

STRUCTURE MAGNÉTIQUE DE K_2NiF_4

Par R. PLUMIER,

Centre d'Études Nucléaires de Saclay

et

E. LEGRAND,

Centre d'Études Nucléaires de Mol-Donk, Belgique.

Résumé. — La détermination de la structure magnétique du composé quadratique K_2NiF_4 a été réalisée sur poudre à l'aide de la diffraction magnétique des neutrons. Les expériences ont été effectuées aux températures de 22 °K, 77 °K ainsi qu'à la température ambiante.

Magnétiquement, cette structure peut être décomposée en une succession de feuillets d'ions Ni^{++} perpendiculaires à l'axe c . Dans chacun de ces feuillets, les moments de spin sont fortement couplés antiferromagnétiquement entre eux et sont parallèles à l'axe c .

La comparaison avec le composé antiferromagnétique cubique $KNiF_3$ suggère que les interactions magnétiques entre feuillets adjacents sont faibles conférant un caractère essentiellement bidimensionnel à la structure magnétique de K_2NiF_4 .

Abstract. — The magnetic structure of tetragonal K_2NiF_4 has been determined by neutron diffraction on powder. Experiments have been performed at 22 °K, 77 °K and at room temperature.

The magnetic structure can be considered as built of sheets of Ni^{++} cations perpendicular to the c axis. In every sheet, the spins are coupled by strong antiferromagnetic interactions and are found parallel to the c axis.

Comparison with cubic antiferromagnet $KNiF_3$ suggests that the magnetic interactions between sheets are weak, leading to a mainly two dimensional character of the magnetic structure of K_2NiF_4 .

Structure comparée de K_2NiF_4 et de $KNiF_3$. — La structure du composé quadratique K_2NiF_4 a été déterminée à l'aide des rayons X [1]. Les paramètres suivants ont été obtenus : $a = 4,00_6$ Å et $c = 13,07_6$ Å.

Cette structure est représentée sur la figure 1a. La figure 1b donne, pour la comparaison, la structure du composé cubique $KNiF_3$. Ce composé est

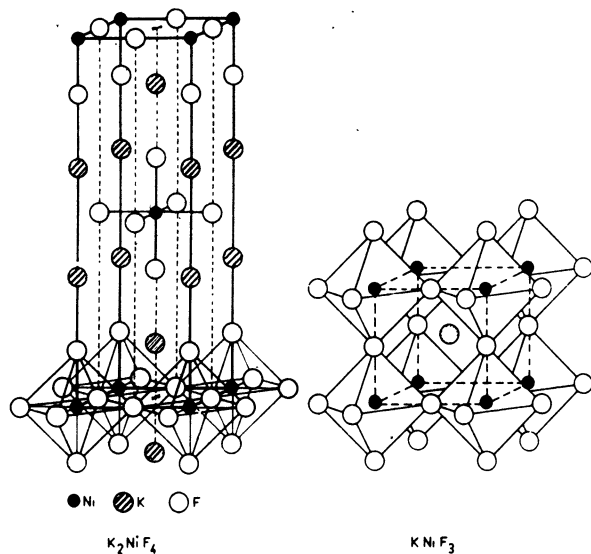


FIG. 1. — a) Réseau de K_2NiF_4 . b) Réseau de $KNiF_3$.

du type pérovskite avec $a = 4,00$ Å. Des expériences de diffraction magnétique des neutrons [2] ont montré que ce dernier composé est antiferromagnétique, de fortes interactions de superéchange s'exerçant entre les ions nickel par l'intermédiaire des ions fluor.

L'antiferromagnétisme de K_2NiF_4 a été signalé précédemment [1]. L'examen de la figure 1a montre que, dans ce cas toutefois, des fortes interactions de superéchange ne peuvent s'exercer que dans les feuillets perpendiculaires à l'axe c .

