

CBPF-MO-001/85

ORDRE LOCAL ET MAGNETISME DE SOLIDES AMORPHES ET  
DESORDONNES. ETUDES PAR EFFET MÖSSBAUER, EXAFS,  
SUSCEPTIBILITES STATIQUE ET DYNAMIQUE

par

J.M. Friedt\*

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/CNPq  
Rua Dr. Xavier Sigaud, 150  
22290 - Rio de Janeiro, RJ - Brasil

\*Permanent address: Centre de Recherches Nucleaires 67037 Strasbourg Cedex

## PLAN

I	Ordre local dans des solides amorphes: distributions radiales obtenues par EXAFS	p. 1
II	Ordre local évalué par l'intermédiaire des propriétés de symétrie locale: tenseur gradient de champ électrique dans les alliages amorphes $\text{Eu}_{80}\text{X}_{20}$ et $\text{Gd}_{80}\text{X}_{20}$	p. 3
III	Tenseur gradient de champ électrique au site du fer dans les alliages amorphes FeZr: méthode de perturbation magnétique des spectres paramagnétiques	p. 5
IV	Effets de champ cristallin dans les alliages amorphes à base de dysprosium	p. 7
V	Transition verre de spin dans les solutions solides aléatoires (Eu,Gd)S et (Eu,La)S	p. 10
	Légendes des figures	p. 12
	Références	p. 29

## I ORDRE LOCAL DANS DES SOLIDES AMORPHES : DISTRIBUTIONS RADIALES OBTENUES PAR EXAFS

En l'absence de périodicité de translation, la structure d'un solide amorphe est décrite par une infinité de coordonnées. La résolution stricte de la structure est donc impossible par définition ; elle doit être décrite par approximations successives, par l'intermédiaire des fonctions de corrélation à 2 (fonctions de distribution radiale) 3 (fonctions de distributions angulaires), ... N atomes.

Les distributions radiales sont évaluées classiquement à l'aide des techniques de diffraction. Les possibilités de la méthode alternative de l'EXAFS sont établies pour une série d'alliages amorphes de terres rares à la composition eutectique  $TR_{80}X_{20}$  (X = Al, Mg, Zn, Cd, Ga, Au ; préparation par trempe sur rouleau) ainsi que, de façon préliminaire, pour des alliages  $FeZr_x$  ( $x \approx 3$ ).

Il s'avère possible de déduire avec une précision raisonnable les 3 premiers moments de la distribution radiale, à la fois autour de l'élément majoritaire (TR) et de l'élément X (Fig. 1) [1].

Le rapport  $\sigma_2/\sigma_3$  paraît représenter une bonne évaluation du degré de désordre de l'alliage amorphe (une valeur décroissante du rapport  $\sigma_2/\sigma_3$  correspond intuitivement à un degré d'ordre local croissant).

Les résultats essentiels [1] concernent l'observation d'une forte dépendance des paramètres  $\sigma_2$  et  $\sigma_3$  en fonction de la nature de l'élément formateur du verre X. Ils sont par contre indépendants de l'élément TR. Ces paramètres sont très voisins aux sites TR et X. L'ordre local ne présente pas de similitude entre les alliages amorphes et les phases cristallisées de composition voisine. Le degré d'ordre local, évalué

à partir du rapport  $\sigma_3/\sigma_2$ , apparaît corrélé à l'interaction électronique entre les éléments TR et X : il est élevé en présence d'interactions fortes entre ces éléments (p. ex. X = Au) ; dans ce cas, la structure locale s'apparente au modèle stéréochimique des solides amorphes) ; par contre, il tend vers un empilement aléatoire de sphères dures lorsque les interactions entre les éléments sont faibles (p. ex. X = Al, Mg) (Fig. 2).

Dans le cas des alliages cristallins  $\text{FeZr}_2$  et  $\text{FeZr}_3$ , les résultats d'EXAFS au seuil du fer sont compatibles avec les structures proposées pour ces 2 phases : pour la phase tétragonale de  $\text{FeZr}_2$ , les résultats d'EXAFS sont bien représentés par un environnement des atomes Fe consistant de 6,6 Zr à 2,70 Å et 1,8 Fe à 2,79 Å (d'après les RX : 8 Zr à 2,75 Å et 2 Fe à 2,80 Å). Pour la phase orthorhombique de  $\text{FeZr}_3$ , l'EXAFS est décrite par une coordination de 6 Zr à 2,60 Å, 1,8 Zr à 2,70 Å, 2 Fe à 3,33 Å et 2,5 Zr à 4,45 Å, en accord avec l'environnement de prismes trigonaux couronnés des atomes Fe (Fig. 3).

En dépit d'une ambiguïté dans l'analyse des résultats d'EXAFS isolés, les données des phases amorphes  $\text{FeZr}_2$  et  $\text{FeZr}_3$  sont interprétées en terme de distributions radiales et de nombres de coordination identiques dans ces deux phases.

II ORDRE LOCAL EVALUE PAR L'INTERMEDIAIRE DES PROPRIETES DE SYMETRIE LOCALE : TENSEUR GRADIENT DE CHAMP ELECTRIQUE DANS LES ALLIAGES AMORPHES  $\text{Eu}_{80}\text{X}_{20}$  ET  $\text{Gd}_{80}\text{X}_{20}$

L'étude directe des corrélations atomiques angulaires est extrêmement délicate (microscopie à émission de champ ou XANES). Une méthode indirecte exploite les propriétés de symétrie locale, qui peuvent être atteintes par l'intermédiaire de mesures de gradient de champ électrique ou des paramètres de champ cristallin. Le développement en harmoniques sphériques du potentiel  $\psi$  au site d'un noyau s'écrit :

$$\psi = \sum_n B_n^m O_n^m \quad (\text{Eq. 1})$$

Les termes d'ordre 2 correspondent aux composantes du tenseur gradient de champ électrique (GCE :  $eq_z^{\text{lat}}$ ,  $\eta^{\text{lat}}$ ), qui peuvent être mesurées par interactions hyperfines.

Un modèle des solides amorphes basé sur un empilement aléatoire de sphères dures prévoit une distribution de  $eq_z$  présentant des probabilités approximativement égales des 2 signes avec une largeur d'environ 30 % de  $\langle eq_z \rangle$  ; ainsi qu'une distribution large de  $\eta$  avec  $\langle \eta \rangle \approx 0,65$  [2] (Fig. 4). Le modèle stéréochimique des amorphes (empilement aléatoire d'unités constantes de coordination) prévoit une distribution gaussienne de  $eq_z^{\text{lat}}$  et de  $\eta^{\text{lat}}$  autour d'une (ou plusieurs) valeur bien déterminée (Fig. 4).

L'information requise (distribution de  $eq_z^{\text{lat}}$  en signe et de  $\eta^{\text{lat}}$ ) est généralement directement accessible à la spectroscopie Mössbauer. Par exemple, les distributions de  $\eta^{\text{lat}}$  et  $eq_z^{\text{lat}}$  évaluées par spectroscopie Mössbauer de  $^{151}\text{Eu}$  dans les phases amorphes paramagnétiques  $\text{Eu}_{80}\text{X}_{20}$

révèlent une distribution large en signe de  $eq_z^{lat}$  et en module pour  $\eta^{lat}$  dans le cas de X = Al ou Mg (c. à d. le modèle d'empilement de sphères dures) alors que ces distributions sont beaucoup plus étroites pour X = Au ou Zn (Fig. 4).

La conclusion d'une décroissance du degré d'ordre local de X = Au à X = Al ou Mg est en parfait accord avec les résultats d'EXAFS (Fig. 2) [1].

### III TENSEUR GRADIENT DE CHAMP ELECTRIQUE AU SITE DU FER DANS LES ALLIAGES AMORPHES FeZr : METHODE DE PERTURBATION MAGNETIQUE DES SPECTRES PARAMAGNETIQUES

Malheureusement, l'information nécessaire échappe au cas particulièrement important de la résonance du  $^{57}\text{Fe}$  : du fait des spins  $3/2 - 1/2$  impliqués dans la transition, les spectres paramagnétiques délivrent uniquement l'éclatement quadrupolaire  $\Delta$  :

$$\Delta = \left| \frac{e^2 q_z Q}{2} \right| (1 + \eta^2/3)^{1/2} \quad (\text{Eq. 2})$$

Dans une série d'alliages amorphes  $\text{FeZr}_x$  ( $x \approx 2$  à  $3$ ), on a testé avec succès les possibilités de la méthode de perturbation magnétique de spectres paramagnétiques pour évaluer les distributions en signe de  $eq_z$  et de  $\eta$  (Fig. 5) [3]. La démonstration de l'existence d'une interaction quadrupolaire positive à la fois dans  $a\text{-FeZr}_3$  et dans  $c\text{-FeZr}_3$  (prouvée de façon redoutante par mesures en champ parallèle et perpendiculaire à l'axe  $\vec{K}$  des gamma) démontre l'existence dans la phase amorphe d'un ordre local bien déterminé, correspondant à une distorsion aléatoire des prismes trigonaux rencontrés dans la phase cristalline  $\text{FeZr}_3$ . L'identité d'ordre local entre les phases amorphe et cristallisée, qui est suggérée de façon équivoque par les résultats paramagnétiques, est démontrée de façon beaucoup plus sensible et précise par les résultats de perturbation magnétique des phases paramagnétiques (Fig. 5).

Dans  $c\text{-FeZr}_2$ , la composante principale du GCE est négative ( $\Delta = -0,83 \text{ mm/s}$ ,  $\eta = 0$ ); le changement de signe par rapport à  $c\text{-FeZr}_3$  correspond aux coordinations différentes des 2 types de structure (Fig. 4). Ceci peut être expliqué à l'aide d'un calcul de charges ponctuelles.

Par contre,  $a\text{-FeZr}_2$  conserve un signe positif :  $\bar{\Delta} = +0,544 \text{ mm/s}$ ,  
 $\sigma_{\Delta} = 0,293$ ,  $\bar{\eta} = 0,66$ , indiquant la présence des mêmes unités de coordination distordues que dans  $a\text{-FeZr}_3$ .

En somme, la combinaison des résultats d'EXAFS et de gradient de champ électrique permet de proposer une coordination prismatique trigonale couronnée pour les phases amorphes  $\text{FeZr}_2$  et  $\text{FeZr}_3$ . Celle-ci correspondrait à des distorsions aléatoires de l'unité structurale de base rencontrée dans la phase cristalline  $\text{FeZr}_3$  [3].

#### IV EFFETS DE CHAMP CRISTALLIN DANS LES ALLIAGES AMORPHES A BASE DE DYSPROSIUM

Une analyse des effets de champ cristallin est en principe d'intérêt considérable pour évaluer les degrés de symétrie locale d'ordre supérieur à deux (Eq. 1).

Traditionnellement, les données macroscopiques (aimantation, chaleur spécifique, anomalie de Schottky, etc.) sont analysées avec succès à l'aide de l'Hamiltonien d'anisotropie aléatoire [4] :

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_e &= \mathcal{H}_{\text{CEF}} + \mathcal{H}_{\text{exch}} = -D J_z^2 - g_J \mu_B \vec{J} \cdot \vec{H}_Z \\ &= B_2^0 O_2^0 - g_J \mu_B \vec{J} \cdot \vec{H}_Z \end{aligned} \quad (\text{Eq. 3})$$

Par hypothèse, et en accord avec les prédictions de modélisation de solides amorphes, D est positif (= cas d'un axe local facile) et les axes de champ cristallin et d'échange (z et Z) sont orientés de façon aléatoire. L'Eq. 3 permet de bien rendre compte de toute une série de propriétés caractéristiques des solides amorphes en présence d'anisotropie ionique, par ex. l'absence de saturation de l'aimantation jusqu'à un champ très élevé ou la faible aimantation spontanée (Fig. 6). Cependant, son application généralisée paraît incohérente, puisqu'elle néglige en particulier le changement de signe de l'élément de matrice réduit  $\alpha_J$  au sein de la série des éléments de terres rares alors qu'on attend un signe constant du coefficient de champ cristallin dans une série homogène d'alliages TR X. La démonstration la plus directe de la validité du modèle (Eq. 3) est basée sur l'observation d'une distribution

étroite de l'interaction quadrupolaire au site de Dy dans les alliages amorphes DyNi, interprétée en faveur d'une corrélation spatiale stricte entre les contributions 4f et "réseau" au GCE (Fig. 7) [4].

