PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

C E A - R 2821

ÉTUDE A TEMPÉRATURE FINIE D'UN SYSTÈME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION DANS UNE APPROXIMATION SELF-CONSISTANTE

par

Micheline BLOCH

Rapport C E A - R 2821

1966
Ga

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY

CEA-R 2821 — BLOCH Micheline

ETUDE A TEMPERATURE FINIE D'UN SYSTEME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION DANS UNE APPROXIMATION SELF-CONSISTANTE

Sommaire :

On expose une théorie d'ondes de spin en interaction à température finie. On en déduit l'évolution avec la température du spectre en énergie des ondes de spin et de l'aimantation.

La théorie est développée pour les corps ferro-, ferri-, et antiferromagnétiques.

1966 82 pages

Commissariat à l'Energie Atomique - France

CEA-R 2821 — BLOCH Micheline

SELF-CONSISTENT TREATMENT OF INTERACTING SPIN WAVES AT FINITE TEMPERATURES

Summary :

A spin wave theory is developed where account is taken of spin wave interactions at finite temperatures. The temperature dependence of the spin wave energies and of the magnetization is derived.

The theory is developed for ferro-, ferri-, and antiferromagnets.

1966 82 pages

Commissariat à l'Energie Atomique - France

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIII°.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIII°.

SÉRIE A, N° 4529
N° D'ORDRE : 5376

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Micheline BLOCH

PREMIÈRE THÈSE

Étude à température finie d'un système d'ondes de spin en interaction dans une approximation self-consistante

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Diffusion des neutrons par une substance magnétique près de son point de transition

Soutenues le 4 juin 1965 devant la Commission d'examen

MM. J. YVON — Président

A. HERPIN
J. FRIEDEL
J. M. WINTER
} Examinateurs

L'étude présentée dans cet exposé a été commencée et poursuivie en grande partie au cours d'un séjour à l'Université de Californie. Le professeur KITTEL a attiré mon attention sur le sujet et en à guidé les premiers développements. Qu'il veuille trouver ici l'expression de ma gratitude .

Je voudrais exprimer ma profonde reconnaissance à Monsieur HERPIN, Chef du Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique, qui m'a accueillie et orientée à mon entrée au Commissariat à l'Energie Atomique et y a dirigé mes premières recherches. Ses suggestions et ses critiques m'ont été précieuses dans l'élaboration de la dernière partie de cette étude.

Monsieur le Professeur YVON a bien voulu accepter la présidence du Jury. Je le remercie vivement de l'intérêt qu'il a porté à mon travail et des conseils qu'il m'a donnés.

Je remercie Messieurs BALIAN et de DOMINICIS avec qui j'ai eu de nombreuses et utiles discussions.

J'adresse enfin mes vifs remerciements à Madame GUGENBERGER et à ses collaboratrices qui ont assuré l'exécution matérielle de ce mémoire.

TABLE DES MATIÈRES

Pages

INTRODUCTION 5

CHAPITRE I - LES ONDES DE SPIN ET LEURS INTERACTIONS 9

1/ Théorie des ondes de spin dans l'approximation linéaire 9

2/ Interactions entre ondes de spin 16

CHAPITRE II - CALCUL DU NOMBRE D'OCCUPATION MOYEN D'UN ETAT ELEMENTAIRE .. 21

1/ Méthode variationnelle 21

2/ Méthode des équations du mouvement 23

CHAPITRE III - PROPRIETES DU SYSTEME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION 27

CAS DES FERROMAGNETIQUES 27

1/ Variations avec la température du spectre en énergie des ondes de spin et de l'aimantation 27

2/ Cas particulier d'une interaction d'échange à portée infinie 35

3/ Comparaisons avec l'expérience 40

CHAPITRE IV - PROPRIETES DU SYSTEME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION 41

CAS DES FERRIMAGNETIQUES ET DES ANTIFERROMAGNETIQUES 41

1/ Théorie des ondes de spin dans l'approximation linéaire 41

2/ Etude du système d'ondes de spin en interaction 47

3/ Cas des antiferromagnétiques 55

CONCLUSION 63

APPENDICE I - DETERMINATION DE LA VALEUR MOYENNE DU NOMBRE D'OCCUPATION PAR UNE METHODE DIAGRAMMATIQUE 65

APPENDICE II - TRANSFORMATION DU POTENTIEL D'INTERACTION ENTRE ONDES DE SPIN 72

APPENDICE III - DETERMINATION DES RELATIONS DE DISPERSION DES ONDES DE SPIN DANS UN MODELE VECTORIEL 73

BIBLIOGRAPHIE 81

INTRODUCTION

L'aimantation d'une substance magnétique est due à l'existence d'un ordre plus ou moins parfait dans l'orientation des moments atomiques. On envisage seulement des situations où ces derniers proviennent du spin des électrons non appariés des couches incomplètes des ions magnétiques.

Le cas le plus simple est celui où les moments sont indépendants les uns des autres (lorsqu'ils sont par exemple dilués dans une matrice non magnétique). Leur alignement, provoqué par la seule action du champ extérieur, s'effectue graduellement quand la température décroît à mesure que l'action directrice du champ l'emporte sur le désordre thermique et disparaît quand on supprime le champ. On dit que la substance est paramagnétique.

Lorsqu'il existe une interaction entre moments atomiques, ceux-ci peuvent s'ordonner en l'absence de tout champ appliqué(*). Aux très hautes températures, les interactions entre porteurs sont sans effet et la substance est dans un état paramagnétique. A une température définie appelée point de Curie apparaît un ordre à grande distance, qui croît jusqu'à une valeur maximale au zéro absolu. On distingue des classes de substances caractérisées dans leur état ordonné par des structures microscopiques différentes : dans les ferromagnétiques, les moments sont tous alignés parallèllement. Le réseau des moments des ferrimagnétiques peut être divisé en sous-réseaux dont deux au moins sont orientés antiparallèlement l'un par rapport à l'autre, avec une aimantation résultante finie. Les antiferromagnétiques sont des ferrimagnétiques dont l'aimantation résultante est nulle. Nous avons cité les arrangements les plus simples, il en existe d'autres. Ces corps se distinguent des paramagnétiques en ce que l'établissement de l'ordre est dû à l'action coopérative des moments élémentaires. A l'exception des antiferromagnétiques ils possèdent tous une aimantation spontanée au-dessous du point de transition.

La nature de l'interaction fut longtemps ignorée. En 1907, Pierre Weiss [1] accomplit un premier pas vers sa connaissance. Remplaçant l'interaction microscopique inconnue par une grandeur phénoménologique, il admit l'existence d'un champ magnétique interne, le champ moléculaire, proportionnel à l'aimantation. Cette simple supposition suffisait à rendre compte des principales propriétés des ferromagnétiques. De plus, en remarquant qu'au point de Curie l'énergie thermique d'un moment compensait approximativement son énergie magnétique, il était possible de déterminer un ordre de grandeur pour les champs internes. Les valeurs associées aux points de Curie usuels (5 millions de gauss pour 1 000°K) étaient mille fois trop élevées pour être expliquées par une interaction dipolaire magnétique classique.

En 1928, Heisenberg [2] suggéra que les interactions électrostatiques entre électrons atomiques, conduisant à un effet quantique d'"échange", pouvaient être la cause des champs internes élevés responsables de l'alignement ferromagnétique. Soit en effet un système de deux électrons appartenant à deux ions magnétiques voisins. Une des conséquences du principe d'exclusion de Pauli, l'antisymétrie nécessaire des fonctions d'onde représentant le couple des électrons, fait qu'aux deux orientations relatives possibles de leurs spins (parallèle ou antiparallèle) sont associées des fonctions d'onde spatiales de symétrie différente, donc des répartitions de charges électriques distinctes. Les modifications résultantes de l'énergie coulombienne favorisent une des deux orientations et peuvent être représentées sous la forme d'un couplage direct entre les spins électroniques. L'énergie potentielle totale correspondant à cette interaction d'échange isotrope s'écrit [3, 4]

(*) On considère un échantillon homogène.

$$\mathcal{H}_H = - \sum_{i,j} J(r_{ij}) \vec{S}_i . \vec{S}_j . \qquad (1)$$

$\vec{S}_i$ et $\vec{S}_j$ sont les opérateurs de spin relatifs aux ions i et j distants de r_{ij}. L'intégrale d'échange $J(r_{ij})$ étant liée au degré de recouvrement des distributions de charge des deux ions décroît rapidement avec la distance. On est souvent amené à définir une seule constante J relative aux couples de premiers voisins. Le signe primitivement trouvé pour J était positif et conduisait au ferromagnétisme. L'étude des divers mécanismes de l'échange permit plus tard d'interpréter les valeurs négatives de J c'est-à-dire le couplage antiferromagnétique.

Il est facile, partant de l'hamiltonien d'Heisenberg, de préciser les approximations contenues dans l'hypothèse du champ moléculaire. On écrit l'énergie d'échange sous la forme

$$\mathcal{H}_H = - 2J \sum_i \vec{S}_i . \sum_j \vec{S}_j . \qquad (2)$$

Il suffit de remplacer la sommation sur j, qui porte sur les z voisins de l'ion i, par z fois la valeur moyenne $< \vec{S}_j >$, quantité proportionnelle à l'aimantation, pour faire apparaître le champ interne. La substitution est justifiée si l'orientation des spins voisins d'un spin donné ne dépend pas de celle de ce spin. L'hypothèse est raisonnable dans la région paramagnétique, ainsi qu'à des températures un peu inférieures au point de transition, mais devient très inexacte aux basses températures où les interactions d'échange gouvernant l'ordre sont justement un phénomène de corrélations entre spins voisins.

En 1930, F. Bloch [5] proposa une théorie basée sur le modèle d'Heisenberg, dans laquelle les premières excitations des ferromagnétiques à partir d'un état fondamental parfaitement aligné étaient analysées en termes *d'ondes de spin*, analogues magnétiques des ondes de vibrations thermiques dans les cristaux. Admettant que le nombre d'excitations présentes était suffisamment faible par rapport au nombre d'atomes du cristal pour qu'on puisse les supposer indépendantes, la théorie rendait compte des variations de l'aimantation au voisinage de la saturation. Le calcul était exposé dans le langage de la mécanique quantique, mais pouvait être développé à partir de notions classiques [6]. Le problème fut également envisagé [7-8] d'un point de vue phénoménologique, une onde de spin de grande longueur d'onde représentant la propagation dans un milieu continu d'une perturbation dans la densité d'aimantation.

La méthode des ondes de spin fut longtemps considérée comme une théorie de très basses températures servant essentiellement de limite de comparaison exacte pour les divers traitements statistiques du ferromagnétisme élaborés ultérieurement. Les travaux expérimentaux la confirmant étaient peu nombreux, en raison d'une part du manque de précision des mesures statiques d'aimantation au voisinage du zéro absolu, d'autre part du petit nombre de matériaux isolants connus dont le magnétisme pouvait relever de l'hamiltonien d'échange.

Les années suivantes virent le développement d'un grand nombre de théories [9] prenant l'hamiltonien d'Heisenberg comme point de départ. On essaya d'atteindre la transition à partir des hautes températures, par des développements en série de puissances de J/k_BT de la fonction de partition et des susceptibilités magnétiques. La théorie du champ moléculaire fut perfectionnée par J. Yvon [10] puis par Peter Weiss [11] de façon à tenir compte des corrélations relatives à un petit groupe de spins. Plus récemment, des méthodes fondées sur une solution approchée des équations du mouvement pour les fonctions de Green furent appliquées aux ferromagnétisme par Bogolyubov et Tyablikov [12] dans le cas d'un spin 1/2, puis généralisées pour un spin quelconque par Tahir-Kheli et Ter Haar [13] et reprises par divers auteurs.

Les premières tentatives faites pour préciser l'étendue du domaine de validité de la théorie des ondes de spin indépendantes conduisirent à des résultats contradictoires. Ce fut seulement en 1956 qu'à la suite de l'étude théorique approfondie d'un corps ferromagnétique aux basses températures, Dyson [14] établit la faiblesse des interactions entre ondes de spin et de leur effet sur les grandeurs thermodynamiques. Une interprétation physique ultérieure donnée par Keffer et Loudon [15] montrait que les interactions agissaient sur l'aimantation par l'intermédiaire d'une modification avec la température du spectre en énergie des ondes de spin.

Pendant la même période un ensemble de découvertes théoriques et techniques élargissait le champ et les moyens d'investigation du magnétisme. La découverte des grenats de fer [16], l'explication de leurs propriétés et de celles des ferrites [17] mettait en lumière l'existence d'une nouvelle classe de matériaux isolants. La mise au point de la spectroscopie des radiofréquences, puis celle des méthodes utilisant la diffusion inélastique des neutrons rendait possible l'étude directe de l'évolution des propriétés des ondes de spin en fonction de la température. Vers 1960 divers résultats expérimentaux [18-20] indiquaient que des excitations élémentaires étaient observables continûment jusqu'à une région de température très voisine du point de Curie.

Dans ce mémoire nous étudions à température finie un système d'ondes de spin en interaction. Nous montrons qu'une méthode générale de renormalisation des énergies des excitations permet de rendre compte des propriétés des principales classes de substances magnétiques dans un large domaine de températures, évalué à environ les trois quarts de la température de transition. Un premier chapitre est consacré à l'exposé de la théorie "linéaire" des ondes de spin et à la description du système étudié. Diverses méthodes de traitement thermodynamique sont groupées dans le deuxième chapitre, puis appliquées dans le troisième chapitre aux ferromagnétiques. Un examen plus approfondi de la validité d'une approximation y est fait dans un cas particulier. Le dernier chapitre traite de l'extension de la théorie aux ferri- et antiferromagnétiques.

CHAPITRE I

LES ONDES DE SPIN [21, 22] ET LEURS INTERACTIONS

Résumé - On définit les ondes de spin dans les ferromagnétiques et on rappelle les principaux résultats de la théorie linéaire. Des considérations relatives aux interactions entre ces ondes aux basses températures sont développées. On note un ensemble de remarques qui nous ont suggéré l'étude exposée dans les chapitres suivants.

I - THEORIE DES ONDES DE SPIN DANS L'APPROXIMATION LINEAIRE

On étudie un ensemble de N spins identiques, de nombre quantique S, localisés sur les noeuds $\vec{r}_i$ d'un réseau cristallin. Ces spins sont couplés par une interaction d'échange isotrope entre paires de premiers voisins, et sont d'autre part soumis à l'action d'un champ magnétique uniforme H dirigé suivant l'axe $\overrightarrow{Oz}$ et dans le sens négatif.

Le système est représenté par l'hamiltonien d'Heisenberg

$$\mathcal{H}_H = - \sum_{i,j} J(r_{ij})\, \vec{S}_i . \vec{S}_j + g \mu_B H \sum_i S_i^z . \qquad (I.1)$$

Le magnéton de Bohr μ_B est négatif.

Les sommations sur i et j sont indépendantes et s'étendent chacune à tous les noeuds du réseau.

L'intégrale d'échange $J(r_{ij})$ (où $r_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$) est positive et telle que

$$\begin{aligned} J(r_{ij}) &= J \qquad \text{si } \vec{r}_j = \vec{r}_i + \vec{\delta}, \\ J(r_{ij}) &= 0 \qquad \text{dans tout autre cas.} \end{aligned} \qquad (I.2)$$

$\vec{\delta}$ désigne un vecteur joignant deux sites premiers voisins. On appellera z le nombre de premiers voisins d'un site, qui est aussi le nombre de vecteurs $\vec{\delta}$ distincts.

La forme choisie pour $J(r_{ij})$ ne joue pas de rôle essentiel. Elle restreint toutefois l'étude qui suivra aux substances isolantes puisque dans les métaux, les interactions sont à longue portée.

1 - Rappels relatifs aux opérateurs de spin [23].

Un opérateur vectoriel de spin $\vec{S}_i$, relatif à un site $\vec{r}_i$, est défini par trois opérateurs scalaires S_i^x, S_i^y, S_i^z, liés par la relation

$$\sum_\alpha (S_i^\alpha)^2 = S(S+1), \qquad \alpha = x, y, z. \qquad (I.3)$$

Les composantes S_i^x et S_i^y peuvent être remplacées par

$$S_i^\pm = S_i^x \pm i S_i^y . \qquad (I.4)$$

Ces opérateurs satisfont aux relations de commutation :

$$[S_i^+,\ S_j^-] = 2\,\delta_{ij}\ S_i^z$$

$$[S_i^z,\ S_j^+] = \delta_{ij}\ S_i^+ \qquad (I.5)$$

$$[S_i^z,\ S_j^-] = -\,\delta_{ij}\ S_i^-.$$

δ_{ij} désigne ici le symbole de Kronecker.

L'hamiltonien d'Heisenberg s'écrit en fonction des composantes circulaires

$$\mathcal{H}_H = -\sum_{i,j} J(r_{ij}) \left\{ \frac{1}{2} S_i^+ S_j^- + \frac{1}{2} S_i^- S_j^+ + S_i^z S_j^z \right\} + g\mu_B H \sum_i S_i^z. \qquad (I.6)$$

Dans les questions relatives aux ondes de spin, il est utile de définir un opérateur *déviation de spin* η_i qui mesure l'écart de la composante S_i^z par rapport à sa valeur maximale S.

$$\eta_i = S - S_i^z \qquad (I.7)$$

Les nombres quantiques(*) η_i peuvent prendre toutes les valeurs entières de 0 à 2S, limites comprises.

L'espace à 2S dimensions associé à un opérateur $\vec{S}_i$ est sous-tendu par le système orthonormé des vecteurs propres $|\eta_i>$ communs à S_i^2 et S_i^z ($i = 0,\ 1,\ \ldots 2S$) qui définit la représentation $\{\eta_i\}$.

L'action des opérateurs $S_i^\pm$ et S_i^z sur ces états est :

$$S_i^+ \mid \eta_i > = \sqrt{2S}\ \sqrt{1 - \frac{\eta_i - 1}{2S}}\ \sqrt{\eta_i}\ \mid \eta_i - 1>$$

$$S_i^- \mid \eta_i > = \sqrt{2S}\ \sqrt{\eta_i - 1}\ \sqrt{1 - \frac{\eta_i}{2S}}\ \mid \eta_i + 1> \qquad (I.8)$$

$$S_i^z \mid \eta_i > = (S - \eta_i) \mid \eta_i>$$

On associe au système des N spins un espace des états qui est le produit tensoriel des N espaces définis pour chaque spin individuel. On peut prendre pour base dans l'espace produit l'ensemble orthonormé des vecteurs

$$\mid \eta_1,\ \eta_2 \ldots\ \eta_N > = \mid \eta_1> \mid \eta_2 > \ldots\ \mid \eta_N>. \qquad (I.9)$$

L'action des opérateurs de spin sur les états (I.9) se déduit de (I.8)

$$S_i^+ \mid \eta_1,\ \eta_2 \ldots\ \eta_i \ldots\ \eta_N> = \sqrt{2S}\ \sqrt{1 - \frac{\eta_i - 1}{2S}}\ \sqrt{\eta_i}\ \mid \eta_1,\ \eta_2\ \ldots\ (\eta_i - 1) \ldots \eta_N > \qquad (I.10)$$

et ainsi de suite.

Soit $\vec{\mathcal{S}} = \sum_i \vec{S}_i$ le spin total du système. Par suite de l'invariance de l'hamiltonien par rapport aux rotations autour de $\overrightarrow{Oz}$, $\mathcal{S}^2$ et $\mathcal{S}^z$ sont des constantes du mouvement.

2 - Etat fondamental du système.

Dans l'état fondamental, qu'on notera $|0>$, toutes les composantes S_i^z ont la valeur S de sorte que quel que soit i,

---

(*) Le même symbole est utilisé pour l'opérateur et la valeur propre quand le contexte ne permet pas de confusion.

$$S_i^z \mid 0 > = S \mid 0 >$$
$$S_i^+ \mid 0 > = 0 \quad . \tag{I.11}$$

Les valeurs propres de $\mathcal{S}^2$ et $\mathcal{S}^z$ sont respectivement NS(NS + 1) et NS.

L'aimantation du système est maximale

$$M_o = g\mu_B \, N^{-1} \sum_i < 0 \mid S_i^z \mid 0 > = g\mu_B \, S \tag{I.12}$$

et l'énergie totale est

$$E_o = < 0 \mid \mathcal{H}_H \mid 0 > = - JNzS^2 + g\mu_B \, H \, N \, S. \tag{I.13}$$

Cet état correspond à la notion classique de l'état de base d'un ferromagnétique : tous les moments magnétiques individuels sont alignés parallèlement(*) au champ magnétique extérieur appliqué. En l'absence de champ les moments seraient alignés dans une direction déterminée par une autre cause d'anisotropie.

3 - Recherche des premières excitations. Propriétés des ondes de spin.

On connaît exactement les états propres de l'hamiltonien d'Heisenberg pour lesquels la composante suivant $\overrightarrow{Oz}$ du spin total a pour valeurs propres NS, et NS - 1. Ce sont l'état fondamental et les ondes de spin, qu'on définit ici.

Supposons que dans un ferromagnétique soit réalisée en un site $\vec{r}_i$ une déviation de spin, ($\eta_i = 1$), les composantes S_j^z relatives aux autres sites ayant leur valeur maximale S. Par suite du couplage d'échange entre le spin $\vec{S}_i$ et ses voisins, la déviation ne reste pas localisée et se propage dans le réseau sous forme d'une onde.

On crée une déviation de spin en $\vec{r}_i$ en faisant agir sur l'état de base $|0>$ l'opérateur S_i^-. Ecrivons l'équation du mouvement de cet opérateur :

$$\frac{\hbar}{i}\frac{dS_i^-}{dt} = - 2 \sum_j J(r_{ij}) \, (S_i^z S_j^- - S_i^- S_j^z) - g\mu_B \, H \, S_i^- \tag{I.14}$$

et appliquons les deux membres de l'équation à l'état de base. On obtient

$$\frac{\hbar}{i}\frac{d}{dt} S_i^- \mid 0 > = 2S \sum_j J(r_{ij}) \, (S_i^- - S_j^-) \mid 0 > - g\mu_B H \, S_i^- \mid 0 > \tag{I.15}$$

L'état $S_i^- \mid 0 >$ n'est pas un état propre de l'hamiltonien. L'invariance par rapport aux translations de l'équation (I.15) conduit à effectuer une transformation de Fourier. On définit l'opérateur vectoriel

$$\vec{S}_k = \frac{1}{\sqrt{2SN}} \sum_i e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_i} \, \vec{S}_i \tag{I.16}$$

où $\vec{k}$ désigne un vecteur(**) repéré dans l'espace réciproque du cristal.

L'équation (I.15) transformée

$$\frac{\hbar}{i}\frac{d}{dt} S_k^- \mid 0 > = (\mathcal{H}_H - E_0) \, S_k^- \mid 0 > = [2JS(\gamma_o - \gamma_k) - g\mu_B H] \, S_k^- \mid 0 > \tag{I.17}$$

(**) En fait, les spins représentés par des vecteurs de longueur égale à S(S + 1) ont dans l'état fondamental une composante horizontale égale à $\sqrt{S}$, leurs trois composantes n'étant pas simultanément des constantes du mouvement.

indique que l'état normalisé

$$|\vec{k}> = S_k^- \,|\, 0> \tag{I.18}$$

est un état propre de l'hamiltonien d'Heisenberg de valeur propre

$$E_o + \varepsilon_k^o \tag{I.19}$$

où E_o est, rappelons-le, l'énergie de l'état fondamental. On a posé

$$\varepsilon_k^o = 2JS\,(\gamma_o - \gamma_k) - g\mu_B H \tag{I.20}$$

$$\gamma_k = \sum_{\vec{\delta}}' e^{i\vec{k}.\vec{\delta}} \tag{I.21}$$

ε_k^o est l'énergie d'excitation de l'état $|\vec{k}>$. *Les états* $|\vec{k}>$ *sont les ondes de spin*. Leur spectre en énergie est une bande de largeur $4\gamma_o JS$. L'expression de la relation de dispersion (I.20) dans une limite de grande longueur d'onde (écrite pour un réseau cubique de côté a avec ka << 1)

$$\varepsilon_k^o \sim 2JS\,a^2\,k^2 - g\mu_B H \tag{I.22}$$

permettrait de définir la masse effective d'une onde de spin. On appellera plutôt constante d'échange(*) la grandeur

$$D = 2JS\,a^2\,. \tag{I.23}$$

La présence d'une onde de spin se traduit, quelque soit $\vec{k}$, par la répartition uniforme (et déphasée si $\vec{k} \neq 0$) d'une déviation de spin unité sur chacun des spins individuels. En effet,

$$<\vec{k}\,|\,(S - S_i^z)\,|\,\vec{k}> = \frac{1}{N}. \tag{I.24}$$

Ceci explique pourquoi la création d'une onde est énergétiquement beaucoup plus favorable (relation (I.22)) que celle d'une déviation de spin localisée (qui demande une énergie finie $2\gamma_o JS$) : La dernière opération perturbe beaucoup l'énergie d'échange autour du site, alors que dans le cas d'une onde, la perturbation est répartie sur 10^{24} atomes. On peut se demander quelle est l'orientation relative de deux spins dans un état $|\vec{k}>$. On montre que

$$<\vec{k}\,|\,\vec{S}_i.\vec{S}_j\,|\,\vec{k}> = S^2 - \frac{2S}{N}[1 - \cos\vec{k}(\vec{r}_i - \vec{r}_j)] \tag{I.25}$$

et

$$<0\,|\,\vec{S}_i.\vec{S}_j\,|\,0> = S^2 \tag{I.26}$$

On déduit de ces relations deux conséquences qui sont interprétées dans un modèle vectoriel [61].

a) Si on excite une onde de spin de petit vecteur d'onde $\vec{k}$, l'orientation des spins est peu modifiée par rapport au parallélisme de l'état de base, d'autant moins que $\vec{k}$ est plus petit.

b) Dans un cristal où préexiste une onde $|\vec{k}>$ de vecteur d'onde quelconque non nul, une deuxième onde $|\vec{k}'>$ aura connaissance de la présence de $|\vec{k}>$ dans la mesure où les spins qu'elle rencontrera successivement ne seront plus alignés.

Des ondes de spins coexistant dans le réseau ne sont donc pas indépendantes, mais d'après la remarque a) elles le restent approximativement tant que leurs longueurs d'ondes sont grandes par rapport aux distances interatomiques. Leur interaction se traduit mathématiquement (pour deux ondes) par le fait que l'état

---

(*) J représente une énergie comparable à $k_B T_c$. Les ordres de grandeur usuels sont

$$J \sim 10^{-14}\ \text{erg}$$
$$D \sim 10^{-29}\ \text{erg/cm}^2.$$

Les masses effectives des ondes de spin valent quelques dizaines de masses électroniques.

$$| \vec{k}, \vec{k}' > = S_k^- S_{k'}^- | 0 > \qquad (I.27)$$

ne diagonalise pas l'hamiltonien d'Heisenberg (sauf si $\vec{k}$ ou $\vec{k}'$ est nul). On vérifie en effet que le commutateur

$$[[\mathcal{H}_H, S_k^-], S_{k'}^-] \qquad (I.28)$$

n'admet pas l'état fondamental pour état propre. La remarque est évidemment valable pour une puissance de S_k^- supérieure à deux (section suivante, paragraphe 2).

En conclusion, seuls les états où une onde de spin $|\vec{k}>$ est excitée sont rigoureusement des états propres de l'hamiltonien d'Heisenberg.

Toutefois aux très basses températures, les premières excitations des ferromagnétiques sont bien décrites par un petit nombre d'ondes de spin de faible énergie qui se comportent comme des ondes indépendantes. Cette hypothèse constitue la base de l'approximation "linéaire" faite par Bloch dans le mémoire de 1930. Après avoir introduit la notion d'onde de spin, il l'utilise pour trouver, en accord avec l'expérience, une variation en $T^{3/2}$ de l'écart de l'aimantation d'un ferromagnétique par rapport à sa valeur au zéro absolu. Nous allons retrouver ce résultat en faisant intervenir un formalisme différent qui sera utilisé dans les chapitres suivants.

4 - Approximation linéaire dans le formalisme de Holstein et Primakoff [24].

L'indépendance des ondes de spin aux basses températures permet en particulier de les accumuler dans un mode unique $|\vec{k}>$ c'est-à-dire de les considérer comme un ensemble de quasi-particules obéissant à la statistique de Bose-Einstein. On prévoit l'existence de méthodes de développement de l'hamiltonien d'Heisenberg qui mettent en évidence un terme principal décrivant une assemblée de bosons indépendants.

Holstein et Primakoff ont remarqué que les opérateurs de spin pouvaient être exprimés exactement en fonction d'opérateurs locaux b_i^+, b_i de création et d'annihilation de bosons, suivant les formules (qui se déduisent des relations $(I.8)^+$ et des propriétés des opérateurs b^+ et b)

$$\begin{aligned} S_i^+ &= \sqrt{2S}\, f_i b_i \\ S_i^- &= \sqrt{2S}\, b_i^+ f_i \\ S_i^z &= S - b_i^+ b_i \end{aligned} \qquad (I.29)$$

avec :

$$f_i = \left(1 - \frac{b_i^+ b_i}{2S}\right)^{1/2}. \qquad (I.30)$$

On posera

$$b_i^+ b_i = n_i. \qquad (I.31)$$

Les opérateurs b_i^+ et b_i satisfont aux règles de commutation

$$[b_i, b_j^+] = \delta_{ij} . \qquad (I.32)$$

Mentionnons ici un caractère important des relations (I.29), sur lequel on reviendra dans la section suivante (paragraphes 1 et 3). La représentation associée aux opérateurs de spin est à 2S dimensions, alors que les matrices représentant les opérateurs écrits dans le second membre sont infinies : les relations n'ont donc de sens que pour $n_i \leqslant 2S$.

Effectuons la transformation (I.29) dans l'expression (I.6) de l'hamiltonien. On en obtient une formulation exacte en termes d'opérateurs de Bose-Einstein

$$\mathcal{H}_H = - \sum_{i,j} J(r_{ij})\, S \{ f_i\, b_i\, b_j^+ f_j + b_i^+ f_i\, f_j\, b_j + (S - n_i)(S - n_j) \} + g\mu_B H \sum_i (S - n_i) \qquad (I.33)$$

difficilement utilisable sans modifications en raison de la présence des quantités f_i qui contiennent

des radicaux. On est amené [25] à écrire f_i sous la forme d'un développement binomial en série de puissances de $\frac{n_i}{S}$

$$f_i = 1 - \frac{1}{4}\left(\frac{n_i}{S}\right) - \frac{1}{32}\left(\frac{n_i}{S}\right)^2 - \ldots\ldots \tag{I.34}$$

L'hamiltonien est alors également développé en une série infinie de termes

$$\mathcal{H}_H = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \ldots\ldots \tag{I.35}$$

où en particulier,

$$\mathcal{H}_o = E_o - 2S \sum_{i,j} J(r_{ij})\ (b_i^+ b_j - n_i) - g\mu_B H \sum_i n_i \tag{I.36}$$

$$\mathcal{H}_1 = - \sum_{i,j} J(r_{ij}) \left\{ b_i^+ b_i\ b_j^+ b_j - \frac{1}{2}\left[n_i\ b_i\ b_j^+ + b_i\ b_j^+\ n_j + b_i^+ n_i\ b_j + b_i^+ n_j\ b_j \right] \right\} \tag{I.37}$$

$\mathcal{H}_1$ groupe les termes indépendants de S et contenant quatre opérateurs b, $\mathcal{H}_2$ les termes en $\frac{1}{S}$ contenant six opérateurs et ainsi de suite.

L'approximation linéaire consiste ici à limiter l'hamiltonien au premier terme $\mathcal{H}_o$ de la série, soit à remplacer f_i et f_j par l'unité et à négliger le terme en $n_i\ n_j$ provenant du produit $S_i^z\ S_j^z$. Holstein et Primakoff restreignent la validité de ce traitement aux températures où les conditions de quasi-saturation sont remplies, c'est-à-dire où $< n_i >$ désignant la moyenne thermodynamique de l'opérateur n_i, l'inégalité

$$\frac{< n_i >}{2S} = \frac{1}{2}\ \frac{M(T) - M_o}{M_o} << 1 \tag{I.38}$$

est réalisée (M(T) est l'aimantation à la température T).

On définit les opérateurs a_k et a_k^+, composantes de Fourier de b_i et b_i^+

$$\begin{aligned} a_k^+ &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_i e^{i\vec{k}.\vec{r}_i}\ b_i^+ \\ a_k &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_i e^{-i\vec{k}.\vec{r}_i}\ b_i \end{aligned} \tag{I.39}$$

qui obéissent à des règles de commutation identiques

$$[\, a_k,\ a_{k'}^+ \,] = \delta_{kk'}. \tag{I.40}$$

On peut montrer d'autre part que

$$\sum_i b_i^+ b_i = \sum_k a_k^+ a_k. \tag{I.41}$$

La transformation (I.39) permet de diagonaliser $\mathcal{H}_o$

$$\mathcal{H}_o = E_o + \sum_k \varepsilon_k^o\ a_k^+ a_k \tag{I.42}$$

E_o et ε_k^o sont donnés respectivement en (I.13) et (I.20).

Dans ce formalisme on appelle onde de spin de vecteur d'onde $\vec{k}$ et d'énergie d'excitation ε_k^o l'état

$$a_k^+ | 0 > = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_i e^{i\vec{k}.\vec{r}_i}\ b_i^+ | 0 >, \tag{I.43}$$

où $| 0 >$ désigne toujours l'état fondamental. Cette onde est distincte de l'onde de spin définie au paragraphe précédent

$$| \vec{k} > = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_i e^{i\vec{k}.\vec{r}_i}\ \frac{1}{\sqrt{2S}}\ S_i^- | 0 >,$$

comme on peut le voir en se reportant aux relations (I.29). Elles donnent toutefois des résultats identiques en ce qui concerne l'approximation linéaire. Dans les chapitres suivants il ne sera question que de l'onde (I.43).

L'opérateur(*)

$$n_k = a_k^+ a_k \tag{I.44}$$

représente le nombre d'ondes de spin de vecteur d'onde $\vec{k}$.

Les valeurs propres de $\mathcal{H}_o$

$$E_o + \sum_k \varepsilon_k^o \; n_k \tag{I.45}$$

ont la forme d'une somme d'énergies de quasi-particules.

On donne ci-dessous les expressions de $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ en termes des opérateurs a_k et a_k^+.

$$\mathcal{H}_1 = \sum_{k_1,k_2,k_3,k_4} V_1 (k_1 k_2 ; k_3 k_4) \; a_{k_1}^+ a_{k_2}^+ a_{k_3} a_{k_4} \tag{I.46}$$

avec :

$$V_1 (k_1 k_2 ; k_3 k_4) = - \frac{J}{4N} \{\gamma_{k_1 - k_3} + \gamma_{k_1 - k_4} + \gamma_{k_2 - k_3} + \gamma_{k_2 - k_4} - \gamma_{k_1} - \gamma_{k_2} - \gamma_{k_3} - \gamma_{k_4}\} \delta_{k_1 + k_2, k_3 + k_4} \tag{I.47}$$

$$\mathcal{H}_2 = \sum_{k_1,\ldots k_6} V_2' (k_1 k_2 k_3 ; k_4 k_5 k_6) \; a_{k_1}^+ a_{k_2}^+ a_{k_3}^+ a_{k_4} a_{k_5} a_{k_6} + \sum_{k_1,\ldots k_4} V_1' (k_1 k_2 ; k_3 k_4) \; a_{k_1}^+ a_{k_2}^+ a_{k_3} a_{k_4} \tag{I.48}$$

$$= \mathcal{H}_2' + \mathcal{H}_1'.$$

Les termes en V_1' proviennent des opérations de commutation effectuées en mettant $\mathcal{H}_2$ sous la forme d'une somme de produits normaux.

On a posé

$$V_2' = \frac{1}{16SN^2} (\gamma_{k_1} + \gamma_{k_6} - 2\gamma_{k_3 - k_5 - k_6}) \; \delta_{k_1 + k_2 + k_3, k_4 + k_5 + k_6} \tag{I.49}$$

$$V_1' = \frac{J}{16SN} (\gamma_{k_1} + \gamma_{k_4}) \; \delta_{k_1 + k_2, k_3 + k_4}. \tag{I.50}$$

Les valeurs des *grandeurs thermodynamiques* dans l'approximation linéaire se déduisent de celle de la fonction de partition

$$Z_o = \mathrm{Tr}\; e^{-\mathcal{H}_o}, \qquad \beta = \frac{1}{k_B T} \tag{I.51}$$

qui d'après (I.45) est égale à

$$Z_o = e^{-\beta E_o} \prod_k \left\{1 - e^{-\beta \varepsilon_k^o}\right\}^{-1}. \tag{I.52}$$

En particulier, l'aimantation par site à une température T est

$$M(T) = - \frac{kT}{N} \frac{\partial \log Z_o}{\partial H} = g\mu_B S \left[1 - \frac{1}{NS} \sum_k \langle n_k \rangle_o\right] \tag{I.53}$$

(*) Au cours de l'exposé il sera fait usage en indice des lettres i et j pour se référer aux vecteurs $\vec{r}_i$ et $\vec{r}_j$ de l'espace direct du cristal, et des lettres k et l pour désigner les vecteurs d'ondes repérés dans l'espace réciproque. Notons la différence entre l'opérateur $n_i = b_i^+ b_i$ qui représente un nombre de déviations de spins sur un site et l'opérateur $n_k = a_k^+ a_k$ qui désigne le nombre d'onde de spin présentes dans un état $|\vec{k}\rangle$, ainsi que la propriété

$$\sum_i n_i = \sum_k n_k \qquad \text{(équation (I.41))}$$

où :

$$< n_k >_o = \frac{1}{Z_o} \mathrm{Tr} \left\{ e^{-\beta \mathcal{H}_o} n_k \right\} = \frac{1}{e^{\beta \epsilon_k^o} - 1} \tag{I.54}$$

En remplaçant dans la formule précédente ε_k^o (donné dans l'expression (I.20)) par son développement en série de puissances de k on obtient

$$\frac{M(T)}{g\mu_B} = S - \left[\zeta\left(\frac{3}{2}\right) \theta^{3/2} + \frac{3\pi}{4} \zeta\left(\frac{5}{2}\right) \theta^{5/2} + \frac{33\pi^2}{32} \zeta\left(\frac{7}{2}\right) \theta^{7/2} + \ldots \right] \tag{I.55}$$

où :

$$\theta = \frac{k_B T}{8\pi J S} \tag{I.56}$$

est une température réduite et

$$\zeta(x) = \sum_{n=1}^{\infty}{}' \frac{1}{n^x} \tag{I.57}$$

la fonction Zeta de Rieman.