Nous avons effectué des expériences de diffraction de neutrons sur ce dernier composé de manière à mettre en évidence sa structure magnétique (*). Notons encore qu'on pouvait, dans ce cas, obtenir la direction des moments de spin par rapport aux axes cristallographiques alors qu'il est bien connu que, dans le cas d'un composé cubique tel $KNiF_3$, cette détermination est impossible à l'aide d'expériences effectuées sur une poudre.

Structure magnétique de K_2NiF_4 . — Comme on peut l'observer sur la figure 2, obtenue à $T = 77$ K, on observe l'apparition de trois raies de surstructure d'origine magnétique. Ces raies peuvent être indexées sur la base d'une maille quadratique

(*) Les résultats préliminaires de ces expériences ont été publiés ailleurs, cf. LEGRAND (E.) et PLUMIER (R.), *Physica Status Solidi*, 1962, 317, Band 2, Heft 3.

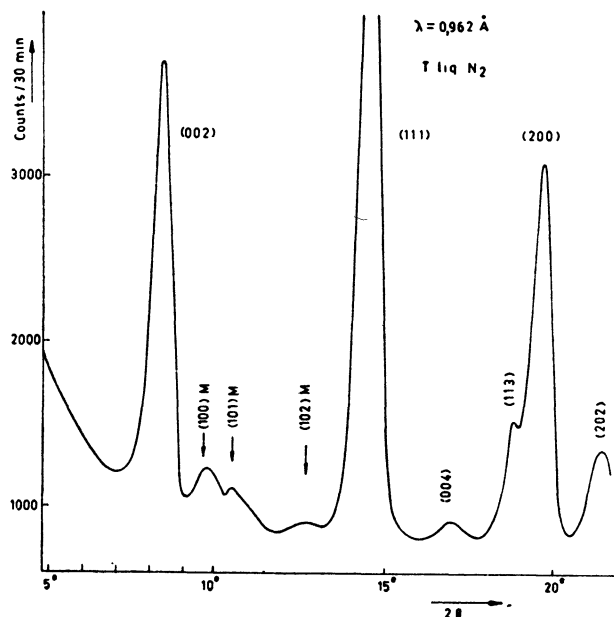


FIG. 2. — Diagramme de diffraction des neutrons à 77° K; les raies sont indexées sur la base de la maille magnétique (voir fig. 3).

double de la maille nucléaire (fig. 1a et 3). Si l'on admet un couplage antiferromagnétique dans le plan des feuillets, on notera qu'il est indifférent d'adopter les mailles a ou b de la figure 3. On notera cependant que, dans le cas de la figure 3a, les réflexions (010), (101) et (012) sont permises alors que, dans le cas de la figure 3b, les seules réflexions permises sont (100), (011) et (102).

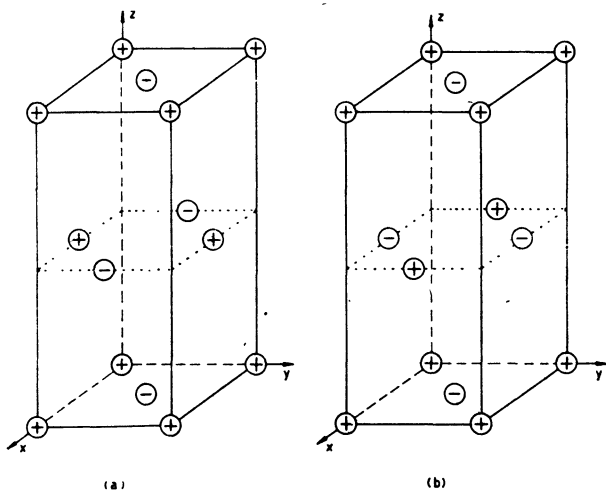


FIG. 3. — Maille magnétique.

L'existence de ces deux structures parfaitement équivalentes et indiscernables entraîne, dans le cas d'expériences effectuées sur une poudre, une réduction

de moitié du facteur habituel de multiplicité (*).

On trouvera, dans le tableau I, la comparaison entre les intensités expérimentales et calculées dans les hypothèses de spins parallèles et perpendiculaires à l'axe quadratique.