Nous avons entrepris des mesures soigneuses de la résonance de  $^{161}\text{Dy}$  dans la série d'alliages amorphes  $\text{Dy}_{80}\text{X}_{20}$  (X = Al, Ga, Au) (Fig. 8), où les mesures d'EXAFS ont démontré la similitude d'ordre local avec les alliages correspondants de Eu [5]. Ainsi, les paramètres de champ cristallin  $B_2^0$  et  $B_2^2$  sont connues directement à partir des relations de proportionnalité

$$B_2^0 \propto eq_z^{\text{lat}} \quad \text{et} \quad (B_2^2 / B_2^0) \propto \eta^{\text{lat}}$$

L'analyse précise des résultats dans l'état magnétique révèle les faits essentiels suivants (Fig. 9) :

- une distribution du champ hyperfin décrite par une fonction de probabilité fortement asymétrique
- la largeur de  $P(H_{\text{hf}})$  augmente fortement avec la température
- dans les limites d'erreur expérimentale, l'interaction quadrupolaire est nettement réduite par rapport à la valeur de l'ion libre mais sa largeur est du même ordre de grandeur que la précision expérimentale.

Un calcul complet des paramètres hyperfins avec l'Hamiltonien d'anisotropie aléatoire Eq.3 incluant la valeur connue et le (s) signe de  $B_2^0$  et la distribution de  $\eta$  (par diagonalisation numérique de l'Hamiltonien 3), permet de bien représenter les distributions expérimentales [5] (Fig. 9). Il faut remarquer en particulier que le calcul

prévoit une distribution relativement étroite de l'interaction quadrupolaire sur l'ensemble de la distribution de  $B_2^2$  (ou  $\eta$ ) : en effet, dans la situation d'un axe facile,  $eq_z^{lat}$  est colinéaire mais de signe opposé à  $eq^{4f}$  ; par contre, dans la situation d'un plan facile, la projection de  $eq^{lat}$  sur  $eq^{4f}$  (ainsi que l'inclusion de  $\eta^{lat}$ ) résulte en une valeur totale de l'interaction quadrupolaire dépendant relativement peu de  $\eta^{lat}$  ou  $B_2^2$ .

En guise de sommaire, les distributions des paramètres hyperfins (et des paramètres magnétiques macroscopiques) sont décrits de façon physiquement cohérente par le modèle d'anisotropie aléatoire à condition d'inclure les distributions des termes de champ cristallin  $B_2^0$  et  $B_2^2$ . L'inclusion de termes d'ordre plus élevé n'est pas nécessaire, du moins dans le cas des alliages amorphes de Dy considérés.

La présente interprétation est physiquement justifiée puisque les distributions des paramètres de champ cristallin sont mesurées directement. Par contre, l'Hamiltonien réduit au terme D (Eq. 3), qui est utilisé habituellement pour décrire les mesures moyennes, n'a pas de signification physique réelle ; il doit plutôt être considéré comme un Hamiltonien effectif, avec une valeur du paramètre D dénuée de sens physique strict.

## V TRANSITION VERRE DE SPIN DANS LES SOLUTIONS SOLIDES ALEATOIRES (Eu,Gd)S et (Eu,La)S

Les transitions magnétiques et l'état magnétique fondamental des alliages amorphes précédents  $TR_{80}M_{20}$  ( $TR = Eu, Gd, Dy$ ) sont généralement complexes, s'étendant du ferromagnétisme dans  $Eu_{80}Au_{20}$  aux verres de spin ( $Eu_{80}Al_{20}$  ou  $Dy_{80}X_{20}$ ) ou verres de spin réentrants ( $Eu_{80}Mg_{20}$ ) [5, 6].

Afin de préciser la compréhension fondamentale des milieux désordonnés, il apparaît souhaitable d'étudier des systèmes plus simples : les solutions solides entre le composé ferromagnétique EuS et les conducteurs antiferromagnétique GdS ou non-magnétique LaS représentent une situation simple, où la compétition d'échange magnétique peut être variée à volonté par modification de la composition et où l'anisotropie ionique locale est négligeable.

Les diagrammes de phase magnétique de ces 2 systèmes ont été établis par susceptibilité dynamique et présentent les comportements caractéristiques généraux (Fig. 10 [7]). Dans les limites de précision, les températures de transition établies par spectroscopie Mössbauer coïncident avec celles obtenues par susceptibilité a.c.

L'évolution spectrale au-dessus de  $T_c$ ,  $T_f$  peut a priori être assignée à une distribution de champ hyperfin (via par ex. une distribution de  $T_c$  par l'intermédiaire de fluctuations de concentration) ou à des phénomènes de relaxation. Bien que réalisable techniquement, la première description s'avère incohérente sur la base de l'évolution thermique de la distribution de champ hyperfin qui serait ainsi évaluée alors qu'elle disparaît à basse température ( $T/T_c \sim 0,5$ ) (Fig. 11).

Des fits de meilleure qualité sont obtenus dans l'hypothèse d'une relaxation de spin (de symétrie sphérique dans le cas de  $T_f$  et axiale dans le cas de  $T_c$ ), avec un comportement proche de la loi de Brillouin pour  $H_{hf}$  (Fig. 12). Les fréquences de relaxation suivent des lois d'Arrhénius avec  $E_a$  dépendant de façon monotone de  $(T_c, T_f)$  et des facteurs de fréquence de l'ordre de  $6 \times 10^8$  Hz (Fig. 12)

L'ensemble de ces résultats révèle directement le gel de la relaxation de nuages magnétiques qui se formeraient en-dessous de la température de transition  $T_f$  ou  $T_c$ . Le processus de relaxation est activé thermiquement, avec une barrière d'énergie comparable à la température de transition.

Un autre domaine d'intérêt de ces résultats concerne l'élucidation des divers facteurs contribuant au déplacement isomérique (transfert de charge, effet de volume) et au champ hyperfin (contribution locale, différence de champ transféré dans les phases ferro- et verre de spin).

Remerciements : Les résultats présentés résultent d'une collaboration avec une équipe dynamique, curieuse et sympathique ; je remercie particulièrement M. MAURER, J.P. SANCHEZ et F.J. LITTERST pour leurs contributions.

Figure 1 : Analyse des résultats d'EXAFS en fonction des 2ème et 3ème moments de la fonction de distribution radiale.

Figure 2 : Relation entre le rapport  $\sigma_3/\sigma_2$  (représentant le degré d'ordre local) et l'enthalpie de formation des composés cristallins TR-X.

Relation entre le degré d'ordre évalué à partir de la distribution du gradient de champ électrique ( $Q = \langle e^2 q Q \rangle$ . % signe +) et  $\Delta H$ .

Figure 3 : Coordinations locales du fer dans c-FeZr<sub>3</sub> et c-FeZr<sub>2</sub>.

Figure 4 : Haut : Distributions marginales de  $\eta$  prévues par un modèle DRPHS et un modèle stéréochimique.

Bas : Résultats obtenus par spectroscopie de <sup>151</sup>Eu dans la série d'alliages TR<sub>80</sub>X<sub>20</sub>.

Figure 5 : a) Spectres paramagnétiques des phases amorphe, métastable et cristallisée de FeZr<sub>3</sub>

b) Spectre de <sup>57</sup>Fe mesuré en champ externe longitudinal (7 T) dans FeZr<sub>3</sub> cristal (le spectre du métastable est montré pour comparaison).

c) Spectre de <sup>57</sup>Fe en champ longitudinal (7 T) à 250 K.

d) Spectre de <sup>57</sup>Fe en champ perpendiculaire (4,5 T) à 250 K.

e) Spectres de <sup>57</sup>Fe en champ longitudinal (7 T) à 4,2 K pour FeZr<sub>2</sub> cristal et amorphe.

Figure 6 : Calcul de l'aimantation (normalisée à la valeur à saturation) en fonction du rapport du champ appliqué au champ d'échange pour différents degrés d'anisotropie dans le modèle  $\mathcal{H}_e$  (Eq. 3) (d'après [4]). Exemple de résultats expérimentaux dans les alliages Dy<sub>80</sub>X<sub>20</sub> (bas). Calcul de l'aimantation spontanée normalisée en fonction du rapport anisotropie / échange :  $\alpha = D/zJ$  (Figure du milieu, [4]).

Figure 7 : Représentation schématique des axes principaux des différentes interactions électronique et hyperfine considérées.

Figure 8 : Spectres Mössbauer de  $^{161}\text{Dy}$  dans les alliages amorphes  $\text{Dy}_{80}\text{X}_{20}$ .

Figure 9 : Mesure et interprétation des distributions de paramètres hyperfins dans les alliages  $\text{Dy}_{80}\text{X}_{20}$ .

Figure 10 : Diagrammes de phase magnétique des solutions solides (Eu,Gd)S et Eu,La)S établis par susceptibilité dynamique.

Figure 11 : Différents types d'analyse au voisinage des transitions magnétiques dans (Eu,La)S [7 b].

Figure 12 : Variations thermiques de la fréquence de relaxation et du champ hyperfin mesurées pour (Eu,La)S [7 b].