II - INTERACTIONS ENTRE ONDES DE SPIN

Afin de préciser le domaine de validité de la théorie linéaire il était nécessaire de connaître les premières corrections dues aux interactions entre ondes de spin. Le désaccord entre les divers résultats antérieurs conduisit Dyson [14] à entreprendre l'étude détaillée aux basses températures du ferromagnétique décrit dans la section I. Oguchi [25] retrouva ensuite les principaux résultats de Dyson en utilisant la méthode de Holstein et Primakoff. On rassemble et examine dans cette section quelques idées et résultats de leurs travaux.

Dyson définit deux ensembles d'états : les ondes de spin "physiques", qui généralisent les ondes (I.27) et sont exprimées en termes d'opérateurs de spin

$$| a > = \prod_k \frac{1}{\sqrt{p_k!}} (S_k^-)^{p_k} | 0 > \tag{I.58}$$

et les ondes de spin "idéales", états propres de $\mathcal{H}_o$

$$| a) = \prod_k \frac{1}{\sqrt{n_k!}} (a_k^+)^{n_k} | 0) \tag{I.59}$$

$| 0 >$ et $| 0)$ désignent le même état fondamental.

(p_k) et (n_k) sont des ensembles quelconques d'entiers attachés à chaque vecteur $\vec{k}$. Rappelons que les opérateurs a_k et a_k^+ sont les transformés de Fourier d'opérateurs locaux b_i, b_i^+.

1 - Interaction cinématique

Au cours de la transformation de Holstein et Primakoff (I.29), on a identifié l'opérateur

$$\eta_i = S - S_i^z$$

avec l'opérateur

$$n_i = b_i^+ b_i .$$

Or le nombre de déviations de spin sur un site est limité supérieurement par 2S, alors que le nombre d'occupation d'un état de boson peut prendre toutes les valeurs entières. La limitation des nombres quantiques de déviation de spin interdit l'accumulation d'un trop grand nombre d'ondes de spin dans un petit volume du cristal, et par suite crée entre elles une interaction répulsive que Dyson appelle l'interaction cinématique. Il n'en est pas tenu compte dans l'approximation linéaire : elle est évidemment négligeable quand le nombre d'ondes de spin présentes est petit devant le

nombre des atomes. L'origine de cette interaction peut être attribuée à une quelconque des propriétés des opérateurs $S_k^{\pm}$ qui est en relation avec leur anharmonicité, et en particulier au fait que les états (I.58) contrairement aux états (I.59), ne sont pas orthonormés.

On pourrait croire qu'il n'est pas nécessaire de tenir compte de l'interaction cinématique dans le formalisme de Holstein et Primakoff, les opérateurs de spin supprimant les transitions vers les états où $\eta_i > 2S$ puisque

$$S_i^- \mid \ldots\ldots \eta_i \ldots\ldots > = 0 \qquad \text{si } \eta_i = 2S. \tag{I.60}$$

L'argument n'est valable que si les opérateurs $S_i^{\pm}$ sont remplacés exactement dans l'hamiltonien par les expressions (I.29) et utilisés sous cette forme, ce qui n'est pas le cas : ainsi qu'il a été indiqué on développe f_i en série de puissances de $n_i/2S$ pour ne retenir qu'un nombre limité de termes du développement. L'arrêt (I.60) n'est alors plus effectif.

2 - Interaction dynamique

L'interaction cinématique a un effet purement statistique qui consiste à réduire le poids des états caractérisés par une grande densité d'ondes de spin. Elle n'intervient pas dans la dynamique des spins individuels.

Dans la section précédente on a mentionné un autre type d'interaction lié au fait que les ondes de spin "physiques" ne sont pas des états propres de l'hamiltonien d'Heisenberg. L'action de $\mathcal{H}_H$ sur $\mid a >$ donne en effet

$$\mathcal{H}_H \mid a > = (E_o + \sum_k n_k \varepsilon_k^o) \mid a > + \sum_b Q_{ab} \mid b >, \tag{I.61}$$

les états $\mid b >$ se déduisant des états $\mid a >$ en remplaçant un couple quelconque d'ondes de spin $(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ par un couple $(\vec{k}_1 + \vec{q}, \vec{k}_2 - \vec{q})$. Tous les coefficients Q_{ab} contiennent le facteur

$$\Gamma_{k_1 k_2} = \gamma_q - \gamma_{q-k_2} - \gamma_{q+k_1} - \gamma_{q+k_1-k_2}. \tag{I.62}$$

L'hamiltonien est explicitement séparé en un terme diagonal représentant la somme des énergies des ondes de spin libres intervenant dans $\mid a >$ et un terme non diagonal qui est l'interaction dynamique entre ces ondes. Cette interaction est attractive. On peut en donner une image physique en disant que la tendance des spins à l'alignement ferromagnétique favorise les états où les deux déviations (ou retournements) de spins ont lieu sur des sites voisins par rapport aux états où ils ont lieu sur des sites distants.

Tous les effets liés aux collisions entre ondes de spin sont calculés à partir de l'interaction dynamique. En particulier, Dyson obtient l'expression du libre parcours moyen Λ d'une onde de spin d'énergie ε_k^o dans une assemblée d'ondes de spin en équilibre thermique à la température T pour un réseau cubique de côté a

$$\Lambda = \frac{aS^2}{\pi \zeta(5/2)} \frac{k_B T}{\varepsilon_k^o} \left(\frac{k_B T}{8\pi JS}\right)^{-7/2}. \tag{I.63}$$

Les ondes (I.59) présentent également une interaction dynamique ; seule l'onde isolée $a_k^+ \mid 0 >$ (comme l'onde $\mid \vec{k} >$) étant un état propre commun à $\mathcal{H}_o$ et à tous les termes $\mathcal{H}_p$ de la série (I.35) (puisqu'ils contiennent au moins deux opérateurs d'annihilation), est un état propre de $\mathcal{H}_H$. Si on fait agir l'hamiltonien sur l'état idéal $\mid a)$ on obtient

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_H \mid a) = (E_o + \sum_k n_k \varepsilon_k^o) \mid a) - \sum_{k_1, k_2} \frac{J}{N} (\gamma_o + \gamma_{k_1-k_2} - \gamma_{k_1} - \gamma_{k_2}) n_{k_1} n_{k_2} \mid a) \\ + \sum_{\substack{k_1,k_2 \\ k_3,k_4}} \frac{J}{2N} (\gamma_{k_1} + \gamma_{k_4} - 2\gamma_{k_2-k_4}) \delta_{k_1+k_2, k_3+k_4} a_{k_1}^+ a_{k_2}^+ a_{k_3} a_{k_4} \mid a) + \ldots \end{aligned} \tag{I.64}$$

Les deux derniers termes écrits donnent respectivement les contributions diagonale $\mathcal{H}_1^d$ et non diagonale $\mathcal{H}_1''$ dans la représentation (I.59) de la partie $\mathcal{H}_1$ de l'interaction.

3 - Importance des interactions

a) L'interaction dynamique entre ondes de spin "physiques" de grande longueur d'onde est faible. En effet, le facteur $\Gamma^q_{k_1k_2}$, qui peut être écrit

$$\Gamma^q_{k_1k_2} = \sum_{\vec{\delta}} e^{i\vec{q}\cdot\vec{\delta}} \left(1 - e^{-i\vec{k}_2\cdot\vec{\delta}}\right)\left(1 - e^{i\vec{k}_1\cdot\vec{\delta}}\right) \qquad (I.65)$$

devient infiniment petit lorsque les longueurs d'onde sont grandes par rapport à l'espacement entre premiers voisins. Il est par contre difficile d'évaluer l'importance de la même interaction pour les ondes "idéales" car elle se présente sous la forme d'une somme infinie de termes. Si toutefois on limite le développement de $\mathcal{H}_1$ à la somme $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$, *on retrouve à partir de l'interaction* $\mathcal{H}_1$ *la section efficace de collision et le libre parcours moyen* Λ *calculés par Dyson.*

b) Dyson donne la contribution des interactions au développement (I.55) de l'aimantation. C'est un terme proportionnel à la quatrième puissance de la température

$$-\frac{3\pi}{2S}\,\zeta\,(3/2)\,\zeta\,(5/2)\left(1 + \frac{0,3}{S}\right)\theta^4. \qquad (I.66)$$

Ce terme est retrouvé par Oguchi sous la forme presque identique

$$-\frac{3\pi}{2S}\,\zeta\,(3/2)\,\zeta\,(5/2)\left(1 + \frac{0,2}{S}\right)\theta^4 \qquad (I.67)$$

en traitant l'hamiltonien (I.35) en théorie des perturbations poussée jusqu'au second ordre, le paramètre $\frac{1}{S}$ définissant les ordres de perturbation. (*$\mathcal{H}_1$ fournit au premier ordre le terme unité de la parenthèse,* et au second ordre, ajouté à la partie diagonale de $\mathcal{H}'_1$ (équation (I.8)), le terme en $0,2/S$).

c) La contribution de l'interaction cinématique est trouvée inférieure à $\exp(-\sigma\, Tc/T)$ où σ est un coefficient de l'ordre de l'unité. Il faut donc en tenir compte au voisinage du point de Curie, mais Dyson conclut que *dans un large domaine de température les ondes de spin peuvent être considérées comme un gaz de particules n'ayant à obéir à aucun principe d'exclusion*(*), *et soumises à de faibles interactions dynamiques.*

Pour préciser cette idée, nous avons calculé au moyen de la formule (I.63) les valeurs de Λ pour des ondes de spin ayant les longueurs d'onde 40a, 12a, et 6a, aux températures Tc/2 et Tc. Les résultats sont figurés sur le tableau I, avec les valeurs des énergies et des nombres d'occupation à ces températures. Tout en faisant des réserves quant à l'extrapolation d'une formule obtenue en faisant une approximation de basse température, on peut remarquer que les libres parcours moyens d'ondes de spin d'énergies variées sont encore très grands (de l'ordre de 50 à 100 distances interatomiques) à la température de transition.

L'ensemble des considérations qui précèdent nous ont suggéré l'étude exposée dans ce mémoire. Nous avons entrepris de décrire un cristal magnétique comme une assemblée d'ondes de spin en interaction, ceci sans faire a priori de restrictions sur le domaine de températures dans lequel la théorie serait valable. Le formalisme utilisé est celui de Holstein et Primakoff. Nous tenons compte de la partie diagonale dans la représentation $\{n_k\}$ de la fraction $\mathcal{H}_1$ des interactions dynamiques qui représente les collisions entre paires d'ondes de spin. Sauf dans la section II du chapitre III, au cours de laquelle est justement examinée l'importance de cette approximation, l'interaction cinématique sera négligée. Dans les deux chapitres suivants nous étudions le système décrit par l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = E_o + \sum_k \varepsilon_k\, n_k - \sum_{k,l} \frac{J}{N}(\gamma_o + \gamma_{k-l} - \gamma_k - \gamma_l)\, n_k\, n_l = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1^d \qquad (I.68)$$

relatif aux substances ferromagnétiques, et le généralisons dans le chapitre IV aux substances ferri- et antiferromagnétiques.

(*) Ceci est valable jusqu'à des températures d'autant plus élevées que le nombre quantique de spin est plus grand.

TABLEAU I

Longueur d'onde $\lambda = \frac{2\pi}{\lvert\vec{k}\rvert}$ pour des ondes de spin d'énergie ε_k^o se propageant dans la direction [100].	40 a	12 a	6 a
Energies ε_k^o.	$k_B T_c/40$	$k_B T_c/4$	$k_B T_c$
Nombre d'occupation moyen $<n_k>_o$ à la température $T_c/2$.	19,5	1,54	0,156
Nombre d'occupation moyen $<n_k>_o$ à la température T_c.	40	3,5	0,6
Libre parcours moyen Λ à la température $T_c/2$.	9770 a	977 a	243 a
Libre parcours moyen Λ à la température T_c.	1730 a	173 a	43 a

Nombres d'occupation et libres parcours moyens

$<n_k>_o$ et Λ désignent respectivement la valeur moyenne du nombre d'occupation de l'état d'onde de spin d'énergie ε_k^o dans l'approximation linéaire et le libre parcours moyen [14] de cette onde. Les nombres indiqués correspondent au cas d'un réseau cristallin cubique simple de côté a, et à la valeur S = 1 du nombre quantique de spin. On a alors [35]

$$k_B T_c / J = 5,69$$

CHAPITRE II

CALCUL DU NOMBRE D'OCCUPATION MOYEN D'UN ÉTAT ÉLÉMENTAIRE

Résumé - La valeur moyenne $< n_k >$ du nombre d'occupation d'un état élémentaire du système d'ondes de spin en interaction est obtenue par deux méthodes différentes. On montre l'équivalence du système étudié et d'un système d'ondes de spin indépendantes dont le spectre en énergie, fonction de la température, peut être déterminé de façon self-consistante. Les deux méthodes utilisées (méthode variationnelle, méthode des équations de mouvement) font intervenir des approximations qu'elles ne justifient pas. L'exactitude des résultats auxquels elles aboutissent dans la limite où on fait tendre vers l'infini le volume du cristal est démontrée dans l'appendice I par une méthode diagrammatique.

I - METHODE VARIATIONNELLE

Ecrivons l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1^d \tag{II.1}$$

sous la forme

$$\mathcal{H} = E_o + \sum_k \varepsilon_k^o \, n_k + \sum_{k,l} V_{kl} \, n_k \, n_l \tag{II.2}$$

où

$$\varepsilon_k^o = 2\gamma_o JS \left(1 - \frac{\gamma_k}{\gamma_o}\right) \tag{II.3}$$

est l'énergie d'excitation d'une onde de spin isolée et

$$J\gamma_k = J \sum_{\vec{\delta}}{}' e^{i\vec{k}.\vec{\delta}} \tag{II.4}$$

la transformée de Fourier de l'intégrale d'échange.

L'élément de matrice

$$V_{kl} = V_{lk} = -\frac{1}{N}(\gamma_o + \gamma_{k-l} - \gamma_k - \gamma_l) \tag{II.5}$$

est inversement proportionnel au nombre N d'atomes du cristal, ou encore au volume total Ω. Sa forme explicite n'intervient pas dans ce chapitre. On appellera (S) le système d'ondes de spin en interaction décrit par $\mathcal{H}$, (S_o) le système décrit par $\mathcal{H}_o$. L'énergie libre du système (S) est

$$F = U - TS. \tag{II.6}$$

L'énergie interne U a pour expression

$$U = < \mathcal{H} > = E_o + \sum_k \varepsilon_k^o < n_k > + \sum_{k,l} V_{kl} < n_k > < n_l >, \tag{II.7}$$

le signe $< >$ désignant(*) une valeur thermique prise sur (S). En écrivant

$$< n_k\, n_l > = < n_k >< n_l >, \tag{II.8}$$

on a supposé négligeables les corrélations entre les occupations d'états différents, hypothèse qui est justifiée dans la section suivante.

Il reste à évaluer l'entropie. Il est intuitif de penser que si l'existence d'une interaction entre les ondes de spin a pour effet de modifier, par rapport au cas des ondes de spin indépendantes, l'énergie des états élémentaires qui leur sont proposés, elle ne joue pas de rôle dans l'opération purement statistique qui consiste à les distribuer dans ces états. On admettra donc [26] que l'expression de l'entropie du système (S) est celle d'une assemblée de bosons indépendants

$$S = - k_B \sum_k \{ < n_k > \log < n_k > - [< n_k > + 1] \log [< n_k > + 1] \} \ . \tag{II.9}$$

k_B est la constante de Boltzmann. On pose $k_B T = \beta^{-1}$. Par suite

$$F = E_o + \sum_k \varepsilon_k^o < n_k > + \sum_{k,l} V_{kl} < n_k >< n_l > + \beta^{-1} \sum_k \{ < n_k > \log < n_k > - [< n_k > + 1] \log [< n_k > + 1] \}. \tag{II.10}$$

La valeur moyenne $< n_k >$ du nombre d'occupation d'un état du système (S) correspondant à un état d'énergie ε_k^o du système (S_o) s'obtient en écrivant la stationnarité de l'énergie libre par rapport à toute variation des $< n_k >$:

$$\frac{\partial F}{\partial < n_k >} = \varepsilon_k^o + \frac{\partial}{\partial < n_k >} \left[\sum_{k,l} V_{kl} < n_k >< n_l > \right] + \beta^{-1} \log \frac{< n_k >}{< n_k > + 1} = 0. \tag{II.11}$$

Définissons la fonctionnelle

$$\mathcal{V} \{ < n_k > \} = \sum_{k,l} V_{kl} < n_k > < n_l > \tag{II.12}$$

et ses dérivées partielles

$$W_k = \frac{\partial \mathcal{V} \{ < n_k > \}}{\partial < n_k >} = \sum_l 2 V_{kl} < n_l > \ . \tag{II.13}$$

L'équation de stationnarité s'écrit

$$\varepsilon_k^o + W_k + \beta^{-1} \log \frac{< n_k >}{< n_k > + 1} = 0. \tag{II.11bis}$$

ou encore, compte tenu de (II.13)

$$\boxed{< n_k > = \frac{1}{\exp \beta \left[\varepsilon_k^o + \sum_l 2 V_{kl} < n_l > \right] - 1}} \tag{II.14}$$

L'équation intégrale (II.14) détermine $< n_k >$ à toute température. Comme il était prévisible d'après la forme choisie pour l'entropie, la loi de distribution est une loi de Bose-Einstein, relative à des états élémentaires d'énergie

$$\boxed{\tilde{\varepsilon}_k = \varepsilon_k^o + \sum_l 2 V_{kl} < n_l >} \tag{II.15}$$

(*) A étant un opérateur quelconque,

$$< A > = \frac{\mathrm{Tr} \{ A \, e^{-\beta \mathcal{H}} \}}{\mathrm{Tr} \{ e^{-\beta \mathcal{H}} \}} \ .$$

Rappelons qu'au chapitre précédent, on a utilisé le signe $< >_o$ *pour désigner* une valeur moyenne prise sur le système (S_o).

Le système (S) est équivalent à toute température à un système d'ondes de spin indépendantes, dont les énergies d'excitation ou énergies "renormalisées" des ondes de spin sont égales aux énergies des ondes de spin dans l'approximation linéaire, augmentées d'un terme self-consistant fonction des nombres d'occupation moyens des nouveaux modes.

On appellera *facteur de renormalisation* le rapport $\tilde{\varepsilon}_k/\varepsilon_k^\circ$. L'étude de ses variations en fonction de la température est faite au chapitre suivant. On établit maintenant l'équation (II.14) par une autre méthode qui s'adaptera très facilement aux cas ferri-et antiferromagnétiques.

II - METHODE DES EQUATIONS DU MOUVEMENT

Le principe en est le suivant [27] : si on peut trouver un couple d'opérateurs c_k^+, c_k, tels que leurs commutateurs avec l'hamiltonien du système satisfassent à

$$[\mathcal{H}, \ c_k^+] = \varepsilon_k \, c_k^+ \tag{II.16a}$$

$$[\mathcal{H}, \ c_k] = - \varepsilon_k \, c_k \tag{II.16b}$$

avec

$$\varepsilon_k > 0,$$

ces opérateurs créent et annihilent des excitations élémentaires à une particule d'énergie ε_k. Il suffit pour le voir de faire agir (II.16) sur un état propre quelconque de l'hamiltonien. L'état fondamental $|0>$ est caractérisé par sa propriété d'être l'état d'énergie minimale, ce qui s'exprime par la condition supplémentaire

$$c_k \ |0> = 0. \tag{II.17}$$

L'ensemble des équations (II.16) et (II.17) permet de déterminer les opérateurs c_k^+, c_k, les énergies ε_k, et l'état fondamental du système.

Il est en général impossible dans des cas non évidents par ailleurs de trouver des opérateurs satisfaisant exactement aux équations (II.16). Essayons de réaliser ces relations avec les opérateurs a_k^+ et a_k ($n_k = a_k^+ a_k$) et calculons les commutateurs $[\mathcal{H}, \ a_k^+]$ et $[\mathcal{H}, \ a_k]$. On obtient

$$[\mathcal{H}, \ a_k^+] = (\varepsilon_k^\circ + \sum_l 2V_{kl} \, n_l) \ a_k^+ \tag{II.18a}$$

$$[\mathcal{H}, \ a_k] = - (\varepsilon_k^\circ + \sum_l 2V_{kl} \, n_l) \ a_k \tag{II.18b}$$

Les seconds membres sont égaux chacun à une somme de deux termes dont le deuxième n'est pas linéaire en a_k^+ ou a_k. Il le devient si on remplace l'opérateur n_k par sa valeur moyenne $< n_k >_\sim$. On obtient alors

$$\begin{aligned} [\mathcal{H}, \ a_k^+] &= \tilde{\varepsilon}_k \ a_k^+ \\ [\mathcal{H}, \ a_k] &= - \tilde{\varepsilon}_k \ a_k \end{aligned} \tag{II.19}$$

Les commutateurs ont maintenant la forme (II.16) et conduisent pour les énergies des excitations élémentaires aux énergies renormalisées (II.15).

Nous n'avons pas précisé sur quel système était prise la valeur moyenne $< n_k >_\sim$. Remarquons que les équations (II.19) sont identiques à celles qu'on obtiendrait sans linéarisation à partir de l'hamiltonien

$$\tilde{\mathcal{H}}_o = E_o + \sum_k \tilde{\varepsilon}_k \ a_k^+ \ a_k + C \tag{II.20}$$

où C est un nombre. On opère de façon self-consistante en prenant la valeur moyenne de n_k sur le système $(\tilde{S})$ de quasi-ondes de spin libres décrit par $\tilde{\mathcal{H}}_o$. $< n_k >_\sim$ est alors solution de l'équation intégrale

$$< n_k >_{\sim} = \frac{1}{\exp \beta \left[\varepsilon_k^o + \sum_l 2V_{kl} < n_l > \right] - 1} \tag{II.21}$$

qui est identique à (II.14).

On détermine C de façon que

$$< \tilde{\mathcal{H}}_o > = < \mathcal{H} >, \tag{II.22}$$

d'où, en utilisant (II.8),

$$C = - \sum_l V_{kl} < n_k > < n_l >. \tag{II.23}$$

Nous avons appliqué la méthode des équations du mouvement à l'hamiltonien $\mathcal{H} = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1^d$. Appliquée à l'hamiltonien $(\mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1)$, elle aboutirait au même résultat (II.19) à condition de négliger un terme trilinéaire supplémentaire, traitement identique à celui qui, dans le problème des électrons dans les métaux, équivaut à l'approximation de Hartree. L'étude exposée ici peut donc être considérée indifféremment comme une étude rigoureuse dans la limite des volumes infinis (on le montre dans l'appendice I) du système décrit par l'hamiltonien $\mathcal{H}$, ou comme l'étude dans l'approximation de Hartree du système plus complexe décrit par $(\mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1)$.

Pour compléter la méthode il convient d'établir à partir de l'équation implicite (II.21) l'expression du logarithme de la fonction de partition, dont découlent celles des grandeurs thermodynamiques du système. Ecrivons $< n_k >$ sous la forme

$$< n_k > = \frac{1}{e^{\beta(\varepsilon_k^o + W_k) - \alpha} - 1} = \frac{1}{z^{-1} e^{\beta(\varepsilon_k^o + W_k)} - 1} \tag{II.24}$$

où :

$$z = e^{\alpha}, \quad \alpha = \beta\mu. \tag{II.25}$$

On a introduit le potentiel chimique μ pour effectuer le calcul de log Z. En effet si

$$Z = \mathrm{Tr}\ e^{\alpha \mathcal{N} - \beta \mathcal{H}} \tag{II.26}$$

est la grande fonction de partition et

$$\mathcal{N} = \sum_k n_k \tag{II.27}$$

l'opérateur nombre total de particules, la relation

$$< \mathcal{N} > = \sum_k < n_k > = z \frac{\partial \log Z}{\partial z} \tag{II.28}$$

permet de déterminer log Z à partir de la connaissance de $< n_k >$ par une intégration sur la variable z [28]. On a :

$$\begin{aligned} \log Z &= - \beta E_o + \sum_k \int_o^z \frac{dz}{e^{\beta(\varepsilon_k^o + W_k)} - z} \\ &= - \beta E_o + \sum_k \log [< n_k > + 1] + \sum_k \int_o^z < n_k > \frac{\partial(\beta W_k)}{\partial z} dz. \end{aligned} \tag{II.29}$$

En remarquant que

$$\sum_k \int_o^z W_k \frac{\partial < n_k >}{\partial z} dz = \mathcal{V} \{ < n_k > \} \tag{II.30}$$

il s'ensuit que

$$\log Z = - \beta E_o + \sum_k \log [< n_k > + 1] + \beta \sum_k W_k < n_k > - \beta \sum_{k,l} V_{kl} < n_k > < n_l > \tag{II.31}$$

Si on remplace W_k par sa valeur déduite de l'équation (II.11bis) on obtient l'expression de log Z en fonction des variables $< n_k >$:

$$\log Z = - \beta E_o + \sum_k \{ [< n_k > + 1] \log [< n_k > + 1] - < n_k > \log < n_k > \} - \beta \sum_k \varepsilon_k^o < n_k > - \beta \sum_{k,l} V_{kl} < n_k > < n_l > \tag{II.32}$$

et on retrouve la formulation (II.10) de l'énergie libre

$$F = - \beta^{-1} \log Z$$

du système.

On peut enfin évaluer la valeur moyenne $< n_k \, n_l >$. De la relation

$$< n_k > = - \beta^{-1} \frac{\partial \log Z}{\partial \varepsilon_k^o} \tag{II.33}$$

on déduit

$$\begin{aligned} - \beta^{-1} [< n_k \, n_l > - < n_k > < n_l >] &= - \beta^{-1} \frac{\partial^2 \log Z}{\partial \varepsilon_k^o \, \partial \varepsilon_l^o} \\ &= \frac{\partial < n_k >}{\partial \varepsilon_l^o} \\ &= 0 \text{ si } N \longrightarrow \infty \end{aligned} \tag{II.34}$$

ce qui démontre la validité de la relation (II.8) dans la limite où on fait tendre vers l'infini le volume Ω du système.

CHAPITRE III

PROPRIÉTÉS DU SYSTÈME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION CAS DES FERROMAGNÉTIQUES

Résumé - On étudie l'évolution en fonction de la température des propriétés du système d'ondes de spin en interaction. Un traitement exact possible dans le cas particulier d'une interaction d'échange à portée infinie indique quelle approximation cesse d'être valable dans la région du point de transition. On cite enfin les utilisations qui ont été faites de la théorie pour interpréter des courbes d'aimantation expérimentales.

I - VARIATIONS AVEC LA TEMPERATURE DU SPECTRE EN ENERGIE DES ONDES DE SPIN ET DE L'AIMANTATION

1 - Généralités

On a montré au cours du chapitre précédent que le système (S) d'ondes de spin en interaction diagonale, défini par l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = E_o + \sum_k \varepsilon_k^o \, n_k + \sum_{k,l} V_{kl} \, n_k \, n_l \qquad \text{(III.1)}$$

était équivalent à un système de quasi-ondes de spin indépendantes, dont les énergies d'excitation, variables avec la température, avaient pour expression

$$\tilde{\varepsilon}_k = \varepsilon_k^o + \sum 2V_{kl} \, < n_l > = \alpha_k (T) \, \varepsilon_k^o. \qquad \text{(III.2)}$$

La valeur moyenne $< n_k >$ du nombre d'occupation d'un état d'énergie $\tilde{\varepsilon}_k$ est :

$$< n_k > = \frac{1}{e^{\frac{\tilde{\varepsilon}_k}{k_B T}} - 1} . \qquad \text{(III.3)}$$

L'équivalence indiquée sous-entend que les valeurs moyennes $< n_k >$ ne sont pas trop élevées, ceci afin d'assurer la convergence du développement en série des perturbations (Appendice I). On verra que les résultats obtenus sont partout consistants avec cette hypothèse.

On se propose, dans cette section, de déterminer les variations avec la température du spectre en énergie des ondes de spin, et d'en déduire celles de l'aimantation. Il faut pour cela résoudre pour toute température le système des équations (III.2) et (III.3). Leur combinaison semble a priori conduire, soit à une équation intégrale en $< n_k >$, soit, ce qui est équivalent, à un système de N équations couplées donnant les facteurs de renormalisation $\alpha_k(T)$. En fait, le problème est considérablement plus simple.

Rappelons la forme du potentiel d'interaction entre ondes de spin

$$\mathcal{H}_1^d = \sum_{k,l} V_{kl} \, n_k \, n_l = - \frac{J}{N} \sum_{k,l} (\gamma_o + \gamma_{k-l} - \gamma_k - \gamma_l) \, n_k \, n_l \qquad \text{(III.4)}$$

Pour tout ferromagnétique dont les ions magnétiques forment un réseau de Bravais, il est possible de découpler les sommations sur $\vec{k}$ et $\vec{l}$ de façon à faire apparaître le carré $(\sum_k \varepsilon_k^o\, n_k)^2$ de l'énergie des ondes de spin du système (S_o). La démonstration de cette propriété est donnée dans l'appendice II. Le potentiel s'écrit alors :

$$\mathcal{H}_1^d = \sum_{k,l} V'_{kl}\, n_k\, n_l = -\frac{1}{4JN\gamma_o S^2} \sum_{k,l} \varepsilon_k^o\, \varepsilon_l^o\, n_k\, n_l \,. \qquad \text{(III.5)}$$

Notons que V_{kl} est distinct de V'_{kl}.

La détermination des énergies $\tilde{\varepsilon}_k$ faite en utilisant la forme (III.5) du potentiel conduit pour ces énergies à l'expression suivante :

$$\tilde{\varepsilon}_k = \varepsilon_k^o \left(1 - \frac{1}{2JN\gamma_o S^2} \sum_l \varepsilon_l^o < n_l >\right) = \alpha(T)\, \varepsilon_k^o. \qquad \text{(III.6)}$$

La variation du spectre d'ondes de spin en fonction de la température est donc entièrement déterminée par celle d'un seul facteur de renormalisation $\alpha(T)$ indépendant de $\vec{k}$, solution de l'équation implicite

$$\boxed{\alpha(T) = 1 - \frac{1}{2JN\gamma_o S^2} \sum_l \frac{\varepsilon_l^o}{\exp\left[\dfrac{\alpha(T)\, \varepsilon_l^o}{k_B T}\right] - 1}} \qquad \text{(III.7)}$$

Les résultats qui viennent d'être établis (possibilité de découpler les sommations dans le potentiel d'interaction, unicité du facteur de renormalisation, qui en découle) ainsi que les relations (III.5) à (III.7) qui en sont l'expression, sont liés à la considération d'interactions d'échange isotropes de portée limitée aux premiers voisins.

Si (toujours pour un réseau de Bravais) on étend la portée des interactions de façon à inclure p types de voisins indicés i, les énergies d'excitation des ondes de spin indépendantes peuvent être écrites

$$\varepsilon_k^o = \sum_{i=1}^{p} \varepsilon_k^{oi} \qquad \text{(III.8)}$$

où, avec des notations évidentes,

$$\varepsilon_k^{oi} = 2\gamma_o^i\, J^i\, S \left(1 - \frac{\gamma_k^i}{\gamma_o^i}\right) ; \quad \gamma_k^i = \sum_{\vec{\delta}^i} e^{i\vec{k}.\vec{\delta}^i} \qquad \text{(III.9)}$$

et les énergies renormalisées,

$$\tilde{\varepsilon}_k = \alpha_k\,(T)\, \varepsilon_k^o = \sum_{i=1} a^i(T)\, \varepsilon_k^{oi} \,. \qquad \text{(III.10)}$$

Les coefficients $a^i(T)$ sont les solutions d'équations implicites couplées

$$a^i(T) = 1 - \frac{1}{2J^i N\gamma_o^i S^2} \sum_l \frac{\varepsilon_l^{oi}}{\exp\left[\dfrac{\sum_j a^j(T)\, \varepsilon_l^{oj}}{k_B T}\right] - 1} \qquad \text{(III.11)}$$

Les formules (III.8) à (III.11) se déduisent sans difficulté des expressions (I.36) et (I.37) de $\mathcal{H}_0$ et $\mathcal{H}_1$. Ici le facteur de renormalisation dépend de $\vec{k}$ mais par l'intermédiaire de fonctions connues et seuls quelques coefficients en nombre égal à celui des intégrales d'échange sont à déterminer. Une situation analogue se présente enfin dans le cas tout à fait général d'un réseau possédant une structure. Il existe alors autant de modes d'excitations collectives des spins que de sites distincts dans la maille magnétique élémentaire du réseau. Les énergies renormalisées relatives à chaque mode ν ont la forme

$$\varepsilon_{k\nu} = \sum_i a_\nu^i\,(T)\, f_\nu^i(\vec{k}), \qquad \text{(III.12)}$$

où les fonctions $f^{i}_{\nu}(\vec{k})$ sont connues et les coefficients $a^{i}_{\nu}(T)$ solutions d'équations analogues à (III.11). Nous traitons dans le chapitre suivant le cas formellement analogue à celui-ci d'une substance ferrimagnétique à deux sous-réseaux.

Indiquons que parmi les quelques ferromagnétiques isolants connus à l'heure actuelle, l'oxyde et le sulfure d'europium ont un réseau magnétique cubique à faces centrées et on est conduit [29-31] à leur attribuer respectivement une et deux intégrales d'échange. Citons également l'exemple du bromure de chrome $CrBr_3$ dont le modèle [32] fait intervenir deux atomes dans la maille magnétique et deux intégrales d'échange.

Reportons-nous à l'expression (III.6) de l'énergie renormalisée $\tilde{\varepsilon}_k$. Aux basses températures, elle décroît comme l'énergie moyenne $\sum_l \varepsilon^{\circ}_l < n_l >$ des ondes de spin. Keffer et Loudon [15] ont donné de ce résultat une interprétation très simple basée sur le modèle semi-classique : selon ce modèle, dans un réseau où coexistent des ondes de spin de même énergie, les spins des différents ions effectuent un mouvement de précession uniforme d'amplitude constante autour de l'axe $\overrightarrow{Oz}$. La phase du mouvement varie périodiquement avec une longueur d'onde donnée par le vecteur $\vec{k}$. Lorsque les ondes de spin présentes ont une grande longueur d'onde, la direction de l'aimantation locale varie lentement dans le cristal. Une onde additionnelle venant se superposer à cette figure instantanée voit un spin effectif de longueur $\bar{S}$ telle que son carré S^2 soit proportionnel au cosinus de l'angle entre deux spins voisins, c'est-à-dire à l'énergie moyenne $\sum_{i,j} <\bar{S}_i . \bar{S}_j>$ du système.

Il suffit d'écrire

$$- JNz\bar{S}^2 = - JNzS^2 + \sum_l \varepsilon^{\circ}_l < n_l > \qquad \text{(III.13)}$$

pour obtenir la valeur de $\bar{S}$

$$\bar{S} = S\left(1 - \frac{1}{2JNzS^2} \sum_i \varepsilon^{\circ}_l < n_l >\right). \qquad \text{(III.14)}$$

Comme le nombre S intervient linéairement dans ε°_k, la remarque précédente conduit à l'expression (III.6) des énergies $\tilde{\varepsilon}_k$.

Le raisonnement précédent adapté à des ondes de spin de longueurs d'onde voisines des distances interatomiques donne lieu à une renormalisation proportionnelle à l'aimantation, ce qui est l'équivalent d'une approximation de champ moléculaire(*) : en plus de l'illustration de la méthode, l'interprétation de Keffer et Loudon indique donc que la renormalisation selon l'énergie moyenne est liée à la prépondérance d'ondes de spin de grandes longueurs d'ondes. Elle ne permet pas toutefois de donner des précisions quantitatives sur son domaine de validité.

La connaissance de $\alpha(T)$ à toute température entraîne celle des autres grandeurs décrivant le système :

- le nombre d'occupation moyen $< n_k >$

$$< n_k > = \frac{1}{\exp\left[\frac{\alpha(T)\,\varepsilon^{\circ}_k}{k_B T}\right] - 1} \qquad \text{(III.15)}$$

- l'aimantation réduite, fonction du nombre total d'ondes excitées

$$m^{\alpha}(T) = 1 - \frac{1}{NS} \sum_k < n_k > \qquad \text{(III.16)}$$

- l'énergie interne moyenne

$$U(T) = < \mathcal{H} > = E\,[\alpha(T)]^2 \qquad \text{(III.17)}$$

(*) Callen [33] a proposé une théorie du ferromagnétisme utilisant le formalisme des fonctions de Green dans laquelle les énergies des excitations élémentaires sont renormalisées selon l'énergie moyenne aux basses températures, et selon l'aimantation au voisinage de la température de transition.

