

République Algérienne Démocratique et Populaire

Université de Tébessa



Faculté des Sciences Exactes

Et Sciences de la Nature et de la Vie

Département des sciences de la matière

Mémoire

Présenté en vue de l'obtention du diplôme de MAGISTER

Option : Physique de la matière condensée

Par

Derar Oum Hani

**Etude théorique des transitions magnétiques dans le
ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YbIG) à basse
températures**

Date de soutenance : / / 2012

Devant le jury

<i>Noureddine Guerfi</i>	<i>M.C.A</i>	<i>Université de Tébessa</i>	<i>Président</i>
<i>Abdelmalek Boumali</i>	<i>M. C. A</i>	<i>Université de Tébessa</i>	<i>Rapporteur</i>
<i>Mokhtar Ghers</i>	<i>Professeur</i>	<i>Université d'Annaba</i>	<i>Examineur</i>
<i>Fa içal Chemam</i>	<i>Professeur</i>	<i>Université de Tébessa</i>	<i>Examineur</i>

Mémoire effectué
au
Laboratoire de Physique Appliquée et Théorique LPAT



ملخص

إن الحالة الطيفية للأيون Yb^{3+} داخل المركب $Yb_3Fe_5O_{12}$ تصلح لإنشاء نماذج نظرية ذات تقريبات جيدة. باستعمال نظرية الأيونات البارا مغناطيسية لجملة ذات مستويين، تمكنا من حساب السعة الحرارية الكلية و المغناطيسية عند درجات الحرارة المنخفضة جدا و هذا في غياب الحقل المغناطيسي. كما قمنا أيضا بدراسة مختلف الانتقالات المغناطيسية الطورية للمركب عند الاتجاه البلوري $\langle 110 \rangle$. لمعرفة مدى صلاحية نموذجنا النظري قمنا بمقارنة نتائجنا مع تلك الموجودة في منشورات علمية أخرى.

Abstract

The state of the Yb^{3+} ion of the ytterbium iron garnet ($Yb_3Fe_5O_{12}$) is suitable for the development of theoretical models with rather good approximations. Using the theory of two-level paramagnetic ions, the total and magnetic specific heat at low temperatures has been calculated. The influence of the \mathbf{g} and \mathbf{G} tensors on the specific heat of YbIG has been examined. Moreover, we also studied the magnetic phase transitions in $\langle 110 \rangle$ direction. The comparison between our results and those obtained in the literature was made.

Résumé

L'état spectroscopique de l'ion Yb^{3+} dans le ferrite grenat d'ytterbium ($Yb_3Fe_5O_{12}$) convient au développement des modèles théoriques avec de bonnes approximations. En utilisant la théorie des ions paramagnétiques d'un système à deux niveaux, la chaleur spécifique totale ainsi que la chaleur spécifique magnétique, à basses températures, ont été calculée en champs nuls. L'influence des tenseurs g et G sur la chaleur spécifique d'YbIG a été examinée. En outre, nous avons aussi étudié les transitions de phase magnétiques du composé en question pour la direction $\langle 110 \rangle$. La comparaison de nos résultats avec ceux obtenus expérimentalement a été faite.

Liste des tableaux

Tableaux N°	Titre	Page
1	Définition des sous réseaux terres rares	5
2	Paramètres du champ cristallin de l'ion Yb^{3+} dans le gallate et L'aluminate d'Yttrium.	11
3	Les valeurs des composantes du tenseur g et G	14
4	Les valeurs principales de G et g utilisées dans notre calcul.	26
5	L'éclatement des niveaux fondamentaux de Kramers de l'ion Yb^{3+}	28

Liste des figures

Figure N°	Titre	Page
1	Les différents types d'interactions auxquelles est soumis un ion terre-rare.	3
2	Structure cristalline des grenats. la figure en bas montre les différents sites dans la ferrite grenat.	7
3	Le complexe $(RO)^{-13}$ dans la ferrite grenat.	8
4	les six sous réseaux inéquivalent C_j , C_j dans la symétrie D_2 .	9
5	Schéma des niveaux d'énergies d' Yb^{3+} dans YIG.	11
6	Structure en parapluie d'YbIG d'après Tchou.[16]	18
7	Diagramme de phase (H, T) pour la direction $\langle 100 \rangle$ selon Fillion [1], Alben [2] et Loos[3].	19
8	Diagramme de phase (H, T) pour la direction $\langle 111 \rangle$ selon Fillion [1], Alben [2] et Loos [3].	20
9	Diagramme de phase (H, T) pour la direction $\langle 110 \rangle$ selon Fillion [1], Loos [3] et Veltrusky [4].	21
10	La direction spatiale de notre paramètre d'ordre $\vec{M}_F(\theta, \phi)$.	22
11	Classification des transitions de Phases d'après Alben.[2]	23
12	La chaleur spécifique totale d'YbIG entre 1.5 K -- 22 K.	27
13	La chaleur spécifique totale d'YbIG entre 1.5 K -- 5 K.	27
14	La chaleur spécifique magnétique d'YbIG entre 1.5 K -- 22 K pour différentes valeurs de g et G en comparaison avec les valeurs expérimentales de Harris et Mayer[11].	27
15	La chaleur spécifique magnétique d'YbIG entre 1.5 K -- 22 K.	27
16	L'énergie libre $F(\theta, \phi)$ en fonction de (θ, ϕ) à $T=1K$ et $T=10K$ pour un champ appliqué égale à $8T$: on montre ici les différents minima à chercher qui sont connectés par des lignes continues.	29
17	L'énergie libre $F(\theta, \phi)$ en fonction de (θ, ϕ) à $T=15K$ (phase oblique) et $T=30K$ (phase colinéaire) pour un champ appliqué égale à $8T$.	29
18	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G , $H=0.85T$.	30
19	Les propriétés thermodynamiques d' Yb_3Fe_5O en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G , $H=1T$.	31
20	Les propriétés thermodynamiques d' Yb_3Fe_5O en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G , $H=2T$.	32
21	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G , $H=4T$.	33

22	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=6T$.	34
23	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=8T$.	35
24	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=10T$.	36
25	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=12T$.	37
26	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=14T$.	38
27	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=14.8T$.	39
28	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=15T$.	40
29	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=16T$.	41
30	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=17T$.	42
31	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=18T$.	43
32	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=19T$.	44
33	Les propriétés thermodynamiques d' $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et $G, H=20T$.	45

Liste des symboles

M_{Fe} L'aimantation de sous réseaux fer.

M_a L'aimantation de sous réseaux a.

M_d L'aimantation de sous réseaux d.

M_c L'aimantation de sous réseaux c.

M_{YbIG} L'aimantation de Ferrite grenat de terre rare.

S L'entropie.

C_V La chaleur spécifique.

χ La susceptibilité magnétique.

M_R L'aimantation de sous réseaux terre rare.

T La température

T_I La température de compensation ou d'inversion.

$C_1, C'_1, C_2, C'_2, C_3, C'_3$ Les six sous réseaux cristallographiques.

u, v, w Les axes locaux.

H_C L'hamiltonien du champ cristallin.

θ_l^m Les opérateurs équivalents de Stevens, les éléments de matrices entre les états $|JM\rangle$.

θ_l les facteurs multiplicatifs en fonction des nombres quantiques (J, L, L_Z) .

$H_{éch}$ L'hamiltonien de l'interaction d'échange entre les ions terres rares et les ions fer.

J_{ech} L'intégrale d'échange.

J_0 La partie isotrope.

H_I L'hamiltonien de l'interaction d'échange et de Zeeman.

\tilde{g} Le tenseur produit par le moment magnétique.

\tilde{G} Le tenseur d'anisotropie de l'échange.

K_B Constante de Boltzmann.

D_2 Système local orthorhombique.

u Le vecteur dont la direction représente l'axe de quantification du site q.

H_q L'hamiltonien du doublet fondamental d'un ion terre rare et en site q.

Z_q La fonction de partition du site q.

F_q L'énergie libre d'YbIG.

$E_\alpha(n, T)$ La densité d'énergie d'anisotropie.

K_1, K_2, K_3 les constantes d'anisotropie.

α_i Les cosinus directeurs de n.

T_N Température de Néel.

H_{latt} L'hamiltonien du réseau.

H_{magn} L'hamiltonien des atomes magnétiques.

H_{nucl} Décrit l'interaction entre les spins nucléaires et les spins des électrons.

C_{latt} La chaleur spécifique du réseau.

C_{magn} La chaleur spécifique magnétique.

C_{nucl} La chaleur spécifique nucléaire.

$C_{magnWMF}$ La chaleur spécifique dans les contributions magnétiques pour l'approximation du champ moléculaire de Weiss.

Table des matières

Introduction	1
Chapitre I :Etude bibliographique des ferrites grenats de terres rares	2
I-1- Les ions terres rares : propriétés générales	2
I-2- Les propriétés magnétiques générales des ferrites grenat de terres rares	3
I-2- 1- Structure cristallographique : rappels	3
I-2- 2-Propriétés magnétiques	6
Chapitre II:Modèle de spin effective dans le ferrite grenat d'Ytterbiumet situation historique du compose $Yb_3Fe_5O_{12}$	10
II-1- Interaction du champ cristallin et d'échange.	10
II-1-1-Champ cristallin dans la symétrie orthorhombique 222 (D_2)	10
II-1-2 Interaction d'échange isotrope et anisotrope	12
II-2 Réorientations de spin spontané.....	12
II-2-1-Structures non colinéaire spontanées	12
II-2-2-Structures angulaires spontanées	14
II-2-3-Structures obliques induites par un champ magnétique	15
II-3-Historique de notre compose	16
II-4- problématique de notre travail.....	18
II-5- Construction théorique du diagramme de Phase (H,T) de ferrite grenat d'ytterbium à basses températures.....	22
Chapitre III :Etudes des transitions magnétiques dans le ferrite grenat d'ytterbium dans ladirection $\langle 110 \rangle$	24
III-1- Introduction	24
III-2- Calcul de la chaleur spécifique en champs magnétiques nuls.....	24
III-3- Simulation numérique :	25
III-4 Calcul des transitions de phases magnétiques de YbIG selon la direction $\langle 110 \rangle$	28
III-5 Méthode de calcul.....	28
III-6 Application de la méthode d'optimisation dans notre cas.	30
III-7 Discussion des différents résultats.....	46

Conclusion	48
Annexe A	
Annexe B.....	
Références	49

Remerciements

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Monsieur Abdelmalek Boumali, Enseignant à l'Université de Tébessa, qui m'a proposé ce sujet. Sa grande disponibilité et son aide constante m'ont permis de mener à terme ce travail.

J'exprime mes remerciements à Monsieur Guerfi Noureddine, Enseignant à l'Université de Tébessa, pour l'honneur qu'il me fait en présidant le jury de ma thèse.

Messieurs Ghers Mokhtar, Professeur à l'Université d'Annaba, et Fayçal Chemam, Professeur à l'Université de Tébessa, ont accepté d'être examinateurs de cette thèse. Je leur exprime à tous deux ma sincère reconnaissance. Je l'exprime aussi à tous qui m'aident à achever ce travail.

Dédicace

*Je dédie mon travail à Mon cher père et ma chère mère
pour leurs sacrifices.*

Je le dédie aussi à mes frères et mes camarades.

Introduction

Les ferrites grenats de terres rares de structure cubique et de formule générale $R_3Fe_5O_{12}$ ou encore RIG (Rare Earth Iron Garnet) avec R l'ion de terre rare ($R=Gd, Td, Dy, Ho, Er, Yb$) et qui possèdent une température d'inversion (ou de compensation) T_I en dessous de la température de Néel, présentent, sous l'action d'un champ magnétique, de nombreuses transitions de phases donnant lieu à des diagrammes de phases compliqués au voisinage de T_I .

Le ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ ou (YbIG), est un composé intéressant pour l'étude de ces transitions magnétiques induites par un champ. En effet, la grande séparation du niveau fondamental par rapport aux niveaux excités (550cm^{-1}) ainsi que la valeur basse de la température d'inversion vers 7K, conduisent à l'existence d'un diagramme de phase (H,T) situé à basse température (2 – 30 K). Une étude expérimentale en champ pulsés intenses (40T), effectuée par Fillion [1], a permis la construction des diagrammes de phases expérimentaux selon les trois directions $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 100 \rangle$. Cependant, ces études expérimentales ont été confrontées aux travaux théoriques effectués par Alben [2] et Loos [3] en se basant sur un modèle de spin effectif et tenant compte de l'anisotropie. Un accord qualitatif a été trouvé pour les deux directions $\langle 111 \rangle$ et $\langle 100 \rangle$. Par contre pour la direction $\langle 110 \rangle$, un désaccord total apparaît en ce qui concerne le nombre et la nature des lignes de transitions du diagramme de phase expérimental de Fillion [1] et celui de théorique de Loos [3] et Veltrusky [4]. Afin de résoudre ce problème, de nouvelles expériences à savoir des mesures d'optique en champs moins de 8T et de susceptibilité alternative en champs faibles (4T), ont été faites par Veltrusky [4], ainsi que des mesures d'aimantations en champ magnétique statique allant jusqu'à 16T [5,6], ont été faites dans le but d'étudier la nature des deux lignes de transition de part et d'autre de la température d'inversion T_I . Les diagrammes de Phase, obtenus par le biais de ces deux mesures, sont en bon accord avec celui de Fillion [1].

Notre contribution principale dans ce mémoire s'insère dans (i) la discussion des transitions de phases magnétiques existantes dans le ferrite grenat d'Ytterbium, et en particulier ces transitions dans la direction en question, (ii) d'enlever l'ambiguïté existante dans la littérature concernant la direction $\langle 110 \rangle$.

Ce mémoire comporte trois chapitres composé de la façon suivante: dans le **premier chapitre** on fait un rappel sur quelques généralités concernant les niveaux d'énergies des ions terres rares. Ensuite, nous présentons les propriétés cristallographiques et magnétiques des ferrites de terres rares, la situation historique d'YbIG, ainsi que la problématique concernant nombre et la nature des lignes de transitions du diagramme de phase de la direction $\langle 110 \rangle$. Le **deuxième chapitre** est consacré à la présentation de l'aspect théorique du modèle de spin effective dans l'YbIG. Dans le **troisième chapitre**, nous présentons les résultats obtenus sur toutes les propriétés thermodynamiques en champs magnétique allant jusqu'à 20T par le biais de la fonction de l'énergie libre trouvée théoriquement en utilisant le modèle de spin effective. Nous commentons les résultats obtenus, et les comparons avec ceux trouvés expérimentalement. Enfin, nous terminons par une conclusion globale

Chapitre I

Etude bibliographique des ferrites grenats de terres rares

I-1- Les ions terres rares : propriétés générales

Les éléments de terres rares (ou lanthanides), éléments de la sixième ligne du tableau périodique se caractérisent par une occupation partielle du niveau électronique 4f, "masqué" par les niveaux extérieurs $5s^2$ et $5p^6$. Grâce à cet écran les niveaux d'énergie de ces éléments sont largement insensibles aux matrices dans lesquelles ils sont incorporés. Dans la littérature, divers ions terres rares sont utilisés comme dopants pour l'amplification. En effet, les terres rares possèdent des transitions différentes permettant de couvrir une grande partie des longueurs d'onde exploitables en optique. Nous pouvons citer par exemple, Yb^{3+} (ytterbium) à 1040 nm, Nd^{3+} (néodyme) à 1064 nm, Pr^{3+} (praséodyme) à 1320 nm, Tm^{3+} (thulium) à 1460 nm, Er^{3+} (erbium) à 1535 nm. Les lanthanides possèdent de plus une large distribution de leur bande d'énergie autour de leur transition, ce qui permet de les utiliser pour l'amplification sur une large gamme de longueurs d'onde. Les ions terres-rares sont connus pour leurs propriétés magnétiques et surtout pour leur propriétés de luminescence. Les transitions électroniques, qui se traduisent par des bandes d'absorption et d'émission étroites, s'étendent de l'infrarouge à l'ultraviolet. La richesse des spectres optiques des terres-rares permet des applications comme luminophores des écrans de télévision, scintillateurs à usage scientifique ou matériaux lasers. Les terres-rares appartiennent à la famille des lanthanides, qui s'étend du lanthane ($Z = 57$) au lutétium ($Z = 71$), et auxquelles il faut rajouter le scandium et l'yttrium.

Les terres-rares ont toutes la même configuration électronique externe et, de ce fait, des propriétés chimiques très voisines. La série des terres-rares correspond au remplissage progressif de la couche 4f qui détermine ainsi les propriétés optiques de chaque terre-rare. Les électrons de la couche 4f incomplète sont alors optiquement actifs contrairement aux électrons des couches pleines 5s et 5p. L'énergie et l'extension spatiale des fonctions propres 4f diminuent à mesure que le numéro atomique augmente. Ce phénomène est appelé "contraction des lanthanides". Il est dû à une attraction entre noyau et électrons de la couche 4f. Les électrons 4f sont alors attirés depuis les couches extérieures vers l'intérieur. La *Figure.1* présente les différents types d'interactions auxquelles est soumis un ion terre-rare. La dégénérescence des niveaux de l'atome est levée grâce aux perturbations des répulsions inter-électroniques et du couplage spin-orbite : c'est le cas de l'ion libre. Lorsqu'on introduit ces atomes dans une matrice, il faut ajouter un terme de champ cristallin qui n'est en réalité qu'une faible perturbation du couplage spin-orbite. La couche 4f non remplie est protégée de l'influence du champ cristallin grâce aux couches 5s et 5p pleines, plus externes. Les électrons sont donc peu perturbés par rapport au cas de l'ion libre.

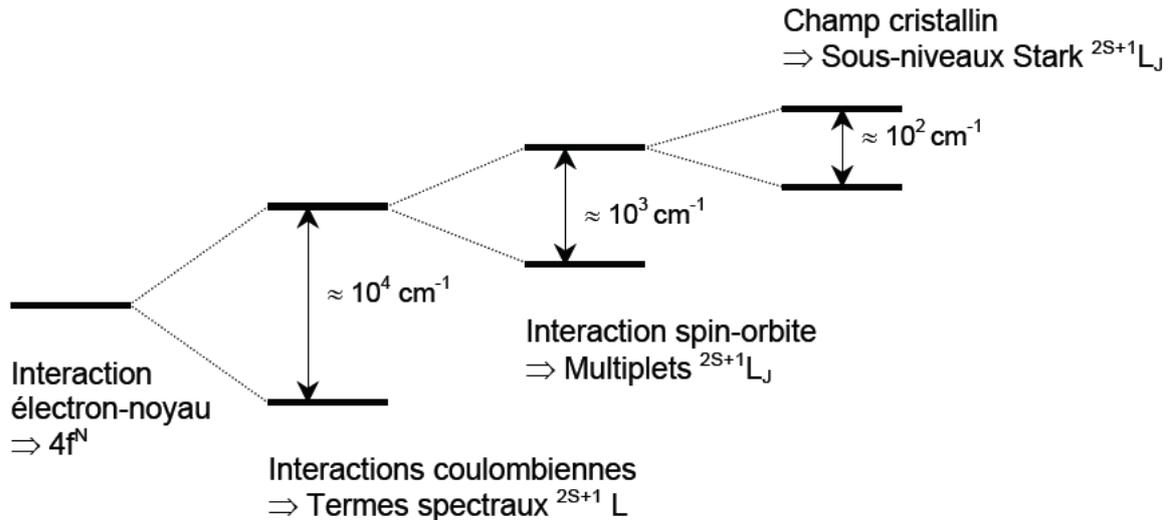


Figure.1 : Les différents types d'interactions auxquelles est soumis un ion terre-rare.

Les configurations électroniques de la couche $4f$ sont notées $^{2S+1}L_J$ où S , L et J sont respectivement le spin, le moment orbital et le moment angulaire total des électrons de la couche $4f$. Chaque niveau est dégénéré $(2J + 1)$ fois. Les transitions dipolaires électriques $4f$ sont interdites au premier ordre car elles interviennent entre éléments de même parité. L'interdiction est partiellement levée grâce à l'influence du champ cristallin, en dépit de l'effet d'écran des couches externes. Le champ cristallin du matériau hôte des terres rares lève partiellement la dégénérescence des sous-niveaux Stark. Connaissant la configuration électronique décrivant pour chaque électron de l'ion la couche et la sous-couche auxquelles il appartient, il est possible de recenser tous les niveaux d'énergie de l'ion de terre rare. Les différences d'énergie entre ces sous-niveaux $^{2S+1}L_J$ sont assez faibles, de l'ordre de la centaine de cm^{-1} (quelques dizaines de nm). Un état peut rester excité pendant des durées relativement importantes ($1\ ms$). Les terres rares sont donc des éléments parfaits pour la réalisation d'un amplificateur : Le fort écrantage du champ cristallin fait que la distribution des niveaux énergétiques d'un ion de terre rare évolue peu en fonction de son environnement et ceux-ci peuvent donc être intégrés dans différentes matrices hôtes sans modification importante de leurs transitions. De plus, par la variété et les grandes durées de vie de leurs niveaux électroniques, ils possèdent des transitions qui sont utilisables pour réaliser des amplificateurs à plusieurs longueurs d'onde infrarouges.

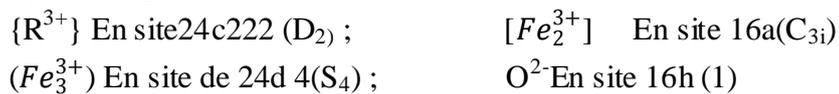
I-2-Les propriétés magnétiques générales des ferrites grenat de terres rares

I-2- 1- Structure cristallographique : rappels

Les grenats forment l'ensemble des composés de formule $\{A_3\} [B_2] (C_3)O_{12}$. La diversité des ions A, B, C conduit à des propriétés paramagnétiques, antiferromagnétiques, et ferrimagnétiques. Ils constituent ainsi une large gamme de composés qui ont en commun leur structure cristallographique cubique centrée du groupe d'espace $Ia\bar{3}d-(O_h^{10})$. La maille élémentaire contient huit unités formulaires soit 160 ions.