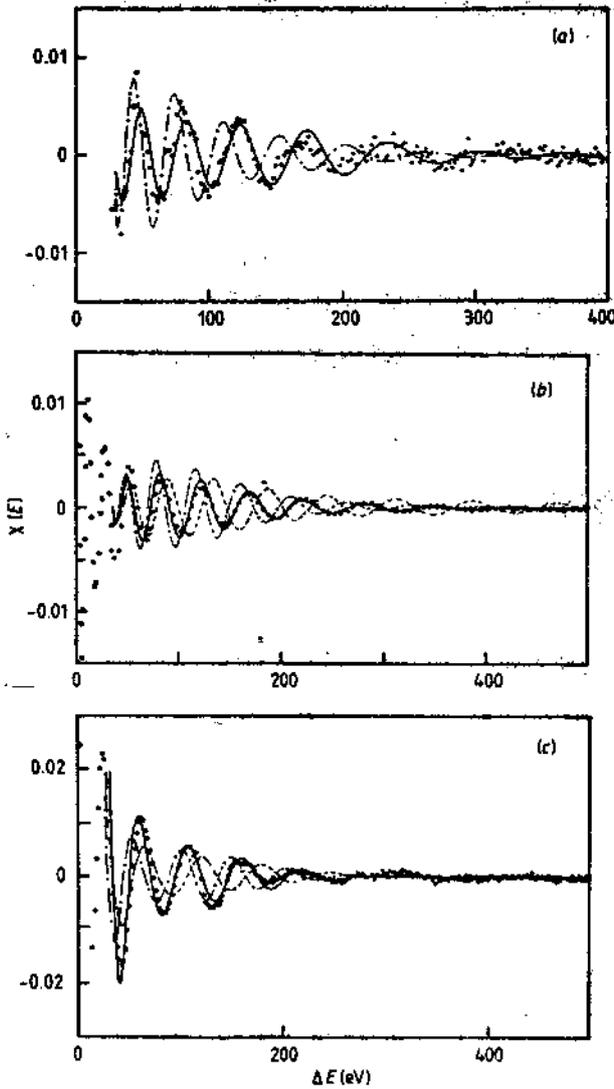


Figure 4. Dependence of the EXAFS modulations at the RE (Dy or Tb)  $L_{III}$  edge at 200 K as a function of the third ( $\sigma_3^U$ ) moment of the partial RDF centred at rare-earth atoms. The full curves represent the best fit to the experimental points, as given in table 2. The broken and chain curves correspond to simulations, keeping the parameters  $N^U$  and  $R^U$  constrained to those given in table 2 but changing the second and third moments of the RDF: (a) in  $Tb_{80}Au_{20}$ : the chain curve corresponds to  $\sigma_2^{TbTb} = \sigma_2^{TbAu} = 0.16 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_3^{TbTb} = \sigma_3^{TbAu} = 0$ ; (b) in  $Dy_{80}Ga_{20}$ : experimental points result from a partial Fourier filtration in the distance space in order to isolate the Dy contribution. The broken curve corresponds to  $\sigma_2^{DyDy} = 0.16 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_3^{DyDy} = 0$ ; The chain curve corresponds to  $\sigma_2^{DyDy} = 0.12 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_3^{DyDy} = 0.25 \text{ \AA}$  ( $\sigma_3^{DyDy}$  as in  $Dy_{80}Au_{20}$ ); (c) in  $Dy_{65}Al_{35}$ : the broken curve corresponds to  $\sigma_2^{DyDy} = \sigma_2^{DyAl} = 0.16 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_3^{DyDy} = \sigma_3^{DyAl} = 0$ ; the chain curve corresponds to  $\sigma_2^{DyDy} = \sigma_2^{DyAl} = 0.12 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_3^{DyDy} = \sigma_3^{DyAl} = 0.25 \text{ \AA}$  as in  $RE_{80}Au_{20}$  systems.

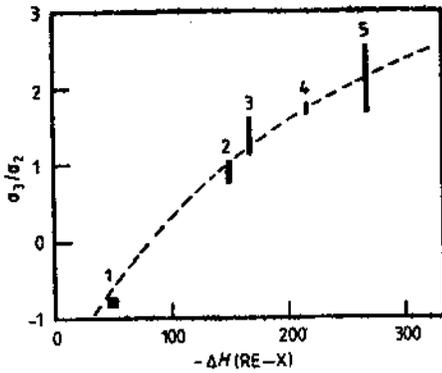


Figure 10. Plot of the ratio  $\sigma_3/\sigma_2$  of the third and second moments of the RDF in  $\text{RE}_{1-x}\text{X}_x$  against the enthalpy of formation  $\Delta H(\text{RE}-\text{X})$  of corresponding crystalline compounds (Miedema *et al* 1977). Vertical error bars correspond to the spread of  $\sigma_3/\sigma_2$  values observed for each X alloy with the various rare-earth elements. (1)  $\text{Eu}_3\text{Mg}_{65}\text{Zn}_{30}$ ; (2)  $\text{RE}_{85}^{\text{II}}\text{Al}_{15}$ ; (3)  $\text{RE}_{80}^{\text{II}}\text{Ga}_{20}$ ; (4)  $\text{Eu}_{80}\text{Au}_{20}$ ; (5)  $\text{RE}_{80}^{\text{III}}\text{Au}_{20}$ .

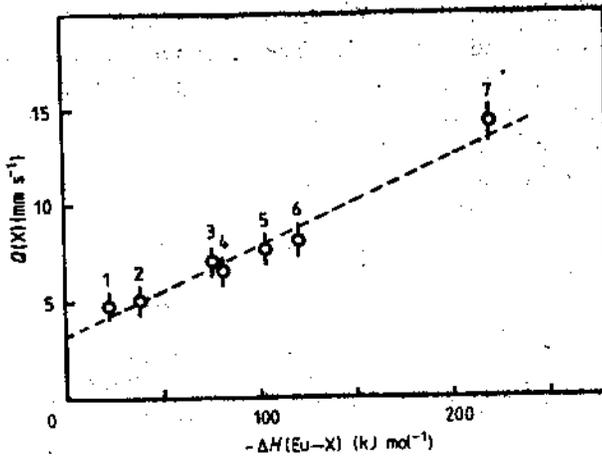
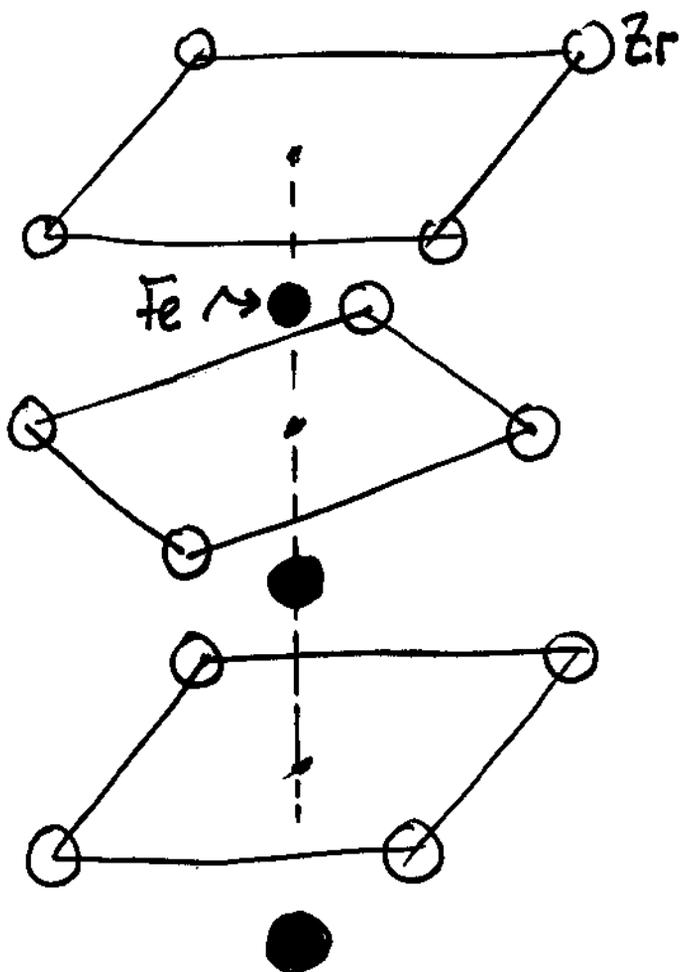
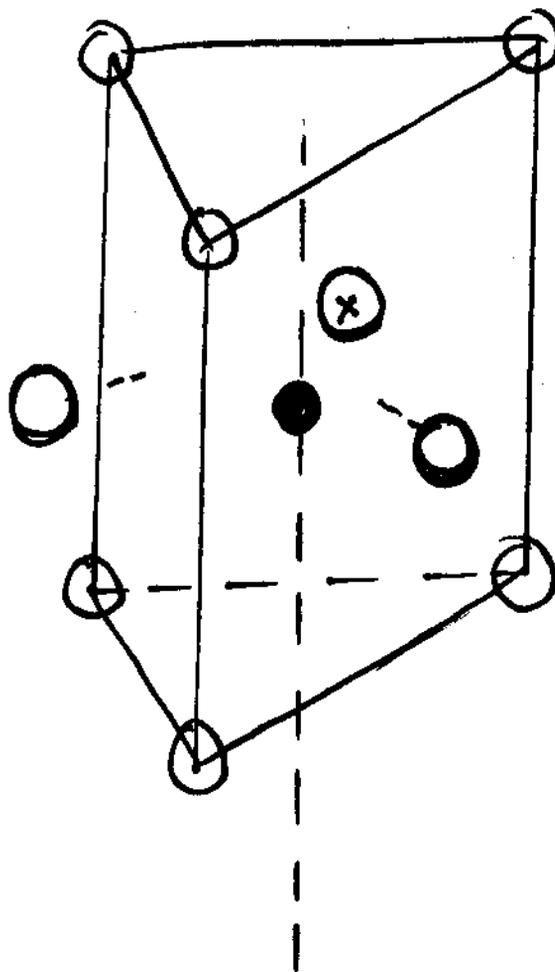


Figure 9. Plot of  $Q(X)$  against the enthalpy of formation  $\Delta H(\text{Eu}^{2+}-\text{X})$  of the compound  $\text{Eu}_{1-x}\text{X}_x$ : (1)  $\text{Eu}_{70}\text{Mg}_{30}$ ; (2)  $\text{Eu}_3\text{Mg}_{65}\text{Zn}_{30}$ ; (3)  $\text{Eu}_{70}\text{Al}_{30}$ ; (4)  $\text{Eu}_{70}\text{Zn}_{30}$ ; (5)  $\text{Eu}_{80}\text{Ga}_{20}$ ; (6)  $\text{Eu}_{75}\text{Cd}_{25}$ ; (7)  $\text{Eu}_{80}\text{Au}_{20}$ . The broken lines is to guide the eye.

c- Fe Zr<sub>2</sub>

$$\Delta = -0.83 \text{ mm/s.}$$

(Antiprisme carré)

c- Fe Zr<sub>3</sub>

$$\Delta = +0.92 \text{ mm/s.}$$

(Prisme trigonal occupé  
sur les faces rectangulaires)

Figure 3

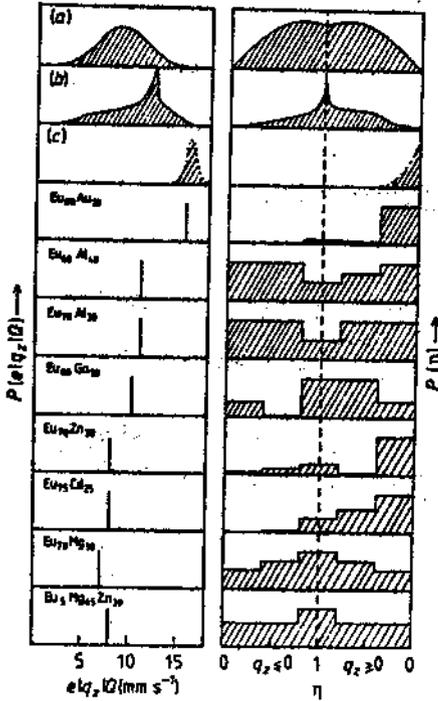


Figure 2. Summary of the marginal distribution functions of  $e|q_2|Q$  and  $\eta$  as fitted in the  $\text{Eu}_{1-x}\text{X}_x$  amorphous alloys. Calculations for various amorphous structure models are represented: (a) a monatomic DRPHS; (b) three atoms at random in the first sphere of coordination; (c) threefold symmetry corresponding to three atoms at the corners of an equilateral triangle. The broken curve simulates small, random distortions of this triangular coordination. The  $e|q_2|Q$  scales are arbitrary for (a), (b) and (c).

