Susceptibilité magnétique du gadolinium pur en fonction du champ dans la région de réorientation de spins

A. BOUKRAA, P. VAJDA* et J.N. DAOU

"Hydrogène dans les Métaux", L.S.A.I., U.A. 775 du C.N.R.S., Bâtiment 350, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

**aussi au Laboratoire des Solides Irradiés, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France*

Résumé. - La susceptibilité magnétique χ d'un polycristal de gadolinium, de pureté nominale 99,99%, est mesurée en fonction de la température ($110 \text{ K} \leq T \leq 295 \text{ K}$) et du champ magnétique appliqué ($0,3 \text{ G} \leq H \leq 2600 \text{ G}$) par la méthode du champ alternatif. Pour un champ H faible et T croissant, $\chi(T)$ passe par un maximum à $T_M = 208 \text{ K}$, diminue ensuite légèrement jusqu'à la température $T_2 = 223 \text{ K}$ et chute rapidement au-delà. Avec l'augmentation de H , la température correspondant à la chute brutale de χ diminue. La température T_M , par contre, n'est pas affectée par H tant que celui-ci n'a pas dépassé un champ critique H_c . Au-dessus de H_c , l'allure de $\chi(T)$ change complètement et à $H = 1040 \text{ G}$, le maximum T_M se situe à 141 K et T_2 correspond à un minimum local de χ . Nous discuterons ces effets en fonction de l'angle variable que présentent les spins ferromagnétiques avec l'axe c de la structure hexagonale de Gd. Nous noterons enfin que dans un polycristal de pureté 99,9% une telle structure fine de χ autour de T_2 n'est plus constatée.

Abstract. - A.c. magnetic susceptibilities χ of a 99.99% nominal purity gadolinium polycrystal have been measured in the temperature range $110 - 295 \text{ K}$ as a function of applied magnetic fields ($0.3 \text{ G} \leq H \leq 2600 \text{ G}$). For weak fields and increasing temperature, $\chi(T)$ goes through a maximum at $T_M = 208 \text{ K}$ then it decreases slightly until it reaches the temperature $T_2 = 223 \text{ K}$ where it falls precipitously. The temperature corresponding to the sharp fall of χ decreases when H is augmented but T_M remains unaffected as long as H has not reached a critical field H_c . The shape of $\chi(T)$ changes drastically above H_c ; for $H = 1040 \text{ G}$ for example T_M shifts to 141 K and T_2 emerges as a local minimum in χ . We discuss these effects in terms of the variable angle between the ferromagnetic spins and the hexagonal c -axis of Gd. This fine structure of χ in the region of T_2 has not been detected in a 99.9% pure polycrystal.

1. Introduction.

A la température de Curie (≈ 293 K), les moments magnétiques du gadolinium métallique s'ordonnent ferromagnétiquement en s'alignant en moyenne avec l'axe c de la structure hexagonale. Au-dessous de $T_r \approx 235$ K, appelée température de réorientation de spins, les moments s'écartent brutalement de l'axe c d'un angle θ dont la dépendance en température a été précisée par Cable *et al* [1], θ atteignant un maximum d'environ 72° à $T \approx 224$ K. Les moments décrivent alors, pour un domaine ferromagnétique donné, un cône de directions d'aimantation facile autour de l'axe c . L'intervalle de températures 224-235 K coïncide avec de nombreuses singularités observées dans les propriétés du gadolinium [2-6]. La constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 , qui est donnée par l'énergie d'anisotropie magnétique $E_k = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta$ ($K_2 > 0$) [7], devient négative pour $T < T_r$ et serait ainsi responsable de cette transition de phase du second ordre. Plusieurs auteurs trouvent un point critique près de 210 K pour certaines propriétés magnétiques [8-13]. De plus, Milstein *et al* [12] observent une structure supplémentaire dans la partie réelle de la perméabilité près de 230 K et Ponomarev [14] détermine un pic à 224-229 K dans la partie imaginaire.

Dans cette communication, nous présentons des mesures de la susceptibilité magnétique χ d'un échantillon de gadolinium pur en fonction d'un champ magnétique appliqué en concentrant notre attention sur le domaine autour de T_r .

2. Méthode Expérimentale.

Deux échantillons polycristallins de gadolinium de pureté nominale 99,99% (4N) et 99,9% (3N) et de dimensions respectives $1,1 \times 1,8 \times 5,0$ mm³ et $1,9 \times 2,4 \times 5,2$ mm³ sont utilisés. Les principales impuretés métalliques dans l'échantillon 4N (brut de préparation) fourni par Ames Laboratory, Iowa, sont en p.p.m. atomique: 67 Fe, 20 Al, 15 Ni, 9 Th, 7 Si, 5 Cr, 5 Y tandis que la teneur en oxygène y est de 255 p.p.m. atomique.

