Propriétés magnétiques de NpSbTe et NpAsTe

A. Blaise, J.M. Collard, J.M. Fournier, J.P. Charvillat, A. Wojakowski

► To cite this version:

A. Blaise, J.M. Collard, J.M. Fournier, J.P. Charvillat, A. Wojakowski. Propriétés magnétiques de NpSbTe et NpAsTe. Journal de Physique Lettres, 1984, 45 (11), pp.571-576. 10.1051/jphyslet:019840045011057100 . jpa-00232383

HAL Id: jpa-00232383

<https://hal.science/jpa-00232383>

Submitted on 1 Jan 1984

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
75.60E

Propriétés magnétiques de NpSbTe et NpAsTe

A. Blaise, J. M. Collard (*), J. M. Fournier (**),

Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, Département de Recherche Fondamentale,
Section de Physique du Solide, 85X, 38041 Grenoble Cedex, France

J. P. Charvillat,

SAP - Etablissement de Marcoule, BP 170, 30200 Bagnols sur Cèze, France

et A. Wojakowski

Institut des Basses Températures et de Recherche Structurale, Académie Polonaise des Sciences,
BP 937, 50-950 Wroclaw, Pologne

(Reçu le 25 novembre 1983, révisé le 29 mars 1984, accepté le 4 avril 1984)

Résumé. — Les propriétés magnétiques de NpSbTe et NpAsTe ont été étudiées. NpSbTe reste paramagnétique jusqu'à 1,8 K. NpAsTe devient ferromagnétique en dessous de $T_c = 25$ K ; l'aimantation atteint $1,07 \mu_B$ /atome de Np dans un champ magnétique de 40 kOe et n'est pas encore saturée. Dans la zone paramagnétique, les résultats pour les deux composés s'accordent avec un état de valence + 3 pour le Np. Dans le cas de NpAsTe, les résultats s'accordent également avec de récents calculs de champ cristallin, des mesures d'effet Mössbauer et des mesures de résistivité.

Abstract. — The magnetic properties of NpSbTe and NpAsTe have been studied. NpSbTe remains paramagnetic down to 1.8 K. NpAsTe is ferromagnetic below $T_c = 25$ K ; the magnetization reaches $1.07 \mu_B$ /Np in a 40 kOe field but is not yet saturated. In the paramagnetic range, results for both compounds indicate a 3+ valence state of Np ions. In the case of NpAsTe, results are in agreement with recent crystal field calculations, Mössbauer effect and electrical resistivity measurements.

1. Introduction.

Les composés du type AnXY (avec An = U, Np, Pu ; X = As, Sb, Bi ; Y = S, Se, Te) forment une famille homogène présentant des propriétés magnétiques intéressantes [1-5]. Ces composés cristallisent selon une structure quadratique de type anti-Fe₂As (P4/n m m ou D_{4h}⁷) ou type UGeTe (I4/m m m ou D_{4h}¹⁷) [6-9].

(*) Boursier de Thèse de la C.C.E., Bruxelles, Belgique.

(**) Université Scientifique et Médicale de Grenoble, France.

Seuls les composés d'uranium ont fait l'objet d'études systématiques concernant leurs propriétés physiques et leur structure magnétique [10-14].

En ce qui concerne les composés de neptunium et de plutonium, leurs structures cristallines ont été étudiées et précisées par Charvillat [9-15]. Les propriétés magnétiques des composés NpAsY ($Y = \text{S, Se, Te}$) ont déjà été étudiées [5], mais une contamination de ces échantillons par du NpAs gênait considérablement l'interprétation des résultats et une nouvelle série de mesures s'avérait nécessaire.

2. Méthodes expérimentales.

La synthèse des composés a été effectuée au CEN de Fontenay-aux-Roses. Il s'agit d'une réaction solide-gaz entre des quantités stoechiométriques d'hydruure de neptunium et des non-métaux considérés, dans des tubes en quartz scellés sous vide secondaire [15]. On chauffe progressivement les ampoules à une température élevée (760 °C pour NpSbTe et 850 °C pour NpAsTe) que l'on maintient ensuite pendant une à deux semaines. La caractérisation des échantillons se fait à l'aide de diffractogrammes X (méthode Debye-Scherrer, sensibilité relative : environ 5 %).

Les mesures de susceptibilité et d'aimantation ont été réalisées sur environ 100 à 200 mg de poudre encapsulée dans un container étanche en aluminium de haute pureté. Les mesures de susceptibilité ont été effectuées entre 1,8 K et 300 K et pour des champs allant jusqu'à 17 kOe à l'aide d'une classique balance de Faraday. Les mesures d'aimantation ont été effectuées à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant de type PAR 150 travaillant entre 4,2 K et 300 K et pour des champs allant jusqu'à 100 kOe. Dans le cas présent, les courants de Foucault induits dans le container en aluminium nous empêchent d'effectuer des mesures précises à basse température au-delà de 40 kOe.

