

PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

C E A - R 2705

PROPRIETES MAGNETIQUES DES IONS DE KRAMERS DE TERRES RARES
DANS LES GRENATS DE TERRES RARES ET D'ALUMINIUM
ET LES GRENATS DE TERRES RARES ET DE GALLIUM

par

Hans CAPEL

Rapport C E A - R 2705

1964

Ha

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY

CEA-R 2705 - CAPEL Hans W.

PROPRIETES MAGNETIQUES DES IONS DE KRAMERS DES TERRES
RARES DANS LES GRENATS DE TERRES RARES ET D'ALUMINIUM
ET LES GRENATS DE TERRES RARES ET DE GALLIUM

Sommaire. - Les propriétés magnétiques des ions de Kramers des terres rares dans les grenats de terre rare et d'aluminium et les grenats de terre rare et de gallium sont discutées à l'aide d'un traitement du champ moléculaire. Les propriétés de symétrie du groupe d'espace permettent d'exprimer les couplages dipolaires et les interactions d'échange en fonction de quelques paramètres. Les propriétés magnétiques peuvent être exprimées en fonction de ces paramètres et les facteurs g des ions de terre rare. Nous avons calculé les températures de transition, les aimantations des sous-réseaux pour $0 < T < T_N$, la susceptibilité dans la région paramagnétique et la susceptibilité antiferromagnétique pour un certain type d'ordre magnétique. L'influence des doublets de Kramers supérieurs a été estimée par l'introduction des facteurs g généralisés.

./.

CEA-R 2705 - CAPEL Hans W.

MAGNETIC PROPERTIES OF KRAMERS RARE EARTH IONS IN
ALUMINIUM AND GALLIUM GARNETS

Summary. - The magnetic properties of Kramers rare earth ions in aluminium and gallium garnets (MAIG and MGaG) are discussed by means of a molecular field treatment. The symmetry properties of the space group permit to establish a parametrization for the magnetic dipolar and exchange couplings. The magnetic properties of the system can be expressed in terms of these parameters and the g factors of the rare earth ions. We have calculated the transition temperatures, the sub-lattice magnetizations, the susceptibility in the paramagnetic region and the antiferromagnetic susceptibility for a special type of magnetic ordering. The influence of the excited Kramers doublets is described by means of a generalization of the usual g tensor.

1964

93 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

Ulterieurement nous donnerons une étude sommaire pour des ions
non de Kramers.

1964

93 p.

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 VIIIème.

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 VIIIème.

- Rapport CEA-R 2705 -

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique

PROPRIETES MAGNETIQUES DES IONS DE KRAMERS DE TERRES RARES
DANS LES GRENATS DE TERRES RARES ET D'ALUMINIUM
ET LES GRENATS DE TERRES RARES ET DE GALLIUM

par

Hans CAPEL

- Décembre 1964 -

**PROPRIETES MAGNETIQUES DES IONS DE KRAMERS DE TERRES RARES
DANS LES GRENATS DE TERRES RARES ET D'ALUMINIUM
ET LES GRENATS DE TERRES RARES ET DE GALLIUM**

I - INTRODUCTION

Nous étudions ci-après, les phénomènes d'ordre magnétique des ions de Kramers des terres rares dans les grenats d'aluminium et de terres rares (MAlG) et les grenats de gallium et de terres rares (MGaG).

Les ions de Kramers des terres rares ont un nombre d'électrons impair dans la couche 4f et sont caractérisés par le fait que, dans la décomposition des termes spectroscopiques LS sous l'action de l'interaction spin orbite, n'apparaissent que des nombres quantiques J demi-entiers.

