%$).

A N N E X E D

ÉVALUATION DES EFFETS DES COURANTS DE FOUCAULT

Assimilons un échantillon conducteur placé dans un champ magnétique variable $H(t)$ à un petit circuit de résistance R et de self inductance L . Il est le siège d'un courant induit i tel que :

$$L \frac{di}{dt} + Ri = \mu_0 S \frac{dH}{dt}$$

où S est la surface du circuit vis-à-vis du champ. Pour une variation sinusoïdale du champ à partir de l'instant $t = 0$,

$$H(t) = H_0 \sin \omega t,$$

le courant s'écrit :

$$i(t) = I_0 \omega \tau \left[\frac{\sin(\omega t + \arctg \omega \tau)}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2}} - \frac{e^{-\frac{t}{\tau}}}{1 + \omega^2 \tau^2} \right]$$

où $\tau = \frac{L}{R}$ est la constante de temps du circuit et $I_0 = \frac{\mu_0 S H_0}{L}$.

La puissance dissipée par effet Joule est : $W_J = \int_0^t Ri^2 dt$,

elle se met sous la forme :

$$W_J = f.V.\frac{1}{2} \mu_0 H_0^2 \cdot \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \left[\omega t + \frac{2\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \sin^2 \omega t - \frac{1 - \omega^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} \sin \omega t \cos \omega t \right. \\ \left. + \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} (1 - e^{-\frac{2t}{\tau}}) - \frac{4\omega \tau}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2}} (1 - e^{-\frac{t}{\tau}}) \right]$$

où f est un facteur de forme et V le volume englobé par le conducteur.

Nous nous intéressons au temps $\frac{T}{4}$ où le champ atteint son premier maximum H_0 et nous appelons ϵ le rapport de l'énergie dissipée à cet instant à l'énergie magnétique $W_H = \frac{1}{2} \mu_0 H_0^2 \cdot V$ correspondant au

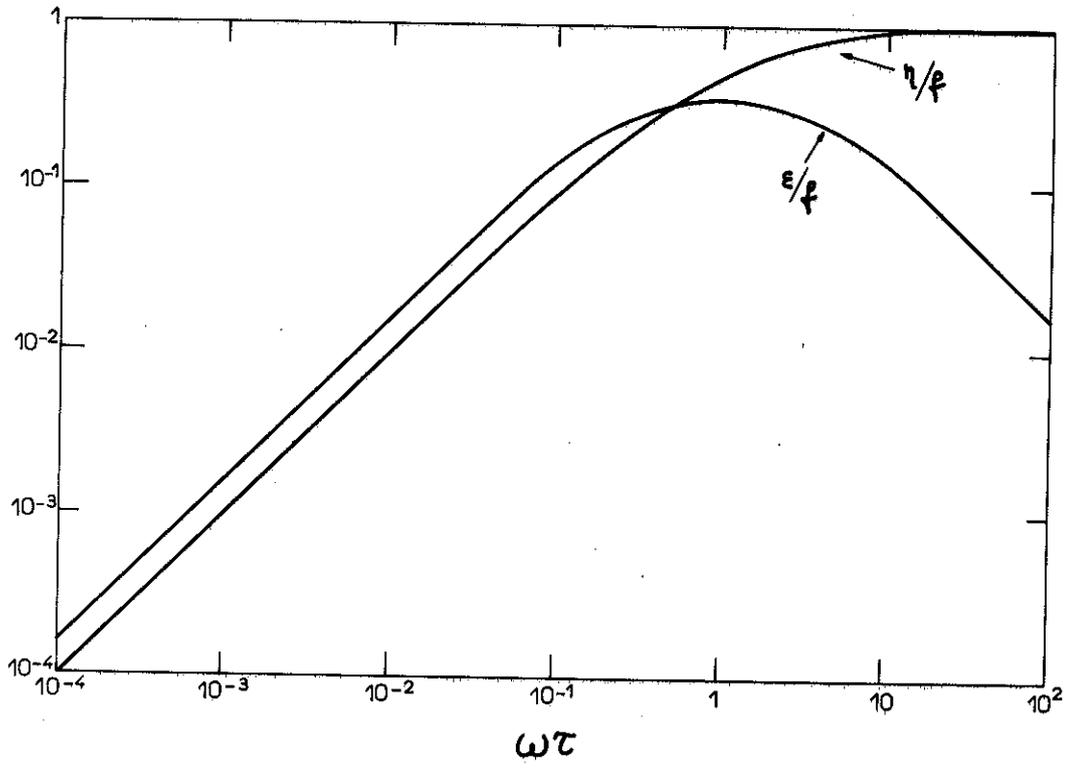


Figure D1

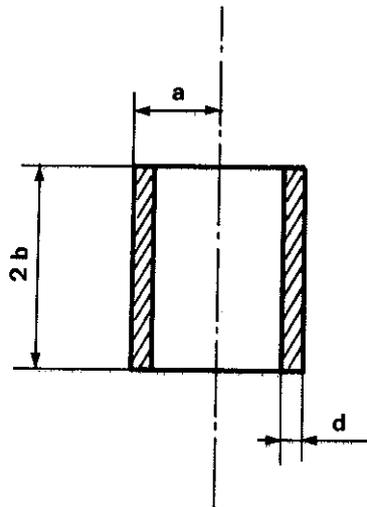


Figure D2

volume V :

$$\epsilon = \frac{W_J(T/4)}{W_H}$$

$\omega\tau \ll 1 \implies \epsilon \sim f \cdot \frac{\pi}{2} \cdot \omega\tau$	(au 1er ordre en $\omega\tau$)
$\omega\tau \gg 1 \implies \epsilon \sim f \cdot \frac{\pi}{2} \cdot \frac{1}{\omega\tau}$	(au 1er ordre en $\frac{1}{\omega\tau}$)

le moment diamagnétique induit est :

$$\mathcal{M}(t) = -S i(t)$$

L'intensité d'aimantation équivalente dans le volume V de l'échantillon peut s'écrire :

$$\mathcal{J}(t) = \frac{\mathcal{M}(t)}{V} = -f \cdot H_0 \cdot \frac{i(t)}{I_0}$$

Posons $\eta = -\frac{\mathcal{J}(T/4)}{H_0}$

$\omega\tau \ll 1 \implies \eta \sim f \omega\tau$
$\omega\tau \gg 1 \implies \eta \sim \frac{f}{\omega\tau}$

Les courbes de ϵ/f en fonction de η/f sont représentées sur la figure D1.

Calculons le facteur de forme dans le cas particulier d'un tube mince allongé, de résistivité ρ (figure D2)

$$S = \pi a^2, \quad V = 2b S, \quad R = \rho \frac{\pi a}{bd}$$

$$L = \mu_0 \frac{S}{2b} K\left(\frac{b}{a}\right), \quad \tau = \frac{L}{R} = \frac{\mu_0 ad}{2\rho} K\left(\frac{b}{a}\right)$$

$$f = \frac{1}{K\left(\frac{b}{a}\right)} \geq 1$$

$K\left(\frac{b}{a}\right)$ est un coefficient de réduction par rapport au cas du solénoïde de longueur infinie pour lequel il vaut 1. Il est tabulé par Grover

[49] $K\left(\frac{b}{a} \gg 1\right) \neq 1.$

Dans le cas de corps massifs de forme sphérique ou cylindrique il faut connaître exactement la répartition des lignes de courants. Il est alors nécessaire de résoudre exactement le problème de la diffusion du champ magnétique. La constante de temps τ d'amortissement des courants de Foucault s'identifie avec la constante de temps de diffusion du champ magnétique. Par analogie avec le problème de diffusion de la chaleur [6,23,50,51] les solutions sont des séries du type :

$$H(r,t) = \sum_{n \geq 1} A_n(r,t) e^{-\frac{t}{\tau_n}}$$

Au bout d'un laps de temps de l'ordre de τ_1 le premier terme est prépondérant et les résultats précédents sont donc encore valables en première approximation en prenant $\tau = \tau_1$. Pour un cylindre massif de rayon a

$$\tau_1 = \frac{a^2}{x_1^2} \frac{\mu_0}{\rho} \approx 0,174 \frac{\mu_0 a^2}{\rho}$$

où $x_1 = 2,405$ est la première racine de la fonction de Bessel de première espèce J_0 .

