

# Anisotropy and Relaxation in Metals

## Etude Magnetique d'un Monocristal de Cobalt dans la Phase Hexagonale

RENÉ PAUTHENET, YVES BARNIER ET GUY RIMET

*Institut Fourier, Grenoble, France*

Nous avons déterminé les variations thermiques des deux constantes d'anisotropie du cobalt hexagonal entre 2.4 et 668°K; nous avons étudié le mécanisme de la variation de l'aimantation avec le champ et le processus de changement d'axe de facile aimantation entre 518 et 598°K.

Les propriétés magnétiques du cobalt ont déjà fait l'objet d'un certain nombre de travaux (1) à (7); nous avons cependant jugé utile d'entreprendre à nouveau une étude sur ce métal, à l'état monocristallin, dans des intervalles de températures et de champs beaucoup plus étendus, afin d'en mieux comprendre notamment le mécanisme de la variation de l'aimantation avec le champ et le processus de changement d'axe de facile aimantation.

### 1. Variation thermique des constantes d'anisotropie et de l'aimantation spontanée

Les constantes d'anisotropie du cobalt ne sont pas très bien connues aux basses températures; les travaux antérieurs (1) à (4) ne mentionnent aucune valeur à des températures inférieures à 77°K; une seule mesure a été faite entre 77°K et l'ambiante. La question suscite de nos jours un vif intérêt théorique (8) à (15). Nous avons déterminé les deux constantes, relatives au cobalt dans sa phase hexagonale, depuis 2.4 jusqu'à 668°K. Pour ceci, nous avons opéré sur un cristal (16), taillé en forme de sphère, d'environ 4 mm de diamètre. Nous appliquons la méthode de W. Sucksmith et J. E. Thomson (4); on représente l'énergie d'anisotropie par l'expression  $K_1 \cdot \sin^2\theta + K_2 \cdot \sin^4\theta$ , dans laquelle  $\theta$  désigne l'angle de l'aimantation spontanée  $J_s$  avec l'axe  $c$ ; on néglige l'anisotropie dans le plan de base; on applique un champ magnétique extérieur  $H_e$ , perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, et mesure la variation de l'aimantation  $J$  suivant le champ. Pour des champs qui ne saturent pas l'échan-

tillon, la variation de  $H_e/J$  en fonction de  $J^2$  est une droite; on montre théoriquement que son ordonnée à l'origine est égale à  $(4\pi/3 + 2K_1/J_s^2)$ , ( $4\pi/3$  représente le coefficient de champ démagnétisant de la sphère), et la pente est donnée par  $(4K_2/J_s^4)$ . Les courbes de variation isotherme ( $J, H_e$ ) montrent que des champs de l'ordre de 20000 Oe sont nécessaires aux basses températures pour atteindre la saturation; pour des champs supérieurs, à la précision des expériences, l'aimantation est constante et égale à l'aimantation spontanée  $J_s$ . On a tracé (Fig. 1) la courbe ( $J_s, T$ ); aux températures inférieures à 200°K, les variations de  $J_s$  sont du même ordre de grandeur que les erreurs possibles, soit 0.5%. On détermine pour valeur de l'aimantation à saturation absolue  $J_0 = 1442$  u.é.m./cm<sup>3</sup>, soit 1.72 magnéttons de Bohr par atome de cobalt,

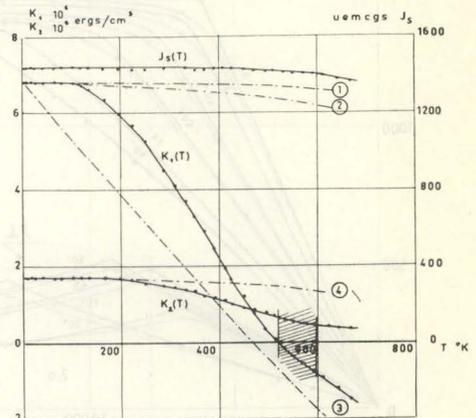


Fig. 1. Variations thermiques de l'aimantation spontanée et des constantes d'anisotropie du cobalt.

