Effets de magnétostriction sur un monocristal d'oxyde de manganèse O à 77 K

Robert Georges, René R, R.C. Maury

► To cite this version:

Robert Georges, René R, R.C. Maury. Effets de magnétostriction sur un monocristal d'oxyde de manganèse O à 77 K. Journal de Physique, 1976, 37 (3), pp.213-217. 10.1051/jphys:01976003703021300 . jpa-00208412

HAL Id: jpa-00208412

<https://hal.science/jpa-00208412>

Submitted on 1 Jan 1976

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
Physics Abstracts
8.570

EFFETS DE MAGNÉTOSTRICITION SUR UN MONOCRISTAL D'OXYDE DE MANGANÈSE MnO A 77 K

R. GEORGES

Laboratoire de Recherches en Electrotechnique et Physique du Solide, Université de Bordeaux I
351, cours de la Libération, 33405 Talence, France

et

R. MAURY

Laboratoire de Magnétisme, C.N.R.S., avenue des Martyrs,
38000 Grenoble, France

(Reçu le 29 septembre 1975, accepté le 4 novembre 1975)

Résumé. — On étudie un monocristal d'oxyde de manganèse MnO rendu monodomaine T par application d'une contrainte uniaxiale. On présente des résultats de mesures magnétiques en champ variable. On étudie aussi la magnétostriction du monodomaine T rendu monodomaine S par application d'un champ magnétique intense. L'analyse des résultats montre que les effets observés ont leur origine dans le terme d'énergie magnétique dipolaire.

Abstract. — A single crystal of manganese oxide MnO , made a single T-domain by applying a uniaxial stress is studied. Results of magnetic measurements are presented. The magnetostriction of a single S-domain obtained by applying a strong magnetic field to the single T-domain is also considered. Analysing the results shows that the observed effects can be accounted for by the dipolar magnetic energy term.

1. Introduction. — L'oxyde de manganèse MnO est une substance antiferromagnétique dont la température de Néel est voisine de 118 K [1, 2, 3, 4]. Dans l'état paramagnétique, le réseau est cubique à faces centrées. Dans l'état ordonné, l'arrangement antiferromagnétique de seconde espèce [5, 6] est constitué d'un empilement de plans ferromagnétiques (111) alternés (Fig. 1). L'établissement de l'ordre magnétique s'accompagne d'une faible diminution

du paramètre cristallin et d'une déformation rhomboédrique qui se traduit par une diminution des distances entre plans ferromagnétiques (111) et une augmentation des distances à l'intérieur de ces plans [7].

Un monocristal de MnO refroidi, sans contraintes externes, au-dessous de la température de Néel, contient généralement un grand nombre de domaines associés aux quatre directions équivalentes des plans ferromagnétiques [8, 9] : ce sont les domaines antiferromagnétiques du type T. L'application d'une contrainte uniaxiale suivant un des axes [111] favorise les domaines T dont les plans ferromagnétiques sont perpendiculaires à cet axe. Une technique basée sur ce mécanisme a été mise au point et permet d'obtenir des monocristaux présentant les caractéristiques d'un monodomaine T [10, 11].

Dans un cristal monodomaine obtenu suivant cette technique, le terme d'énergie magnétostatique dipolaire maintient la direction d'antiferromagnétisme parallèle aux plans ferromagnétiques (111) [12]. Pour achever de définir cette direction, d'autres termes d'énergie doivent être considérés. Il peut s'agir de termes d'ordre élevé de l'énergie magnéto-cristalline du cristal parfait [13] ; dans ce cas, le

FIG. 1. — Structure magnétique de l'oxyde de manganèse.

nombre des directions équivalentes d'antiferromagnétisme est un multiple de 3 ; il peut s'agir aussi de termes résultant de déformations ou de défauts locaux. Dans ce cas l'anisotropie est probablement de caractère uniaxial, avec une direction de facile aimantation variable d'une région à l'autre du cristal. Quelle que soit l'hypothèse retenue, on prévoit une subdivision du domaine T en domaines de taille plus réduite dits domaines S, caractérisés par des orientations distinctes de la direction d'antiferromagnétisme.

Dans le travail présenté ici, nous avons agi sur la distribution des domaines S en appliquant un champ magnétique assez intense pour modifier les directions d'antiferromagnétisme (*spin-flopping*). L'action du champ appliqué est observée par des mesures de susceptibilité et de magnétostriction. Des mesures analogues avaient été effectuées sur l'oxyde de nickel en poudre ou monocristallin [14, 15].