Pour une sphère de rayon a :

$$\tau_1 = \frac{\mu_0}{\pi^2} \frac{a^2}{\rho}$$

A partir de cette dernière formule, nous pouvons évaluer la résistivité pour laquelle $\omega\tau$ vaut 10^{-4} . Les valeurs de ρ obtenues, pour différents ordres de grandeurs du rayon a et du temps de montée $t_1 = \frac{\pi}{2\omega}$ sont consignées dans le tableau suivant.

échantillon	$\begin{matrix} t_1 \rightarrow \\ a \downarrow \end{matrix}$	50 μ s	5 ms
		massif	1 mm
poudre	0,01 mm	0,5*	0,005*

* ρ en $\mu\Omega$ cm

Ce sont les valeurs de résistivité en dessous desquelles les courants de Foucault apparaissent de façon notable sur les oscillogrammes $M(H)$.

A N N E X E E

PROPRIÉTÉS DES IONS DE TERRES RARES DANS LES FERRITES GRENATS

1 - NOTATIONS DES SITES INEQUIVALENTS ET FORMULES GENERALES

• Définition des notations :

R_0 = repère du cristal : (100, 010, 001)

R_q = repère orthonormé du site q , $q \in \{1, 2, 3, 4, 5, 6\}$

$\alpha \in \{x, y, z\}$ = indice des axes locaux du site $\{q\}$ (repère R_q).

Pour avoir des relations simples entre les indices dans les calculs, nous avons choisi les sites et orienté les repères R_q de façon qu'ils se correspondent exactement par les rotations propres des axes [111] et [001] du cristal :

$$\mathcal{R} (111, + \frac{2\pi}{3}) \Rightarrow R_1 \rightarrow R_2 \rightarrow R_3, R_4 \rightarrow R_5 \rightarrow R_6$$

$$\mathcal{R} (001, - \frac{\pi}{2}) \Rightarrow R_1 \rightarrow R_4, R_2 \rightarrow R_5, R_3 \rightarrow R_6$$

Les axes sont définis dans le tableau E et représentés sur les figures E_1 et E_2 . Les relations entre les cosinus directeurs de $\vec{u} = - \frac{\vec{M}_{Fe}}{M_{Fe}}$ dans les axes locaux (u_α) et ceux dans les axes du cristal ($\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$) sont également reportées dans ce tableau ; ainsi que les correspondances avec les notations de différents auteurs. Les tenseurs g et G sont diagonaux dans les axes locaux :

$$g = \begin{bmatrix} g_x & & 0 \\ & g_y & \\ 0 & & g_z \end{bmatrix} ; \quad G = \begin{bmatrix} G_x & & 0 \\ & G_y & \\ 0 & & G_z \end{bmatrix} ; \quad g_\alpha, G_\alpha \geq 0$$

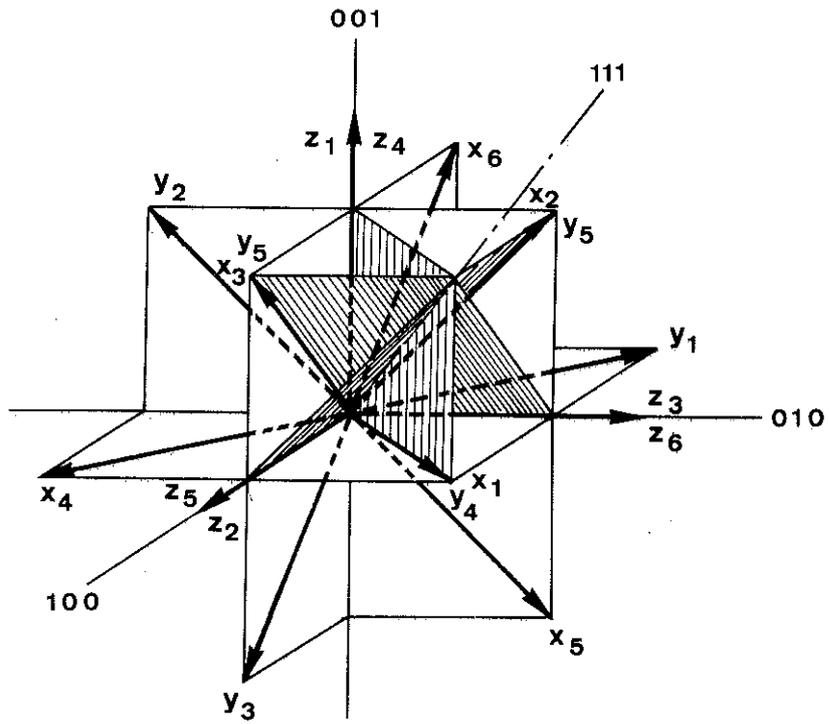


Figure E1 : Repères des sites inéquivalents de terres rares

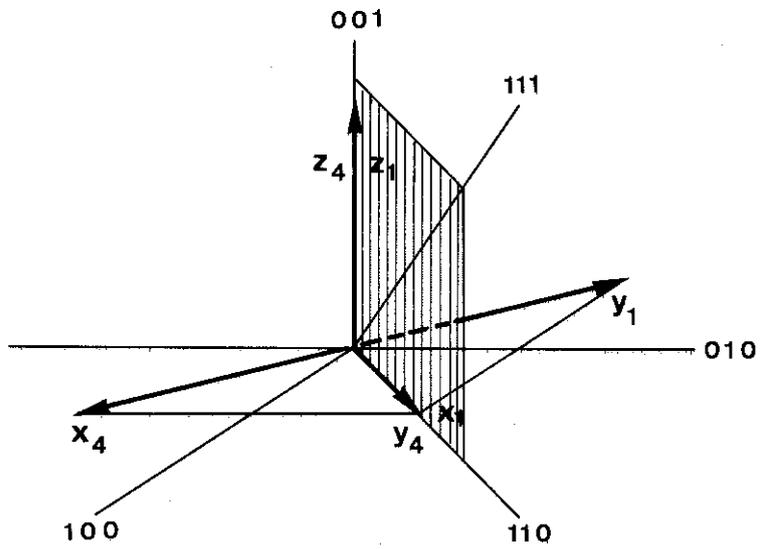


Figure E2 : Repères R1 et R4

T A B L E A U E

Site {q}	{1}	{2}	{3}	{4}	{5}	{6}
repère	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆
Ox	110	011	101	1 $\bar{1}$ 0	01 $\bar{1}$	$\bar{1}$ 01
Oy	$\bar{1}$ 10	0 $\bar{1}$ 1	10 $\bar{1}$	110	011	101
Oz	001	100	010	001	100	010
u _{xq}	$\frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_2 + \alpha_3}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_3 + \alpha_1}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_1 - \alpha_2}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_2 - \alpha_3}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_3 - \alpha_1}{\sqrt{2}}$
u _{yq}	$\frac{\alpha_2 - \alpha_1}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_3 - \alpha_2}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_1 - \alpha_3}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_2 + \alpha_3}{\sqrt{2}}$	$\frac{\alpha_3 + \alpha_1}{\sqrt{2}}$
u _{zq}	α_3	α_1	α_2	α_3	α_1	α_2
Herpin [99]	A ₃ - D ₃	A ₁ - D ₁	A ₂ - D ₂	B ₃ - C ₃	B ₁ - C ₁	B ₂ - C ₂
Pearson [28]	1	3	5	2	4	6
Bertaut, Tchéou [131]	C ₃	C ₁	(-)C ₂	(-)C ₃ '	C ₁ '	C ₂ '