Les ferrites grenat de terres rares ont été découvertes pour la première fois par Bertaut [7] et Forrat [8], et puis ont été étudiés par Geller [9] et Gilleo [10]. Ces composés ferrimagnétiques sont des isolants de formule $\{R_3^{3+}\}(Fe_2^{3+})(Fe_3^{3+})O_{12}$ ou encore RIG (Rare Earth Iron Garnet) ou représente un métal trivalent de la série des terres rares ou l'yttrium. Le paramètre de maille est de l'ordre de 12 \AA et décroît quand se remplit la couche **4f** selon le phénomène classique de la contraction des lanthanides. Ces composés ont fait l'objet de nombreuses études, tant du point de vue de la physique fondamentale que du point de vue de leurs applications industrielles.

Les symétries ponctuelles sont les suivantes :



Les anions oxygène occupent des positions générales x, y, z qui varient d'un composé à un autre. Chaque ion est situé sur un sommet commun à deux dodécaèdres (site 24c), à un octaèdre (site 16 a) et à un tétraèdre (site 24d) (**Figure.2**). Le polyèdre dodécaédrique qui entoure l'ion terre rare peut se déduire simplement à partir d'un cube ayant u, v comme axe binaire et w comme axe quaternaire orthogonal. Ainsi on passe du cube au « cube distordu » qui est décrit par deux déformations (**Figure.3**) dont :

- Les deux faces normales à w tournent en sens inverses d'un angle voisin de 11° .
- Ces deux faces sont légèrement gauchies et étirées suivant un diagonal. Il en résulte que les huit distances $R^{3+}-O^{2-}$ se décomposent en nombre égal en deux ensembles de valeurs distinctes R_1, R_2 .

L'orientation des trios axes u, v, w du repère local est différente par rapport au repère fixe ; elle conduit à six systèmes d'orientations différents (**Figure.4**). En effet, le réseau de Bravais des ferrites grenats étant cubique centré, les 24 ions terres rares se répartissent en douze sous-réseaux cristallographiques distincts. D'autre part, les positions de l'ensemble des ions terres rares, peuvent être engendrées à partir d'un seul ion en position $(1/8, 0, 1/4)$ en effectuant les quatre opérations suivantes :

- La rotation de $2\pi/3$ et $4\pi/3$ autour de l'axe $[111]$.
- La rotation autour d'un axe quaternaire par exemple $[001]$ suivie de la translation $(1/4, 3/4, 1/4)$.
- L'inversion I par rapport à l'origine.
- La translation $t = (1/2, 1/2, 1/2)$.

Ainsi la symétrie ponctuelle orthorhombique D_2 impose une répartition des 24 ions de terre rare en six sous-réseaux cristallographiques distincts C'_j et C_j ($j=1, 2, 3$), c'est à dire de sorte qu'en tout point d'un sous-réseau donné, l'effet de l'environnement cristallin soit le même. Les directions des axes locaux u, v, w par rapport aux axes quaternaires de la maille cubique sont présentées sur la **Figure.4**. Les axes d'ordre deux des sous-réseaux C_2 et C_3 d'une part, C'_2, C'_3 d'autre part se déduisent respectivement des axes locaux de C_1, C'_1 par des rotations de $2\pi/3$ et $4\pi/3$ autour de l'axe $[111]$ dans le sens trigonométrique. Enfin, les axes locaux de C_1, C_2, C_3 se déduisent respectivement de ceux de C'_1, C'_2 et C'_3 par une rotation de $+\pi/2$ autour de u porté par un des axes quaternaires du cristal. Le **Tableau.1** montre les coordonnées des sites inéquivalents et les axes du tenseur g [5].

Tableau. 1: Définition des sous réseaux terres rares [5].

Sous – réseaux C_j, C'_j (j=1, 2,3)	C_1	C'_1	C_2	C'_2	C_3	C'_3
	1 3	2 4	3 5	4 6	5 1	6 2
Coordonnées et numérations d'ions de terre rare de symétrie ponctuelle $D_2 (222)$	1/8,0, 1/4 7/8,0, 3/4 5/8, 0,3/4 3/8,1/2,1/4	3/8, 0,3/4 5/8, 0,1/4 7/8,1/2,1/4 1/8,1/2,3/4	1/4,1/8,0 3/4,7/8,0 3/4,5/8,1/2 1/4,3/8,1/2	3/4,3/8,0 1/4,5/8,0 1/4,7/8,1/2 1/4,1/8,1/2	0,1/4,1/8 0,3/4,7/8 1/2,3/4,5/8 1/2,1/4,3/8	0,3/4,3/8 0,1/4,5/8 1/2,1/4,7/8 1/2,3/4,1/8
Axes locaux U g_z V g_x W g_y	100 01 $\bar{1}$ 011	100 011 0 $\bar{1}$ 1	010 $\bar{1}$ 01 101	010 101 10 $\bar{1}$	001 1 $\bar{1}$ 0 110	001 110 $\bar{1}$ 10

I-2- 2-Propriétés magnétiques

En raison de leur caractère isolants, les propriétés magnétiques de ces composés sont décrites par un modèle d'électron d ou f localisés sur les trois sous réseaux **{a}**, **{d}** et **{c}**. Les interactions magnétiques entre les différents ions sont essentiellement du type super échange. L'étude comparée des divers grenats [11] a montré qu'elles sont toutes négatives et qu'elles se répartissent en trois groupes distincts :

- Les interactions (Fe^{3+} - Fe^{3+}) sont très fortes, de l'ordre de 500K (350 cm^{-1}) : elles sont responsables de la température de curie très élevés et de l'ordre de ferrimagnétique de Néel avec le YIG.
- Les interactions (Fe^{3+} - R^{3+}) sont de l'ordre de 50K (35cm^{-1}) et ne sont pas isotrope.
- Les interactions (R^{3+} , R^{3+}) sont très faibles, inférieures à 1cm^{-1} et pourront être généralement négligées.

En conséquence, l'aimantation résultante des sous réseaux fers n'est que peu affectée par l'aimantation du sous réseau terre rare. Donc on peut considérer l'aimantation des deux sous réseaux fer comme un seul sous-réseau dont l'aimantation est à peu près identique à celle du ferrite grenat du terre rare YIG:

$$M_{Fe} = M_d - M_a \approx M_{YIG} , \quad (1)$$

Avec M_a, M_d et M_c , sont les aimantations des tris sous réseaux **{a}**, **{d}** et **{c}**. L'aimantation de ferrite grenat est alors :

$$M_{RIG} = |M_R - M_{Fe}| \cong |M_R - M_{YIG}|. \quad (2)$$

La variation thermique de cette aimantation peut conduire à l'existence d'une température d'inversion ou de compensation (T_I) pour laquelle l'aimantation spontanée de ferrite s'annule : l'aimantation de la terre rare est égale et opposé à la résultante des fers dans une situation analogue à celle d'un antiferromagnétique. Ceci implique l'existence d'une configuration oblique des moments induite par un champ magnétique.

Des études nombreuses ont été consacrées pour ces structures. Elles résultent d'un compromis entre l'énergie d'échange, l'énergie Zeeman et l'énergie magnéto-cristalline. D'une part, nous allons rappeler, les deux principales contributions à l'anisotropie: le champ cristallin et l'anisotropie des interactions d'échanges. Elles nous seront nécessaires pour discuter l'origine des réorientations de spin spontanées. Parmi celles-ci, nous distinguerons :

- Des structures non colinéaires spontanées des moments magnétiques de terre rare (structure "en double parapluie") dont les directions ne sont pas parallèles à celle de l'aimantation des fers.
- Des structures angulaires spontanées ayant entraînés la rotation de l'aimantation des fers en dehors des directions de haute symétrie.

D'autres parts, nous rappellerons le rôle joué par l'anisotropie sur les diagrammes de phases des ferrites grenat de terres rares et en particulier son incidence sur la stabilité des structures obliques près de la température d'inversion [5].

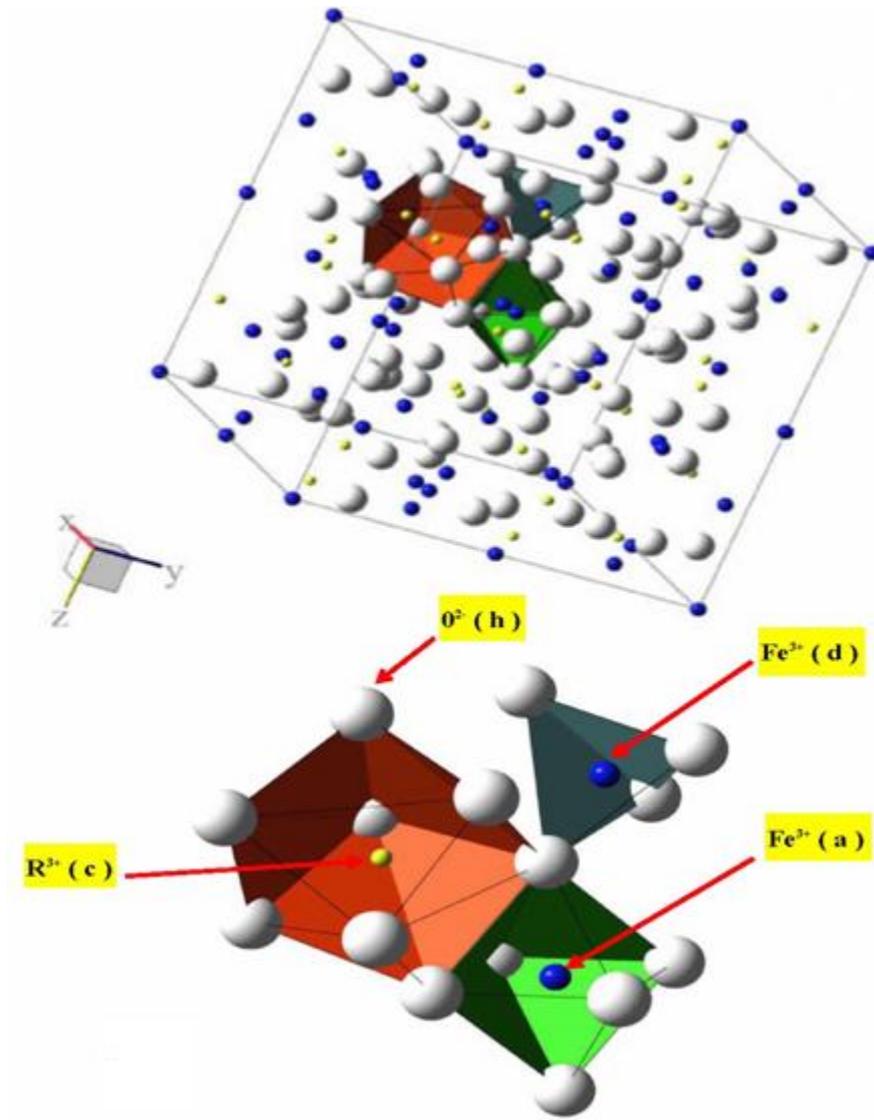


Figure.2 : Structure cristallin des grenats.la figure en bas montre les différents sites dans la ferrite grenat [15].

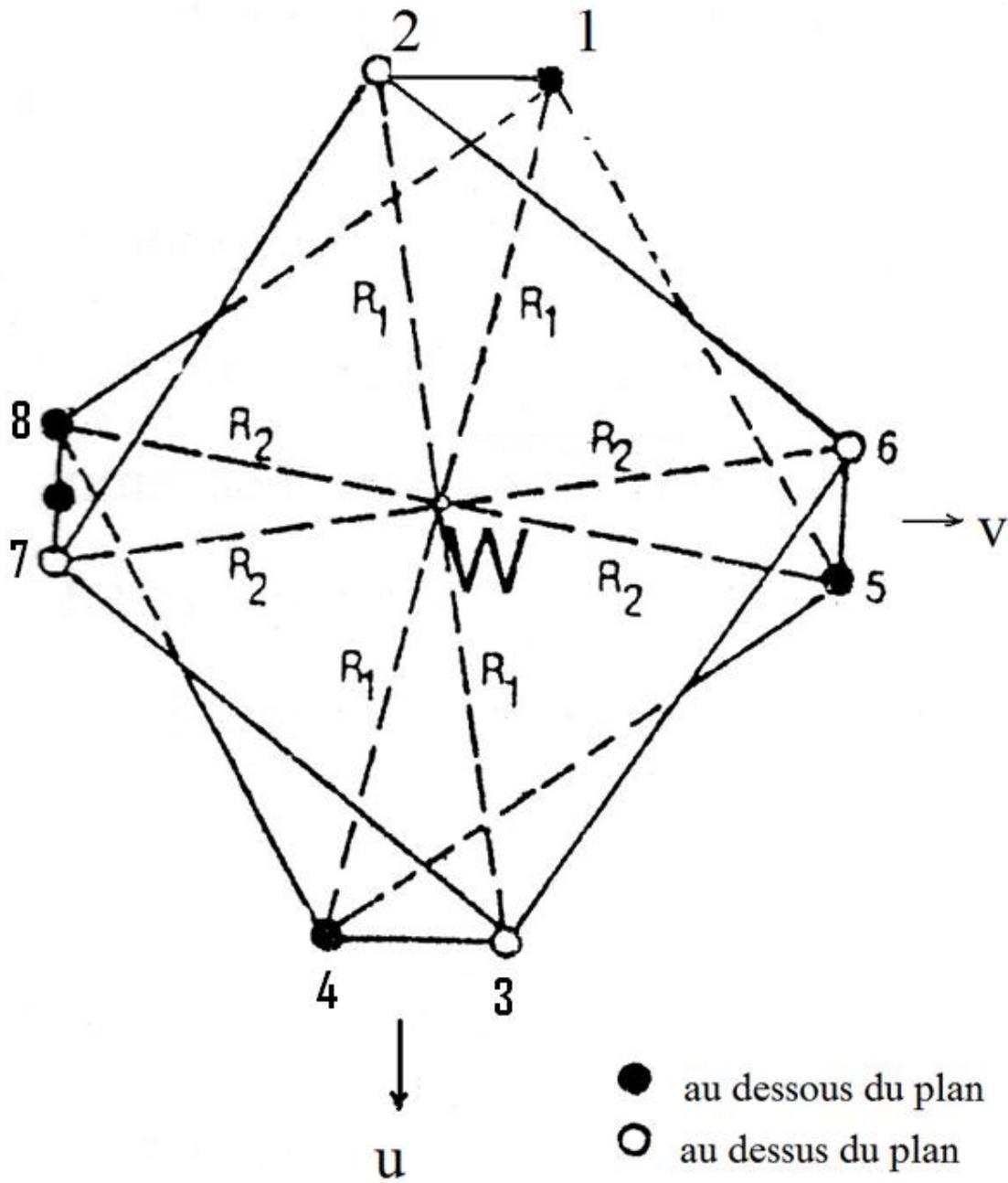


Figure.3 : le complexe $(RO)^{13}$ dans la ferrite grenat [5].

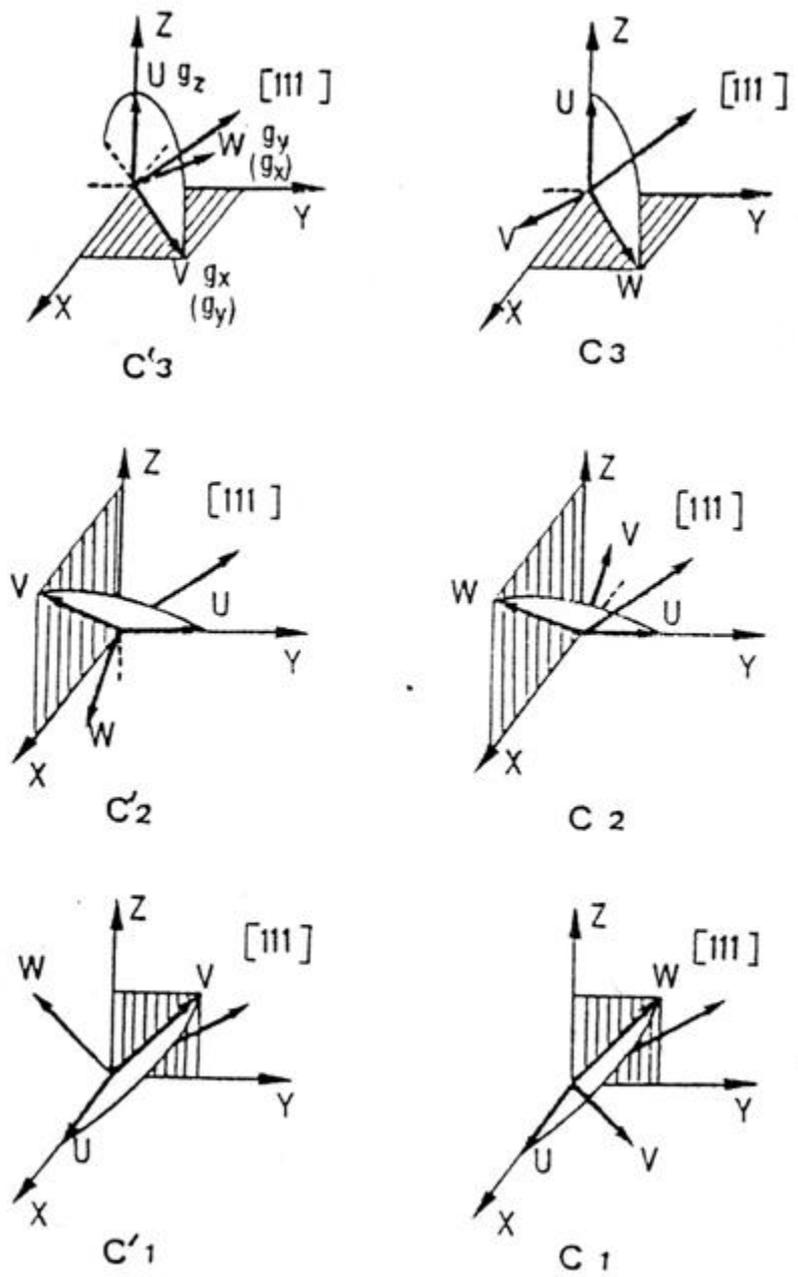


Figure.4: Les six sous réseaux inéquivalents C_j , C'_j dans la symétrie D_2 [16].

Chapitre II

Modèle de spin effective dans le ferrite grenat d'Ytterbium et situation historique du composé $Yb_3Fe_5O_{12}$

II-1- Interaction du champ cristallin et d'échange.

II-1-1-Champ cristallin dans la symétrie orthorhombique $222 (D_2)$

La configuration électronique de l'ion terre rare de plus basse énergie est $4f^n 5s^2 5p^6$; ainsi pour l'ion Yb^{3+} le multiplet fondamental est $^2F_{7/2}$. Le champ cristallin qui correspond à l'interaction électronique de cet ion avec l'environnement formé par les ions voisins, décompose le multiplet fondamental en quatre niveaux (doublets de Kramers) dont le premier état excité est situé à 550 cm^{-1} (**Figure. 2**).

L'Hamiltonien de champ cristallin s'écrit en général :

$$H_c = \sum_{lm} V_l^m \theta_l O_l^m, \quad (3)$$

où V_l^m sont les paramètres du champ cristallin; les θ_l sont des facteurs multiplicatifs en fonction des nombres quantiques (J, L, S) , dont les valeurs $\alpha_j(\theta_2), \beta_j(\theta_4), \gamma_j(\theta_6)$ ont été déterminées dans le couplage LS par Elliot et al [17], les O_l^m sont les opérateurs équivalents de Steven [18] dont les éléments de matrice entre les états $|JM\rangle$ à J constant. Dans le repère des axes locaux U, V, W de l'ion R^{3+} , et en prenant l'axe de quantification selon U , l'Hamiltonien V_c , qui doit être invariant dans la symétrie ponctuelle D_2 , se réduit à [19] :

$$H_c = \alpha_j (V_2^0 O_2^0 + V_2^2 O_2^2) + \beta_j (V_4^0 O_4^0 + V_4^2 O_4^2 + V_4^4 O_4^4) + \gamma_j (V_6^0 O_6^0 + V_6^2 O_6^2 + V_6^4 O_6^4 + V_6^6 O_6^6). \quad (4)$$

Ce qui fait intervenir neuf paramètres du champ cristallin, déterminés sur les grenats paramagnétiques, gallates (RGaG) ou aluminates (RAIG) dont les paramètres de maille sont proches de ceux de ferrite correspondant. Nous avons reporté dans le **Tableau. 2** quelques valeurs des paramètres du champ cristallin déterminées à partir du modèle de charges ponctuelles.

