

# Vitesse du son dans des alliages de Pd dopés avec des éléments de transition

Autor(en): **Ortelli, J. / Susz, C. / Walker, E.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **42 (1969)**

Heft 2

PDF erstellt am: **21.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-114068>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

## Vitesse du son dans des alliages de Pd dopés avec des éléments de transition

par **J. Ortelli, C. Susz, E. Walker et M. Peter**

Institut de Physique Expérimentale, Université de Genève

(2 VIII 68)

*Abstract.* By means of a pulse method using magnetostrictive transducers, we have measured the temperature dependance of torsional speed of sound in the alloys  $Rh_xPd_{1-x}$  and  $Pd_xAg_{1-x}$  doped with the transition elements Mn, Fe, Ni, Co, Ru, Os, Pt. The temperature variation of the speed of sound in undoped alloys shows an anomaly at the composition  $Pd_{95}Rh_5$ . We show that the decrease or the increase of this anomaly is in good correlation with the decrease or increase of the band susceptibility measured by usual methods (susceptibility, high field susceptibility, electronic paramagnetic resonance). We have also observed a  $\Delta E$  effect having very specific properties. A brief discussion of this effect is given.

### Introduction

Ce travail fait suite à une étude [1] dans laquelle nous avons mis en évidence la proportionnalité entre les coefficients de température de la susceptibilité magnétique  $d\chi/dT$  et du module de cisaillement  $dG/dT$  pour une série d'alliages Pd-Rh, Pd-Ag. La proportionnalité entre la contribution électronique au module de cisaillement et la susceptibilité

$$\delta G(T) = - \frac{1}{\mu_0^2} \left( \frac{\partial E_{ij}}{\partial \gamma} \right)^2 \chi(T) \quad (1)$$

où

$\mu_0$  = magnéton de Bohr

$\partial E_{ij}/\partial \gamma$  = dérivée de la variation d'énergie de la bande  
à la surface de Fermi lors d'une torsion d'un angle  $\gamma$

prévue théoriquement par STEINEMANN, FISCHER et PETER [2] est masquée par le réseau (Fig. 1).

Dans cet article nous étudions l'influence sur la vitesse du son de certains éléments de transition (avec et sans moment magnétique localisé) introduits en faible quantité dans la même série d'alliages. Le Fe, par exemple, polarise les électrons de conduction du Pd et ainsi diminue la susceptibilité de bande comme l'a prouvé FONER [3] par des mesures à haut champ. Cette diminution de susceptibilité doit avoir pour conséquence une atténuation de la singularité observée au voisinage de la composition  $Pd_{95}Rh_5$  pour la variation de la vitesse du son entre 77 et 300°K (fig. 1c et 1d). La vérification expérimentale de cette atténuation confirme la corrélation entre la vitesse du son et la susceptibilité. Réciproquement, il est possible d'obtenir des renseignements sur la susceptibilité de bande à partir des propriétés élastiques. Ceci a été testé pour une série d'éléments et des comparaisons sont faites avec les mesures de sus-

ceptibilité en champs faibles et en champs élevés ainsi qu'avec les expériences de résonance paramagnétique électronique. Nous donnons de nouvelles indications pour les éléments qui n'ont pas encore été mesurés par les méthodes classiques.

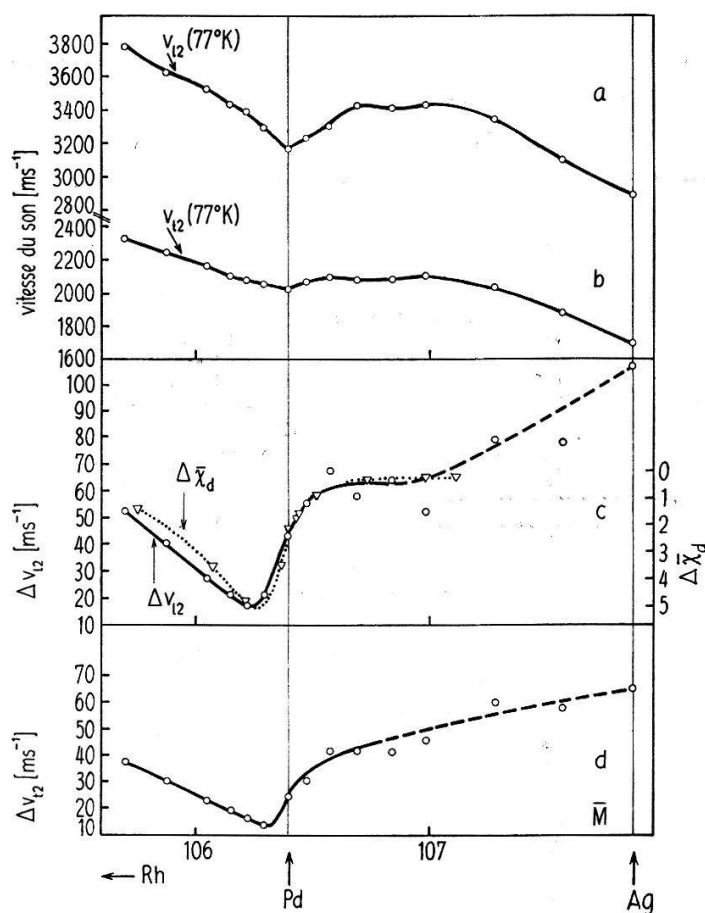


Figure 1

Résultats des mesures par excitation magnétostrictive.

- a) Vitesse extensionnelle  $v_{l_2}$  à 77 °K
- b) Vitesse torsionnelle  $v_{t_2}$  à 77 °K
- c)  $\Delta v_{l_2} = v_{l_2}(77^\circ\text{K}) - v_{l_2}(300^\circ\text{K})$  et en ligne pointillée,  $-\Delta\chi_d = \chi_d(300^\circ\text{K}) - \chi_d(77^\circ\text{K})$  en unités arbitraires
- d)  $\Delta v_{t_2} = v_{t_2}(77^\circ\text{K}) - v_{t_2}(300^\circ\text{K})$

Dans les premières expériences, nous avons mesuré la vitesse du son à deux températures seulement (300 et 77 °K). Pour expliquer certaines anomalies, notamment dans le cas du Co, l'appareillage a dû être développé pour mesurer la vitesse en fonction de la température. Dans la plupart des cas nous avons ainsi observé une variation monotone avec la température mais, pour les éléments de transition ferromagnétiques, il apparaît un effet  $\Delta E$  qui augmente avec la concentration.

### Technique expérimentale

Pour produire les ondes ultrasonores nous avons utilisé la méthode d'excitation par magnétostriction décrite dans [1]. La Figure 2 donne un schéma des deux dispositifs construits pour mesurer les vitesses de 4,2 à 300 °K. Le système, comprenant les

bobines d'excitation et de détection, le fil magnétostrictif et le support d'échantillon, est dans une enceinte étanche. Les difficultés inhérentes à cette méthode sont de maintenir le fil magnétostrictif sans introduire des réflexions parasites. Les amortisseurs destinés à supprimer les échos aux extrémités du fil doivent rester à température ambiante pour être efficaces.

