



**HAL**  
open science

## Mise en évidence par diffraction des neutrons de l'ordre antiferromagnétique dans la phase métallique pyrite

**Ni<sub>1,4</sub>Se<sub>0,6</sub>**

R. Plumier, G. Krill

► **To cite this version:**

R. Plumier, G. Krill. Mise en évidence par diffraction des neutrons de l'ordre antiferromagnétique dans la phase métallique pyrite Ni<sub>1,4</sub>Se<sub>0,6</sub>. Journal de Physique Lettres, 1975, 36 (10), pp.249-250. 10.1051/jphyslet:019750036010024900 . jpa-00231200

**HAL Id: jpa-00231200**

**<https://hal.science/jpa-00231200>**

Submitted on 4 Feb 2008

**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  
 8.544 — 8.535

## MISE EN ÉVIDENCE PAR DIFFRACTION DES NEUTRONS DE L'ORDRE ANTIFERROMAGNÉTIQUE DANS LA PHASE MÉTALLIQUE PYRITE $\text{NiS}_{1,4}\text{Se}_{0,6}$

R. PLUMIER

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique  
 Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, B.P. n° 2, 91190 Gif-sur-Yvette, France

G. KRILL

Laboratoire de Structure Electronique des Solides  
 4, rue Blaise-Pascal, 67000 Strasbourg, France

(Reçu le 16 juin 1975, accepté le 8 juillet 1975)

**Résumé.** — On observe à basse température dans le cas de la phase métallique pyrite  $\text{NiS}_{1,4}\text{Se}_{0,6}$  une structure antiferromagnétique non colinéaire analogue à celle obtenue dans le cas de  $\text{MnTe}_2$ . L'existence de cette phase confirme les prévisions de la théorie de Mott-Hubbard. On trouve à 4,2 K,  $\mu_{\text{Ni}} = 0,59 \mu_{\text{B}}$ .

**Abstract.** — In the metallic pyrite  $\text{NiS}_{1,4}\text{Se}_{0,6}$  an ordered non collinear, antiferromagnetic structure is observed, analogous to the one determined in  $\text{MnTe}_2$ . The existence of this phase is in good agreement with the Mott-Hubbard theory. At 4.2 K, the observed magnetic moment of Ni is  $0.59 \mu_{\text{B}}$ .

Des expériences récentes d'effet Mössbauer, de N.M.R. et de susceptibilité magnétique [1] montrent l'existence d'un ordre antiferromagnétique à basse température dans le cas des phases métalliques à structure pyrite du système  $\text{NiS}_{2-x}\text{Se}_x$  ( $0,6 \leq x \leq 0,9$ ). Ce système présente un grand intérêt puisqu'il semble bien [1] que l'évolution avec  $x$  de ses propriétés physiques s'interprète correctement dans le cadre de la théorie de Mott-Hubbard [2].

Des expériences de diffraction des neutrons viennent d'être récemment effectuées auprès du Réacteur à Haut Flux de Grenoble dans le cas de la pyrite à caractère métallique  $\text{NiS}_{1,4}\text{Se}_{0,6}$  afin de confirmer l'existence d'un ordre magnétique s'établissant en dessous de  $T_N = 90$  K [1]. On trouvera sur la figure 1 une partie des spectres obtenus à 4,2 K, 60 K et 110 K. Les réflexions supplémentaires apparaissant à basse température et que nous attribuons à l'ordre magnétique à grande distance s'indexent sur la base d'une maille magnétique de même paramètre que celui de la maille nucléaire ( $a = 5,766$  Å) et sont telles que deux des indices  $h, k, l$  soient pairs, la troisième étant impair ou inversement.

Les deux réflexions magnétiques (100) et (110) (voir Fig. 1) apparaissent avec le même rapport d'intensités, soit  $\langle F^2 \rangle_{100} = 2 \langle F^2 \rangle_{110}$  que celui

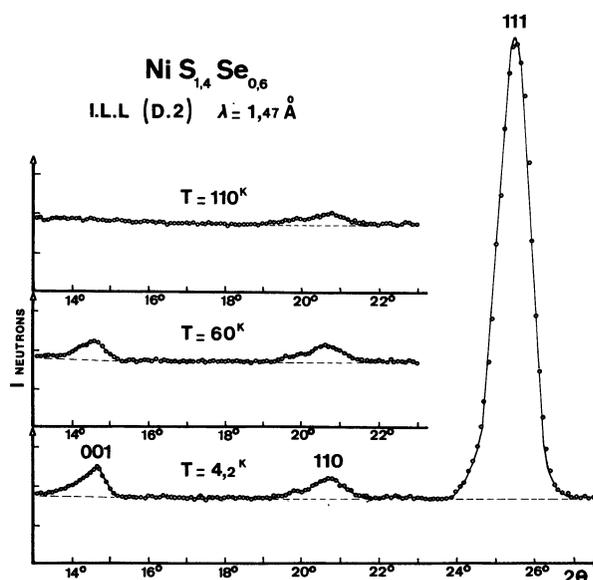


FIG. 1. — Spectres de diffraction des neutrons à 4,2 K, 60 K et 110 K.