2. Dispositif expérimental. — L'échantillon monocristallin est taillé en forme de cube dont les arêtes sont parallèles aux directions [111], [011] et [211]. Il est équipé de trois jauges de contrainte permettant de mesurer les allongements suivant ces trois axes. Trois autres jauges sont disposées sur un cube en cuivre de mêmes dimensions ; elles servent de référence et permettent d'éliminer les effets directs de la température et du champ magnétique appliqué. L'échantillon et la référence sont placés dans une nacelle en alliage cuivre-béryllium (Fig. 2). Une vis A

FIG. 2. — Porte-échantillon permettant d'appliquer une contrainte uniaxiale sur l'échantillon cubique.

que l'on serre au moyen d'un tournevis dynamométrique permet d'appliquer une contrainte uniaxiale. Les lames de verre dont le coefficient de dilatation est faible évitent le relâchement de la contrainte sur le monocristal lorsque l'ensemble est immergé dans

l'azote liquide. La contrainte est appliquée suivant la direction [111] du cristal et on obtient un monodomaine T dont on contrôle l'apparition par la mesure des déformations. Le champ magnétique est alors appliqué suivant l'axe de la nacelle, c'est-à-dire suivant l'une des deux autres directions ([011] ou [211]) selon la façon dont est monté le cristal. Les mesures sont effectuées à la température de l'azote liquide.

3. Résultats expérimentaux ; interprétations. — La figure 3 montre les allongements observés à 77 K suivant les axes [111], [011] et [211] en fonction du champ magnétique appliqué parallèlement aux directions [011] et [211]. On observe que les allongements suivant les axes [011] et [211] varient quadratiquement pour les faibles valeurs du champ appliqué ; au-delà de 30 kOe ils deviennent indépendants du champ.

FIG. 3. — Allongements relatifs suivant diverses directions du monodomaine T de MnO à 77 K : A, B, C, suivant les directions [011], [211] et [111], le champ étant appliqué suivant 011 ; α , β , γ suivant les directions [211], [011] et [111], le champ étant appliqué suivant [211].

L'orientation des moments normalement à la direction du champ appliqué s'effectue suivant deux mécanismes : pour les faibles valeurs du champ, les parois entre domaines S se déplacent de façon à effacer les domaines mal orientés : ce mécanisme correspond au domaine de variation quadratique [14]. Ensuite on observe dans chaque domaine une rotation cohérente de l'ensemble des moments. Le processus s'achève pour des valeurs peu élevées du champ en raison de la faible anisotropie dans le plan (111) : la direction d'antiferromagnétisme est alors, dans toute l'étendue du cristal, normale au champ appliqué. L'échantillon s'est contracté dans la direction des moments et allongé dans la direction perpendiculaire. Aux incertitudes de mesure près, l'allongement et la contraction maximales ont la même amplitude et cette amplitude est indépendante de la direction d'application du champ. Les déformations subies par le cristal sont réversibles et ne présentent pas

d'hystérésis en champ. Les mêmes observations avaient été faites sur l'oxyde de nickel monocristallin [15].

Des mesures de susceptibilité magnétique ont été effectuées dans les mêmes conditions expérimentales. Les résultats sont reportés figure 4. La suscepti-

FIG. 4. — Susceptibilités magnétiques du MnO en champ fort : A : monodomaine T ; B : poudre [7].

bilité commence par croître jusqu'à 30 kOe environ puis demeure constante ; l'allure des courbes est la même pour les deux directions d'application du champ ; elle s'explique par le phénomène de rotation de la direction d'antiferromagnétisme. L'absence d'hystérésis en fonction du champ aussi bien pour les déformations que pour les susceptibilités permet d'éliminer l'hypothèse selon laquelle dans les plans (111) le terme prépondérant de l'énergie d'anisotropie aurait la symétrie du cristal parfait, avec au moins trois directions de facile aimantation. Il faut sans doute retenir le modèle qui attribue aux défauts locaux, et aux déformations qui en résultent, l'origine de l'anisotropie dont le caractère probablement uniaxial explique l'absence d'hystérésis.