Le premier montage était prévu pour mesurer la vitesse de propagation des ondes torsionnelles et extensionnelles. Les ondes torsionnelles sont transmises à l'échantillon par un petit tube en acier inoxydable de même diamètre que l'échantillon et les ondes extensionnelles par un fil magnétostrictif passant à l'intérieur de ce tube. Cette canne

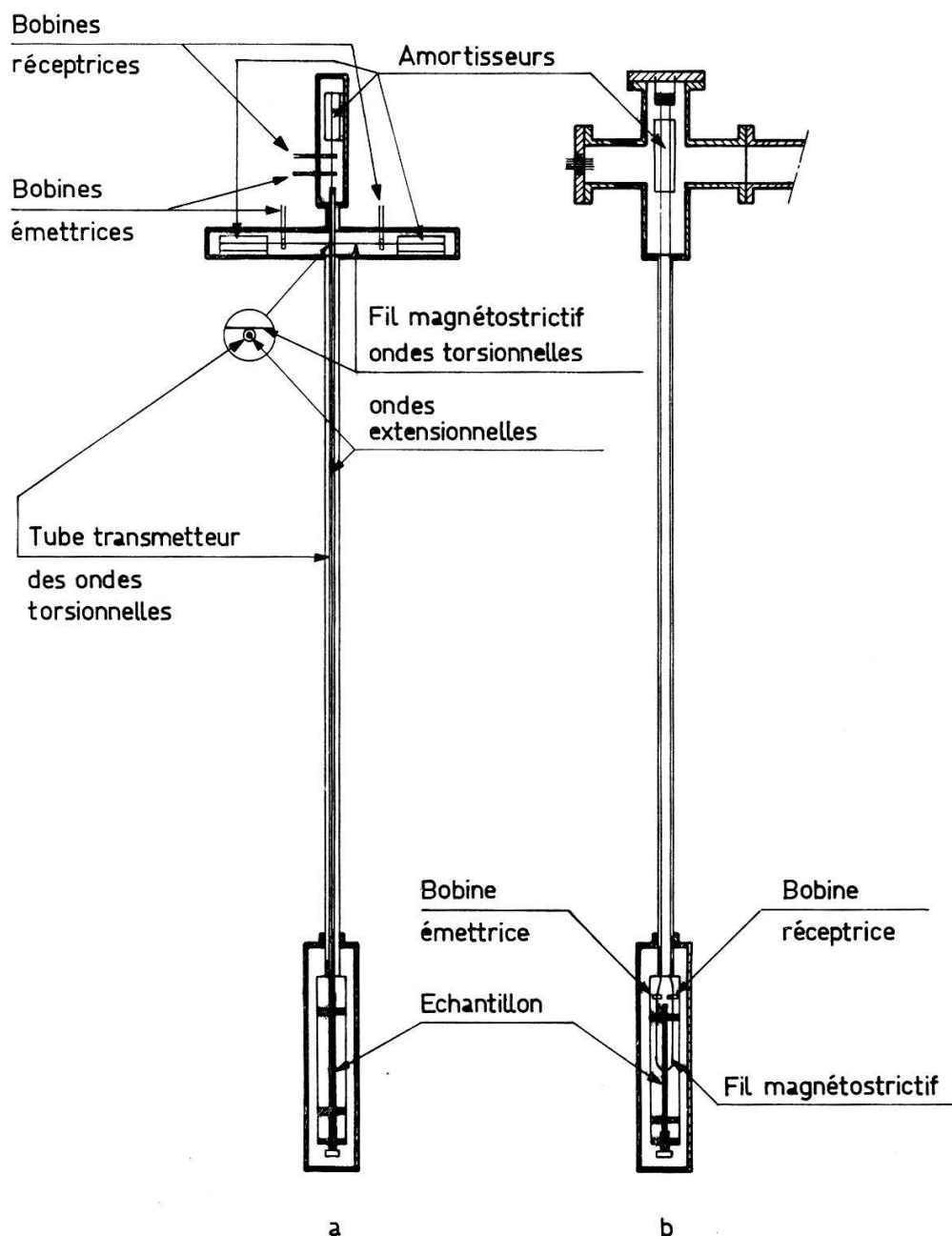


Figure 2

Dispositifs de mesure.

- a) pour excitation d'ondes torsionnelles et extensionnelles  
 b) pour excitation d'ondes torsionnelles

de mesure n'a pas donné de bons résultats à cause de l'atténuation subie par les ondes sur le long trajet qu'elles ont à parcourir entre les bobines d'excitation et l'échantillon. D'autre part, les variations de longueur de l'appareillage et de l'échantillon avec la température rendent difficile la transmission des ondes à l'échantillon.

Dans le montage de la Figure 2b, les bobines sont placées le plus près possible de l'échantillon pour réduire au maximum la distance parcourue par les ondes dans le fil magnétostrictif. Cette disposition pour les ondes torsionnelles permet d'obtenir de bons résultats dans toute la gamme de températures et de mesurer dans la plupart des cas une dizaine d'échos, soit un temps de parcours de l'ordre de  $1000 \mu\text{sec.}$ , avec une précision d'environ  $0,5\%$ . Nous n'avons pas construit de canne semblable pour les ondes extensionnelles; cette mesure ne donne pas de renseignements nouveaux car les modules  $E$  et  $G$  sont pratiquement proportionnels et toutes les singularités observées sur  $G$  se retrouvent sur  $E$ .

La variation de la température de l'échantillon est obtenue en déplaçant la canne de mesure dans le gradient d'un dewar à hélium. Le contact thermique entre l'échantillon et l'enceinte étanche est assuré par une légère pression d'hélium gazeux. Ce procédé ne permet pas d'avoir une température stable mais la variation peut être rendue suffisamment lente pour faire une mesure de la vitesse. La mesure de température est faite au moyen de deux thermocouples placés aux extrémités de l'échantillon, permettant ainsi de contrôler le gradient qui, en général, ne dépassait pas un degré.

### Préparation des échantillons

Les échantillons ont la forme de fils de 100 mm. de longueur et 1,8 mm. de diamètre. Les alliages ont été faits au four à arc, la forme finale étant obtenue par laminage et étirage à froid avec plusieurs recuits intermédiaires à  $1000^\circ\text{C}$  sous vide. Dans la plupart des cas nous sommes limités au domaine de composition compris entre  $\text{Pd}_{90}\text{Rh}_{10}$  et  $\text{Pd}_{97,5}\text{Ag}_{2,5}$  pour des raisons d'économie et les renseignements obtenus étaient suffisants.

### Résultats et discussion

#### a) Fe

Pour tous les alliages dopés, nous obtenons un diagramme  $v_t = f(\text{concentration})$  d'allure identique à celui des alliages non dopés. Nous montrons par exemple, sur la Figure 3, le cas de la série contenant 2% de Fe. Ces graphiques ne présentent pas d'intérêt particulier. Nous ne donnerons par la suite que le graphique de la variation de la vitesse torsionnelle avec la température en fonction de la concentration de l'alliage.

