

STRUCTURE MAGNETIQUE DE L'OXYSULFURE D'YTTERBIUM

R. Ballestracci, J. Rossat-Mignod

CEN-G, Chemin des Martyrs, Grenoble, France

(Received 23 May 1969 by E.F. Bertaut)

La structure magnétique de l'oxysulfure d'ytterbium s'interprète dans une maille double de la maille cristalline hexagonale ($\mathbf{k} = [0, 0, 1/2]$), les moments magnétiques étant alignés selon l'axe \mathbf{a} . On observe une réduction importante du moment magnétique de l'ion Yb^{3+} que l'on attribue à l'action du champ cristallin.

LA STRUCTURE cristalline de l'oxysulfure d'ytterbium ($a = 3,726$, $c = 6,509$) peut être décrite dans le groupe d'espace $P3m$ avec

2 Yb en $\pm (1/3, 2/3, u)$

2 O en $\pm (1/3, 2/3, v)$

1 S en $\pm (0, 0, 0)$

Les paramètres de position ont été affinés à partir d'un diagramme de poudre par diffraction neutronique à la température ambiante; on a trouvé $u = 0,29$ et $v = 0,62$.

L'étude par diffraction neutronique des oxysulfures de terbium, de dysprosium et d'holmium¹ a montré que la structure magnétique de ces composés était caractérisée par un vecteur de propagation $\mathbf{k} = [0, 1/2, 1/2]$ (Tb, Dy) et $\mathbf{k} = [0, 1/2, 0]$ (Ho).

La température de Néel de l'oxysulfure d'ytterbium étant voisine de 3°K² deux diagrammes de diffraction neutronique ont été effectués, l'un à la température ambiante, l'autre à la température de l'hélium pompé (Fig. 1).

La comparaison de ces deux diagrammes met en évidence à basse température un certain nombre de raies indexables dans une maille hexagonale double selon C caractérisée par un vecteur de propagation $\mathbf{k} = [0, 0, 1/2]$. La connaissance de l'orientation des deux spins