Tableau. 2: Paramètres du champ cristallin de l'ion Yb^{3+} dans le gallate et l'aluminate d'Yttrium. [5]

cm^{-1}	V_2^0	V_2^2	V_4^0	V_4^2	V_4^4	V_6^0	V_6^2	V_6^4	V_6^6
Yb- YGaG	-	288	-	221	621	49	-	822	-
Yb- YAIG	70	352	177	102	692	107	462	1009	233
	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	12		151				767		230

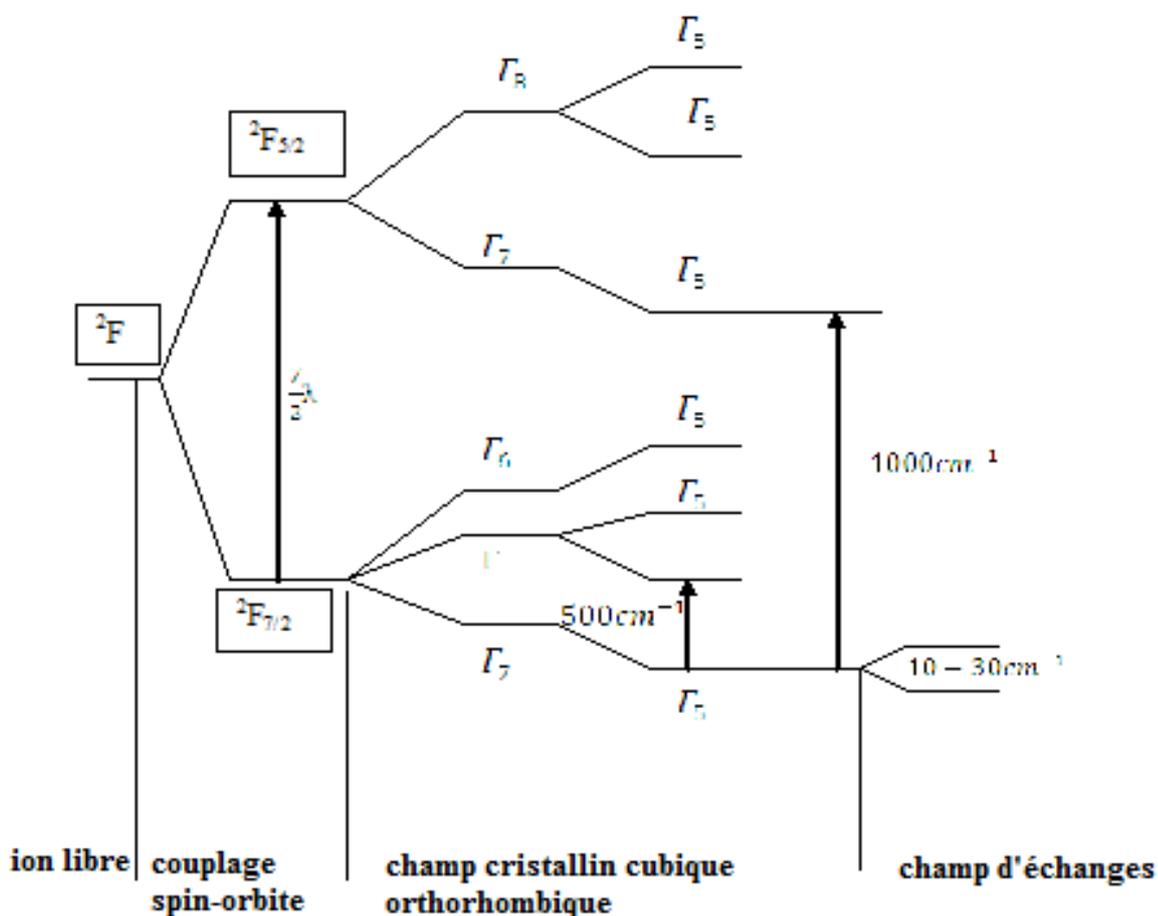


Figure. 5: Schéma des niveaux d'énergies d' Yb^{3+} dans YIG [20].

On constate que la détermination des paramètres du champ cristallin par l'exploitation des spectres d'absorption optique dans l'infrarouge et de résonance paramagnétique électronique n'est pas unique, pour déterminer avec précision la disposition des niveaux du champ cristallin, on se tourne de plus en plus vers l'exploitation des spectres de diffusion inélastiques de neutrons.

II -1-2 Interaction d'échange isotrope et anisotrope :

L'Hamiltonien de l'interaction d'échange entre les ions terres rares et les ions fer dans les grenats s'écrit de façon générale :

$$H_{ech} = -2J.S(R^{3+}).S(Fe^{3+}). \quad (5)$$

L'intégrale d'échange n'est un scalaire que si tous les ions sont dans un état S; ceci n'est réalisé que pour GdIG. L'échange est alors isotrope et peut être considéré comme résultant de l'action sur les ions terres rares qui ne sont pas dans un état S, comme Yb^{3+} , l'intégrale d'échange J_{ech} dépend de l'état orbital des électrons $4f$, d'où :

$$H_{ech} = -2j(L, L_z).S(R^{3+}).S(Fe^{3+}). \quad (6)$$

Les interactions d'échange peuvent être extrêmement anisotropes et conduit à des réorientations de spin spontanées (structures non colinéaires et angulaires). L'intégrale d'échange J_{ech} peut se développer en harmoniques sphériques [21] par la relation suivante :

$$J_{ech}(L, L_z) = J_0(1 + \sum_{lm} T_l^m Y_L^m((L, L_z))). \quad (7)$$

Le scalaire J_0 représente la partie isotrope. Les paramètres dépendent de la symétrie locale de la même façon que le paramètre du champ cristallin, et pour une symétrie D_2 leur nombre se réduit également à neuf. En conclusion, il faudrait disposer de nombreuses données expérimentales faisant intervenir de façon indépendante les dix-huit paramètres (neuf paramètres du champ cristallin plus neuf paramètres d'échange) pour pouvoir trouver leur valeur.

II-2 Réorientations des spins spontanés

II-2-1-Structures non colinéaire spontanées

On peut espérer dans le cas de Yb^{3+} , utiliser un Hamiltonien de spin effectif qui rend compte de toute l'anisotropie en utilisant un modèle de spin effectif $S = 1/2$ pour le doublet de Kramères. La contribution aux énergies Zeeman et d'échange des ions de terres rares d'un même site $\{i\}$ est représentée par l'Hamiltonien :

$$H_i = -\mu_B.H.\tilde{g}S_i - n.\tilde{G}.S_i \quad (8)$$

Où le vecteur unitaire $\mathbf{n} = -\vec{M}_{Fe} / |\vec{M}_{Fe}|$ définit la direction de l'aimantation des fers qui sont saturés (**Figure.5**). Dans le système d'axe $(\mathbf{U}, \mathbf{V}, \mathbf{W})$, les tenseurs \mathbf{g} (le tenseur produit par le moment magnétique) et \mathbf{G} (le tenseur d'anisotropie de l'échange) présentent une forme diagonale et il n'y a donc à considérer dans ce modèle que six paramètres (g_α et G_α avec $\alpha = x, y, z$). On peut alors utiliser un Hamiltonien effectif à un ion qui rend compte de toute l'anisotropie avec un nombre réduit de paramètres. A basse température, les ions Fe^{3+} sont dans un état S et rigidement couplés entre eux. Ils ont leurs spins alignés dans une direction \mathbf{u} . Les sous réseaux de terres rares, étant un système non coopératif, toute l'anisotropie est attribuée aux seuls ions de terres rares. L'effet des

sous-réseaux fer se réduit dans ce cas à un champ moléculaire qui agit sur les moments effectifs des ions de terres rares par l'intermédiaire d'un tenseur anisotropie \mathbf{G} . En effet, le comportement du doublet fondamental en présence d'un champ magnétique extérieur est donné par l'Hamiltonien effectif suivant:

$$H_{zeeman} = -(-\mu_B S \cdot g) \cdot H = \mu_B S \cdot g \cdot H, \quad (9)$$

Dans lequel S est le spin fictif ($S = 1/2$ pour un doublet de Kramers) et g , le tenseur conventionnel qui est diagonal dans le système d'axes locaux $(\mathbf{u}, \mathbf{v}, \mathbf{w})$. L'interaction due à l'anisotropie d'échange provenant des sous réseaux fer s'écrit de façon similaire:

$$H_{ech} = -(-\mu_B S \cdot g) \cdot H_{mol} = -(-\mu_B S \cdot g) \cdot (-n \cdot M_{Fe}) = -S \cdot G \cdot u, \quad (10)$$

Avec $H_{mol} = -n \cdot M_{Fe}$ est le champ moléculaire à l'endroit d'un ion de terre rare. Le coefficient n se réduit à la constante de Weiss dans le cas isotrope, mais est en fait une matrice qu'on incorpore habituellement dans l'expression :

$$G = \mu_B M_{Fe} \cdot g \cdot n, \quad (11)$$

Traduisant le tenseur de l'anisotropie de l'échange. On peut montrer que le tenseur \mathbf{G} a la même symétrie et les mêmes axes principaux que le tenseur g . Dans le système d'axe locaux, \mathbf{G} et g sont tous deux diagonaux et par conséquent, commutent. Pour une symétrie locale orthorhombique (D_2), une base d'axes locaux adaptés à cette description, en termes de tenseur \mathbf{G} et g .

Donc, si on néglige les termes d'ordre supérieur en H , les interactions entre les terres rares et l'anisotropie du sous réseaux fer et le comportement du doublet fondamental d'un ion de terre rare en site $\{q\}$ sont résumés par :

$$(H)_q = (H_{zeeman} + H_{ech}) = -S_q \cdot \Delta_q, \quad (12)$$

avec :

$$\Delta_q = (-\mu_B g_q \cdot H + G_q \cdot u). \quad (13)$$

Et u est un vecteur dont la direction représente l'axe de quantification du site $\{q\}$. Ses composantes par rapport au repère local sont, en omettant provisoirement l'indice q :

$$\Delta_\alpha = (-\mu_B g_\alpha \cdot H + G_\alpha \cdot u_\alpha). \quad (14)$$

L'énergie pour un doublet de spin fictif $S = 1/2$, au premier ordre de perturbation est:

$$E = E_0 + \frac{1}{2} \Delta \quad (15)$$

$$\Delta = \sqrt{\Delta_x^2 + \Delta_y^2 + \Delta_z^2}. \quad (16)$$

Toutes les propriétés thermodynamiques du système sont encapsulées dans la fonction de partition du site $\{q\}$, qui s'écrit :

$$Z_q = Tr[e^{-\beta(H)_q}] ; \beta = \frac{1}{k_B T}. \quad (17)$$

Pour ce système à deux états, elle vaut, si on prend E_0 comme repère des énergies :

$$Z_q = \left[e^{\frac{\Delta_q}{2k_B T}} + e^{-\frac{\Delta_q}{2k_B T}} \right] \quad (18)$$

L'énergie libre se déduit de l'équation suivante[15] :

$$F_q = -k_B T \ln Z_q = -k_B T \ln \left[2 \cosh \left(\frac{\Delta_q}{2k_B T} \right) \right]. \quad (19)$$

La comparaison des valeurs de g_α et G_α significative déterminées respectivement par Fillion [12] et Kolmakova (**Tableau.3**), montre que les deux tenseurs sont très différents et que le degré d'anisotropie est beaucoup plus grand dans la décomposition d'échange.

Tableau. 3: les valeurs des composantes du tenseur g et G [5].

	g_X	g_Y	g_Z	$G_X(\text{cm}^{-1})$	$G_Y(\text{cm}^{-1})$	$G_Z(\text{cm}^{-1})$	Références
	3.75	3.65	3.10	31.15	27.06	12.25	[13]
YbIG	3.7	3.3	3.0	25.5	29	12	[22]

D'autres part, l'anisotropie des tenseurs g et G entraîne pour les différents sites d'Ytterbium, des moments magnétiques qui ne sont pas parallèles à la direction \mathbf{n} de l'aimantation des fers ; Ils forment à basse température une structure magnétique non colinéaire spontanée dite "en parapluie" [16,23].

II-2-2-Structures angulaires spontanées

Pour un cristal ferromagnétique cubique mono domaine, la densité d'énergie d'anisotropie s'écrit phénoménologiquement sous la forme suivante [24] :

$$E_a(n, T) = K_0(T) + K_1(T)(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2(T)(\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2) + K_3(T)(\alpha_1^4 \alpha_2^4 + \alpha_2^4 \alpha_3^4 + \alpha_3^4 \alpha_1^4), \quad (20)$$

Où $K_1(T)$, $K_2(T)$ et $K_3(T)$ sont les constantes d'anisotropie et les α_i les cosinus directeurs de \mathbf{n} relativement aux axes du cristal. En se limitant aux deux premières constantes K_1 et K_2 , seules les directions de haute symétrie du cube peuvent être des directions d'aimantation facile. La détermination directe de ces constantes et leur évolution thermique se fait généralement à partir des mesures de couple. A des températures supérieures à 80K, les constantes $K_1(T)$ et $K_2(T)$, pour la plupart des ferrites grenats ont été mesurées sans ambiguïté par Pearson et ces collaborateurs [25,26]. En dessous de 80K, l'anisotropie devient trop grande pour que les champs appliqués disponibles ($\approx 25\text{Koe}$) maintiennent l'échantillon mono domaine dans toutes les directions.

Cependant des estimations ont été faites par extrapolation à partir des mesures sur des composés dilués (YIG dopés avec la terre rare correspondante): elles conduisent à des valeurs très importantes à basse température (de l'ordre de 10^8 erg/cm³ soit environ 180 K par mole RIG équivalent à un champ d'anisotropie de 150 KOe). Cependant, en tenant compte du terme du huitième ordre dans le développement de la densité de l'énergie d'anisotropie K_1, K_2 et K_3 [14] (en supposant K_3 positive) on a pu prévoir de nouvelles phases dites « angulaires », dans lesquelles les axes d'aimantations spontanées sont suivant des directions de basse symétrie $\langle uvw \rangle$ et $\langle uvw \rangle$ respectivement dans le plan $\{110\}$ et $\{100\}$. En effet, ces transitions de phases de réorientation de spin du premier ordre $\langle 111 \rangle \rightarrow \langle 110 \rangle$ qui apparaissent vers 65K, et qui s'explique bien avec K_1, K_2 , il existe vers 18 – 20K une transition de phase du second ordre du type $\langle 111 \rangle \rightarrow \langle uv0 \rangle$. A 4,2°K, les constantes d'anisotropie proposées pour rendre compte de cette transition sont : $K_1 = -10^7, K_2 = 10^8, K_3 = 2,5 \cdot 10^8$ (erg/cm³). Remarquant enfin que la contribution de l'anisotropie des ions fer, se développant normalement en fonction des cosinus directeurs de \mathbf{n} , les constantes K_1, K_2, K_3 s'ajoutent donc aux précédentes. Leur déterminations en fonction de la température a été faites avec précision par Escudier [27]; les valeurs à 4,2K sont égales à : $K_1 = -26\,895,103, K_2 = -1175, K_3 = 1015$ (erg/cm³).

II-2-3-Structures obliques induites par un champ magnétique

Des interactions d'échange négatif entre moments magnétique stabilisent un arrangement antiparallèle de type antiferromagnétique ou ferrimagnétique qui s'établit spontanément en dessous de la température d'ordre T_N . Un champ magnétique intense tend au contraire à aligner tous les moments parallèlement à lui-même. Le passage de la structure magnétique spontanée à la ferromagnétique en champ intense est bien connu dans le cas des antiferromagnétique. Dans la plupart des cas, il ya aucune rotation de la direction d'antiferromagnétique Δ qui tend à s'orienter perpendiculairement à la direction du champ appliqué car cette situation correspond à une susceptibilité perpendiculaire χ_{\perp} plus grande. La structure s'opère alors par rotation progressive des moments \mathbf{M} des sous réseaux qui se trouvent en position oblique de part et d'autre part du champ appliqué. La direction Δ_0 de Δ , en absence du champ qui est fixée par l'anisotropie de l'énergie. Lorsque la direction du champ fait un angle important avec Δ_0 , la configuration oblique s'établit immédiatement pour les plus petits champs internes. Par contre, pour les directions très voisines de Δ_0 la rotation de Δ est retardée ou même interdite selon l'importance de l'énergie d'anisotropie K , par rapport à l'énergie d'échange J_{ech} :

- Si $K < J$, la rotation de Δ s'effectue brusquement pour un champ seuil

$$H_S = \sqrt{\frac{K}{\chi_{\perp}}} \sim \sqrt{\frac{JK}{M^2}} \text{ La transition de spin flop.}$$

- Si $K > J$, l'un des moments \mathbf{M} passe brusquement d'une direction opposée au champ à une direction proche du champ ; c'est le phénomène du méta magnétisme ou spin flip.

Dans le cas du ferrimagnétisme, l'existence d'une aimantation résultante spontanée M_S dirigée selon Δ , faite que dans des champs pas trop élevés, Δ s'oriente parallèlement au champ sous l'effet du terme $-M_S H$ de l'énergie. Dans des champs plus élevés, le terme $-H^2 \chi_{\perp}$ l'emporte, et une configuration oblique des moments est plus stable. En absence d'anisotropie, on peut montrer qu'une seule configuration existe et que dans un modèle à deux sous réseaux, $\chi_{\perp} = \frac{1}{n}$ où n est le coefficient du champ moléculaire qui correspond à l'interaction d'échange entre les deux sous réseaux comme dans un antiferromagnétique. Ceci conduit à des champs de transitions $H_S = -n \cdot M_S$ du même ordre de grandeur que les champs d'échange. Ils sont inaccessibles dans la plupart des cas sauf si M_S prend des valeurs faibles d'un point d'inversion ou dans certains grenats dilués. Pour les champs de transition colinéaire oblique, la phase colinéaire est stabilisée dans les directions faciles et défavorisé pour les directions difficiles. Il s'en suit qu'à une température donnée le champ critique H_2 d'apparition de la zone oblique en champ intense sera donc plus élevé selon une direction facile. La différence avec le diagramme (théorique) isotrope étant de l'ordre de $2K/M_S$.

Selon une direction difficile, une branche inférieure H_1 peut apparaître. Elle correspond à l'établissement de la phase coaxiale à partir d'une oblique initiale. Ce champ est de l'ordre de $2K/M_S$. Près du point d'inversion, les effets de l'anisotropie sont amplifiés puisque $2K/M_S$ qui représente l'anisotropie effective diverge à T_i et les branches H_1 et H_2 se rejoignent. Si l'anisotropie est suffisamment grande, il peut y avoir autant des phases obliques stables que de directions faciles équivalentes en champ nul. A la limite de l'anisotropie très grande devant l'échange et le champ extérieur, les seules situations d'équilibres stables sont celles qui sont très proche d'un axe facile par rapport un autre [5].

II-3-Historique de notre composé :

Les propriétés physiques des RIG ne cessent de faire l'objet d'intenses recherches. Malgré le fait que les mécanismes de base des interactions et leurs valeurs aient été établis qualitativement et dans nombre de cas expliqués quantitativement, il reste qu'à basse température, là où les différentes versions du modèle du champ moléculaire sont inopérantes, plusieurs points demeurent inexplicés.

En particulier, l'état de l'ion de terre rare dans la structure grenat sous l'effet de la température et du champ magnétiques (champ extérieur + champ d'échange) n'a pas été déterminé de façon

probante. De là tout l'intérêt qu'à toujours suscité l'observation des structures magnétiques non colinéaires et obliques.

Les lignes de transitions du diagramme de phase sont, en effet, en relation directe avec les différents paramètres microscopiques (niveaux d'énergie, paramètres du champ cristallin et d'échange,...). Quelques modèles de calcul faisant intervenir plus ou moins ces paramètres ont été proposés [15].

Depuis les premiers travaux effectués par [28], le ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ et ses dérivés substitués à l'yttrium $Yb_{3x}Y_{3-3x}Fe_5O_{12}$ ont fait l'objet de nombreuses études expérimentales et théoriques. Leur motivation essentielle étant liée à la nature même de l'ion Yb^{3+} dont le comportement conduisait à basse température à des propriétés qui étant encore peu comprises. En effet, [25,26] montrent par des mesures de couple que l'anisotropie est suffisamment grande qu'il ne peut déterminer les constantes K_1 , K_2 sur le composé pur en dessous de 20 K et 60K respectivement. Il a étudié alors les composés dilués dans le but de pouvoir extrapoler leurs valeurs. Pour le composé pur YbIG, la constante K_1 est négative à toute température, ce qui implique un axe de facile aimantation selon $\langle 111 \rangle$. Dans les composés dilués, la valeur de K_1 en dessous de 20K reste négative de l'ordre de -6.106 erg/cm^3 à $T = 4,2 \text{ K}$ (pour les composés dilués de 5% et 10% de Yb). De plus, sur les courbes de couple à 1.5 K du composé dilué à 5% de Yb, une anomalie dans les plans (100) et (110) apparaît en accord avec celle observée par Dillion et Walker [29] dans des expériences de résonance. Ce type d'anomalie, a été expliqué en termes de croisement des niveaux « cross over » par analogie à l'anomalie observée dans des ferrites grenat de terbium dilué $Yb_{0.37}Y_{2.63}Fe_5O_{12}$ [23].

La faible anisotropie rencontrée dans ces composés, comparée à celle observée dans d'autres ferrites grenat, en particulier dans TbIG [30] et DyIG, conduit à une magnétostriction peu importante. En effet aucune déformation cristallographique n'a pu être détectée par diffraction des rayons X dans le composé pur.

Les études de diffraction neutronique, effectuées par Tcheou [16] et Pickart et al [31], ont confirmées la structure magnétique en parapluie d'YbIG (**Figure. 6**) autour de l'axe $\langle 111 \rangle$ prévue par Wolf [32]. De plus, une étude récente en utilisant la RAM [33] a permis de mettre en évidence à 4.2 K cette structure magnétique en parapluie dans un composé dilué de 3.3% de Yb à l'yttrium en champ nul. Les premières mesures d'aimantation effectuées sur des monocristaux d'YbIG ont permis la détermination de la température d'inversion $T_I = 7.6 \text{ K}$ [34] et 6 K [9]. Elles ont pu confirmer la réduction apparente des moments d'ytterbium et le caractère facile de la direction $\langle 111 \rangle$. Dans des champs plus élevés, les premières mesures sont faites en champs pulsés (13T) par Clark et Callen [35] qui ont étudié le diagramme de phase magnétique isotrope dans le cadre de la théorie du champ moléculaire selon $\langle 111 \rangle$.

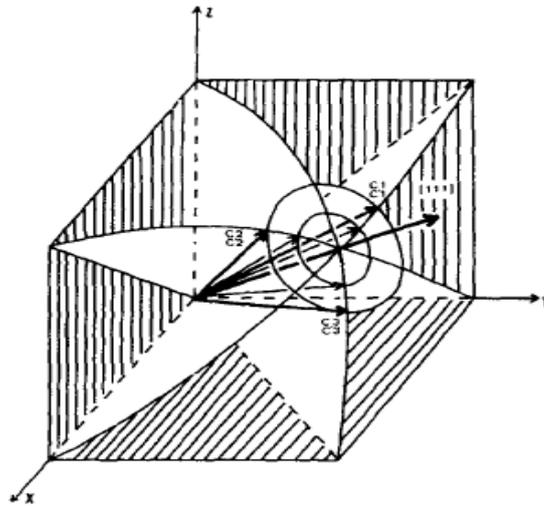


Figure. 6: Structure en parapluie d'YbIG d'après [16].

II-4- problématique de notre travail

Une étude expérimentale en champs pulsés intenses (jusqu'à 40T), effectuée par Fillion [13], a permis la construction des diagrammes des phases expérimentaux selon les trois directions $\langle 111 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$. Cependant, ces études expérimentales ont été confrontées aux travaux théoriques effectués par Alben [2] et Loos [3], se basant sur un modèle de spin effectif et tenant compte de l'anisotropie. Un accord qualitatif a été trouvé pour les directions $\langle 111 \rangle$, $\langle 100 \rangle$. Pour la direction $\langle 110 \rangle$, un désaccord total apparaît en ce qui concerne le nombre et la nature des lignes de transitions des diagrammes de phase expérimentales de Fillion [1] et celui théorique de Loos [3] et Vultrisky [4].