Dans un grenat, l'hamiltonien de ces ions de Kramers peut être écrit sous la forme :

$$\mathcal{H} = - \sum_i \vec{H}_i \cdot \vec{m}_i - \sum_{i < j} J_{ij} \vec{m}_i \cdot \vec{m}_j + \sum_{i < j} \frac{x_{ij}^2 \vec{m}_i \cdot \vec{m}_j - 3(\vec{m}_i \cdot \vec{x}_{ij})(\vec{m}_j \cdot \vec{x}_{ij})}{x_{ij}^5} (1 - J(x_{ij})) + \mathcal{H}_{cr.} \quad (1)$$

Dans cette expression le premier terme représente l'effet du champ appliqué, le second terme l'échange isotrope, le troisième l'énergie dipolaire et l'échange anisotrope [1], le dernier l'action du champ cristallin. m_i est l'opérateur moment magnétique de l'ion i .

Dans l'hamiltonien (1) les interactions magnétiques sont très faibles et peuvent être traitées comme des perturbations par rapport à l'effet du champ cristallin. Comme nous le verrons, la symétrie est telle que la dégénérescence $2J+1$ du niveau fondamental de l'ion libre est levée sous l'action du champ cristallin^(*). Comme J est demi entier, il apparaît $(2J+1)/2$ doublets de Kramers. A basse température, on aura une approximation suffisante si on ne considère que le doublet fondamental. A l'intérieur de ce doublet on définira, comme à l'ordinaire, le facteur spectroscopique \vec{g} par la relation :

$$\vec{m}_i = - \mu_B \vec{g} \cdot \vec{S}_i \quad (2)$$

\vec{m}_i est le moment magnétique de l'ion i , \vec{S}_i un spin fictif $1/2$ agissant sur les états $| \pm \rangle$ du doublet fondamental, μ_B le magnéton de Bohr.

Dans le cadre de ces hypothèses, nous voulons calculer a priori les températures de transition et prévoir le type d'ordre

(*) En fait la dégénérescence des autres niveaux J' est également levée en $(2J'+1)/2$ doublets de Kramers.

magnétique qui s'établit. Nous utilisons une méthode de champ moléculaire et faisons appel extensivement aux propriétés de symétrie du groupe O_h^{10} (groupe d'espace des grenats). Les ions de terres rares sont divisés en six sous-réseaux et nous calculons l'aimantation de chaque sous-réseau au-dessous de la température de transition en fonction des facteurs g et des paramètres qui décrivent le couplage dipolaire et l'énergie d'échange.

En utilisant les valeurs des facteurs g mesurés par résonance magnétique, nous pouvons comparer les prévisions théoriques et les résultats expérimentaux. L'accord est en général satisfaisant.

De plus nous avons envisagé les modifications apportées au modèle par l'existence des doublets supérieurs. On généralise ainsi le concept de facteur spectroscopique.

II - FORMALISME ET PROPRIETES DE SYMETRIE

1) Définition des six sous-réseaux

Dans la structure des grenats le groupe d'espace est O_h^{10} . Les ions de terre rare occupent les sites c de la nomenclature de Wyckoff [3]. Leurs coordonnées sont obtenues par action des opérations du groupe sur le point $(0, 1/4, 1/8)$. Les transformations génératrices peuvent s'écrire [4]:

$$\begin{aligned}
 \text{i)} \quad 3' \quad (x, y, z) &\longrightarrow (-y, -z, -x) \\
 \text{ii)} \quad 4_{\frac{1}{4} \frac{3}{4} \frac{1}{4}} \quad (x, y, z) &\longrightarrow (-y + \frac{1}{4}, x + \frac{3}{4}, z + \frac{1}{4}) \\
 \text{iii)} \quad 2''_{\frac{3}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}} \quad (x, y, z) &\longrightarrow (y + \frac{3}{4}, x + \frac{1}{4}, -z + \frac{1}{4})
 \end{aligned} \tag{3}$$

Les 24 atomes ainsi obtenus peuvent être séparés en sous-réseaux, tels que, pour tout point d'un sous-réseau donné, le champ cristallin soit le même.