2 - Expressions du facteur de renormalisation et de l'aimantation pour un réseau cubique simple.

La forme de l'équation implicite dépend, par l'intermédiaire de γ_o et de ε_l^o, de la géométrie de l'environnement d'un ion. Nous l'avons résolue dans le cas d'un réseau cubique simple.

Nous exposons dans ce qui suit les principales étapes du calcul.

Des formules générales de γ_k, ε_k^o données au chapitre I (équations (I.20) et (I.21)) on peut déduire les expressions relatives à un réseau cubique de côté a :

$$\frac{\gamma_k}{\gamma_o} = \frac{1}{3} \sum_{\mu} \cos ak_{\mu} \tag{III.18a}$$

$$\varepsilon_k^o = 12\ JS \left(1 - \frac{1}{3} \sum_{\mu} \cos ak_{\mu}\right). \tag{III.18b}$$

On est amené à définir un vecteur d'onde réduit

$$\vec{k'} = a\vec{k}. \tag{III.19}$$

La transformation en intégrations des sommations sur les N valeurs de $\vec{k}$ distribuées uniformément dans la première zone de Brillouin du cristal (cube simple de côté $2\pi/a$) s'effectue selon la règle de correspondance :

$$\sum_{k} f(a\vec{k}) \longrightarrow \frac{N}{8\pi^3} \iiint_{-\pi}^{+\pi} d_3\ k'\ f(\vec{k'}). \tag{III.20}$$

Le développement en série géométrique de la fonction de distribution qui intervient dans l'intégrant conduit à l'expression suivante de α, déduite de (III.7)

$$\alpha(T) = 1 - \frac{1}{S} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{8\pi^3} \iiint_{-\pi}^{+\pi} \left(1 - \frac{1}{3} \sum_{\mu} \cos k'_{\mu}\right) e^{-\frac{12nJS\alpha}{k_B T}\left(1-\frac{1}{3}\sum_{\mu}\cos k'_{\mu}\right)} d_3 k' \tag{III.21}$$

qui peut être écrite exactement en termes de deux fonctions de Bessel modifiées de première espèce, ayant respectivement pour représentation intégrale :

$$I_o(z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} e^{z\cos x}\ dx \tag{III.22a}$$

$$I_1(z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} \cos x\ e^{z\cos x}\ dx. \tag{III.22b}$$

L'expression finale de l'équation implicite est :

$$\boxed{\alpha(T) = 1 - \frac{1}{S} \left[\Sigma_1 \left(\frac{\alpha}{T}\right) - \Sigma_2 \left(\frac{\alpha}{T}\right)\right]} \tag{III.23}$$

où posant

$$u_{n\alpha T} = \frac{4nJS\alpha}{k_B T} \tag{III.24}$$

on a

$$\Sigma_1 \left(\frac{\alpha}{T}\right) = \sum_{n=1}^{\infty} \left[e^{-u_{n\alpha T}}\ I_o(u_{n\alpha T})\right]^3 \tag{III.25a}$$

$$\Sigma_2 \left(\frac{\alpha}{T}\right) = \sum_{n=1}^{\infty} \left[e^{-3u_{n\alpha T}}\ I_o^2(u_{n\alpha T}) I_1(u_{n\alpha T})\right] \tag{III.25b}$$

L'aimantation réduite est fonction de $\Sigma_1\left(\frac{\alpha}{T}\right)$ seule :

$$\boxed{m^a(T) = 1 - \frac{1}{S}\,\Sigma_1\left(\frac{\alpha}{T}\right)} \qquad \text{(III.26)}$$

Pour déterminer les variations de α et m^a avec la température, il suffit de calculer avec précision Σ_1 et Σ_2 pour une série de valeurs numériques de α/t, t étant une température réduite(*) proportionnelle à $k_B T/J$. On peut en déduire également les variations avec la température de l'aimantation $m^1(t)$ du système (S_o) d'ondes de spin en l'absence d'interactions. Indiquons qu'il existe en général deux solutions à l'équation implicite. Nous avons conservé celle qui se déduit par continuité de la solution $\alpha = 1$ au zéro absolu. On verra dans la section II que la deuxième solution doit effectivement être rejetée.

On a tracé les courbes $\alpha(t)$, $m^a(t)$ et $m^1(t)$ pour les nombres quantiques de spin allant par valeurs demi-entières de $S = 0,5$ à $S = 3$ (figures 1 à 6). Sur l'échelle des températures est notée pour référence une valeur théorique approximative t_c de la température de Curie calculée [34, 35] pour le réseau et le spin correspondant par la méthode de Kramers-Opechowski.

3 - Caractères des courbes $\alpha(t)$ et $m(t)$.

L'énergie d'excitation $\tilde{\varepsilon}_k$ des quasi-ondes de spin décroît quand la température s'élève. Par suite leur nombre à toute température est plus élevé que ne le serait le nombre d'ondes excitées en l'absence d'interactions. Ceci explique la décroissance de $m^a(t)$, plus rapide que celle de $m^1(t)$. L'aimantation $m^1(t)$ s'annulerait pour une température voisine du double de la température de Curie.

Aux basses températures, les expressions condensées de $\alpha(t)$ et $m^a(t)$ écrites au paragraphe précédent permettent d'obtenir rapidement à tous les ordres les développements de ces grandeurs en séries de puissances de t. Les basses températures correspondent en effet aux grandes valeurs de la variable $u_{n\alpha T}$. L'utilisation des développements asymptotiques des fonctions de Bessel conduit aux expressions :

$$m^a(t) \sim 1 - \frac{1}{S}\left[\zeta\left(\frac{3}{2}\right)\left(\frac{t}{12\alpha}\right)^{3/2} + \frac{3\pi}{4}\zeta\left(\frac{5}{2}\right)\left(\frac{t}{12\alpha}\right)^{5/2} + \frac{33\pi^2}{32}\zeta\left(\frac{7}{2}\right)\left(\frac{t}{12\alpha}\right)^{7/2} + \ldots\right] \qquad \text{(III.27)}$$

$$\alpha(t) = 1 - \frac{1}{S}\left[\pi\,\zeta\left(\frac{5}{2}\right)\left(\frac{t}{12\alpha}\right)^{5/2} + \ldots\right] . \qquad \text{(III.28)}$$

La fonction de Rieman $\zeta(x)$ a été définie en (I.57).

Si dans le développement (III.27) on remplace α par l'unité on néglige l'effet des interactions et on obtient une série représentant $m^1(t)$ dans une approximation de basse température. Nous avons tracé sur les figures 2, 4, 6, les courbes $m^1_{3/2}$ et $m^1_{5/2}$ représentant ce développement limité respectivement à ses deux et trois premiers termes. On remarque que $m^1_{5/2}(t)$ est toujours très voisine de la courbe exacte $m^1(t)$.

Si dans l'expression de l'aimantation limitée au terme en $t^{3/2}$ on remplace α par son expression développée, on obtient le terme correctif en $t^{3/2} \times t^{5/2} = t^4$ de Dyson [14] et Oguchi [25], exception faite du facteur en $\frac{1}{S}$ qui n'y figure pas. Il provient en effet des termes non diagonaux de $\mathcal{H}_1$ qui n'ont pas été inclus dans l'hamiltonien étudié.

Faisons ici une remarque. Jusqu'aux travaux récents de Davis et Narath [36], les courbes expérimentales d'aimantation déduites des mesures très fines de résonance nucléaire étaient interprétées à l'aide de la théorie linéaire des ondes de spin. Or rappelons-le, deux approximations distinctes sont faites simultanément dans cette théorie :

a) l'approximation linéaire proprement dite, qui consiste à négliger les interactions entre ondes de spin.

(*) On a choisi $t = \frac{3k_B T}{2\pi JS} = 12\,\theta$

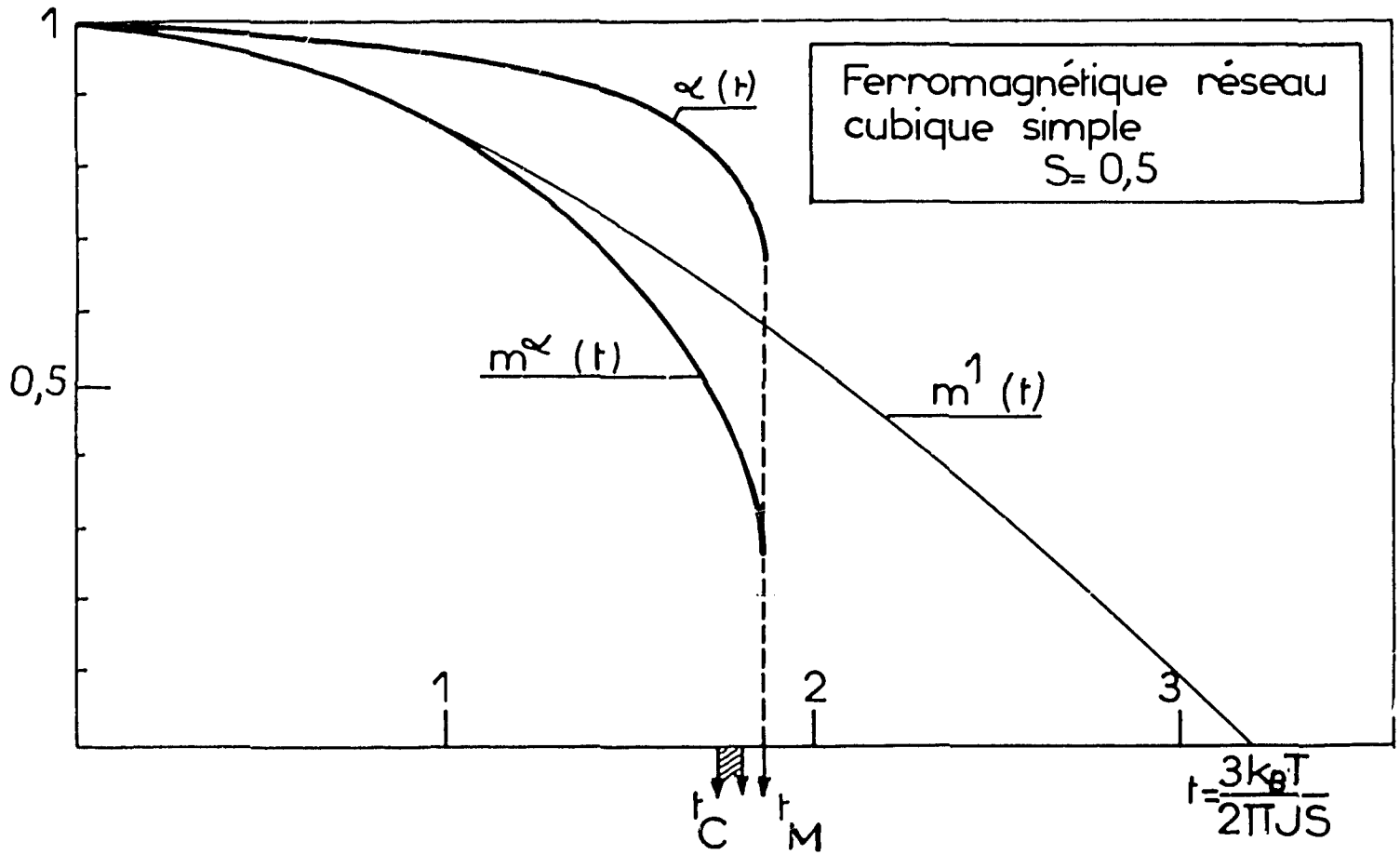


Figure 1

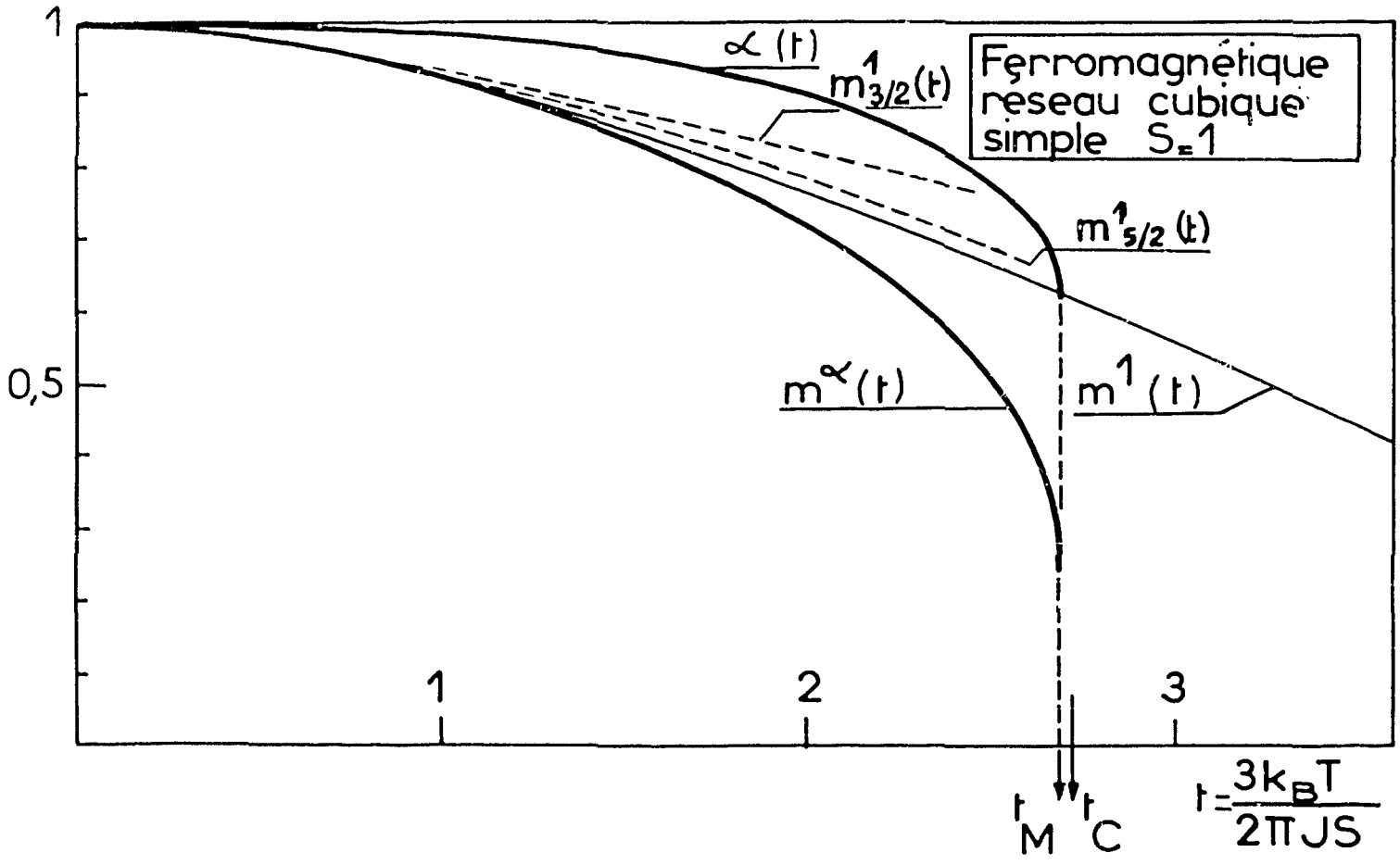


Figure 2

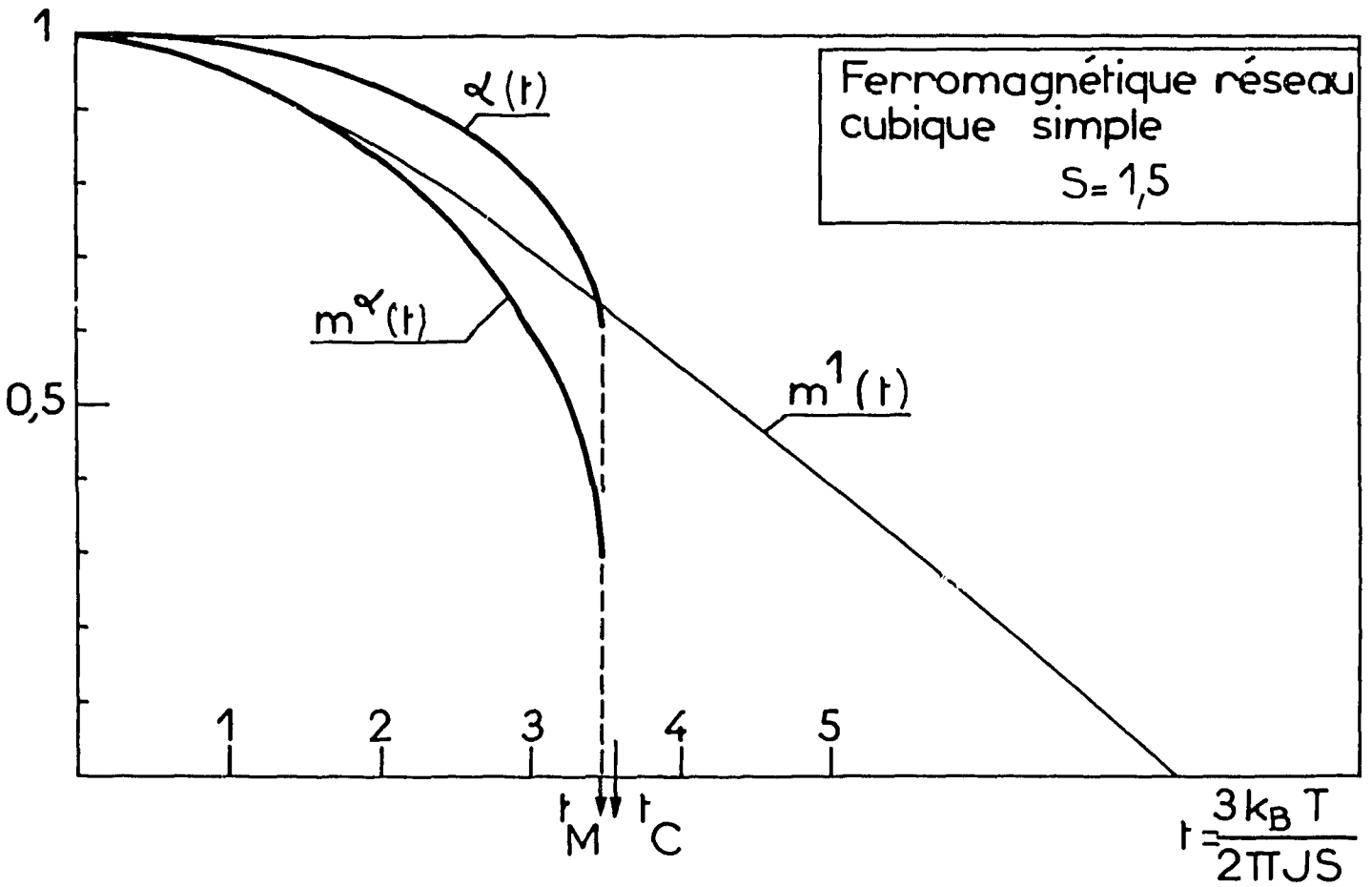


Figure 3

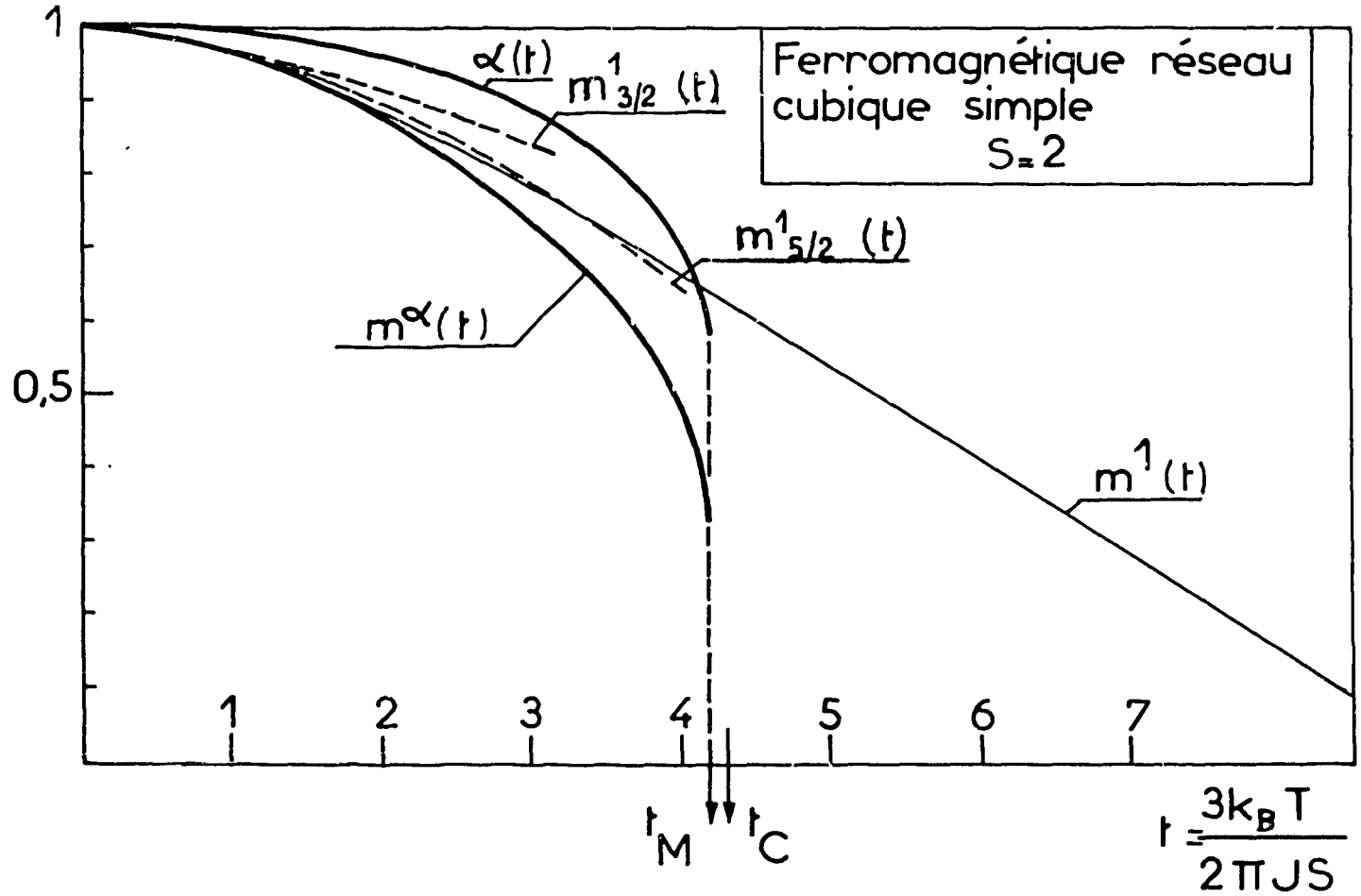


Figure 4

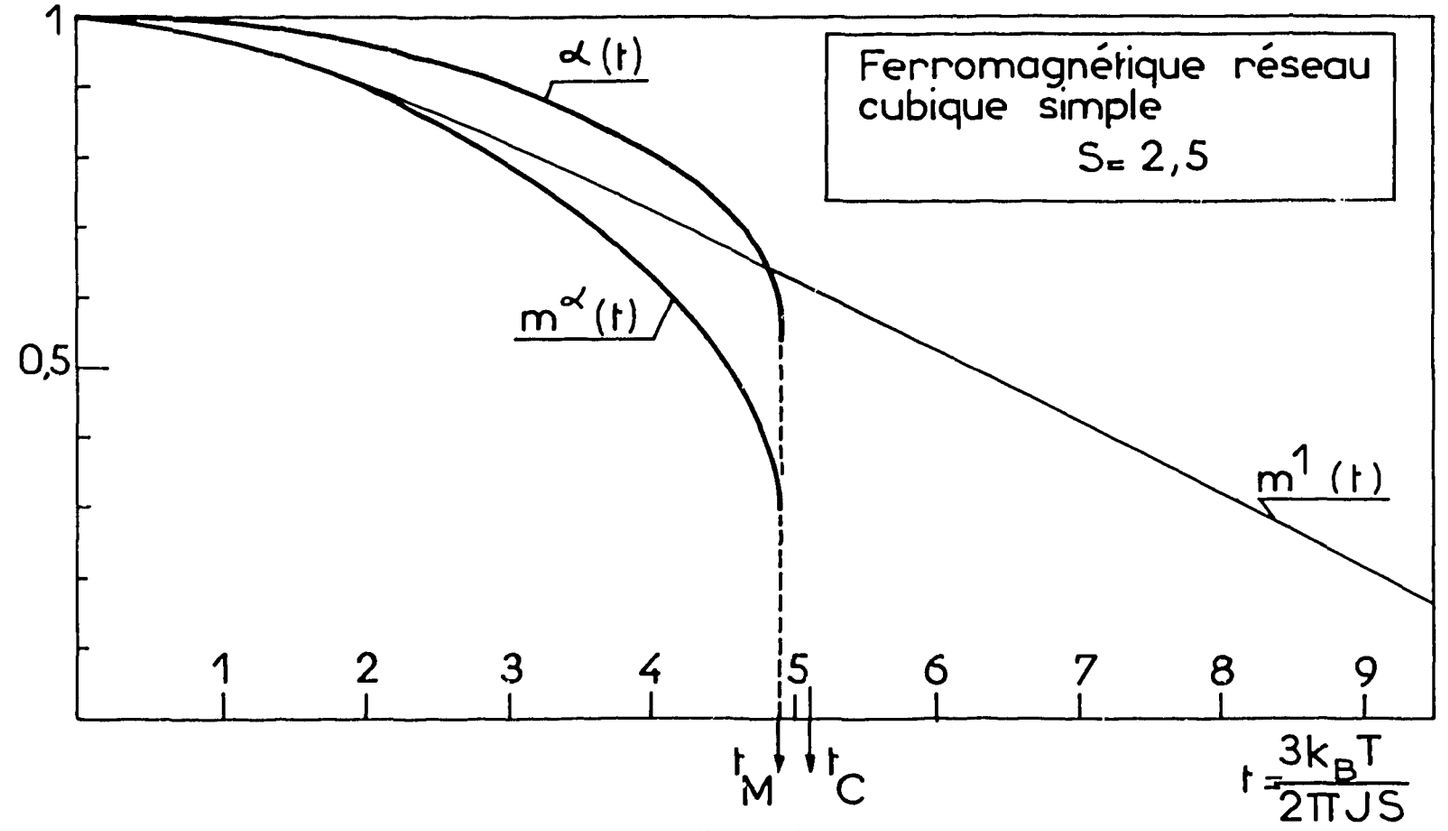


Figure 5

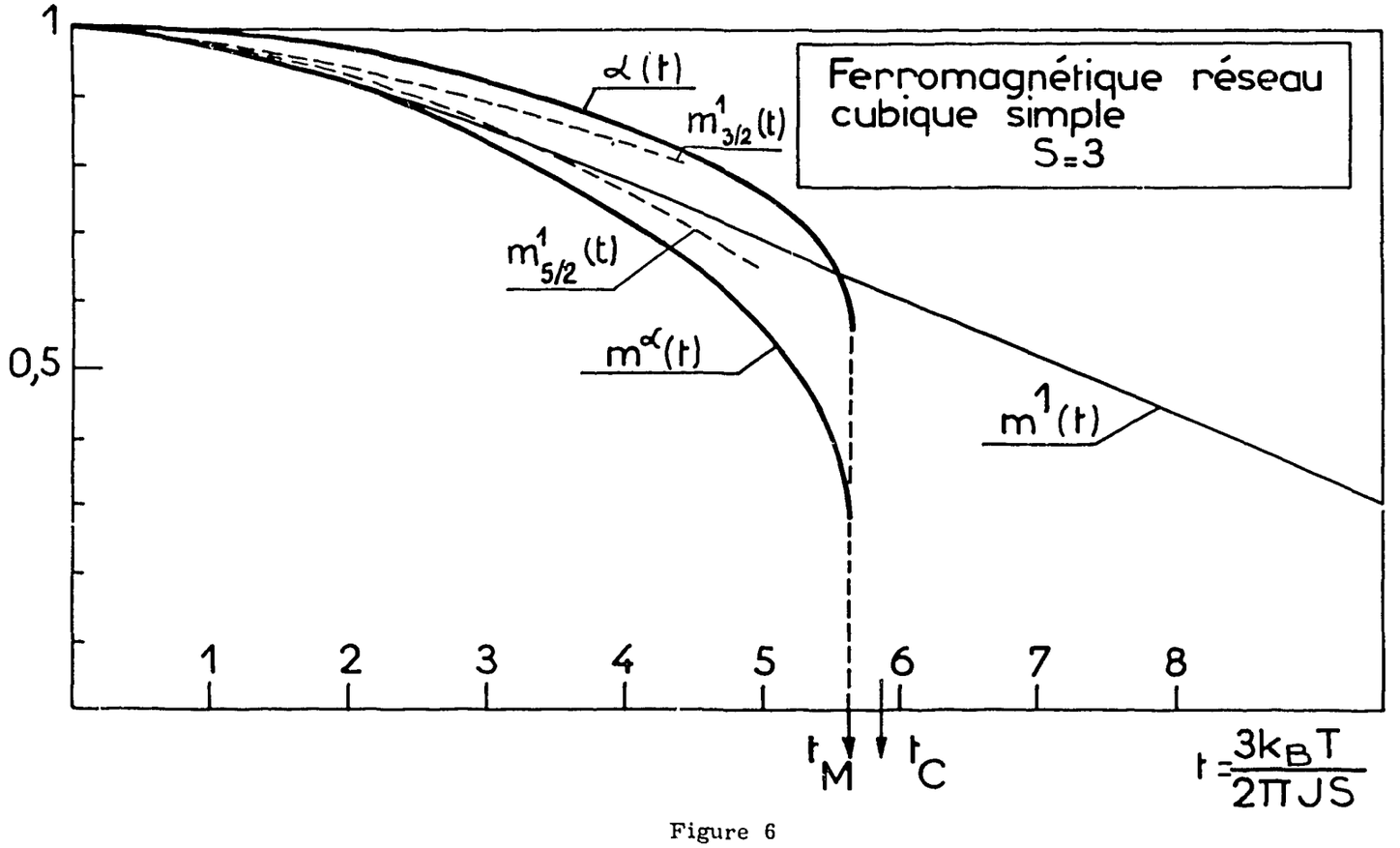


Figure 6

Figures 1 à 6 : Réseau ferromagnétique cubique simple. Valeurs de S allant de 0,5 à 3. Variation avec la température du facteur de renormalisation α, de l'aimantation $m^{\alpha}(t)$, et de l'aimantation $m^{1}(t)$ en l'absence d'interactions entre ondes de spin. Sur les figures 2, 4, 6, $m^{1}_{3/2}$ et $m^{1}_{5/2}$ désignent le développement de $m^{1}(t)$ dans une approximation de basse température, limité aux termes en $t^{3/2}$ et $t^{5/2}$. t_c désigne une estimation théorique [35] de la température de Curie.

b) une approximation de grande longueur d'onde (utilisation d'une relation de dispersion approchée en k^2, intégration sur la totalité de l'espace réciproque), qui consiste à représenter l'aimantation $m^1(t)$ par une des expressions $m^1_{3/2}$ ou $m^1_{5/2}$. Le fait que le développement en série de $m^1(t)$ soit divergent (série asymptotique) explique que sa précision soit limitée à toute température et ne puisse pas être améliorée en augmentant le nombre de termes conservés. Davis et Narath ont montré qu'à des températures (5,25°K) où l'effet des interactions entre ondes de spin est pratiquement négligeable, l'approximation de grande longueur d'onde conduisait à des erreurs de 40 % environ dans l'évaluation des intégrales d'échange et devait être remplacée par la considération de l'expression exacte $m^1(t)$.

Revenons à l'examen des courbes $\alpha(t)$ et $m^\alpha(t)$. Dans le domaine de température qui entoure le point de Curie théorique t_c, elles présentent quelle que soit la valeur du nombre quantique de spin un ensemble de propriétés que nous énumérons ci-dessous :

- Il existe une température maximale t_M dépendant du spin qui limite supérieurement la région dans laquelle l'équation en α admet des solutions réelles.

- A la température t_M le facteur α a atteint sa valeur minimale α_M(0,67 pour S = 0,5 ; 0,55 pour S = 3) et l'aimantation est réduite à 25 % de sa valeur à la saturation.

Les rapports $k_B T_M/J$ ont été déterminés avec précision et comparés aux rapports $k_B T_c/J$ relatifs aux points de Curie théoriques [35] correspondants. Les résultats sont indiqués sur le tableau II. A l'exception du cas S = 0,5, les valeurs de T_M sont systématiquement plus faibles que celles des températures de transition et en sont très voisines (elles en diffèrent par moins de 5 %).

TABLEAU II

spin	0,5	1	1,5	2	2,5	3
$k_B T_M/J$	1.95	5,65	10,8	17,6	25,8	35,6
$k_B T_c/J$	1,83 1,89	5,69 5,66	11,08	18,03 18,08	26,56 26,54	36,63 36,76

Comparaison des températures maximales T_M et
des valeurs théoriques [34, 35] des températures de Curie

Jusqu'au voisinage de t_c, le modèle pourrait représenter d'une façon convenable le comportement d'une substance ferromagnétique. Dans la section III, nous citons quelques comparaisons avec des résultats expérimentaux. Cependant l'existence d'une température maximale, qui, on le verra, n'est pas une température de transition, le caractère inachevé des courbes d'aimantation, sont un ensemble de propriétés aberrantes prouvant que les approximations faites ne sont plus valables dans la région du point de transition.

Les valeurs des libres parcours moyens indiqués au chapitre I, et d'autre part, le fait que le facteur α reste voisin de l'unité jusqu'à t_M semblent écarter l'hypothèse qui attribuerait l'origine de ce comportement aux trop nombreuses collisions entre ondes de spin.

Par contre, nous n'avons pas tenu compte de l'existence d'une borne supérieure aux opérateurs n_i. Ceci a pour effet d'introduire dans le calcul des traces, donc des grandeurs thermodynamiques, des termes supplémentaires incorrects. Et l'on sait d'après les travaux de Dyson [14] et Wortis [37] que s'il est négligeable aux basses et moyennes températures, cet effet peut devenir très important au voisinage du point de transition. Nous montrons sur un cas particulier, dans la section suivante, qu'il est bien responsable de l'ensemble des propriétés observées. Nous déterminons dans ce cas le domaine de validité de l'approximation correspondante.

II - CAS PARTICULIER D'UNE INTERACTION D'ECHANGE A PORTEE INFINIE

Un ensemble de spins localisés sur les noeuds d'un réseau cristallin et couplés par des interactions d'échange dont la portée est uniforme et infinie est décrit par l'hamiltonien

$$- J \sum_{\substack{i,j \\ i \neq j}} \vec{S}_i . \vec{S}_j . \qquad \text{(III.29)}$$

Les sommations sur i et j sont étendues à tous les noeuds du réseau. Le problème a été étudié en détail par C. Kittel et H. Shore [38]. On le reprend dans le cas limite où le nombre N d'ions du cristal est infini. L'hamiltonien d'Heisenberg est alors équivalent [38] à l'hamiltonien d'Ising

$$- J \sum_{\substack{i,j \\ i \neq j}} S_i^z S_j^z . \qquad \text{(III.30)}$$

La connaissance dans ce cas de la solution exacte (c'est le champ moléculaire de Weiss) fournit la possibilité d'étudier les approximations que nous faisons. Mettons d'abord en évidence les caractères de l'hamiltonien (III.30) qui permettent ici la prise en considération simultanée de l'interaction cinématique et de la totalité des interactions dynamiques entre ondes de spin.

a) L'hamiltonien s'écrit en fonction des opérateurs de déviations de spin localisées n_i

$$\mathcal{H}_J = \varepsilon \sum_i n_i - J \left(\sum_i n_i \right)^2 \qquad \text{(III.31)}$$

avec(*)

$$\varepsilon = 2JNS \qquad \text{(III.32)}$$

On a omis les termes constants et on n'a conservé que les termes d'ordre maximal en N. L'expression (III.31) est diagonale dans la représentation $\{n_i\}$, ce qui est particulier au cas où la portée est infinie. Il est ainsi possible de tenir compte à ce stade de l'existence d'une borne supérieure 2S pour les opérateurs n_i, c'est-à-dire de l'interaction cinématique.

b) Les transformations successives de Fourier et de Holstein et Primakoff (chapitre I, section I) conduisent exactement à l'expression(**)

$$\mathcal{H}_J = \varepsilon \sum_k n_k - J \left(\sum_k n_k \right)^2 \qquad \text{(III.33)}$$

Destinées dans le cas d'une portée limitée à diagonaliser l'hamiltonien et à permettre son étude (rappelons qu'elles conduisent alors à une série infinie de termes), elles ne sont effectuées ici que pour faire apparaître les ondes de spin. Malgré l'absence dans l'hamiltonien des produits $S_i^+ S_j^-$ permettant la propagation d'une déviation localisée, il existe un spectre d'Einstein d'ondes de spin (ε est indépendant du vecteur d'onde $\vec{k}$) dont les *seules* interactions dynamiques sont les collisions à deux corps représentées par les termes diagonaux dans la représentation $\{n_k\}$ que l'on sait traiter.