Avec 0,1 et 0,5% de Fe, la variation de la vitesse entre 300 et  $77^\circ\text{K}$  est monotone pour tous les échantillons. Dans la série d'alliages contenant 2%, il apparaît une variation des constantes élastiques au point de Curie, phénomène connu sous le nom d'effet  $\Delta E$ . Pour ne pas introduire de nouvelle dénomination, nous utiliserons par la suite le terme «effet  $\Delta E$ » bien que nous observions une anomalie du module de torsion. Cela se justifie par la proportionnalité entre  $\Delta E/E$  et  $\Delta G/G$  si la magnétostriction de volume est très petite par rapport à la magnétostriction de forme, ce qui est générale-

ment le cas. Cet effet  $\Delta E$  ne dépend pas uniquement de la concentration de l'impureté mais aussi de la composition de la matrice hôte (Fig. 4). Il est nul pour le Pd, augmente progressivement avec l'addition de Rh et passe par un maximum à la composition

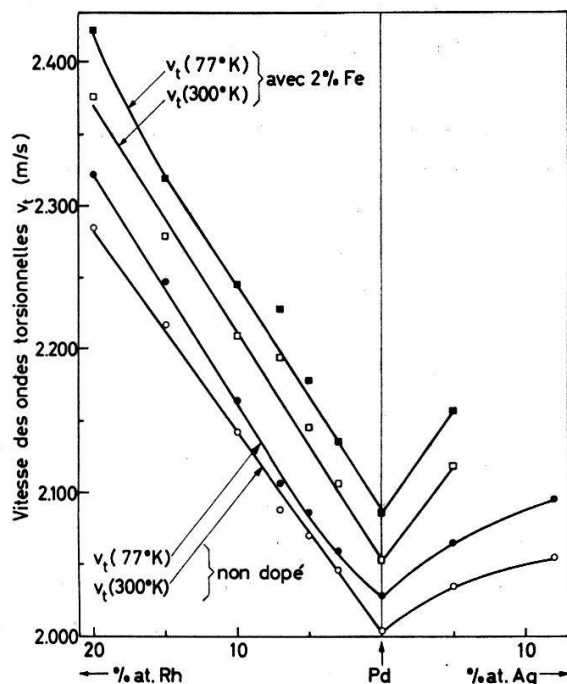


Figure 3

Vitesse des ondes torsionnelles pour la série d'alliages Pd-Rh et Pd-Ag sans impureté et avec 2% de Fe.

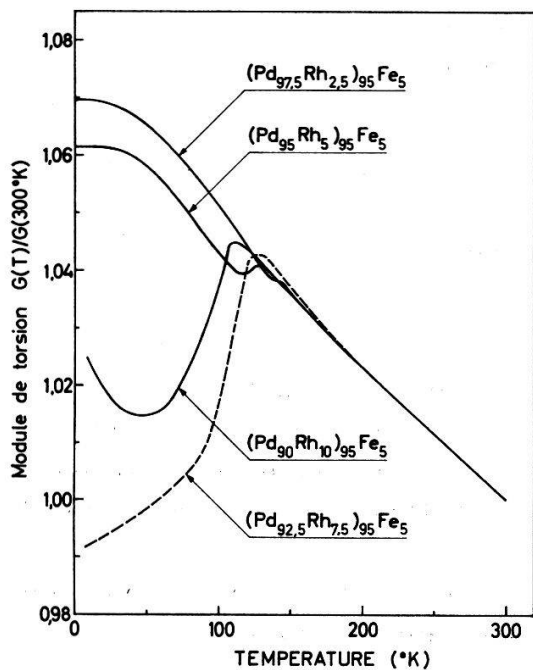


Figure 4

Variation relative du module de torsion avec la température des alliages contenant 5% de Fe pour différentes concentrations de Rh.

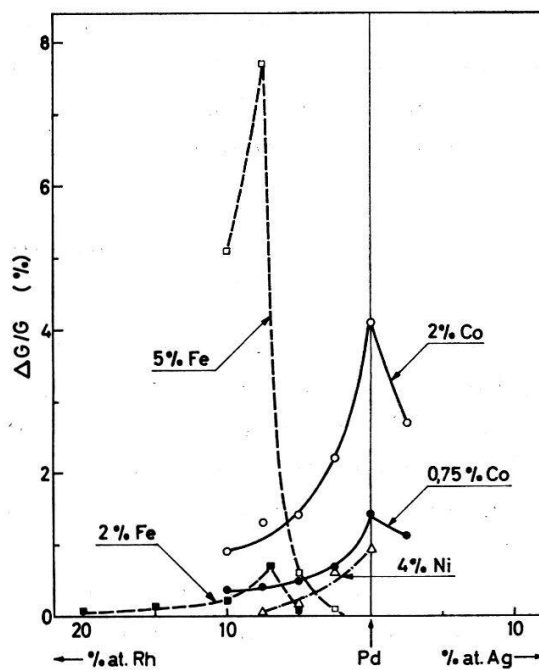


Figure 5

$\Delta G/G$ , intensités des anomalies apparaissant au point de Curie en fonction de la concentration de Rh et d'Ag pour diverses impuretés.

$\text{Pd}_{92,5}\text{Rh}_{7,5}$  (Fig. 5). Pour comparer les  $\Delta v_t$  entre eux, nous avons, dans le cas où l'effet  $\Delta E$  apparaît, extrapolé la courbe  $v_t(T)$  (Fig. 6). Ceci est équivalent à mesurer la vitesse dans un champ magnétique qui sature le ferroaimant (voir paragraphe f).

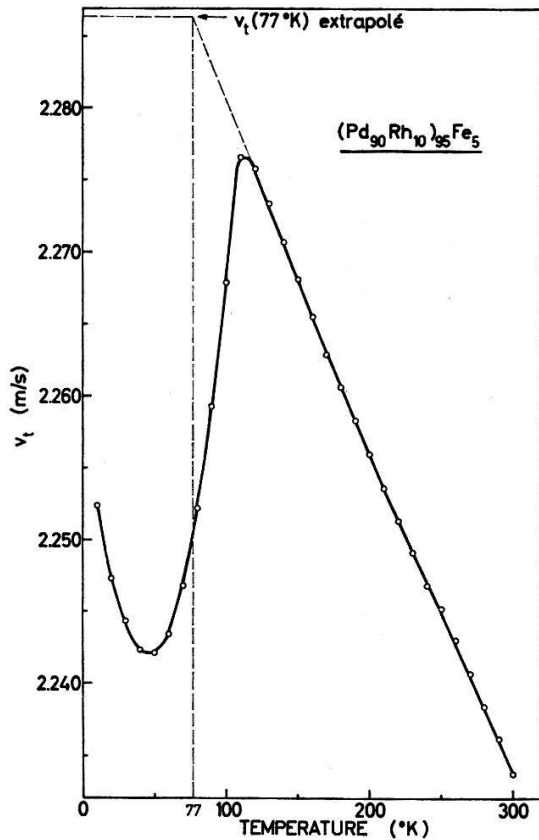


Figure 6

Comportement de la vitesse des ondes torsionnelles en fonction de la température pour l'alliage  $(\text{Pd}_{90}\text{Rh}_{10})_{95}\text{Fe}_5$  et exemple d'extrapolation de l'écart des vitesses  $\Delta v_t = v_t(77^\circ\text{K}) - v_t(300^\circ\text{K})$ .