• Axe de quantification : $\vec{\Delta}_q = (\mu_B \vec{H} g + \vec{u} G)_q$ (E1)

• Niveau d'énergie : $E_q = E_0 \pm \frac{1}{2} \Delta_q$ (E2)
(on suppose un spin fictif $S = \frac{1}{2}$)

• Ecartement des niveaux : $\Delta_q = |\vec{\Delta}_q| = \sqrt{\sum_{\alpha} \Delta_{\alpha}^2}$ (E3)

• Composantes de Δ_q dans R_q : $\Delta_{\alpha} = \mu_B H_{\alpha} g_{\alpha} + u_{\alpha} G_{\alpha}$ (E4)

• Composantes du moment $\vec{\mu}_q$ dans R_q :

$$\mu_{\alpha} = - \frac{\partial E}{\partial H_{\alpha}} = \frac{1}{2} \frac{\partial \Delta}{\partial H_{\alpha}} = \frac{1}{2} \frac{\Delta_{\alpha} g_{\alpha}}{\Delta} \mu_B$$
 (E5)

• Aimantation macroscopique sur le site q :

$$\vec{M}_q = N \vec{\mu}_q \text{th} \frac{\Delta_q}{2kT}$$
 (E6)

N est le nombre de formules $R_6Fe_{10}O_{24}$ considérées.

2 - CALCUL DES Δ_q ET DES MOMENTS DANS LES PHASES COAXIALES

Si T_c est la température de compensation, alors :

$$\vec{H} = \begin{cases} H\vec{u} & T < T_c \\ -H\vec{u} & T > T_c \end{cases}$$

En omettant toujours l'indice q :

$$\vec{\Delta} = \vec{u}(G \pm g \mu_B H)$$
 (E7)

$$\mu_{\alpha} = \frac{1}{2} \mu_B \cdot \frac{G_{\alpha} \pm g_{\alpha} \mu_B H}{\Delta} g_{\alpha} u_{\alpha}$$
 (E8)

La projection du moment sur \vec{u} est :

$$\mu_u = \frac{\mu_B}{2\Delta} (\sum_{\alpha} g_{\alpha} G_{\alpha} u_{\alpha}^2 \pm \mu_B H \sum_{\alpha} g_{\alpha}^2 u_{\alpha}^2)$$
 (E9)

Les valeurs en champ nul de Δ et μ_u sont :

$$\Delta^0 = \sqrt{\sum_{\alpha} G_{\alpha}^2 u_{\alpha}^2}$$
 (E10)

$$\mu_u^0 = \mp \frac{\mu_B}{2\Delta^0} \sum_{\alpha} g_{\alpha} G_{\alpha} u_{\alpha}^2$$
 (E11)

L'aimantation totale selon \vec{u} pour chaque site est :

$$M_u = N \mu_u \text{th} \frac{\Lambda}{2kT} \quad (\text{E12})$$

L'aimantation résultante totale selon \vec{u} est :

$$M_{tu} = \sum_q M_u \quad (\text{E13})$$

Lorsque \vec{u} est dans le plan $\bar{1}\bar{1}0$, les sites {2} et {3} d'une part et {5} et {6} d'autre part sont équivalents. Lorsque \vec{u} est dirigé selon [111], le nombre de sites inéquivalents se réduit à deux que nous notons {a} et {b} :

$$\begin{aligned} \vec{u} // [111] \quad \{a\} &= \{1\} \leftrightarrow \{2\} \leftrightarrow \{3\} \\ \{b\} &= \{4\} \leftrightarrow \{5\} \leftrightarrow \{6\} \end{aligned}$$

Pour la direction [111], à $T = 0$ et $H = 0$ l'aimantation résultante totale se met sous la forme :

$$M_{111}^0 = 3N \mu_B \left[\frac{g_x G_x}{\Delta_a^0} + \frac{g_y G_y}{\Delta_b^0} + \frac{g_z G_z}{2} \left(\frac{1}{\Delta_a^0} + \frac{1}{\Delta_b^0} \right) \right] \quad (\text{E14})$$

3 - DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE LIBRE A HAUTE TEMPERATURE

$$\begin{aligned} F_R &= - \beta^{-1} \sum_{q=1}^6 \text{Log} 2 \text{Ch} \frac{\beta \Delta_q}{2}, \quad \left(\beta = \frac{1}{kT} \right) \quad (\text{E15}) \\ &= - 6 \beta^{-1} \text{Log} 2 - \beta^{-1} \sum_q \text{Log} \text{Ch} \frac{\beta \Delta_q}{2} \end{aligned}$$

La fonction $\text{Log Ch } x$ est développable en série pour $x < 2$:

$$\text{Log Ch } x = \frac{1}{2} x^2 - \frac{1}{12} x^4 + \frac{1}{45} x^6 - \frac{17}{2520} x^8 + \dots \quad (\text{E16})$$

d'où :

$$F_R = - 6 \beta^{-1} \text{Log} 2 - \frac{\beta}{2} \sum_q \left(\frac{\Delta_q}{2} \right)^2 + \frac{\beta^3}{12} \sum_q \left(\frac{\Delta_q}{2} \right)^4 - \frac{\beta^5}{45} \sum_q \left(\frac{\Delta_q}{2} \right)^6 + \dots \quad (\text{E17})$$

α_1 , α_2 et α_3 étant les cosinus directeurs de la direction \vec{u} par rapport aux axes du cristal, on a :

$$\Delta_1^2 = \left(\frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\sqrt{2}} \right)^2 G_x^2 + \left(\frac{\alpha_2 - \alpha_1}{\sqrt{2}} \right)^2 G_y^2 + \alpha_3^2 G_z^2$$

Il suffit de remarquer que la symétrie ternaire autour de [111] correspond à une permutation circulaire sur les $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, et que la symétrie qui fait correspondre les sites par rotation de $\pi/2$ autour de l'axe quaternaire commun se traduit par la permutation de G_x et G_y , d'où :

$$\Delta_4^2 = \left(\frac{\alpha_1 - \alpha_2}{\sqrt{2}} \right)^2 G_x^2 + \left(\frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\sqrt{2}} \right)^2 G_y^2 + \alpha_3^2 G_z^2$$

$$\Sigma \Delta_q^2 = \Delta_1^2 + \Delta_4^2 + \bigcirc (= \text{permutation circulaire/ } \alpha_1 \alpha_2 \alpha_3)$$

$$= 2(G_x^2 + G_y^2 + G_z^2)(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2)$$

$$\Sigma \Delta_q^4 = \Delta_1^4 + \Delta_4^4 + \bigcirc$$

$$= (G_x^4 + G_y^4 + 2G_z^4 + 2G_x^2 G_y^2)(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2)$$

$$+ 16 \left[\left(\frac{G_x^2 + G_y^2 + 2G_z^2}{4} \right)^2 - \frac{G_z^4 + G_x^2 G_y^2}{2} \right] (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2)$$

$$\text{En notant } P_2 = \alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 \equiv 1$$

$$P_4 = \alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2$$

$$P_6 = \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2$$

et les $Q_{n,1}(G_x, G_y, G_z)$ tels que :

$$F_R = -6 \beta^{-1} \text{Log } 2 + \sum_1 \sum_{n \geq 1} \beta^{2n-1} Q_{n,1+1} \cdot P_{21+2} \quad (\text{E18})$$

$$Q_{1,1} = -\frac{1}{4} (G_x^2 + G_y^2 + G_z^2)$$

$$Q_{2,1} = \frac{1}{12 \times 16} (G_x^4 + G_y^4 + 2G_z^4 + 2G_x^2 G_y^2)$$

$$Q_{2,2} = \frac{1}{12 \times 16} \left[G_x^4 + G_y^4 - 4G_z^4 + 4G_z^4 (G_x^2 + G_y^2) - 6G_x^2 G_y^2 \right]$$

$$Q_{3,1} = -\frac{1}{45 \times 64} \left[\frac{1}{2} (G_x^6 + G_y^6) + 2G_z^6 + \frac{3}{2} G_x^2 G_y^2 (G_x^2 + G_y^2) \right]$$

$$Q_{3,2} = - \frac{1}{45x64} \left[\frac{9}{4} (G_x^6 + G_y^6) - 6G_z^6 - \frac{21}{4} G_x^2 G_y^2 (G_x^2 + G_y^2) + 3G_z^4 (G_x^2 + G_y^2) \right. \\ \left. + \frac{3}{2} G_z^2 (G_x^4 + G_y^4) + 3G_x^2 G_y^2 G_z^2 \right]$$

$$Q_{3,3} = - \frac{1}{45x64} \left[6G_z^6 - \frac{39}{4} (G_x^6 + G_y^6) + \frac{27}{4} G_x^2 G_y^2 (G_x^2 + G_y^2) \right. \\ \left. - 9G_z^4 (G_x^2 + G_y^2) + \frac{45}{2} G_z^2 (G_x^4 + G_y^4) - 27 G_x^2 G_y^2 G_z^2 \right]$$