Dans ce qui suit, on expose un traitement exact de l'hamiltonien (III.31) et en le comparant à un traitement approché qui ignore la limitation des valeurs propres n_i, on mesure l'effet de l'approximation qui consiste à négliger l'interaction cinématique.

On utilise pour évaluer la fonction de partition la méthode de la "moyenne gaussienne"[39], qui permet d'éliminer du calcul des traces le terme biquadratique. On peut en effet poser

$$e^{\beta J \left(\sum_i n_i \right)^2} = \sqrt{\frac{\beta J}{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \; e^{-\beta J \left(x^2 - 2x \sum_i n_i \right)} \qquad \text{(III.34)}$$

et par suite

$$Z_J = \mathrm{Tr}\, e^{-\beta \mathcal{H}_J} = \sqrt{\frac{\beta J}{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \; e^{-\beta J x^2} \mathrm{Tr} \left\{ e^{-\beta \sum_i (\epsilon - 2Jx) n_i} \right\} . \qquad \text{(III.35)}$$

On tient compte de la limitation des valeurs propres n_i en écrivant :

$$\mathrm{Tr}\, e^{-\beta \sum_i (\epsilon - 2Jx) n_i} = \prod_i \sum_{n_i = 0}^{2S} e^{-\beta (\epsilon - 2Jx) n_i} = \left\{ \frac{1 - e^{-\beta (2S+1)(\epsilon - 2Jx)}}{1 - e^{-\beta (\epsilon - 2Jx)}} \right\}^N \qquad \text{(III.36)}$$

(*) On fait tendre le module J de l'intégrale d'échange vers zéro en même temps que le nombre N d'ions vers l'infini de façon que l'énergie d'excitation ε soit finie.

(**) C. F. Note p. 15.

Après avoir effectué le changement de variable

$$y = \beta (\varepsilon - 2Jx) \tag{III.37}$$

on obtient

$$Z_{\mathcal{J}} = - \sqrt{\frac{N}{4\pi\beta JN}} \int_{-\infty}^{+\infty} dy \, e^{Nf(y)} \tag{III.38}$$

où

$$f(y) = \frac{S}{2\beta\varepsilon} (y - \beta\varepsilon)^2 + \log \left\{ \frac{1 - e^{-(2S+1)y}}{1 - e^{-y}} \right\} \tag{III.39}$$

La partie principale de l'intégrale dans la limite des grandes valeurs de N est évaluée par la méthode du col, qui donne

$$N^{-1} \log Z_{\mathcal{J}} \sim f(y_o), \tag{III.40}$$

où $f(y_o)$ est le maximum absolu de la fonction f(y). Pour évaluer le logarithme de la fonction de partition, il reste à déterminer la valeur y_o de la variable qui fournit le maximum absolu de f(y). La dérivée f'(y) peut être écrite

$$f'(y) = - \frac{S}{\beta\varepsilon} y + z'(y) \tag{III.41}$$

avec

$$z'(y) = S + \frac{2S+1}{e^{(2S+1)y} - 1} - \frac{1}{e^{y} - 1} = S \, \mathcal{B}_s(y). \tag{III.42}$$

$\mathcal{B}_s(y)$ désigne la fonction de Brillouin

$$\mathcal{B}_s(y) = \frac{2S+1}{2S} \coth \left(\frac{2S+1}{2S} y \right) - \frac{1}{2S} \coth \left(\frac{y}{2S} \right). \tag{III.43}$$

Les valeurs de y qui annulent f'(y) sont les abscisses des points d'intersection de la droite

$$d(y) = \frac{S}{\varepsilon} k_B T \, y \tag{III.44}$$

avec la courbe représentative de z'(y) (fig. 7). Le nombre et les abscisses des points d'intersection dépendent de la pente de la droite d(y) c'est-à-dire de la température.

a) Pour $0 \leq \frac{k_B T}{JN} < \frac{2}{3} S(S+1)$, d(y) coupe z'(y) en trois points d'abscisses y_o, $-y_o$ et zéro. La courbe f(y) correspondante est tracée sur la figure 8. On calcule la valeur moyenne

$$\langle n_i \rangle = \frac{1}{Z_{\mathcal{J}}} \mathrm{Tr} \left\{ n_i \, e^{-\beta \mathcal{H}_{\mathcal{J}}} \right\} \tag{III.45}$$

par une méthode analogue à celle qui est utilisée dans le calcul de $Z_{\mathcal{J}}$ et on trouve

$$\langle n_i \rangle = \frac{1}{e^{y_o} - 1} - \frac{(2S+1)}{e^{(2S+1)y_o} - 1} = S \left[1 - \mathcal{B}_s(y_o S) \right] \tag{III.46a}$$

ce qui conduit à l'expression de l'aimantation dans la théorie du champ moléculaire. En utilisant le fait que $f'(y_o) = 0$, on peut encore écrire $\langle n_i \rangle$ sous la forme

$$\langle n_i \rangle = \frac{1}{e^{\beta\varepsilon\left(1 - \frac{\langle n_i \rangle}{S}\right)} - 1} - \frac{2S+1}{e^{(2S+1)\beta\varepsilon\left(1 - \frac{\langle n_i \rangle}{S}\right)} - 1} \tag{III.46b}$$

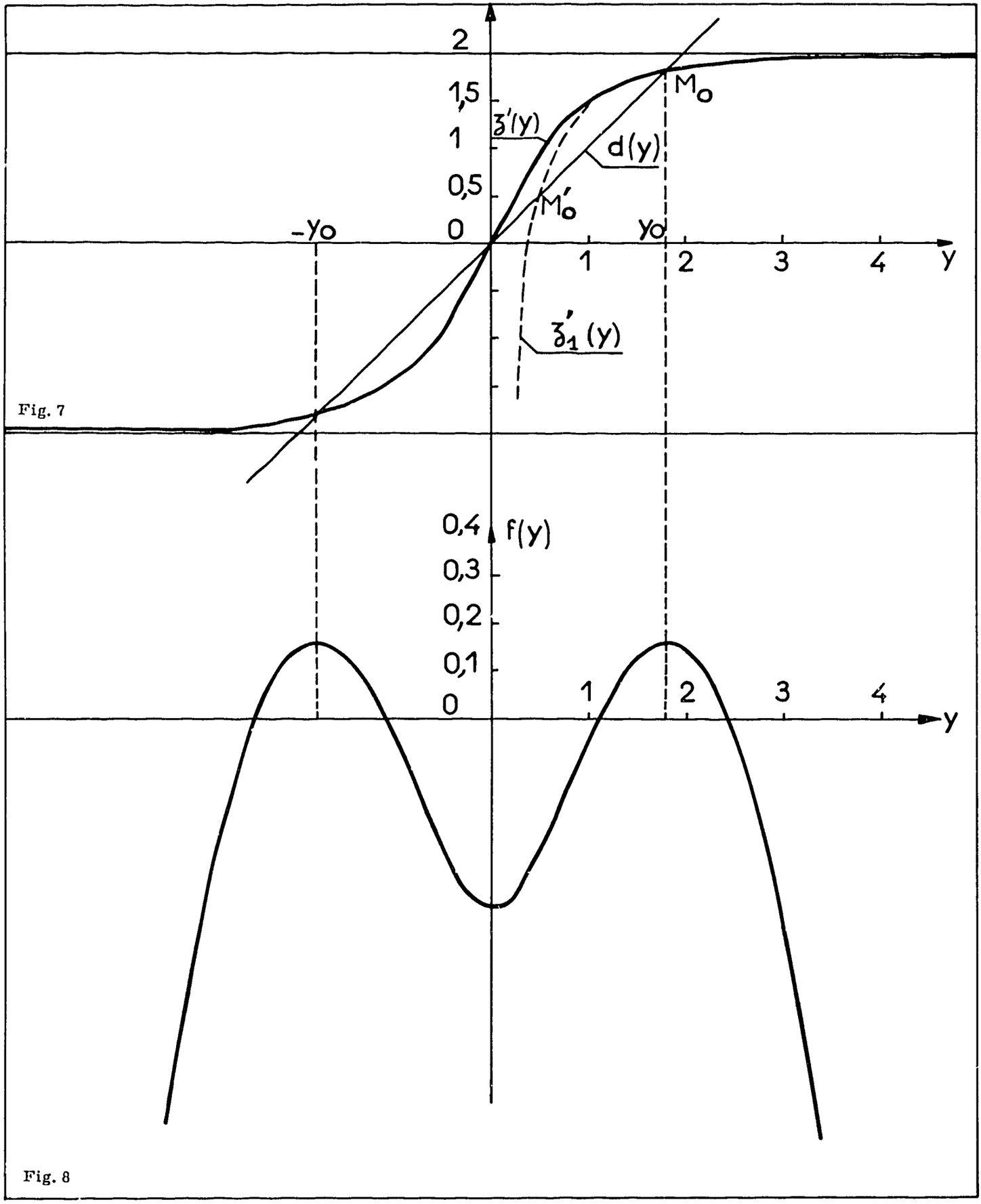


Fig. 7

Fig. 8

Figure 7 : Le nombre d'occupation $<n_k>$ est déterminé par l'abscisse du point d'intersection ; - de d(y) et z'(y), si on tient compte de l'interaction cinématique. - de d(y) et $z'_1(y)$, dans l'approximation où on néglige cette interaction.
La pente de d(y) est proportionnelle à la température. On voit que l'approximation cesse d'être valable au voisinage du point de Curie [d(y) tangente à z'(y)].

Figure 8 : Courbe représentative de f(y).

b) Pour $\frac{k_B T}{JN} \geqslant \frac{2}{3} S(S+1)$, l'origine est le seul point d'intersection de la droite d(y) et de la courbe z'(y). La valeur correspondante S de $<n_i>$ conduit à la valeur nulle de l'aimantation dans la région paramagnétique.

Examinons maintenant comment se distingue de ce traitement exact le traitement approché. Ignorer l'existence de la borne supérieure 2S revient à considérer que cette borne est infinie, soit à remplacer la dérivée f'(y) par

$$f_1'(y) = -\frac{S}{\beta\varepsilon} y + z_1'(y) \qquad \text{(III.41')}$$

avec

$$z_1'(y) = S - \frac{1}{e^y - 1} \qquad \text{(III.42')}$$

Les valeurs y_1 qui annulent $f_1'(y)$ sont les points d'intersection de la même droite d(y) avec la courbe représentative de $z_1'(y)$, également tracée sur la figure 7. La valeur moyenne du nombre d'occupation est ici

$$<n_i> = \frac{1}{e^{y_1} - 1} \qquad \text{(III.46a')}$$

ou encore

$$<n_i> = \frac{1}{e^{\beta\varepsilon\left(1 - \frac{<n_i>}{S}\right)} - 1} \qquad \text{(III.46b')}$$

On retrouve à nouveau l'équation intégrale (II.14) à laquelle satisfait le nombre d'occupation moyen. En ce qui concerne $<n_i>$, donc l'aimantation, le traitement approché diffère du traitement exact en deux points :

- Dans la détermination de $y_o[y_1]$, abscisse de l'intersection avec la même droite de z'(y) $[z_1'(y)]$.

- Dans l'expression de $<n_i>$ en fonction de $y_o[y_1]$.

L'analyse de la figure 7 conduit aux conclusions suivantes :

a) Lorsqu'on fait croître la température à partir de zéro, les abscisses y_o et y_1 décroissent à partir de l'infini et sont confondues, ainsi que les valeurs (III.44a) et (III.44a') de $<n_i>$, puisque les courbes z' (y) et z_1' (y) le sont. *Le traitement exact et le traitement approché donnent des résultats identiques jusqu'à une température limite T_l au-delà de laquelle il devient incorrect de négliger l'intéraction cinématique.* Définissant cette température comme étant celle où z' et z_1' diffèrent de 1 %, on trouve pour T_l une valeur variant de 0,60 T_c à 0,70 T_c lorsque S croît de 0,5 à 3. Les deux traitements se rejoignent dans la limite des grandes valeurs du nombre quantique de spin.

b) La forme particulière de la courbe $z_1'(y)$ dans la région où l'approximation n'est plus valable est la cause de l'ensemble des propriétés aberrantes énumérées dans la section I : existence d'une deuxième solution à rejeter car elle correspond à un maximum de l'énergie libre, d'une température maximale T_M pour laquelle la droite d(y) est tangente à $z_1'(y)$, absence de solution pour $T > T_M$. Notons que le traitement approché est valable à une température d'autant plus élevée que T_M est plus proche du point de Curie.

c) Remarquons enfin que dans le cas d'un spin 1/2, la valeur exacte de $<n_i>$ est donnée par l'expression

$$n_i = \frac{1}{e^{\beta\varepsilon\left(1 - \frac{<n_i>}{S}\right)} + 1} \qquad \text{(III.47)}$$

qui est celle d'un nombre d'occupation de fermions [38]. Dans ce cas en effet n_i ne pouvant prendre que les deux valeurs zéro ou un il existe pour les "bosons" que créent et annihilent les opérateurs b_i^+ et b_i un véritable principe d'exclusion.

Lorsque la valeur du nombre quantique de spin est quelconque, $< n_i >$ (donné par l'équation III.46b) ne peut être mis sous aucune des deux formes particulières (III.46b') ou (III.47).

III - COMPARAISONS AVEC L'EXPERIENCE

Les possibilités de mettre la théorie à l'épreuve sont limitées par le petit nombre de corps ferromagnétiques isolants connus. On cite dans ce qui suit les travaux de Low [31] relatifs à l'oxyde et au sulfure d'europium, et de Davis et Narath [36] relatifs au bromure de chrome.

La comparaison la plus cruciale serait celle de courbes donnant les variations avec la température de l'énergie d'un petit groupe d'ondes de spin. Isolant un mode particulier, elle permettrait d'examiner comment ces variations dépendent de l'énergie du groupe considéré (dépendance en $\vec{k}$ de $\alpha_k(T)$). La technique de diffusion inélastique des neutrons est toutefois inapplicable aux composés de l'europium, dont la section efficace de capture est trop élevée, et à $CrBr_3$, à cause de la très grande difficulté de fabrication des monocristaux.

Il reste les courbes d'aimantation et de chaleur spécifique. La confrontation est moins directe puisqu'elle concerne des grandeurs macroscopiques qui font intervenir à chaque température une sommation sur tous les modes d'ondes de spin excités.

Adaptant aux cas particuliers de l'oxyde EuO et du sulfure EuS la théorie d'ondes de spin en interaction que nous avons exposée, Low [31] interprète les mesures d'aimantation de l'oxyde et la variation avec la température de la chaleur spécifique du sulfure. L'accord entre la théorie et l'expérience est réalisé jusqu'à $T/T_c = 0,66$ dans le premier cas (notons le petit nombre de points expérimentaux à des températures supérieures), $T/T_c = 0,50$ dans le deuxième. En même temps qu'un essai de la théorie les comparaisons fournissent une justification des modèles proposés pour interpréter le ferromagnétisme dans ces corps.

Les travaux de Davis et Narath donnent également des renseignements relatifs à ces deux ordres de préoccupations. Les auteurs mesurent les fréquences de la résonance nucléaire de ^{53}Cr dans $CrBr_3$. Le spin nucléaire de l'atome de chrome est couplé au spin électronique par l'interaction hyperfine et les fréquences mesurées sont proportionnelles à l'aimantation électronique (en supposant que la constante de proportionnalité est indépendante de la température dans l'intervalle considéré). Les expériences sont faites entre 0°K et 20°K, soit jusqu'à des températures légèrement supérieures à $T_c/2$ ($T_c = 37$°K).

L'ensemble des mesures peut ici encore être interprété par la théorie proposée avec une précision relative (3.10^{-4}) inférieure à l'incertitude expérimentale. Notons qu'il ne s'agit pas d'une vérification absolue. Davis et Narath remarquent en effet que les valeurs des intégrales d'échange obtenues à partir de données de basse température ($T < 5,25$°K) sont incertaines de 20 % environ. La considération de l'intervalle (0°K ; 20°K) leur permet de les évaluer avec une incertitude réduite à 2 %.

La possibilité d'interpréter des mesures d'aimantation à l'aide d'une théorie d'ondes de spin généralisée est particulièrement bienvenue pour des substances dont le réseau magnétique (comme c'est le cas pour $CrBr_3$) présente un caractère bidimensionnel marqué. Les méthodes de champ moléculaire donnent en effet des résultats très inexacts, et les méthodes d'ondes de spin sont les seules appropriées à la détermination des intégrales d'échange.

CHAPITRE IV

PROPRIÉTÉS DU SYSTÈME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION CAS DES FERRIMAGNÉTIQUES ET DES ANTIFERROMAGNÉTIQUES

Résumé - Après un exposé de la théorie linéaire des ondes de spin dans ces corps, on généralise aux ferrimagnétiques, puis aux antiferromagnétiques la théorie d'ondes de spin en interaction développée pour les ferromagnétiques au cours des deux chapitres précédents.

I - THEORIE DES ONDES DE SPIN DANS L'APPROXIMATION LINEAIRE

On étudie une substance ferrimagnétique dont le réseau cristallin est un réseau de Bravais décomposable en deux sous-réseaux (A) et (B). Chaque sous-réseau comprend N noeuds sur lesquels sont localisés les ions magnétiques ayant un nombre quantique de spin S_A (pour un ion i du sous-réseau (A)) ou S_B (pour un ion j du sous-réseau (B)). On supposera de plus que tout premier voisin d'un ion i est un ion j et réciproquement. On décrit les interactions d'échange entre ions du cristal par l'hamiltonien d'Heisenberg, auquel on ajoute des termes d'interaction avec un champ magnétique uniforme $\vec{H}$ (dirigé dans le sens négatif de $\overrightarrow{Oz}$) et des champs d'anisotropie effectifs $\vec{H}_A$ et $\vec{H}_B$, destinés à stabiliser l'orientation des spins S_A dans le sens + $\overrightarrow{Oz}$ et S_B dans le sens opposé.

Le système est décrit par l'hamiltonien

$$\mathcal{H}_H = \sum_{i,j} 2J(r_{ij})\,\vec{S}_i\,\vec{S}_j + g_A\,\mu_B\,(H + H_A)\sum_i S_i^z + g_B\,\mu_B\,(H - H_B)\sum_j S_j^z. \qquad (IV.1)$$

On fera éventuellement tendre H, H_A et H_B vers zéro.

La sommation sur i [j] s'étend aux noeuds du sous-réseau (A) [(B)]. Avec des notations analogues à celles du chapitre I, on a

$$\begin{aligned} J(r_{ij}) &= J > 0 \qquad \text{si} \quad \vec{r}_j = \vec{r}_i + \vec{\delta} \\ &= 0 \qquad\qquad \text{dans tout autre cas.} \end{aligned} \qquad (IV.2)$$

Les réseaux de symétrie cubique répondant aux conditions requises sont :

- Le réseau cubique simple (type NaCl). Chaque ion appartient à un sous-réseau cubique à faces centrées et possède six premiers voisins.

- Le réseau cubique centré (type CsCl). Chaque ion appartient à un sous-réseau cubique simple et possède huit premiers voisins.

On substitue un peu plus loin aux nombres S_A et S_B les nombres S et α définis par

$$\begin{aligned} S_A &= S\,(1 + \alpha) \\ S_B &= S\,(1 - \alpha) \end{aligned} \qquad (IV.3)$$

On a choisi $S_A > S_B$. S et α sont alors positifs.

La valeur nulle de α correspond aux antiferromagnétiques. Les considérations relatives à l'état fondamental, et le traitement qui suit, leur sont applicables. Toutefois, les spectres en énergie qui en résultent sont distincts de ceux des ferrimagnétiques et l'effet des interactions entre ondes de spins est différent dans les deux cas, aussi nous avons groupé dans la section III les propriétés qui leur sont particulières.

1 - Etat fondamental

Contrairement au cas ferromagnétique, l'état fondamental d'un système de spins couplés par des interactions d'échange antiferromagnétiques n'est pas connu avec certitude. On a l'habitude de dire que la théorie des ondes de spin, exacte dans la limite des températures nulles pour les ferromagnétiques d'Heisenberg, est même au zéro absolu une théorie approchée pour les substances ferrimagnétiques. Mettons en évidence l'origine de cette différence.

Une substance ferromagnétique est décrite par l'hamiltonien

$$\mathcal{H}_F = -2J \sum_{<i,j>} \vec{S}_i . \vec{S}_j$$

$$= -2J \sum_{<i,j>} \frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) - 2J \sum_{<i,j>} S_i^z S_j^z \qquad (IV.4)$$

J est positif ; la sommation s'étend aux couples de premiers voisins. Dans ce qui suit on désigne les fonctions d'onde par les valeurs propres des opérateurs S_i^z.

L'état fondamental est l'état parfaitement ordonné

$$| 0 > = | S .... S, S, S .... S > \qquad (IV.5)$$

En effet $| 0 >$ est un état propre de $\mathcal{H}_F$ et possède la valeur propre la plus basse possible $-JNzS^2$. Physiquement cet état est stable par rapport à l'échange : deux ions voisins qui échangent les orientations de leurs spins reconstituent la même configuration.

Soit maintenant une substance où les interactions entre premiers voisins sont antiferromagnétiques : elle est décrite par l'hamiltonien

$$\mathcal{H}_{AF} = +2J \sum_{<i,j>} \vec{S}_i . \vec{S}_j$$

$$= 2J \sum_{<i,j>} \frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) + 2J \sum_{<i,j>} S_i^z S_j^z \qquad (IV.6)$$

L'état parfaitement ordonné

$$| 0_p > = | ..... S_A, -S_B, S_A, -S_B ..... > \qquad (IV.7)$$

fournit ici encore le plus petit élément de matrice diagonal de valeur $-JNzS_AS_B$. Cependant $\mathcal{H}_{AF}$ possède des éléments de matrice non diagonaux entre $| 0_p >$ et tout état qui en diffère par le retournement de deux spins voisins. Ceci traduit évidemment le fait que la configuration correspondante est détruite par l'échange des orientations de deux spins voisins. L'état parfaitement ordonné n'est pas ici l'état fondamental du système. Si on ne le connaît pas avec certitude, on a cependant des raisons théoriques et expérimentales de penser que l'état fondamental n'est pas très différent de $| 0_p >$. (Pour les antiferromagnétiques on peut montrer [40] qu'il est "ordonné" à 93 %). On peut donc introduire la notion d'onde de spin en décrivant les déviations du système à partir de l'état parfaitement ordonné choisi comme état *initial*, ou pour des systèmes plus complexes, à partir de l'état de base du système de spins classiques (modèle vectoriel) ayant les mêmes interactions. L'état fondamental, distinct mais voisin de l'état initial, sera caractérisé par l'existence de corrections à l'énergie de l'état de base classique, ou encore par la présence d'une "énergie de point zéro".

2 - Premières excitations

a) On définit pour chaque sous-réseau les opérateurs a_i^+ et a_i, b_j^+ et b_j de création et d'annihilation d'une déviation de spin.

$$S_i^+ = \sqrt{2S_A}\, f_i\, a_i \qquad S_j^+ = \sqrt{2S_B}\, b_j^+\, f_j$$
$$S_i^- = \sqrt{2S_A}\, a_i^+\, f_i \qquad S_j^- = \sqrt{2S_B}\, f_j\, b_j \qquad \text{(IV.8)}$$
$$S_i^z = S_A - a_i^+ a_i \qquad S_j^z = -S_B + b_j^+ b_j$$

avec

$$f_i = \left(1 - \frac{a_i^+ a_i}{2S_A}\right)^{1/2} \qquad f_j = \left(1 - \frac{b_j^+ b_j}{2S_B}\right)^{1/2} \qquad \text{(IV.9)}$$

Les opérateurs satisfont aux règles de commutation

$$[a_i,\ a_{i'}^+] = \delta_{ii'} \qquad [b_j,\ b_{j'}^+] = \delta_{jj'} \qquad \text{(IV.10)}$$

L'association entre S_i^+ et a_i d'une part, S_j^+ et b_j^+ d'autre part vient du choix d'un axe de quantification $\vec{Oz}$ commun aux deux sous-réseaux.

On effectue la transformation (IV.8) dans l'hamiltonien d'Heisenberg(*) et on remplace f_i et f_j par leur développement binomial.

$\mathcal{H}_H$ se présente sous forme d'une série infinie de termes

$$\mathcal{H}_H = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \ldots \qquad \text{(IV.11)}$$

où

$$\mathcal{H}_o = -2JNz\, S_A S_B + 2 \sum_{i,j} J(r_{ij}) \left[\sqrt{S_A S_B}\,(a_i b_j + a_i^+ b_j^+) + (S_B\, a_i^+ a_i + S_A\, b_j^+ b_j)\right] \qquad \text{(IV.12)}$$

$$\mathcal{H}_1 = -2 \sum_{i,j} J(r_{ij}) \left[\frac{1}{4\sqrt{S_A S_B}}\,(S_A\, a_i b_j^+ b_j b_j + S_B\, a_i^+ a_i a_i b_j + S_A\, a_i^+ b_j^+ b_j^+ b_j + S_B\, a_i^+ a_i^+ a_i b_j^+) + a_i^+ a_i\, b_j^+ b_j\right]. \qquad \text{(IV.13)}$$

$\mathcal{H}_o$ groupe les termes d'ordre S contenant deux opérateurs, $\mathcal{H}_1$ les termes indépendants de S et contenant quatre opérateurs, $\mathcal{H}_2$ les termes en 1/S contenant six opérateurs et ainsi de suite.

b) L'invariance de l'hamiltonien $\mathcal{H}_H$ par rapport aux translations conduit à remplacer les opérateurs $\{a_i,\ b_j\}$, par leurs composantes de Fourier $\{a_k,\ b_k\}$, telles que

$$a_i = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_i}\, a_k \qquad b_j = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}_j}\, b_k$$
$$\text{(IV.14)}$$
$$a_i^+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}_i}\, a_k^+ \qquad b_j^+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_j}\, b_k^+$$

Les sommations sont effectuées sur N valeurs de $\vec{k}$ réparties uniformément dans la première zone de Brillouin du cristal.

Les nouveaux opérateurs obéissent à des règles de commutation analogues

$$[a_k,\ a_{k'}^+] = [b_k,\ b_{k'}^+] = \delta_{kk'} \qquad \text{(IV.15)}$$

On démontre facilement les identités :

$$\sum_i a_i^+ a_i = \sum_k a_k^+ a_k \ ; \ \sum_j b_j^+ b_j = \sum_k b_k^+ b_k \qquad \text{(IV.16)}$$

$$\sum_{i,j} a_i\, b_j = \sum_k \gamma_k\, a_k\, b_k\,, \qquad \text{(IV.17)}$$

(*) Dans ce qui suit on considérera uniquement le terme d'échange.

où on a posé

$$\gamma_k = \sum_{\delta} e^{i\vec{k}.\vec{\delta}} \qquad \text{(IV.18)}$$

Rappelons que

$$\gamma_o = z.$$

En termes des nouveaux opérateurs, $\mathcal{H}_o$ et $\mathcal{H}_1$ sont écrits :

$$\mathcal{H}_o = -\ 2JNz\ S_A S_B + 2J \sum_k \gamma_k [\sqrt{S_A S_B}\ (a_k b_k + a_k^+ b_k^+) + \gamma_o (S_B a_k^+ a_k + S_A b_k^+ b_k)] \qquad \text{(IV.19)}$$

$$= -\ 2JNz\ S_A S_B + \sum_k \mathcal{H}_k \qquad \text{(IV.20)}$$

$$\mathcal{H}_1 = -\frac{1}{2N\sqrt{S_A S_B}} \sum_{k_1,k_2,k_3,k_4} \Big[S_B \gamma_{k_1}\ b_{k_1} a_{k_2}^+ a_{k_3} a_{k_4}\ \delta_{k_1+k_2,k_3+k_4} \qquad \text{(IV.21)}$$

$$+ S_A \gamma_{k_1}\ a_{k_1} b_{k_2}^+ b_{k_3} b_{k_4}\ \delta_{k_1+k_2,k_3+k_4} + 2\sqrt{S_A S_B}\ \gamma_{k_1-k_2}\ a_{k_1}^+ a_{k_2} b_{k_3}^+ b_{k_4}\ \delta_{k_1-k_2,k_3-k_4} + \text{h.c.} \Big]$$

h.c. désigne la quantité hermitique conjuguée de la somme de trois termes qui précède

c) Pour les ferromagnétiques, l'hamiltonien $\mathcal{H}_o$ est diagonal dans la représentation $\{n_k\}$. Ce n'est pas le cas ici, ce qui ne saurait surprendre: les opérateurs $a_k\,[b_k]$ sont les composantes de Fourier des opérateurs $a_i\,[b_j]$, relatifs à un sous-réseau particulier. Un mode collectif concernant l'ensemble des spins sera créé par un opérateur qui est une combinaison linéaire des $\{a_k,\ b_k\}$. La transformation canonique

$$a_k = \text{ch}\theta_k\ \alpha_k + \text{sh}\theta_k\ \beta_k^+ \qquad a_k^+ = \text{ch}\theta_k\ \alpha_k^+ + \text{sh}\theta_k\ \beta_k$$
$$b_k = \text{sh}\theta_k\ \alpha_k^+ + \text{ch}\theta_k\ \beta_k \qquad a_k = \text{sh}\theta_k\ \alpha_k + \text{ch}\theta_k\ \beta_k^+ \qquad \text{(IV.22)}$$

diagonalise individuellement chaque $\mathcal{H}_k$, à condition que $\text{th}2\theta_k$ satisfasse à

$$\text{th}\,2\theta_k = -\ 2\left(\frac{\gamma_k}{\gamma_o}\right)\frac{\sqrt{S_A S_B}}{(S_A + S_B)} \qquad \text{(IV.23)}$$

ce qui définit sans ambiguité en grandeur et signe $\text{sh}\theta_k$ et $\text{ch}\theta_k$ en fonction de S_A, S_B et (γ_k/γ_o).

Les diverses expressions algébriques sont plus simples si on remplace S_A et S_B par S et α définis(*) en (IV.3), et γ_k/γ_o par la quantité positive f_k:

$$f_k = \frac{1}{\text{ch}2\theta_k} = \left[1 - (1 - \alpha^2)\left(\frac{\gamma_k}{\gamma_o}\right)^2\right]^{1/2} \qquad \text{(IV.24)}$$

On note que

$$\alpha \leqslant f_k \leqslant 1\ .$$

Les coefficients de la transformation (IV.22) s'expriment simplement en fonction de f_k :

$$\text{ch}\theta_k = \left(\frac{1 + f_k}{2f_k}\right)^{1/2}, \quad \text{sh}\theta_k = -\left(\frac{1 - f_k}{2f_k}\right)^{1/2} \qquad \text{(IV.25)}$$

L'expression finale de $\mathcal{H}_o$ est

$$\mathcal{H}_o = -\ 2JNz\ S^2(1 - \alpha^2) - 2\gamma_o JS \sum_k (1 - f_k) + \sum_k [2\gamma_o JS(f_k - \alpha)\alpha_k^+ \alpha_k + 2\gamma_o JS(f + \alpha)\beta_k^+ \beta_k] \qquad \text{(IV.26)}$$

(*) On ne confondra pas la constante $\alpha = \dfrac{S_A - S_B}{S_A + S_B}$ et les opérateurs α_k et α_k^+.

L'hamiltonien d'Heisenberg limité au terme $\mathcal{H}_o$ décrit le système d'ondes de spin dans l'approximation linéaire, valable à des températures suffisamment basses pour qu'on puisse négliger les termes suivants de la série qui constituent les interactions entre ondes de spin. Rappelons-en les propriétés particulières aux ferrimagnétiques.

Posant

$$E_o^{(o)} = -\,2JNzS(1-\alpha^2)\,(S + c_o) \text{ avec } c_o = \frac{1}{1-\alpha^2}\,N^{-1}\sum_k (1 - f_k) \tag{IV.27}$$

$$\varepsilon^o_{k\alpha} = 2\gamma_o JS\,(f_k - \alpha) \tag{IV.28a}$$

$$\varepsilon^o_{k\beta} = 2\gamma_o JS\,(f_k + \alpha) \tag{IV.28b}$$

$$n_{k\alpha} = \alpha_k^+ \alpha_k \tag{IV.29a}$$

$$n_{k\beta} = \beta_k^+ \beta_k \tag{IV.29b}$$

On peut écrire,

$$\mathcal{H}_o = E_o^{(o)} + \sum_k \left(\varepsilon^o_{k\alpha}\, n_{k\alpha} + \varepsilon^o_{k\beta}\, n_{k\beta}\right). \tag{IV.30}$$

Il existe pour chaque valeur de $\vec{k}$ deux modes d'excitations collectives du système : Les opérateurs α_k^+ et β_k^+ créent les ondes de spin d'énergies d'excitation $\varepsilon^o_{k\alpha}$ et $\varepsilon^o_{k\beta}$ des branches acoustique (α) et optique (β) de la courbe de dispersion. f_k variant de α à 1, la bande acoustique s'étend en énergie de zéro à $2\gamma_o JS(1-\alpha)$, la bande optique de $4\gamma_o JS\alpha$ à $2\gamma_o JS(1+\alpha)$.

Pour les ferrimagnétiques usuels dont la structure cristalline est plus complexe que celle qui est étudiée ici, il existe toujours une branche acoustique (pour laquelle l'énergie d'excitation du mode uniforme $\vec{k} = 0$ est nulle en l'absence des champs H, H_A et H_B) et plusieurs branches optiques. Les termes acoustique et optique sont empruntés au vocabulaire des phonons. En fait, les fréquences de la branche optique sont dans l'infrarouge lointain. Citons des ordres de grandeur : la largeur calculée [41] et observée [42] de la branche acoustique dans la magnétite est de 800°K. Les énergies calculées [41] des branches optiques s'étendent de 670°K à 1470°K.

A des températures très basses, seules les ondes de spin de grande longueur d'onde sont excitées.

Pour les deux réseaux cubiques cités plus haut, on a

$$\frac{\gamma_k}{\gamma_o} \sim 1 - \frac{1}{\gamma_o}\,(ka)^2, \tag{IV.31}$$

si $ka \ll 1$, d'où

$$f_k \sim \alpha\left[1 + \frac{2(1-\alpha^2)}{\gamma_o\alpha^2}\,(ka)^2\right]^{1/2} \tag{IV.32}$$

Si de plus,

$$\frac{2\,(1-\alpha^2)}{\gamma_o\alpha^2}\,(ka)^2 \ll 1 \tag{IV.33}$$

on peut écrire

$$f_k \sim \alpha + \frac{1-\alpha^2}{\gamma_o\alpha}\,(ka)^2. \tag{IV.34}$$

On en déduit les relations de dispersion pour les grandes longueurs d'onde

$$\varepsilon^o_{k\alpha} \sim Dk^2, \text{ avec } D = 2JS\,\frac{1-\alpha^2}{\alpha}\,a^2 \tag{IV.35}$$

$$\varepsilon^o_{k\beta} \sim 4\,\gamma_o JS\alpha + Dk^2 \tag{IV.36}$$

Notons ici que le passage entre un ferrimagnétique et un antiferromagnétique n'est pas discontinu : la loi de dispersion en k^2 est valable quand la condition (IV.33) est réalisée, c'est-à-dire quand S_A et S_B sont suffisamment différents. Si on fait tendre S_A vers S_B, soit α vers la valeur nulle correspondant au cas limite antiferromagnétique, la condition (IV.33) devient irréalisable et la loi en k^2 évolue vers la loi de dispersion antiferromagnétique en $|\vec{k}|$. En même temps l'intervalle $4\gamma_o JS\alpha$ tend vers zéro et les deux modes acoustique et optique viennent se confondre.

Une interprétation des deux modes est donnée dans l'appendice III, où les lois de dispersion (IV.35) et (IV.36) sont déduites de considérations classiques. Notons que leur analogie avec les modes d'excitation des ferromagnétiques (loi en k^2) indique que les modes acoustiques ne font pas intervenir la structure particulière à 2 sites du réseau. En effet les spins S_A et S_B restent approximativement antiparallèles, (fig. 26a) et l'aimantation résultante des deux sous-réseaux effectue une précession autour des champs appliqué et d'anisotropie.

Par contre les modes optiques de grande longueur d'onde correspondent à un mouvement des spins suivant des cercles précessionnels de rayons voisins (figs. 26b et 26c). Pour réaliser cette géométrie il faut lutter contre l'échange et on montre facilement que l'énergie d'excitation nécessaire est $4\gamma_o JS\alpha$.