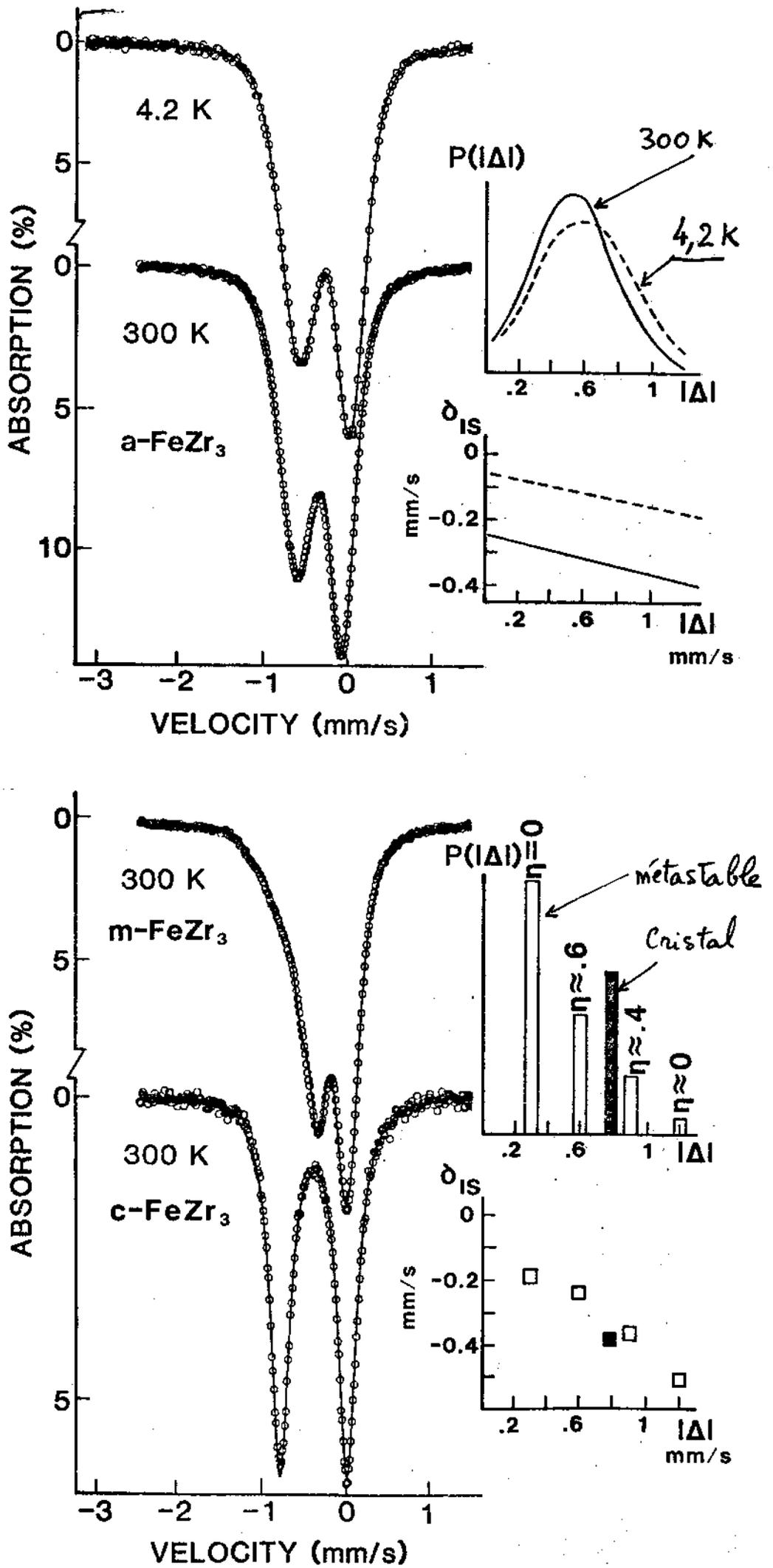


Figure 5a

-19.-

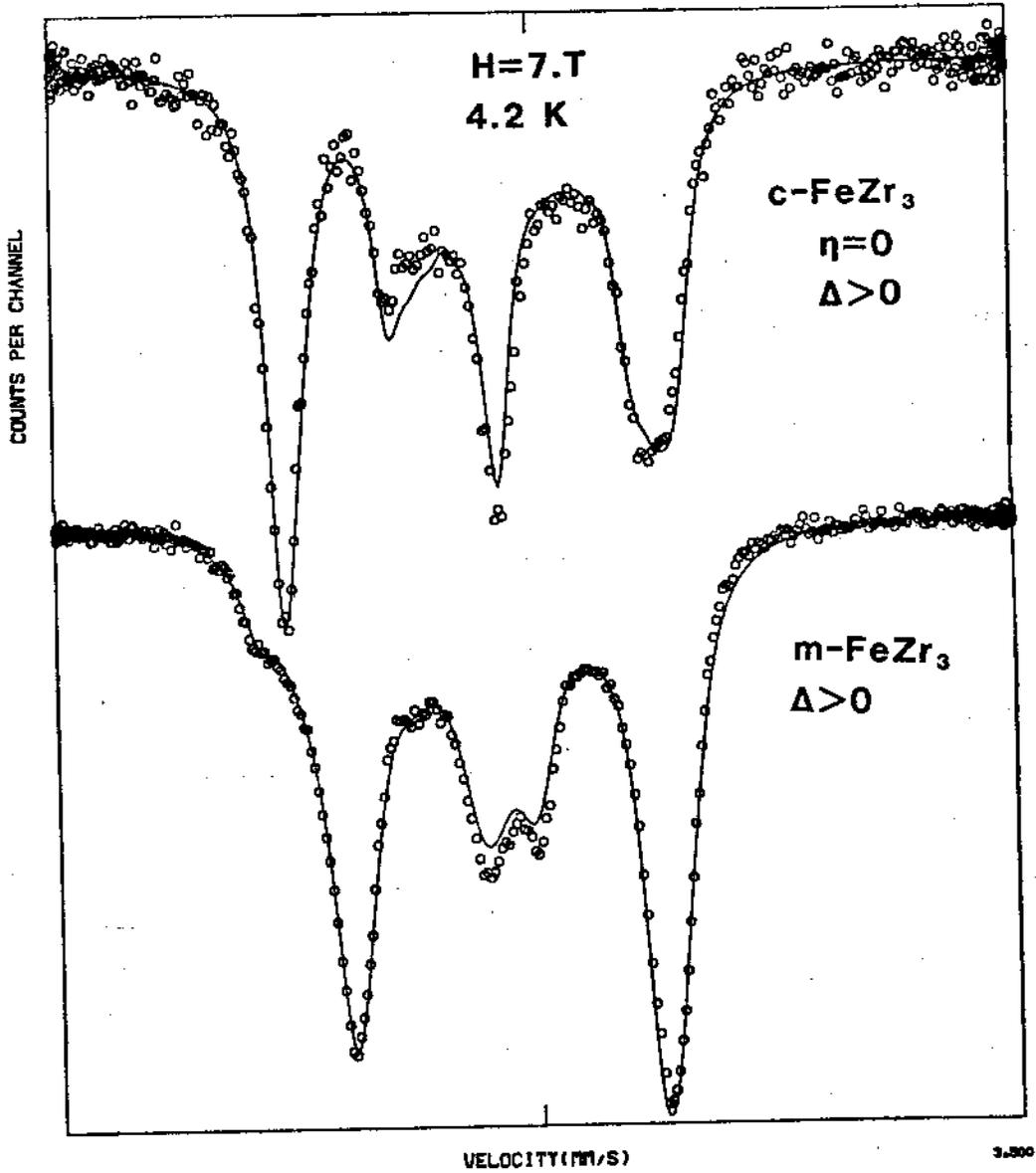
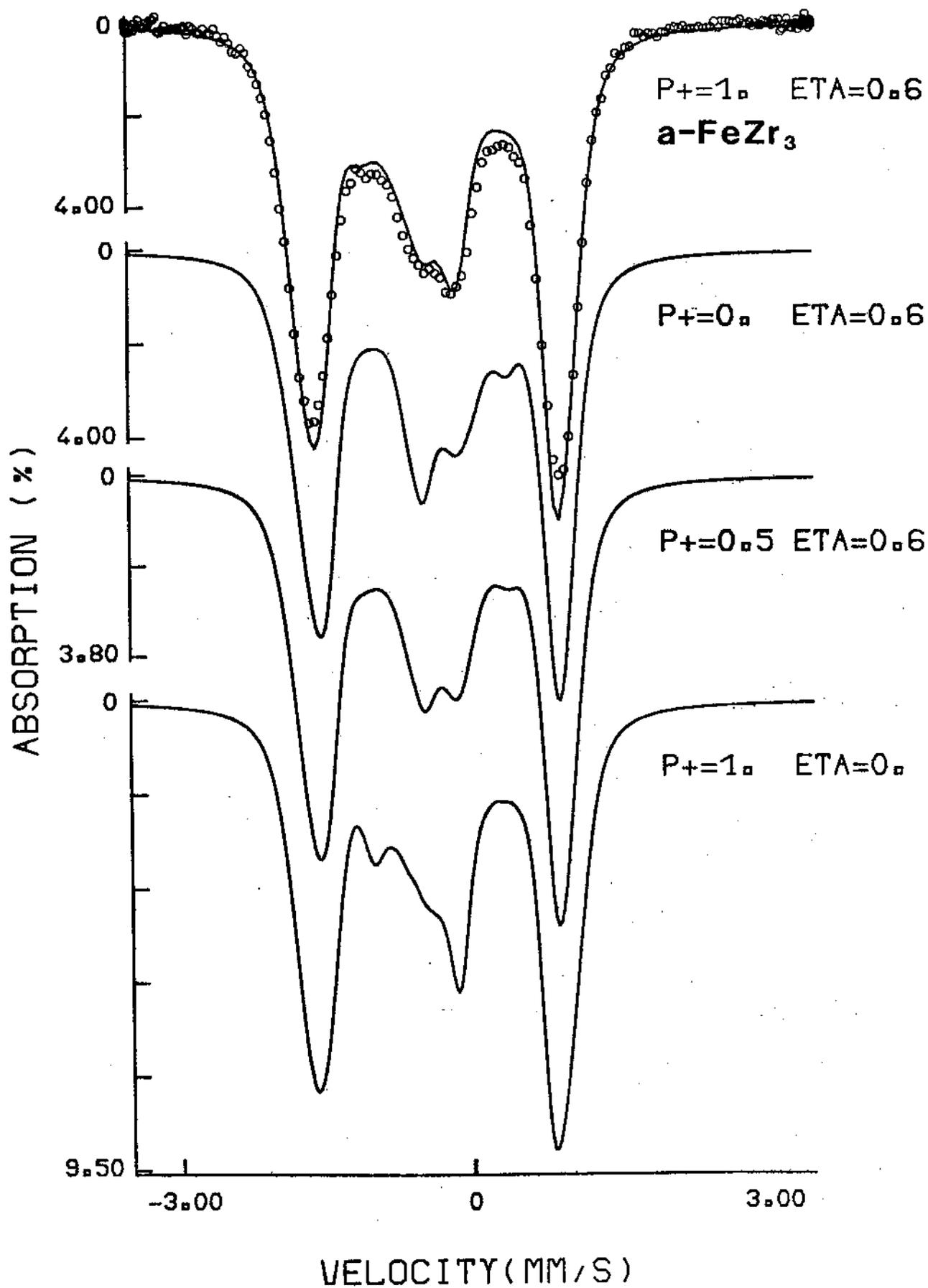