Si (ξ, η, ζ) est la position d'un atome de terres rares, il est clair que tous les points obtenus à partir de (ξ, η, ζ) par les translations pures d' O_h^{10} (c'est-à-dire les translations primitives et la translation $(1/2, 1/2, 1/2)$, appartiennent au même sous-réseau). Dans le développement du potentiel cristallin seuls les termes pairs doivent être retenus [4], il s'ensuit que

(ξ, η, ζ) et $(-\xi, -\eta, -\zeta)$ appartiennent au même sous-réseau. Six sous-réseaux apparaissent donc, les coordonnées des atomes étant [5]

$$\begin{aligned}
 1 \quad & \varepsilon(0, \frac{1}{4}, \frac{1}{8}) + \delta(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) + a_1(1, 0, 0) + a_2(0, 1, 0) + a_3(0, 0, 1) \\
 2 \quad & \varepsilon(\frac{1}{8}, 0, \frac{1}{4}) + \delta(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) + a_1(1, 0, 0) + a_2(0, 1, 0) + a_3(0, 0, 1) \\
 3 \quad & \varepsilon(\frac{1}{4}, \frac{1}{8}, 0) + \delta(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) + a_1(1, 0, 0) + a_2(0, 1, 0) + a_3(0, 0, 1) \\
 4 \quad & \varepsilon(0, \frac{1}{4}, \frac{5}{8}) + \delta(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) + a_1(1, 0, 0) + a_2(0, 1, 0) + a_3(0, 0, 1) \\
 5 \quad & \varepsilon(\frac{5}{8}, 0, \frac{1}{4}) + \delta(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) + a_1(1, 0, 0) + a_2(0, 1, 0) + a_3(0, 0, 1) \\
 6 \quad & \varepsilon(\frac{1}{4}, \frac{5}{8}, 0) + \delta(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}) + a_1(1, 0, 0) + a_2(0, 1, 0) + a_3(0, 0, 1)
 \end{aligned} \tag{4}$$

où $\varepsilon = \pm 1$, $\delta = 0$ ou 1 , a_1 , a_2 et a_3 sont des entiers.

Cette définition des sous-réseaux est telle que si un ion du sous-réseau α est transformé en un ion du sous-réseau β , tous les ions de α se transforment en ions de β . Nous noterons l'appartenance d'un ion i au sous-réseau α , par $i \in \alpha$. Dans la suite, nous supposerons que l'aimantation $\vec{\mu}_i$, c'est-à-dire la valeur moyenne de \vec{m}_i , est la même pour tous les ions i d'un même sous-réseau α .

2) Approximation du champ moléculaire

A l'intérieur du doublet de Kramers fondamental, l'hamiltonien s'écrit^(*) :

$$\mathcal{H} = \sum_i \mathcal{H}_i = - \sum_i \vec{m}_i \cdot \vec{H}_i = \mu_B \sum_i \vec{H}_i \cdot \vec{g}_i \cdot \vec{S}_i \quad (5)$$

\vec{H}_i est le champ effectif agissant sur l'ion i .

Dans un sous-réseau α , les facteurs \vec{g} sont identiques. On aura :

$$\vec{g}_i = \vec{g}_\alpha, \quad i \in \alpha \quad (6)$$

Le champ effectif \vec{H}_α^i pour un ion $i \in \alpha$ s'écrira sous la forme :

$$\vec{H}_\alpha^i = \vec{H} + \sum_{j \neq i} J(r_{ij}) \vec{m}_j - \sum_{j \neq i} \left(1 - J'(r_{ij}) \right) \left\{ \frac{r_{ij} \vec{m}_j - 3(\vec{m}_j \cdot \vec{r}_{ij}) \vec{r}_{ij}}{r_{ij}^5} \right\} \quad (7)$$

Dans l'approximation du champ moléculaire on remplacera \vec{H}_α^i par sa valeur moyenne $\langle \vec{H}_\alpha^i \rangle$. Cette valeur moyenne ne dépend que du sous-réseau, et :

$$\vec{H}_\alpha = \langle \vec{H}_\alpha^i \rangle = - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{u}^\beta + \vec{H} \quad (8)$$

(*) On trouvera un formalisme analogue chez Wolf [5] .