Les nombres d'occupation moyens aux basses températures sont

$$<n_{k\alpha}>_o = \frac{1}{\exp\left[\frac{\varepsilon^o_{k\alpha}}{k_B T}\right]-1}, \quad <n_{k\beta}>_o = \frac{1}{\exp\left[\frac{\varepsilon^o_{k\beta}}{k_B T}\right]-1} \tag{IV.37}$$

En utilisant les relations de dispersion approchées, on trouve les expressions en fonction de la température du nombre total d'ondes excitées pour chaque branche

$$<n_\alpha>_o = N^{-1} \sum_k <n_{k\alpha}>_o \sim \frac{1}{4\pi^2} \zeta\left(\frac{3}{2}\right) \Gamma\left(\frac{3}{2}\right) \left(\frac{k_B T}{D}\right)^{3/2} \tag{IV.38}$$

$$<n_\beta>_o = N^{-1} \sum_k <n_{k\beta}>_o \sim \frac{1}{4\pi^2} \zeta\left(\frac{3}{2}\right) \left(\frac{k_B T}{D}\right)^{3/2} e^{-4\gamma_o JSa/k_B T} . \tag{IV.39}$$

Pour des ferrimagnétiques peu compensés, on peut considérer que dans l'approximation linéaire seules interviennent les ondes de spin des modes acoustiques (le facteur exponentiel rendant $<n_\beta>_o$ négligeable). Leur énergie moyenne est alors :

$$\varepsilon^o_\alpha = N^{-1} \sum_k \varepsilon^o_{k\alpha} <n_{k\alpha}>_o = \frac{D}{4\pi^2} \zeta\left(\frac{5}{2}\right) \Gamma\left(\frac{5}{2}\right) \left(\frac{k_B T}{D}\right)^{5/2} \tag{IV.40}$$

on a

$$\zeta\left(\frac{3}{2}\right) = 2{,}612, \quad \zeta\left(\frac{5}{2}\right) = 1{,}341, \quad \Gamma\left(\frac{3}{2}\right) = \frac{\sqrt{\pi}}{2}, \quad \Gamma\left(\frac{5}{2}\right) = \frac{3\sqrt{\pi}}{4} .$$

L'état fondamental est caractérisé par l'absence d'ondes de spin excitées. Faisant $<n_{k\alpha}> = <n_{k\beta}> = 0$ dans l'expression de l'hamiltonien on obtient la valeur de son énergie dans cette approximation,

$$E_o^{(o)} = -2JNzS(1 - \alpha^2)(S + c_o).$$

c_o (équation (IV.27)) mesure la correction à l'énergie de l'état de base classique. On a calculé sa valeur dans le cas d'un réseau de type CsCl.

$$c_o = 0{,}069 \text{ pour } \alpha = 1/2$$

$$c_o = 0{,}071 \text{ pour } \alpha = 1/3.$$

3 - Valeur de l'aimantation par site pour chaque sous-réseau.

On a d'après (IV.8) et (IV.16)

$$\begin{aligned} <S_i^z>_o &= S_A - N^{-1} \sum_k <a_k^+ a_k>_o \\ <S_j^z>_o &= -S_B + N^{-1} \sum_k <b_k^+ b_k>_o \end{aligned} \tag{IV.41}$$

On trouve après avoir effectué la transformation (IV.22)

$$\begin{aligned} \langle a_k^+ a_k \rangle_o &= ch^2\theta_k \langle n_{k\alpha} \rangle_o + sh^2\theta_k [\, 1 + \langle n_{k\beta} \rangle_o] + \langle \text{termes non diagonaux} \rangle_o \\ \langle b_k^+ b_k \rangle_o &= sh^2\theta_k [\, 1 + \langle n_{k\alpha} \rangle_o] + ch^2\theta_k \langle n_{k\beta} \rangle_o + \langle \text{termes non diagonaux} \rangle_o \end{aligned} \qquad \text{(IV.42)}$$

Les valeurs moyennes de l'aimantation pour chaque sous-réseau sont :

$$\begin{aligned} S_A^z(T) = \frac{M_A(T)}{g_A \mu_B} &= S_A - \frac{1}{2N} \sum_k \left(\frac{1}{f_k} - 1\right) - \frac{1}{2N} \sum_k \left[\left(\frac{1}{f_k} + 1\right) \langle n_{k\alpha} \rangle_o + \left(\frac{1}{f_k} - 1\right) \langle n_{k\beta} \rangle_o \right] \\ S_B^z(T) = \frac{M_B(T)}{g_B \mu_B} &= -S_B + \frac{1}{2N} \sum_k \left(\frac{1}{f_k} - 1\right) + \frac{1}{2N} \sum_k \left[\left(\frac{1}{f_k} - 1\right) \langle n_{k\alpha} \rangle_o + \left(\frac{1}{f_k} + 1\right) \langle n_{k\beta} \rangle_o \right] . \end{aligned} \qquad \text{(IV.43)}$$

Au zéro absolu, l'aimantation totale est proportionnelle à $(S_A - S_B)$. L'écart de l'aimantation de chaque sous-réseau par rapport à sa valeur à la saturation est mesuré par :

$$\frac{1}{2N} \sum_k \left(\frac{1}{f_k} - 1\right), \quad \text{soit } 0,033 \text{ pour } \alpha = 1/2 \qquad 0,044 \text{ pour } \alpha = 1/3 .$$

Aux très basses températures, les écarts croissent en $T^{3/2}$

$$\frac{1}{g_A \mu_B} [M_A(T) - M_A(0)] \sim \frac{1 + \alpha}{2\alpha} \langle n_\alpha \rangle_o \qquad \text{(IV.44a)}$$

$$\frac{1}{g_B \mu_B} [M_B(T) - M_B(0)] \sim \frac{1 - \alpha}{2\alpha} \langle n_\alpha \rangle_o \qquad \text{(IV.44b)}$$

Les aimantations varient proportionnellement $\left(\frac{\Delta M_A}{M_A} = \frac{\Delta M_A}{M_B}\right)$, ce qui montre à nouveau que les spins (A) et (B) restent alignés dans les modes acoustiques.

On peut enfin remarquer (en examinant les relations (IV. 43)) que l'excitation d'une onde de spin "acoustique" diminuant l'aimantation du sous-réseau (A) plus qu'elle n'augmente celle du sous-réseau (B), a pour effet de diminuer d'une unité la composante suivant $\overrightarrow{Oz}$ du spin total effectif. L'excitation d'une onde de spin "optique" augmente cette composante d'une unité, et il est clair qu'il faut pour obtenir ce dernier résultat écarter notablement les spins S_B par rapport à l'alignement antiparallèle avec les spins S_A (Appendice II).

II - ETUDE DU SYSTEME D'ONDES DE SPIN EN INTERACTION

Dans cette section, on généralise aux ferrimagnétiques à deux sous-réseaux le traitement qu'on a fait subir aux ferromagnétiques dans les deux chapitres précédents : on définit pour ces corps un hamiltonien décrivant un système d'ondes de spin en interaction caractérisé par un spectre en énergie (formé ici de deux bandes) dépendant de la température, dont on étudie la déformation en fonction de T.

1 - Expression de l'hamiltonien.

Comme dans le cas ferromagnétique, on ajoute à l'hamiltonien $\mathcal{H}_o$ définissant les ondes de spin dans l'approximation linéaire la fraction $\mathcal{H}^d$ des interactions entre ces ondes, qui représente ici des collisions entre couples d'ondes de spin appartenant soit à la même branche soit chacune à une branche différente de la courbe de dispersion.

L'opérateur $\mathcal{H}_1$ est écrit en (IV.21) en fonction des opérateurs $\{a_k, b_k\}$. Son expression en termes d'opérateurs $\{\alpha_k, \beta_k\}$ de création et d'annihilation d'ondes de spin est obtenue en réalisant la transformation canonique (IV.22) dans (IV.21). $\mathcal{H}_1^d$ est la partie diagonale dans la représentation $\{n_{k\alpha}, n_{k\beta}\}$ du résultat obtenu. Au cours du calcul on effectue chaque fois que c'est possible les factorisations(*)

(*) c.f. Appendice II.

$$\sum_{k,l} \gamma_{k-l}\, n_k\, n_l = \gamma_o \sum_k \frac{\gamma_k}{\gamma_o} n_k \sum_l \frac{\gamma_l}{\gamma_o}\, n_l \qquad \text{(IV.45)}$$

qui conduisent à des simplifications notables dans les résultats. On trouve :

$$\mathcal{H}e_1^d = \mathcal{H}e_1^{(c)} + \mathcal{H}e_1^{(o)} + \mathcal{H}e_1^{(1)} \qquad \text{(IV.46)}$$

où

$$\mathcal{H}e_1^{(c)} = -\frac{J\gamma_o}{2N} \sum_{k,l} \left[\frac{(1-f_k)(1-f_l)}{f_k f_l} - \frac{1}{1-\alpha^2} \frac{(1-f_k^2)(1-f_l)^2}{f_k f_l} \right] \qquad \text{(IV.47)}$$

$$\mathcal{H}e_1^{(o)} = \sum_k \left[\Gamma_\alpha(\vec{k})\, n_{k\alpha} + \Gamma_\beta(\vec{k})\, n_k \right] \qquad \text{(IV.48)}$$

$$\mathcal{H}e_1^{(1)} = \sum_{k,l} \left[\frac{1}{2} \Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l}) n_{k\alpha} n_{l\alpha} + \frac{1}{2} \Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l})\, n_{k\beta} n_{l\beta} + \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l}) n_{k\alpha} n_{l\beta} \right] \qquad \text{(IV.49)}$$

avec(*)

$$\begin{matrix} \Gamma_\alpha(\vec{k}) \\ \Gamma_\beta(\vec{k}) \end{matrix} = -\frac{M}{N} \left[\pm\alpha \sum_l \left(\frac{1}{f_l} - f_l \right) - \frac{\alpha^2}{f_k} \sum_l \left(\frac{1}{f_l} - 1 \right) - f_k \sum_l (1 - f_l) \right] \qquad \text{(IV.50)}$$

$$\Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l}) = \frac{M}{N} (f_k - \alpha)(f_l - \alpha) \left(\frac{1}{f_k f_l} - 1 \right) \qquad \text{(IV.51)}$$

$$\Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l}) = \frac{M}{N} (f_k + \alpha)(f_l + \alpha) \left(\frac{1}{f_k f_l} - 1 \right) \qquad \text{(IV.52)}$$

$$\Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l}) = -\frac{M}{N} (f_k - \alpha)(f_l + \alpha) \left(\frac{1}{f_k f_l} + 1 \right) \qquad \text{(IV.53)}$$

$$M = \frac{\gamma_o J}{1 - \alpha^2}$$

Si on pose de plus

$$E_o^{(1)} = -2JNzS(1-\alpha^2)(S + c_o + c_1) \qquad \text{(IV.54)}$$

où

$$c_1 = \frac{1}{2JNzS(1-\alpha^2)} \mathcal{H}e_1^{(c)} \qquad \text{(IV.55)}$$

l'hamiltonien $\mathcal{H}e$ du système étudié s'écrit, compte tenu de (IV.30) :

$$\mathcal{H}e = \mathcal{H}e_o + \mathcal{H}e_1^d$$

soit

$$\boxed{\mathcal{H}e = E_o^{(1)} + \sum_k [\varepsilon_{k\alpha}^o + \Gamma_\alpha(\vec{k})]\, n_{k\alpha} + \sum_k [\varepsilon_{k\beta}^o + \Gamma_\beta(\vec{k})]\, n_{k\beta} + \sum_{kl} \left[\frac{1}{2} \Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l}) n_{k\alpha} n_{l\alpha} + \frac{1}{2} \Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l}) n_{k\beta} n_{l\beta} + \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l}) n_{k\alpha} n_{l\beta} \right]} \qquad \text{(IV.56)}$$

2 - Détermination du spectre modifié des énergies d'excitation .

La méthode des équations du mouvement (chapitre II) permet de trouver facilement les énergies d'excitation relatives à l'hamiltonien $\mathcal{H}e$: on cherche un opérateur c_k^+ satisfaisant à

$$[\mathcal{H}e,\ c_k^+] = \tilde{\varepsilon}_k\, c_k^+, \qquad \text{(IV.57)}$$

(*) Rappelons que les indices α et β désignent respectivement les modes acoustiques et optiques.

qui crée des excitations élémentaires à une particule d'énergie $\tilde{\varepsilon}_k$. Si, essayant de réaliser la relation (IV.57) avec α_k^+, on calcule le commutateur $[\mathcal{H}, \alpha_k^+]$, on trouve :

$$[\mathcal{H}, \alpha_k^+] = [\varepsilon_{k\alpha}^o + \Gamma_\alpha(\vec{k})]\alpha_k^+ + \sum_l [\Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l})n_{l\alpha}\ \alpha_k^+ + \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l})\ n_{l\beta}\ \alpha_k^+] \qquad \text{(IV.58)}$$

La linéarisation du deuxième membre conduit à l'expression

$$[\mathcal{H}, \alpha_k^+] \sim \tilde{\varepsilon}_{k\alpha}\ \alpha_k^+,$$

où

$$\boxed{\tilde{\varepsilon}_{k\alpha} = \varepsilon_{k\alpha}^o + \Gamma_\alpha(\vec{k}) + \sum_l [\Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\alpha} > + \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\beta} >]} \qquad \text{(IV.59a)}$$

On obtiendrait de même

$$\boxed{\tilde{\varepsilon}_{k\beta} = \varepsilon_{k\beta}^o + \Gamma_\beta(\vec{k}) + \sum_l [\Gamma_{\beta\alpha}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\alpha} > + \Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\beta} >]} \qquad \text{(IV.59b)}$$

avec, de façon self-consistante

$$< n_{l\alpha} > = \frac{1}{\exp\left[\frac{\tilde{\varepsilon}_{l\alpha}}{k_B T}\right] - 1} \qquad < n_{l\beta} > = \frac{1}{\exp\left[\frac{\tilde{\varepsilon}_{l\beta}}{k_B T}\right] - 1} \qquad \text{(IV.60)}$$

Les expressions de l'aimantation de chaque sous-réseau sont les mêmes que dans la théorie linéaire, (équation (IV.43)), à condition d'utiliser les nouveaux nombres d'occupation $< n_{k\alpha} >$, $< n_{k\beta} >$. Remarquons que les variations des aimantations avec la température sont différentes pour les deux sous-réseaux.

Le système décrit par $\mathcal{H}$ est équivalent à un système d'ondes de spin indépendantes, dont les énergies d'excitation, fonction de la température, sont écrites en (IV.59). On remarque l'existence pour chaque mode d'un déplacement de l'énergie $\Gamma_\alpha(\vec{k})$, $\Gamma_\beta(\vec{k})$ indépendant de la température, et d'un déplacement $\Delta\varepsilon_{\substack{k\alpha \\ k\beta}}(T)$ qui en dépend.

Dans ce qui suit on examine d'abord l'importance du déplacement indépendant de la température. On étudie ensuite la variation dans une approximation de basse température du déplacement $\Delta\varepsilon_{\substack{k\alpha \\ k\beta}}(T)$. On donne enfin les résultats de la résolution numérique du système (IV.59), (IV.60) sous forme de courbes $\tilde{\varepsilon}_{k\alpha}(T)$ et $\tilde{\varepsilon}_{k\beta}(T)$ tracées pour diverses valeurs des énergies $\varepsilon_{k\alpha}^o$ et $\varepsilon_{k\beta}^o$.

3 - Déplacement indépendant de la température

Le déplacement de l'énergie d'une onde de spin "acoustique" peut être écrit :

$$\Gamma_\alpha(\vec{k}) = -\frac{\varepsilon_{k\alpha}^o}{2S(1-\alpha^2)}\left[\frac{\alpha}{f_k} N^{-1} \sum_l \left(\frac{1}{f_l} - 1\right) - N^{-1} \sum_l (1 - f_l)\right] \qquad \text{(IV.61)}$$

D'une façon générale il dépend de l'énergie de l'onde de spin considérée. Il est nul pour le mode uniforme ($\vec{k} = o$), négatif et proportionnel à $\varepsilon_{k\alpha}^o$ pour les faibles énergies, et devient positif pour le sommet de la bande acoustique. Le déplacement $\Gamma_\beta(\vec{k})$ de l'énergie d'une onde de spin "optique" est toujours positif et va en décroissant du bas au sommet de la bande. Les valeurs des déplacements relatifs pour deux valeurs de α sont données dans le tableau ci-après .

Le déplacement maximum a lieu pour le mode optique $\vec{k} = 0$. Le sens physique de ces déplacements n'est pas évident. On est tenté de penser que leur origine est de même nature que celle de l'énergie de point zéro. Les déviations de spin ayant été définies à partir d'un état initial distinct de l'état fondamental, chaque terme de la série de Holstein et Primakoff apporterait à la fois une correction à l'énergie de l'état de base et aux énergies des excitations élémentaires. Il n'en reste pas moins que l'existence de ces termes correctifs est théoriquement peu satisfaisante.

		Bas de la bande	Sommet de la bande
$\frac{S\ \Gamma_a(\vec{k})}{\varepsilon^o_{k\,a}}$	$\alpha = 1/3$	- 0 014	+ 0,019
	$\alpha = 1/2$	- 0,0093	+ 0,013
$\frac{S\ \Gamma_\beta(\vec{k})}{\varepsilon^o_{k\,\beta}}$	$\alpha = 1/3$	0,085	0,052
	$\alpha = 1/2$	0,076	0,056

4 - Variation des énergies d'excitation aux basses températures

On s'intéresse ici aux déplacements dépendant de la température

$$\Delta\varepsilon_{k\alpha}(T) = \sum_l \left[\Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\alpha} > + \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\beta} > \right] \qquad \text{(IV.62a)}$$

$$\Delta\varepsilon_{k\beta}(T) = \sum_l \left[\Gamma_{\beta\alpha}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\alpha} > + \Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l}) < n_{l\beta} > \right] \qquad \text{(IV.62b)}$$

Dans le cas des ferromagnétiques, l'élément de matrice du terme d'interaction pouvait être écrit exactement sous la forme du produit $\varepsilon^o_k\ \varepsilon^o_l$ des énergies des ondes de spin en l'absence d'interactions, conduisant à un déplacement relatif indépendant du vecteur d'onde $\vec{k}$, et fonction de l'énergie moyenne $\sum_l \varepsilon^o_l < n_l >$ aux basses températures. Ici une factorisation presque analogue est possible. Les coefficients $\Gamma_{\alpha\alpha}$, $\Gamma_{\beta\beta}$ et $\Gamma_{\alpha\beta}$ peuvent en effet être écrits

$$\Gamma_{\substack{\alpha\alpha \\ \beta\beta}}(\vec{k},\vec{l}) = \frac{1}{4\gamma_o JNS^2(1-\alpha^2)}\ \varepsilon^o_{\substack{k\alpha \\ k\beta}}\ \varepsilon^o_{\substack{l\alpha \\ l\beta}}\left(\frac{1}{f_k f_l} - 1\right) \qquad \text{(IV.63a)}$$

$$\Gamma_{\beta\alpha}(\vec{k},\vec{l}) = -\frac{1}{4\gamma_o JNS^2(1-\alpha^2)}\ \varepsilon^o_{k\beta}\ \varepsilon^o_{l\alpha}\left(\frac{1}{f_k f_l} + 1\right) \qquad \text{(IV.63b)}$$

$$\Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l}) = \Gamma_{\beta\alpha}(\vec{l},\vec{k}) \qquad \text{(IV.63c)}$$

La présence du facteur supplémentaire $\left(\frac{1}{f_k f_l} \pm 1\right)$ conduit cependant à des déplacements relatifs fonctions, en général, du vecteur d'onde. Déterminons leurs expressions aux basses températures. On a vu que si l'intervalle séparant les énergies des modes uniformes acoustique et optique était suffisamment élevé, seuls les modes acoustiques, et essentiellement les modes de grandes longueurs d'onde étaient peuplés de façon appréciable. On se place dans ce cas. On peut alors négliger les termes en $< n_{l\beta} >$, et dans toute sommation faisant intervenir $< n_{l\alpha} >$, remplacer f_l par α. On obtient :

$$\frac{\Delta\varepsilon_{k\alpha}(T)}{\varepsilon^o_{k\,\alpha}} \sim \frac{1}{4\gamma_o JS^2(1-\alpha^2)}\left(\frac{1}{\alpha f_k} - 1\right)\varepsilon^o_\alpha \qquad \text{(IV.64a)}$$

$$\frac{\Delta\varepsilon_{k\beta}(T)}{\varepsilon^o_{k\beta}} \sim -\frac{1}{4\gamma_o JS^2(1-\alpha^2)}\left(\frac{1}{\alpha f_k} + 1\right)\varepsilon^o_\alpha \qquad \text{(IV.64b)}$$

où, rappelons-le, ε^o_α est l'énergie moyenne du système d'ondes de spin indépendantes, dont les variations sont en $T^{5/2}$.

L'effet dominant des interactions entre ondes de spin, aux basses températures, est une diminution des énergies d'excitation des modes optiques, et une augmentation des énergies d'excitation des modes acoustiques. Cette dernière propriété a été signalée pour la première fois par T. Nakamura [43]. Les déplacements relatifs dépendent de l'énergie du mode considéré comme les déplacements indépendants de la température : ils sont plus importants pour les modes optiques, et à l'intérieur de chaque bande, supérieurs pour les ondes de grande longueur d'onde.

On a remarqué dans la section précédente que les ondes de spin acoustiques présentaient des analogies avec les ondes de spin dans les ferromagnétiques. En particulier, leurs lois de dispersion pouvaient être écrites dans le cas d'un réseau cubique

$$\varepsilon^{o}_{k(\alpha)} = Dk^2, \tag{IV.65}$$

avec

$$D = 2JSa^2 \frac{1 - \alpha^2}{\alpha} = 4Ja^2 \frac{S_A S_B}{S_A - S_B} \quad \text{pour les ferrimagnétiques} \tag{IV.66a}$$

$$D = 2JSa^2 \qquad \text{pour les ferromagnétiques .} \tag{IV.66b}$$

On peut se demander pourquoi la constante d'échange effective $\overline{D}$ croît ici aux basses températures du fait des interactions entre ondes de spin, alors qu'elle décroissait pour les ferromagnétiques. Essayons de reproduire pour les ferrimagnétiques le raisonnement de Keffer et Loudon [15]. On s'intéresse uniquement aux grandes longueurs d'onde, et on admet qu'en l'absence d'excitations les spins des deux sous-réseaux sont antiparallèles. Lorsque sont présentes dans le réseau des ondes de spin "acoustiques" les spins $\vec{S}_A$ et $\vec{S}_B$ ne sont plus alignés (appendice III), et on peut définir (cf. équation (III.13)) un produit effectif $\overline{S_A S_B}$ tel que

$$- 2NJz\, \overline{S_A S_B} = - 2JNz\, S_A S_B + \sum_k \varepsilon^{o}_{k\alpha} < n_{k\alpha} > \tag{IV.67}$$

soit

$$\overline{S_A S_B} = S_A S_B \left[1 - \frac{\varepsilon^{o}_{\alpha}}{2JzS^2(1 - \alpha^2)} \right] \tag{IV.68}$$

Mais alors qu'on pouvait déduire de la valeur de $\overline{S}^2$ celle d'un spin effectif $\overline{S}$, on ne peut pas ici déduire de la seule valeur de $\overline{S_A S_B}$ une valeur effective de chacun des spins individuels.

D'autre part S intervenait linéairement dans la constante d'échange des ferromagnétiques, tandis que S_A et S_B interviennent dans D par leur produit et leur différence. On dispose d'une valeur effective du produit, aussi est-on amené à chercher comment varie la différence $(S_A - S_B)$. On a noté que l'excitation d'ondes de spin "acoustiques" avait pour effet de diminuer la valeur de $S^z_A(T) - S^z_B(T)$. Il serait toutefois incorrect de choisir pour valeur effective de $\overline{S_A - S_B}$ une valeur proportionnelle à l'aimantation : cela correspondrait à une approximation de champ moléculaire, donc de haute température. La variation aux basses températures de $(S_A - S_B)$ nous est fournie par celle du mode optique uniforme ($\vec{k} = 0$) d'énergie d'excitation

$$\varepsilon^{o}_{o\beta} = 4\gamma_o JS\alpha = 2\gamma_o J(S_A - S_B) \quad . \tag{IV.69}$$

D'après (IV.64b), on a en effet

$$\frac{\Delta\varepsilon_{ko}(T)}{\varepsilon^{o}_{ko}} \sim - \frac{1}{4\gamma_o JS^2} \frac{1 + \alpha^2}{\alpha^2(1 - \alpha^2)} \varepsilon^{o}_{\alpha} \tag{IV.70}$$

et par suite

$$\overline{S_A - S_B} = (S_A - S_B) \left[1 - \frac{1}{4\gamma_o JS^2} \frac{1 + \alpha^2}{\alpha^2(1 - \alpha^2)} \varepsilon^{o}_{\alpha} \right]. \tag{IV.71}$$

On déduit des relations (IV.68) et (IV.71) la variation avec la température de la constante d'échange des ferrimagnétiques

$$\overline{D} = D \left(1 + \frac{\varepsilon^{o}_{\alpha}}{4\gamma_o JS^2\alpha^2} \right) \tag{IV.72}$$

qui est la variation trouvée (IV.64a) pour les énergies des ondes de spin "acoustiques" de grande longueur d'onde ($f_k \sim \alpha$).

5 - Cas des températures quelconques

Un examen des relations (IV.62), compte tenu des expressions (IV.63) des coefficients, permet de prévoir qualitativement l'évolution des déplacements relatifs quand on élève la température.

En ce qui concerne les ondes acoustiques, l'effet des collisions de ces ondes entre elles, qui tend à accroître leur énergie effective, entre bientôt en compétition avec l'effet opposé, rapidement important, dû aux collisions avec les ondes des modes optiques ($\Gamma_{a\beta}$ est négatif et supérieur à Γ_{aa}). La deuxième tendance est encore accrue du fait de la diminution des énergies effectives des modes optiques, qui facilite leur peuplement. Pendant un assez grand intervalle de température, l'énergie des modes acoustiques variera peu par suite de la compensation des deux effets, jusqu'à ce que la décroissance l'emporte. Ce comportement est nettement mis en évidence dans les expériences faites par Le Craw et Walker [20] sur le grenat de fer et d'yttrium. Nous reproduisons sur la figure 9 les variations mesurées de la constante d'échange $\bar{D}$ dans l'intervalle de température (0°K, 400°K). La valeur de $\bar{D}$, légèrement croissante de 0°K à 100°K, reste stationnaire jusqu'à environ 350°K puis décroît rapidement.

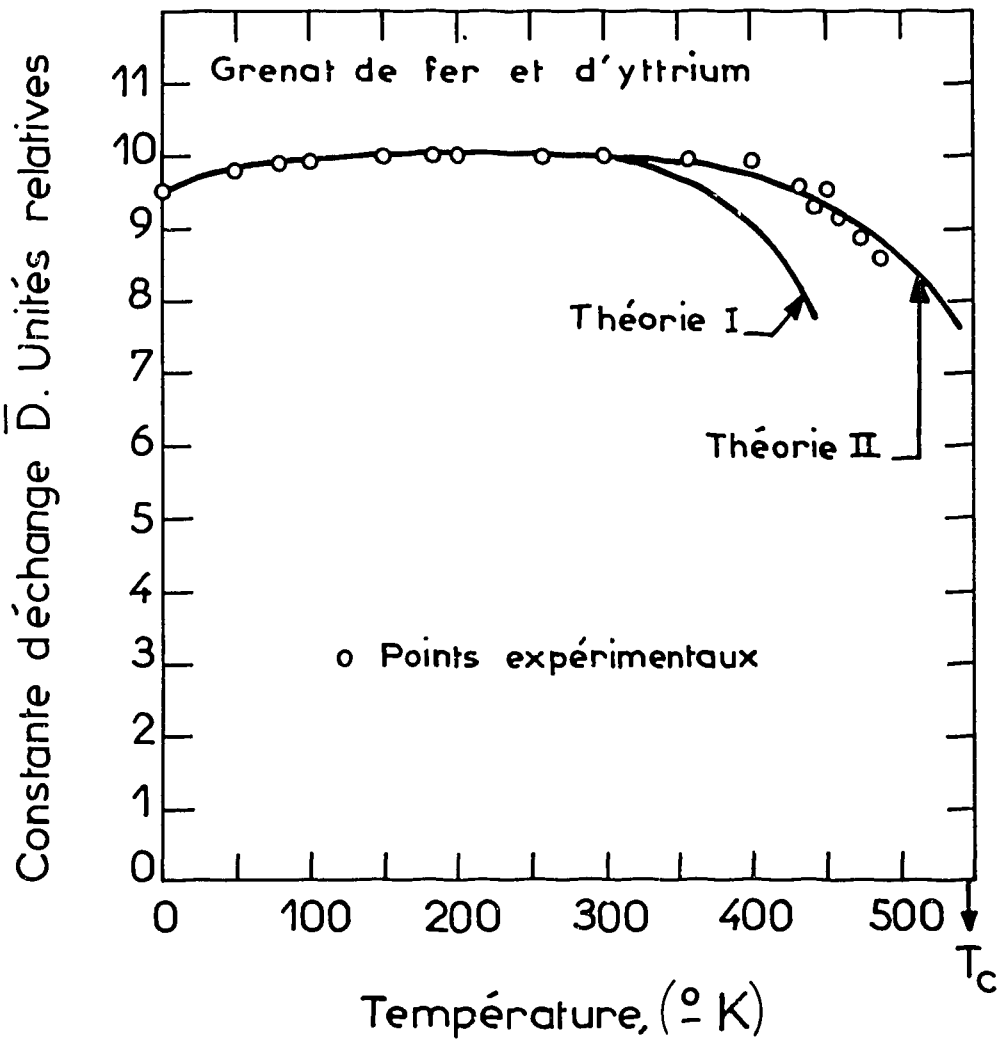


Figure 9 : Constante d'échange effective en fonction de la température pour des ondes de spin de grande longueur d'onde dans le grenat de fer et d'yttrium. - Points expérimentaux et théorie I. D'après LeCraw et Walker [20]. - La courbe théorie II reproduit la courbe relative au mode acoustique $f_k = 1/3$ de la figure 10. L'échelle des températures est réduite de façon à faire coïncider la température maximale T''_M et la température de Curie T_c = 545°K du grenat.

Une compétition analogue existe pour les modes optiques. Elle est moins importante du fait de l'association dans la tendance initiale du plus grand coefficient $\Gamma_{\beta a}$ et du plus grand nombre d'occupation $< n_{l\alpha} >$. On prévoit que l'énergie des modes optiques, d'abord rapidement décroissante, variera plus lentement quand interviendra l'effet des collisions de ces modes entre eux.

Pour obtenir exactement le spectre en énergie à toute température, il faut résoudre pour diverses valeurs de T le système des équations implicites couplées (issu de la combinaison des équations (IV.59) et (IV.60)).

$$\tilde{\varepsilon}_{k\alpha} = \varepsilon^{\circ}_{k\alpha} + \Gamma_{\alpha}(\vec{k}) + \sum_{l}\left[\Gamma_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{l})\,\frac{1}{\exp\left[\frac{\tilde{\varepsilon}_{l\alpha}}{k_B T}\right]-1} + \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{l})\,\frac{1}{\exp\left[\frac{\tilde{\varepsilon}_{l\beta}}{k_B T}\right]-1}\right]$$

$$\tilde{\varepsilon}_{k\beta} = \varepsilon^{\circ}_{k\beta} + \Gamma_{\beta}(\vec{k}) + \sum_{l}\left[\Gamma_{\beta\alpha}(\vec{k},\vec{l})\,\frac{1}{\exp\left[\frac{\tilde{\varepsilon}_{l\alpha}}{k_B T}\right]-1} + \Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l})\,\frac{1}{\exp\left[\frac{\tilde{\varepsilon}_{l\beta}}{k_B T}\right]-1}\right] \qquad \text{(IV.73)}$$

En remplaçant les énergies $\varepsilon^{\circ}_{k\alpha}$, $\varepsilon^{\circ}_{k\beta}$ et les coefficients Γ par leurs expressions en fonction de f_k, S et α [équations (IV.28), (IV.50) à (IV.54)], on obtient :

$$\frac{1}{M}\,\tilde{\varepsilon}_{\substack{k\alpha \\ k\beta}} = \pm A(T) + B(T)\,f_k + \frac{C(T)}{f_k} \qquad \text{(IV.74)}$$

où

$$M = \frac{\gamma_o J}{1 - \alpha^2} \qquad \text{(IV.75)}$$

$$C(T) = -\alpha\,[A(T) + \alpha\,B(T)] \qquad \text{(IV.76)}$$

relation exprimant que l'énergie d'excitation du mode acoustique uniforme est nulle à toute température, et où les coefficients A(T) et B(T), indépendants de $\vec{k}$, ont pour expression

$$\begin{cases} A(T) = A(0) + N^{-1}\sum_{l}\left\{-\left(\frac{1}{f_l} - f_l\right)\left[\langle n_{l\alpha}\rangle + \langle n_{l\beta}\rangle\right] + (1 - \alpha^2)\left[\langle n_{l\alpha}\rangle - \langle n_{l\beta}\rangle\right]\right\} \\ B(T) = B(0) - N^{-1}\sum_{l}\left\{f_l\left[\langle n_{l\alpha}\rangle + \langle n_{l\beta}\rangle\right] - \alpha\left[\langle n_{l\alpha}\rangle - \langle n_{l\beta}\rangle\right]\right\} \end{cases} \qquad \text{(IV.77)}$$

La résolution du système d'équations (IV.73) est ramenée à celle du système (IV.77) : *L'évolution du spectre en énergie des ondes de spin se déduit de la connaissance à toute température des deux coefficients A(T) et B(T).*

Les relations (IV.77) sont des équations implicites en A et B, les nombres d'occupation moyens devant être remplacés par

$$\langle n_{\substack{l\alpha \\ l\beta}} \rangle = \frac{1}{\exp M\left[\frac{\pm A(T) + B(T)\,f_l + C(T)/f_l}{k_B T}\right] - 1} \qquad \text{(IV.78)}$$

(c. f. (IV.60) et (IV.74)).

Les termes constants ont pour valeur

$$A(0) = -\left[2S\alpha(1 - \alpha^2) + N^{-1}\sum_{l}\left(\frac{1}{f_l} - f_l\right)\right]$$

$$B(0) = 2S\,(1 - \alpha^2) + N^{-1}\sum_{l}\,(1 - f_l) \qquad \text{(IV.79)}$$

$$C(0) = N^{-1}\sum_{l}\,\alpha^2\left(\frac{1}{f_l} - 1\right)$$

Le premier terme de A(0) et B(0) correspond aux énergies des ondes de spin libres. Les deux termes suivants, ainsi que C(0), représentent les contributions de $\Gamma_{\alpha}(\vec{k})$ et $\Gamma_{\beta}(\vec{k})$.

Nous avons déterminé les variations de A et B en fonction de la température dans le cas d'un réseau cristallin du type CsCl, pour lequel

$$f_k = \left[1 - (1 - \alpha^2)\cos^2\left(\frac{ak_x}{2}\right)\cos^2\left(\frac{ak_y}{2}\right)\cos^2\left(\frac{ak_z}{2}\right)\right]^{1/2} \qquad \text{(IV.80)}$$

Toutes les sommations sur $\vec{k}$ intervenant dans la résolution des équations implicites couplées se ramènent alors à des intégrales simples connues. On a choisi pour les paramètres les valeurs $S_A = 2$, $S_B = 1$, soit $\alpha = 1/3$.

Parallèlement à ce calcul a été effectuée [44] une résolution du système (IV.73) par une méthode d'approximations successives utilisant pour valeurs initiales des énergies $\varepsilon^0_{k\alpha}$ et $\varepsilon^0_{k\beta}$. Les résultats obtenus au bout de trois approximations sont très voisins des résultats obtenus par la première méthode. Notons l'existence ici encore d'une température maximale T''_M au-dessus de laquelle le système d'équations en A et B n'admet pas de solution réelle. Comme dans le cas des ferromagnétiques T''_M est un peu inférieur au point de Curie théorique(*) T_c (fig. 10).

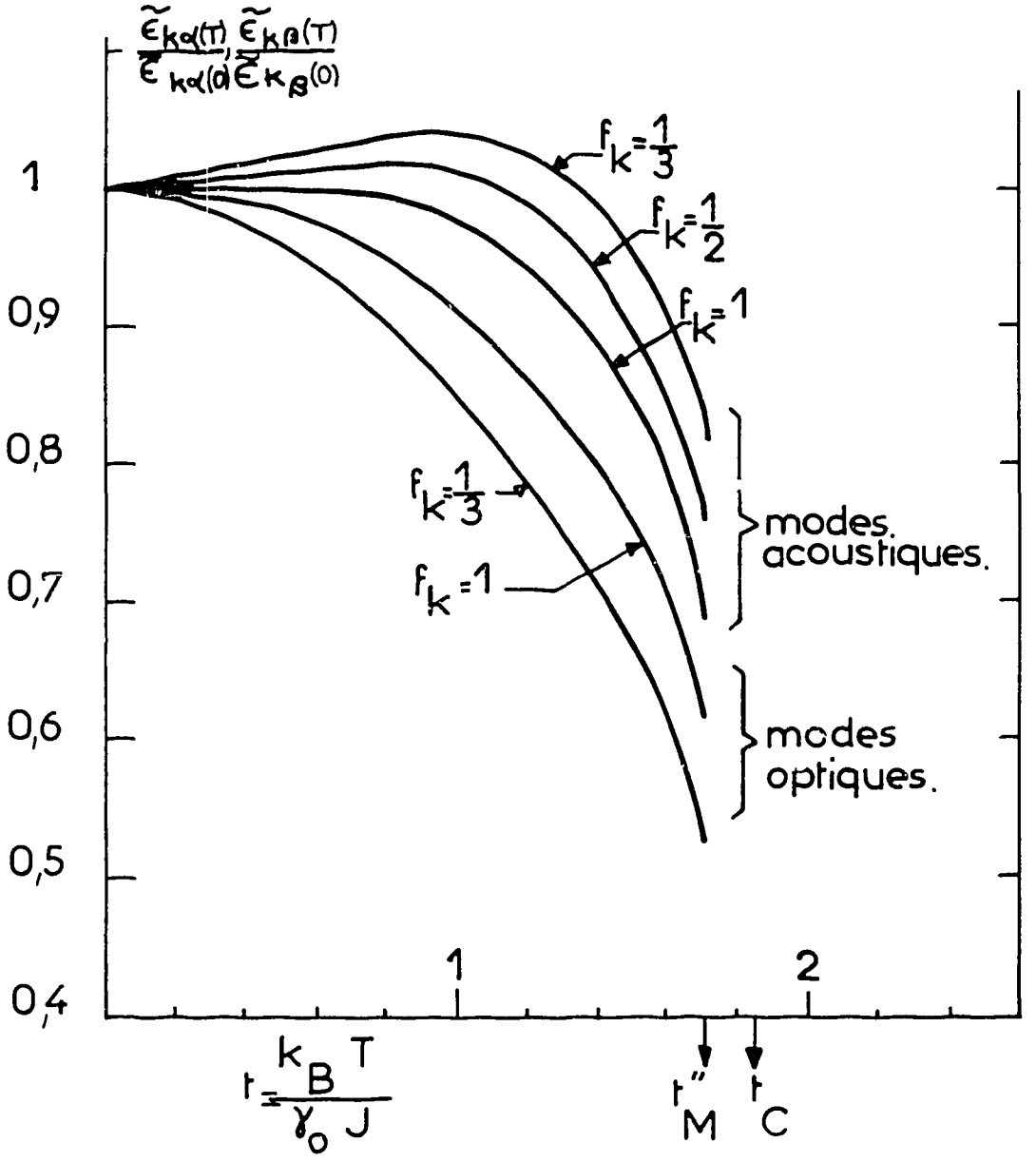


Figure 10 : Réseau ferrimagnétique cubique centré - $S_A = 2$, $S_B = 1$. Variation avec la température du facteur de renormalisation pour des ondes de spin des bandes acoustique et optique.