en bon accord avec les valeurs  $J_0=1442$  (5) et 1445 (7) déterminées antérieurement par des extrapolations des courbes ( $J_s, T$ ) depuis 77°K. Les déterminations de  $K_1$  et  $K_2$  sont faites avec des erreurs respectives de 2 et 6%; l'erreur est évidemment plus grande lorsque  $K_1$  est voisin de zéro. On a représenté (Fig. 1) les variations thermiques ( $K_1, T$ ) et ( $K_2, T$ ); on retrouve le changement de signe de  $K_1$  à 518°K; au-dessous de 100°K, l'approche à la saturation est très lente; on détermine les valeurs au zéro absolu  $K_{1(0)}=6.8 \cdot 10^6$  ergs/cm<sup>3</sup> et  $K_{2(0)}=1.7 \cdot 10^6$  ergs/cm<sup>3</sup>. On a représenté également les courbes théoriques proposées par divers auteurs: courbe 1,  $K_{1(T)} = K_{1(0)} + 8/7 K_{2(0)} \cdot (J_s/J_0)^3 - 8/7 K_{2(0)} \cdot (J_s/J_0)^{10}$  C. Zener (10); courbe 2,  $K_{1(T)} = K_{1(0)} \cdot (1 - 3(J_0 - J_s)/J_0)$  E. A. Turov et A. I. Mitsek (15); courbe 3,  $K_{1(T)} = K_{1(0)} \cdot (1 - 3 T/T_c) \cdot (J_s/J_0)^3$  W. J. Carr (13), dans laquelle  $T_c$  désigne le point de Curie ferromagnétique du cobalt; courbe 4,  $K_{2(T)} = K_{2(0)} \cdot (J_s/J_0)^{10}$  (10) (15) (14). L'accord entre la théorie et l'expérience est loin d'être satisfaisant.

**2. Variation isotherme de l'aimantation en fonction du champ**

L'étude a été faite à 15°C; l'axe  $c$  est de facile aimantation. On désigne par  $\varphi$  l'angle du champ extérieur avec l'axe  $c$  et par OX une direction de difficile aimantation dans le plan de base, parallèle à la projection du

champ extérieur sur ce plan (Fig. 2b). Nous avons mesuré pour différents angles  $\varphi$ , dans des champs extérieurs jusqu'à 30000 Oe, les variations de la composante  $J_{//}$ , suivant  $H_e$ , et de la composante  $J_{\perp}$ , suivant une direction perpendiculaire à  $H_e$ , de l'intensité d'aimantation résultante  $J$  de la substance. Pour ceci, nous avons utilisé l'un de nos appareils de mesures des aimantations par extraction axiale (17); le circuit de mesures est constitué de trois paires de bobines dont les axes sont à 90° les uns des autres; l'un de ces axes est suivant celui de l'électro-aimant. On oriente l'échantillon de manière à annuler la composante de l'aimantation dans l'une des deux bobines dont l'axe est perpendiculaire à celui de l'entrefer; le processus d'aimantation s'effectue ainsi dans le plan défini par les axes des deux autres bobines. Les résultats expérimentaux (Fig. 2a) peuvent être résumés ainsi: pour  $\varphi=0$ , l'aimantation  $J_{\perp}$  est nulle; l'aimantation  $J_{//}$  croît proportionnellement à  $H_e$ , avec une susceptibilité égale à l'inverse du coefficient de champ démagnétisant  $n=4\pi/3$  de l'échantillon sphérique; à partir d'un champ de l'ordre de 6,050 Oe, l'aimantation est constante et égale à l'aimantation spontanée  $J_s$ ; sa valeur numérique est 1432 u.é.m./cm<sup>3</sup>. Pour  $0 < \varphi < \pi/2$ ,  $J_{//}$  et  $J_{\perp}$  commencent par croître avec  $H_e$  jusqu'à un champ  $H_s$  au-delà duquel  $J_{\perp}$  décroît et  $J_{//}$  tend vers  $J_s$  suivant une loi d'approche à la