Figure 5b

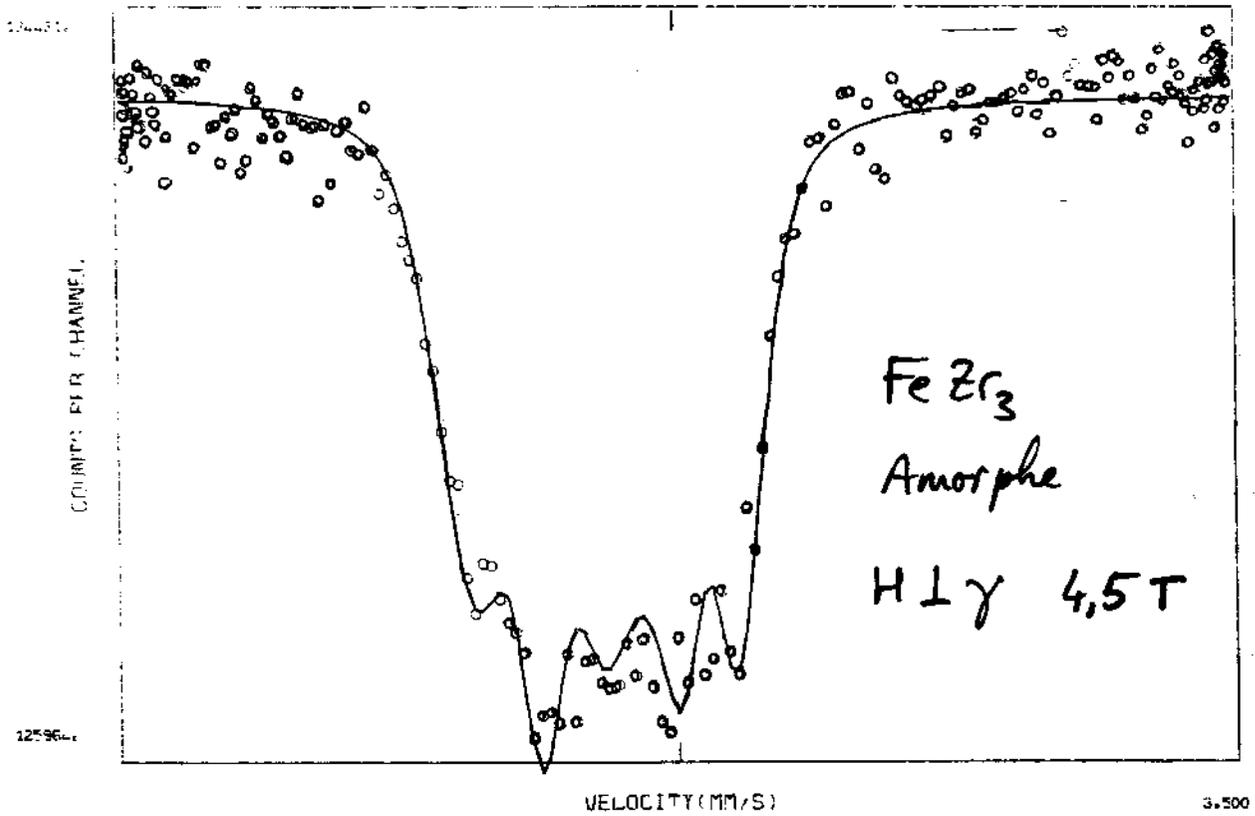
H=7.T



$\text{FeZr}_3$  Amorphe  $H \parallel \gamma$  7T

Figure 5c

-21-



120033 FE2R3 AMORF /840403/ 250K H PERP 45KOE THOR DR  
 CASE ID: PEQ+ = .95 W=.24 PARAM OF GAUSS G-1S DISTRIB MEASURED AT 300K

Figure 5d

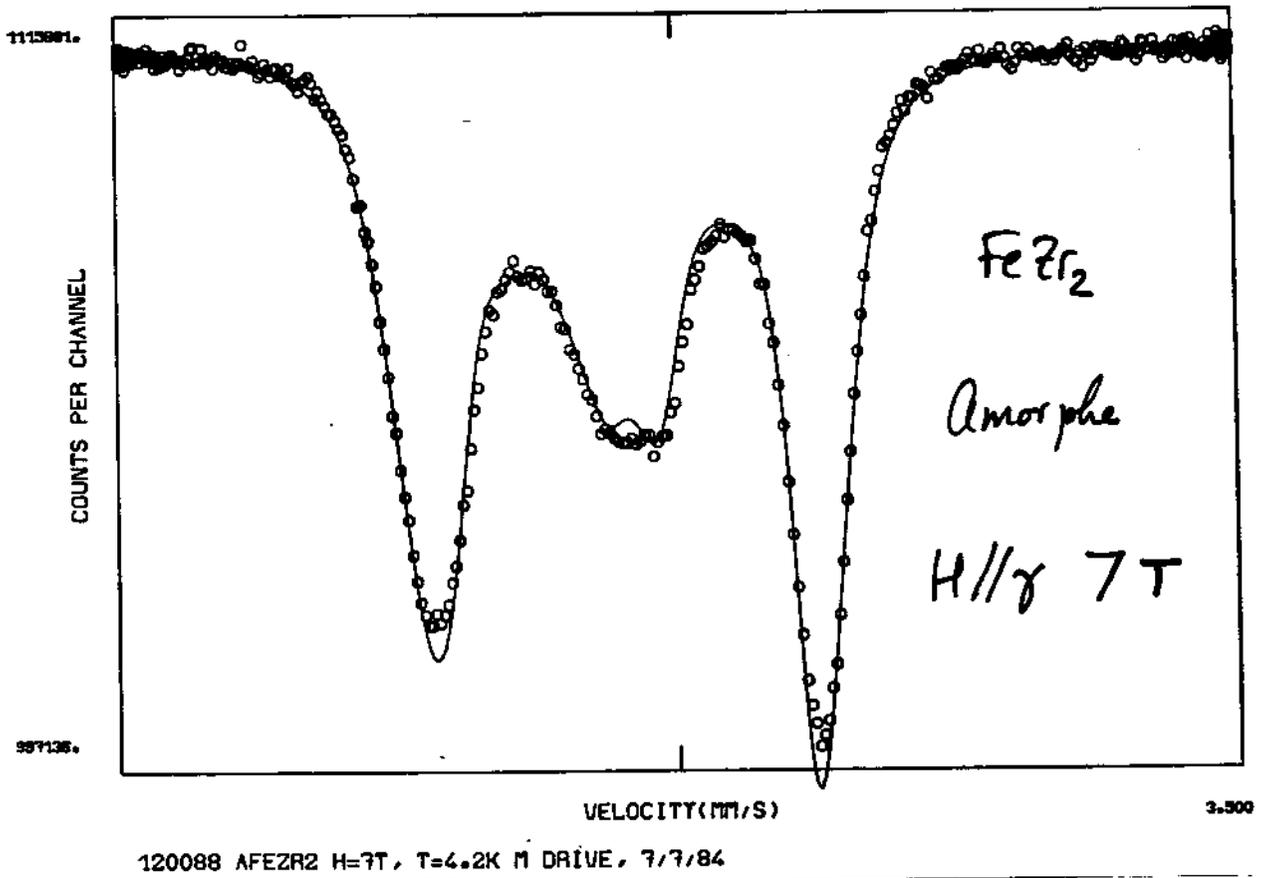
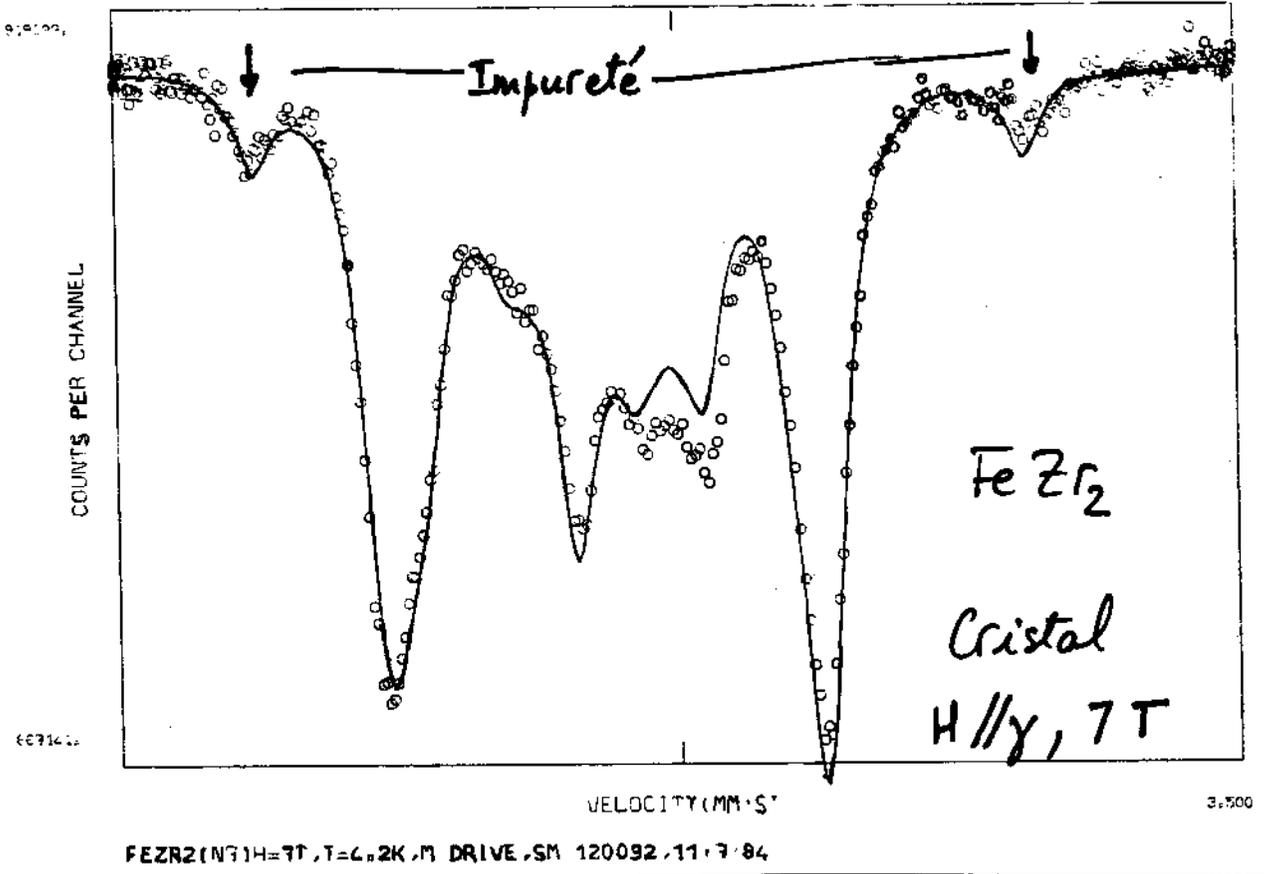


Figure 5e

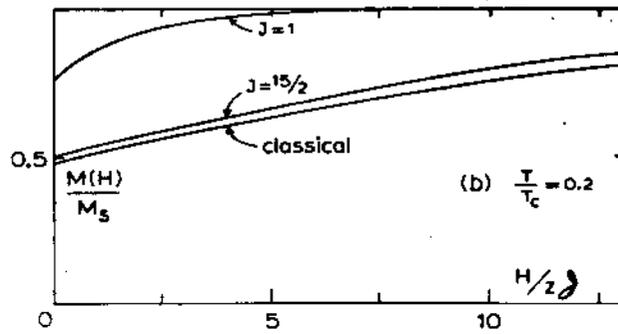


Fig. 43. (a) Calculated spontaneous magnetization as a function of temperature for classical ( $\times$ ) and quantum model ( $J = 1, 15/2$ ). (b) Field dependence of magnetization at  $T/T_c = 0.2$ .