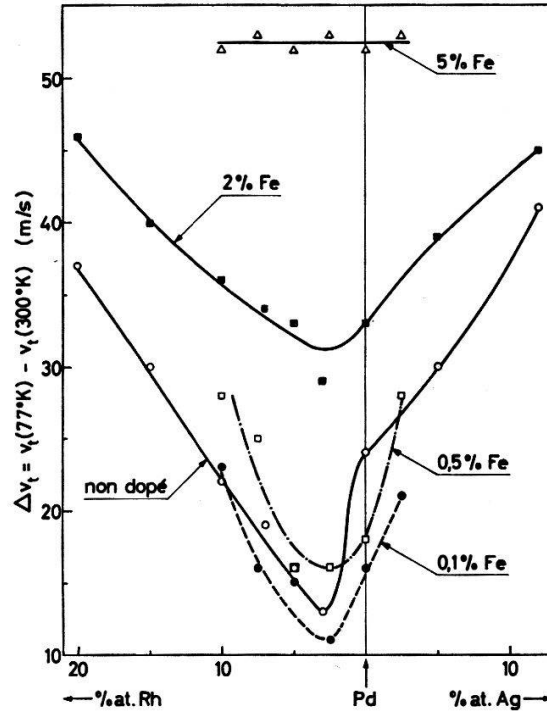


Figure 7

Écarts des vitesses torsionnelles entre 77 et 300 °K pour 0,1, 0,5, 2 et 5% de Fe.

La Figure 7 montre le  $\Delta v_t = v_t(77^\circ\text{K}) - v_t(300^\circ\text{K})$  pour les différentes concentrations de Fe. Nous constatons que, aux précisions de mesure près, le Fe n'a pratiquement pas d'influence jusqu'à une concentration de 0,5%. En augmentant la concentration, l'anomalie du  $\Delta v_t$  disparaît progressivement jusqu'à 5% de Fe où le  $\Delta v_t$  est constant en fonction de la concentration de Rh.

Des mesures de diffraction neutronique [4] ont montré que le moment géant du Fe dans le Pd doit en partie être attribué aux électrons des Pd voisins du Fe. L'impureté de Fe est entourée d'un nuage de polarisation d'une portée d'environ 10 Å avec un moment magnétique de l'ordre de  $10 \mu_B$  soit  $0,1 \mu_B$  par atome de Pd. Cette polarisation diminue la susceptibilité de bande du Pd et par conséquent la contribution électronique au module de cisaillement selon l'équation (1). Ceci est effectivement vérifié et nos mesures indiquent une saturation pour une concentration de l'ordre de 5% correspondant à une polarisation de  $0,5 \mu_B$  compatible avec le nombre de trous du Pd.

Nos résultats sont également en accord avec des mesures de susceptibilité en hauts champs faites par FONER [3] comme le montre la Figure 8 où nous avons superposé le  $\Delta v_t$ , dans une échelle arbitraire, avec le  $\chi_{HF}$ . En fait, nous devrions comparer le  $\Delta v_t$  avec le  $\Delta\chi_{HF}$  mais cela n'est pas possible car nous ne connaissons pas comment varie  $\chi_{HF}(T)$ . Cependant, nous pouvons raisonnablement penser que si la susceptibilité tombe avec la concentration de Fe, sa variation avec la température doit tomber dans une même proportion.

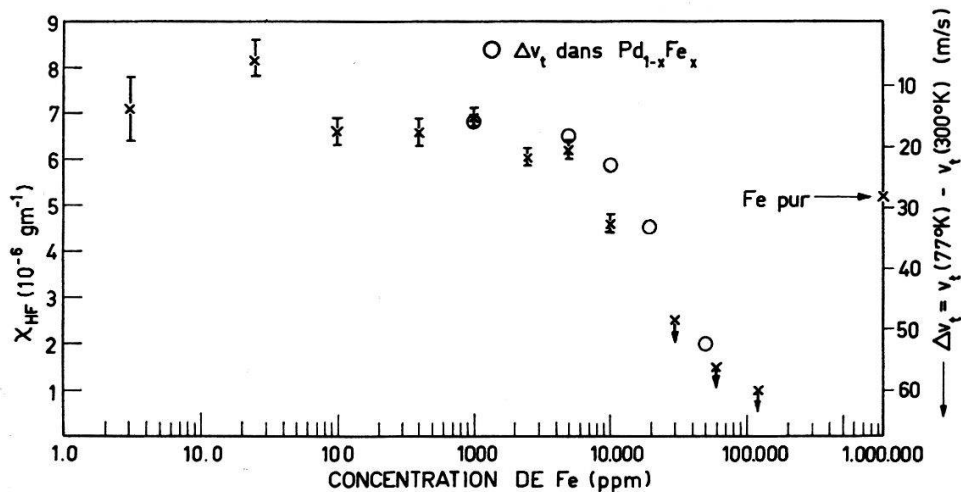


Figure 8

Susceptibilité à haut champ  $\chi_{HF}$  [3] des alliages  $Pd_{1-x}Fe_x$  en fonction de la concentration de Fe, comparée à l'écart des vitesses torsionnelles dans une échelle arbitraire.

Nos mesures permettent d'étendre les résultats du Fe dans le Pd à toute la série d'alliages Pd-Rh, Pd-Ag. La susceptibilité de bande doit diminuer rapidement à partir de 1% de Fe indépendamment de la composition de la matrice.

Le Fe dans le Pd a été étudié en EPR par PETER [5]. La comparaison avec nos résultats n'est pas possible dans ce cas car le ferromagnétisme limite l'étude du Fe par EPR à une concentration de 0,3%.

#### b) Co

La Figure 9 donne le  $\Delta v_t$  mesuré avec le Co comme impureté. Pour 2% de Co dans ces alliages, l'effet  $\Delta E$  est très prononcé (Fig. 10). Contrairement au Fe où l'effet maximum avait lieu pour la composition  $(Pd_{92,5}Rh_{7,5})_{95}Fe_5$ , le Co donne un effet maximum au  $Pd_{98}Co_2$  (Fig. 5). Rappelons que 5% de Fe dans le Pd ne montrent pas d'effet  $\Delta E$  malgré plusieurs recuits à 1100°C. La concentration de 0,75% Co produit un effet  $\Delta E$  à une température inférieure à celle de l'azote liquide (Fig. 11); l'extrapolation n'est donc pas nécessaire dans ce cas. L'effet  $\Delta E$  apparaissant à la température de Curie, nous comparons sur la Figure 12 les valeurs obtenues par cette méthode avec celles de WUCHER [6] déduites de mesures magnétiques. L'accord est bon pour 2% de Co mais à 0,75% notre valeur est un peu faible. Cette différence peut provenir d'une erreur en concentration. Sur ce graphique est également représentée la température de Curie pour le Fe [6] et le Ni [7] dans le Pd.