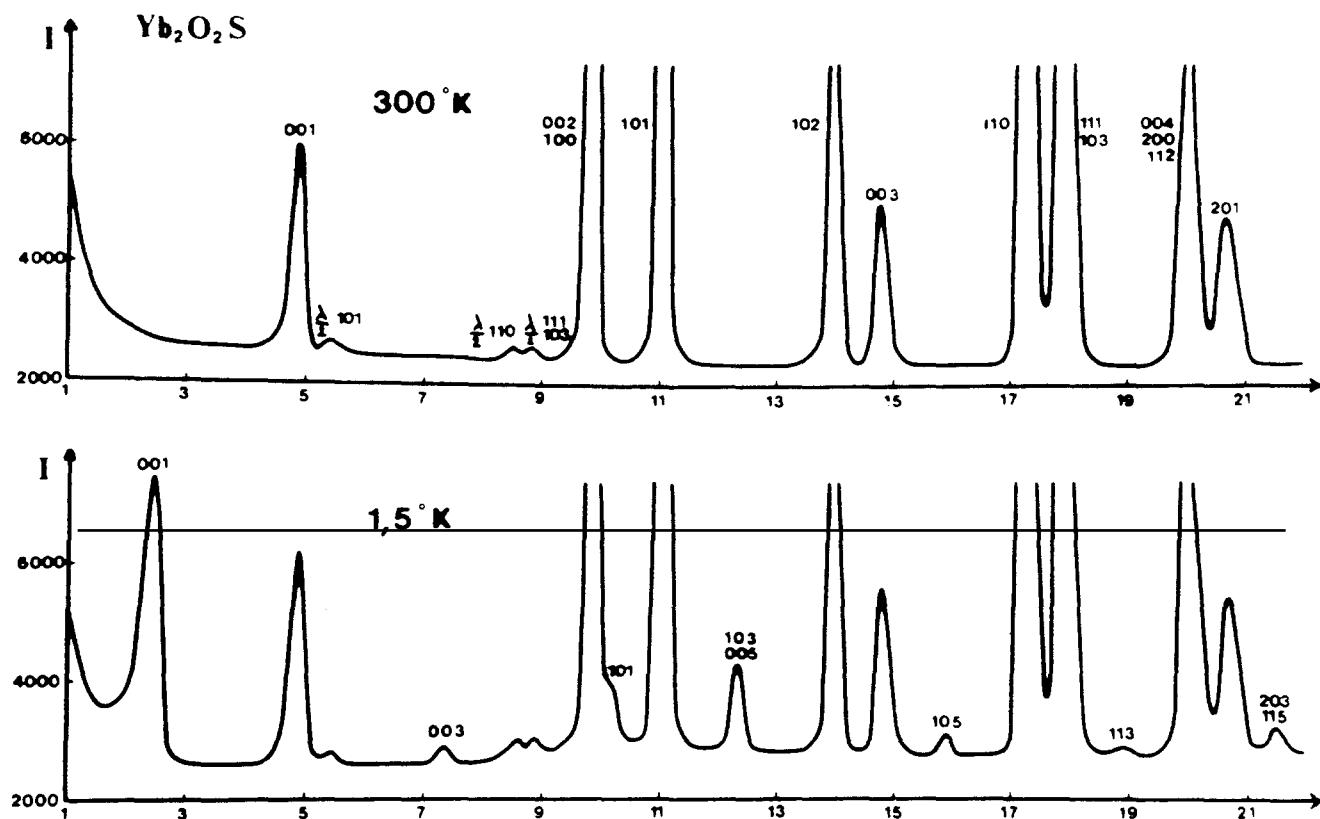
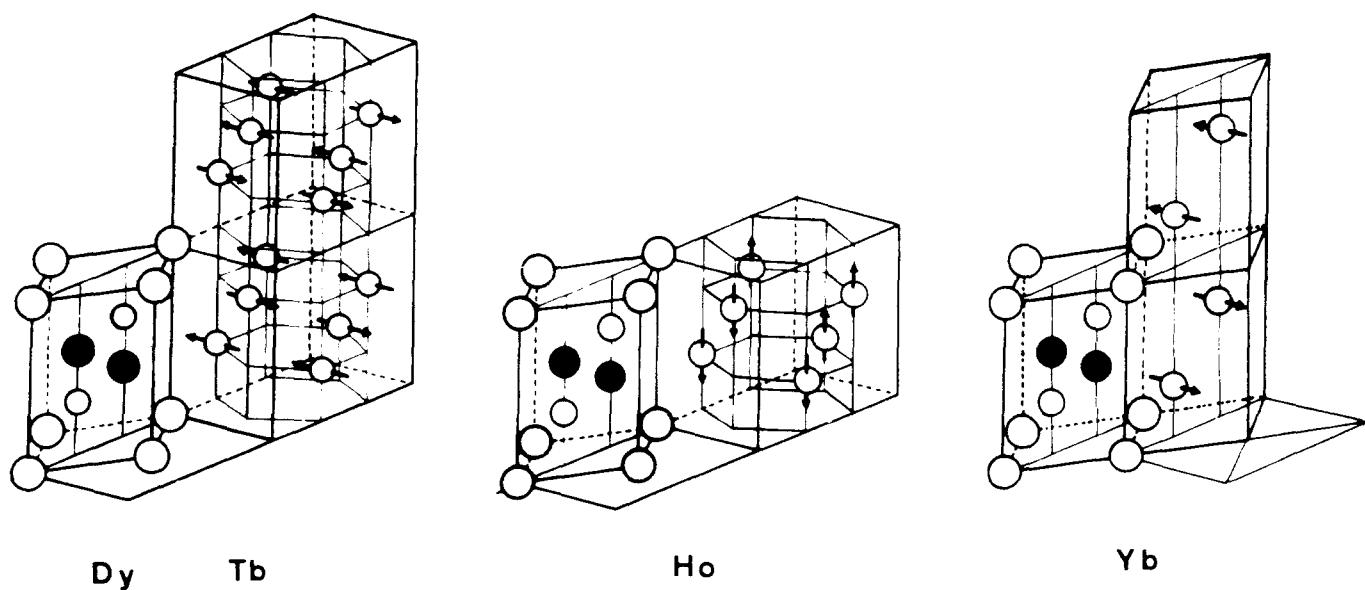
situés en $1/3 2/3 u' = u/2$ et $2/3 1/3 1/2 - u$, suffit pour déterminer la structure magnétique. Le calcul effectué en utilisant le facteur de forme de l'ytterbium donné par Freeman³ a montré que ces deux spins étaient orientés selon l'axe \mathbf{a} avec la même direction (existence des réflexions 0 0 1).

Sur la Fig. 2 on a représenté schématiquement les différents modèles magnétiques observés dans les oxysulfures de terres rares. Les intensités calculées et observées sont données dans le Tableau 1, le facteur de confiance $R = \sum |I_{\text{obs}} - I_{\text{cal}}| / \sum I_{\text{obs}}$ est de 3 pour cent. Ces résultats donnent pour l'ytterbium un moment de $1,66\mu_B$ à la température de 1,5°K, ce qui correspond à un moment à saturation voisin de $2\mu_B$, moment très inférieur à celui de l'ion libre Yb^{3+} ($\mu = 4\mu_B$). Cette réduction du moment magnétique s'explique par l'action du champ cristallin.