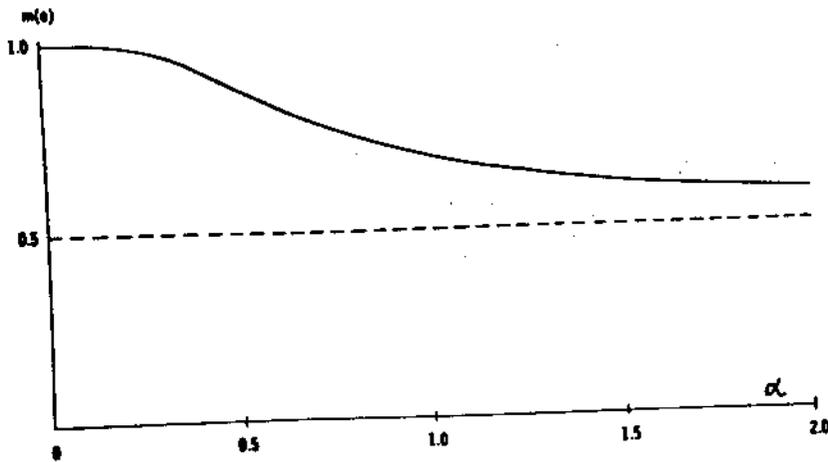


Fig. 42. Reduced remanence as a function of  $\alpha$  [90].

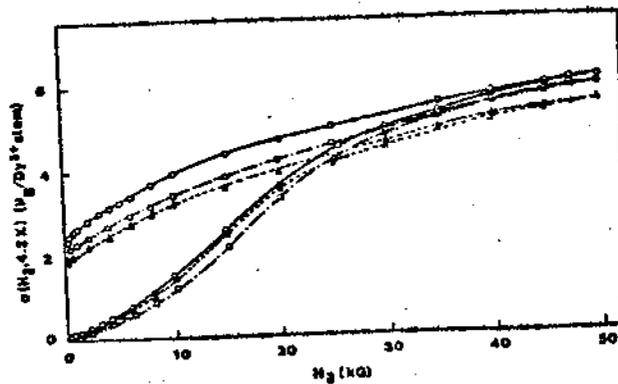


FIG. 2. Magnetization  $\sigma(H_a, 4.2 \text{ K})$  at 4.2 K versus the applied field  $H_a$ .  $\circ$ ,  $\text{Dy}_{80}\text{Au}_{20}$ ;  $\square$ ,  $\text{Dy}_{80}\text{Ga}_{20}$ ;  $\triangle$ ,  $\text{Dy}_{65}\text{Al}_{35}$ .

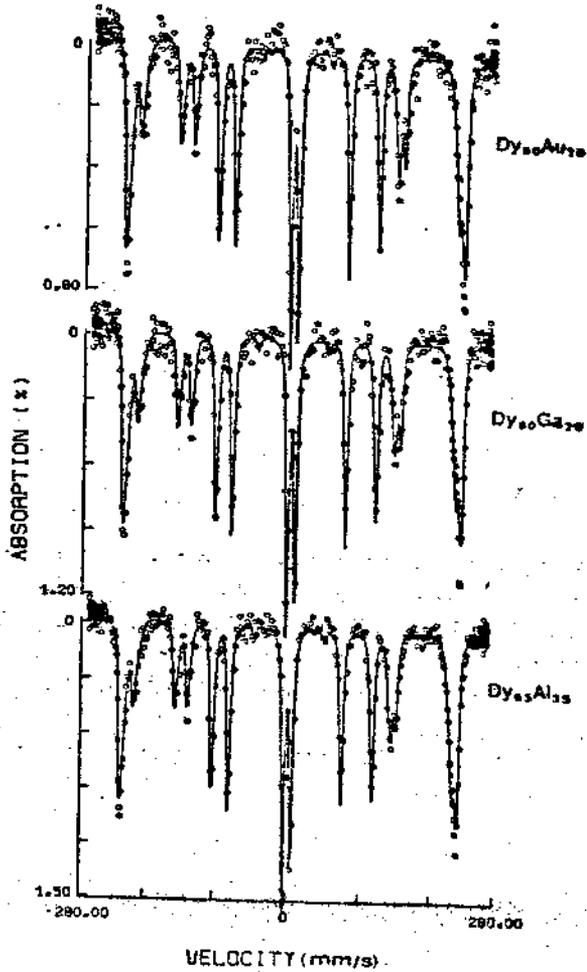


FIG. 4.  $^{161}\text{Dy}$  Mössbauer spectra at  $T=4.2$  K in amorphous Dy-based alloys. The heavy lines represent best fits as discussed in the text

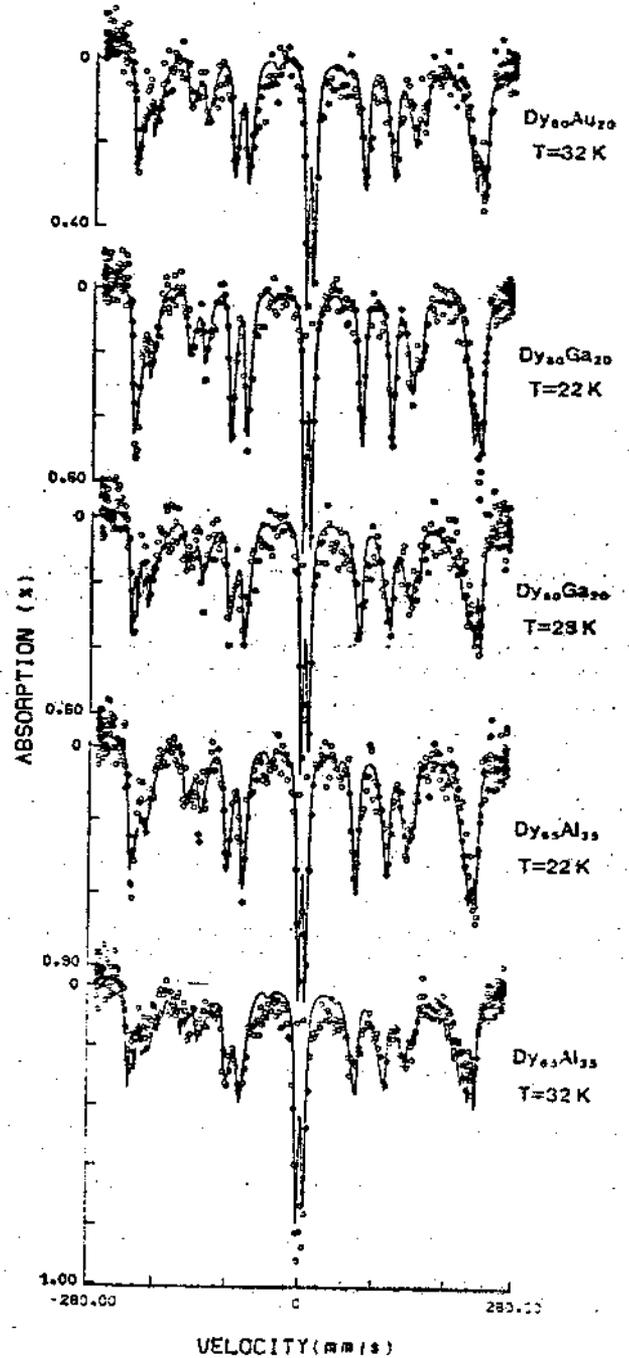
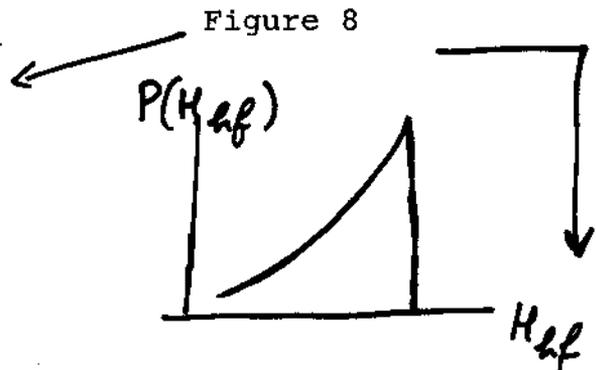
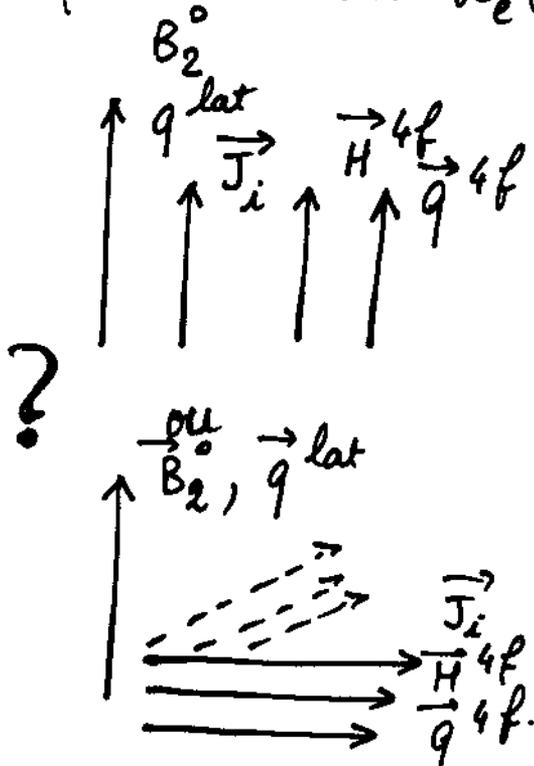


FIG. 5.  $^{161}\text{Dy}$  Mössbauer spectra as a function of temperature below  $T_f$  in amorphous Dy alloys. The heavy lines represent best fits including both a skewed hyperfine field distribution and a correlated quadrupole interaction distribution as discussed in the text.

Figure 7 : Argumentation en faveur du modèle  $\mathcal{H}_e$  (eq. 3)