Les sommations sont effectuées sur tous les sous-réseaux.
L'expression (8) introduit trente six tenseurs $\vec{A}^{\alpha\beta}$ définis par :

$$\vec{A}^{\alpha\beta} = \sum_{j \in \beta, j \neq i} \left\{ 1 - J'(r_{ij}) \right\} \left\{ \frac{r_{ij}^2 \vec{U} - 3\vec{r}_{ij}\vec{r}_{ij}}{r_{ij}^5} \right\} \quad (9)$$

où \vec{U} est le tenseur unité, et

$$J_{\alpha\beta} = \sum_{j \in \beta, j \neq i} J(r_{ij}) \quad (10)$$

Il est clair que $\vec{A}^{\alpha\beta}$ ne dépend pas de l'ion i (α choisi).

L'aimantation de l'ion i sera :

$$\vec{\mu}_i = \langle \vec{m}_i \rangle = \frac{\text{Trace } \vec{m}_i \exp - \beta \mathcal{H}}{\text{Trace } \exp - \beta \mathcal{H}} \quad (11)$$

avec

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

Dans l'approximation du champ moléculaire, cette valeur moyenne ne dépend que du sous-réseau α . On définira donc l'aimantation d'un sous-réseau :

$$\vec{\mu}^{\alpha} = \frac{\text{Trace } \vec{m}_i \exp - \beta \mathcal{H}_i}{\text{Trace } \exp - \beta \mathcal{H}_i} \quad (12)$$

Pour calculer les traces apparaissant dans l'expression (12), remarquons qu'en présence du champ $\langle \vec{H}^i \rangle$, le doublet de Kramers est séparé en deux singulets :

$$|\phi_1^\alpha\rangle = \rho^\alpha |1/2\rangle + \sigma^\alpha |-1/2\rangle \quad (13)$$

$$|\phi_2^\alpha\rangle = -\sigma^{\alpha*} |1/2\rangle + \rho^{\alpha*} |-1/2\rangle$$

d'énergies

$$\varepsilon_1^\alpha = -\varepsilon^\alpha = -\frac{1}{2} \mu_B |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| \quad (14)$$

$$\varepsilon_2^\alpha = +\varepsilon^\alpha = \frac{1}{2} \mu_B |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|$$

avec

$$\rho^\alpha = \left\{ -(\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha)_x + i(\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha)_y \right\} \left[2|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| \left\{ |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| + (\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha)_z \right\} \right]^{-1/2} \quad (15)$$

$$\sigma^\alpha = \left\{ (\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha)_z + |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| \right\} \left[2|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| \left\{ |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| + (\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha)_z \right\} \right]^{-1/2}$$

$\vec{\mu}^\alpha$ est alors donné par l'expression

$$\vec{\mu}^\alpha = -\mu_B \vec{g}^\alpha \cdot \langle \phi_1^\alpha | \vec{S} | \phi_1^\alpha \rangle \text{th } \beta \varepsilon^\alpha \quad (16)$$

On a tenu compte de ce que

$$\text{Trace } \vec{m}^\alpha = \langle \phi_1^\alpha | \vec{m}^\alpha | \phi_1^\alpha \rangle + \langle \phi_2^\alpha | \vec{m}^\alpha | \phi_2^\alpha \rangle = 0 \quad (17)$$

$\vec{\mu}^\alpha$ peut être encore écrit sous la forme

$$\vec{\mu}^\alpha = \mu_B \frac{\vec{g}^\alpha \cdot (\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha)}{2 |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|} \text{th } \frac{\beta}{2} \mu_B |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|$$

En utilisant la formule (8) pour \vec{H}^α , les aimantations des sous-réseaux sont données par la solution des équations implicites suivantes :

$$\vec{\mu}^\alpha = \mu_B \frac{\vec{g}^\alpha}{g} \cdot \left[\left(\vec{H} - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 \vec{J}_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \frac{\vec{g}^\alpha}{g} \right] \frac{\text{th } \frac{\beta}{2} \mu_B \left| \left(\vec{H} - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 \vec{J}_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \frac{\vec{g}^\alpha}{g} \right|}{\left| \left(\vec{H} - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 \vec{J}_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \frac{\vec{g}^\alpha}{g} \right|} \quad (18)$$