Les déformations observées s'interprètent en considérant les modifications correspondantes de l'énergie élastique et de l'énergie magnétostatique dipolaire. Le moment orbital de l'ion Mn^{++} est nul, et l'environnement présente une symétrie essentiellement cubique ; nous négligerons donc l'anisotropie due au champ cristallin et l'anisotropie due à l'échange.

Considérons au zéro absolu un monocristal monodomaine T ; son énergie magnétostatique dipolaire s'écrit :

$$E_d = \sum_{(i,j)} \frac{(g\mu_B)^2}{r_{ij}^3} \left[\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - 3 \frac{(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^2} \right]. \quad (1)$$

La somme effectuée sur toutes les paires d'ions Mn^{++} , $\mathbf{r}_{ij}$ est le vecteur qui relie le site i au site j . Soit $\mathbf{u}_0(u, v, w)$ le vecteur unitaire de la direction

d'antiferromagnétisme. Soit $\mathbf{S}_0$ le spin du site pris pour origine et $\varepsilon_i = \pm 1$ selon que sur le site i le spin est parallèle (+) ou antiparallèle (-) à $\mathbf{S}_0$. Soit $\rho_i(\rho_i^u, \rho_i^v, \rho_i^w)$ le vecteur $\frac{\mathbf{r}_{0i}}{a}$ où a est le paramètre de la maille cubique à faces centrées.

Avec ces conventions, (1) se réduit à :

$$E_d = A \sum_i \frac{\varepsilon_i}{\rho_i^3} \left(1 - 3 \sum_{u,v,w} uv \frac{\rho_i^u \rho_i^v}{\rho_i^3} \right); \quad (2)$$

$$A = \frac{N}{2} \cdot \frac{(g\mu_B)^2}{a^3}$$

où N est le nombre d'ions Mn^{++} dans le cristal. Si le cristal subit une déformation décrite par le tenseur $\mathbf{e}\{e_{uv}\}$, l'énergie dipolaire varie de la quantité :

$$\delta E_d = -6A \sum_{u,v,w} uve_{uv} \sum_i \varepsilon_i \frac{\rho_i^u \rho_i^v}{\rho_i^5} +$$

$$+ 15A \sum_{u,v,\mu,\nu} uve_{\mu\nu} \sum_i \varepsilon_i \frac{\rho_i^u \rho_i^v \rho_i^\mu \rho_i^\nu}{\rho_i^7}. \quad (3)$$

Dans cette variation, nous avons négligé tous les termes indépendants de la direction des moments magnétiques. Les sommations à effectuer sur le réseau se réduisent à :

$$S_1 = \sum_i \frac{\varepsilon_i}{\rho_i^3}; \quad S_2 = \sum_i \varepsilon_i \cdot \frac{(\rho_i^x)^2}{\rho_i^5};$$

$$S_3 = \sum_i \varepsilon_i \cdot \frac{\rho_i^x \rho_i^y}{\rho_i^5}; \quad S_4 = \sum_i \varepsilon_i \cdot \frac{(\rho_i^x)^4}{\rho_i^7}; \quad (4)$$

$$S_5 = \sum_i \varepsilon_i \cdot \frac{(\rho_i^x)^3 \rho_i^y}{\rho_i^7}; \quad S_6 = \sum_i \varepsilon_i \cdot \frac{(\rho_i^x \rho_i^y)^2}{\rho_i^7};$$

$$S_7 = \sum_i \varepsilon_i \frac{\rho_i^x \rho_i^y (\rho_i^z)^2}{\rho_i^7}.$$

Ces quantités doivent en outre vérifier les relations :

$$3S_2 = S_1; \quad S_4 + 2S_6 = S_2; \quad 2S_5 + S_7 = S_3. \quad (5)$$

Ces sommes ont été évaluées séparément sur ordinateur (Tableau I), et la vérification des relations (5) constitue un test pour ce calcul.

Si on considère que la direction d'antiferromagnétisme reste parallèle aux plans ferromagnétiques, la variation d'énergie dipolaire lors de la déformation s'écrit :

$$\delta E_d = -6A \{ e_{11}(S_2 - S_3)u^2 +$$

$$+ 2e_{23}(S_2 - S_3)u^2 + \mathfrak{H} \}$$

$$+ 15 \{ e_{11}(S_4 - 2S_5 - S_6 + 2S_7)u^2$$

$$+ 2e_{23}(-S_5 + 2S_6 - S_7)u^2 + \mathfrak{H} \} \quad (6)$$

TABLEAU I

S_1	S_2	S_3	S_4	S_5	S_6	S_7	S_1	S_2
- 3,19	- 1,06	- 4,82	- 1,43	- 2,59	0,18	0,37	- 17,18	- 13,18

où ∇ indique que l'on permute circulairement 1, 2, 3 et u, v, w et où les termes indépendants de la direction des moments dans le plan (111) ont été omis.