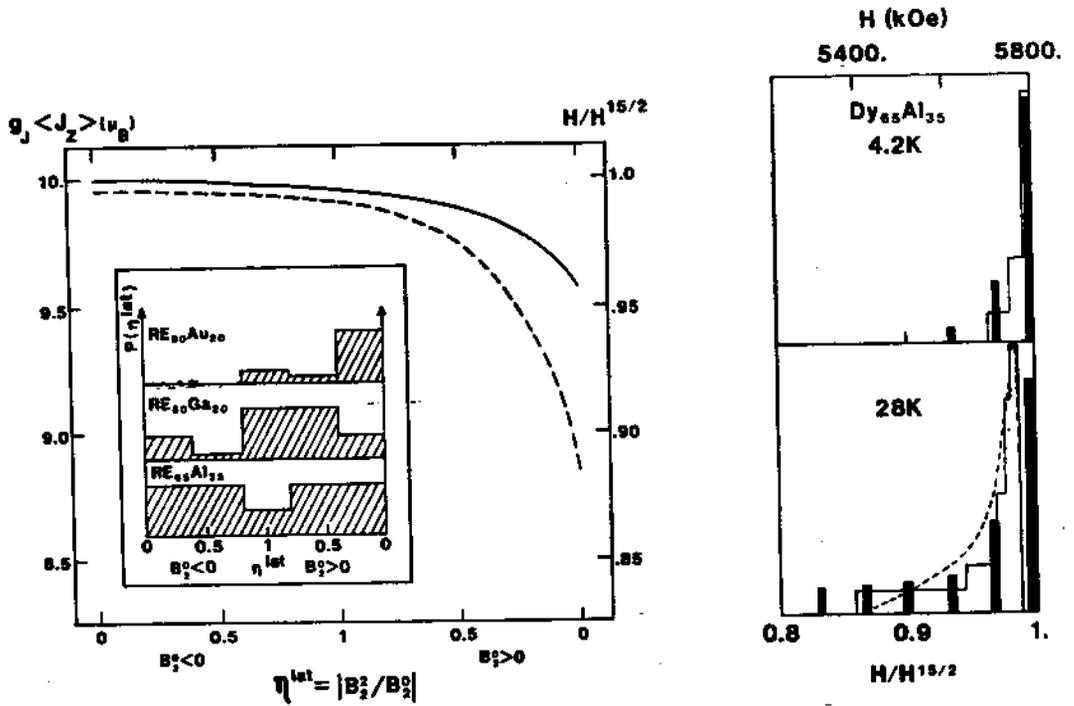
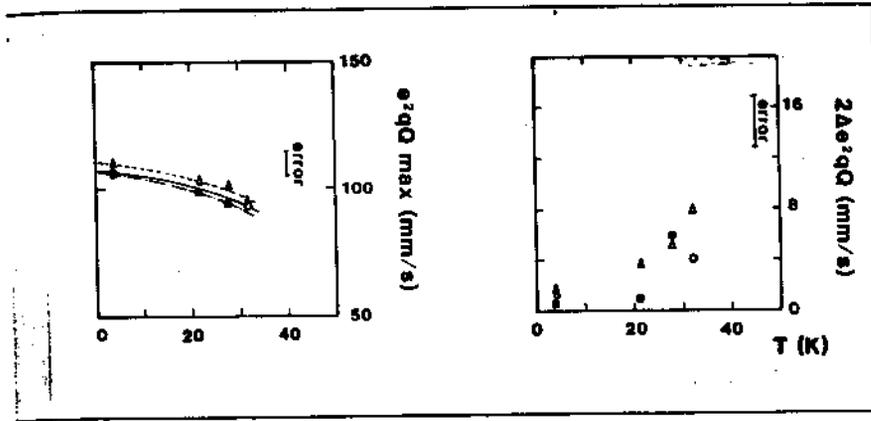
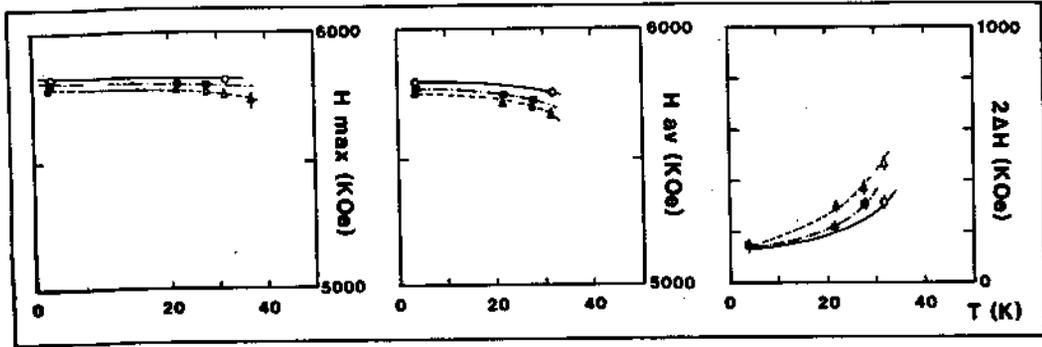


FIG. 7. Calculated Dy magnetic moment ( $g_J \langle J_z \rangle$ ) and reduced hyperfine field ( $H/H^{15/2}$ ) represented as a function of  $\eta^{lat} = |B_2^0/B_2^2|$  for  $B_2^0 = \pm 2.3$  K and  $||H_{mol}|| = 160$  kOe. The heavy and dotted lines correspond to temperatures  $T$  of 0 and 28 K, respectively. The marginal distributions of  $\eta^{lat}$  deduced for the several  $R_{1-x}X_x$  alloys from the lattice EFG measurements in the corresponding Eu and Gd alloys (Refs. 2 and 9) are represented as histogram plots.

FIG. 9. Calculated (histogram) and measured (dots) distributions for the reduced hyperfine field ( $H/H^{15/2}$ ) at  $T=4.2$  and 32 K in  $Dy_{65}Al_{35}$  and in  $Dy_{30}Au_{20}$ .

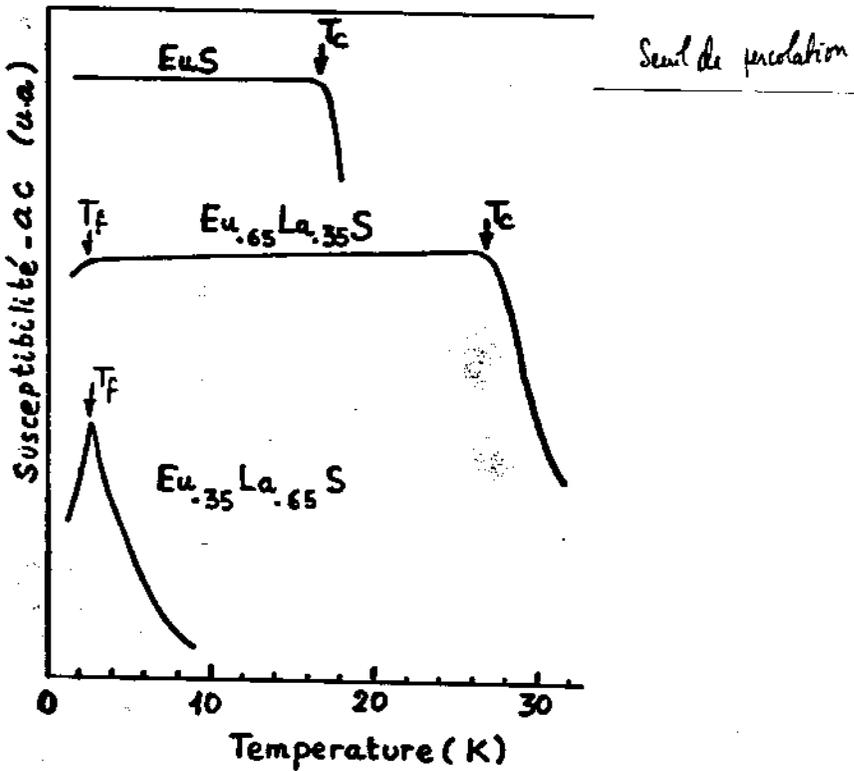
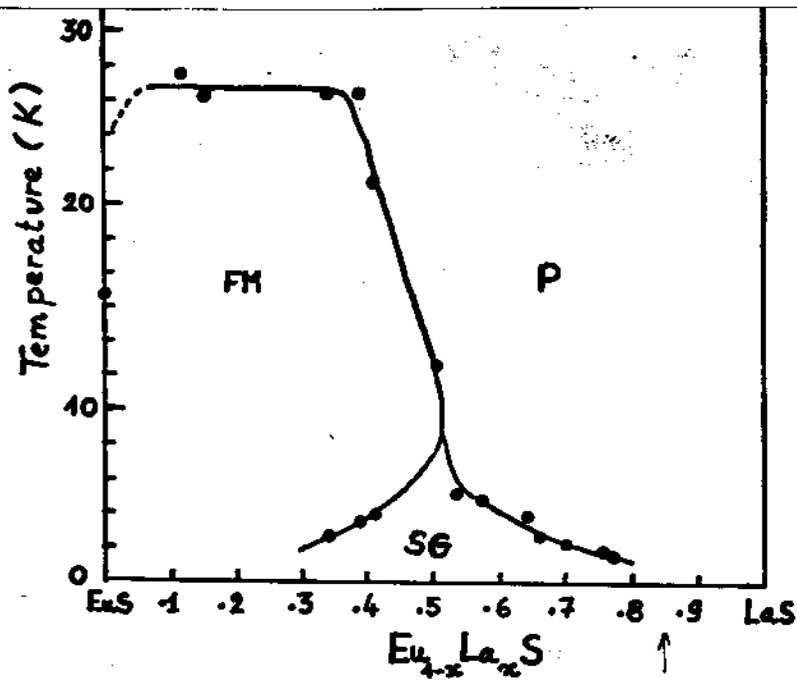
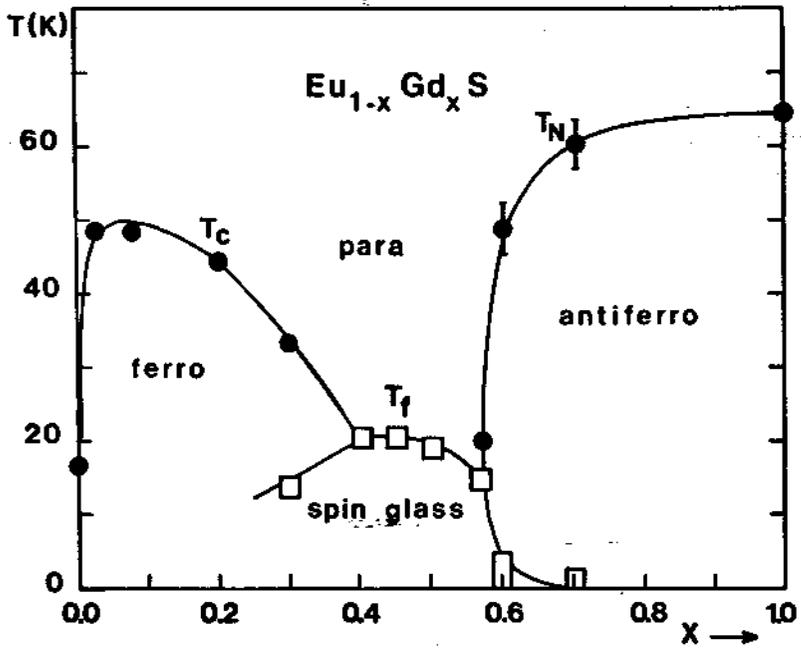
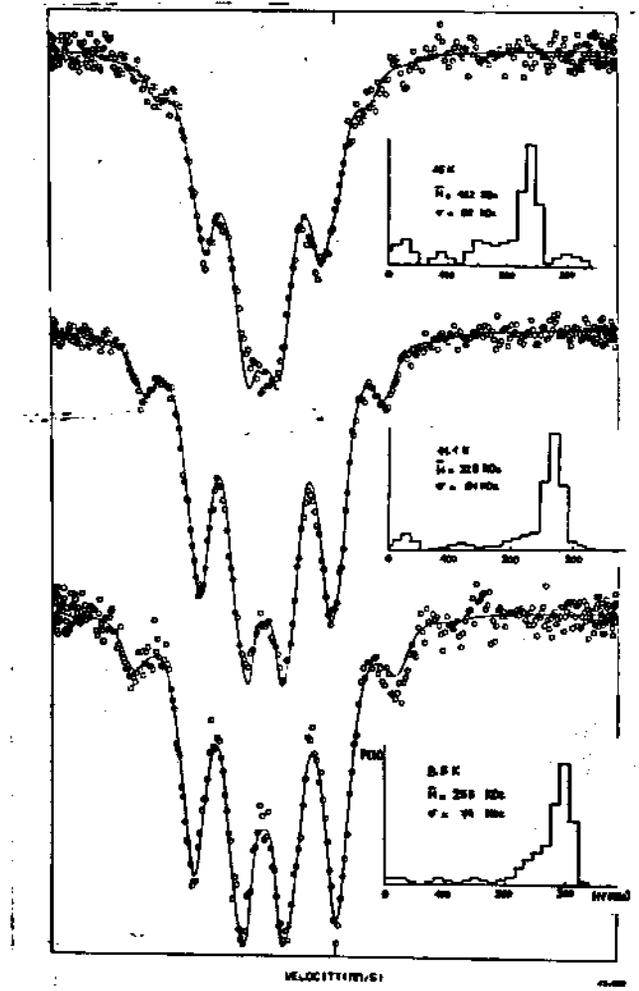