Low [4] a aussi étudié le Co dans le Pd par diffusion neutronique. Il trouve pour le Co, comme pour le Fe, un moment géant avec un nuage de polarisation d'une portée



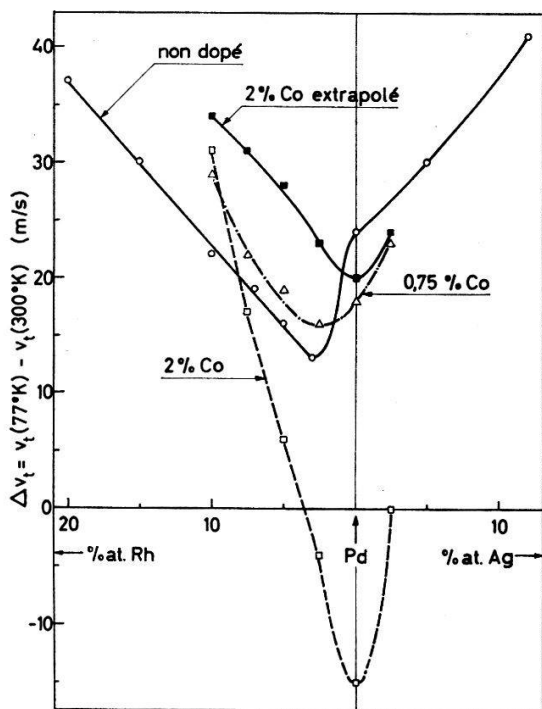


Figure 9

Ecarts des vitesses torsionnelles entre 77 et 300 °K pour 0,75 et 2% de Co ainsi que pour le 2% en extrapolant l'effet  $\Delta E$ .

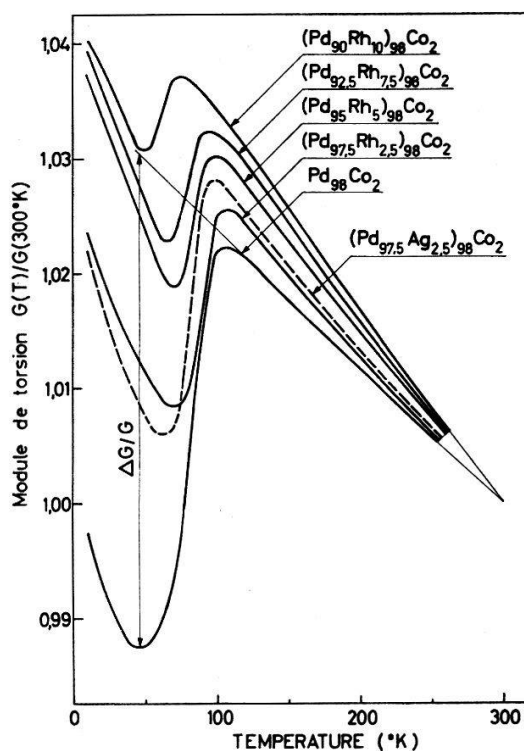


Figure 10

Variation relative du module de torsion avec la température des alliages contenant 2% de Co et exemple de détermination de la valeur  $\Delta G/G$  pour le  $\text{Pd}_{98}\text{Co}_2$ .

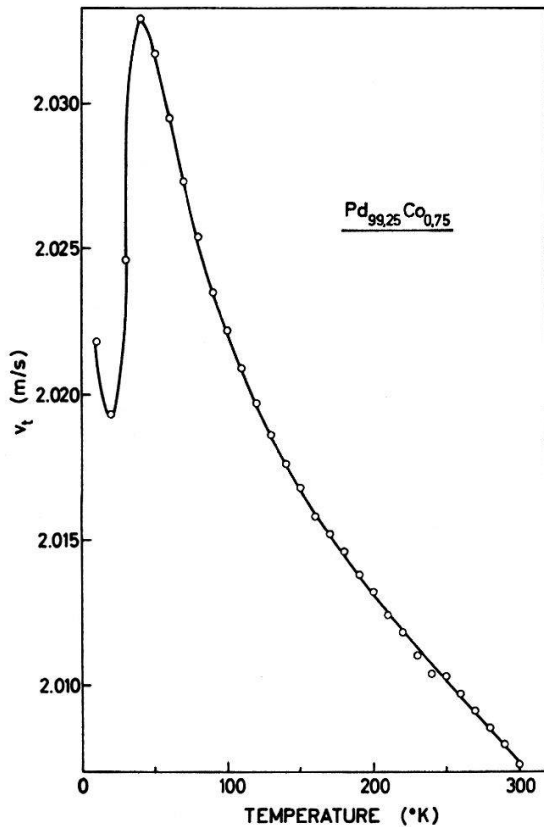


Figure 11

Comportement de la vitesse des ondes torsionnelles en fonction de la température pour l'alliage  $\text{Pd}_{99,25}\text{Co}_{0,75}$ .

de 10 Å mais d'intensité légèrement plus faible. Le Co a le même effet sur la vitesse du son que le Fe mais à un degré moindre. Il faut certainement plus de 5% de Co pour saturer complètement la susceptibilité de ces alliages. Par contre, l'intensité et la position du maximum de l'effet  $\Delta E$  avec le Co sont très différentes de celles du Fe.

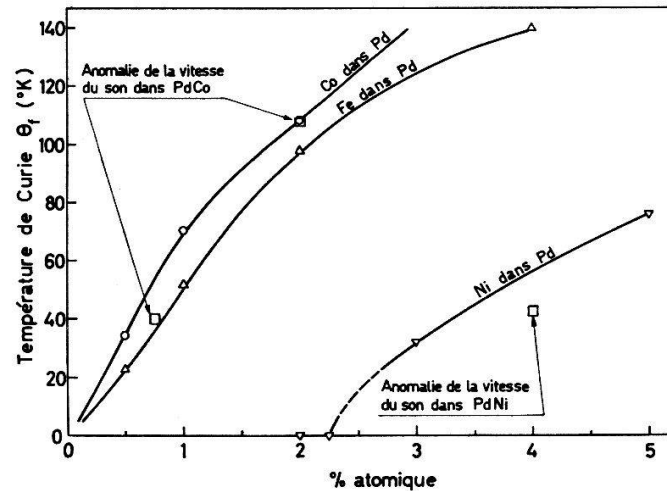


Figure 12

Températures de Curie mesurées dans le Pd en fonction de la concentration de Fe, Co, Ni [6] et températures des anomalies de la vitesse du son observées.

L'étude par EPR du Co dans ces alliages pose les mêmes problèmes que le Fe. Il apparaît tout de même d'après les mesures de PETER [5] qu'une augmentation de la concentration de Co diminue le déplacement de  $g$ , donc diminue la susceptibilité de la matrice.