Enfin, l'énergie élastique du cristal s'écrit :

$$E_{el} = V \left[\frac{c_{11}}{2} (e_{11}^2 + e_{22}^2 + e_{33}^2) + c_{12} (e_{22} e_{33} + e_{11} e_{22} + e_{33} e_{11}) + \frac{c_{44}}{2} (e_{23}^2 + e_{31}^2 + e_{12}^2) \right]. \quad (7)$$

Si l'on additionne les contributions (6) et (7), on obtient la variation de l'énergie totale du cristal, en fonction des composantes de son tenseur de déformation et pour une orientation donnée de la direction d'antiferromagnétisme (u, v, w). Pour chacune de ces orientations la déformation spontanée est celle qui rend minimale la variation de l'énergie totale du cristal. La recherche de cette déformation s'effectue plus aisément si l'on utilise le tenseur de déformation (E) écrit dans la base (E_1, E_2, E_3) des vecteurs qui dirigent les axes $[\bar{2}11]$, $[0\bar{1}1]$ et $[111]$ respectivement. La direction d'antiferromagnétisme confinée dans le plan sous-tendu par E_1 et E_2 est repérée (à π près) par l'angle φ qu'elle forme avec E_1 .

On montre alors que seules E_{11} et E_{22} dépendent de φ et sont données par :

$$E_{11} = -E_{22} = \frac{A}{\sqrt{6}} \left(\frac{S_1}{c_{11} - c_{12}} + \frac{2S_2}{c_{44}} \right) \quad (8)$$

où S_1 et S_2 sont données par :

$$\begin{aligned} S_1 &= -6(S_2 - S_3) + 30(S_4 - 2S_5 - S_6 + 2S_7) \\ S_2 &= -12(S_2 - S_3) + 30(-S_5 + 2S_6 - S_7). \end{aligned} \quad (9)$$

A est calculé à partir de (2) en attribuant un moment de $5\mu_B$ à l'ion Mn^{++} et un paramètre de $4,44 \text{ \AA}$ à la maille cubique de l'oxyde de manganèse ; nous prenons pour c_{11} , c_{12} et c_{44} les valeurs déterminées par Cracknell et Evans [16]. Nous obtenons ainsi au zéro absolu :

$$E_{11} = -E_{22} = -10,8 \times 10^{-6} \cos 2\varphi. \quad (10)$$

Ce résultat est illustré par la figure 5.

A la température de l'azote liquide la réduction de l'aimantation des sous-réseaux par rapport au zéro absolu se traduit par une diminution de l'effet de magnétostriction spontanée. Le calcul exact impliquerait une étude des corrélations xx, yy, zz, yz, zx et xy entre les spins. Une première approximation consiste à estimer que la diminution est du même ordre que celle qui apparaît dans l'effet de magnétostriction en volume, ou dans la déformation rhomboédrique, soit environ 15 % [7, 12] ; on obtient donc à 77 K :

$$E_{11} = -E_{22} = (-9,2 \pm 1) 10^{-6} \cos 2\varphi. \quad (11)$$

FIG. 5. — Position de l'ellipsoïde de déformation par rapport à la direction du champ appliqué.

Ce résultat est en bon accord avec les valeurs expérimentales (Tableau II). On confirme ainsi l'hypothèse initiale que l'anisotropie magnétocristalline de l'ion Mn^{++} et l'anisotropie de l'échange jouent un rôle secondaire dans les phénomènes observés.

TABLEAU II

φ	E_{11}	E_{22}
0	$(-8 \pm 1) \times 10^{-6}$	$(7 \pm 1) \times 10^{-6}$
$\pi/2$	$(9 \pm 1) \times 10^{-6}$	$(-9 \pm 1) \times 10^{-6}$

Sur la figure 3 on a également représenté l'allongement suivant la direction $[111]$ lorsque le champ magnétique est appliqué suivant les deux autres directions principales (courbes (c) et (γ)). Elles montrent un comportement quadratique au-dessus de 15 kOe, c'est-à-dire lorsque le processus mettant en jeu les parois entre domaines S est achevé.