3) Calcul des interactions magnétiques

Nous allons montrer que les propriétés de symétrie du groupe O_h^{10} permettent d'exprimer les 36 tenseurs $A^{\alpha\beta}$ en fonction de cinq quantités p_1, p_2, p_3, p_4 et p_5 .

a) Utilisation de la théorie des groupes

Chaque transformation du groupe d'espace peut être écrite symboliquement sous la forme $\{ R | \vec{T} \}$. R est une rotation propre

ou impropre, \vec{T} une translation pure [4]. Les tenseurs $A^{\alpha\beta}$ sont invariants dans une translation (ils ne dépendent que de $\vec{r}_i - \vec{r}_j$). Si l'opération $\{R | \vec{T}\}$ possède les deux propriétés suivantes :

α) les sous-réseaux α et β sont transformés dans les sous-réseaux α' et β'

β) le point de coordonnées (x_1, x_2, x_3) est transformé en le point (x'_1, x'_2, x'_3) , tel que

$$x'_1 = \sum_{k=1}^3 D(R)_{k1} x_k \quad (19)$$

les tenseurs $A^{\alpha\beta}$ et $A^{\alpha'\beta'}$ sont tels que :

$$A^{\alpha'\beta'}_{k'l} = \sum_{m,n=1}^3 D(R)_{m,k} D(R)_{n,l} A^{\alpha\beta}_{m,n} \quad (20)$$

En utilisant les opérations de O_h^{10} (cf, eq. (3)), on voit que :

$$\begin{array}{l}
 \text{i) } A^{\alpha\beta}_{xx} = A^{\alpha'\beta'}_{zz} \quad A^{\alpha\beta}_{xy} = A^{\alpha'\beta'}_{zx} \\
 A^{\alpha\beta}_{yy} = A^{\alpha'\beta'}_{xx} \quad A^{\alpha\beta}_{xz} = A^{\alpha'\beta'}_{zy} \\
 A^{\alpha\beta}_{zz} = A^{\alpha'\beta'}_{yy} \quad A^{\alpha\beta}_{yz} = A^{\alpha'\beta'}_{xy}
 \end{array}
 \begin{array}{l}
 \alpha \beta \quad 1 \ 2 \ 3 \ 4 \ 5 \ 6 \\
 \alpha' \beta' \ 3 \ 1 \ 2 \ 6 \ 4 \ 5
 \end{array}
 \quad (21a)$$

$$\begin{aligned}
 \text{ii)} \quad A_{xx}^{\alpha\beta} &= A_{yy}^{\alpha'\beta'} & A_{xy}^{\alpha\beta} &= -A_{yx}^{\alpha'\beta'} \\
 A_{yy}^{\alpha\beta} &= A_{xx}^{\alpha'\beta'} & A_{xz}^{\alpha\beta} &= A_{yz}^{\alpha'\beta'} \\
 A_{zz}^{\alpha\beta} &= A_{zz}^{\alpha'\beta'} & A_{yz}^{\alpha\beta} &= -A_{xz}^{\alpha'\beta'}
 \end{aligned}$$

$\alpha \beta \quad 1 \ 2 \ 3 \ 4 \ 5 \ 6$
 $\alpha'\beta' \quad 4 \ 6 \ 2 \ 1 \ 3 \ 5$

(21b)

$$\begin{aligned}
 \text{iii)} \quad A_{xx}^{\alpha\beta} &= A_{yy}^{\alpha'\beta'} & A_{xy}^{\alpha\beta} &= A_{yx}^{\alpha'\beta'} \\
 A_{yy}^{\alpha\beta} &= A_{xx}^{\alpha'\beta'} & A_{xz}^{\alpha\beta} &= -A_{yz}^{\alpha'\beta'} \\
 A_{zz}^{\alpha\beta} &= A_{zz}^{\alpha'\beta'} & A_{yz}^{\alpha\beta} &= -A_{xz}^{\alpha'\beta'}
 \end{aligned}$$