$f_k = 1/3$: Bas de la bande (grandes longueurs d'onde).

$f_k = 1$: Sommet de la bande.

$f_k = 1/2$: Onde de spin située au quart de la bande au zéro absolu.

L'évolution en fonction de la température du spectre d'ondes de spin réduit (rapporté au spectre à température nulle) est indiqué sur la figure 10. On a tracé pour les deux bandes les variations de l'énergie effective du bas de la bande (grandes longueurs d'onde, $f_k \sim \alpha$), du sommet ($f_k = 1$), et pour la bande acoustique, d'une onde de spin située au quart de la bande ($f_k = 0,5$) au zéro absolu. La courbe relative aux modes acoustiques de grande longueur d'onde reproduite sur la figure 9 est en meilleur accord avec les résultats expérimentaux de LeCraw et Walker [20] que leur interprétation initiale.

On retrouve aux basses et moyennes températures les propriétés indiquées au paragraphe

---

(*) Nous avons utilisé pour calculer T_c les résultats donnés par Wojtowicz [45] issus d'une généralisation aux ferrimagnétiques de la méthode de calcul due à Rushbrooke et Wodd [46].

précédent : déplacements relatifs plus importants pour les modes optiques, et pour les grandes longueurs d'onde. On observe également les caractères généraux prévus au début de ce paragraphe : les énergies des modes acoustiques présentent une partie croissante (représentant un déplacement assez faible en valeur relative) et un maximum. De plus, leur décroissance commence à s'effectuer à une température d'autant plus basse qu'il s'agit d'énergies plus élevées. Ce comportement est en accord avec les résultats expérimentaux relatifs à la magnétite. La décroissance avec la température des énergies des modes acoustiques (inférieures à 80°K, soit le dixième de la bande acoustique) a été observée par Jacrot et Cribier [18] et Riste [19] au cours d'expériences de diffusion inélastique des neutrons. Nous reproduisons leurs courbes sur les figures 11 et 12. La constante d'échange des ondes de spin ayant l'énergie la plus élevée (80°K) commence à décroître à une température relativement basse (300°K) alors que celle des ondes de 20°K reste stationnaire jusqu'au voisinage immédiat du point de Curie(*) (848°K). La partie croissante des courbes n'a pas été observée soit, ce qui est probable, qu'elle ait lieu à des températures inférieures à la température ambiante, soit qu'elle corresponde à des déplacements d'énergie comparables à la précision des mesures.

III - CAS DES ANTIFERROMAGNETIQUES

On rappelle brièvement les principaux résultats de la théorie linéaire des ondes de spin, qui sont déduits ici des resultats correspondants relatifs aux ferrimagnétiques. On donne ensuite les principales propriétés du système d'ondes de spin en interaction diagonale et on mentionne les utilisations qui en ont été faites pour interpréter des courbes d'aimantation et des spectres d'ondes de spin expérimentaux. Des considérations plus détaillées relatives à la théorie linéaire peuvent être trouvées dans les diverses études consacrées aux ondes de spin dans les antiferromagnétiques [25] [47-52].

1 - Approximation linéaire

Tous les développements écrits pour les ferrimagnétiques (jusqu'à l'équation (IV.30)) sont valables ici, à condition de poser selon le cas $S_A = S_B$, ou $\alpha = 0$. L'hamiltonien quadratique $\mathcal{H}_o$ s'écrit

$$\mathcal{H}_o = - 2JNzS^2 - 2\gamma_o JS \sum_k (1 - g_k) + 2 \sum_k (2\gamma_o JS g_k)\ \alpha_k^+ \alpha_k \qquad (IV.81)$$

On a appelé

$$g_k = \left[1 - \left(\frac{\gamma_k}{\gamma_o}\right)^2\right]^{1/2} \qquad (IV.82)$$

la forme particulière que prend l'expression f_k lorsque α est nul.

Modes d'excitation collectifs

Aux deux modes ferrimagnétiques, d'énergies d'excitation

$$\varepsilon^o_{\substack{k\alpha \\ k\beta}} = 2\gamma_o JS(f_k \mp \alpha)$$

correspond le mode antiferromagnétique

$$\varepsilon_k^o = 2\gamma_o JS\ g_k, \qquad (IV.83)$$

doublement dégénéré en l'absence de champ magnétique extérieur.

Dans une approximation de grande longueur d'onde,

$$g_k \sim \left[\frac{2}{\gamma_o}\ (ka)^2\right]^{1/2},$$

d'où

$$\varepsilon_k^o \sim 2\gamma_o JS \sqrt{\frac{2}{\gamma_o}}\ |\ ka\ | \sim D'\ |\ k\ | \qquad (IV.84)$$

(*) Il n'est toutefois pas impossible que ces différences proviennent d'effets expérimentaux de résolution.

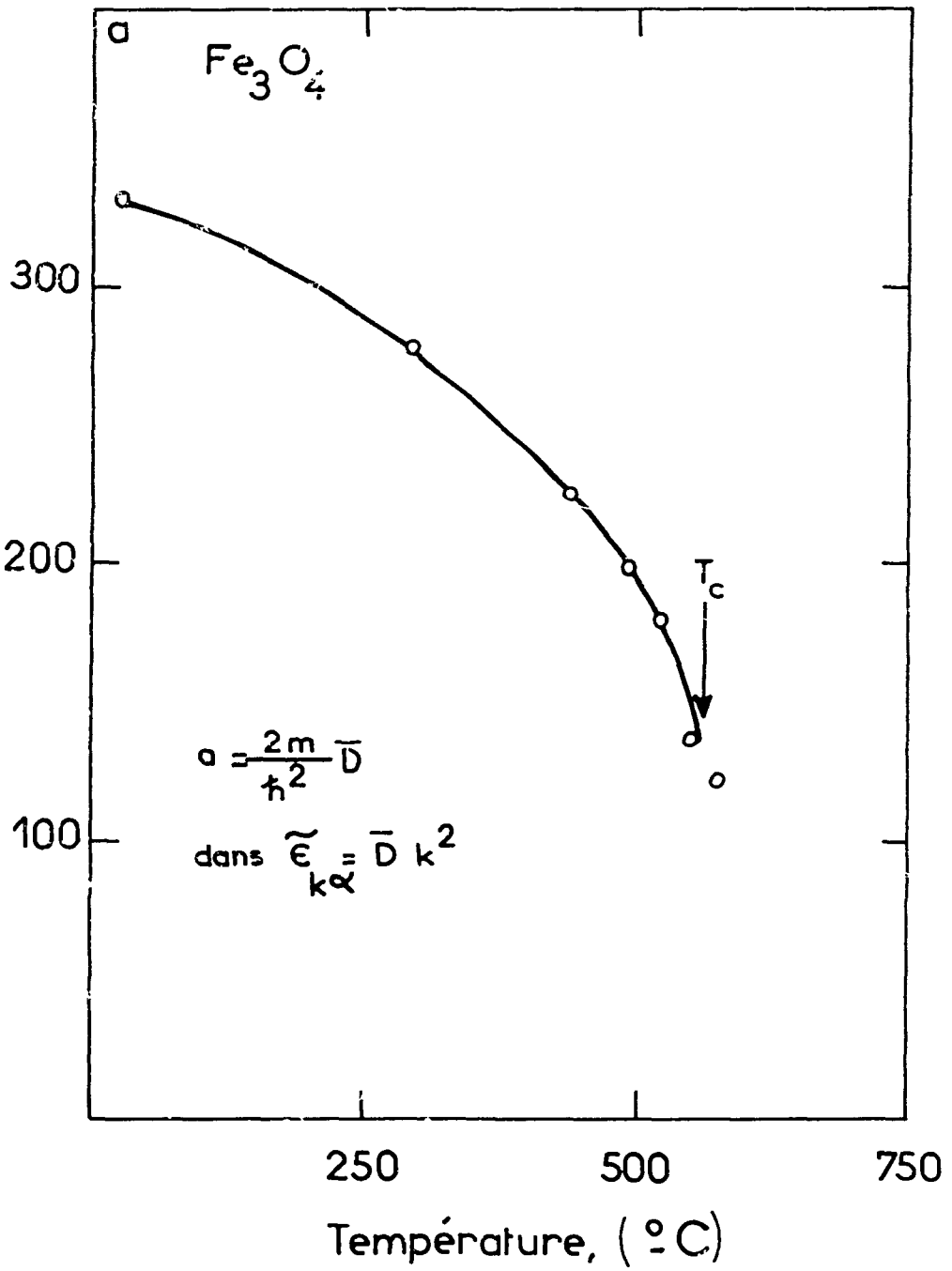


Figure 11 : Variation observée avec la température de la constante d'échange effective des ondes de spin dans la magnétite. D'après Jacrot et Cribier [18].

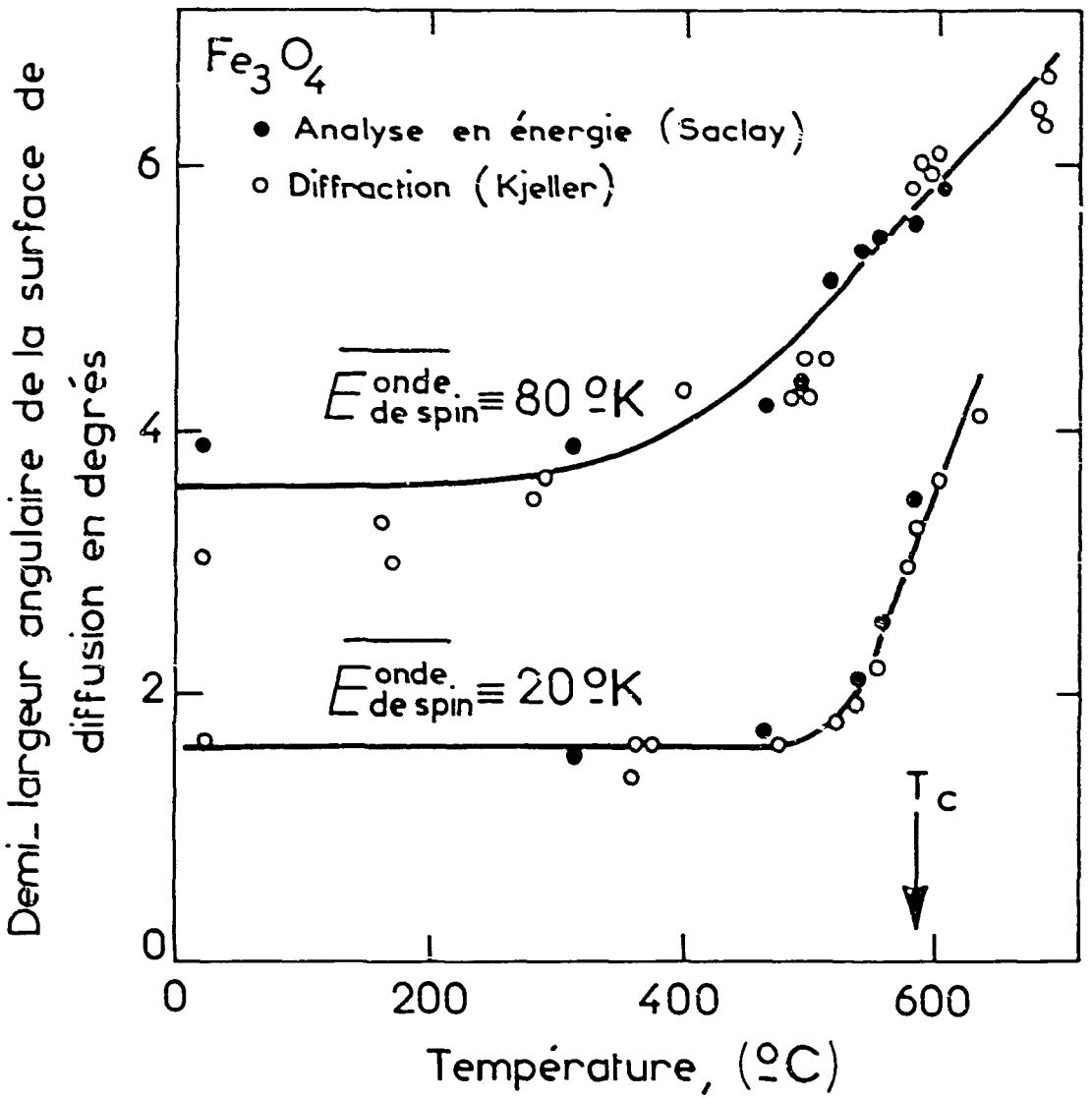


Figure 12 : Variation observée avec la température de la demi-largeur angulaire de la surface de diffusion des ondes de spin dans la magnétite. D'après Riste [19].

L'énergie moyenne des ondes de spin aux basses températures est

$$\varepsilon^{o} \sim 2N^{-1}\sum_{k} \varepsilon_{k}^{o} < n_{k} >_{o} \sim \frac{D'}{\pi^{2}} \zeta\ (4)\ \Gamma\ (4) \left(\frac{k_{B}T}{D'}\right)^{4} \qquad \text{(IV.85)}$$

avec

$$\Gamma\ (4) = 3\ !\ ,\ \zeta\ (4) = \frac{\pi^{4}}{90}.$$

Etat fondamental

Son énergie peut être écrite [25]

$$E_{o}^{(o)} = -\ 2JNzS\ (S + c) \qquad \text{(IV.86)}$$

avec c = 0,073, nombre supérieur à la correction correspondante pour un ferrimagnétique.

Aimantation

Les aimantations des deux sous-réseaux sont égales et opposées à toute température et ont pour valeur :

$$\frac{M_{A}(T)}{g\mu_{B}} = S_{A}^{z}(T) = S - \frac{1}{2N}\sum_{k}\left(\frac{1}{g_{k}} - 1\right) - \frac{1}{N}\sum_{k}\frac{< n_{k} >_{o}}{g_{k}}$$

$$= S_{A}(0) - \frac{1}{N}\ \frac{< n_{k} >_{o}}{g_{k}} \qquad \text{(IV.87)}$$

Nous avons calculé la quantité

$$c' = N^{-1}\sum_{k}\left(\frac{1}{g_{k}} - 1\right)$$

pour un réseau de type CsCl. Nous trouvons c' = 0,1185 (valeur différente de celle calculée par Kubo [48] et citée par Oguchi [25]). A i zéro absolu l'écart de la valeur du spin moyen par site par rapport à la valeur S correspondant à la saturation du sous-réseau est

$$\frac{c'}{2} = 0,059$$

valeur supérieure à l'écart correspondant pour les ferrimagnétiques. *Aux basses températures,* l'aimantation varie suivant une loi en T^{2}

$$S_{A}^{z}(T) - S_{A}^{z}(0) \sim -\frac{1}{2\pi^{2}}\sqrt{\frac{\gamma_{o}}{2}}\ \ \zeta\ (2)\left(\frac{k_{B}T}{D'}\right)^{2} \qquad \text{(IV.88)}$$

où

$$\zeta\ (2) = \frac{\pi^{2}}{6}.$$

2 - Système d'ondes de spin en interaction

Le potentiel d'interaction $\mathcal{H}_{1}^{d}$ s'obtient également à partir du terme correspondant des ferrimagnétiques. On a encore

$$\mathcal{H}_{1}^{d} = \mathcal{H}_{1}^{(c)} + \mathcal{H}_{1}^{(o)} + \mathcal{H}_{1}^{(d)} \qquad \text{(IV.89)}$$

où $\mathcal{H}_1^{(c)}$ est un terme constant, $\mathcal{H}_1^{(o)}$ et $\mathcal{H}_1^{(1)}$ respectivement les contributions linéaire et quadratique dans les nombres d'occupation. Nous examinons successivement les différents termes.

$$\mathcal{H}_1^{(c)} = \frac{J\gamma_o}{2N} \sum_{k,l} (1 - g_k)(1 - g_l) \tag{IV.90}$$

conduit dans cette approximation à la valeur suivante de l'énergie de l'état fondamental

$$E_o^{(1)} = -2JN\gamma_o S\left(S + c + \frac{c^2}{4S}\right) \tag{IV.91}$$

Le terme $\mathcal{H}_1^{(o)}$ s'écrit ici

$$\mathcal{H}_1^{(o)} = 2 \sum_k \Gamma(\vec{k})\, n_k \tag{IV.92}$$

avec des déplacements indépendants de la température positifs et égaux, pour chacun des modes, à

$$\Gamma(\vec{k}) = \frac{\gamma_o J}{N} g_k \sum_l (1 - g_l)\,, \tag{IV.93}$$

conduisant à un déplacement relatif

$$\frac{\Gamma(\vec{k})}{\varepsilon_k^o} = \frac{c}{2S}\,.$$

On observe également la totale symétrie des deux modes dans le terme quadratique dans les nombres d'occupation. En effet, pour $\alpha = 0$,

$$\frac{1}{2}\Gamma_{aa}(\vec{k},\vec{l}) = \frac{1}{2}\Gamma_{\beta\beta}(\vec{k},\vec{l}) = \frac{\gamma_o J}{2N}(1 - g_k g_l) > 0, \tag{IV.94}$$

$$\Gamma_{a\beta}(\vec{k},\vec{l}) = -\frac{\gamma_o J}{N}(1 + g_k g_l) < 0,$$

d'où

$$\mathcal{H}_1^{(1)} = \sum_{k,l} \left\{\Gamma_{aa}(\vec{k},\vec{l}) + \Gamma_{a\beta}(\vec{k},\vec{l})\right\} n_k n_l \tag{IV.95}$$

avec

$$\Gamma_{aa}(\vec{k},\vec{l}) + \Gamma_{a\beta}(\vec{k},\vec{l}) = -\frac{2\gamma_o J}{N} g_k g_l. \tag{IV.96}$$

On peut déjà prévoir une différence avec le spectre renormalisé des ondes de spin dans les ferrimagnetiques. Par suite de la prise en considération jusqu'aux très basses températures des deux modes α et β qui sont équivalents ici, l'énergie d'interaction des ondes de spin est devenue négative, alors que, positive pour les modes acoustiques, elle conduisait à la partie croissante des courbes $\tilde{\varepsilon}_{k\alpha}(T)$. Cette particularité disparaît donc dans les antiferromagnétiques, en accord avec le fait que le raisonnement de Keffer et Loudon [15] relatif à l'existence d'un spin effectif décroissant avec la température est à nouveau exactement reproductible. En groupant les termes de $\mathcal{H}_1^{d}$ qui viennent d'être calculés, on trouve pour l'hamiltonien du système d'ondes de spin en interaction l'expression suivante formellement très analogue à celle de l'hamiltonien ferromagnétique

$$\boxed{\mathcal{H} = -2JNzS\left(S + c + \frac{c^2}{4S}\right) + 2\left\{\sum_{k,l}\left[1 + \frac{c}{2S}\right]\varepsilon_k^o\, n_k - \frac{1}{4JN\gamma_o S^2}\sum_{k,l}\varepsilon_k^o\,\varepsilon_l^o\, n_k\, n_l\right\}} \quad . \tag{IV.97}$$

Les énergies renormalisées s'écrivent [53]

$$\tilde{\varepsilon}_k = \alpha(T)\,\varepsilon_k^o, \tag{IV.98}$$

où le facteur de renormalisation

$$\alpha(T) = 1 + \frac{1}{2S}\left[N^{-1} \sum_l (1 - g_l) \right] - \frac{1}{2JN\gamma_o S^2} \sum_l \varepsilon_l^o < n_l > \qquad \text{(IV.99)}$$

est indépendant du vecteur d'onde $\vec{k}$, et varie aux basses températures comme l'énergie du système d'ondes de spin. La relation (IV.99) dans laquelle on remplace le nombre d'occupation moyen par son expression en fonction de α

$$< n_l > = \frac{1}{\exp\left[\frac{\alpha(T)\varepsilon_l^o}{k_B T}\right] - 1} \qquad \text{(IV.100)}$$

est une équation implicite en α. Nous l'avons résolue numériquement dans le cas d'un réseau cubique centré (type CsCl) pour lequel on a déterminé également l'aimantation réduite

$$m^{\alpha}(t) = 1 - \frac{1}{N\left[S - \frac{1}{2N} \sum_k \left(\frac{1}{g_k} - 1 \right) \right]} \sum_k \frac{< n_k >}{g_k} \qquad \text{(IV.101)}$$

Ici,

$$t = \frac{k_B T}{2\gamma_o JS} .$$

Les courbes $\alpha(t)$ et $m^{\alpha}(t)$ sont tracées sur les figures 13 à 16 pour les valeurs du nombre quantique de spin allant de 0,5 à 2. On a indiqué la température maximale t_M' et les valeurs t_N des points de Néel théoriques déterminés par la méthode de Bethe-Peierls-Weiss [34]. Ces températures sont comparées sur le tableau III. Nous faisons les mêmes remarques que dans les cas précédents : la théorie d'ondes de spin en interaction diagonale peut rendre compte des propriétés d'une substance antiferromagnétique dans un domaine de température excluant le voisinage du point de transition où l'interaction cinématique devient importante. L'étendue du domaine de validité dépend de la substance étudiée, et jusqu'ici n'a été déterminée qu'expérimentalement. Paradoxalement puisque dans le cas des antiferromagnétiques les ondes de spin ont une justification théorique moins rigoureuse, c'est pour le fluorure de manganèse que la comparaison avec l'expérience a donné les résultats les plus remarquables. MnF_2 a une structure simple : les ions Mn^{++}, de spin 5/2, sont répartis sur un réseau quadratique centré. C'est d'autre part une des substances les plus étudiées et les mieux connues. De récentes expériences de diffusion inélastique des neutrons [54] ont permis d'observer des ondes de spin, et de déterminer leurs courbes de dispersion, jusqu'à des températures (62°K) très voisines du point de transition (67°K). D'autre part les variations avec la température de la chaleur spécifique et de l'aimantation des sous-réseaux ont également été déterminées expérimentalement. L'ensemble des paramètres relatifs à ce corps étant connu (constantes d'échange, variation avec la température du champ d'anisotropie), un examen direct de la méthode de renormalisation des ondes de spin a été possible. Adaptant la méthode à ce cas particulier, Low [31, 55] a pu interpréter les trois types de courbes cités jusqu'à des températures approchant de 90 % le point de Néel. Nous reproduisons sur les figures 17 et 18 les confrontations entre la théorie et l'expérience réalisées pour les courbes de dispersion et les variations de l'aimantation .

TABLEAU III

spin	0,5	1	1,5	2
$k_B T_M'/J$	2,9	7,9	14,9	23,9
$k_B T_N/J$	3,16	9,03	17,04	27,41

Comparaison des températures maximales T_M'
et des valeurs théoriques [34] des températures de Néel

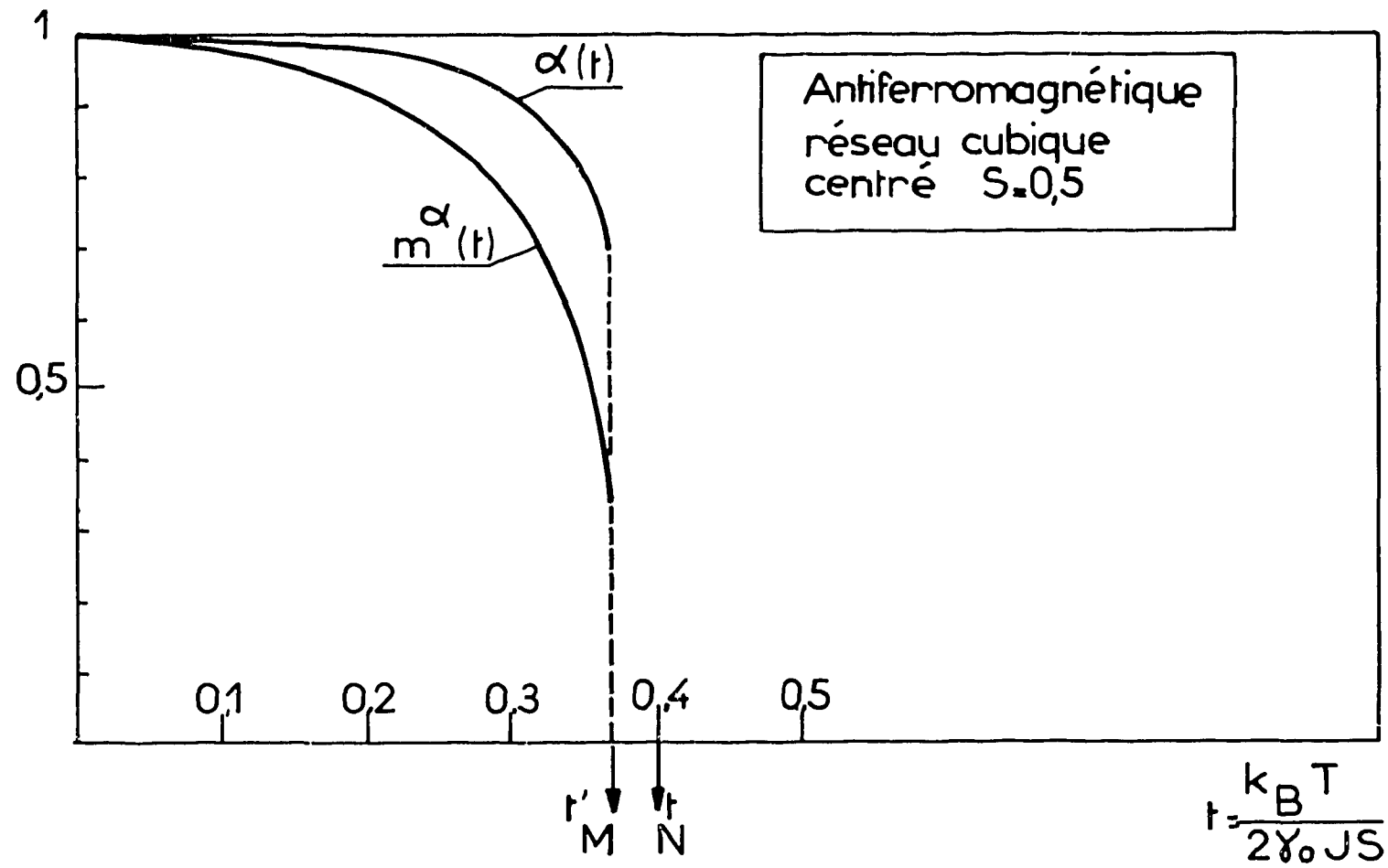


Figure 13

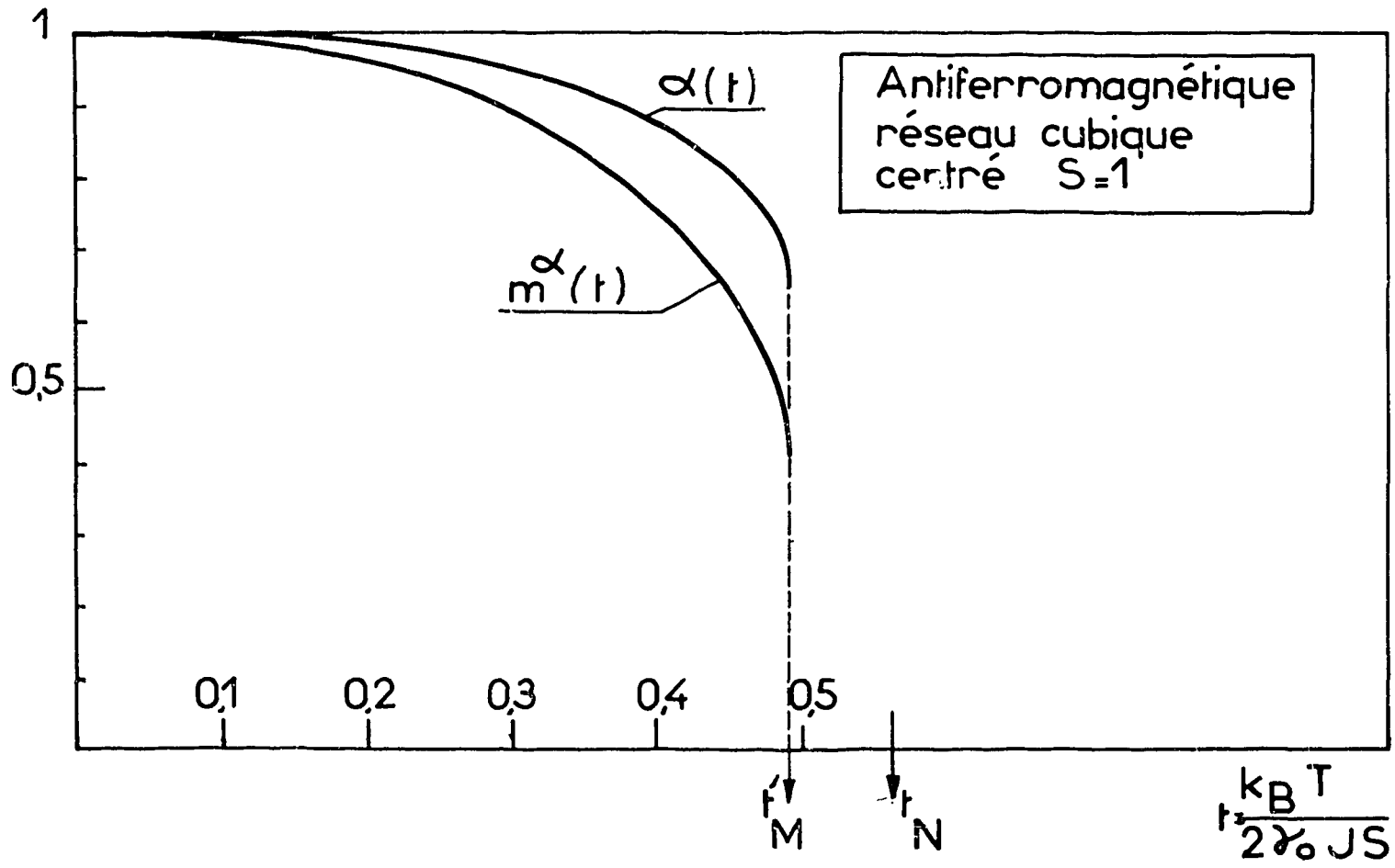


Figure 14

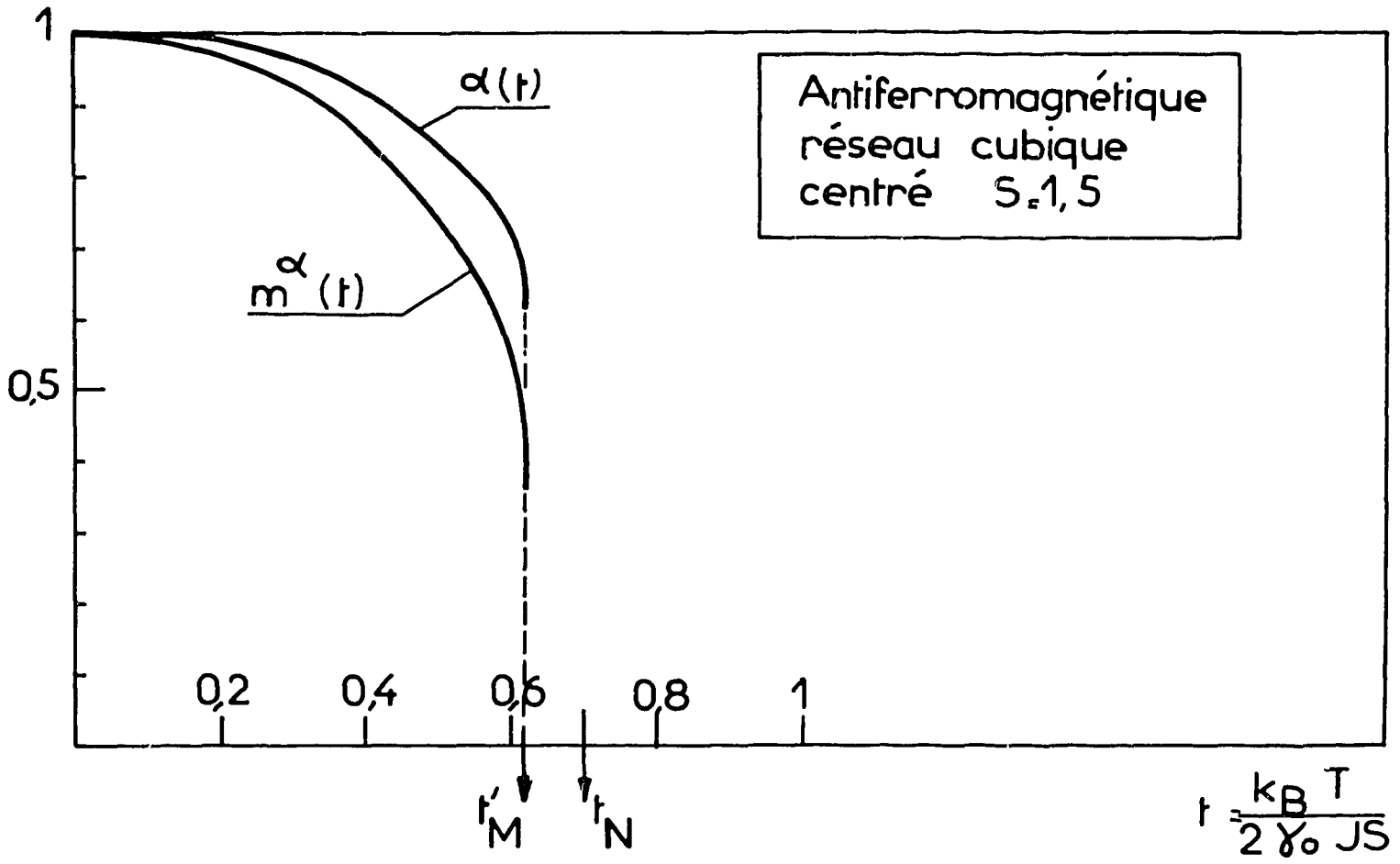


Figure 15

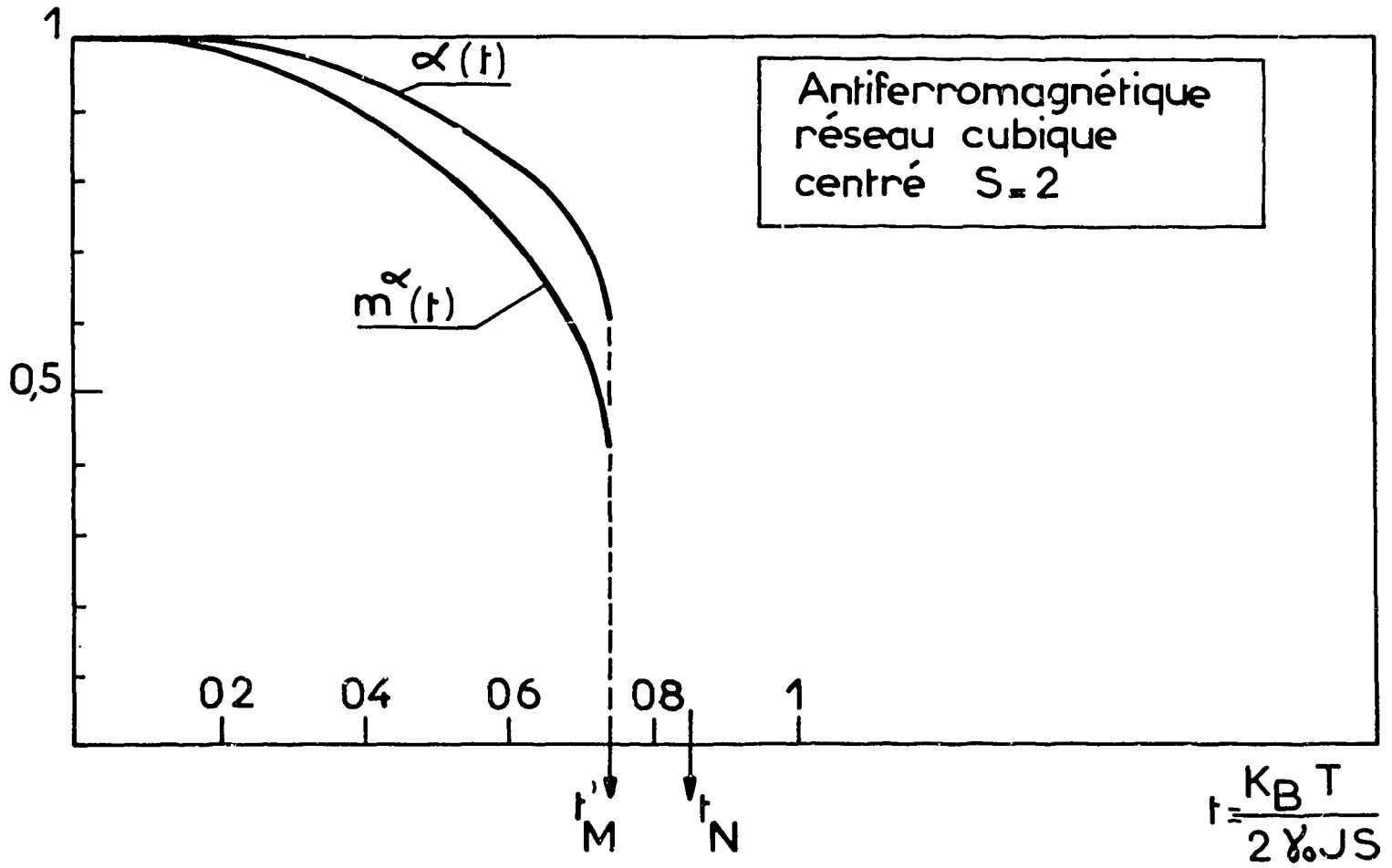


Figure 16

Figures 13 à 16 : Réseau antiferromagnétique cubique centré. Valeurs de S allant de 0,5 à 2. Variation avec la température du facteur de renormalisation α et de l'aimantation $m^a(t)$ d'un sous-réseau. t_N désigne une estimation théorique [34] de température de Néel.