#### c) Ni

L'introduction de Ni dans ces alliages donne lieu à un comportement différent de celui du Fe ou du Co comme le montre la Fig. 13. Ainsi 2% de Ni ne diminuent pas l'anomalie mais ont plutôt tendance à l'augmenter. Pour des concentrations plus élevées, lorsqu'il apparaît un moment localisé sur le Ni, le  $\Delta v_t$  est de nouveau augmenté comme dans le cas du Fe et du Co. Une augmentation beaucoup plus marquée de susceptibilité a été observée par des mesures à haut champ de TOURNIER [8]. Nous retrouvons le même phénomène qualitativement mais nos résultats indiquent une augmentation plus faible. Ce renforcement de la susceptibilité du Pd par le Ni a également été observé par PETER [5] à partir de mesures de susceptibilité et de résonance paramagnétique électronique.

Dans la série d'alliages avec 2% de Ni, aucun effet  $\Delta E$  n'est apparu. Avec 4% nous avons un effet relativement plus faible que celui du Fe et du Co (Fig. 14). Le  $\Delta E$  est maximum au Pd comme dans le cas du Co (Fig. 5).

#### d) Mn

Le Mn fait partie de la série des éléments qui entrent dans le Pd avec un moment magnétique localisé. La Figure 15 montre le  $\Delta v_t$  obtenu avec cet élément. Nous avons introduit 2% de Mn dans toute la série et 1% dans l'alliage Pd<sub>95</sub>Rh<sub>5</sub> pour étudier

comment varie le  $\Delta v_t$  avec la concentration. L'effet de 2% de Mn est du même ordre que celui dû à 2% de Fe (Fig. 7) ou 2% de Ru (Fig. 16). Ce résultat est surprenant car l'interaction d'échange entre le Mn et les électrons du Pd est beaucoup plus petite que dans le cas du Fe et du Co. Ainsi les électrons itinérants ne sont pas polarisés et la susceptibilité de bande de la matrice ne devrait pas diminuer. Cependant, le  $\Delta v_t$  étant voisin de celui du Ru, ce phénomène peut s'expliquer par un remplissage des

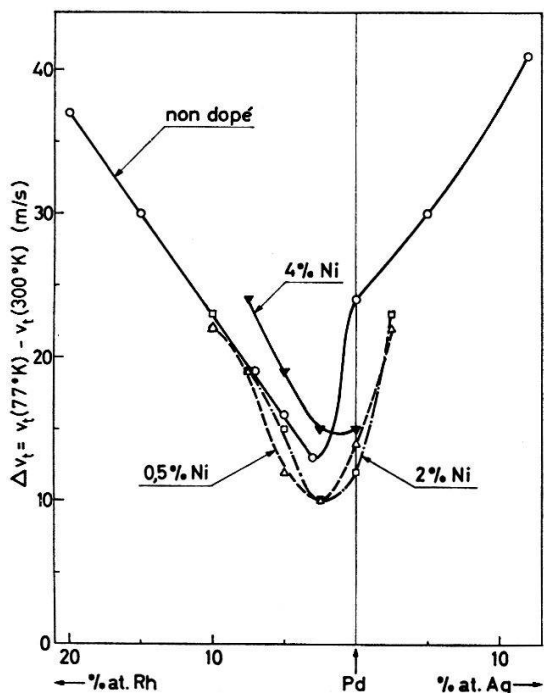


Figure 13

Ecarts des vitesses torsionnelles entre 77 et 300°K pour 0,5, 2 et 4% de Ni.

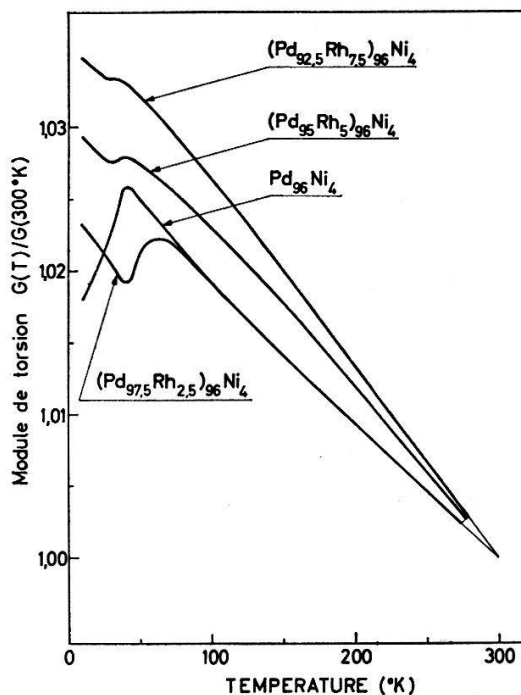


Figure 14

Variation relative du module de torsion avec la température des alliages contenant 4% de Ni pour différentes concentrations de Rh.

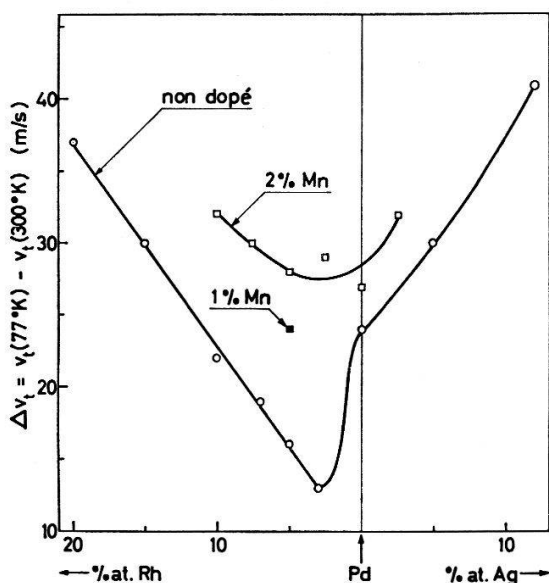


Figure 15

Ecarts des vitesses torsionnelles entre 77 et 300°K pour 1 et 2% de Mn.

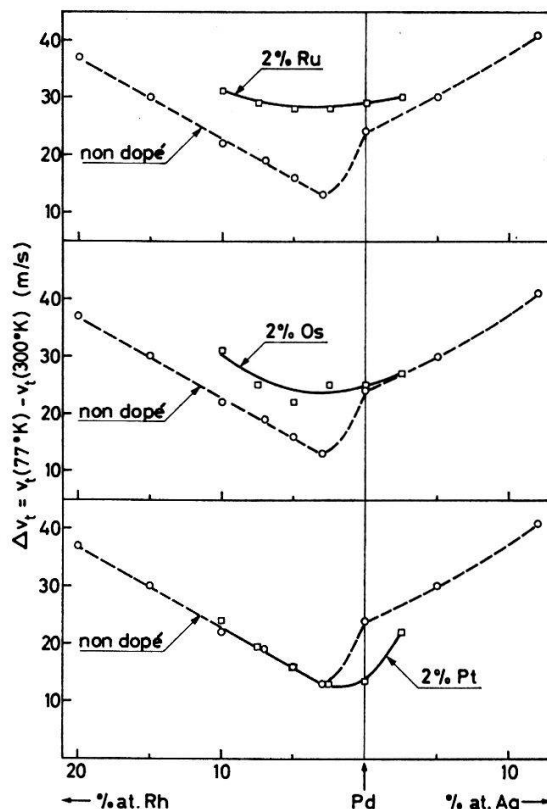


Figure 16

Ecarts des vitesses torsionnelles entre 77 et 300°K pour 2% Ru, 2% Os et 2% Pt.