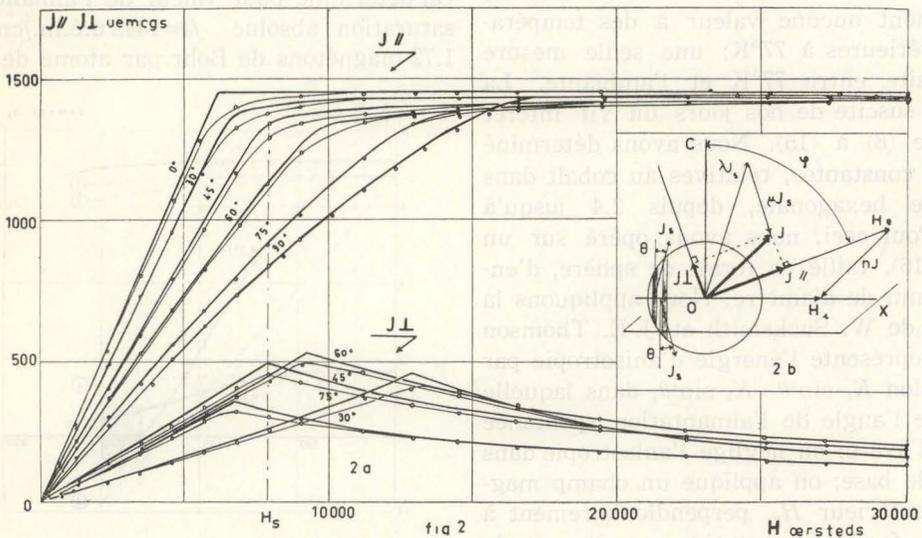


Fig. 2. Variation isotherme en fonction du champ des composantes parallèle et perpendiculaire de l'aimantation.

saturation.

L'interprétation de ces résultats est fournie par la théorie des phases de domaines élémentaires (18) (19). En l'absence de champ, à l'intérieur du cristal supposé pur et non déformé, les aimantations spontanées de deux domaines successifs sont le long de l'axe *c*, mais dans des directions opposées; on divise ainsi les domaines élémentaires en deux phases distinctes, constituées chacune de l'ensemble des domaines dont les aimantations spontanées sont de même sens. Faisons croître  $H_e$  à partir de zéro, en maintenant l'angle  $\varphi$  constant; par déplacement de parois, le volume  $\lambda$  de l'une des phases augmente aux dépens du volume  $\mu$  de l'autre phase ( $\lambda + \mu = 1 \text{ cm}^3$ ); les aimantations spontanées tendent à s'aligner dans le sens de  $H_e$ ; l'aimantation résultante  $J$  sera telle que le champ intérieur  $H_i$  égal à  $H_e - nJ$  soit parallèle à OX pour que les deux phases puissent subsister en équilibre l'une par rapport à l'autre. L'étude des conditions d'équilibre conduit aux relations:

$$(2K_1 + nJ_s^2) \sin \theta + 4K_2 \cdot \sin^3 \theta - H_e J_s \cdot \sin \varphi = 0$$

$$\lambda - \mu = \frac{H_e \cos \varphi}{nJ_s \cos \theta} \quad \text{avec} \quad \lambda + \mu = 1$$

à partir desquelles on calcule  $\theta$ ,  $\lambda$  et  $\mu$  pour toute valeur de  $H_e$  et  $\varphi$ . On connaît (§ 1)  $K_1 = 4.53 \cdot 10^6 \text{ ergs/cm}^3$   $K_2 = 1.44 \cdot 10^6 \text{ ergs/cm}^3$  et  $J_s = 1432$ ; en prenant les projections des aimantations résultantes de chacune des phases suivant  $H_e$  et la perpendiculaire à  $H_e$ , on calcule  $J_{//}$  et  $J_{\perp}$ ; ce mode d'aimantation à deux phases subsiste jusqu'à ce que le champ  $H_e$  atteigne la valeur  $H_s$ , pour laquelle  $\lambda$  est égal à 1. Pour les champs  $H_e$  supérieurs à  $H_s$ , la variation d'aimantation est due uniquement aux rotations de l'aimantation spontanée de la phase restante; les composantes de l'aimantation suivant  $H_e$  se calculent aisément au moyen de méthodes connues (20). Sur la figure 2a sont représentées en trait fort les courbes calculées; si l'on excepte la région voisine de  $H_s$ , pour laquelle se produit le changement de mode d'aimantation, on remarque le bon accord entre la théorie et les résultats d'expérience.