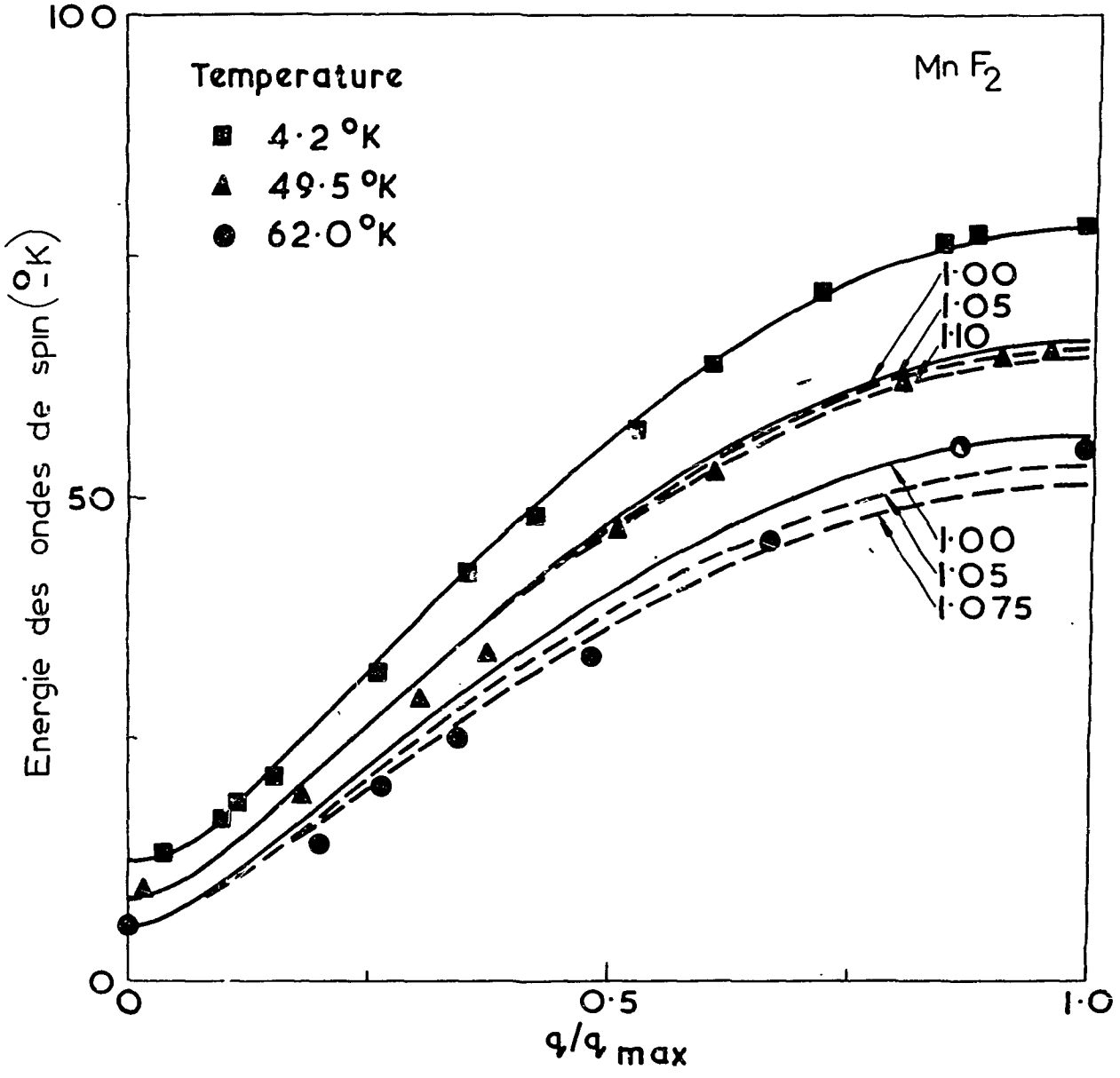


Figure 17 : Relations de dispersion des ondes de spin dans MnF_2 (d'après Low [55]). Points expérimentaux de Okazaki, Tuberfield et Stevenson [54]. Les courbes théoriques de Low tiennent compte des interactions entre paires d'ondes de spin. Les courbes en tirets sont relatives à une augmentation des interactions obtenue en les multipliant par les facteurs indiqués.

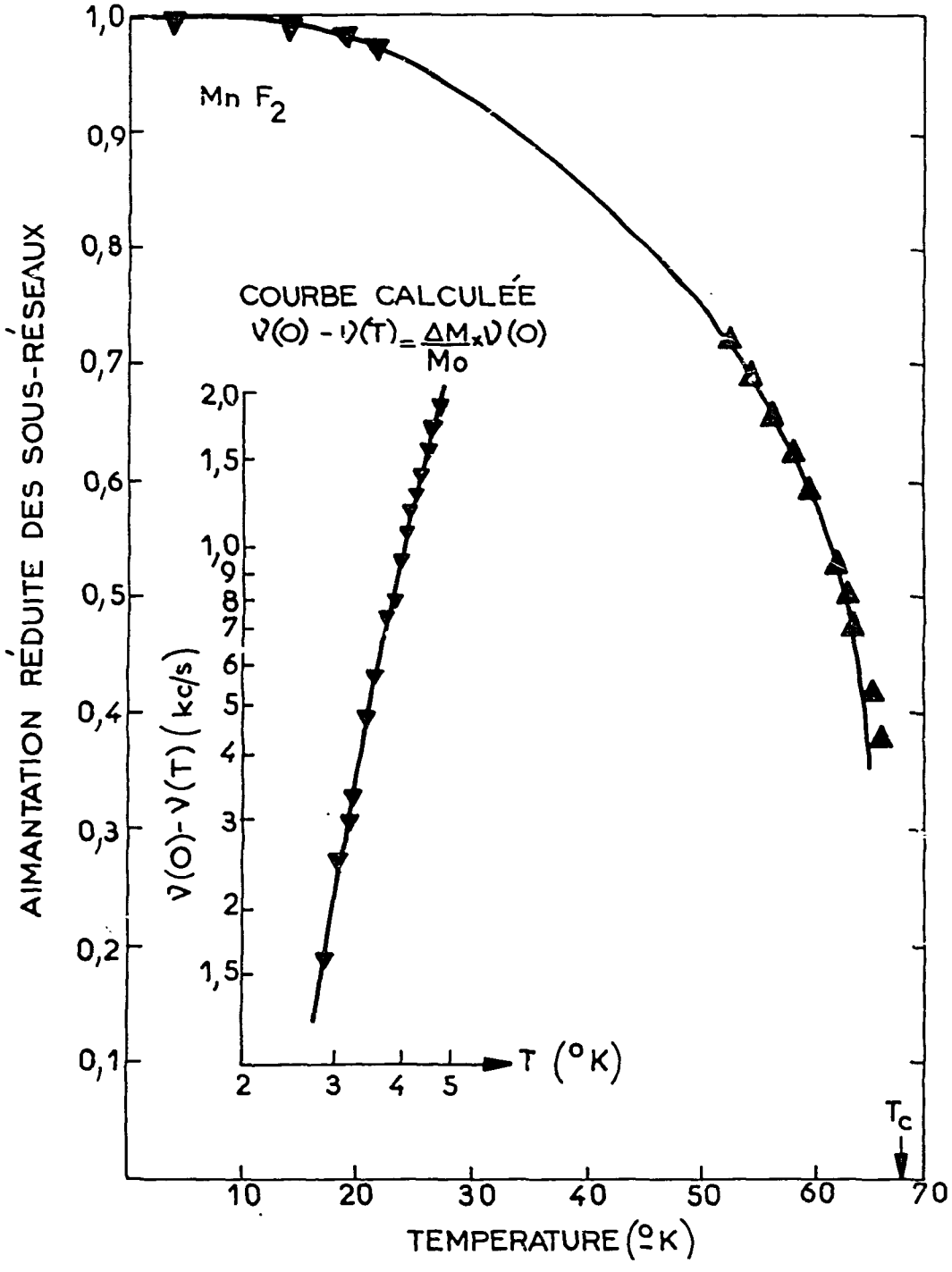


Figure 18 : Variation avec la température de l'aimantation d'un sous-réseau dans MnF_2 (d'après Low [31]). En traits pleins, les courbes théoriques. Points expérimentaux

▼ Jaccarino et Walker [56].

▲ Heller et Benedek [57].

CONCLUSION

On a exposé une théorie d'ondes de spin en interaction qui permet d'interpréter les variations de leurs énergies d'excitation ainsi que celles de l'aimantation pour diverses substances magnétiques ordonnées dans une grande partie de leur domaine d'existence. Précisons pour conclure les limites de cette étude et leur origine.

La théorie décrit mal le voisinage du point de transition : il n'est pas tenu compte de l'existence d'une borne supérieure aux nombres de déviations de spin (interaction cinématique) à des températures où la valeur moyenne de ces nombres devient comparable au maximum autorisé. On a montré sur un cas particulier dont l'intérêt est toutefois académique (la solution exacte étant le champ moléculaire de Weiss) qu'il suffisait de supprimer cette approximation pour faire apparaître la transition et la solution paramagnétique.

D'autre part, l'expression de l'aimantation dans une limite de basses températures n'est identique à celles données par Dyson [14] et Oguchi [25] qu'à un terme correctif en $\frac{0,2}{S} T^4$ près. Il faudrait inclure ce terme à toute température pour les faibles valeurs des nombres quantiques de spin.

Enfin, prenant pour point de départ un hamiltonien diagonal, la théorie ne prévoit pas de limite aux temps de vie des ondes de spin renormalisées alors qu'on observe expérimentalement [18] une augmentation avec la température de la largeur des pics de diffusion inélastique des neutrons. Cet effet apparaîtra si on inclut dans l'hamiltonien les termes non diagonaux relatifs aux collisions à deux corps, d'ailleurs responsables du terme correctif mentionné plus haut.

La prise en considération de ces trois points (si l'importance des développements mathématiques ne limite pas l'intérêt de la tentative) pourrait permettre d'étendre le champ d'application de la théorie proposée.

APPENDICE I

DÉTERMINATION DE LA VALEUR MOYENNE DU NOMBRE D'OCCUPATION PAR UNE MÉTHODE DIAGRAMMATIQUE [58]

On considère un système (S) de particules de Bose-Einstein en interaction, décrit par l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}_1^d \qquad (A.I.1)$$

$\mathcal{H}_o$ est l'hamiltonien du système (S_o) de particules indépendantes

$$\mathcal{H}_o = \sum_k \varepsilon_k^o \, a_k^+ \, a_k \qquad (A.I.2)$$

et

$$\mathcal{H}_1^d = \sum_{k,l} V_{kl} \; a_k^+ \, a_k \, a_l^+ \, a_l \qquad (A.I.3)$$

est le potentiel d'interaction. V_{kl} est inversement proportionnel au volume Ω du système.

Nous allons montrer que la valeur moyenne, prise sur le système (S), du nombre d'occupation $n_k = a_k^+ a_k$ d'un état $\vec{k}$ à une température T est donnée par l'équation intégrale

$$< n_k > = \left\{ \exp \left[\frac{\varepsilon_k^o + \sum_l 2V_{kl} < n_l >}{k_B T} \right] - 1 \right\}^{-1} \qquad (A.I.4)$$

dans le cas où on fait tendre le volume Ω du système vers l'infini.

1/ Développement en série de puissances de l'interaction .

Soit Z la fonction de partition du système (S), Z_o celle du système (S_o). On a :

$$Z = Tr \; e^{-\beta \mathcal{H}} \qquad (A.I.5)$$

$$Z_o = Tr \; e^{-\beta \mathcal{H}_o} \qquad (A.I.6)$$

avec

$$\beta = \frac{1}{k_B T} .$$

Le rapport $\frac{Z}{Z_o}$ est égal à la valeur moyenne, prise sur (S_o), de l'opérateur évolution du système en représentation interaction

$$U(\beta) = e^{+\beta \mathcal{H}_o} \, e^{-\beta \mathcal{H}} \qquad (A.I.7)$$

En effet,

$$\frac{Z}{Z_o} = Tr \left[\frac{e^{-\beta \mathcal{H}_o}}{Tr \; e^{-\beta \mathcal{H}_o}} \, e^{+\beta \mathcal{H}_o} \; e^{-\beta \mathcal{H}} \right] < U(\beta) >_o \qquad (A.I.8)$$

Du développement de $U(\beta)$ en série de puissances de l'interaction

$$U(\beta) = \sum_{p=o}^{\infty} (-1)^p \int_{\beta > u_1 > \ldots > u_p > o} du_1 \ldots du_p \, \mathcal{H}_1(u_1) \ldots \mathcal{H}_1(u_n) \qquad (A.I.9)$$

on déduit le développement de Z/Z_o :

$$\frac{Z}{Z_o} = \sum_{p=o}^{\infty} (-1)^p \int_{\beta > u_1 \ldots > u_p > o} du_1 \ldots du_p < \mathcal{H}_1(u_1) \ldots \mathcal{H}_1(u_p) >_o \qquad (A.I.10)$$

L'opérateur $\mathcal{H}_1(u) = e^{u\mathcal{H}_o} \mathcal{H}_1 e^{-u\mathcal{H}_o}$ est le potentiel $\mathcal{H}_1$ en représentation interaction.

Remarque

Dans le cas particulier étudié, $\mathcal{H}_o$ et $\mathcal{H}_1$ commutent. $\mathcal{H}_1(u_i)$ est alors indépendant de u_i ; l'intégration sur les "temps" qui figure dans (A.I.10), donne

$$Z/Z_o = \sum_{p=o}^{\infty} \frac{(-1)^p \beta^p}{p!} < (\mathcal{H}_1)^p >_o \qquad (A.I.11)$$

formule évidente d'après (A.I.8) si on remarque que dans ce cas,

$$U(\beta) = e^{-\beta\mathcal{H}_1}. \qquad (A.I.12)$$

Il est commode de garder en mémoire la formule (A.I.10) qui dans un produit d'ordre p $\mathcal{H}_1(u_1) \ldots \mathcal{H}_1(u_p)$ attribue à chaque facteur $\mathcal{H}_1(u_i)$ un temps u_i auquel se produit l'interaction.

Il existe un développement analogue de la fonction de Green à deux temps

$$G(u,v) = T \frac{Tr\,[e^{-\beta\mathcal{H}} a_k^{(H)+}(u)\, a_k^{(H)}(v)]}{Tr\,[e^{-\beta\mathcal{H}}]} . \qquad (A.I.13)$$

T est l'opérateur chronologique, et

$$a_k^{(H)+}(u) = e^{u\mathcal{H}} a_k^+(0)\, e^{-u\mathcal{H}}$$
$$a_k^{H}(v) = e^{v\mathcal{H}} a_k(0)\, e^{-v\mathcal{H}} \qquad (A.I.14)$$

les opérateurs a_k^+ et a_k en représentation de Heisenberg. $G(u,v)$ peut être écrite

$$G(u,v) = \frac{T < U(\beta,u)\, a_k^+(u)\, U(u,v)\, a_k(v)\, U(v,0) >_o}{< U(\beta,0) >_o} \qquad (A.I.15)$$

où ici $a_k^+(u)$ et $a_k(u)$ sont les opérateurs a_k^+ et a_k en représentation interaction. $U(u,v)$ est l'opérateur évolution

$$U(u,v) = e^{u\mathcal{H}_o} e^{-u\mathcal{H}} e^{v\mathcal{H}} e^{-v\mathcal{H}_o} \qquad (A.I.16)$$

dont le développement, qui généralise celui de $U(\beta)$, est

$$U(u,v) = \sum_{p=o}^{\infty} (-1)^p \int_{u > u_1 > \ldots u_p > v} du_1 \ldots du_p \, \mathcal{H}_1(u_1) \ldots \mathcal{H}_1(u_p). \qquad (A.I.17)$$

Nous avons supposé $u > v$. La modification à faire subir au traitement si $u < v$ est évidente.

En remplaçant dans (A.I.14) les opérateurs évolution par leur développement, on obtient celui de la fonction de Green.

$$G(u,v) = \frac{1}{Z/Z_o} \sum_{p=0}^{\infty}\sum_{q=0}^{\infty}\sum_{r=0}^{\infty} \int_{\beta > u_1 .. > u_p > u > v_1 .. > v_q > v > w_1 .. w_r} du_1 .. du_p\, dv_1 .. dv_q\, dw_1 .. dw_r < \mathcal{H}_1(u_1) .. \mathcal{H}_1(u_p)\, a_k^+(u)\, \mathcal{H}_1(v_1) .. \mathcal{H}_1(v_q)\, a(v)\, \mathcal{H}_1(w_1) .. \mathcal{H}_1(w_r) >_o \qquad (A.I.18)$$

On remarque que, dans le produit d'operateurs, les temps sont ordonnés ce qui va permettre une représentation graphique simple. Rappelons enfin que G(u, v) ne dépend que de la différence (u - v) des "temps" complexes qui y figurent.

2/ Evaluation des valeurs moyennes sur (S_o) .

A chaque terme des développements de Z/Z_o et de G(u, v) est attachée la valeur moyenne prise sur le système (S_o) d'un produit d'opérateurs de création et d'annihilation. Le théorème de Wick généralisé [59] à la mécanique statistique permet de l'exprimer en fonction de valeurs moyennes de couples d'opérateurs ou contractions.

On définit la contraction de deux opérateurs a et b par

$$\overbrace{ab} = \frac{[a,b]}{1 - e^{-\beta\epsilon^o}} . \qquad (A.I.19)$$

Le crochet [a, b] désigne le commutateur de a et b, et ε^o est l'énergie d'excitation relative à l'opérateur a. Le signe - ou + est retenu suivant que a est un opérateur de création ou d'annihilation . Ainsi,

$$\overbrace{a_k^+ a_l} = \delta_{kl} f_k^- = \delta_{kl} \frac{e^{-\beta\epsilon_k^o}}{1 - e^{-\beta\epsilon_k^o}} \qquad (A.I.20)$$

$$\overbrace{a_k a_l^+} = \delta_{kl} f_k^+ = \delta_{kl}(1 + f_k^-) = \delta_{kl} \frac{1}{1 - e^{-\beta\epsilon_k^o}} \qquad (A.I.21)$$

Les contractions relatives à des opérateurs de même nature (tous deux de création ou d'annihilation) sont nulles.

Selon le théorème de Wick généralisé, *la valeur moyenne sur l'ensemble (S_o) d'un produit d'opérateurs est égale à la somme de tous les systèmes complets de contraction.*

Par exemple

$$\begin{aligned} < a_k^+ a_k\, a_l^+ a_l >_o &= \overbrace{a_k^+ a_k}\ \overbrace{a_l^+ a_l} + \overbrace{a_k^+ a_k\, a_l^+}\ a_l + a_k^+ \overbrace{a_k\, a_l^+ a_l} \\ &= f_k^- f_l^- + \delta_{kl} f_k^- f_k^+ \end{aligned} \qquad (A.I.22)$$

3/ Application à la représentation diagrammatique et au calcul de Z/Z_o et de G(u, v)

On utilise le théorème de Wick pour développer les valeurs moyennes qui interviennent dans les expressions (A.I.10) et (A.I.18). A chaque terme contenant un produit complètement contracté on fait correspondre un diagramme.

a) Les interactions sont représentées par des segments pointillés verticaux. Les temps qui leur sont associés croissent de la droite vers la gauche sur les expressions algébriques et sur les diagrammes.

b) Les contractions sont figurées par des lignes qui joignent les interactions et portent des flèches allant de l'opérateur de création vers l'opérateur d'annihilation(*). La disposition droite-gauche des opérateurs dans l'expression algébrique est conservée sur les diagrammes. Pour les opérateurs intervenant dans la même interaction le sens droite-gauche est remplacé par le sens haut-bas.

Les règles énoncées sont telles qu'il existe une correspondance biunivoque entre l'ensemble des systèmes complètement contractés et l'ensemble des diagrammes graphiquement distincts (c'est-à-dire abstraction faite de l'appellation des impulsions portées par les lignes). Deux diagrammes différant par le retournement d'une interaction sont distincts.

Exemple

$$V_{k_1 l_1}\, a^+_{k_1}\, a_{k_1}\, a^+_{l_1}\, a_{l_1}\, V_{k_2 l_2}\, a^+_{k_2}\, a_{k_2}\, a^+_{l_2}\, a_{l_2}$$

est représentée par le diagramme de la figure 19.

Z/Z_0 est représentée par un ensemble de diagrammes vide-vide (sans ligne ouverte).

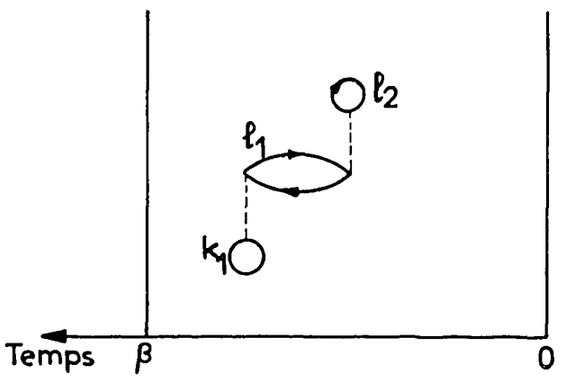


Figure 19 : Diagramme représentant la contraction écrite ci-dessus.

G(u,v) est représentée par un ensemble de diagrammes ayant tous une ligne qui aboutit en un point A de cote v et une ligne qui part d'un point A' de cote u (fig. 20).

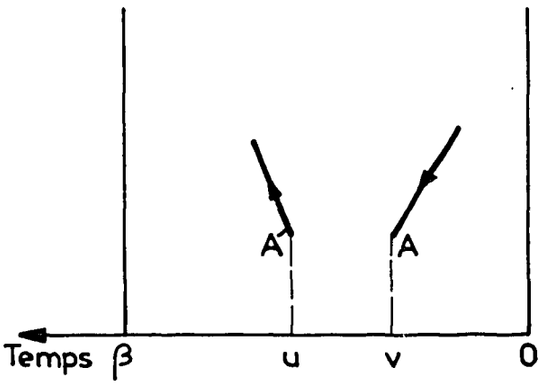


Figure 20 : Aspects communs des diagrammes contribuant à G(u,v).

(*) Deux lignes sont accrochées à chaque extrémité du segment vertical qui représente une interaction à deux corps $\mathcal{H}_1$; le segment vertical associé à une interaction extérieure $\mathcal{H}'_1 = \sum_{kl} w_{kl}\, a^+_k\, a_l$ a une seule de ses extrémités pourvue de lignes.

Pour calculer Z/Z_o, on trace pour toutes les valeurs de p tous les diagrammes vide-vide distincts formés avec p interactions, et on leur associe une contribution calculée de la façon suivante :

a) A chaque interaction accrochée aux lignes d'impulsion $\vec{k}_1$, l_1 on fait correspondre le facteur $V_{k_1 l_1}$.

b) A chaque ligne relative à un état $\vec{k}$ on associe un facteur f_k^+ ou f_k^- selon que la ligne va de la droite vers la gauche ou de la gauche vers la droite. A chaque bulle (ligne qui se referme sur elle-même) on fait correspondre un facteur f^-. La valeur de Z/Z_o est alors obtenue en effectuant d'abord une sommation de toutes ces contributions sur toutes les impulsions attachées aux lignes, puis en réalisant l'opération $\sum_p (-1)^p \frac{\beta^p}{p!}$ indiquée équation (A.I.11) ou bien, ce qui est équivalent, l'intégration sur les "temps" $\int_{\beta > u_1 \ldots > u_p > o}^{\bullet} du_1\, du_2 \ldots du_p$.

On ne détaille pas le calcul de G(u,v) qui s'exposerait de façon analogue.

4/ Etude des diagrammes relatifs à Z/Z_o et à $\langle n_k \rangle$.

Le diagramme le plus général est formé d'un certain nombre de parties connexes. On montre sans difficulté [58] que $\langle n_k \rangle$, qui a pour expression

$$\langle n_k \rangle = \frac{Tr\,[e^{-\beta \mathcal{H}} a_k^+ a_k]}{Tr\,[e^{-\beta \mathcal{H}}]} = \frac{\langle e^{-\beta \mathcal{H}_1} n_k \rangle_o}{\langle e^{-\beta \mathcal{H}_1} 1 \rangle_o} \qquad (A.I.23)$$

peut être réduit à une somme de contributions de diagrammes connexes :

$$\langle n_k \rangle = \langle e^{-\beta \mathcal{H}_1} a_k^+ a_k \rangle_{o\,connexe} \qquad (A.I.24)$$

Selon (A.I.24), les diagrammes représentant $\langle n_k \rangle$ s'obtiennent en accrochant de toutes les façons possibles le point A_k situé à l'origine des temps à chacun des *diagrammes connexes* intervenant dans la représentation de Z/Z_o.

Etudions la dépendance dans le volume de ces derniers. Elle est calculée de la façon suivante : chaque interaction apporte un facteur Ω^{-1}, chaque sommation sur une impulsion indépendante un facteur Ω. La contribution est au maximum proportionnelle à Ω.

Les diagrammes ayant la contribution maximale sont des arbres de boucles (une boucle est la figure formée par une succession fermée de lignes relatives à la même impulsion reliant entre elles des interactions).

Pour p = 1, on obtient le diagramme de la figure (21a). Les diagrammes d'ordre supérieur sont formés à partir de celui-ci en ajoutant un nombre égal d'interactions et de boucles. Pour p = 2 on obtient les diagrammes de la figure (21b).

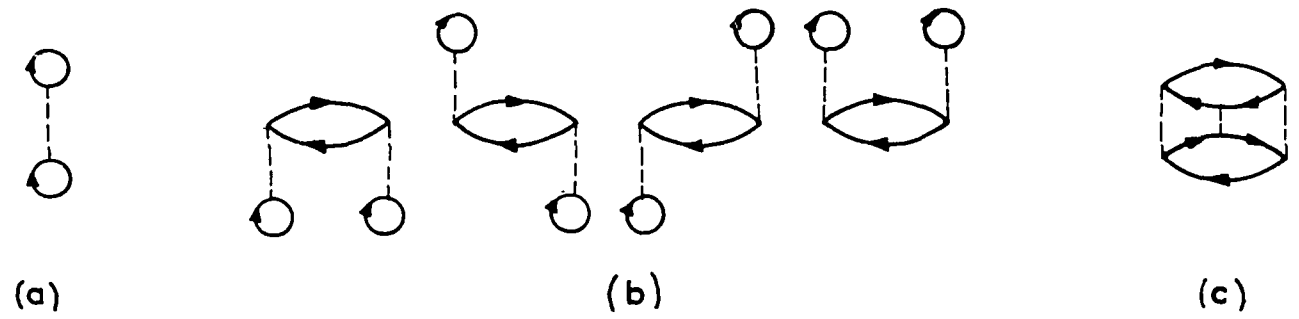


Figure 21 : a) Diagramme de degré p = 1 contribuant à Z/Z_o. b) Diagrammes de degré p = 2 contribuant à Z/Z_o. c) Diagramme dont la dépendance dans le volume est d'ordre inférieur à celle des précédents. Il ne contribue pas à Z/Z_o dans la limite des volumes infinis.

Nous nous plaçons dans la limite des volumes infinis, et par conséquent ignorons tous les diagrammes dont la contribution est d'ordre Ω^0 ou inférieur (des exemples en sont donnés figure (21c)).

La valeur de $\langle n_k \rangle$ est donc obtenue en sommant la contribution de tous les diagrammes connexes en arbres de boucles ayant une boucle d'impulsion $\vec{k}$ fixée en A_k.

Remarque

La position particulière de A_k à l'origine des temps n'intervient pas. Soit A'_k un point de cote quelconque non nulle sur l'axe des temps, figurant un couple d'opérateurs $a^+(u)$ a (u). Les diagrammes connexes en arbres de boucles ayant une boucle d'impulsion $\vec{k}$ fixée en A' ont la même somme $\langle n_k \rangle$. En effet (c.f. paragraphe 3) ils représentent la fonction de Green G(u,u) qui a la propriété (c.f. paragraphe 1) d'être indépendante de u et en particulier égale à G(0,0).

5/ Première sommation partielle .

Nous allons réduire à un seul tous les diagrammes connexes contenant une boucle d'impulsion $\vec{k}$ où aboutissent q interactions. Soit (Γ) un de ces diagrammes, et B_{k_1} le point de départ d'une interaction qui aboutit en B_l sur une boucle d'impulsion $\vec{l}$ (fig. 22). Séparons par la pensée le diagramme (Γ) au point B_l en deux parties, dont l'une (Γ_k) contient en particulier la boucle d'impulsion $\vec{k}$ et l'interaction B_{k_1} B_l, et l'autre (Γ_l) la boucle d'impulsion $\vec{l}$. Considérons la famille des diagrammes obtenus en déplaçant (Γ_l) sur l'axe des temps, de façon à donner aux interactions qui y figurent toutes les positions relatives par rapport à celles qui figurent dans (Γ_k). Les contributions γ_k et γ_l des deux parties se factorisent, et la contribution totale de la famille est

$$\gamma_k \sum_l V_{kl} \gamma_l$$

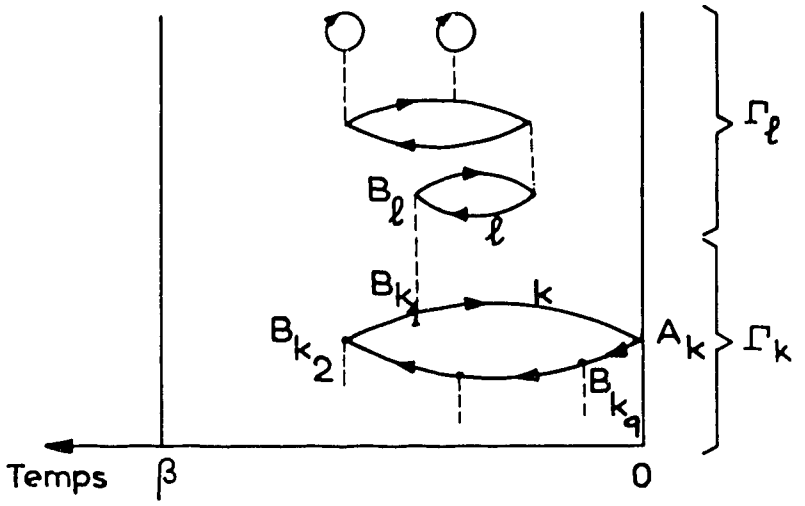


Figure 22 : Diagramme connexe contribuant à $\langle n_k \rangle$.

A la figure (Γ_k) on peut maintenant associer tous les diagrammes (Γ_l) distincts que l'on "accroche" en B_l. La somme des contributions de ces derniers est $\langle n_l \rangle$, d'après la remarque faite au paragraphe précédent.

La famille des diagrammes formés par association de (Γ_k) et de l'ensemble des (Γ_l) distincts a une contribution

$$\gamma_k \sum_l 2V_{kl} \langle n_l \rangle$$

le facteur 2 venant de la possibilité de retourner l'interaction B_{k_1} B_l.

Ce qui vient d'être fait en B_{k_1} peut être fait au point d'impact sur la boucle $\vec{k}$ de chacune des q interactions.

L'ensemble de tous les diagrammes construits autour de la boucle d'impulsion $\vec{k}$ peut être remplacé par un diagramme unique, formé par la même boucle d'où partent q interactions à un corps, et dont la contribution est calculée de la façon suivante :

a) On effectue le produit des facteurs statistiques $f_k^{\pm}$ qui interviennent.

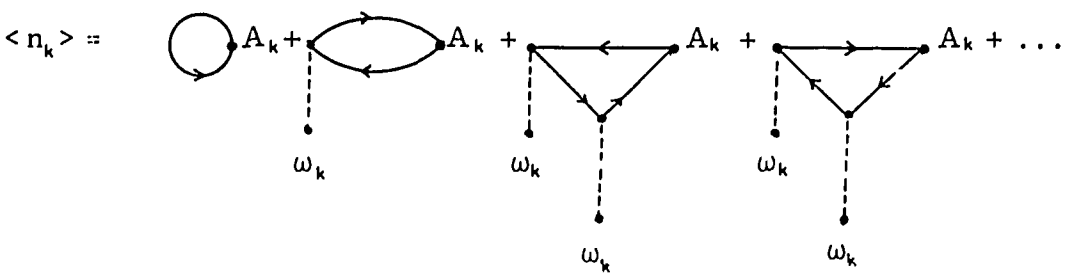
b) On attribue à chaque interaction un facteur multiplicatif

$$\omega_k = \sum_l 2V_{kl} < n_l > .$$

c) On effectue une sommation sur $\vec{k}$ et une intégration sur les temps.

6/ Deuxième sommation

Pour obtenir la valeur de $< n_k >$, il reste à effectuer la somme sur q des contributions de toutes les boucles distinctes portant q interactions :



Cette somme représente la valeur de $< n_k >$ pour un ensemble de particules définies par l'hamiltonien

$$\mathcal{H}' = \mathcal{H}_o + \mathcal{H}'_1$$

où

$$\mathcal{H}_o = \sum_k \varepsilon_k^o \, a_k^+ \, a_k$$

est l'hamiltonien des particules isolées, et

$$\mathcal{H}'_1 = \sum \omega_k \, a_k^+ \, a_k$$

un potentiel externe diagonal.

On sait l'évaluer en traitant $\mathcal{H}'$ comme un hamiltonien de particules isolées dont les énergies d'excitation individuelles sont $\varepsilon_k^o + \omega_k$. En remplaçant ω_k par sa valeur $\sum_l 2V_{kl} < n_l >$, on obtient l'équation intégrale à laquelle satisfait $< n_k >$

$$< n_k > = \frac{1}{\exp\left\{\dfrac{\varepsilon_k^o + \sum_l 2V_{kl} < n_l >}{k_B T}\right\} - 1} \qquad \text{(A.I.25)}$$

APPENDICE II

TRANSFORMATION DU POTENTIEL D'INTERACTION ENTRE ONDES DE SPIN

Le potentiel

$$\mathcal{H}_1^d = \sum_{k,l} \left\{ -\frac{J}{N} (\gamma_o + \gamma_{k-l} - \gamma_k - \gamma_l)\, n_k\, n_l \right\} \tag{A.II.1}$$

peut être écrit

$$\mathcal{H}_1^d = \sum_{k,l} \left\{ -\frac{1}{4JN\gamma_o S^2}\, \varepsilon_k^o\, \varepsilon_l^o\, n_k\, n_l \right\} \tag{A.II.2}$$

où

$$\varepsilon_k^o = 2\gamma_o JS\left(1 - \frac{\gamma_k}{\gamma_o}\right) ; \quad \gamma_k = \sum_{\vec{\delta}} e^{i\vec{k}.\vec{\delta}} \tag{A.II.3}$$

La sommation sur $\vec{\delta}$ porte sur les différents vecteurs joignant deux noeuds premiers voisins dans le cristal, qui forment un ensemble $\{\vec{\delta}\}$.