Etant donné le rôle particulier de G_z dans ces expressions, l'anisotropie du tenseur G peut se représenter par les quantités :

$$X = \left(\frac{G_x}{G_z} \right)^2 \quad \text{et} \quad Y = \left(\frac{G_y}{G_z} \right)^2$$

d'où, pour les termes principaux du développement haute température

$$Q_{2,2} = \frac{G_z^4}{192} (X^2 + Y^2 - 6XY + 4X + 4Y - 4)$$

$$Q_{3,3} = \frac{G_z^6}{2880} \left[\frac{39}{4} (X^3 + Y^3) - \frac{27}{4} XY(X+Y) - \frac{45}{2} (X^2 + Y^2) + 27XY + 9(X+Y) - 6 \right]$$

Pour discuter le signe de ces expressions, il est commode de faire le changement d'axe défini par la transformation :

$$\begin{aligned} x &= \frac{1}{\sqrt{2}} (X+Y) & Y &= \frac{1}{\sqrt{2}} (x+y) \\ y &= \frac{1}{\sqrt{2}} (Y-X) & X &= \frac{1}{\sqrt{2}} (x-y) \end{aligned}$$

Les expressions deviennent :

$$Q_{2,2} = \frac{G_z^4}{48} \left(y - \frac{x}{\sqrt{2}} + 1 \right) \left(y + \frac{x}{\sqrt{2}} - 1 \right)$$

$$Q_{3,3} = \frac{G_z^6}{2880} (x - \sqrt{2}) \left[\frac{3}{\sqrt{2}} (x - \sqrt{2})^2 + 18\sqrt{2} y^2 \right]$$

Les équations $Q_{2,2} = 0$ et $Q_{3,3} = 0$ représentent des droites concourantes du plan xy et les combinaisons de signes correspondant aux 6 régions ainsi délimitées sont données sur la figure E3.

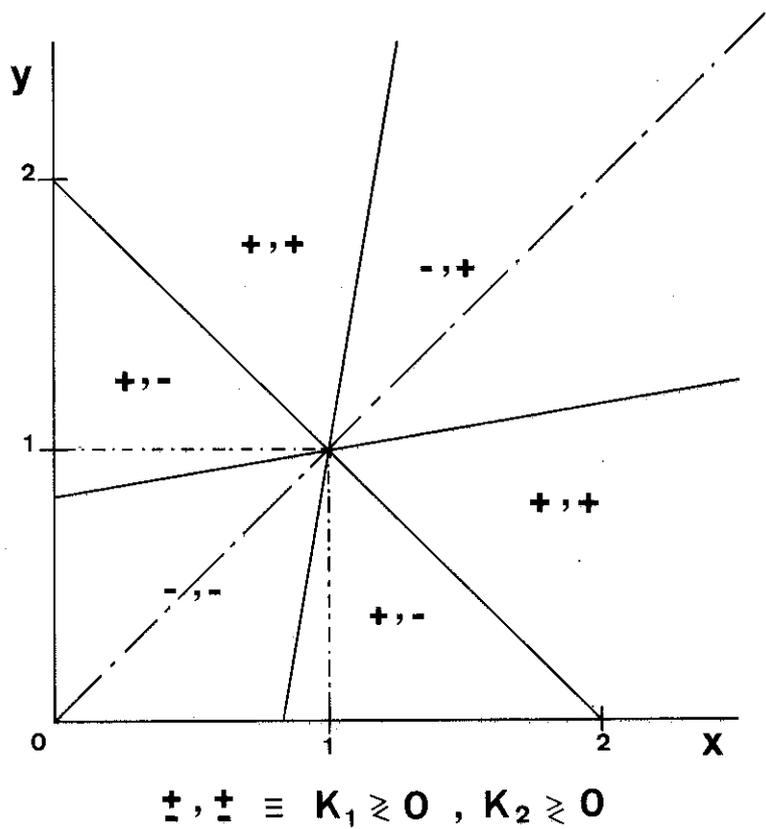


Figure E3 : Discussion des signes de K_1 et K_2 à haute température

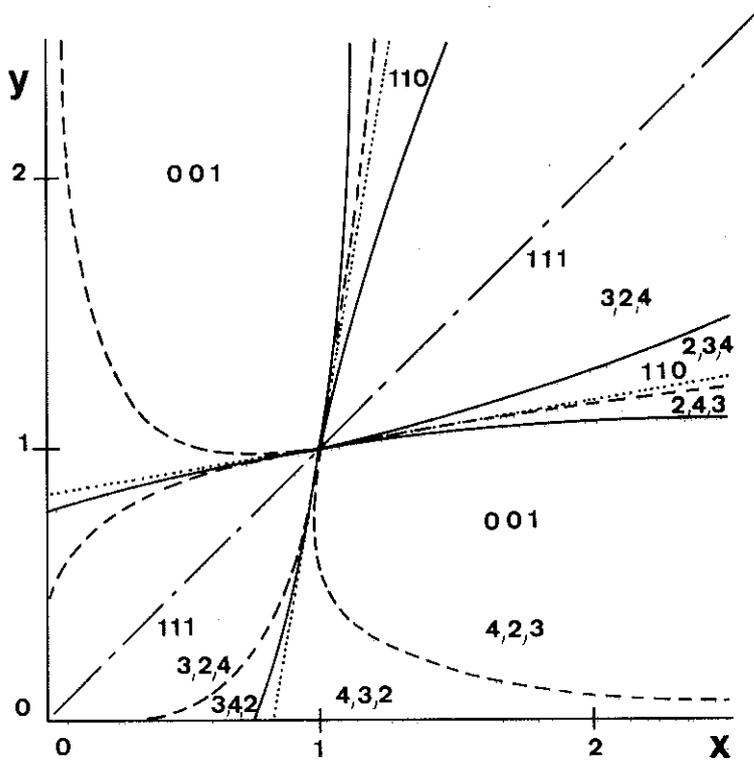


Figure E4 : Discussion des axes de facile aimantation à basse température

4 - DIRECTION DE PLUS FACILE AIMANTATION A BASSE TEMPERATURE

L'énergie libre des ions terre rare a pour expression limite quand $T \rightarrow 0$ K :

$$F_R = - \frac{1}{2} \sum \Delta_q \quad (E19)$$

Soit en utilisant les mêmes notations :

$$\begin{aligned} F_{001} &= - \frac{G_z}{2} \left(2 + 4 \sqrt{\frac{X+Y}{2}} \right) \\ F_{111} &= - \frac{G_z}{2} \left(3 \sqrt{\frac{2X+1}{3}} + 3 \sqrt{\frac{2Y+1}{3}} \right) \\ F_{110} &= - \frac{G_z}{2} \left(\sqrt{X} + \sqrt{Y} + 4 \sqrt{\frac{X+Y+2}{4}} \right) \end{aligned} \quad (E20)$$

La comparaison numérique de ces trois expressions permet de déterminer dans le plan (X,Y) les régions correspondant aux différents axes de facile aimantation. Elles sont représentées sur la figure E4. La notation symbolique 324 pour une région signifie que l'inégalité $F_{111} < F_{110} < F_{001}$ y est vérifiée. On remarque que l'allure générale est très proche de la discussion haute température ; notamment la région où [111] est favorable subit peu de modifications. On note en outre que la région 110 est très restreinte.