observé dans le cas de la pyrite  $\text{MnTe}_2$  [3], de la phase magnétique haute température de  $\text{NiS}_2$  [4] (réflexions du type  $M_1$ ) et, plus récemment encore, dans le cas de  $\text{Ni}_{0,9}\text{Cu}_{0,1}\text{S}_2$  [5]. Comme il a déjà été remar-

qué [3] [6], il n'est pas possible dans ces conditions de distinguer à partir d'expériences de diffraction des neutrons effectuées sur poudre entre des structures magnétiques colinéaires ou non colinéaires. Plus précisément dans le cas d'une pyrite, on ne peut distinguer entre les deux types de structures magnétiques suivants :

1. La structure magnétique est de première espèce (ou de type Q). Dans ce cas, les moments magnétiques sont disposés dans des feuillets ferromagnétiques (001) couplés antiferromagnétiquement le long de [001]. En l'absence d'autres mesures physiques, on ne peut préciser davantage la direction des moments magnétiques dans le plan des feuillets.

2. Les moments ne sont pas colinéaires. On peut alors montrer [3] que l'on obtient encore la relation  $\langle F^2 \rangle_{100} = 2 \langle F^2 \rangle_{110}$  si les relations suivantes existent entre les composantes des quatre moments  $\mu_i$  ( $i = 1, \dots, 4$ ) situés aux quatre positions fondamentales de la structure cubique faces centrées en lesquelles se subdivisent les cations Ni de la structure pyrite (Tableau I) :

$$\begin{aligned} \mu_{1x} &= -\mu_{3x} = \pm \mu_{2x} = \mp \mu_{4x} \\ \mu_{1y} &= -\mu_{4y} = \mp \mu_{2y} = \pm \mu_{3y} \\ \mu_{1z} &= -\mu_{2z} = \mp \mu_{3z} = \pm \mu_{4z} \end{aligned}$$

En l'absence de mesures de diffraction des neutrons effectuées sur un monocristal monodomaine, d'autres mesures physiques peuvent toutefois aider à préciser la direction des moments magnétiques. C'est ainsi que des expériences d'effet Mössbauer effectuées dans le cas de  $\text{MnTe}_2$  [7] et plus récemment dans le cas de  $\text{NiS}_2$  [8] ont permis de préciser à quel type de structure

TABLEAU I

Position des Ni (sites 4a)	Direction des grandes diagonales caractéristiques
① 0, 0, 0	[111]
② $\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0$	$\bar{1}\bar{1}\bar{1}$
③ $0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}$	$1\bar{1}\bar{1}$
④ $\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}$	$1\bar{1}\bar{1}$

magnétique on avait affaire. De telles expériences, en cours dans le cas de  $\text{NiS}_{1,4}\text{Se}_{0,6}$  [9], indiquent que les moments magnétiques ne sont pas colinéaires. C'est donc une structure magnétique de type 2 (voir ci-dessus) qu'adoptent en dessous de  $T_N = 90$  K les moments magnétiques de  $\text{NiS}_{1,4}\text{Si}_{0,6}$ .

Notons que la faible intensité qui subsiste à 110 K en position de la réflexion (110) est vraisemblablement liée à un ordre de lacunes [10] alors que la faible réflexion apparaissant à gauche de la précédente est sans doute liée à l'existence de trace d'impuretés puisqu'elle apparaît avec la même intensité aux températures d'observation.

Par normalisation avec les intensités nucléaires, on obtient à 4,2 K,  $0,59 \mu_B$  comme valeur de moment magnétique du nickel. Cette valeur peut être comparée à celles obtenues dans le cas de  $\text{NiS}_2$  [4] et  $\text{Ni}_{0,9}\text{Cu}_{0,1}\text{S}_2$  [5], soit respectivement  $1,17 \mu_B$  et  $1,1 \mu_B$ . Elle est, par contre, très voisine de  $0,6 \mu_B$ , valeur observée dans le cas du nickel métallique. Elle est également en bon accord avec la valeur du champ hyperfin observé par effet Mössbauer [9].

Nous tenons à remercier Madame Carmen Berthet pour l'aide apportée à la réalisation de cette expérience auprès du canal D2 de l'I.L.L. Grenoble.

### Bibliographie

- [1] GAUTIER, F. et coll., *Phys. Lett.* **53A** (1975) 31.  
 [2] CYROT, M., *J. Physique* **33** (1972) 125.  
 [3] HASTINGS, J. M. et coll., *Phys. Rev.* **B 1** (1970) 3209.  
 [4] HASTINGS, J. M. et CORLISS, L. M., *I.B.M. J. Res. & Develop.* **14** (1970) 227.  
 [5] BETSUYAKU, H. et coll., *J. Phys. Soc. Japan* **37** (1974) 983.  
 [6] WINTENBERGER, M. et CHAMARD-BOIS, R., *Acta Crystallogr.* **A 28** (1972) 341.  
 [7] PASTERNAK, M. et SPIJKERVET, A. L., *Phys. Rev.* **181** (1969) 574.  
 [8] CZYZEK, G. et coll., *J. Physique Colloq.* **35** (1974) C6-621.  
 [9] CZYZEK, G., à paraître.  
 [10] On pourrait aussi attribuer cette réflexion à une structure magnétique de première espèce avec moments parallèles au vecteur de diffusion [001] (de façon que  $I(001) = 0$ ). Ce résultat est en contradiction avec d'autres mesures physiques [1].