Pour établir (A.II.2) il suffit de démontrer que

$$\sum_{k,l} \gamma_{k-l}\, n_k\, n_l = \frac{1}{\gamma_o} \left(\sum_k \gamma_k \right)^2 \tag{A.II.4}$$

(on note que l'égalité ne porte que sur les sommations), ou encore que la quantité

$$f(\vec{\delta}) = \sum_k e^{i\vec{k}.\vec{\delta}}\, n_k \tag{A.II.5}$$

a une valeur indépendante du vecteur particulier choisi dans l'ensemble $\{\vec{\delta}\}$. Démontrons cette propriété pour un réseau de Bravais. Considérons un vecteur $\vec{\delta}' \neq \vec{\delta}$. Il résulte de la définition du groupe ponctuel du réseau cristallin [60] que l'on peut toujours trouver une opération G de ce groupe, représentée par une matrice $\tilde{g}$, telle que

$$\vec{\delta} = \tilde{g}\, \vec{\delta}'. \tag{A.II.6}$$

Le réseau réciproque du réseau cristallin possédant le même groupe ponctuel, le vecteur $\vec{k}'$ défini par

$$\vec{k} = \tilde{g}^{-1}\, \vec{k}' \tag{A.II.7}$$

apparaît dans la sommation sur $\vec{k}$. D'autre part, on a

$$n_k = n_{g^{-1}k'} = n_{k'} \tag{A.II.8}$$

Par suite

$$f(\vec{\delta}) = \sum_k e^{i\vec{k}.\vec{\delta}}\, n_k = \sum_{k'} e^{i\vec{k}'.\vec{\delta}'}\, n_{k'} = f(\delta'). \tag{A.II.9}$$

APPENDICE III

DÉTERMINATION DES RELATIONS DE DISPERSION DES ONDES DE SPIN DANS UN MODÈLE VECTORIEL

Soit une chaîne linéaire formée de N sites équidistants de a. En ces sites sont localisés des ions doués de spin, soumis à un champ magnétique extérieur $\vec{H}$ dirigé dans le sens négatif de $\overrightarrow{Oz}$, et couplés par des interactions d'échange entre premiers voisins. On expose d'abord la détermination dans un modèle vectoriel des relations de dispersion des ondes de spin pour une chaine(*) ferromagnétique et antiferromagnétique (due à Keffer, Kaplan et Yafet [61]). Leur méthode s'adapte simplement au cas d'une chaîne ferrimagnétique qui est examiné en dernier.

1/ Mouvement d'un spin isolé dans un champ magnétique.

On considère un ion de moment cinétique de spin $S\hbar$, soumis uniquement au champ magnétique $\vec{H}$. Le modèle vectoriel des spins donne des résultats identiques aux résultats quantiques si on représente cet ion par un vecteur $\vec{S}$ de l'espace à trois dimensions, de longueur $S_o = \sqrt{S(S+1)}$, et dont la projection sur $\overrightarrow{Oz}$ peut varier par valeurs entières de $-S$ à $+S$. L'ion possède un moment magnétique

$$\vec{\mu} = \gamma \hbar \vec{S} \qquad \text{(A.III.1)}$$

où

$$\gamma = \frac{ge}{2mc} = \frac{g\mu_B}{\hbar}, \qquad \text{(A.III.2)}$$

de même direction et de sens contraire à $\vec{S}$. Ici e, μ_B, et γ sont négatifs.

L'équation du mouvement du vecteur $\vec{S}$ peut être écrite

$$\frac{d\hbar\vec{S}}{dt} = \vec{\mu} \times \vec{H} \qquad \text{(A.III.3)}$$

soit

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \gamma \vec{S} \times \vec{H} \,. \qquad \text{(A.III.4)}$$

$\vec{S}$ effectue autour de $\overrightarrow{Oz}$ une précession uniforme (précession de Larmor) de vitesse angulaire

$$\omega_L = \gamma H \qquad (H \text{ est le module de } \vec{H})$$

dans le sens négatif avec les conventions choisies. L'amplitude de la précession dépend des conditions initiales.

Remarque - Le sens de la précession ne dépend que de l'orientation de $\vec{H}$. Ainsi pour une chaîne antiferromagnétique, les précessions de Larmor des spins des deus sous-réseaux ont lieu dans le même sens.

Energie du spin dans le champ.

Elle est négative quand $\vec{S}$ et $\vec{H}$ sont opposés et a pour valeur $g\mu_B SH$. (A.III.5)

(*) La méthode est applicable quel que soit le nombre de dimensions du réseau des spins.

2/ Chaîne linéaire ferromagnétique

L'hamiltonien du système est

$$\mathcal{H} = -2J \sum_{<ij>} \vec{S}_i . \vec{S}_j - g\mu_B \vec{H} . \sum_i \vec{S}_i . \qquad (A.III.6)$$

La somme s'étend aux couples <ij> de premiers voisins, et l'intégrale d'échange J est positive.

Chaque spin $\vec{S}_i$ est soumis à un couple dû à l'action d'un champ effectif $\vec{H}_{ieff.}$, somme du champ extérieur et du champ créé par ses voisins. La valeur de $\vec{H}_{ieff.}$ est obtenue par identification à partir de l'hamiltonien $\mathcal{H}_i$ relatif au spin $\vec{S}_i$:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_i &= -g\mu_B \vec{S}_i . \left[\vec{H} + \frac{2J}{g\mu_B} (\vec{S}_{i-1} + \vec{S}_{i+1}) \right] \\ &= -g\mu_B \vec{S}_i . \vec{H}_{ieff.} \end{aligned} \qquad (A.III.7)$$

D'où l'équation du mouvement

$$\frac{d\vec{S}_i}{dt} = \gamma \vec{S}_i \times \left[\vec{H} + \frac{2J}{g\mu_B} (\vec{S}_{i-1} + \vec{S}_{i+1}) \right] . \qquad (A.III.8)$$

Au zéro absolu, tous les spins ont une composante suivant $\overrightarrow{Oz}$ maximale de valeur S et effectuent autour du champ appliqué la précession de Larmor.

Cherchons les premières excitations. Du fait de l'invariance du système par rapport aux rotations autour de $\overrightarrow{Oz}$, il doit exister des *modes normaux* de vibration, c'est-à-dire des modes de précession uniforme de l'ensemble des spins avec conservation des relations de phase entre spins voisins. On utilise pour les trouver la méthode suivante qui sera appliquée pour les autres types de couplage : on considère une configuration instantanée de l'ensemble des spins de la chaîne, et on détermine les actions auxquelles sont soumis les spins, et le mouvement résultant du système. La configuration initiale était satisfaisante si ce mouvement répond à la définition du mode normal.

La configuration qu'il faut choisir pour une chaîne ferromagnétique est évidente : les spins doivent tous être soumis à des couples égaux et par conséquent, occuper par rapport à leurs voisins une position identique à une rotation autour de $\overrightarrow{Oz}$ près. Si on les trace à partir d'un même point (figure 23a), leurs extrémités sur le cercle précessionnel sont celles des rayons d'une roue, chaque rayons $\vec{IS}_i$ (de longueur R) faisant avec le rayon suivant (figure 23b) un angle égal

$$(\vec{IS}_i, \vec{IS}_{i+1}) = ka \qquad \text{quel que soit i.} \qquad (A.III.9)$$

L'équation du mouvement d'un spin $\vec{S}_i$ s'écrit alors (figure 23c) :

$$\frac{d\vec{S}_i}{dt} = \gamma \vec{S}_i \times \left[\vec{H} + \frac{4J}{g\mu_B} \overrightarrow{OS'_i} \right] \qquad (A.III.10)$$

où

$$\overrightarrow{OS'_i} = \frac{1}{2} (\vec{S}_{i-1} + \vec{S}_{i+1}).$$

Pour les premières excitations, l'angle ka est petit de sorte que $\overrightarrow{OS_i}$ et $\overrightarrow{OS'_i}$ ont approximativement la même longueur S_o, et de plus

$$x = S'_i S_i \sim R \frac{(ka)^2}{2} . \qquad (A.III.11)$$

D'autre part, $R << S_o$ (sur les figures R et ka ont été agrandis). On peut alors écrire

$$\frac{dS_i}{dt} = \omega_k R = R \gamma H - \frac{4J}{\hbar} S_o x \qquad (A.III.12)$$

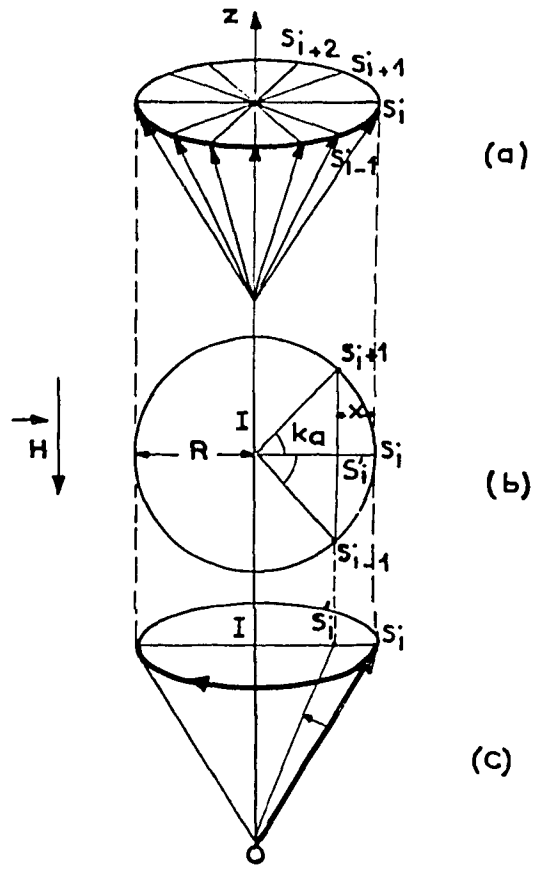


Figure 23 : Onde de spin de vecteur d'onde $\vec{k}$ sur une chaîne linéaire ferromagnétique : a) Configuration instantanée de l'ensemble des spins tracés à partir d'un même point. b) Projection horizontale relative à trois spins voisins. c) Le sens de l'angle $(\overrightarrow{OS_i}, \overrightarrow{OS'_i})$ commande le sens de la précession.

$$\boxed{\omega_k = \gamma H - \frac{4JS_o}{\hbar}\frac{(ka)^2}{2}} \qquad \text{(A.III.13)}$$

Sur la figure 23c, l'angle orienté $(\overrightarrow{OS_i}, \overrightarrow{OS'_i})$ indique le signe du couple dont se déduit celui de la précession due à l'échange. Ici les fréquences des précessions dues à l'échange et au champ extérieur sont de même signe (négatives) et s'ajoutent.

Le mouvement du système est une rotation uniforme autour de $\overrightarrow{Oz}$ de la figure 23a (spins écartés de ka), avec la vitesse angulaire ω_k. Il conserve les relations de phase entre spins voisins. Le mode normal trouvé correspond à l'excitation d'un certain nombre n_k d'ondes de spin de vecteur d'onde $\vec{k}$, et d'énergie individuelle

$$\varepsilon_k^o = -\hbar\omega_k = -g\mu_B H + 2JS_o a^2 k^2 \qquad \text{(A.III.14)}$$

somme de deux termes positifs puisqu'il a fallu lutter contre le champ $\vec{H}$ pour écarter les spins de l'axe $\overrightarrow{Oz}$ et contre l'échange pour déphaser leurs mouvements de ka. On montrerait facilement que la surface R^2 du cercle précessionnel est proportionnelle au nombre n_k d'ondes de spin excitées, et que l'excitation de chaque onde de spin a pour effet de diminuer d'une unité la composante $\sum_i S_i^z$ suivant $\overrightarrow{Oz}$ du spin total. L'ensemble des énergies des modes normaux correspondant aux diverses valeurs permises de $\vec{k}$ constitue le spectre d'ondes de spin de la chaîne.

3/ Chaîne linéaire antiferromagnétique.

L'hamiltonien du système est

$$\mathcal{H} = 2J \sum_{<ij>} \vec{S}_i . \vec{S}_j - g\mu_B \vec{H} . \sum_i \vec{S}_i \qquad \text{(A.III.15)}$$

avec les mêmes notations qu'au paragraphe précédent, et $J > 0$. La chaîne peut être divisée ici en un sous-réseau (A) (indices impairs) orienté dans le sens positif de $\overrightarrow{Oz}$ et un sous-réseau (B) (indices pairs) orienté dans le sens négatif. Les spins des deux sous-réseaux ont la même longueur. Leurs mouvements ne sont pas indépendants puisqu'ils sont couplés par les interactions d'échange.

L'équation du mouvement d'un spin $\vec{S}_i$ est

$$\frac{d\vec{S}_i}{dt} = \gamma \vec{S}_i \times \left[\vec{H} - \frac{2J}{g\mu_B} (\vec{S}_{i-1} + \vec{S}_{i+1}) \right] \qquad \text{(A.III.16,}$$

quel que soit le sous-réseau auquel il appartient, ou encore

$$\frac{d\vec{S}_i}{dt} = \gamma \vec{S}_i \times \left[\vec{H} + \frac{4J}{g\mu_B} \overrightarrow{OS}'_i \right], \qquad \text{(A.III.17)}$$

équation identique à (A.III.10), où ici

$$\overrightarrow{OS}'_i = -\frac{1}{2} (\vec{S}_{i-1} + \vec{S}_{i+1}).$$

On est tenté de choisir pour chaque sous-réseau une configuration initiale analogue à celle du paragraphe précédent (figure 24a). Soient $\vec{S}_i$ un spin impair, $\vec{S}_j$ un spin pair. D'après la relation (A.III.17), les précessions des deux sous-réseaux ont lieu dans des sens opposés, (figure 24b), ce qui a pour effet de brouiller les relations de phase entre spins voisins existant dans la configuration initiale : le mode correspondant n'est pas un mode normal. Pour en obtenir un, il suffit que les spins impairs et pairs effectuent leur précession sur des cercles de rayons légèrement différents R et P de façon à modifier le sens d'un des angles $(\overrightarrow{OS}_i, \overrightarrow{OS}'_i)$ ou $(\overrightarrow{OS}_j, \overrightarrow{OS}'_j)$. Il existe deux modes suivant que le plus grand rayon est attribué au réseau impair ou au réseau pair. Le premier cas correspond à une diminution en valeur absolue de l'aimantation du réseau impair supérieure à celle du réseau pair, soit à une diminution de l'aimantation totale, le deuxième cas à une augmentation de l'aimantation totale de la chaîne. En l'absence de champ extérieur, les deux modes sont entièrement symétriques et ont la même énergie. La présence de $\vec{H}$ lève cette dégénérescence.

Déterminons la loi de dispersion relative au premier mode (figure 25a). Sur la figure 25c est représentée la projection horizontale de la configuration initiale. Soit ω_{ka} la fréquence de rotation. Les équations du mouvement relatives aux deux réseaux donnent

$$\begin{aligned} \omega_{ka} R &= R\gamma H - \frac{4J}{\hbar} S_o y \\ \omega_{ka} P &= P\gamma H - \frac{4J}{\hbar} S_o x. \end{aligned} \qquad \text{(A.III.18)}$$

D'où une première relation :

$$\frac{x}{P} = \frac{y}{R} \qquad \text{(A.III.19)}$$

D'autre part, (figure 25b)

$$\begin{aligned} x &= R\left[1 - \frac{(ka)^2}{2}\right] - P \\ y &= R - P\left[1 - \frac{(ka)^2}{2}\right] \end{aligned} \qquad \text{(A.III.20)}$$

On en déduit :

$$\frac{x}{P} = \frac{y}{R} = |ka| \qquad \text{(A.III.21)}$$

D'où

$$\omega_{ka} = \gamma H - \frac{4J}{\hbar} S_o |ka|. \qquad \text{(A.III.22)}$$

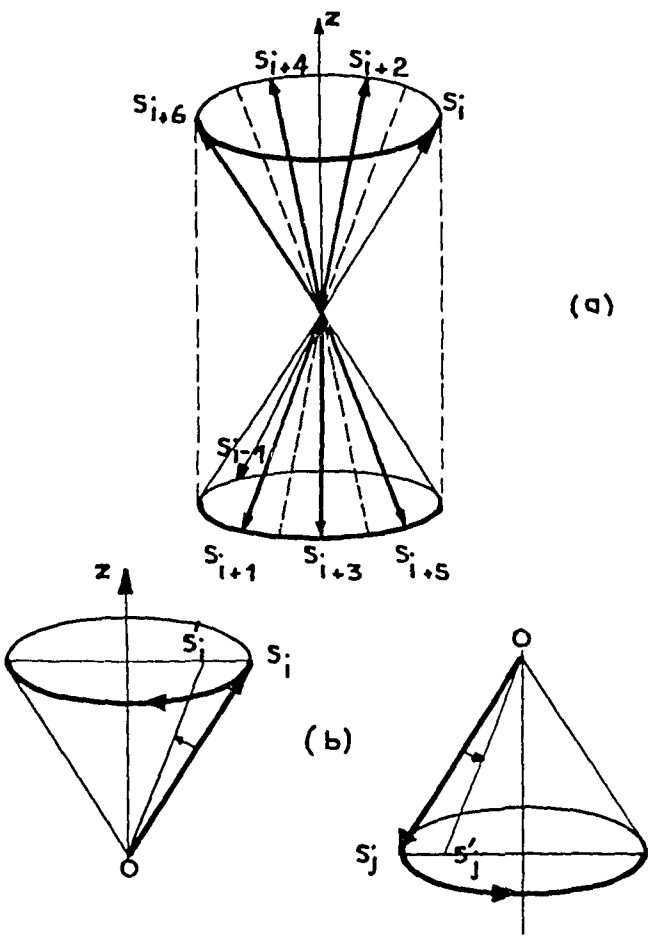


Figure 24 : Onde de spin sur une chaîne linéaire antiferromagnétique. La configuration instantanée (24 a) conduit à des précessions en sens contraires pour les spins des deux sous-réseaux, (24b), et ne correspond pas à un mode normal.

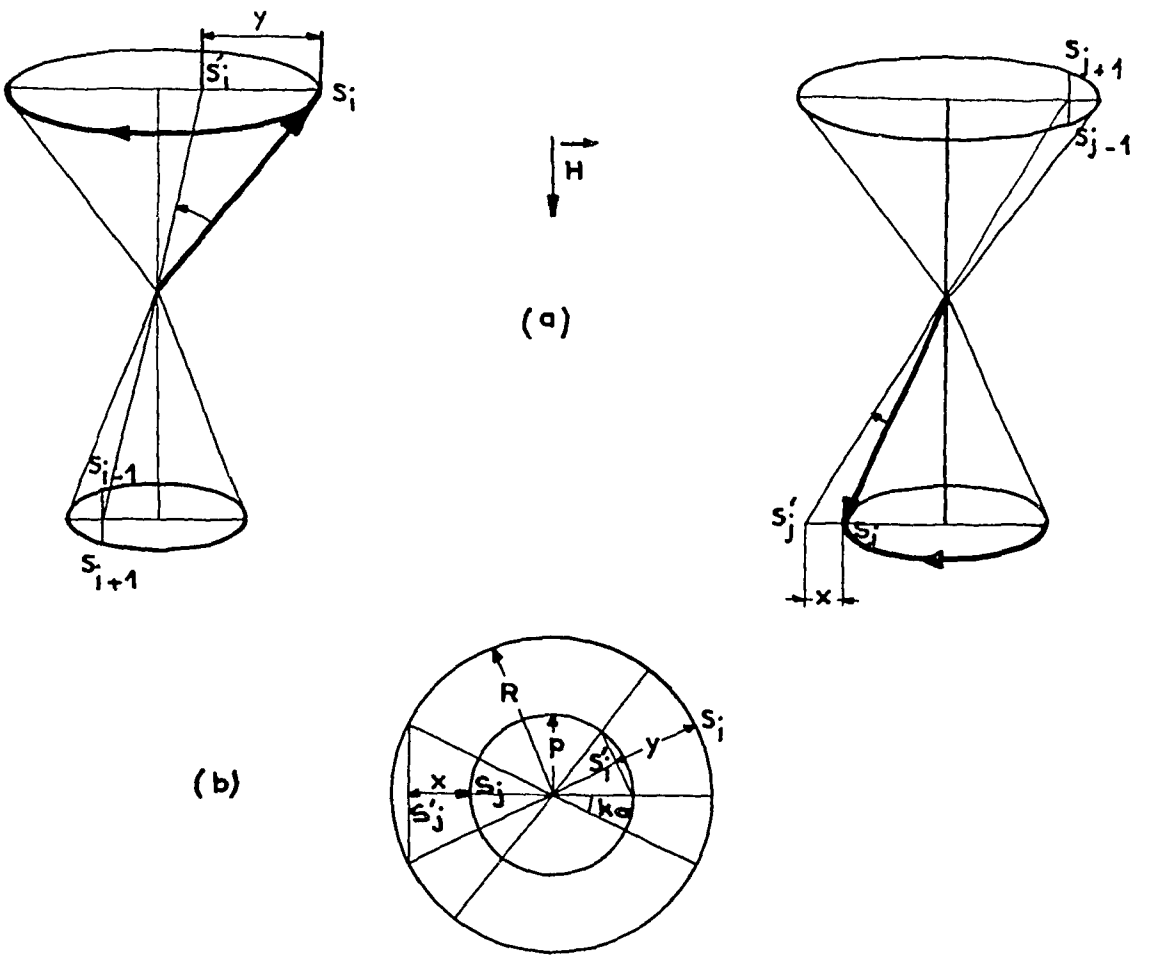


Figure 25 : Onde de spin sur une chaîne linéaire antiferromagnétique. La configuration instantanée (25a) conduit à des précessions de même sens pour les spins des deux sous-réseaux et correspond à un mode normal. (25b) - Projection horizontale. $\vec{S}_i$ et $\vec{S}_j$ sont deux spins voisins.

On aurait obtenu de même pour l'autre mode

$$\omega_{k\beta} = \gamma H + \frac{4J}{\hbar} S_o \,|ka|\,. \qquad \text{(A.III.23)}$$

Les énergies d'excitation des deux modes ont pour expression

$$\varepsilon_{ka,k\beta} = \hbar\omega_{ka,k\beta} = 4JS_o\,|ka| \mp \hbar\gamma H. \qquad \text{(A.III.24)}$$

Il apparaît clairement dans ce modèle pourquoi il faut plus d'énergie pour créér une onde de spin dans un antiferromagnétique (loi en $|k|$) que pour en créér une de même vecteur d'onde dans un ferromagnétique (loi en k^2). Dans le premier cas, il faut lutter davantage contre l'échange pour donner aux cercles précessionnels des deux sous-réseaux des rayons différents.

4/ Chaîne linéaire ferrimagnétique .

L'hamiltonien du système est le même qu'au paragraphe précédent, ainsi que la division de la chaîne en deux sous-réseaux antiparallèles. Les spins impairs, orientés dans le sens positif de $\overrightarrow{Oz}$, ont une longueur $S_{oA} = \sqrt{S_A(S_A + 1)}$, les spins pairs une longueur $S_{oB} = \sqrt{S_B(S_B + 1)}$, avec $S_A > S_B$. Pour simplifier on écrira S_A et S_B au lieu de S_{oA} et S_{oB}.

Comment sont modifiés les résultats précédents ? On prévoit l'existence de deux modes normaux correspondant aux deux modes antiferromagnétiques, mais non dégénérés en l'absence de champ extérieur. On prévoit également qu'il sera plus facile de diminuer que d'augmenter l'aimantation de la chaîne (le champ effectif que voit S_A est plus faible que celui que voit S_B) : le mode β aura une énergie d'excitation supérieure à celle du mode α.

Déterminons la relation de dispersion du mode α. Les spins (A) effectuent une précession de rayon R supérieur au rayon P relatif aux spins (B) (figure 26a). On choisit encore une configuration instantanée caractérisée par un déphasage constant ka entre spins voisins. L'équation du mouvement (A.III.16), valable pour un spin $\vec{S}_i$ quelconque, conduit ici aux deux équations suivantes :

$$\begin{aligned} \omega_{ka} R &= R\,\gamma\,H - \frac{4J}{\hbar} S_B y \\ \omega_{ka} P &= P\,\gamma\,H - \frac{4J}{\hbar} S_A x \end{aligned} \qquad \text{(A.III.25)}$$

D'où

$$S_A \frac{x}{p} = S_B \frac{y}{R}\,. \qquad \text{(A.III.26)}$$

D'autre part, en éliminant x et y des relations

$$\begin{aligned} x &= R\frac{S_B}{S_A}\left[1 - \frac{(ka)^2}{2}\right] - P \\ y &= R - P\,\frac{S_A}{S_B}\left[1 - \frac{(ka)^2}{2}\right] \end{aligned} \qquad \text{(A.III.27)}$$

on obtient :

$$\frac{(ka)^2}{2} = \frac{(RS_B - PS_A)\,(R - P)}{R^2 S_B + P^2 S_A}\,. \qquad \text{(A.III.28)}$$

(ka) étant un petit angle, l'égalité précédente met en évidence deux configurations relatives aux deux modes prévus :

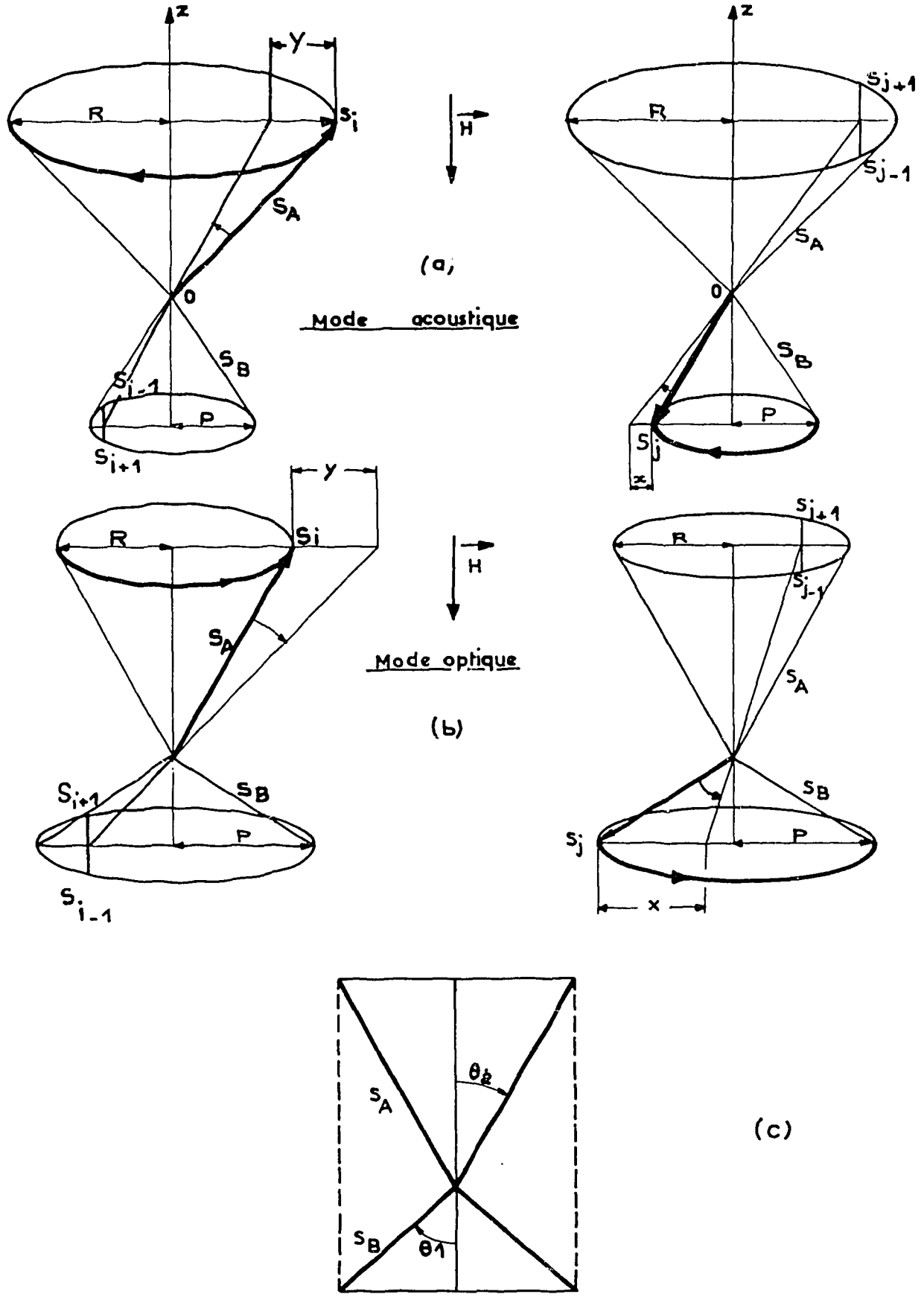


Figure 26 : Onde de spin sur une chaine linéaire ferrimagnétique. a) mode acoustique - Les spins (A) et (B) restent approximativement antiparallèles. b) mode optique - Les spins (A) et (B) effectuent des précessions sur des cercles de rayons voisins. c) configuration des spins pour le mode optique uniforme ($\vec{k} = 0$). Les cercles précessionnels sont égaux.

a) Les spins (A) et (B) restent approximativement antiparallèles ($RS_B \gtrsim PS_A$) dans le mode acoustique. L'antiparallélisme rigoureux est exclu, car il conduirait ici encore à des précessions de sens opposé pour chaque sous-réseau. Il est modifié par un écart supplémentaire des spins (A) (figure 26a).

b) *Les spins (A) et (B) effectuent des précessions telles que leurs extrémités décrivent des cercles de rayons voisins ($P \gtrsim R$) dans le mode optique* (figure 26b). Lorsqu'on a exactement P = R (figure 26c) la fréquence de précession correspondante $\omega_{o\beta}$ est telle que

$$\omega_{o\beta} R \sim \frac{4J}{\hbar} S_A S_B (\theta_1 - \theta_2) \qquad \text{(A.III.29)}$$

avec

$$\theta_1 - \theta_2 \sim R \left(\frac{1}{S_B} - \frac{1}{S_A}\right) \qquad \text{(A.III.30)}$$

soit

$$\omega_{o\beta} \sim \frac{4J}{\hbar} (S_A - S_B). \qquad \text{(A.III.31)}$$

Elle correspond à un mouvement des spins en concordance de phase (mode uniforme $\vec{k} = 0$). Ici, contrairement aux situations antérieures, la fréquence d'un mode uniforme fait intervenir l'intégrale d'échange J d'où le nom de résonance d'échange donné à l'excitation du mode optique de vecteur d'onde nul.

Il est très simple maintenant de déterminer les relations de dispersion des deux modes, à partir des figures 26b et 26c.

Les relations (A.III.27) sont valables pour le mode acoustique. En les combinant avec (A.III.28), on trouve

$$S_A \frac{x}{p} = S_B \frac{y}{R} = \frac{RS_B + PS_A}{R - P} \frac{(ka)^2}{2} \qquad \text{(A.III.32)}$$

d'où on déduit

$$\hbar\omega_{k\alpha} = \hbar \gamma H - 4J \frac{S_A S_B}{S_A - S_B} (ka)^2. \qquad \text{(A.III.33)}$$

Pour le mode optique, il faut écrire de nouvelles relations (A.III.27) (où x et y sont simplement remplacés par -x et -y), qui conduisent à

$$S_A \frac{x}{p} = S_B \frac{y}{R} \sim \frac{RS_B + PS_A}{P - R} \frac{(ka)^2}{2} . \qquad \text{(A.III.34)}$$

Ici, $(ka)^2$ étant proportionnel à (P - R), le couple $S_A \frac{x}{p}$ contient un terme fini (qui correspond à la fréquence $\omega_{o\beta}$) auquel s'additionne un terme infiniment petit. On trouve facilement

$$\hbar\omega_{k\beta} = \hbar \gamma H + 4J (S_A - S_B) + 4J \frac{S_A S_B}{S_A - S_B} (ka)^2. \qquad \text{(A.III.35)}$$

Les énergies d'excitation des deux modes sont respectivement

$$\varepsilon^o_{k\alpha} = -\hbar\omega_{k\alpha} \quad \text{et} \quad \varepsilon^o_{k\beta} = \hbar\omega_{k\beta}.$$

BIBLIOGRAPHIE

[1] Pierre WEISS - J. Phys., *6*, 667 (1907).

[2] W. HEISENBERG - Z. Physik, *49*, 619 (1928).

[3] P.A.M. DIRAC - Proc. Roy. Soc., *123A*, 714 (1929).

[4] J.C. SLATER - Phys. Rev., *35*, 509 (1930).

[5] F. BLOCH - Z. Physik, *61*, 206 (1930).

[6] G. HELLER et H.A. KRAMERS - Proc. Roy. Acad. Amsterdam, *37*, 378 (1934).

[7] L.D. LANDAU et E. LIFSHITZ - Phys. Z. Sowjet union, *8*, 153 (1935). E. LIFSHITZ - J. Phys. U.S.S.R. *8*, 337 (1944).

[8] C. HERRING et C. KITTEL - Phys. Rev., *81*, 869 (1951).

[9] A. HERPIN - "Théorie du Magnétisme", à paraître.

[10] J. YVON - Cahiers de Physique, n° 31, 32, (1948).

[11] Peter WEISS - Phys. Rev., *74*, 1493 (1948).

[12] N.N. BOGOLYUBOV et S.V. TYABLIKOV - Doklady Akad. Nauk S.S.R. *126*, 53 (1959). Soviet Phys. Doklady, *4*, 604 (1959).

[13] R. TAHIR KHELI et TER HAAR - Phys. Rev., *127*, 88, 95 (1962).

[14] F.J. DYSON - Phys. Rev., *102*, 1217, 1230 (1956).

[15] F. KEFFER et R. LOUDON - J. Appl. Phys., *32*, 25 (1961).

[16] F. BERTAUT et F. FORRAT - Compt. Rend. Acad. Sci. (Paris), *242*, 382 (1956).

[17] L. NÉEL - Ann. Phys., *3*, 137 (1948).

[18] B. JACROT et D. CRIBIER - J. Phys. Radium, *23*, 494 (1962).

[19] T. RISTE - J. Phys. Soc. Japan, *17*, suppl. B III, (1962).

[20] R.C. LECRAW et R.L. WALKER - J. Appl. Phys., *32*, 1675 (1961).

[21] A. HERPIN - dans "Physique des Basses Températures", Presses Universitaires de France, Paris (1962).

[22] C. KITTEL - "Quantum Theory of Solids", chapitre IV, Wiley, New-York (1963).

[23] A. MESSIAH - "Mécanique quantique", Dunod, Paris (1959).

[24] T. HOLSTEIN et H. PRIMAKOFF - Phys Rev., *58*, 1098 (1940).

[25] T. OGUCHI - Phys. Rev., *117*, 117 (1969).

[26] M. BLOCH - Phys. Rev. Letters, *9*, 286 (1962).

[27] D. PINES - "Elementary excitations in solids", Benjamen, New-York (1963) p. 77, et références citées.

[28] R. BALIAN et C. DE DOMINICIS - Nucl. Phys., *16*, 502 (1960).

[29] E.W. GORTER - J. Appl. Phys., *34*, 1253 (1963).

[30] T.R. Mc GUIRE, B.E. ARGYLE, M.W. SHAFER et J.S. SMART - J. Appl. Phys., *34*, 1345 (1963).

[31] G.G. LOW - Proc. Phys. Soc., *82* , 992 (1963).

[32] A.C. GOSSARD, V. JACCARINO et J.P. REMEIKA - Phys. Rev. Letters, *7* , 122 (1961).

[33] H.B. CALLEN - Phys. Rev., *130*, 890 (1963).

[34] H.A. BROWN et J.M. LUTTINGER - Phys. Rev., *100* , 685 (1955).

[35] H.A. BROWN - Phys. Rev., *104*, 624 (1956).

[36] H.L. DAVIS et A. NARATH - Phys. Rev., *134*, A 433 (1964).

[37] M. WORTIS - Phys. Rev., *138*, A1 126 (1965).

[38] C. KITTEL et H. SHORE - *138*, A 1 165 (1965).

[39] J.S. LANGER - Eastern Theoretical Physics Conference, Chapel Hill, North Carolina (Octobre 1963), et références citées.

[40] J. VAN KRANENDONK et J.H. VAN VLECK - Rev. Mod. Phys., *30*, 1 (1958).

[41] F.J. MILFORD et M.L. GLASSER - Phys. Letters, *2* , 248 (1962).

[42] H. WATANABE et B.N. BROCKHOUSE - Phys. Letters, *1* , 189 (1962).

[43] T. NAKAMURA - Communication privée.

[44] T. NAKAMURA et M. BLOCH - Phys. Rev., *132*, 2528 (1963).

[45] P. WOJTOWICZ - J. Appl. Phys., *31* , 265 S (1960).

[46] G.S. RUSHBROOKE et P.J. WOOD - Proc. Phys. Soc., *A68*, 1161 (1955) et Mol. Phys., *1* , 257 (1958).

[47] P.W. ANDERSON - Phys. Rev., *86*, 694 (1952).

[48] R. KUBO - Phys. Rev., *87* , 568 (1952).

[49] T. NAKAMURA - Prog. Theor. Phys., *7*, 539 (1952).

[50] J. ZIMAN - Proc. Phys. Soc., *65* , 540, 548 (1952).

[51] W. MARSHALL - Proc. Roy. Soc., A *232*, 48, 69 (1955).

[52] T. NAGAMIYA, K. YOSIDA et R. KUBO - Advances in Physics, *4*, 97 (1955).

[53] M. BLOCH - J. Appl. Phys., *34*, 1151 (1963).

[54] A. OKAZAKI, K.C. TUBERFIELD et R.W. H STEVENSON - Phys. Letters, *8* , 9 (1964).

[55] G.G. LOW - Symposium sur la Diffusion Inélastique des Neutrons, Bombay (Décembre 1964).

[56] V. JACCARINO et R.L. WALKER - J. Phys. Radium *20*, 341 (1959).

[57] P. HELLER et G.B. BENEDEK - Phys. Rev. Letters *8* , 428 (1962).

[58] C. DE DOMINICIS - Thèse, Rapport C.E.A. n° 1873.

[59] C. BLOCH et C. DE DOMINICIS - Nucl. Phys., *7*, 459 (1958).

[60] D. SAINT-JAMES - "La Théorie des groupes en Physique du Solide". Editions C.D.U et S.E.D.E.S Paris (1960).

[61] F. KEFFER, H. KAPLAN et Y. YAFET - Am. J. Phys., *21*, 250 (1953).

FIN