Les mesures de résistivité ont été effectuées sur un échantillon de NpAsTe (aggloméré par pressage) suivant la méthode dite « 4 fils » en courant continu entre 4,2 K et 300 K.

Des mesures d'effet Mössbauer ont été faites en champ nul, les résultats complets seront publiés prochainement [16].

3. Résultats et discussion.

3.1 NpSbTe . — La structure cristalline de NpSbTe est du type anti- Fe_2As avec les paramètres de maille suivants : $a = 4,330 \text{ \AA}$ et $c = 9,185 \text{ \AA}$ [9]. La figure 1 représente l'inverse de la susceptibilité de NpSbTe en fonction de la température pour un champ $H = 8\,200 \text{ Oe}$. Ces résultats

s'accordent parfaitement avec une loi de Curie-Weiss du type $\chi = \frac{C}{T - \theta_p}$ où $\theta_p = -(25 \pm 1) \text{ K}$ et $C = (0,90 \pm 0,01) \text{ uem/mole}$. Cette valeur de la constante de Curie nous permet d'estimer une valeur de $2,68 \mu_B/\text{atome de Np}$ pour le moment effectif paramagnétique (μ_{eff}). Cette valeur est identique à la valeur théorique du moment effectif paramagnétique d'un ion libre Np^{3+} calculée dans le cas du couplage Russel-Saunders. (Dans le cas du couplage intermédiaire, $\mu_{\text{eff}} = 2,83 \mu_B/\text{at. de Np}$.)

Le NpSbTe reste paramagnétique dans tout le domaine de température exploré (1,8 K à 300 K) et on n'observe pas d'anomalie de susceptibilité à basse température, liée à l'apparition d'ordre magnétique, malgré la valeur absolue élevée de θ_p .

3.2 NpAsTe . — La structure cristalline de NpAsTe est également du type anti- Fe_2As avec les paramètres de maille suivants : $a = 4,140 \text{ \AA}$ et $c = 8,909 \text{ \AA}$. La figure 2 représente l'inverse de la susceptibilité de NpAsTe en fonction de la température pour un champ $H = 8\,200 \text{ Oe}$. On observe sur cette courbe l'apparition d'un ordre ferromagnétique en-dessous d'environ 25 K. On observe également un léger accident vers 80 K.

Etant donné que d'une part les mesures d'effet Mössbauer n'indiquent qu'une seule transition vers 27 K [16] et que d'autre part, les courbes d'aimantation en dessous de 80 K montrent l'ap-

Fig. 1. — Inverse de la susceptibilité de NpSbTe en fonction de la température.

[Inverse susceptibility *versus* temperature for NpSbTe.]

Fig. 2. — Inverse de la susceptibilité « expérimentale » de NpAsTe en fonction de la température (voir texte).

[Inverse « experimental » susceptibility *versus* temperature for NpAsTe (see text).]

parition d'une faible composante ferromagnétique, il est tout à fait probable que l'anomalie vers 80 K est due à une impureté ferromagnétique. Tenant compte des éléments introduits lors de la synthèse, nous attribuons cet accident à la présence d'un peu de Np_3As_4 dont la température de Curie T_c est justement égale à 81 K [17]. Partant des courbes d'aimantation isothermes

à 51 K et 77 K et des mesures magnétiques effectuées sur Np_3As_4 , nous pouvons dans un premier temps évaluer la proportion de Np_3As_4 à environ 0,25 % en masse et ensuite corriger la courbe expérimentale de la figure 2 de l'influence de ce Np_3As_4 .

On obtient alors la courbe illustrée par la figure 3. Celle-ci présente une concavité vers l'axe T et on ne peut pas définir une valeur unique du moment effectif paramagnétique (μ_{eff}). La tangente à la courbe pour $T < 50$ K permet de définir un μ_{eff} à basse température égal à environ $2,35 \mu_B$. De même, la tangente à la courbe pour $T > 250$ K permet de définir un μ_{eff} à « haute température » de l'ordre de $2,6 \mu_B$.

La figure 4 présente une courbe d'aimantation de NpAsTe en fonction de la température. Toutes les courbes réalisées présentent un point d'inflexion à 25 K, valeur que nous pouvons donc attribuer à T_c .

A 4,2 K et sous un champ $H = 40$ kOe, l'aimantation n'est pas saturée et atteint la valeur de 5 950 uem/mole, soit $1,07 \mu_B$ /atome de Np. La différence entre cette dernière valeur et la valeur de l'aimantation observée par effet Mössbauer ($1,6 \mu_B$ /atome de Np) tient au fait que les mesures sont effectuées sur un échantillon polycristallin probablement anisotrope (structure quadratique).