5 - CALCUL DES CHAMPS D'ECHANGE MOYENS

5-1 - Définition de H_{mo}

$$\text{Soit : } H_{mo} = \frac{g_x G_x + g_y G_y + g_z G_z}{\mu_B (g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)} \quad (E21)$$

Remarquons que les sommes suivantes ne dépendent pas de la direction \vec{u} :

$$\sum_q \left(\sum_{\alpha} g_{\alpha}^2 u_{\alpha}^2 \right) = 2(g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)$$

et

$$\sum_q \left(\sum_{\alpha} g_{\alpha} G_{\alpha} u_{\alpha}^2 \right) = 2(g_x G_x + g_y G_y + g_z G_z)$$

Si $\frac{\Delta q}{2kT}$ est suffisamment petit pour qu'on puisse remplacer $\text{th} \frac{\Delta q}{2kT}$ par $\frac{\Delta q}{2kT}$, l'aimantation résultante suivant \vec{u} dans une phase coaxiale au-dessus de T_c se met alors sous la forme suivante :

$$M_{tu} \neq \frac{N \sum \Delta_q^0 \mu_q^0}{4kT} \left(1 - \frac{H}{H_{mo}} \right) \quad (E22)$$

(à partir des relations E9, E12 et E13 du § 2).

L'approximation faite est toujours excellente lorsque H est voisin de H_{mo} car alors les Δ_q sont devenus très petits. H_{mo} est donc le champ pour lequel l'aimantation résultante des ions terre rare est nulle. Il a la même signification que le champ moléculaire moyen que nous utilisons au chapitre IV et qui est par définition celui pour lequel l'aimantation totale du ferrite est égale à l'aimantation des ions fer dans une phase colinéaire. Remarquons que M_{tu} s'annule pour $H = H_{mo}$ quelle que soit la phase coaxiale considérée.

Cherchons une valeur approchée de H_{mo} à partir des données suivant [111] à basse température.

On a :

$$\begin{aligned} H_{mo} &= 3 \frac{\Delta_a^0 \mu_a^0 + \Delta_b^0 \mu_b^0}{\mu_B^2 (g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)} \\ &= \frac{3}{2} \frac{(M_a^0 + M_b^0)(\Delta_a^0 + \Delta_b^0) + (M_a^0 - M_b^0)(\Delta_a^0 - \Delta_b^0)}{N \mu_B^2 (g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)} \end{aligned}$$

Soit finalement :

$$H_{mo} \neq \frac{M_{111}^0}{N \mu_B^2 (g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)} \cdot \frac{\Delta_a^0 + \Delta_b^0}{2} \quad (E23)$$

Evaluons l'erreur relative commise

$$\frac{\Delta H}{H} \sim \frac{3 |M_a^0 - M_b^0| |\Delta_a^0 - \Delta_b^0|}{M_{111}^0 (\Delta_a^0 + \Delta_b^0)}$$

dans le cas de YbIG, $\Delta_a^0 + \Delta_b^0 \sim 50 \text{ cm}^{-1}$

$$M_{111}^0 \sim 10 \mu_B, \quad |M_a^0 - M_b^0| < 0,2 \mu_B$$

et $|\Delta_a^0 - \Delta_b^0| \sim 3 \text{ cm}^{-1}$, d'où : $\frac{\Delta H}{H} < 0,5 \%$

5-2 - Définition de H_{mc} à partir de l'effet magnétocalorique

L'entropie des 6 sous-réseaux d'ions terre rare est :

$$S_R = \sum_q S_q = \sum_q k \left[\text{Log } 2 \text{ Ch } \frac{x_q}{2} - \frac{x_q}{2} \text{ th } \frac{x_q}{2} \right] \quad (\text{E24})$$

où $x_q = \frac{\Delta_q}{2kT}$. La pente des isentropes se calcule aisément dans l'hypothèse où seule l'entropie S_R intervient :

$$\begin{aligned} \left(\frac{dT}{dH} \right)_{S_R} &= - \frac{\partial_H S_R}{\partial_T S_R} = - \frac{\partial_H (\sum x_q)}{\partial_T (\sum x_q)} = + \frac{T \partial_H (\sum \Delta_q)}{\sum \Delta_q} \\ &= \pm \frac{T \sum 2\mu_q u}{\sum \Delta_q} \end{aligned}$$

pour $H = 0$ et $\vec{u} // [111]$

$$\frac{1}{T} \left(\frac{dT}{dH} \right)_0 = 2 \frac{\mu_a^0 + \mu_b^0}{(\Delta_a^0 + \Delta_b^0)} = \frac{2}{3N} \cdot \frac{M_{111}^0}{\Delta_a^0 + \Delta_b^0} \quad (\text{E25})$$

Cette relation définit un champ effectif moyen à $H = 0$ et $T \neq 0$:

$$H_{mc} = \frac{3N}{2} \frac{\Delta_a^0 + \Delta_b^0}{M_{111}^0} \quad (\text{E26})$$

Cela revient à mettre l'énergie d'échange des ions terre rare sous la forme :

$$- \frac{1}{2} \sum \Delta_q = E_R = - H_{mc} M_{111}^0 = - \vec{H}_{eff} \cdot \vec{M}_R$$

On en déduit un ordre de grandeur de la susceptibilité perpendiculaire dans un modèle équivalent à deux sous-réseaux :

$$\chi_{\perp} = \frac{1}{|n|} = \frac{M_{Fe}}{H_{mc}}$$

6 - CALCUL ANALYTIQUE DES GRANDEURS THERMODYNAMIQUES

L'énergie libre F est une fonction d'état qui dépend des variables T , \vec{H} et \vec{u} . Les minima locaux par rapport à la direction \vec{u} sont trouvés par les équations :

$$\frac{\vec{\partial} F}{\partial \vec{u}} = 0 \quad (E27)$$

A chaque minimum local, correspond une direction $\vec{u}_k(T, \vec{H})$ définie implicitement par (E27) et une phase stable dont l'énergie libre est :

$$F_k(T, \vec{H}) = F(T, \vec{H}, \vec{u}_k) \quad (E28)$$

Les grandeurs thermodynamiques de cette phase s'obtiennent par dérivation de F_k .

Dans le cas simplifié où la direction \vec{u} est repérée dans le plan $1\bar{1}0$ par l'angle $\varphi = ([110], \vec{u})$, on obtient les expressions suivantes pour :

$$\text{- l'énergie libre } F_k(T, \vec{H}) = \begin{cases} F(T, \vec{H}, \varphi_k) \\ \varphi_k(T, \vec{H}) \equiv \frac{\partial F}{\partial \varphi} = 0 \end{cases} \quad (E29)$$