trous  $d$  du Pd avec 2 électrons du Mn (état d'ionisation  $Mn^{++}$ ). Si cette hypothèse est vraie, alors, d'après le graphique  $\chi$  en fonction de  $\alpha Z_a$  de GERSTENBERG [9],  $\chi$  doit tomber de  $5,9$  à  $4,8 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{ Mol}^{-1}$  à 300°K. Pour le Ru, qui d'après VOGT [10] cède 3 électrons à la bande, l'abaissement de susceptibilité est identique à la température de 300°K et une concentration de 2%. Mais la forte augmentation du  $\Delta v_t$  peut s'expliquer en remarquant, sur la Figure 17, que 2% du Ru diminuent la variation de la

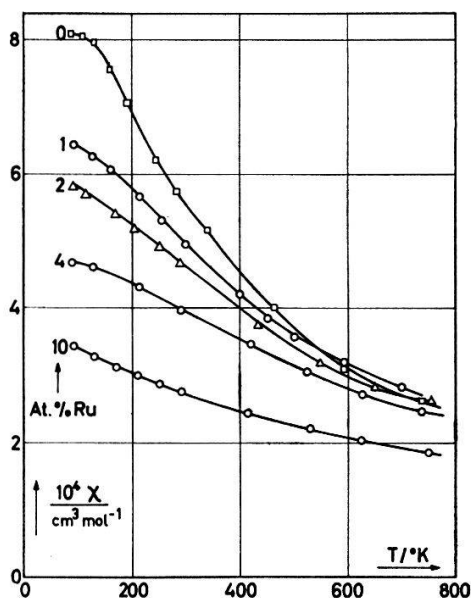


Figure 17

Susceptibilité magnétique en fonction de la température pour la série d'alliages Pd-Ru [10].

susceptibilité avec la température dans des proportions notablement plus grandes. Il n'est pas insensé de penser que 2% de Mn diminuent la variation de la susceptibilité de bande avec la température de ces alliages dans une même proportion. Cette hypothèse du remplissage de la bande  $d$  de la matrice par 2 électrons du Mn est confirmée par les mesures de susceptibilité d'alliages Pd-Mn hydrogénés de BURGER [11] qui observe un déplacement de la limite d'hydrogénation.

Le Mn ne nous a pas donné d'effet  $\Delta E$ , même en augmentant sa concentration jusqu'à 10% dans le Pd.

#### e) Ru, Os, Pt

Il est intéressant d'étudier l'influence de ces éléments car ils ne portent pas de moment magnétique localisé dans nos alliages mais agissent également sur la susceptibilité de bande par un mécanisme différent de la polarisation. Les résultats pour ces 3 éléments sont donnés par la Figure 16. Pour le Ru, comme nous l'avons vu, l'augmentation du  $\Delta v_i$  peut s'expliquer par la diminution de susceptibilité due au remplissage des trous  $d$  de la matrice par 3 électrons du Ru (Fig. 17). Les résultats pour l'osmium sont identiques à ceux du Ru; ceci est compréhensible puisque ces 2 éléments ont une structure isoélectronique. La mesure de susceptibilité d'alliages Pd-Os n'a pas encore été faite à notre connaissance, mais nos mesures laissent prévoir un comportement analogue à celui du Ru. Dans le cas du Pt nous n'avons pratiquement pas de différence avec les alliages non dopés sauf pour le Pd pur. Ceci n'est pas surprenant car 2% de Pt diminuent très peu la différence  $\chi(90^\circ\text{K}) - \chi(290^\circ\text{K})$  alors que cette même différence est très fortement diminuée dans le cas du Ru (Fig. 18). Toutefois nous ne comprenons pas le gros écart observé pour le Pd<sub>98</sub>Pt<sub>2</sub>.

#### f) Effet $\Delta E$ (de forme)

Lorsqu'une substance ferromagnétique subit une tension longitudinale, il y a redistribution vectorielle des domaines même en l'absence d'un champ magnétique.

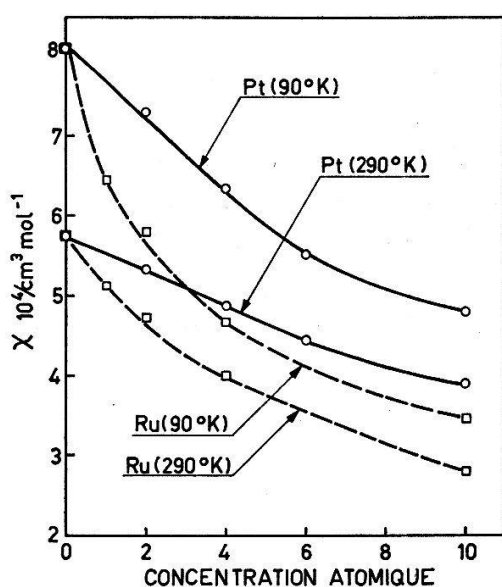


Figure 18

Susceptibilité magnétique d'alliages Pd-Pt et Pd-Ru en fonction de la concentration atomique [10 et 12].

Cette redistribution est en général accompagnée d'une déformation magnétostrictive de grandeur  $(3/2) \lambda_s (\overline{\cos^2 \theta})_\sigma - (3/2) \lambda_s (\overline{\cos^2 \theta})_{\sigma=0}$ ,  $\theta$  étant l'angle entre la direction d'aimantation et la tension,  $\lambda_s$  le coefficient de magnétostriction à saturation. La déformation totale produite par la tension est la somme de la déformation élastique ordinaire  $\varepsilon_0$  et de la déformation magnétostrictive  $\varepsilon_m$  comme le montre la Figure 19. Le  $\Delta E$  est donc défini par la différence entre le module d'élasticité à saturation et le module d'élasticité dans l'état désaimanté (pour de petites déformations). Cet effet étant fonction de la température, nous avons représenté sur la Figure 5 sa valeur déterminée de la manière indiquée sur la Figure 10.

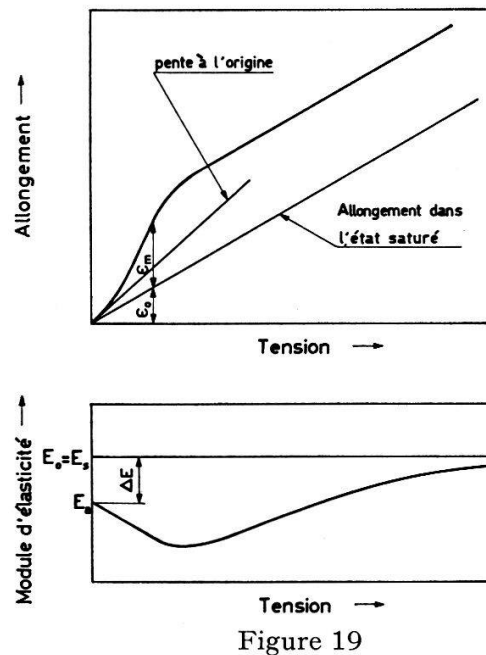


Figure 19

Diagramme de l'allongement et du module d'élasticité en fonction de la tension mécanique pour une substance ferromagnétique.