Les résultats expérimentaux présentés ci-dessus sont en accord avec des calculs de champ cristallin présentés récemment par Amoretti *et al.* [18] concernant le NpAsTe dans l'hypothèse Np^{3+} . La valeur du μ_{eff} observée à basse température ($2,35 \mu_B$) est voisine de celle calculée : $\mu_{\text{eff calc}} = 2,12 \mu_B$.

A haute température, le μ_{eff} expérimental ($2,6 \mu_B$) tend vers la valeur correspondant au peuplement de tout le multiplet ($2,68 \mu_B$ en couplage R.S.). Le splitting total a été estimé à environ 250 K dans la référence [18].

La figure 5 présente la résistivité de NpAsTe en fonction de la température. On note un maximum dans cette courbe situé vers 29 K, valeur très proche de T_c . Des résultats similaires ont été obtenus par A. Wojakowski lors d'une mesure de résistivité réalisée indépendamment sur une autre fraction de ce NpAsTe [19]. Cependant, ces mesures étant faites sur échantillon pulvérulent, elles ne peuvent avoir qu'une valeur indicative.

Fig. 3. — Inverse de la susceptibilité « corrigée » de NpAsTe en fonction de la température (voir texte).

[Inverse « calculated » susceptibility versus temperature for NpAsTe (see text).]

Fig. 4. — Aimantation de NpAsTe en fonction de la température.

[Magnetization *versus* temperature for NpAsTe.]

Fig. 5. — Résistivité électrique (ρ) de NpAsTe en fonction de la température. En encadré : $d\rho/dT$ en fonction de la température au voisinage du maximum de résistivité.

[Electrical resistivity (ρ) *versus* temperature for NpAsTe. Insert : $d\rho/dT$ *versus* temperature near $\rho_{\max}$.]

Bibliographie

- [1] HULLIGER, F., *J. Less-Common Met.* **16** (1968) 113.
- [2] ZYGMUNT, A. and DUCZMAL, M., *Phys. Status Solidi A* **9** (1972) 659.
- [3] BAZAN, C. and ZYGMUNT, A., *Phys. Status Solidi A* **12** (1972) 649.
- [4] ZYGMUNT, A. and CZOPNIK, A., *Phys. Status Solidi A* **18** (1973) 731.
- [5] BLAISE, A., CHARVILLAT, J. P., SALMON, P., WOJAKOWSKI, A., Proc. 2nd Int. Conf. Electr. Str. Actin., Ossolineum-Wrocław (Poland) 1976, p. 475.
- [6] PIETRASZKO, D. and LUKASZEWICZ, K., *Bull. Acad. Pol. Sci., Sér. Sci. Chim.* **XXIII** (4) (1975) 337.
- [7] ZYGMUNT, A., 11^e Journées des Actinides, Jesolo Lido, Italy (1981) p. 122.
- [8] FLAHAUT, J., *J. Solid State Chem.* **9** (1974) 124.
- [9] CHARVILLAT, J. P., WOJAKOWSKI, A. and DAMIEN, D., Proc. 2nd Int. Conf. Electr. Str. Actin, Ossolineum-Wrocław (Poland) 1976, p. 469.
- [10] WOJAKOWSKI, A., HENKIE, Z. and KLETOWSKI, Z., *Phys. Status Solidi A* **14** (1972) 517.
- [11] BLAISE, A., LAGNIER, R., WOJAKOWSKI, A., ZYGMUNT, A. and MORTIMER, M. J., *J. Low Temp. Phys.* **41** (1/2) (1980) 61.
- [12] LECIEJEWICZ, J. and ZYGMUNT, A., *Phys. Status Solidi A* **13** (1972) 657.
- [13] ZYGMUNT, A., MURASIK, A., LIGENZA, S. and LECIEJEWICZ, J., *Phys. Status Solidi A* **22** (1974) 75.
- [14] ZYGMUNT, A., LIGENZA, S., PTASIEWICZ, H. and LECIEJEWICZ, J., *Phys. Status Solidi A* **25** (1974) K77.
- [15] CHARVILLAT, J. P., Thèse, Université de Clermont-Ferrand (France), 1977.
- [16] BOGE, M., CHAPPERT, J., WOJAKOWSKI, A., A paraître.
- [17] BLAISE, A., FOURNIER, J. M., ROUDAULT, E., WOJAKOWSKI, A., 12^{es} Journées des Actinides, Orsay, France (1982) 20.
- [18] AMORETTI, G., BLAISE, A. and FOURNIER, J. M., 13^{es} Journées des Actinides, H1, Eilat, Israël (1983).
- [19] WOJAKOWSKI, A., 13^{es} Journées des Actinides, H4, Eilat, Israël (1983).