### 3. Processus du changement d'axe de facile aimantation

Dans un cristal uniaxe parfait, en l'absence

de champs extérieur, la position d'équilibre stable de l'aimantation spontanée est définie par le minimum de l'énergie magnétocristalline  $W_K = K_1 \cdot \sin^2 \theta + K_2 \cdot \sin^4 \theta$ . En général,  $\theta$  est égal à 0 ou  $\pi/2$ . Cependant, si  $K_1$  et  $K_2$  satisfont à l'inégalité  $0 < -K_1/2K_2 < 1$ , le minimum de  $W_K$  définit une position d'équilibre de  $J_s$  faisant l'angle  $\theta_0 = \arcsin \sqrt{-K_1/2K_2}$  (21) avec l'axe *c*; les aimantations spontanées sont alors dirigées suivant les génératrices de deux cônes préférentiels, opposés par le sommet, d'angle au sommet  $\theta_0$  (Fig. 3b). Les variations thermiques des constantes d'anisotropie du cobalt (§ 1) montrent que cette condition y est réalisée entre 518 et 598°K.

Nous avons cherché à mettre expérimentalement en évidence cet angle  $\theta_0$  dans le cobalt. L'échantillon monocristallin sphérique est placé dans l'entrefer d'un électroaimant, au centre du système de trois bobines décrit § 2; son axe *c* fait l'angle  $\varphi$  avec le champ; on cherche la température pour laquelle  $\theta_0$  est égal à  $\varphi$ , en suivant l'évolution de la composante  $J_{\perp}$  à champ constant et température variable. Le champ appliqué est suffisamment intense pour n'avoir plus qu'une phase de domaines élémentaires mais

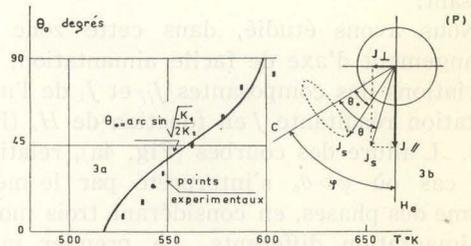


Fig. 3. Variation en fonction de la température de l'angle de la direction de facile aimantation avec l'axe *c*.

pas trop cependant pour ne pas être trop près de la saturation de l'échantillon; des champs entre 6000 et 14000 Oe sont adaptés à ces mesures. Le processus d'aimantation s'effectue dans un plan, parallèle aux directions du champ et de l'axe *c*, que l'on rapporte au système d'axe *xoy* avec *oy* suivant l'axe *c* (Fig. 3b). Par orientation de l'échantillon, on annule la composante de l'aimantation dans l'une des deux bobines d'axe perpendiculaire à  $H_e$ ; on mesure au moyen des deux autres les composantes  $J_{//}$  et  $J_{\perp}$ . Le

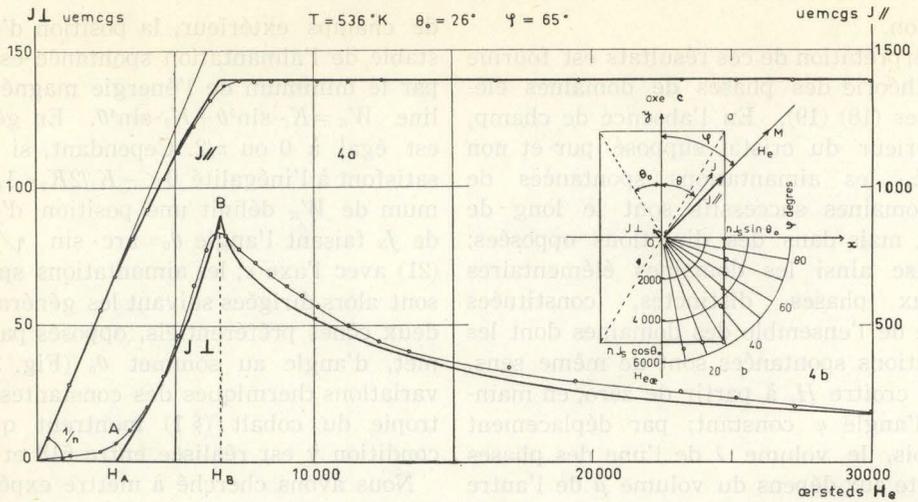


Fig. 4. Variation isotherme de l'aimantation en fonction du champ, dans la zone de températures à cône préférentiel.