Des expériences, à savoir des mesures d'optique en champs moyens (8T) et des mesures d'aimantation en champs statique (16T), ont été faites dans le but d'étudier la nature des deux lignes de transition de part et d'autre de la température d'inversion T_I . Ces deux lignes présentent un caractère du premier ordre en accord avec Fillion [1]. Tant en ce qui concerne la nature de la ligne intermédiaire [1] et la deuxième ligne issue de magnétique prévu par Loos [3] et le même résultat obtenu avec Vultrisky [4] (**Figure. 9**).

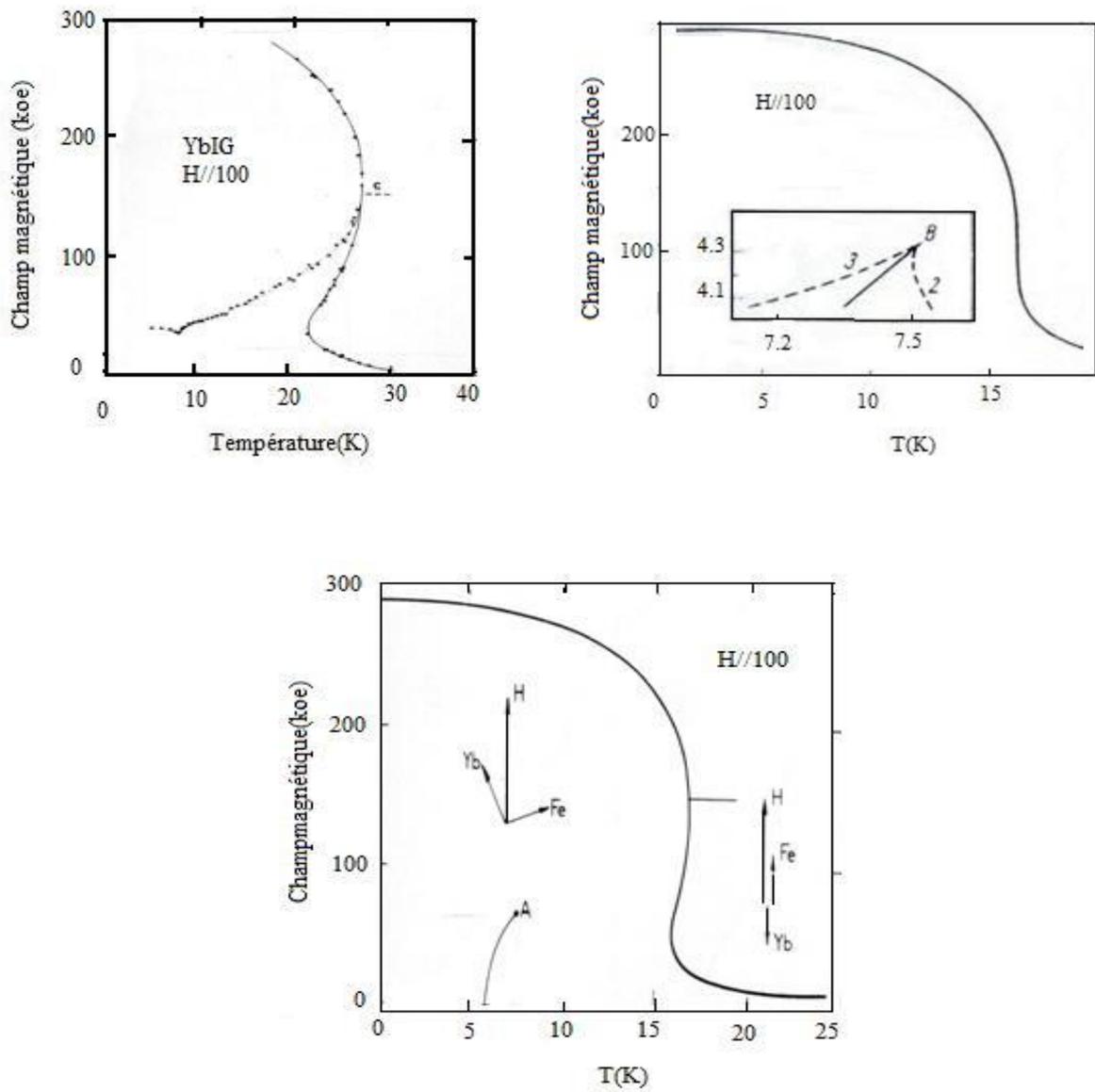


Figure. 7:Diagramme de phase (H,T) pour la direction $\langle 100 \rangle$ selon Fillion [1], Alben [2] et Loos [3].

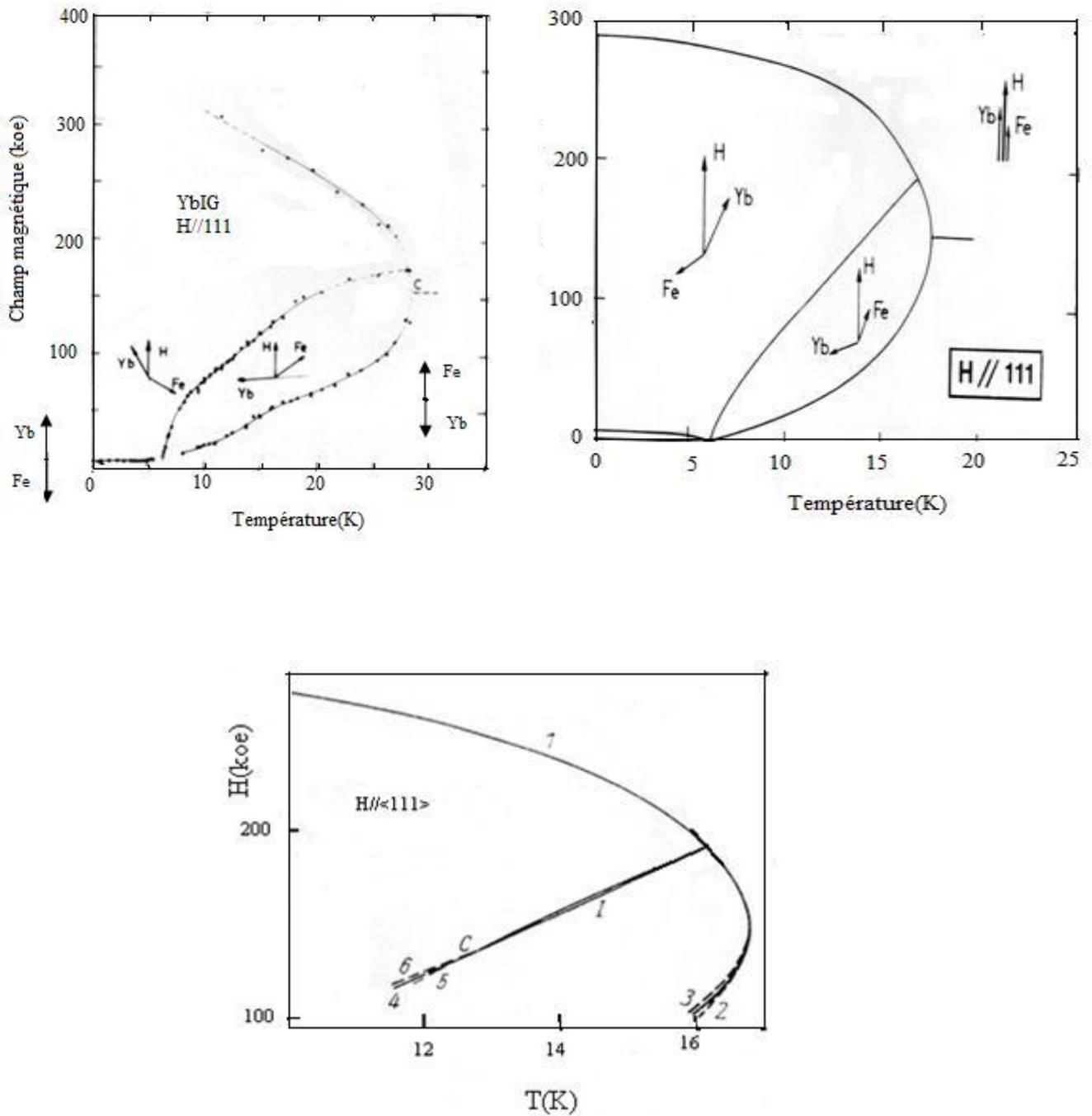


Figure. 8 : Diagramme de phase (H, T) pour la direction $\langle 111 \rangle$ selon Fillion [1], Alben [2] et Loos [3].

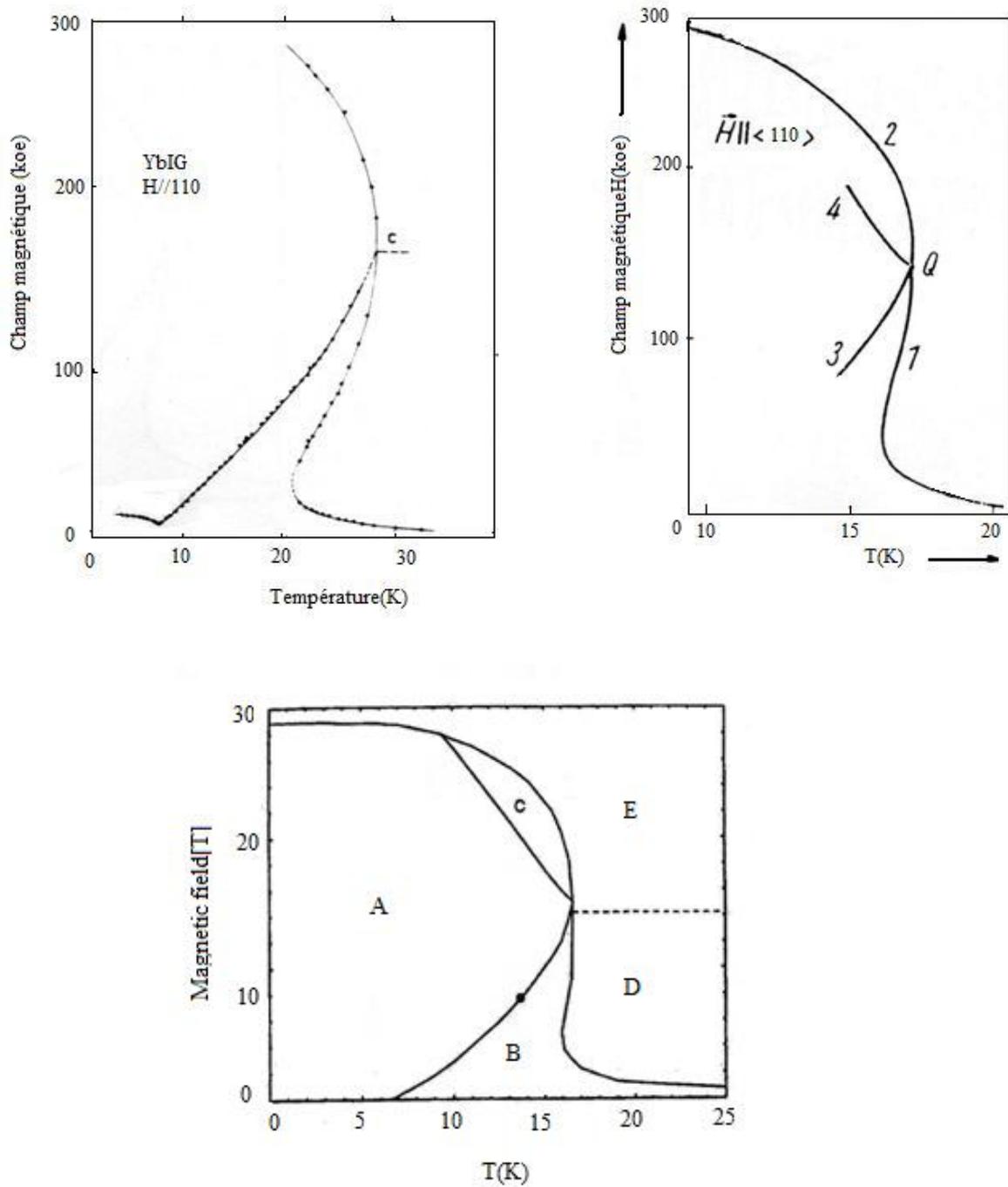


Figure. 9: Diagramme de phase (H, T) pour la direction $\langle 110 \rangle$ selon Fillion [1], Loos [3] et Veltrusky [4].

II-5- Construction théorique du diagramme de Phase (H, T) de ferrite grenat d'ytterbium à basses températures

Partons du modèle de spin effectif, l'énergie libre, de notre composé, est défini par:

$$F(\theta, H, T) = -kT \sum_i n_i \ln 2 \cosh[\mu_i \Delta_i(\theta)/kT] - \vec{M}_F \cdot \vec{H} + A(\theta), \quad (21)$$

Dont n_i est le nombre d'ion Yb^{3+} dans le réseau YIG. Les propriétés thermodynamiques tels que l'aimantation, la chaleur spécifique, la susceptibilité et l'entropie, peuvent être obtenues par le biais de cette énergie. Ainsi, afin de calculer ces propriétés, nous cherchons, en premier lieu, les deux angles (θ, Φ), **Figure. 10** décrivant la direction de notre paramètre d'ordre $\vec{M}_F(\theta, \phi)$ dont

$$\vec{M}_F(\theta, \phi) = \sin\phi \cos\theta \vec{e}_x + \sin\phi \sin\theta \vec{e}_y + \cos\phi \vec{e}_z. \quad (22)$$

Chaque couple (θ, Φ), pour un (T, H) constant, donne la position exacte de l'aimantation dans l'espace. Ensuite, en faisant varier les températures à un champ fixe, toutes les propriétés thermodynamiques de notre composé sont bien trouvées.

Alors, la construction des courbes des iso champs nous permis bien de détecter le nombre, et de préciser la nature des transitions de phase magnétiques qui se manifestent dans les trois directions principales.

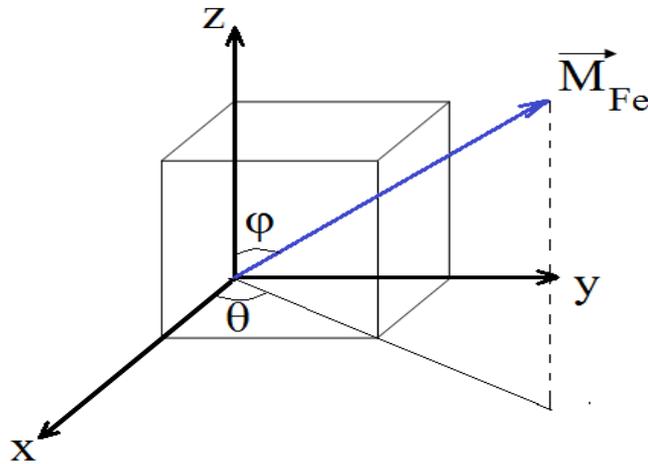


Figure. 10 : La direction spatiale de notre paramètre d'ordre $\vec{M}_F(\theta, \phi)$

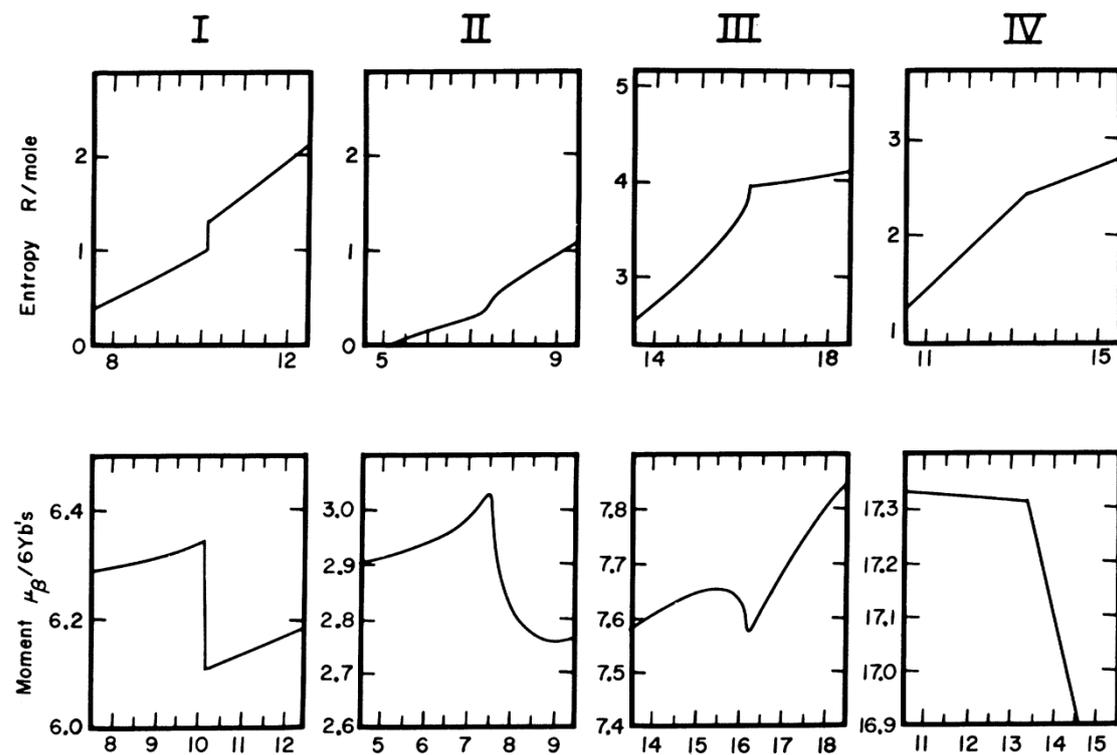
Les différentes quantités thermiques sont évaluées numériquement en utilisant les relations suivantes :

$$S = -\frac{\partial}{\partial \theta} F(\theta, H, T) \quad (23)$$

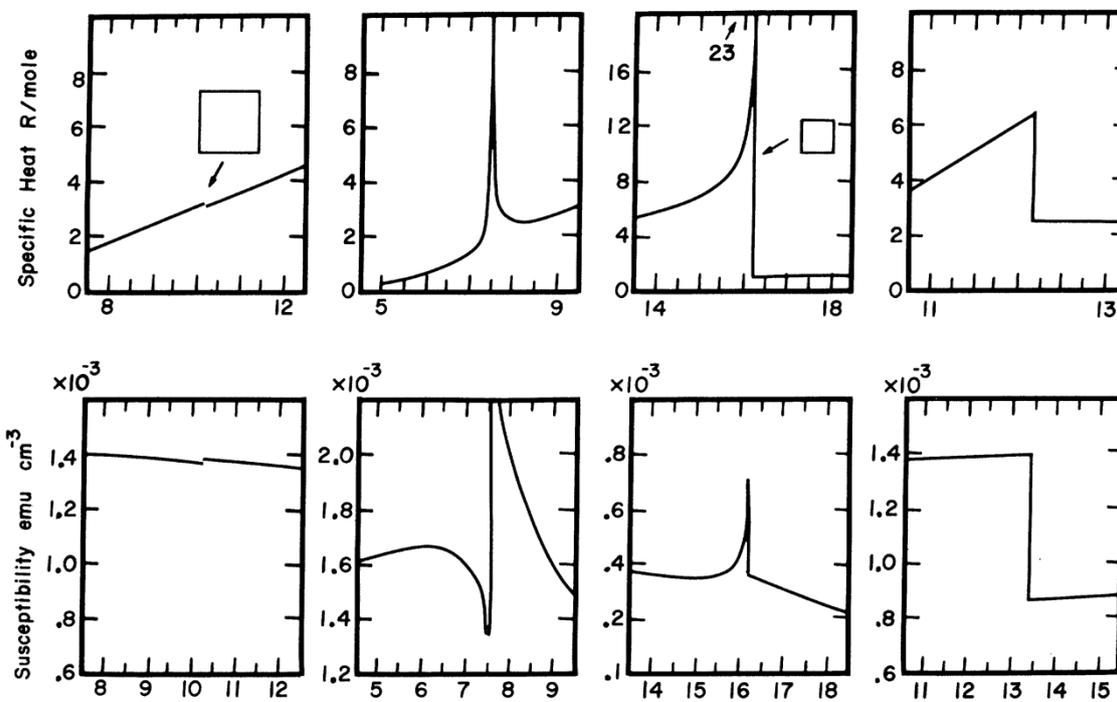
$$M = -\frac{\partial \theta}{\partial H} - \frac{\partial F}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial H} = -\frac{\partial F}{\partial H} \quad (24)$$

$$C = -T \frac{\partial^2}{\partial T^2} F - T \frac{\partial^2 F}{\partial \theta \partial T} \frac{d}{dT} \theta \quad (25)$$

$$\chi = -T \frac{\partial^2}{\partial H^2} - T \frac{\partial^2 F}{\partial \theta \partial H} \frac{d}{dH} \theta. \quad (26)$$



(a)



(b)

Figure. 11: Classification des transitions de Phases d'après Alben[2]

Chapitre III

Etude des transitions magnétiques dans le ferrite grenat d'ytterbium dans la direction $\langle 110 \rangle$

III-1 Introduction

Les propriétés spectroscopiques de ferrite grenat d'ytterbium montrent que :

(i) le doublet fondamental est bien séparé du premier état excité environ de 550 cm^{-1} ($\sim 150 \text{ K}$): ce résultat nous permis de construire un modèle de spin effectif, à basses températures, avec un doublet fondamental de Kramers. L'intervention des niveaux supérieurs est négligeable.

(ii) la partie intéressante du diagramme de phase est décrite de part et d'autres de la température de compensation T_1 ($\cong 7 - 8^\circ \text{ K}$),

(iii) enfin l'état de l'ion Yb^{3+} est convenable au développement d'un modèle théorique expliquant les différentes transitions de phases magnétiques dans les directions de haute symétrie.

Notons ici que d'autres études récentes utilisent ces propriétés fondamentales afin d'expliquer les différents phénomènes magnétiques existant dans ce composé [36].