Au zéro absolu, l'amplitude de la déformation rhomboédrique est proportionnelle à l'énergie d'échange ; il en est de même pour l'allongement $\Delta L_{(111)}$ suivant la direction $[111]$ que l'on peut écrire en fonction de l'aimantation M des sous-réseaux :

$$\frac{\Delta L_{(111)}}{L_{(111)}} = BM^2. \quad (12)$$

De la valeur de la déformation au zéro absolu, on déduit que la constante B vaut $-3,5 \times 10^{-3}$ si M est mesurée en magnétons de Bohr par ion Mn^{++} . Si on applique un champ assez fort pour réorienter la direction d'antiferromagnétisme, les moments s'inclinent d'un angle θ par rapport à cette direction, et θ est lié à la susceptibilité perpendiculaire $\chi_{\perp}$, à l'aimantation des sous-réseaux et au champ H par la relation :

$$\chi_{\perp} H = 2\theta M; \quad \theta = \frac{\chi_{\perp} H}{2M}. \quad (13)$$

L'énergie d'échange est diminuée, en valeur absolue, dans le rapport $\cos 2\theta$; il en résulte une réduction de la déformation rhomboédrique et de l'allongement :

$$\frac{[\Delta L_{(111)}]}{L_{(111)}} = BM^2(1 - \chi_{\perp} H^2). \quad (14)$$

L'allongement observé ici correspond à la partie dépendant du champ appliqué :

$$\frac{[\delta L_{(111)}]}{L_{(111)}} = - \frac{B\chi_{\perp}^2}{2} H^2. \quad (15)$$

Pour un champ de 80 kOe et avec les valeurs de χ déterminées par Georges [2], on obtient pour

$(\delta L_{111})/L_{(111)}$ la valeur 10×10^{-6} en accord avec les résultats expérimentaux.

4. Conclusion. — Nous avons rendu compte de mesures de susceptibilité et de magnétostriction forcée effectuées sur un monocristal d'oxyde de manganèse monodomaine T. Les observations s'interprètent bien en faisant appel à la notion de domaines S. Le couplage magnétostatique dipolaire entre ces ions Mn^{++} permet d'expliquer les déformations à l'intérieur des plans ferromagnétiques (111) ; la variation des distances entre ces plans s'interprète par le terme de magnétostriction d'échange. L'absence d'hystérésis en fonction du champ pour les déformations internes aux plans ferromagnétiques semble indiquer que les directions de facile aimantation dans ces plans sont associées à des distorsions locales du réseau résultant de défauts cristallins.

Bibliographie

- [1] BIZETTE, H., SQUIRE, C. F., TSAI, B., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **207** (1938) 449.
- [2] BLOCH, D., GEORGES, R., JACOBS, I. S., *J. Phys.* **31** (1970) 589.
- [3] TODD, S. S., BONNICKSON, K. R., *J. Am. Chem. Soc.* **73** (1951) 3894.
- [4] FOEX, M., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **193** (1948) 227.
- [5] SHULL, C. G., STRAUSSER, W. A., WOLLAN, E. O., *Phys. Rev.* **83** (1951) 333.
- [6] ROTH, W. L., *Phys. Rev.* **110** (1958) 1333.
- [7] GEORGES, R., Thèse d'Etat, Université de Grenoble (1969).
- [8] ROTH, W. L., *J. Appl. Phys.* **31** (1960) 2000.
- [9] SLACK, G. A., *J. Appl. Phys.* **31** (1960) 1571.
- [10] MAURY, R., Thèse de Docteur Ingénieur, Université de Grenoble (1973).
- [11] BLOCH, D., MAURY, R., *Phys. Rev.* **B7** (1973) 4883.
- [12] KEFFER, F., O'SULLIVAN, W., *Phys. Rev.* **108** (1957) 637.
- [13] YAMADA, T., *J. Phys. Soc. Japan* **21** (1966) 650.
- [14] ALBERTS, L., LEE, E. W., *Proc. Phys. Soc.* **78** (1961) 728.
- [15] DU PLESSIS, P. DE V., VAN TONDER, S. J., ALBERTS, L., *J. Phys. C* **4** (1971) 2565.
- [16] CRACKNELL, M. F., EVANS, R. G., *Sol. Stat. Commun.* **8** (1970) 359.