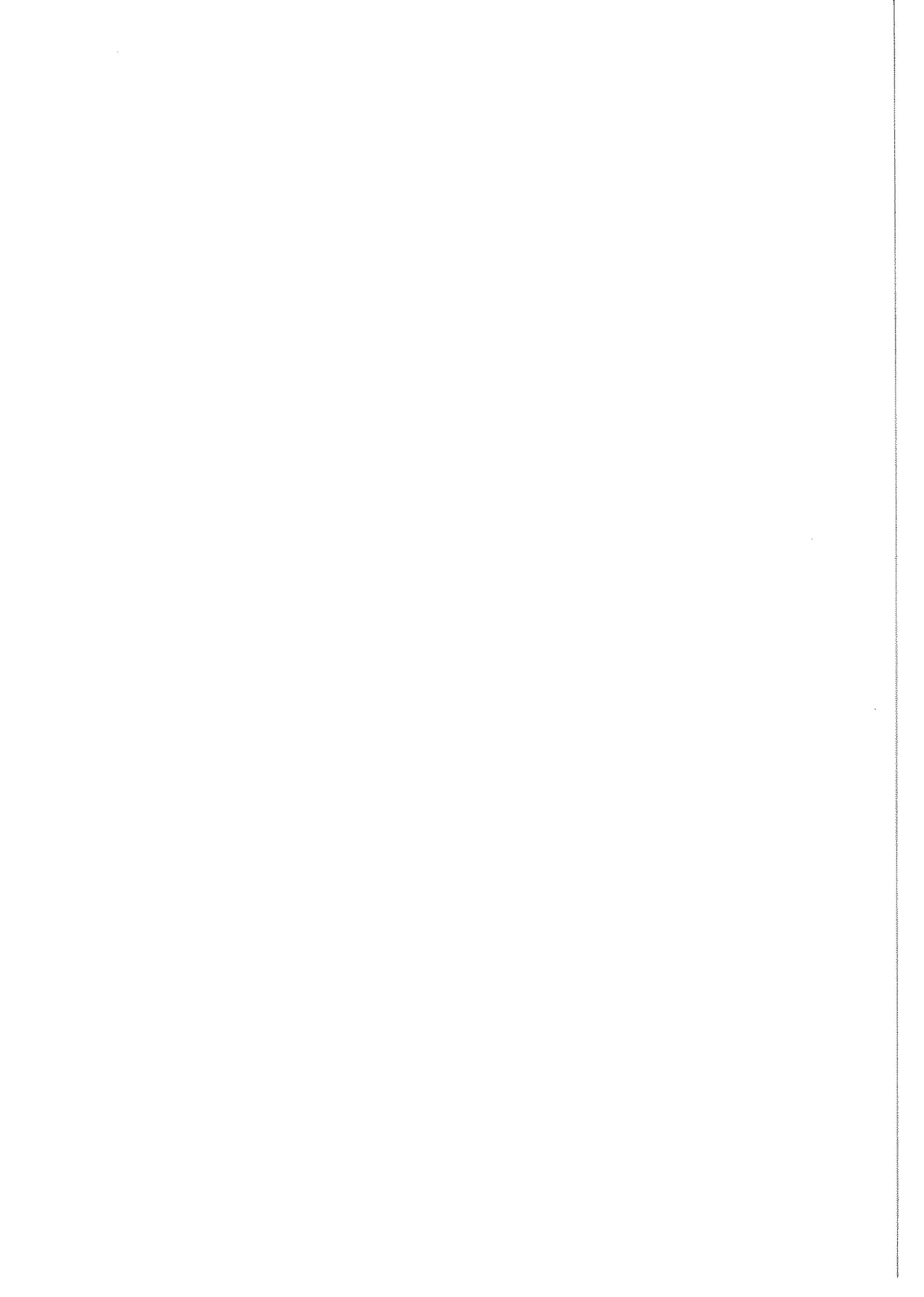
- la chaleur spécifique :

$$C_k = - T \frac{\partial^2 F_k}{\partial T^2} = - T \frac{\partial^2 F}{\partial T^2} + T \frac{\left(\frac{\partial^2 F}{\partial T \partial \varphi} \right)^2}{\frac{\partial^2 F}{\partial \varphi^2}} \quad (E30)$$

- le tenseur de susceptibilité

$$\chi_k = - \left(\frac{\vec{\partial}}{\partial \vec{H}} \circ \frac{\vec{\partial}}{\partial \vec{H}} \right) F_k \quad (E31)$$

$$(\chi_k)_{ij} = - \frac{\partial^2 F}{\partial H_i \partial H_j} + \frac{\partial^2 F}{\partial H_i \partial \varphi} \frac{\frac{\partial^2 F}{\partial H_j \partial \varphi}}{\frac{\partial^2 F}{\partial \varphi^2}}$$





- 11 - K.S.W. CHAMPION
Proc. Phys. Soc., B 63, 795 (1950).
- 12 - N. PERRIN et B. PERRIN
J. Phys. (Phys. Appl.), 25, 168A (1964).
- 13 - J.P. KREBS
Thèse, Orsay (1968).
Y. ALLAIN, J. DE GUNZBOURG, J.P. KREBS et A. MIEDAN-GROS
Rev. Sci. Instr., 39, 1360 (1968).
- 14 - J.C.A. VAN DER SLUIJS, H.R. DE BEUN, B.A. ZWEERS et D. DE KLERK
Bull. Belg. Phys. Soc. Ser. V, N° 2-3, 165 (1966).
- 15 - S. FONER
Les champs magnétiques intenses (Ed. C.N.R.S., Paris, 1967)p.385.
- 16 - A. VAN ITTERBEEK, W. VAN DRIESSCHE, I. DE GRAVE et H. MYNCKE
Les champs magnétiques intenses (Ed. C.N.R.S., Paris, 1967)p.379.
- 17 - H.P. FURTH et R.W. WANIEK
Rev. Sci. Instr., 27, 195 (1956).
- 18 - S. FONER et H.H. KOLM
Rev. Sci. Instr., 28, 799 (1957).
- 19 - S. FONER et W.G. FISCHER
Rev. Sci. Instr., 38, 440 (1967).
- 20 - R. STEVENSON
Can. J. Phys., 39, 367 (1961).
- 21 - M. GUILLOT
Thèse, Grenoble (1966).
M. GUILLOT et R. PAUTHENET
C. R. Acad. Sc. Paris, 258, 3242 (1964).
- 22 - Y. CROS, M. GUILLOT et R. PAUTHENET
Les champs magnétiques intenses (Ed. C.N.R.S., Paris, 1967),p.391.
- 23 - W.R. SMYTHE
Static and dynamic electricity (2nd Ed, McGraw-Hill, New York,
1953).
- 24 - Référence 6, p. 67.

- 25 - Référence 6, p. 56.
- 26 - Référence 6, p. 77.
- 27 - S. TIMOSHENKO
Théorie de l'élasticité (Librairie Polytechnique Ch. Béranger,
1961), p. 64 et 445.
- 28 - A.A. KUZNETSOV
Sov. Phys. Technic. Phys., 5, 555 (1960), et 6, 687 (1960).
- 29 - B. LEON
Rev. Gén. de l'Electricité, 73, 632 (1964).
- 30 - L.M. BARKOV, S.Kh. KHAKIMOV, et V.V. OGURTZOV
Les champs magnétiques intenses (Ed. C.N.R.S., Paris, 1967)p.409.
- 31 - P.H. BURNIER, J.L. MOREAU et J.P. LEHMANN
Advances in Cryogenic Engineering, 15, 76 (1970).
- 32 - R. STEVENSON
Rev. Sci. Instr., 32, 28 (1961).
- 33 - J. DE GUNZBOURG
Thèse, Orsay (1970).
J. DE GUNZBOURG, S. PAPASSIMACOPOULOS, A. MIEDAN-GROS et Y. ALLAIN
J. Phys. 32, C1-125 (1971).
- 34 - I.S. JACOBS et P.E. LAWRENCE
Phys. Rev., 164, 866 (1967).
- 35 - E.W. FROWE et C.J. ARONSON
J. Appl. Phys., 16, 667 (1945).
- 36 - R. GERSDORF, F.A. MULLER et L.W. ROELAND
Les champs magnétiques intenses (Ed. C.N.R.S., Paris, 1967)p.185.
- 37 - J.R. CLEMENT et E.H. QUINNEL
Rev. Sci. Instr., 23, 213 (1952).
- 38 - R.F. PEARSON
J. Appl. Phys., Suppl., 33, 1236 (1962).
- 39 - P. ESCUDIER
Thèse, Grenoble (1973).