Donc, ce présent chapitre s'articule sur l'étude des deux points suivants: le premier consiste à étudier les propriétés thermiques en champs magnétiques nuls, tels que la chaleur spécifique, puis à tester l'influence des deux tenseurs \mathbf{G} et \mathbf{g} sur ces propriétés. Le deuxième point s'insère sur les études des transitions magnétiques pour la direction principale $\langle 110 \rangle$ de part et d'autres du point de compensation T_1 , ainsi qu'au voisinage du point C du diagramme de phase (H, T) en champ magnétique statique [5,6].

III-2 Calcul de la chaleur spécifique en champs magnétiques nuls

En se basant sur le modèle de spin effectif, l'énergie libre en champ magnétique nul est :

$$F(T) = -\frac{Nk_B T}{6} \sum_{i=1}^6 \ln \left(2 \cosh \left[\frac{\Delta_i}{2k_B T} \right] \right), \quad (27)$$

dont

$$\Delta_i = |\overrightarrow{M_{Fe}} / |\overrightarrow{M_{Fe}}|. G_i|, \quad (28)$$

d'écrit l'écart du niveau fondamental.

L'Hamiltonien global de ferrite grenat d'ytterbium (YbIG) est [11]

$$H = H_{latt} + H_{magn} + H_{nucl}, \quad (29)$$

Avec H_{latt} l'Hamiltonien du réseau, H_{magn} l'Hamiltonien des atomes magnétiques, et H_{nucl} décrit l'interaction entre les spins nucléaires et les spins des électrons.

A partir de l'équation (29), la chaleur spécifique totale résultante est :

$$C = C_{latt} + C_{magn} + C_{nucl}, \quad (30)$$

ou C_{latt} présente la chaleur spécifique due aux vibrations du réseau, C_{magn} la chaleur spécifique magnétique due à la contribution magnétique, et enfin C_{nucl} la chaleur spécifique nucléaire due à la contribution nucléaire. Généralement le terme C_{latt} de réseau est remplacé par celui de la chaleur spécifique totale de ferrite grenat de Lutécium (LuIG). Dans ce cas, l'Eq. (30) devient :

$$C_{YbIG} \approx C_{LuIG} + C_{magn} + C_{nucl}. \quad (31)$$

Le terme concernant la chaleur spécifique nucléaire prend la forme suivante:

$$C_{nucl} = \frac{0.0158}{T^2}. \quad (32)$$

Enfin, pour le terme magnétique, il est obtenu via la relation thermodynamique suivante :

$$C_{magn} = -T^2 \frac{d^2}{dT^2} F(T) \quad (33)$$

Dans le cas particulier de l'approximation du champ moléculaire de Weiss (CMW), la chaleur spécifique magnétique est donnée par la relation suivante:

$$C_{magnWMF} = 6R \left(\frac{E_1}{k_B T} \right)^2 \frac{e^{\frac{E_1}{k_B T}}}{\left(1 + \frac{E_1}{k_B T} \right)^2}, \text{ avec } \bar{E}_1 = 25 \text{ cm}^{-1} \quad (34)$$

D'après l'équation (31), le seul terme inconnu est le terme dû à la contribution magnétique.

Ainsi, en premier lieu, nous calculons ce terme en utilisant la forme de notre énergie libre, ensuite, l'influence des deux tenseurs \mathbf{g} et \mathbf{G} sur la chaleur spécifique totale, ainsi que la chaleur spécifique magnétique sera effectuée. La comparaison de nos calculs avec ceux obtenus expérimentalement est bien effectuée.

III-3 Simulation numérique

Le calcul de la chaleur spécifique totale de ferrite grenat d'Ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ a été fait en utilisant le modèle de spin effective pour les différentes valeurs de \mathbf{g} et \mathbf{G} (voir *Tableau. 4*).

Les résultats obtenus sont confrontés avec ceux trouvés expérimentalement par Harris et al [11]. Ces résultats sont présentés graphiquement à partir des **Figures. 12--15**.

Tableau. 4: Les valeurs principales de G et g utilisées dans notre calcul.

	$G(cm^{-1})$	g
Wickersheim[37]	11.6	2.85
	25.7	3.60
	29.9	3.78
Kolmakova[22]	25.5	3.7
	29	3.3
	12	3.0
Fillion[1]	31.15	3.75
	27.06	3.65
	12.25	3.1

Dans les **Figures. 12 et 13**, nous présentons la variation théorique de la chaleur spécifique totale d'YbIG en fonction de la température. Ces courbes ont été calculées en utilisant le modèle de spin effectif pour différentes valeurs de g et G . Ces calculs sont confrontés : (i) aux données expérimentales de Harris et Mayer et (ii) aux calculs utilisant l'approximation de Weiss.

A partir de ces courbes, on distingue deux régions: la première pour des températures inférieures à $T = 10K$, où on constate que les courbes obtenues à partir des valeurs de Fillion[1] et Wickersheim[37] sont plus proches de l'expérience que celles trouvées par Kolmakova[22]. Ce résultat peut être bien vu sur la **Figure. 13**. Pour la deuxième région où les températures sont supérieures à $T = 10K$, ce sont les courbes de Kolmakova[22] qui sont en bon accord avec l'expérience.

Ainsi, le modèle de spin effective reproduit bien les courbes de la chaleur spécifique totale de ferrite grenat d'ytterbium, et l'accord avec l'expérimental est bien satisfaisant.

La **Figure. 14** montre la chaleur spécifique magnétique d'YbIG en fonction de la température de part et d'autres de T_f . D'après cette figure, la température de compensation T_n n'est pas une température d'une transition de phase magnétique, mais seulement une température de type réorientation de spin.

Enfin, la **Figure. 15** est obtenue par l'utilisation de l'approximation de Weiss [11](**Eq. (34)**) dont les énergies moyennes sont indiquées dans le **Tableau. 5** : l'accord avec le modèle de Weiss [11] est satisfaisant. Tous les résultats trouvés ont été récapitulés dans le **Tableau. 5**. Elles ont été

confrontées aux différents résultats trouvés expérimentalement. Les valeurs des énergies moyennes sont en bon accord avec les données obtenues de la littérature. Tous les résultats obtenus jusqu'ici ont fait l'objet d'un article international au Turkish Journal of Physics (*Abdelmalek Boumali and Oum-Hani Derar, Turk. J. Phys, 36, 51--57 (2012)*)(voir annexe A).

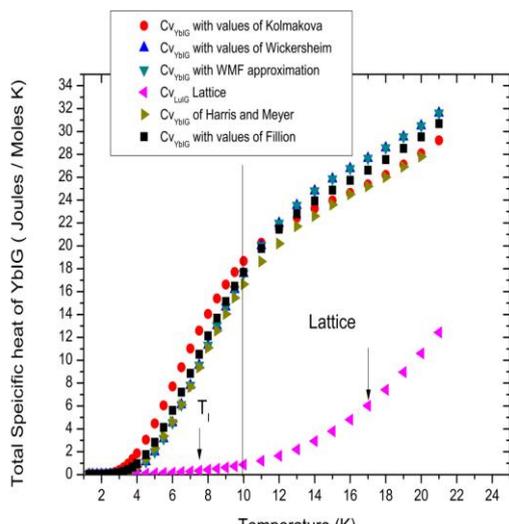


Figure. 12 : la chaleur spécifique totale d'YbIG entre 1.5 K -- 22

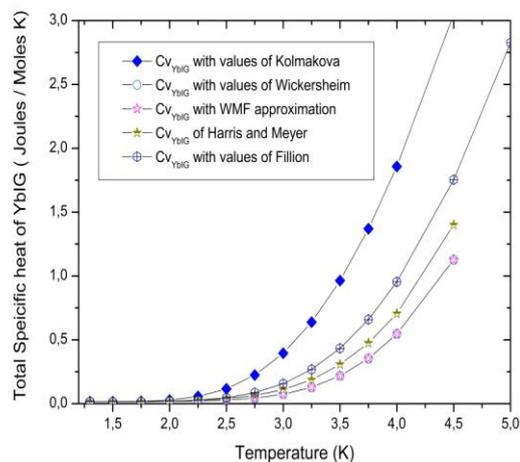


Figure. 13 : la chaleur spécifique totale d'YbIG entre 1.5 K -- 5

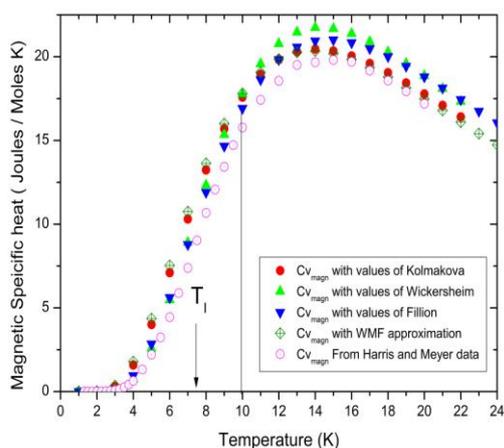


Figure.14: la chaleur spécifique magnétique d'YbIG entre 1.5 K -- 22 K pour différentes valeurs de g et G en comparaison avec les valeurs expérimentales de Harris et Mayer[11].

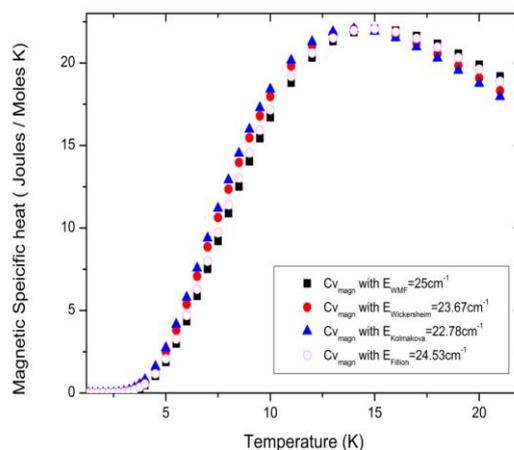


Figure. 15 : la chaleur spécifique magnétique d'YbIG entre 1.5 K -- 22 K.

Tableau. 5 : L'éclatement des niveaux fondamentaux de Kramers de l'ion Yb^{3+} .

source	$E_1(\text{cm}^{-1})$	$E_2(\text{cm}^{-1})$	$\bar{E}(\text{cm}^{-1})$
<i>Chaleur spécifique (4--20 K)</i>	25.0
<i>Magnétisation (2.2--100 K)</i>	25.5
<i>Absorption infrarouge</i>	23.4	26.4	24.9
<i>Absorption optique (77K)</i>	22.1	25.3	23.7
<i>Susceptibilité (550--1450 K)</i>	108.0
<i>Notre travail</i>			
• Fillion	20.58	28.49	24.53
• Kolmakova	17.67	27.88	22.78
• Wickersheim	22.03	25.32	23.67

III-4 Calcul des transitions de phase magnétiques de ferrite grenat d'ytterbium selon la direction $\langle 110 \rangle$.

Dans la section précédente, notre objectif principal était donner une preuve théorique sur la validité du modèle de spin effective pour les études des propriétés magnétiques existantes dans notre composé en question. Ce résultat peut nous permettre d'étendre l'utilisation de ce modèle aux études des transitions magnétiques en présence d'un champ magnétique extérieur. Notons ici que ce dernier point est le but principal de notre mémoire. Le champ magnétique est appliqué selon la direction $\langle 110 \rangle$, dont le diagramme de phase, pour cette direction, est toujours non résolu.

Ainsi, dans cette section, les deux principaux points à discuter sont: (i) premièrement, tester l'influence des deux tenseurs \mathbf{g} et \mathbf{G} sur les propriétés thermodynamiques de notre composé, et (ii) deuxièmement, reconstruire le diagramme de phase dans cette direction. Concernant les deux directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, l'accord entre la théorie et l'expérimental est bien mis en évidence.

III-5 Méthode de calcul.

Notre méthode de travail consiste à calculer les différentes propriétés thermodynamiques en champs appliqués par le biais de l'énergie libre. Les transitions de phases sont repérées par la construction des courbes des iso champs. La nature de ces transitions est déterminée, et nommée selon classification d'Alben[2] (**Figure. 11**). Le paramètre d'ordre, dans notre cas, est l'aimantation des sous réseaux rigides du fer \mathbf{M}_{Fe} que l'on suppose comme une fonction des deux angles θ et ϕ selon la relation suivante :

$$\mathbf{M}_{\text{Fe}} = M \mathbf{n}_{\text{Fe}}, \quad (35)$$

Ou

$$\mathbf{n} = \sin\phi \cos\theta \mathbf{i} + \sin\phi \sin\theta \mathbf{j} + \cos\phi \mathbf{k}. \quad (36)$$

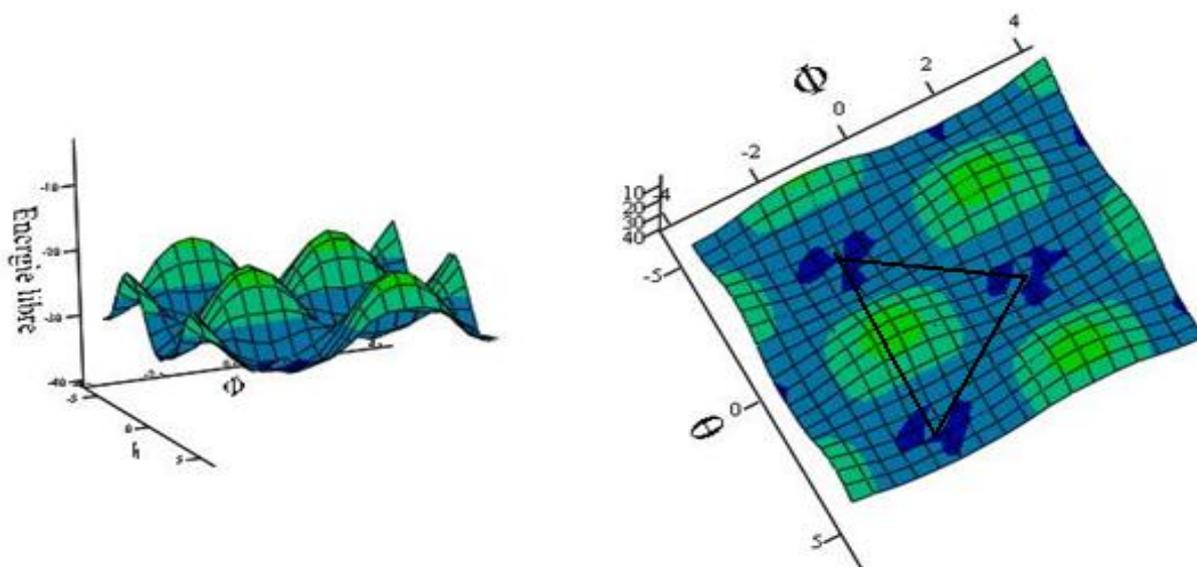


Figure. 16 : L'énergie libre $F(\theta, \phi)$ en fonction de (θ, ϕ) à $T = 1K$ et $T = 10K$ pour $H = 8T$: les différents minima à chercher sont connectés par des lignes continues.

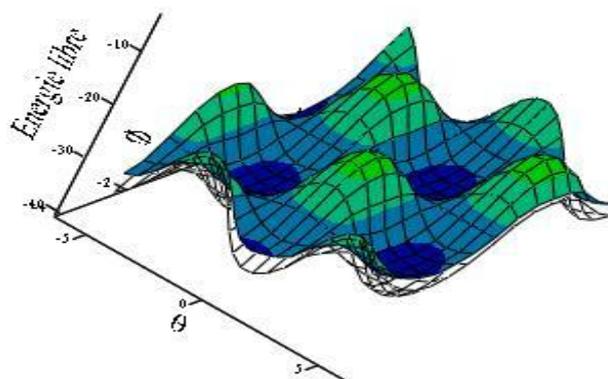


Figure. 17: L'énergie libre $F(\theta, \phi)$ en fonction de (θ, ϕ) à $T = 15K$ (phase oblique) et $T = 30K$ (phase colinéaire) pour $H = 8T$.

L'énergie libre est une fonction des deux angles θ et ϕ déterminant la position stable de notre paramètre d'ordre, et par suite la phase exacte **Figure. 16** **Figure. 17**. Alors, la méthode consiste à optimiser cette fonction pour chaque champ pour trouver la position exacte de notre paramètre d'ordre. Cette optimisation non linéaire utilise la méthode mathématique dite méthode de Quasi-Newton bien implémenté dans le logiciel **Mathcad**. Pour chaque optimisation, toutes les propriétés thermiques sont bien calculées numériquement par le biais d'un programme élaboré en **Mathcad** (**Annexe B**).

III-6 Application de la méthode d'optimisation dans notre cas.

Suivant la méthode d'optimisation de l'énergie libre exposée à dessus, nous avons pu construire, théoriquement, les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium (YbIG) pour des champs allant de $H = 0.85T$ à $H = 20T$ (Figures. 18--33).

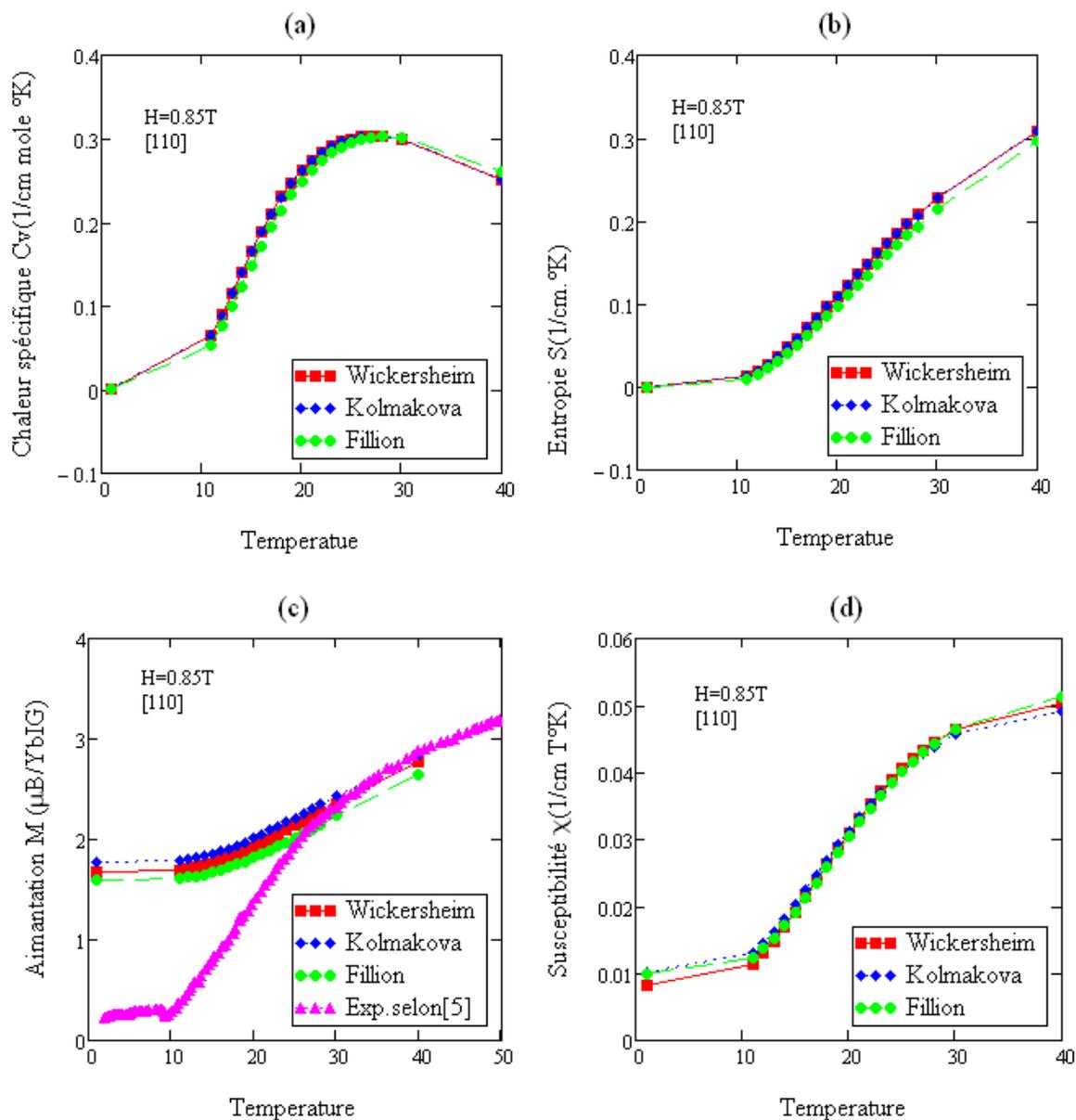


Figure. 18 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H = 0.85T$.

(b) l'entropie pour un champ $H = 0.85T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 0.85T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H = 0.85T$.