champ étant maintenu constant, si l'on fait croître la température,  $J_{\perp}$  décroît, s'annule pour  $\theta_0 = \varphi$  puis change de signe pour  $\theta_0 > \varphi$ . Connaissant  $\varphi$ , en notant la température  $T$  pour laquelle  $J_{\perp}$  s'annule, on déduit la variation  $(\theta_0, T)$  (Fig. 3a); la courbe en trait plein représente la variation théorique ( $\arcsin \sqrt{-K_1/2K_2}$ ,  $T$ ) déduite des variations thermiques de  $K_1$  et  $K_2$ . L'accord est satisfaisant.

Nous avons étudié, dans cette zone de changement d'axe de facile aimantation, les variations des composantes  $J_{//}$  et  $J_{\perp}$  de l'aimantation résultante  $J$  en fonction de  $H_e$  (Fig. 4b). L'allure des courbes (Fig. 4a), relatives au cas où  $\varphi > \theta_0$  s'interprète par le mécanisme des phases, en considérant trois modes d'aimantation différents. Le premier mode correspond aux champs faibles; les variations d'aimantation sont uniquement dues aux déplacements de parois; le champ intérieur est nul;  $J_{//}$ , suivant  $H_e$ , croît proportionnellement avec ce dernier avec une susceptibilité égale à l'inverse du coefficient de champ démagnétisant de la sphère;  $J_{\perp}$  est nulle. Ce processus se poursuit jusqu'au champ  $H_A$  pour lequel le volume de l'échantillon est divisé en deux phases de domaines élémentaires dans lesquels les aimantations spontanées sont parallèles aux directions  $Oa$  et  $Ob$  (Fig. 4b), intersections des cônes préférentiels avec  $P$ ; la composante de l'aimantation suivant  $Ox$  est  $J_s \cdot \sin \theta_0$  et celle de  $H_A$  est  $nJ_s \cdot \sin \theta_0$ . Lorsque  $H_e$  croît, la variation d'

aimantation se fait suivant un mode à deux phases; le champ intérieur est perpendiculaire à l'axe  $c$ ; les proportions relatives de phases varient; l'aimantation résultante s'écarte de  $H_e$ ,  $J_{//}$  et  $J_{\perp}$  croissent avec  $H_e$ . Ce mécanisme se poursuit jusqu'au champ  $H_B$  pour lequel une des phases disparaît. Pour des champs supérieurs à  $H_B$ , la variation d'aimantation résulte uniquement des rotations de l'aimantation spontanée dans la direction de  $H_e$ ,  $J_{//}$  croît et  $J_{\perp}$  décroît. Les courbes calculées (Fig. 4a) rendent bien compte de ces trois modes d'aimantation.

Nous avons représenté en coordonnées polaires (Fig. 4b) la variation  $(H_A, \varphi)$ ; la détermination de  $H_A$  est faite par extrapolation jusqu'à l'axe des abscisses de la portion  $AB$  des courbes  $(J_{\perp}, H_e)$  (Fig. 4a). L'échantillon était porté à une température de 541°K pour laquelle  $\theta_0 = 30^\circ$ . On vérifie que, pour  $\varphi > \theta_0$ , la projection de  $H_A$  sur  $Ox$  est indépendante de  $\varphi$  et égale à  $nJ_s \cdot \sin \theta_0$  alors que pour  $\varphi < \theta_0$ , la projection de  $H_A$  sur  $Oy$  est  $nJ_s \cdot \cos \theta_0$ ; pour tout champ  $H_e = OM$ , dont l'extrémité  $M$  est à l'intérieur du cylindre de rayon  $nJ_s \cdot \cos \theta_0$ , limité par les deux plans  $y = \pm nJ_s \cdot \cos \theta_0$ , l'aimantation varie suivant le premier mode; le passage du premier au second mode s'effectue lorsque  $M$  est sur la surface du cylindre.