Figure 10

-27-

Analysis with distribution  
of static hfi parameters  
"Unsuccessful" →



Relaxation

Sphérique  
Para → Verre de spin

Uniaxiale  
Para → ferro

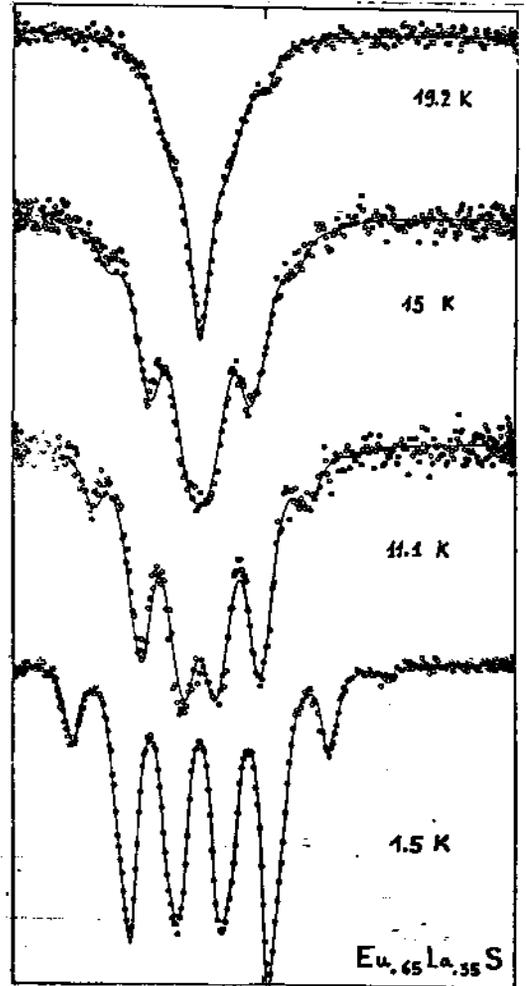
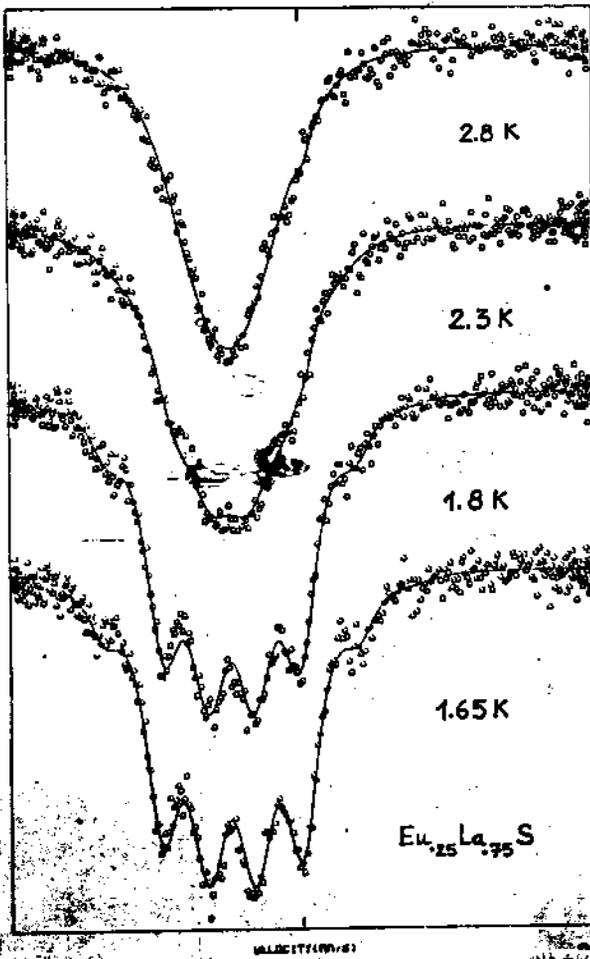


Figure 11

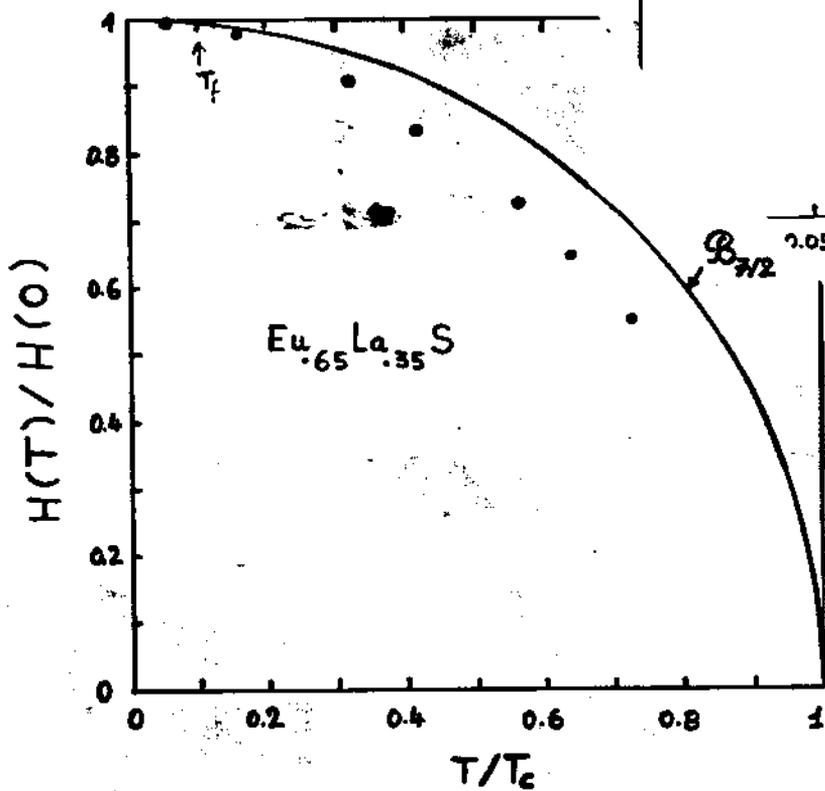
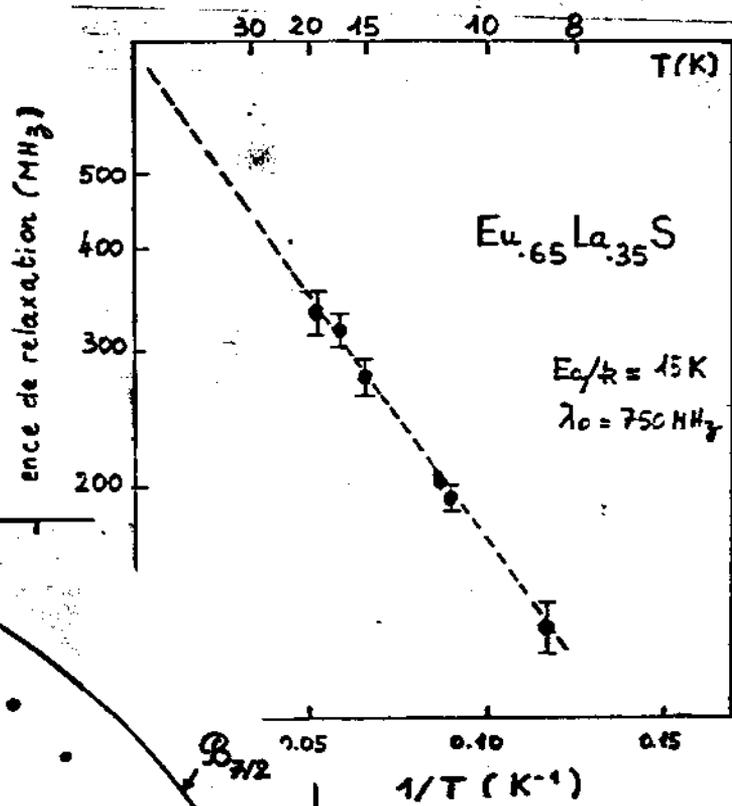
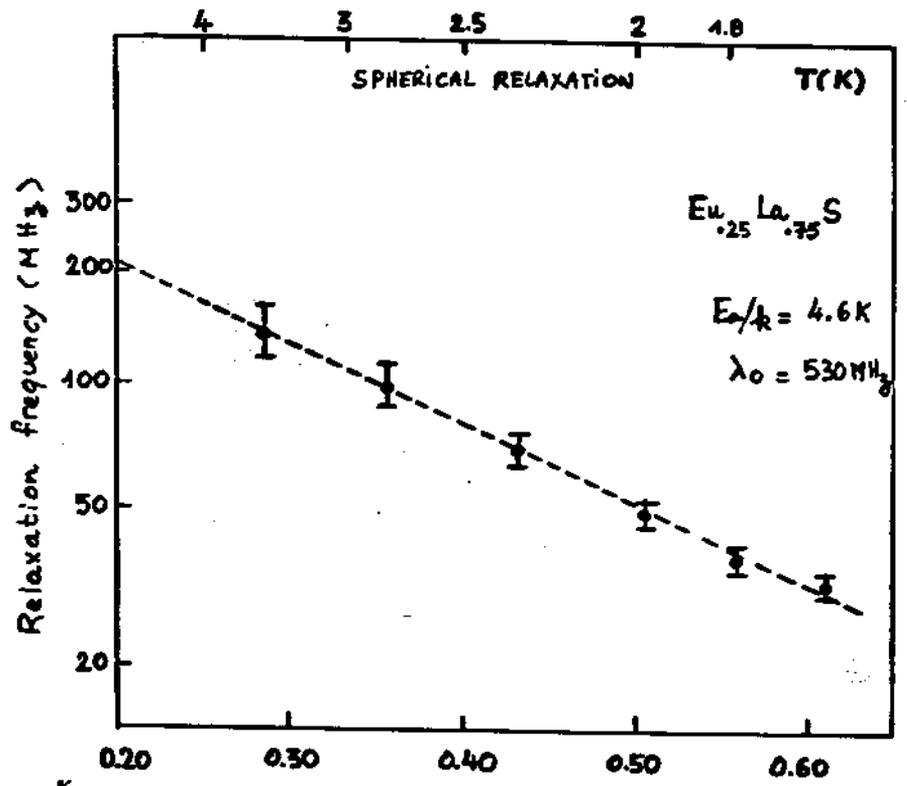


Figure 12

## REFERENCES

- [1] M. MAURER, J.M. FRIEDT et G. KRILL  
J.Physics F, 13, 2389 (1983)
- [2] G. CZJZEK *et al.*  
Phys.Rev.B 23, 2513 (1981)  
G. CZJZEK  
Phys.Rev.B 25, 4908 (1982)
- [3] J.M. FRIEDT, M. MAURER, J.P. SANCHEZ, I. VINCZE, A. BONNENFANT,  
C. PALIUDIS, M. ABD ELMEGUID et H. MICKLITZ  
Proceedings RQ5 (1984)  
M. MAURER, J.M. FRIEDT et J.P. SANCHEZ  
J.Physics F, à paraître
- [4] R.W. COCHRANE, R. HARRIS et M.J. ZUCKERMANN  
Physics Reports 48, 1 (1978)  
J.M.D. COEY, J. CHAPPERT, J.P. REBOUILLAT et T.S. WANG  
Phys.Rev.Lett. 36, 1061 (1976)
- [5] M. MAURER et J.M. FRIEDT  
Phys.Rev.B 30, 2369 (1984)
- [6] M. MAURER et J.M. FRIEDT  
J.Physics F 13, 2175 (1983)
- [7] F.J. LITTERST, J.M. FRIEDT, J.L. THOLENCE et F. HOLTZBERG  
J.Physics C 15, 1049 (1982)  
J.P. SANCHEZ, J.M. FRIEDT, H. BACH et K. WESTERHOLT  
à publier