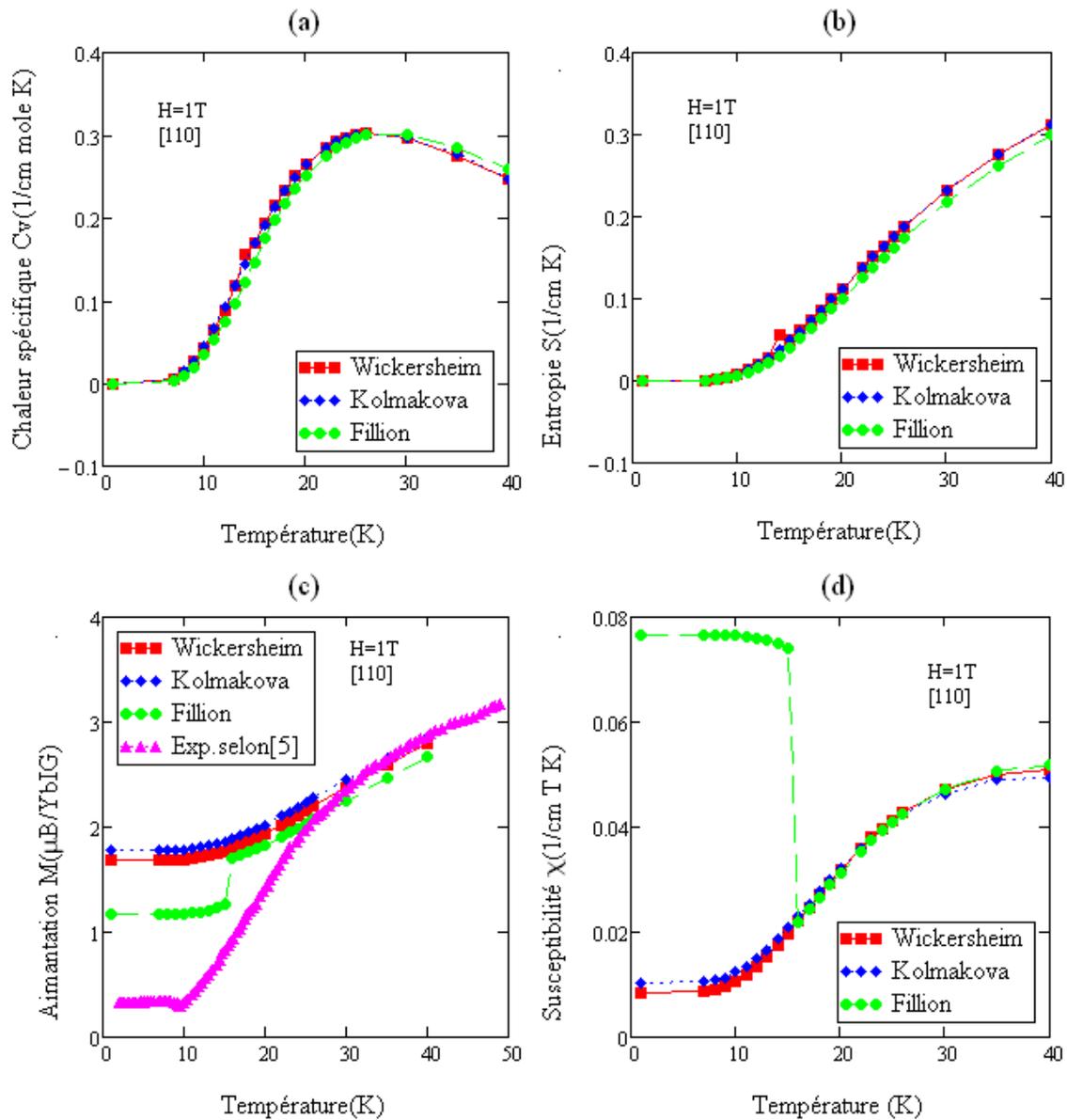


Figure. 19 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H = 1T$.

(b) l'entropie pour un champ $H = 1T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 1T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H = 1T$.

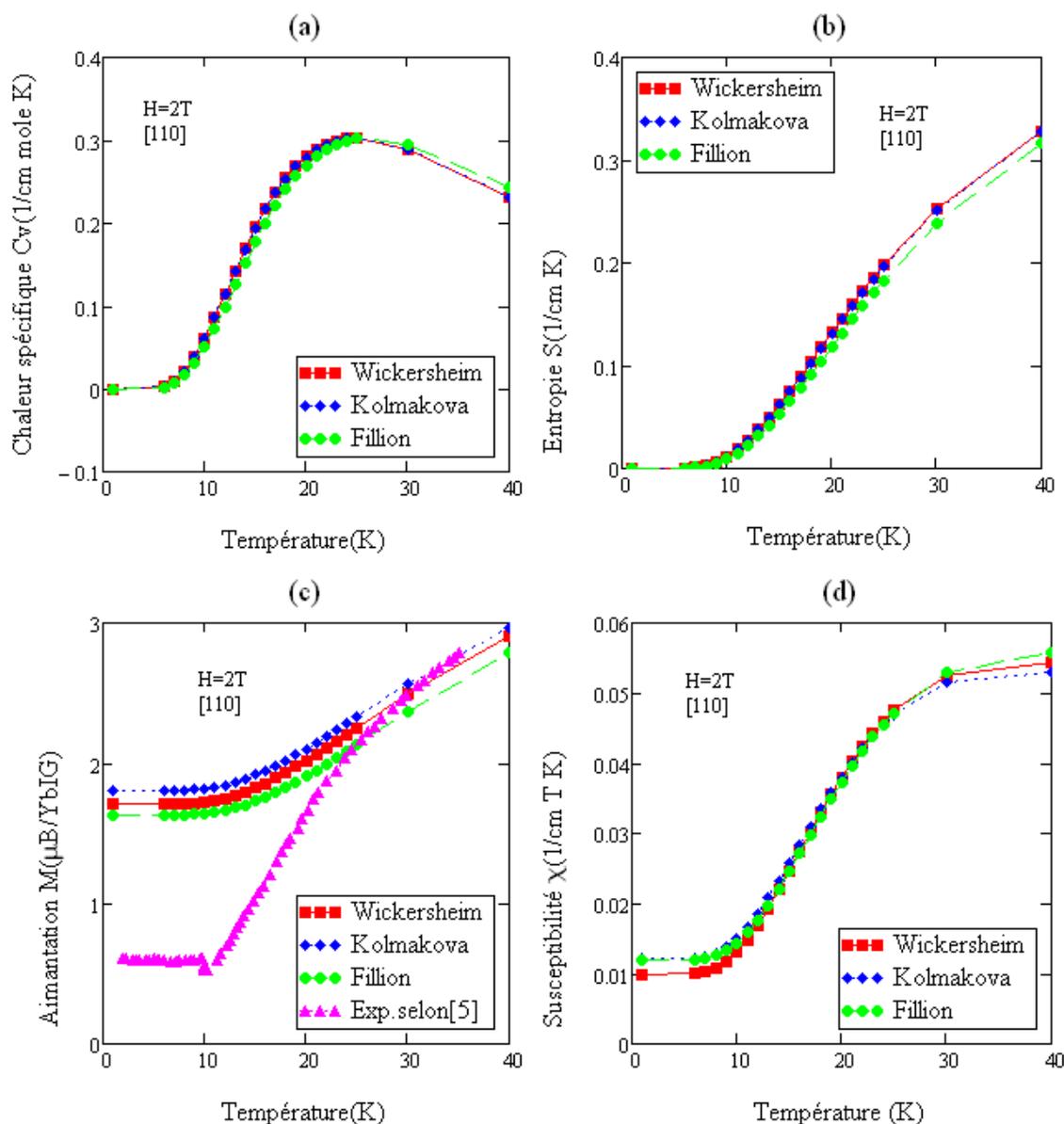


Figure.20 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=2T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=2T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 2T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=2T$.

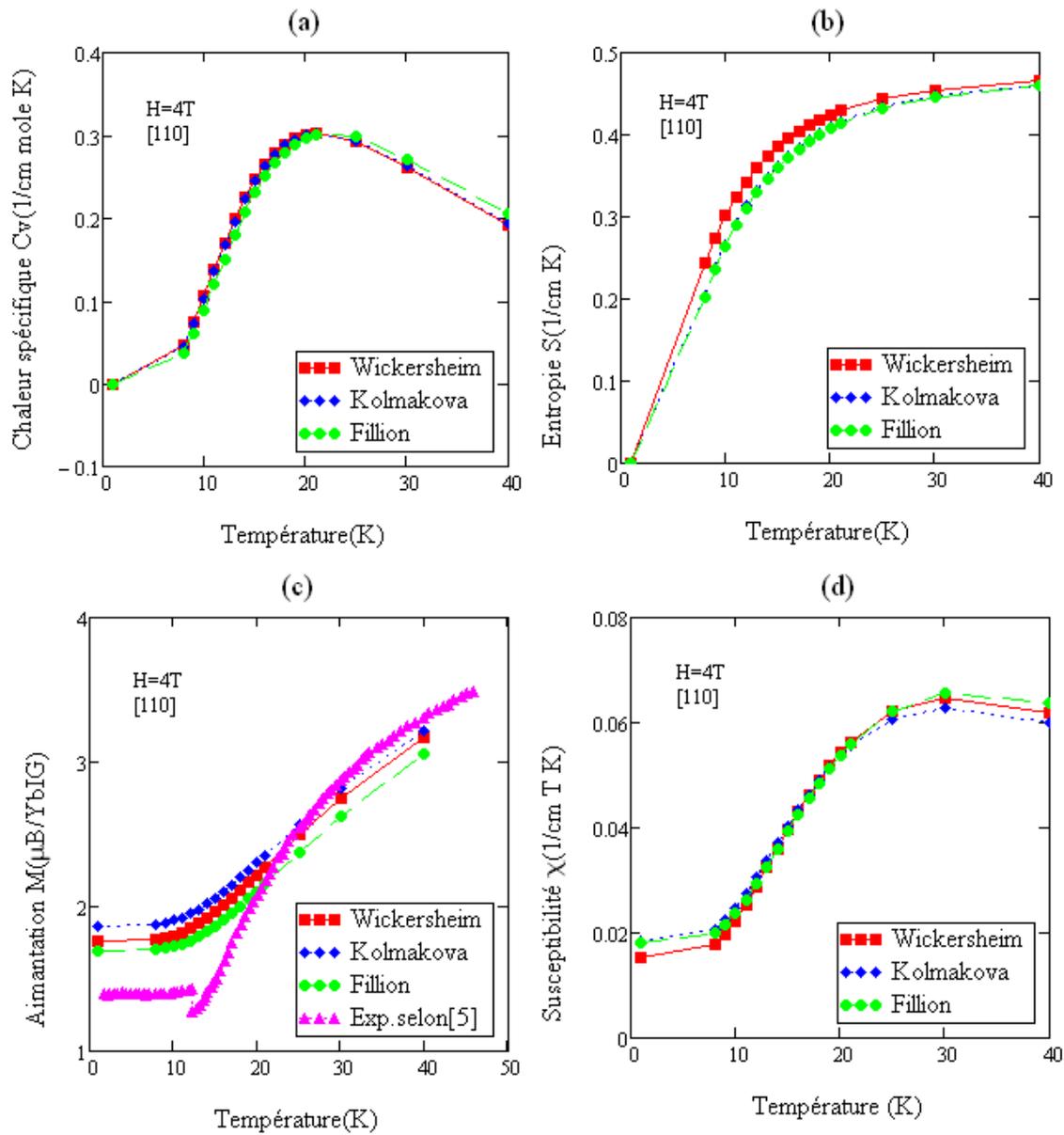


Figure. 21 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=4T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=4T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 4T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=4T$.

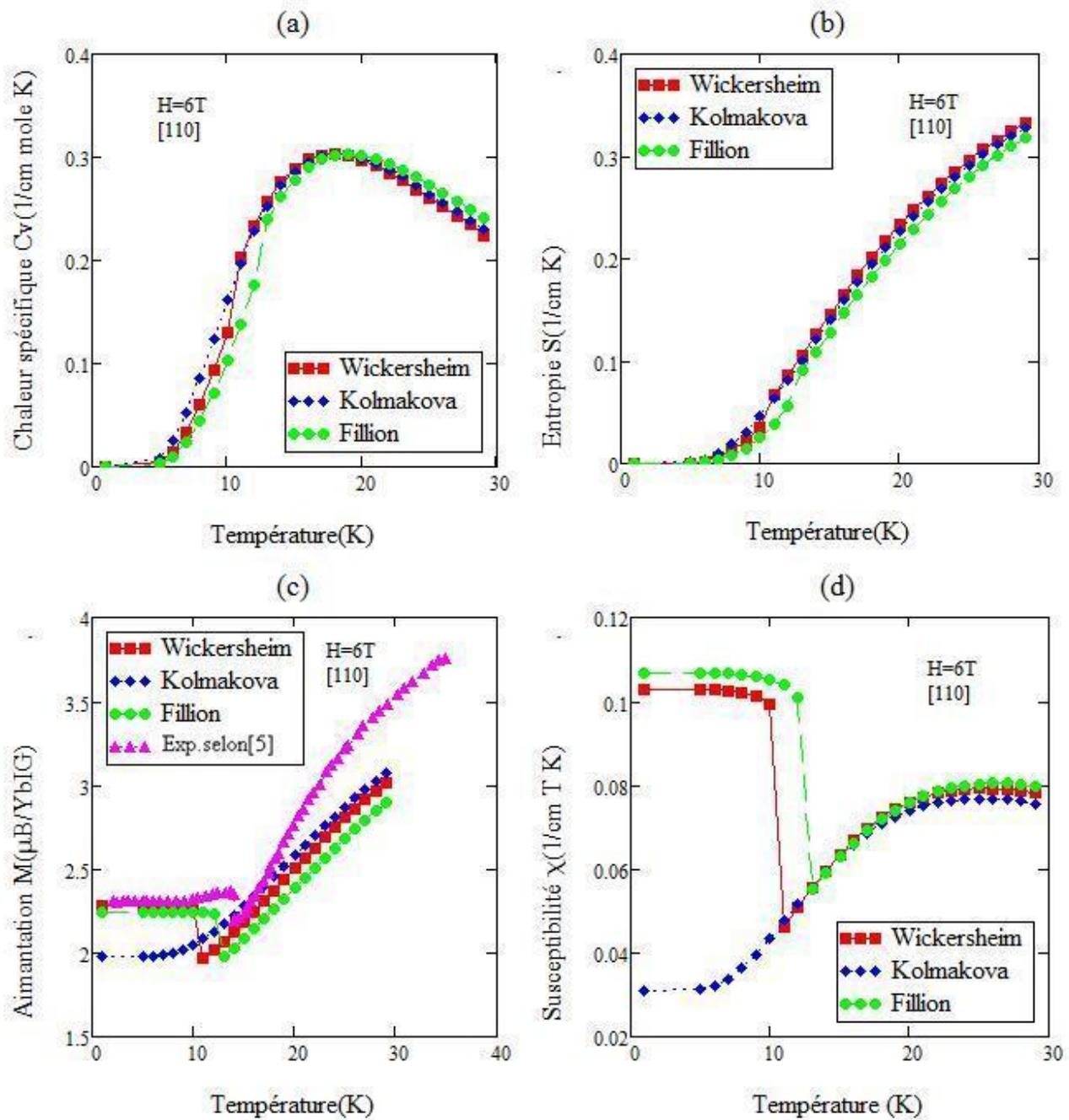


Figure. 22 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=6T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=6T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 6T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=6T$.

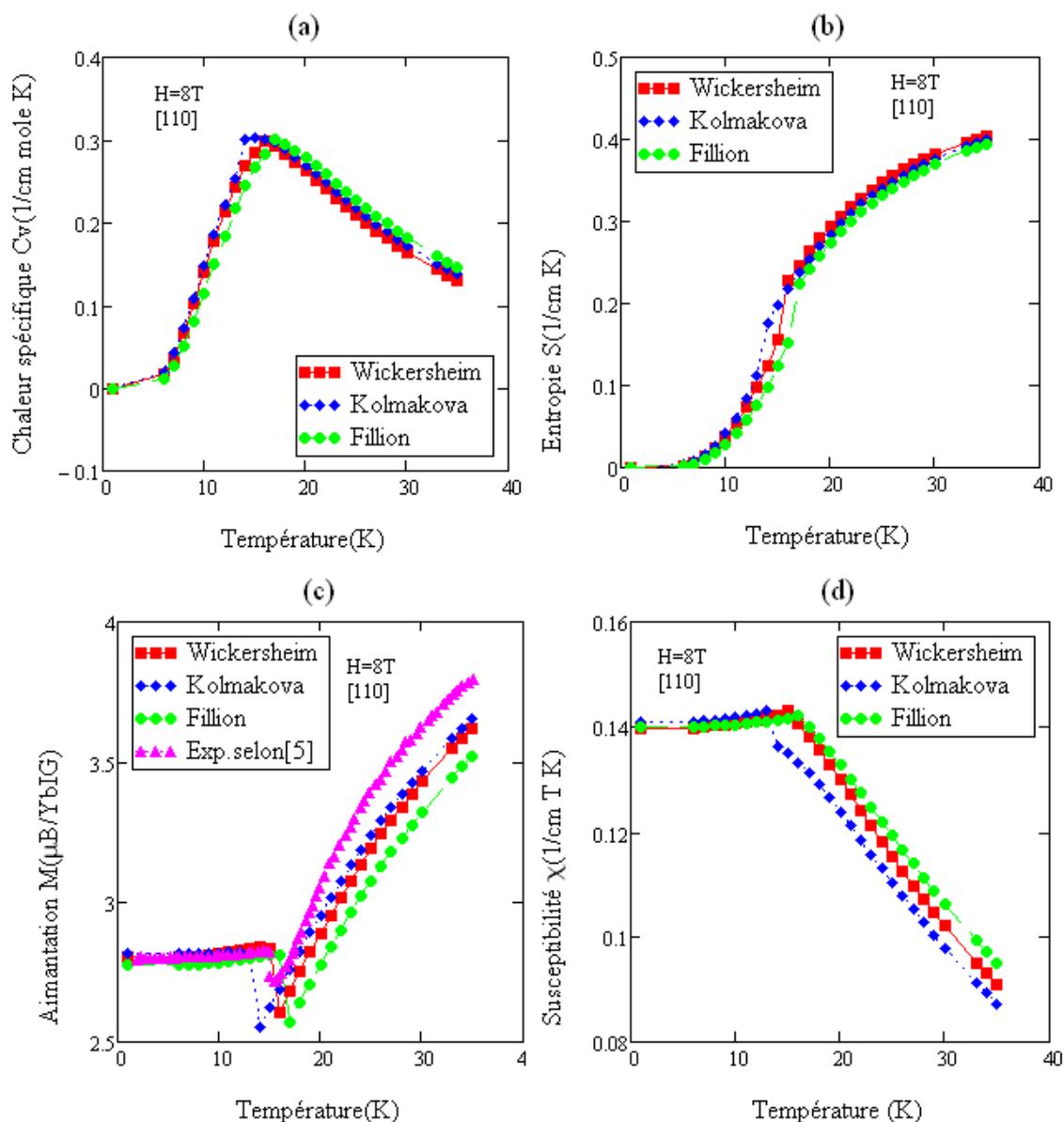


Figure. 23 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=8T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=8T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 8T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=8T$.

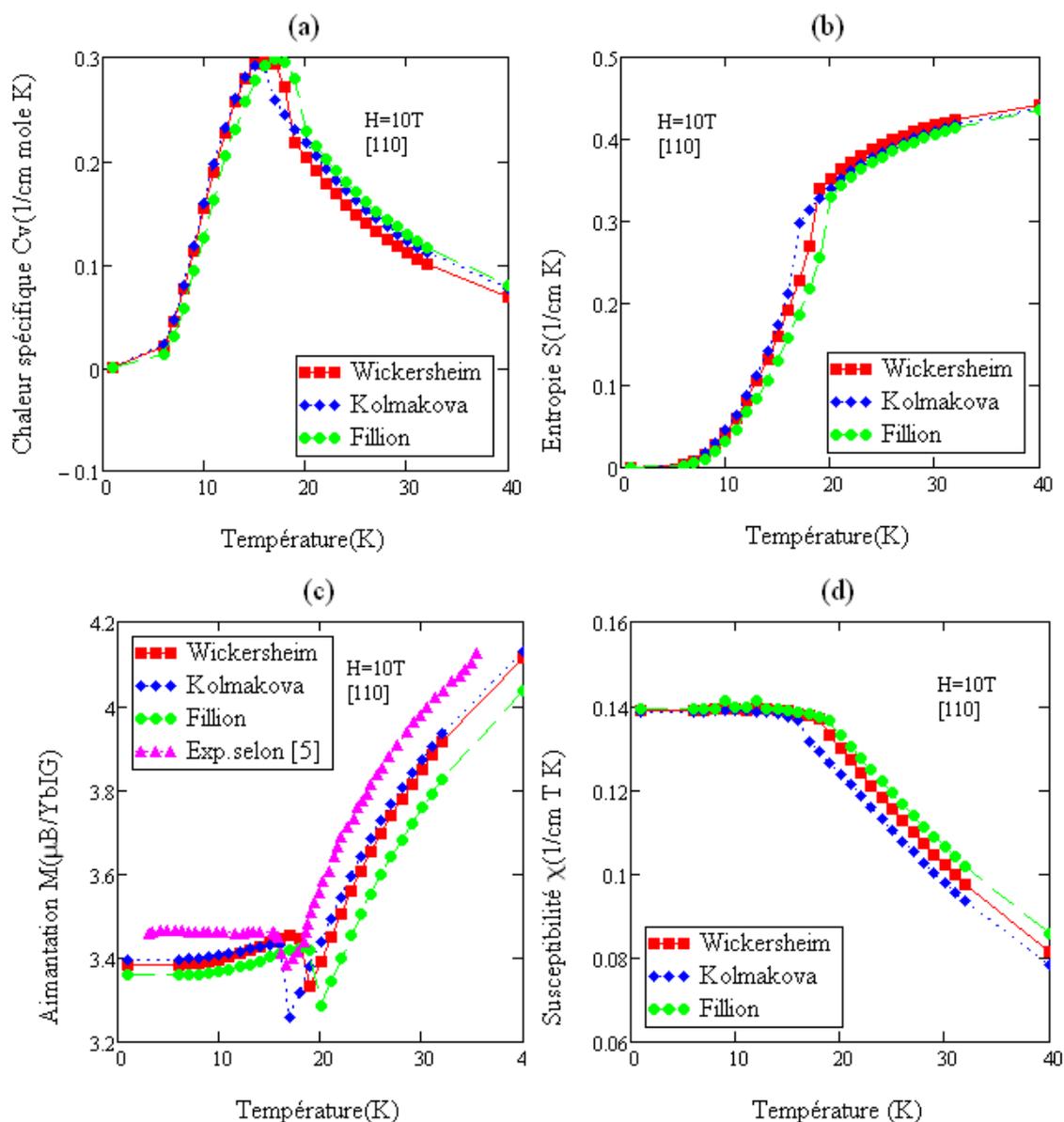


Figure. 24 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

- (a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=10T$.
- (b) l'entropie pour un champ $H=10T$.
- (c) l'aimantation pour un champ $H = 10T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].
- (d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=10T$.