La partie réelle (composante en phase) de la susceptibilité magnétique χ est mesurée par la méthode du champ alternatif (fréquence = 533 Hz, champ alternatif efficace ≤ 1 G) dans un cryostat à azote liquide entre 110 K et 295 K en fonction d'un champ magnétique statique déterminé à $\pm 2\%$. L'erreur absolue sur χ est estimée à $\pm 10\%$ alors que, pour une remontée en température, son erreur relative est inférieure ou égale à 0,3%. La température est déterminée à $\pm 0,5$ K par une résistance étalonnée de platine. Seul le spécimen le plus pur est étudié en fonction du champ, celui-ci n'étant appliqué que lors de la mesure c'est-à-dire en remontée de température (à partir de 80 K). Dans tous les cas, l'axe de la bobine de détection et l'orientation du champ statique, si celui-ci est appliqué, sont parallèles à la plus grande dimension d'une plaquette. Nous portons sur les figures la susceptibilité apparente χ_{app} qui n'a pas été corrigée pour le facteur démagnétisant, essentiellement indépendant de la température, N ($\chi_{app}^{-1} = \chi^{-1} + N$).

3. Résultats et Discussion.

La susceptibilité magnétique χ du gadolinium 4N dans un champ faible ($H \approx 0,3$ G) augmente très légèrement entre 110 K et 208 K, atteignant un maximum à $T_M = 208$ K et diminuant ensuite faiblement; à $T_2 = 223$ K, elle subit une chute brutale qui s'accroît juste avant la température de Curie T_c (pic à 292,8 K précédé par un minimum à 290,4 K) (figures 1 à 3). Nous interprétons cette chute rapide comme le début du retour des moments magnétiques de la direction d'angle θ maximum vers la direction de l'axe hexagonal en accord avec la variation de θ dans [1]. L'allure de $\chi(T)$ s'accorde avec le large maximum observé par Jelinek *et al* [10] à 215 K.

L'échantillon 3N présente un comportement analogue au 4N à l'exception de l'amplitude de χ qui est plus faible et de la transition à 223 K qui n'est plus discernable (figures 1 et 3). La diminution d'amplitude peut être attribuée à un facteur démagnétisant différent mais il n'est pas exclu que la présence d'impuretés (notamment des inclusions d'oxydes) et de défauts structuraux atténue également χ [12, 15]. La disparition de la transition à 223 K est aussi le signe d'une texture écrouie car plusieurs auteurs rapportent l'absence de singularité à T_r dans

des échantillons non-recuits [2,4,12,16].

Avec l'application d'un champ magnétique (à la température de l'azote liquide) au spécimen 4N, on distinguera trois régions:

a) $H \leq 500$ G. Le champ a pour effet de diminuer la température T_2 de la chute brutale de χ (figures 3 et 4), impliquant que la direction d'aimantation facile commence à revenir vers la direction de l'axe hexagonal c à des températures plus basses. Cette diminution est effective même pour H très faible. Le champ, par contre, n'affecte ni la position du maximum à $T_M = 208$ K ni la valeur absolue de χ au-dessous de T_M .

b) $500 \text{ G} \leq H \leq 1100$ G. En augmentant H , l'amplitude de χ et la température du maximum T_M diminuent et, à partir de $H = 417$ G, un coude, auquel sont associés deux points d'inflexion, apparaît dans la courbe $\chi(T)$ (figures 1 et 2). A tous les champs appliqués, l'un des points d'inflexion reste fixé autour de 224 K. L'autre, qu'on désignera par T_1 , diminue comme T_M avec l'augmentation du champ (figure 4). A $H = 1040$ G, $T_M = 141$ K, le point d'inflexion à 224 K devient aussi un minimum local et $\chi(T)$ décrit pratiquement un plateau dans l'intervalle 224-242 K.

c) $H > 1100$ G. Pour les deux champs appliqués dans cette région (1521 et 2590 G), χ diminue hyperboliquement avec la croissance de T ; cette diminution est régulière, sans aucune structure particulière.

Nous avons également mesuré χ en fonction du champ à une température fixe, $T = (83,7 \pm 1)$ K (figure 4). Il est clair que l'aimantation ne commence à être saturée qu'à partir d'un champ plus grand que 600 G, la variation $d\chi/dH$ la plus rapide se produisant à $H_c = 850$ G qu'on définira comme un champ critique. Au-delà de ce champ, $\chi(H)$ suit une loi hyperbolique ($\chi = M/H = \text{constante}/H$). La valeur de H_c est aussi en accord avec la variation de χ dans le domaine de champs 500-1100 G (figure 1).

Une analyse radiocristallographique sur un spécimen 4N de même provenance montre que le paramètre de réseau, c , possède une variation thermique conforme aux mesures de Darnell [17] avec une structure fine décelable dans la région de T_r . Cette structure fine, contenant plus d'une singularité, se manifeste aussi dans la dépendance thermique du champ magnétique local au site d'un muon positif observée par Graf *et al* [16]. Le champ local accuse en effet une rapide diminution entre 210 K et 225 K environ, températures voisines respectivement de T_M et T_2 . Etant une sonde microscopique, le muon devrait généralement rester insensible aux imperfections de l'échantillon.