- 40 - J.P. REBOUILLAT
Thèse, Grenoble (1972).
- 41 - R. PAUTHENET
Ann. Phys. Fr., 3, 424 (1958).
- 42 - J. DEPORTES
Thèse, Grenoble (1971).
- 43 - S. GESCHWIND
Phys. Rev., 121, 363 (1961).
- 44 - S. GELLER, H.J. WILLIAMS, R.C. SHERWOOD, J.P. REMEIKA et
G.P. ESPINOSA
Phys. Rev., 131, 1080 (1963).
- 45 - F.W. HARRISON, J.F.A. THOMPSON et K. TWEEDALE
Proc. Int. Conf. on Magnetism, 664 (1964).
- 46 - E.E. ANDERSON
Phys. Rev., 134 A, 1581 (1964).
D.F. STENZWILZ et E.E. ANDERSON
Phys. Rev., 175, 654 (1968).
- 47 - R. GONANO, E. HUNT et H. MEYER
Phys. Rev., 156, 521 (1967).
- 48 - T.D. ZOTOV et M.M. SUKROVTSEVA
Sov. Phys. Sol. State, 11, 521 (1969).
- 49 - F.W. GROVER
Inductance calculation (Van Nostrand, New York, 1947).
- 50 - C. FABRY
Propagation de la chaleur (Armand Colin, Paris, 1949).
- 51 - H.S. CARSLAW et J.C. JAEGER
Conduction of heat in solids (2nd Ed., Oxford, Univ. Press,
London, 1959).
- 52 - C.P. BEAN, R.W. DE BLOIS et L.B. NESBITT
J. Appl. Phys., 30, 1976 (1959).
- 53 - A.F. CLARK, V.A. DEASON et R.L. POWELL
Cryogenics, 12, 687 (1972).

- 54 - J. LE PAGE, A. BERNALTE et D.A. LINDHOLM
Rev. Sci. Instr., 30, 1019 (1968).
- 55 - P. LETHUILLIER, J. PIERRE, G. FILLION et B. BARBARA
Phys. Stat. Sol.(a), 15, 613 (1973).
- 56 - G.K. WHITE
Thermal conductivity, vol. I (TYE R.P. Ed., Academic Press, 1969).
- 57 - G.A. SLACK et D.W. OLIVER
Phys. Rev., 4 B, 592 (1971).
- 58 - G. DE VRIES, E.J. VERMEY, L.W. ROELAND et A.R. MIEDEMA
J. Appl. Phys., 39, 830 (1968).
- 59 - K.W. BLAZEY, H. ROHRER et R. WEBSTER
Phys. Rev., 4 B, 2287 (1971).
- 60 - I.S. JACOBS et P.E. LAWRENCE
Phys. Rev., 164, 866 (1967).
- 61 - L. NEEL
Nuovo Cimento, 65, 942 (1957).
- 62 - F.B. ANDERSON et H.B. CALLEN
Phys. Rev., 136 A, 1068 (1964).
- 63 - A.I. MITSEK, P.F. GAIDANSKII et V.N. PUSHKAR
Phys. Stat. Sol., 38, 69 (1970).
- 64 - B. BARBARA, G. FILLION, D. GIGNOUX et R. LEMAIRE
Sol. Stat. Commun., 10, 1149 (1972).
- 65 - T. EGAMI
17th Conf. on Magnetism and Magnetic Materials (1971)
A.I.P. Proceedings (1972).
- 66 - B. BARBARA
Thèse, Grenoble (1972).
- 67 - T. EGAMI
Phys. Stat. Sol. (b), 57, 211 (1973).
- 68 - I.M. LIFSHITZ et Yu. KAGAN
Sov. Phys., J.E.T.P., 35, 206 (1972).

- 69 - A. SCHLACHETZKI et J. ECKERT
Phys. Stat. Sol. (a), 11, 611 (1972).
- 70 - J.L. FERON, G. FILLION et G. HUG
J. Phys., 34, 247 (1973).
- 71 - L. NEEL
Ann. Phys., 3, 137 (1948).
- 72 - S.V. TYABLIKOV
Fiz. Metal. i Metalloved, 3, 3 (1956).
- 73 - E. SCHLÖMANN
Sol. Stat. Conference, Bruxelles (1958)
et Colloque International de Magnétisme, (Ed. C.N.R.S., Paris,
1959) p. 295.
- 74 - E. SCHLÖMANN
Solid state physics in electronics and telecommunications, Vol.3,
part 1 (Academic Press, New York, 1960).
- 75 - A.A. GUSEV
Sov. Phys. Crystallog., 4, 655 (1960).
- 76 - A.A. GUSEV et A.S. PAKHOMOV
Izu. Akad. Navk.U.S.S.R., Ser. Fiz., 11, 1327 (1961).
- 77 - A.S. PAKHOMOV et A.A. GUSEV
Fiz. Metal. i Metalloved, 18, 156 (1964).
- 78 - R. PERTHEL
Mber. Dt. Akad. Wiss., 5, 611 (1963).
- 79 - R. PERTHEL
Mber. Dt. Akad. Wiss., 6, 499 (1964).
- 80 - R. PERTHEL
Mber. Dt. Akad. Wiss., 7, 348 (1965).
- 81 - G. MUNSCHY
C. R. Acad. Sc. Paris, 260, 2147 (1965).
- 82 - G. MUNSCHY
C. R. Acad. Sc. Paris, 260, 2743 (1965).

- 83 - A.E. CLARK et E. CALLEN
J. Appl. Phys., 39, 5972 (1968).
- 84 - A.E. CLARK et E. CALLEN
Phys. Rev. Letters, 23, 307 (1969).
- 85 - J.H. SCHELLENG et A.E. CLARK
Phys. Letters, 29 A, 172 (1969).
- 86 - A.E. CLARK et R.S. ALBEN
J. Appl. Phys., 41, 1195 (1970).
- 87 - R.A. BUCHANAN et A.E. CLARK
Sol. Stat. Commun., 7, 1087 (1969).
- 88 - L.M. LEVINSON, R.S. ALBEN et I.S. JACOBS
A.I.P. Conf. Proc., 5, Magnetism and Magnetic Materials,
Chicago (1971).
- 89 - K.P. BELOV
"Les ferrites dans les champs magnétiques intenses",
(Ed. Scientifiques NAVKA, Moscou, 1972, en russe).
- 90 - K.P. BELOV, L.A. CHERNIKOVA, E.V. TALALAEVA, R.Z. LEVITIN,
T.V. KUDRYAVTSEVA, S. AMADESI et V.I. IVANOVSKII
Sov. Phys. J.E.T.P., 31, 1035 (1970).
- 91 - R.Z. LEVITIN, B.K. PONOMAREV et Yu. F. POPOV
Sov. Phys. J.E.T.P., 32, 1056 (1971).
- 92 - R. PAPPALARDO et D.L. WOOD
J. Chem. Phys., 33, 1734 (1960).
- 93 - M.T. HUTCHINGS et W.P. WOLF
J. Chem. Phys., 41, 617 (1964).
- 94 - K.A. WICKERSHEIM et R.L. WHITE
Phys. Rev. Letters, 8, 483 (1962).
- 95 - A.J. SIEVERS III et M. TINKHAM
Phys. Rev., 129, 1995 (1963).
- 96 - W.P. WOLF
Proc. Phys. Soc., 74, 665 (1959).