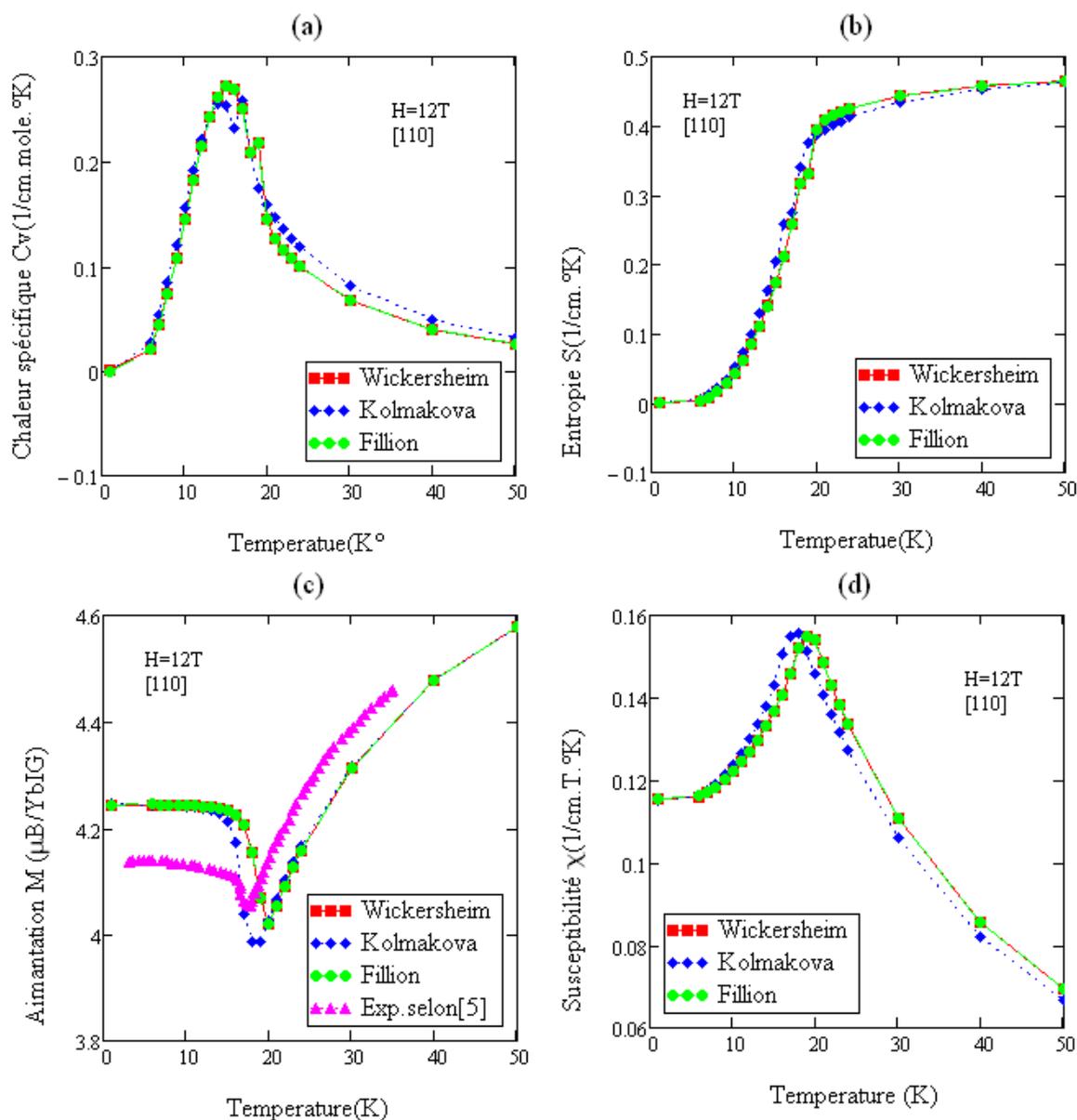


Figure. 25 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=12T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=12T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H = 12T$: les données expérimentales sont obtenues à partir de [5,6].

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=12T$.

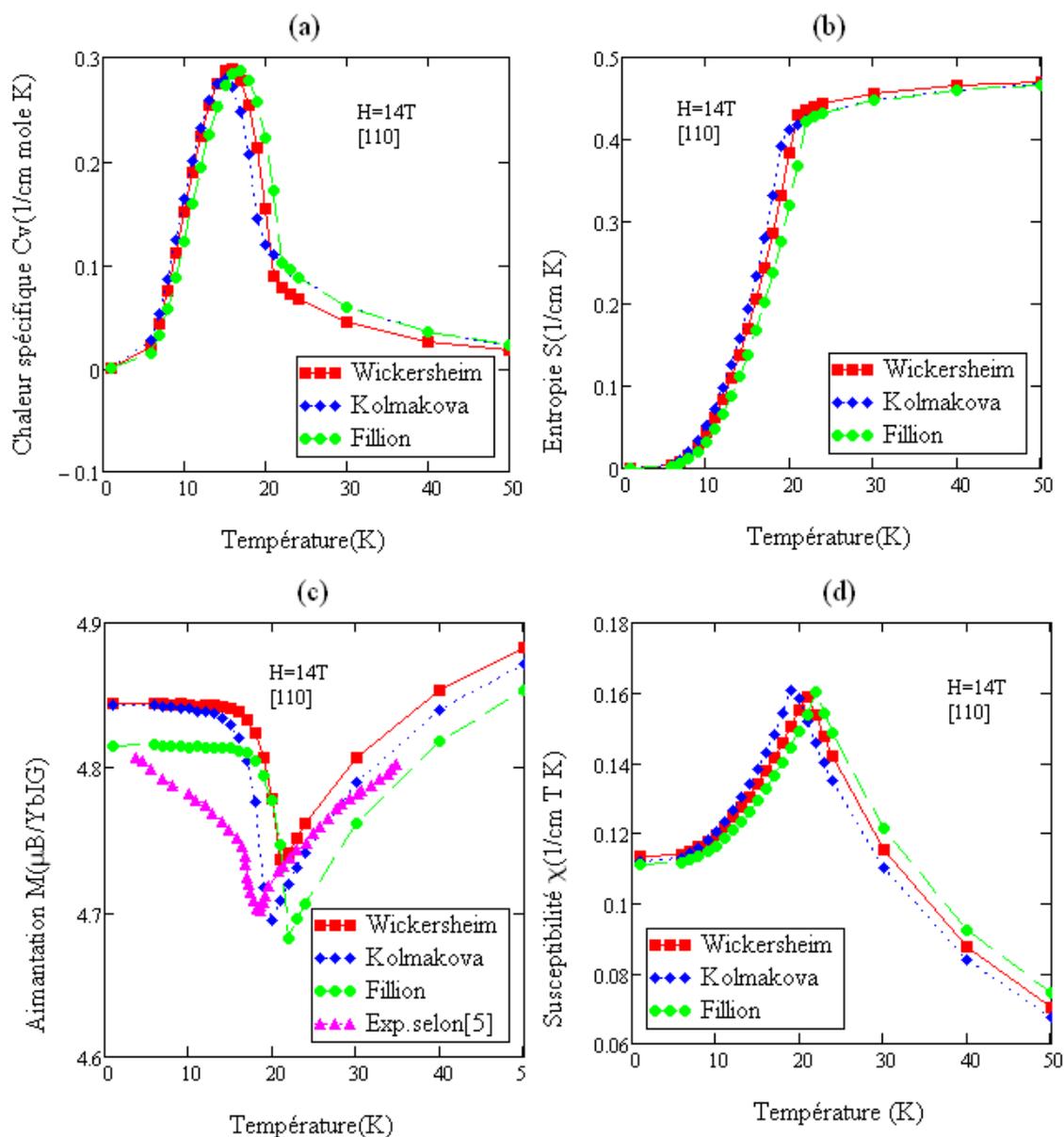


Figure.26 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=14T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=14T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=14T$: les données expérimentales sont à partir de [5,6]

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=14T$

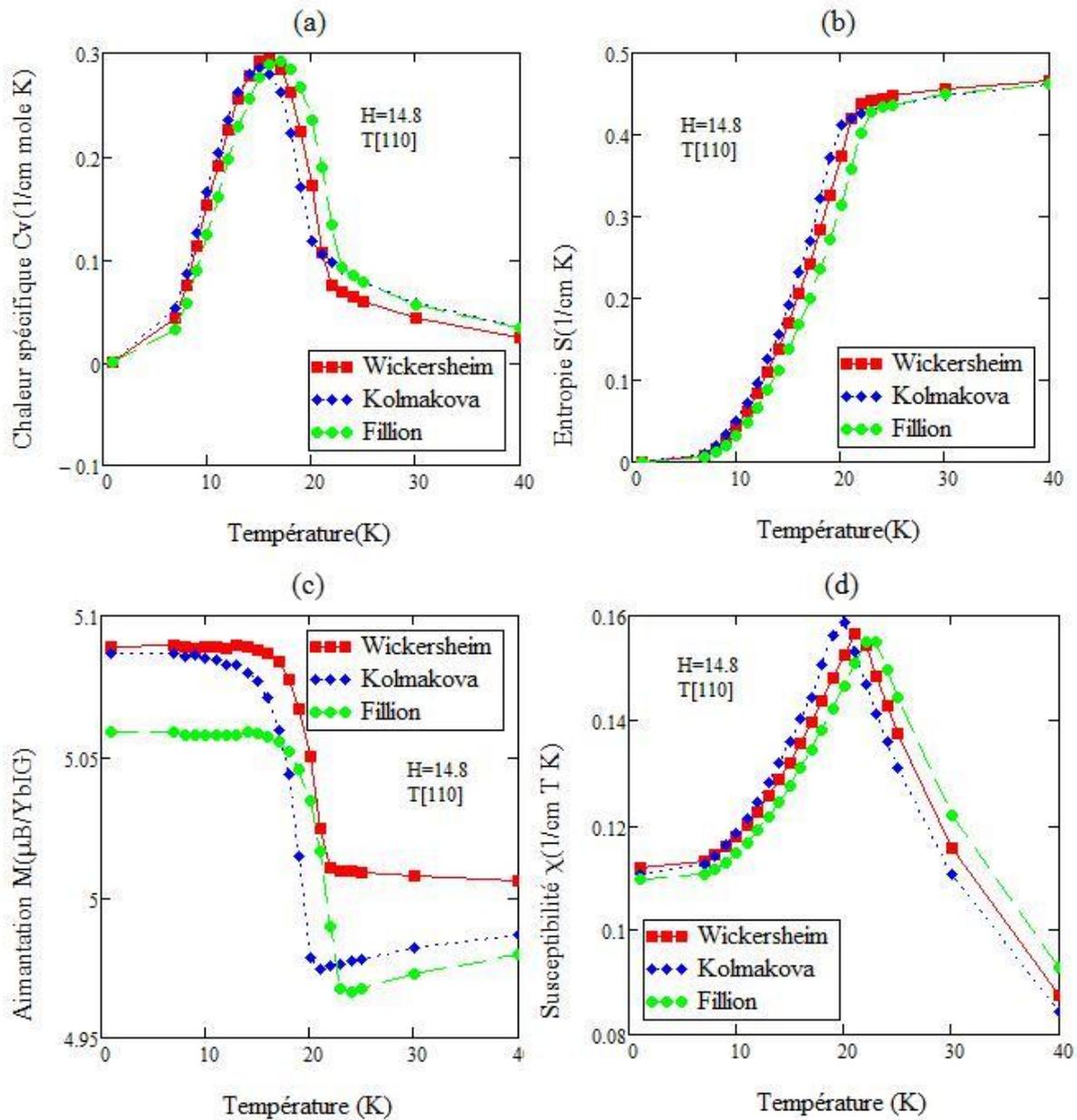


Figure. 27 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $Yb_3Fe_5O_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=14.8T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=14.8T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=14.8T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=14.8T$.

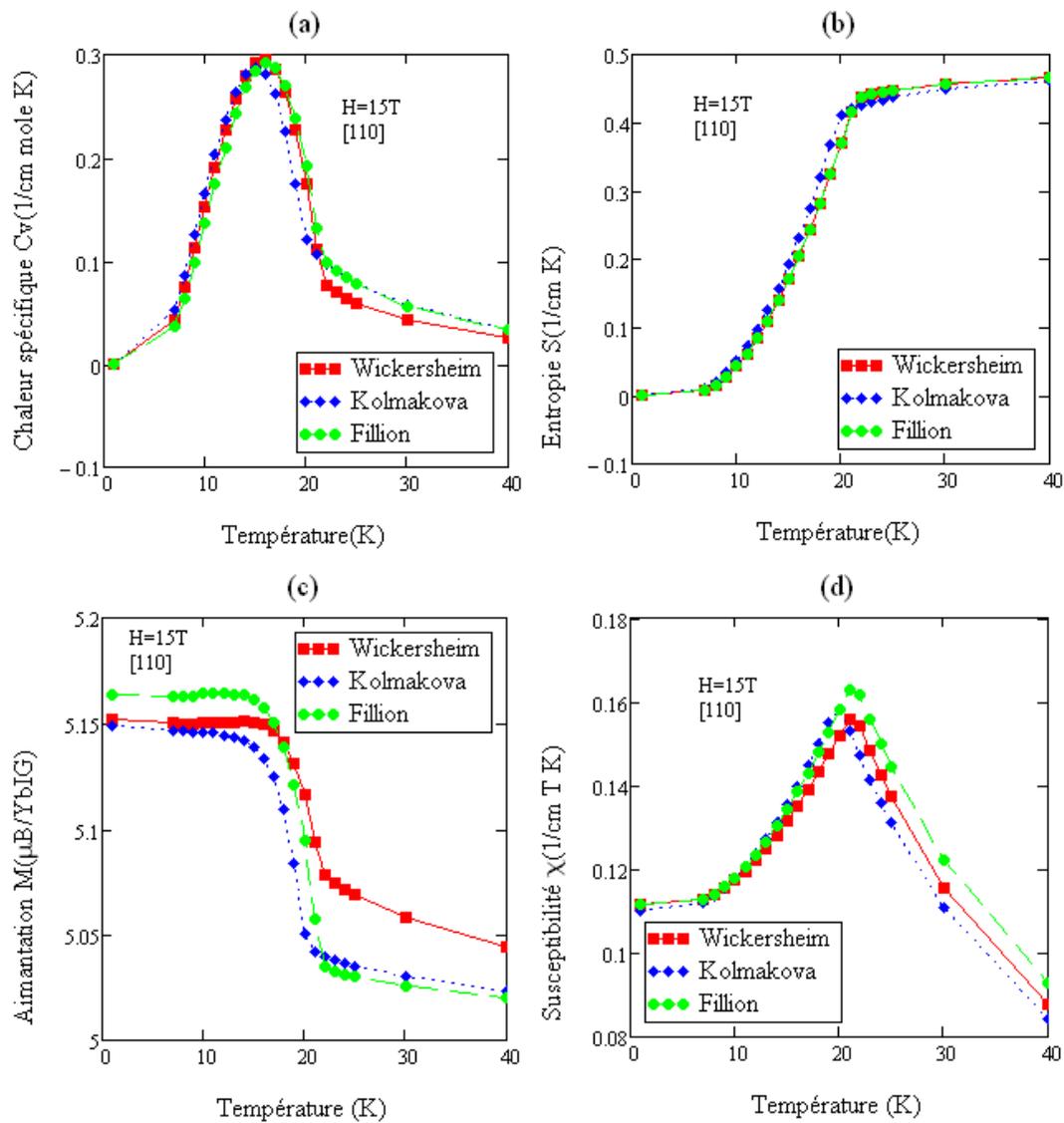


Figure.28 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=15T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=15T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=15T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=15T$.

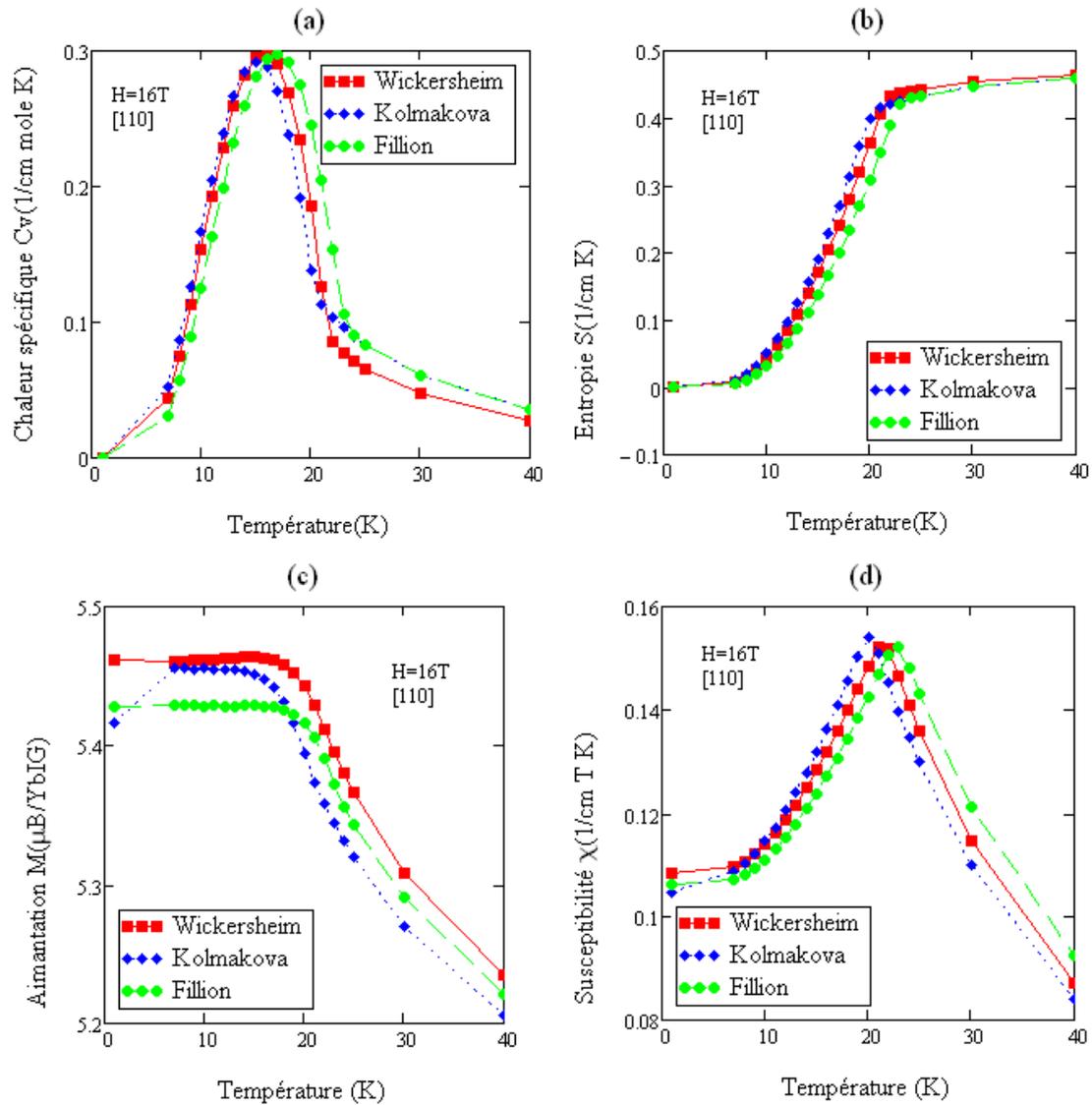


Figure.29 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=16T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=16T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=16T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=16T$.

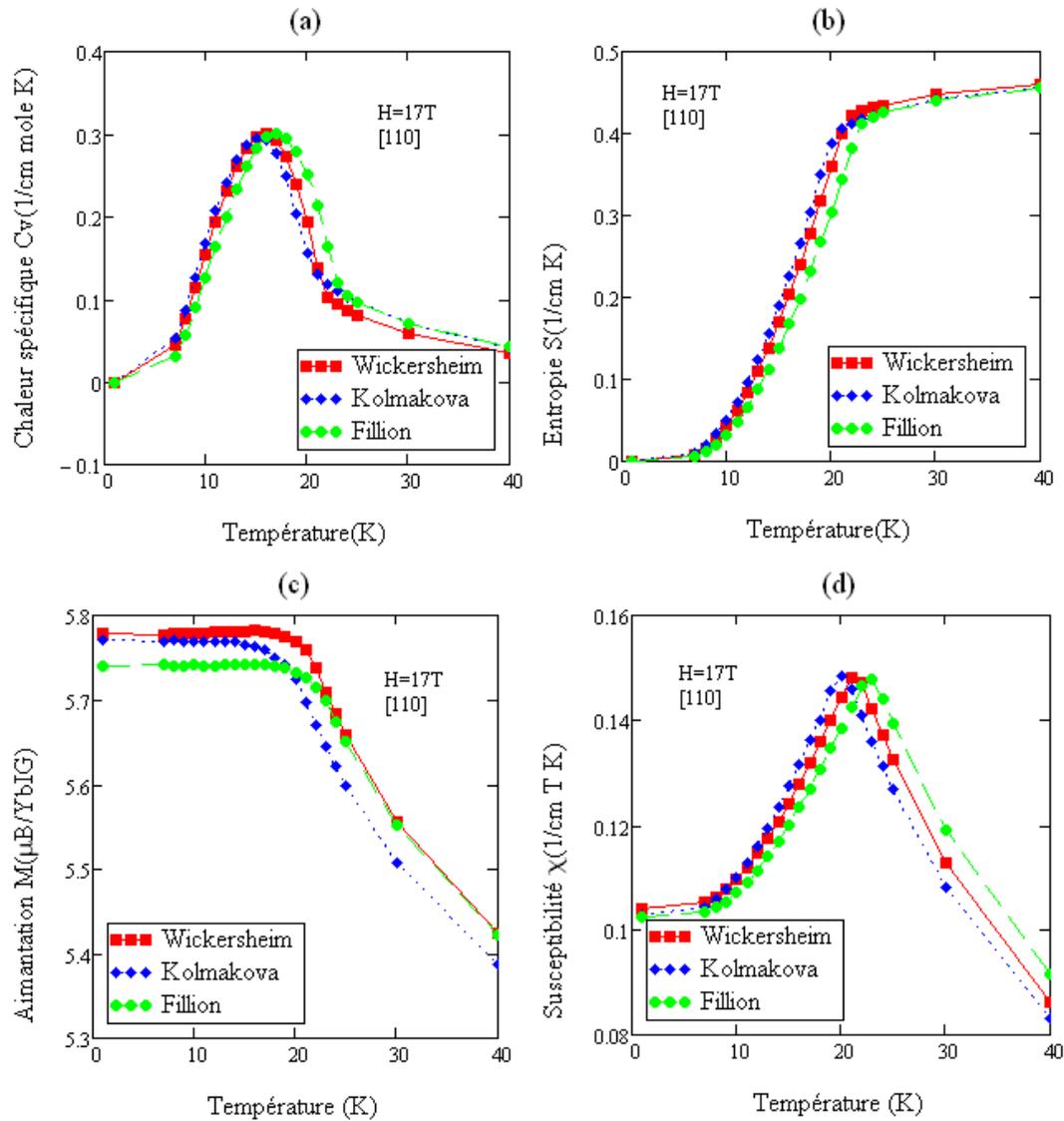


Figure.30 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=17T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=17T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=17T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=17T$.