Nous observons dans nos différentes séries d'alliages un effet  $\Delta E$  avec des propriétés très spécifiques. Il ressort de la Figure 5 que:

- 1) l'effet du Co et du Fe est plus grand que celui du Ni;
- 2) pour les 3 éléments, la courbe présente un pic très prononcé, c'est-à-dire un effet important apparaissant seulement dans un domaine très restreint de concentration;
- 3) le maximum pour le Co et le Ni se trouve sur le Pd mais pour le Fe il est à la composition  $(\text{Pd}_{92,5}\text{Rh}_{7,5})_{1-x}\text{Fe}_x$ ;
- 4) la variation est proportionnelle à la concentration dans le cas du Co mais pas dans celui du Fe et du Ni.

Cet effet est difficile à interpréter parce qu'il dépend de plusieurs paramètres, à savoir [13]:

- i) la distribution vectorielle des domaines dans l'état désaimanté;
- ii) des constantes magnétostrictives puisqu'elles déterminent la grandeur de la déformation magnétique;
- iii) du rapport de l'énergie magnétoélastique et de l'énergie d'anisotropie interne.

Cet effet est donc directement proportionnel à la constante magnétostrictive qui elle-même dépend de la dérivée de l'énergie d'anisotropie magnétique par rapport à la déformation du réseau. Le mécanisme microscopique généralement accepté pour l'anisotropie magnétique est le couplage spin-orbite combiné avec le «quenching» du moment orbital par le champ cristallin. Nos résultats ne semblent pas être uniquement liés à l'interaction entre les impuretés car, dans ce cas, il devrait y avoir une relation avec l'effet observé dans les métaux purs. Le  $\Delta E$  est très important dans le Ni pur (jusqu'à 43%) mais est beaucoup plus faible dans le Fe ( $\sim 1\%$ ) et le Co ( $\sim 3\%$ ). Or nous obtenons avec 4% de Ni un  $\Delta G/G$  maximum de l'ordre de 1%, mais de 4 et 7% avec respectivement 2% de Co et 5% de Fe. Il paraît vraisemblable que l'interaction entre le spin des électrons itinérants de l'alliage avec le moment magnétique localisé sur l'impureté joue un rôle plus important dans ce phénomène. Le Fe donne dans ces alliages un moment magnétique géant avec un maximum pour la composition Pd<sub>95</sub>Rh<sub>5</sub>. Le Co montre également un moment géant dans le Pd mais il n'a pas été mesuré dans la série d'alliages. Il serait intéressant de connaître pour quelle concentration de Rh ce moment est maximum. Cependant la comparaison est douteuse car le pic montré par la courbe du  $\Delta E$  est beaucoup plus aigu que celui de la courbe du moment géant. De même il n'existe pas de corrélation avec la courbe de la susceptibilité de bande des alliages non dopés.

Comme le mécanisme semble lié au couplage spin-orbite de l'impureté, l'effet  $\Delta E$  devrait dépendre de l'état orbital de l'ion magnétique. Il est donc intéressant de faire un rapprochement avec le comportement de ces ions dans les isolants. D'une part, la différence des états fondamentaux du Co<sup>+2</sup> ( $4F_{9/2}$ ) et du Fe<sup>+3</sup> ( $6S_{5/2}$ ) pourrait expliquer celle de l'anisotropie. D'autre part, il est possible que le Co conserve plus l'état ionique dans ces alliages que le Fe. Il en est de même pour l'ion Mn<sup>+2</sup> dont l'état fondamental est un état S. Enfin, nous pouvons aussi envisager un mécanisme de polarisation anisotrope comme le montre la Figure 20. L'énergie est différente suivant la direction des spins dans l'espace. La dépendance du  $\Delta E$  de la concentration de Fe laisse supposer que ce mécanisme est responsable de l'effet observé. Le  $\Delta E$ , très petit dans le cas du Ni, pourrait également être expliqué par la très faible polarisation due à cet élément.

### g) Conclusions

Nos mesures ont montré un excellent accord avec les résultats obtenus par des méthodes fondamentalement différentes. Nous avons ainsi une nouvelle technique pour l'étude des impuretés introduites dans une structure de bande. Il est apparu par

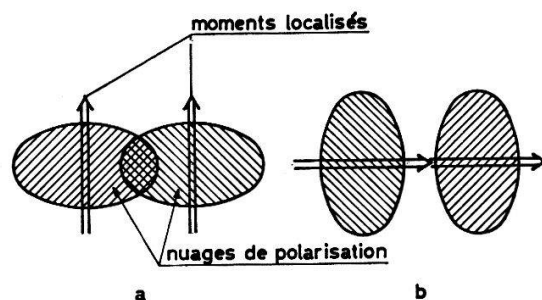


Figure 20

Représentation schématique d'une polarisation anisotrope.

exemple que la diminution de susceptibilité de bande ne peut pas être attribuée uniquement à la polarisation mais également à un effet de valence. Il est aussi apparu un effet  $\Delta E$  avec des propriétés très spécifiques et très marquées. Pour la théorie de l'interaction entre impuretés magnétiques et structure de bande, il faut expliquer ces particularités. Cette théorie étant seulement maintenant en voie d'élaboration, nous devons remettre une discussion détaillée à plus tard.

Les auteurs tiennent à remercier le Professeur S. STEINEMANN et le Professeur E. VOGT pour leurs conseils et les discussions stimulantes qu'ils ont eues avec eux.

Le soutien du Fonds National Suisse pour la Recherche Scientifique a, en large mesure, permis cette recherche.

### Références

- [1] O. BELMAHI, M. MERCK, E. PERRÉARD, M. PETER, E. WALKER et J. R. SCHRIEFFER, *Helv. phys. Acta* **39**, 337 (1966).
- [2] S. STEINEMANN, Ø. FISCHER et M. PETER, à publier.
- [3] S. FONER, *J. appl. Phys.* **39**, 411 (1968).
- [4] G. G. LOW, T. M. HOLDEN, *Proc. Phys. Soc.* **89**, 119 (1966).
- [5] D. SHALTIEL, J. H. WERNICK, H. J. WILLIAMS et M. PETER, *Phys. Rev.* **135**, A 1346 (1964).
- [6] R. SCHWALLER et J. WUCHER, *C.r. Acad. Sci. Paris* **264**, 1007 (1967).
- [7] R. M. BOZORTH, D. D. DAVIS et J. H. WERNICK, *J. Phys. Soc. Japan* **17**, 112 (1962).
- [8] G. CHOUTEAU, R. FOURNEAUX, K. GOBRECHT et R. TOURNIER, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 193 (1968).
- [9] D. GERSTENBERG, *Ann. Physik* [7] **2**, 236 (1958).
- [10] E. VOGT et E. OEHLER, *Ann. Physik* [7] **15**, 357 (1965).
- [11] J. P. BURGER, *Ann. Phys.* **9**, 345 (1964).
- [12] E. VOGT, communication privée.
- [13] E. W. LEE, *Rep. Prog. Phys.* **18**, 184 (1955).