References

- 1 S. Kaya: Tôhoku Sc. Rep. **17** (1928) 1157.
- 2 K. Honda et M. Masumoto: Tôhoku Sc. Rep.

- 20 (1931) 322.
- 3 R. M. Bozorth: Phys. Rev. **96** (1954) 311.
- 4 W. Sucksmith et J. E. Thompson: Proc. Roy. Soc. **225** (1954) 362.
- 5 P. Weiss et R. Forrer: Ann. Phys. **12** (1929) 279.
- 6 Guillaud et M. Roux: Comptes Rendus **222** (1946) 1110.
- 7 W. Sucksmith: J. Phys. Rad. **12** (1951) 431.
- 8 Z. Akulov: Phys. **100** (1936) 197.
- 9 J. H. Van Vleck: Phys. Rev. **52** (1937) 1178.
- 10 C. Zener: Phys. Rev. **96** (1954) 1335.
- 11 R. Brenner: Phys. Rev. **107** (1957) 1539.
- 12 F. Keffer: Phys. Rev. **100** (1955) 1692.
- 13 W. J. Carr: Phys. Rev. **108** (1957) 1158.
- 14 W. J. Carr: Phys. Rev. **109** (1958) 1971.
- 15 E. A. Turov et A. I. Mitsek: J. E. T. P. **37** (1959) 1127.
- 16 Ce cristal nous a été fourni par W. Sucksmith.
- 17 G. Rimet: J. Phys. Rad. à paraître.
- 18 L. Néel: J. Phys. Rad. **5** (1944) 241.
- 19 L. Néel: Colloque National de Magnétisme, Strasbourg, 6-10 Juillet 1957.
- 20 R. Becker et W. Döring: Ferromagnetismus, Julius Springer, Berlin, 1935.
- 21 J. Smit: J. Phys. Rad., **20** (1959) 360.

## DISCUSSION

C.D. GRAHAM, JR.: Is there any significant difference between your values of the anisotropy constants of Co and the earlier values of Sucksmith and Thompson?

R. PAUTHENET: Nous avons retrouvé les valeurs des constantes  $K_1$  et  $K_2$  du cobalt, déterminées antérieurement par W. Sucksmith et J.E. Thompson, à mieux de 5 %, sauf dans la région où  $K_1$  est voisine de zéro pour laquelle l'erreur relative est plus grande.

JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN

VOL. 17, SUPPLEMENT B-I, 1962

PROCEEDINGS OF INTERNATIONAL CONFERENCE ON MAGNETISM AND CRYSTALLOGRAPHY, 1961, VOL. I

## The Temperature Dependence of the Magnetocrystalline Anisotropy of Face-Centered Cubic Cobalt\*

D. S. RODBELL

General Electric Research Laboratory, Schenectady  
New York, U.S.A.

Single crystals of face-centered cubic cobalt have been examined between 4.2° and 850°K. The usual transformation to the hexagonal structure below 700°K is avoided by using two special forms of samples: (a) thin films evaporated onto MgO substrates, and (b) the precipitated cobalt-rich phase in a 2 per cent Co-Cu single crystal. In both cases the f.c.c. cobalt is stabilized by and has a close correspondence with the host lattice.

Standard ferromagnetic (electron-spin) resonance techniques have been used to determine the magnetocrystalline anisotropy parameters  $K_1/M$  and  $K_2/M$  over the temperature range indicated, and, in addition, the spectroscopic splitting factor,  $g$ , is found to be  $2.06 \pm 0.03$  independent of temperature.

The temperature dependence of the anisotropy constants is in accord with the relation  $K(T)/K(0)=[M(T)/M(0)]^n$ . We have taken the determination by Jaccarino of the temperature dependence of the cobalt nuclear magnetic resonance frequency to be proportional to the magnetic moment. The results that are obtained indicate that the power  $n$  of the dependence noted is nearly 10 for  $K_1$ .

The magnetocrystalline anisotropy reflects the spatial symmetry of the crystal structure

that it is associated with; that is, the spatial dependence of the magnetization energy is intimately connected with the crystal symmetry of the sample. In addition, the temperature dependence of the magnetocrystal-

\* This work was supported in part by Wright Air Development Division, Air Research and Development Command, United States Air Force.