L'ion Yb^{3+} est placé dans un site de symétrie C_{3v} et dans ce cas la représentation $D_{7/2}$ se réduit suivant les représentations irréductibles du groupe double C_{3v} en

$$D_{7/2} = (^1\Gamma_5 + ^1\Gamma_6) + 3 ^2\Gamma_4$$

Cette réduction met en évidence que le niveau $^2F_{7/2}$ de l'ion libre est décomposé par

FIG. 1. Diagramme de diffraction neutronique de $\text{Yb}_2\text{O}_2\text{S}$ à 300°K et à $1,5^\circ\text{K}$.FIG. 2. Structures magnétiques de $\text{Tb}_2\text{O}_2\text{S}$, $\text{Dy}_2\text{O}_2\text{S}$, $\text{Ho}_2\text{O}_2\text{S}$ et $\text{Yb}_2\text{O}_2\text{S}$.

l'action du champ cristallin en un doublet $|3/2\rangle$, $| -3/2\rangle$ et trois doublets du type $|A\rangle$, $|\bar{A}\rangle$ avec

$$|A\rangle = x|5/2\rangle + y|-1/2\rangle + z|-7/2\rangle$$

sachant que $x^2 + y^2 + z^2 = 1$.

Le moment magnétique étant dirigé selon l'axe a on peut écrire que $\mu_{100} = g_J \mu_B J_{100}$, car J est un bon nombre quantique. L'expérience fournit $\langle \mu_{100} \rangle = 2\mu_B$ c'est-à-dire $\langle J_{100} \rangle = 1,75$ ($g_J = 8/7$). En se référant à un spin fictif $1/2$, seul intervient dans ce cas g_{\perp} . Il est donc exclus que le niveau fondamental soit le doublet $|3/2\rangle$, $| -3/2\rangle$ car pour celui-ci $g_{\perp} = 0$. Pour le doublet $|A\rangle$, $|\bar{A}\rangle$ l'état $|A\rangle$ représente un état dans lequel le spin est orienté selon l'axe Oz et l'état $|\bar{A}\rangle$ un état où le spin a une direction opposée à l'axe Oz . L'état où le spin est dirigé selon l'axe Ox est donc une combinaison des états $|A\rangle$ et $|\bar{A}\rangle$ c'est-à-dire $1/\sqrt{2}(|A\rangle + |\bar{A}\rangle)$ et $1/\sqrt{2}(|A\rangle - |\bar{A}\rangle)$.

La valeur moyenne du moment magnétique s'écrit alors

$$\begin{aligned} \langle J_{100} \rangle &= 1/2 \langle (|A| + |\bar{A}|) J_x (|A\rangle + |\bar{A}\rangle) \rangle \\ &= \langle A | J_x | \bar{A} \rangle \end{aligned}$$

soit

$$\begin{aligned} |y^2/2| &= 1/2 \langle |A| + |\bar{A}| \rangle \\ &= 1,75 \end{aligned}$$

$$|2y^2 - \sqrt{7}zx| = 1,75 \text{ condition pour que} \\ \langle \mu_{100} \rangle = 2\mu_B.$$

On constate que la valeur du moment magnétique peut varier de zéro à $2,5\mu_B$ environ, mais elle ne peut en aucun cas atteindre la valeur de $4\mu_B$ de l'ion libre. On peut donc rendre compte de cette réduction de moment en satisfaisant à cette équation, c'est-à-dire en prenant une valeur de $y^2 > 0,875$ lorsque zx est positif et en prenant $0,21 < y^2 < 0,875$ lorsque zx est négatif.

Dans ce cas le niveau fondamental de champ cristallin doit être un doublet du type $|A\rangle$, $|\bar{A}\rangle$ avec une composante $| -1/2\rangle$, $| 1/2\rangle$ relativement importante. Cette justification de la réduction du moment magnétique suppose que

l'on n'ait pas un doublet très proche du doublet fondamental. Une étude plus complète du champ cristallin dans le composé Yb_2O_2S permettra d'obtenir les fonctions d'onde de l'ion Yb^{3+} et de préciser ainsi ces résultats.

Tableau 1. Yb_2O_2S Intensités magnétiques

h	k	l	I_{calc}	I_{obs}
0	0	1	198	200
0	0	3	47	64
1	0	1	381	375
0	0	5	250	
			954	971
1	0	3	704	
			281	287
1	1	3	108	114
			679	
1	1	5	1071	1022
			392	
2	0	3		

REFERENCES

1. BALLESTRACCI R., BERTAUT E.F. et QUEZEL G., *Physic Chem. Solids* 29, 1001 (1968).
2. QUEZEL G., BALLESTRACCI R. et ROSSAT-MIGNOD J., à paraître.
3. BLUME M., FREEMAN A.J. et WATSON R.E., *J. Chem. Phys.* 37, 1245 (1962).
4. STATZ H., *Phys. Rev.* 115, 1568 (1959).

The magnetic cell of ytterbium oxisulfide is the double of the chemical cell ($k = [0, 0, 1/2]$) with the magnetic moments parallel to the a axis. We found an important reduction of magnetic moment upon the Yb^{3+} ion which may be interpreted by the influence of the crystal field.