TABEAU I

(hkl)	I THÉORIQUE (BARNES)		I OBSERVÉ	
	SPINS PARALL. A C	SPINS PERP. A C	22 °K	77 °K
(100) = (010)	530,5	265,2	573	468
(011) = (101)	735,4	505,8	627	494
(102) = (012)	305,4	382,4	249	208

Il résulte, de l'examen de ce tableau, que le meilleur accord entre les résultats expérimentaux et théoriques est obtenu aux températures considérées en admettant que les spins couplés antiferromagnétiquement sont parallèles à l'axe quadratique. Notons encore qu'en suivant l'évolution du maximum de la réflexion (100) avec la température, on détermine un point de Néel de 190 °K.

Discussion de la structure magnétique. — La structure magnétique adoptée met en évidence le caractère essentiellement bidimensionnel des interactions magnétiques.

Bien qu'un tel modèle ne soit pas incompatible avec la théorie des ondes de spins [3], il faut toutefois reconnaître l'existence de forces d'anisotropie qui favorisent la disposition de spins parallèles à l'axe c .

D'une part, la force dipolaire classique, nulle entre feuillets premiers voisins et faible entre feuillets seconds voisins, équivaut, pour les interactions entre les moments d'un même feuillet, à l'existence d'un champ équivalent d'anisotropie d'environ 935 oersteds qui tend à aligner les spins suivant c .

Par ailleurs, les rayons X ont mis en évidence un aplatissement de l'ordre de 1 % de l'octaèdre de fluors entourant chaque ion Ni^{++} . Il existe donc une composante de champ cristallin anisotrope suivant c . Notons encore que, dans le cas de $KNiF_3$, le moment de spin de Ni^{++} a été trouvé égal à $2,2 \mu_B$ [2], ce qui indique l'existence d'un couplage spin-orbite.

Néanmoins les interactions de superéchange qui s'exercent dans le plan de chaque feuillet entre un ion Ni^{++} et ses quatre premiers voisins sont les interactions magnétiques dominantes. Si l'on s'en tient à ces interactions, l'approximation de champ moléculaire conduit dans le cas de K_2NiF_4 à un

(*) Des expériences de diffraction des neutrons, réalisées sur un monocristal de K_2NiF_4 sont actuellement en cours à Saclay de manière à mettre en évidence l'éventuelle extinction d'un de ces groupes de réflexions par un individu cristallin donné.

point de Néel qui serait les 2/3 de celui de KNiF_3 . L'expérience fournit respectivement 190 °K et 275 °K. Notons encore que des mesures de susceptibilité sur poudre ont été effectuées récemment à Saclay (*). Elles conduisent à un rapport $\theta/T_N = 3$ où θ est la température de Curie asymptotique et T_N la température de Néel avec T_N égal à 200 °K environ. Ce rapport est sensiblement le même que celui obtenu dans le cas de KNiF_3 [4].

Note. — Des mesures de susceptibilité viennent d'être effectuées sur un monocristal de K_2NiF_4 par

M. Smit des Laboratoires Philips à Eindhoven. Elles montrent que la susceptibilité est presque constante entre 100 °K et 300 °K. Au-dessus de 110 °K, on trouve sensiblement $\chi_{\perp} = \chi_{\parallel}$.

Entre 20 °K et 110 °K, le comportement de ces susceptibilités est normal avec χ_{\perp} sensiblement constant et χ_{\parallel} décroissant régulièrement avec T .

Nous remercions vivement M. Smit pour ces intéressants résultats.

(*) Allain, Miédan : communication privée.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BALZ (D.) et PLIETH (K.), *Z. Elektrochem.*, 1955, **59**, 545.
- [2] SCATTURIN et al., *Acta Cryst.*, 1961, **14**, 19.
- [3] ANDERSON (P. W.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 694.
- [4] HIRAKAWA (K.), HIRAKAWA (K.) et HASHIMOTO (T.), *J. Phys. Soc., Japan*, 1960, **15**, 2063.