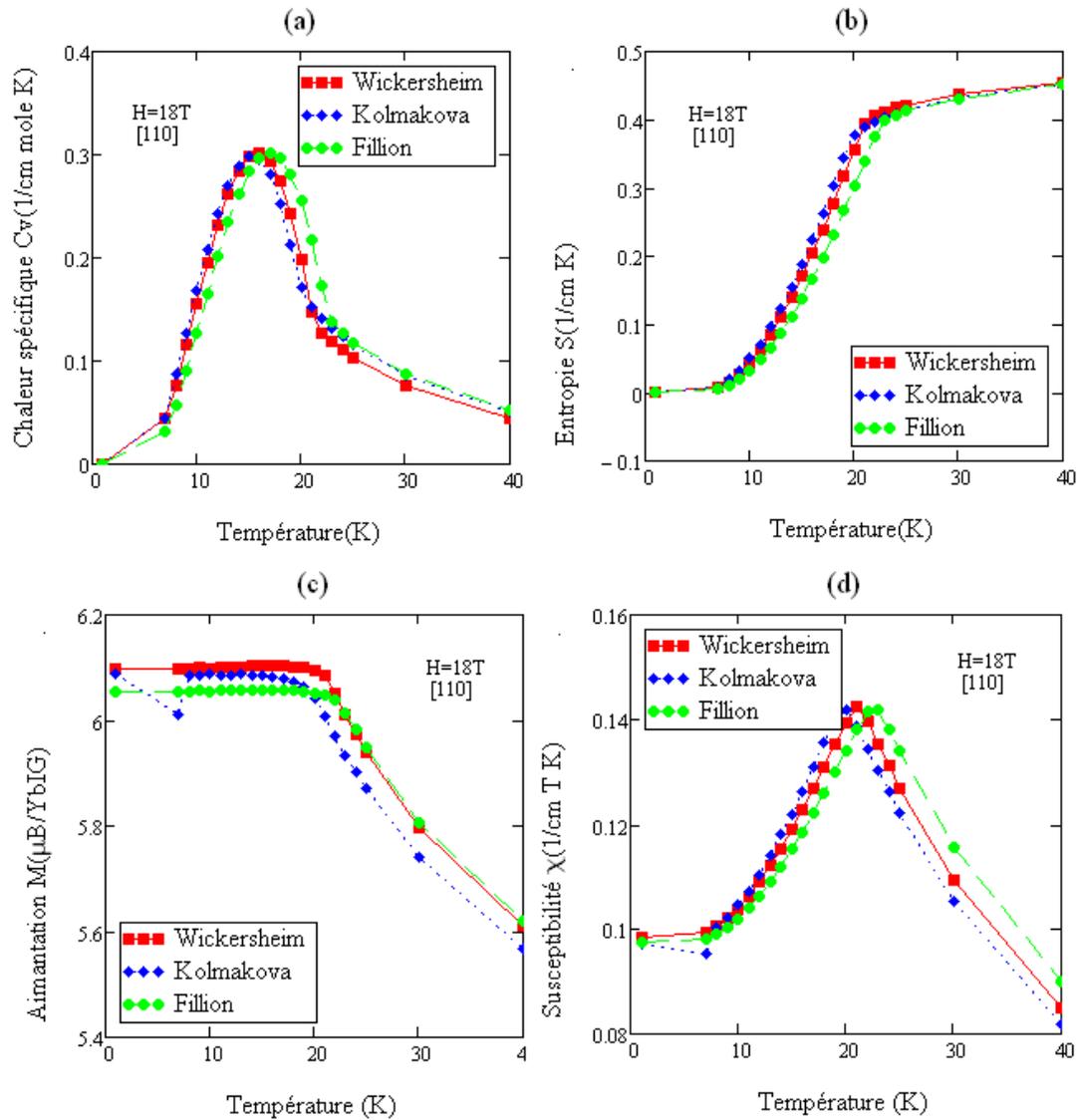


Figure.31 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=18T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=18T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=18T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=18T$.

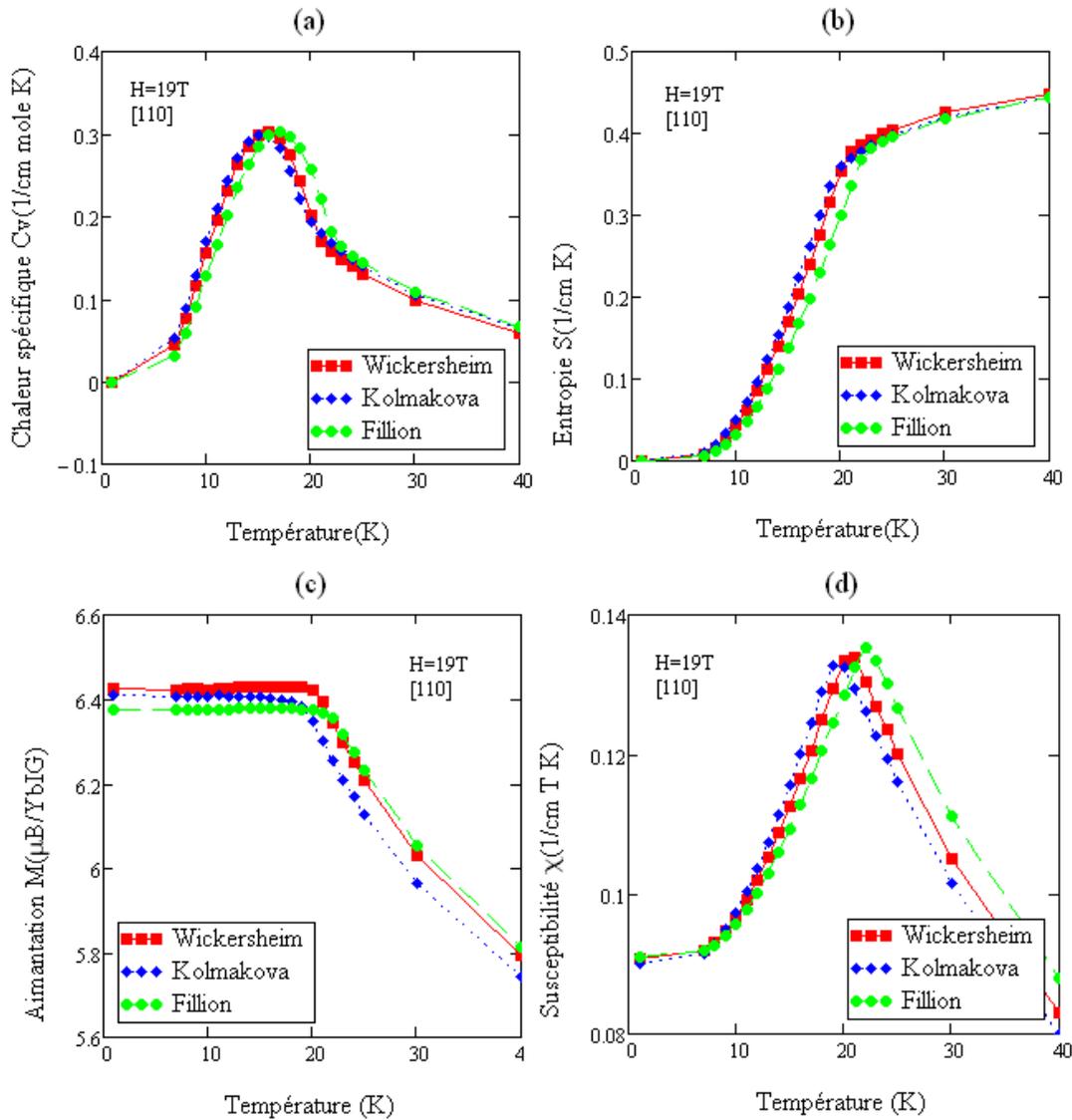


Figure.32 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=19T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=19T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=19T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=19T$.

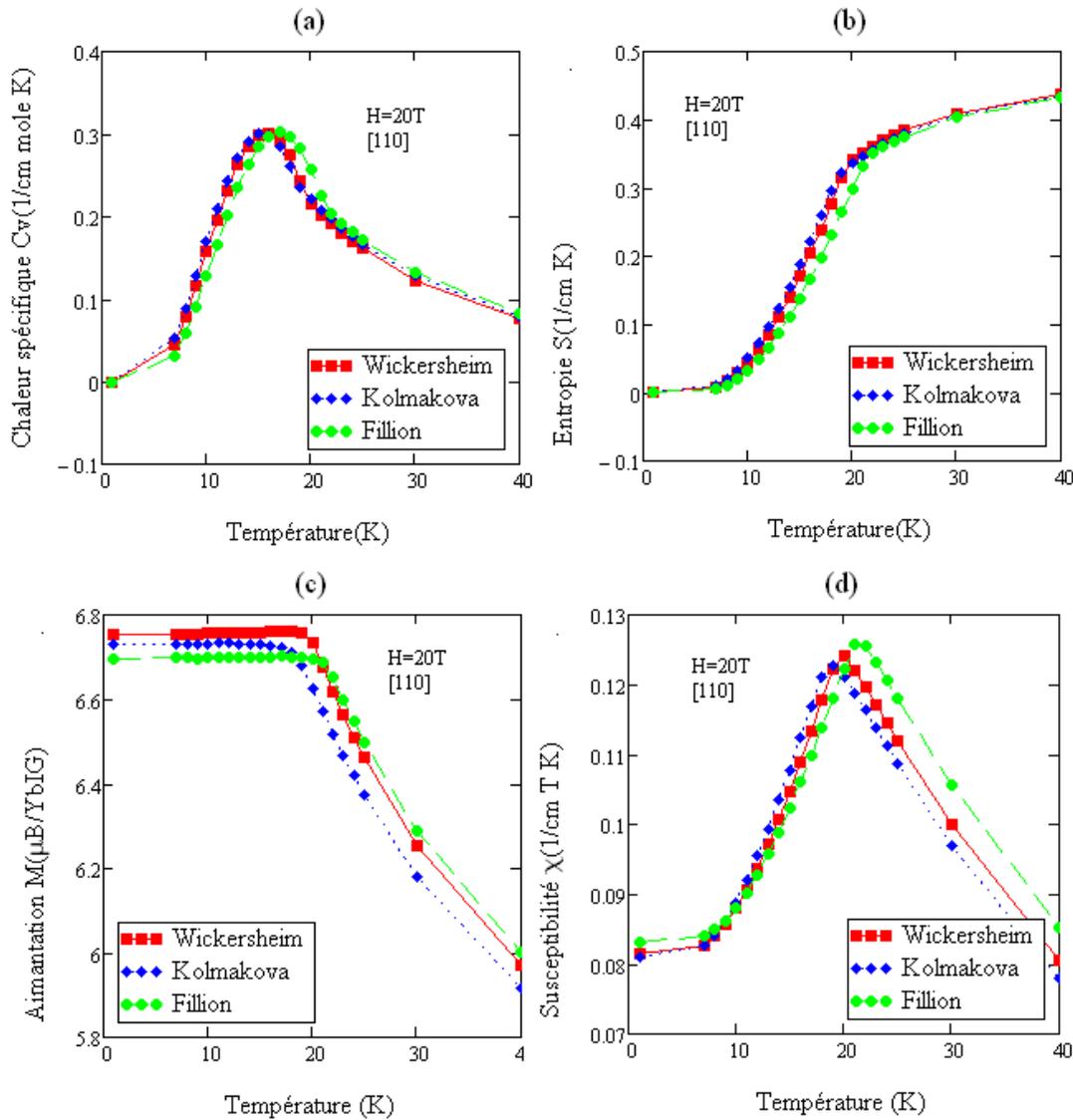


Figure.33 : Les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ en fonction de la température selon la direction $\langle 110 \rangle$ pour différentes valeurs des deux tenseur g et G :

(a) la chaleur spécifique magnétique pour un champ $H=20T$.

(b) l'entropie pour un champ $H=20T$.

(c) l'aimantation pour un champ $H=20T$.

(d) la susceptibilité magnétique pour un champ $H=20T$.

III-7 Discussion des différents résultats

L'application du modèle de spin effectif nous a permis de déterminer les propriétés thermodynamique de ferrite grenat d'Ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ à basses températures, pour des champs magnétiques extérieurs allant de $H = 0.85T$ à $H = 20T$ (*Figures. 18--33*).

La détection des transitions de phases magnétique mis en jeu dans la direction $\langle 110 \rangle$, a été faite par la détermination des courbes des iso champs. Concernant les courbes d'aimantations, elles ont été confrontées avec ceux obtenus par [5,6] (*Figures. 18--26*).

A partir des *Figures. 27--33*, les courbes d'aimantations montrent un comportement physique très important de part et d'autre de la température de compensation T_c . Ce comportement nous permis de bien connaître le nombre et la nature des transitions magnétiques existantes. Ces résultats préliminaires vont nous servir à bien comprendre la nature des transitions magnétiques dans le diagramme de phase au-delà du point C, et ensuite à résoudre l'ambiguïté existante entre la théorie et l'expérience. Ainsi, l'objectif de ce mémoire est bien atteint.

Les différents résultats obtenus, concernant les transitions magnétiques dans le ferrite grenat d'ytterbium, peuvent être subdivisé en trois régions :

- Dans la région des champs magnétiques faible (*Figures. 18--21*), un désaccord apparaît entre notre modèle et les courbes expérimentales. On peut penser que l'aimantation de Fer, qui est notre paramètre d'ordre, pour ces champs à une tendance faible pour être alignées au champ appliqué, ce qui donne une optimisation non satisfaisante dans notre programme.
- Pour la région des champs magnétiques moyennes et intenses (*Figures. 22--26*), un bon accord est trouvé entre la théorie et l'expérimentale : l'optimisation utiliser dans notre programme est satisfaisante, et l'aimantation du Fer a une tendance rapide pour être alignées dans la direction du champ magnétique appliqué.
- Pour des champs très intenses (*Figures. 27-- 33*), et au-delà des points C [1,5], Q de Loos [3], est la ligne pointillée de Veltrusky [4], les courbes d'aimantation montrent une seul transition du deuxième ordre, selon la classification d'Alben[2]. Ce résultat est en bon accord avec celui de Fillion [1].

A partir de ces points, on constate l'existence d'une seule ligne, au-dessus du point C, de deuxième ordre. Ce résultat est en bon accord avec l'expérience [1]. Concernant l'effet de la variation des valeurs des deux tenseur \mathbf{g} et \mathbf{G} , sur les différentes quantités thermodynamique de notre composé, on constate qu'elle est non significative. Aussi, à partir des courbes de la chaleur

spécifique, on peut voir l'existence d'un phénomène physique de part et d'autre de la température $T = 15K$ (*Figures. 14 et 15* pour le cas du champ nul, et *Figures. 18—33* pour le cas du champ appliqué). La courbure que montrent ces figures peut être un type de transition de phase ou seulement une réorientation de spin.

Conclusion

Dans ce mémoire, nous avons approfondie l'étude théorique des structures non colinéaires induites par un champ magnétique dans le ferrite grenat d'Ytterbium $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ dans la direction $\langle 110 \rangle$. Nous avons mis en évidence la validité du modèle de spin effective en étudiant la chaleur spécifique totale en champs nuls. Aussi, nous avons pu déterminer le nombre et la nature de la ligne de transition au-dessus de notre point C [5,6]. Nous pensons avoir apporté les contributions suivantes :

- **En champs magnétique nuls**, la chaleur spécifique totale de notre composé, basé sur le modèle de spin effective, est en bon accord avec l'expérience.
- **En présence du champ magnétique**, nous avons pu avoir des courbes théoriques d'aimantation à des champs constants supérieurs à 16 T. Ces courbes montrent des transitions magnétiques du deuxième ordre conformément à ce qui a été trouvé expérimentalement.
- L'étude de la variation des valeurs des deux tenseur \mathbf{g} et \mathbf{G} sur les propriétés thermodynamiques de ferrite grenat d'ytterbium n'a pas apporté une grande chose, et donc le choix de ces valeurs n'est pas intéressant.
- Enfin, à partir des courbes de la chaleur spécifique magnétique, un phénomène physique de part et d'autre de la température $T = 15\text{K}$ peut-être de grande importance.

Après cette conclusion globale, les prolongements que suggère cette étude se ramènent aux points suivants :

- Une étude expérimentale des iso champs et des isothermes pour les courbes d'aimantation dans des champs magnétiques statiques intenses jusqu'à 20T devra préciser, et compléter le diagramme de phase dans la direction $\langle 110 \rangle$.
- Une étude de l'évolution thermique de la structure magnétique par diffraction neutronique permettra de (i) comprendre le phénomène vu à $T = 15\text{T}$ et (ii) de préciser Une étude de la variation des niveaux de Kramers en fonction du champ appliqué pour les trois directions principales $\langle 100 \rangle, \langle 111 \rangle, \langle 110 \rangle$ afin de tester l'existence du phénomène du croisement des niveaux.

Annexe A

Programme d'optimisation élaboré avec le logiciel Mathcad

Annexe B

L'article

Référence

- [1] J.L. Feron, G.Fillion, G. Hug, A.Berton et J. Chaussy, Sol. Stat. Comm,**10**,641(1972).
- [2] R.Alben, Phys.Rev. ,**B2**, 2767 (1970);
R. Alben, Phys. Rev. Lett, **24**,68 (1970).
- [3] J.Loos, Czech.J.Phys,**B26**, 1029(1976);
J.Loos, Phys.Stat.Sol, **B84**,457(1977).
- [4] I. Veltrusky, J. Kolacek et Z. Simsa, Acta. Physica. Slovaca, **46**, 203-206 (1996).
- [5] A.Boumali, Thèse de Magistère, Université de Badji Mokhtar Annaba (1998).
- [6] M. Lahoubi, G.Fillion et A. Boumali, J. Alloys. Comp,**594**, 275-277(1998).
- [7] E. F. Bertaut and F. Forrat, C.R.Acad.Sci.Paris, **242**,382(1956).
- [8] E. F. Bertaut and F. Forrat, C.R.Acad.Sci.Paris,**244**,382(1956).
- [9] S. Geller et M.A. Acta. Cryst,**10**,239(1957).
- [10] M.A. Gellio, Ferromagnetic Garnets :ed. by A. Paoletti, Amsterdam north Holland Publishing Co (1977).
- [11] A. B. Harris et H. Meyer, Phys. Rev. ,**127**, 101 (1962).
- [12] G. Hug, Thèse de Doctorat D'Etat, Université de Grenoble, 5872(1972)
- [13] G. Fillion, Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Grenoble, N° A. O 10210 (1974).
- [14] M. Lahoubi, Thèse de Doctorat d'Etat, Université Joseph Fourier (1986).
- [15] A.Bouguerra, Thèse de Doctorat, Université de Badji Mokhtar Annaba (2002)
- [16] F.Tcheou, H. Fuset Bertaut, Solide State Comm,**8**, 1745(1970).
- [17] M.I. Elliot, B.D. Judd et W.A.Ruciman, Pro.Phys. Soc, **240A**, 509(1957).
- [18] K. W. H. Stevens, Proc. Phys.Soc, **A65**, 209(1952).
- [19] P. Wolf, Proc.of the international Conference on magnetism, Nottingham, 555(1964).

- [20] B. H. Clark, K. Tweedale et R. W. Teale, Phys., Rev., **139**, 1933 (1965).
- [21] M.I. Darby et E. D. Isaac, I. E. E. E, Trans. Magn. MAG, **10**, 259 (1974).
- [22] N.P. Kolmakova, S. V. Kopstik, G. S. Krinchik et A. YA. Sarantsev, J. Magn.Magen.Mater,**13**, 253-264 (1994).
- [23] M. Lahoubi, G. Fillion et F. Tcheou, Seventh International Conference On Ferrites(I.C.F.7), Bordeaux(France) 3-6 September(1996) in J. Phys. IV., France **7C1-291** (1997).
- [24] G. Aubert, Phys, **39**,504(1968).
- [25] R.F.Pearson, Pro.Phys, **86**, 1055(1965).
- [26] R.F.Pearson et R.W.Cooper, J. Phys.Soc. Japan, **17 B1**, 369(1962).
- [27] P. Escudier, Thèse de doctorat d'Etat, Université de Grenoble, 9301(1973).
- [28] R. P. Pauthny, Ann. Phys, **3**,424(1958).
- [29] J.F. Dillion et L. R. Walker, Phys. Rev, **124** , 1401(1961).
- [30] M.Lahoubi, G. Guillot, A.Marchand, F. Tcheou et H. le Gall, Fourth International Conference On Ferrites, San Francisco (USA), Oct 31 à Nov (1984), In Advances in ceramics, **115**, 275(1985).
- [31] S. J. Pickhom et R. L. White, J. Appl. Phys, **38**, 1222(1967).
- [32] W. P. Wolf, M. Ball, M.T.Hutching, Leask et A.F.Wyatt, J.Phys. Soc. Japan, Suppl.,**17**, 443(1962).
- [33] J.Englich, J. Kohout, H. Štepankova, P. P. Novak, M. Nekvasil et H. Lutgemeier, J. Phys IV, France **7,C1-295**(1997).
- [34] A. Herppin, Théorie du magnétisme, PUF, Paris(1968).
- [35] A.E. Clarck et E. Callen, J.Appl.Phys, **39** ,561(1968).
- [36] Wei Wang et Deyao. LI. ,J.Magn. Magen. Mater, **3215**, 3307-3310 (2009);
Wei Wang et Gongqing LIU, J. Appl. Phys,**103**,07308(2008).
- [37] Wickersheim, Phys. Rev., **122**, 1376, (1961).