Ce travail a donc permis de mettre en évidence une structure fine dans la susceptibilité magnétique du gadolinium et a montré que l'état de pureté de ce métal a une grande influence sur l'observation de propriétés magnétiques macroscopiques autour de T_r .

Références

*aussi au Laboratoire des Solides Irradiés, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

- [1] Cable J.W., and Koehler W.C., *J. Appl. Phys.* **53** (1982) 1904-6
- [2] Bodryakov V.Yu., Nikitin S.A., and Tishin A.M., *Sov. Phys. Solid State* **33** (1991) 1260-2
- [3] Klimker H., and Rosen M., *Phys. Rev. B* **7** (1973) 2054-61
- [4] Salamon M.B., and Simons D.S., *Phys. Rev. B* **7** (1973) 229-32
- [5] Saleh A.G.A.M., and Saunders N.H., *J. Magn. Magn. Mater.* **29** (1982) 197-202
- [6] Sousa J.B., Amado M.M., Pinto R.P., Pinheiro M.F., Moreira J.M., Braga M.E., Ausloos M., Clippe P., Hukin D., Garton G., and Walker P., *J. Magn. Magn. Mater.* **15-18** (1980) 892-4
- [7] Belov K.P., Zvezdin A.K., Kadomtseva A.M., and Levitin R.Z., *Sov. Phys. Usp.* **19** (1976) 574-96
- [8] Belov K.P., Levitin R.Z., Nikitin S.A., and Ped'ko A.V., *Sov. Phys. JETP* **13** (1961) 1096-101
- [9] Belov K.P., and Ped'ko A.V., *Sov. Phys. JETP* **15** (1962) 62-4
- [10] Jelinek F.J., Hill E.D., and Gerstein B.C., *J. Phys. Chem. Solids* **26** (1965) 1475-88
- [11] Milstein F., and Robinson L.B., *Phys. Rev.* **177** (1969) 904-9

- [12] Milstein F., and Zyvoloski G., *J. Appl. Phys.* **43** (1972) 4217-25
- [13] Telesnin R.V., Al'meneva D.B., and Pogozhev V.A., *Sov. Phys. Solid State* **4** (1962) 256-8
- [14] Ponomarev P.K., *Phys. Stat. Sol. (a)* **74** (1982) K165-8
- [15] Smith R.L., Tanner B.K., and Corner W.D., *J. Phys. F: Metal Phys.* **7** (1977) L229-32
- [16] Graf H., Kündig W., Meier P.F., and Patterson B.D., *J. Appl. Phys.* **49** (1978) 1549-51
- [17] Darnell F.J., *Phys. Rev.* **130** (1963) 1825-8

FIG. 2. - Susceptibilité magnétique apparente du gadolinium 4N en fonction de la température à plusieurs champs appliqués: $\square$: 0.3 G; $\circ$: 314 G; $\diamond$: 417 G; $\triangle$: 517 G; $\square$: 636 G; $\circ$: 743 G; $\times$: 816 G; $\circ$: 925 G; $\circ$: Le nombre (en uem/mole) qui suit la valeur du champ doit être ajouté à l'ordonnée pour obtenir la valeur mesurée de χ_{app} .

FIG. 1. - Susceptibilité magnétique apparente du gadolinium en fonction de la température à plusieurs champs appliqués. La ligne continue est pour l'échantillon 3N à 0.3 G. Les signes sont pour l'échantillon 4N: $\square$: 0.3 G; $\diamond$: 314 G; $\triangle$: 417 G; $\square$: 517 G; $\square$: 636 G; $\times$: 743 G; $\circ$: 816 G; $\circ$: 925 G; $\circ$: 1040 G; $\bullet$: 1521 G.

FIG. 3. - Susceptibilité magnétique apparente du gadolinium en fonction de la température à plusieurs champs appliqués. ●: échantillon 3N à 0,3 G. Echantillon 4N: □: 0,3 G; 0. ▲: 20 G; -0,01. ○: 51 G; 0,05. ◆: 101 G; 0,16. △: 218 G; 0,04. ■: 314 G; 0,62. ◇: 417 G; 0,64. +: 517 G; 0,24. Le nombre (en uem/mole) qui suit la valeur du champ doit être ajouté à l'ordonnée de gauche pour obtenir la valeur mesurée de χ_{app} .

FIG. 4. - Ordonnée de gauche: Températures du point d'inflexion T_1 (●) et de la chute rapide de χ , T_2 (▲), en fonction du champ appliqué H . Ordonnée de droite: susceptibilité magnétique apparente (□) de l'échantillon 4N à $T = (83,7 \pm 1)$ K en fonction du champ appliqué H .