- 97 - J. VILLAIN
J. Phys. Chem. Solids, 11, 303 (1959).
- 98 - G. AUBERT
Communication personnelle.
- 99 - A. HERPIN
Théorie du magnétisme (Institut National des Sciences et
Techniques Nucléaires, Saclay, 1968).
- 100 - G. FILLION et G. HUG
C. R. Acad. Sc. Paris, 271, 1045 (1970).
- 101 - J. BERNASCONI et D. KUSE
Phys. Rev., 3 B, 311 (1971).
- 102 - K.F. NIESSEN
Physica, 19, 445, 1035, 1127 (1953).
- 103 - B. BOUCHER, R. BUHL et M. PERRIN
J. Phys. Chem. Solids, 30, 2467 (1969).
- 104 - Y. YAFET et C. KITTEL
Phys. Rev., 87, 290 (1952).
- 105 - R. ALEONARD
J. Phys. Chem. Solids, 15, 167 (1960).
- 106 - E.E. ANDERSON
Proc. of the International Conference on Magnetism, Nottingham,
660 (1964).
- 107 - A.B. HARRIS et H. MEYER
Phys. Rev., 127, 101 (1962).
- 108 - I. NOWICK et S. OFER
Phys. Rev., 153, 410 (1967).
- 109 - V.E. RODE et A.V. VEDYAEV
Sov. Phys. J.E.T.P., 18, 286 (1964).
- 110 - G. BASSI
Acta Cryst., B24, 1358 (1968).
- 111 - Procédures Algol en analyse numérique.
(Ed. C.N.R.S., Paris, p. 172; 1967).

- 112 - P.D. GIANINO et N. GROSSBARD
J. Appl. Phys., 38, 129 (1967).
- 113 - R. PECHART
Thèse, Grenoble (1972).
- 114 - K.P. BELOV, E.V. TALALAEVA, L.A. CHERNIKOVA et V.I. IVANOVSKII
J.E.T.P. Letters, 7, 331 (1968).
- 115 - K.P. BELOV, E.V. TALALAEVA, L.A. CHERNIKOVA, V.I. IVANOVSKII
et T.V. KUDRYAVTSEVA
J.E.T.P. Letters, 9, 416 (1969).
- 116 - B. DREYFUS
C. R. Acad. Sc. Paris, 241, 552 (1955).
- 117 - P.J. WOJTOWICZ
J. Appl. Phys., 33 S, 1121 (1962).
- 118 - B.P. GORANSKII et A.K. ZVEZDIN
J.E.T.P. Letters, 10, 124 (1969).
- 119 - G. HUG
Thèse, Grenoble (1972).
- 120 - A.S. PAKHOMOV et V.A. GERBUTOV
Sov. Phys. Sol. Stat., 13, 7 (1971).
- 121 - A.K. ZVEZDIN et V.M. MATVEEV
Sov. Phys. J.E.T.P., 35, 140 (1972).
- 122 - W.P. WOLF
J. Phys., 32, C1-26 (1971).
- 123 - K.A. WICKERSHEIM
Phys. Rev., 122, 1376 (1961).
- 124 - B.E. RUBINSTEIN
Sov. Phys. Sol. Stat., 11, 1592 (1970).
- 125 - H. KAMIMURA et T. YAMAGUCHI
Phys. Rev., 1 B, 2902 (1970).
- 126 - E. ORLICH et S. HÜFNER
Z. Phys., 232, 418 (1970).

- 127 - P.M. LEVY
Phys. Rev., 135 A, 155 (1964).
- 128 - R.F. PEARSON
Proc. Phys. Soc., 86, 1055 (1965).
- 129 - A. HERPIN, W.C. KOEHLER et P. MERIEL
C. R. Acad. Sc. Paris, 251, 1359 (1960).
- 130 - S.J. PICKART, H.A. ALPERIN et A.E. CLARK
J. Appl. Phys., 41, 1192 (1970).
- 131 - F. TCHEOU, H. FUESS et E.F. BERTAUT
Sol. Stat. Commun., 8, 1751 (1970).
- 132 - G. AUBERT
Communication personnelle.

G. AUBERT
Thèse, Grenoble (1966).
- 133 - G.T. BOWDEN, D. St. P. BUNBURY et M.A.H. Mc CAUSLAND
J. Phys. C. : Sol. Stat. Phys., 4, 1840 (1971).
- 134 - S. GELLER, J.P. REMEIKA, R.C. SHERWOOD, H.J. WILLIAMS et
G.P. ESPINOSA
Phys. Rev., 137 A, 1034 (1965).
- 135 - F.W. HARRISON, J.F.A. THOMPSON et G.K. LANG
J. Appl. Phys., 36, 1014 (1965).
- 136 - J.L. FERON, G. FILLION et G. HUG
Z. Angew. Phys., 32-3, 219 (1971).
- 137 - K.P. BELOV et S.A. NIKITIN
Sov. Phys. J.E.T.P., 31, 505 (1970).
- 138 - B.P. GORANSKII et A.K. ZVEZDIN
Sov. Phys. J.E.T.P., 30, 299 (1970).
- 139 - G. AUBERT
2e thèse, Grenoble (1966).
- 140 - J.P. HANTON
I.E.E.E. Trans. Mag., 3, 505 (1967).

- 141 - K.P. BELOV
Izv. Akad. Nauk. U.S.S.R., Ser. Fiz., 11, 1320 (1961).
- 142 - K.P. BELOV et A.V. PED'KO
Sov. Phys. J.E.T.P., 12, 666 (1961).
- 143 - A.I. BELYAEVA, V.V. EREMENKO, V.N. PAVLOV et A.V. ANTONOV
Sov. Phys. J.E.T.P., 26, 1069 (1968).
- 144 - A.I. BELYAEVA, V.N. PAVLOV et A.V. ANTONOV
Sov. Phys. Sol. Stat., 10, 537 (1968).
- 145 - S. GESCHWIND et L.R. WALKER
J. Appl. Phys., 30, 163 S (1959).
- 146 - E.L. SMIRNOVA, V.I. SMIRNOV et Yu. I. UKHANOV
J.E.T.P. Letters, 11, 293 (1969).
- 147 - E.F. BERTAUT et F. FORRAT
C. R. Acad. Sc. Paris, 242, 382 (1956).
- 148 - E.F. BERTAUT, F. FORRAT, A. HERPIN et P. MERIEL
C.R. Acad. Sc. Paris, 243, 898 (1956).
- 149 - J.F. DILLON Jr. et L.R. WALKER
Phys. Rev., 124, 1401 (1961).
- 150 - J.H. VAN VLECK
Revista Matematica y Fisica Teorica, 14, 189 (1962)
Universidad de Tucuman, Argentina.
- 151 - K.A. WICKERSHEIM
Phys. Rev., 122, 1376 (1961).
- 152 - F. TCHEOU
Thèse, Grenoble (1972).
- 153 - Y. ALLAIN, M. BICHARA et A. HERPIN
J. Appl. Phys., 37, 1316 (1966).
- 154 - J. SIVARDIERE et F. TCHEOU
Sol. Stat. Commun., 9, 877 (1971).
- 155 - Y. AYANT et J. THOMAS
C. R. Acad. Sc. Paris, 250, 2688 (1960).

- 156 - J.L. FERON, G. FILLION, G. HUG, A. BERTON et J. CHAUSSY
Sol. Stat. Commun., 10, 641 (1972).
- 157 - W.P. WOLF, M. BALL, M.T. HUTCHINGS, M.J.M. LEASK et A.F. WYATT
J. Phys. Soc. Japan, Suppl., 17, 443 (1962).
- 158 - D. BOAKES, G. GARTON, D. RYAN et W.P. WOLF
Proc. Phys. Soc., 76, 663 (1959).
- 159 - J.W. CARSON et R.L. WHITE
J. Appl. Phys., 31, 53 S (1960).
- 160 - R. ALBEN
Phys. Rev., 2 B, 2767 (1970).
- 161 - J. MARESCHAL
Crystal Tec., C.E.N. Grenoble.
- 162 - M.E. CASPARI, A. KOICKI, S. KOICKI et G.T. WOOD
Phys. Letters, 11, 195 (1964).
- 163 - F. EULER et J.A. BRUCE
Acta Cryst., 19, 971 (1965)
- 164 - J. FILIPPI
Communication personnelle.
- 165 - I. NOWICK et S. OFER
Phys. Rev., 153, 410 (1967).
- 166 - F. SAYETAT
Thèse, Grenoble (1974).