$\alpha \beta \quad 1 \ 2 \ 3 \ 4 \ 5 \ 6$
 $\alpha'\beta' \quad 1 \ 6 \ 5 \ 4 \ 3 \ 2$

(21c)

b) Autres propriétés de symétrie

Les tenseurs $\vec{A}^{\alpha\beta}$ doivent être symétriques. Il s'ensuit que :

$$A_{xy}^{\alpha\beta} = A_{yx}^{\alpha\beta}, \quad A_{xz}^{\alpha\beta} = A_{zx}^{\alpha\beta}, \quad A_{yz}^{\alpha\beta} = A_{zy}^{\alpha\beta} \quad (22)$$

et

$$\vec{A}^{\alpha\beta} = -\frac{6}{N} \sum_{\substack{j \in \beta \\ i \in \alpha \\ j \neq i}} \{1 - J'(r_{ij})\} \left\{ \frac{r_{ij}^2 \vec{U} - 3 \vec{r}_{ij} \vec{r}_{ij}}{r_{ij}^5} \right\} = \vec{A}^{\beta\alpha} \quad (23)$$

On a également la relation

$$\text{Trace } \vec{A}^{\alpha\beta} = A_{xx}^{\alpha\beta} + A_{yy}^{\alpha\beta} + A_{zz}^{\alpha\beta} = 0 \quad (24)$$

De plus, comme les tenseurs \vec{A} sont invariants dans une translation, on a :

$$\vec{A}^{11} = \vec{A}^{44}, \quad \vec{A}^{22} = \vec{A}^{55}, \quad \vec{A}^{33} = \vec{A}^{66} \quad (25)$$

Les 36 tenseurs peuvent donc être exprimés à partir des cinq quantités :

$$p_1 = A_{xx}^{11}, \quad p_2 = A_{xx}^{14}, \quad p_3 = A_{xx}^{12}, \quad p_4 = A_{xy}^{12}, \quad p_5 = A_{xz}^{12} \quad (26)$$

On obtient le tableau des composantes :

	xx	yy	zz	$xy=yx$	$xz=zx$	$yz=zy$
$A^{12} = A^{21}$	p_3	$-2p_3$	p_3	p_4	p_5	p_4
$A^{13} = A^{31}$	$-2p_3$	p_3	p_3	p_4	p_4	p_5
$A^{15} = A^{51}$	p_3	$-2p_3$	p_3	p_4	$-p_5$	$-p_4$
$A^{16} = A^{61}$	$-2p_3$	p_3	p_3	p_4	$-p_4$	$-p_5$
$A^{23} = A^{32}$	p_3	p_3	$-2p_3$	p_5	p_4	p_4
$A^{24} = A^{42}$	p_3	$-2p_3$	p_3	$-p_4$	$-p_5$	p_4
$A^{26} = A^{62}$	p_3	p_3	$-2p_3$	$-p_5$	$-p_4$	p_4
$A^{34} = A^{43}$	$-2p_3$	p_3	p_3	$-p_4$	p_4	$-p_5$
$A^{35} = A^{53}$	p_3	p_3	$-2p_3$	$-p_5$	p_4	$-p_4$
$A^{45} = A^{54}$	p_3	$-2p_3$	p_3	$-p_4$	p_5	$-p_4$
$A^{46} = A^{64}$	$-2p_3$	p_3	p_3	$-p_4$	$-p_4$	p_5
$A^{56} = A^{65}$	p_3	p_3	$-2p_3$	p_5	$-p_4$	$-p_4$
A^{11}	p_1	p_1	$-2p_1$	0	0	0
A^{22}	$-2p_1$	p_1	p_1	0	0	0
A^{33}	p_1	$-2p_1$	p_1	0	0	0
A^{44}	p_1	p_1	$-2p_1$	0	0	0
A^{55}	$-2p_1$	p_1	p_1	0	0	0
A^{66}	p_1	$-2p_1$	p_1	0	0	0
$A^{14} = A^{41}$	p_2	p_2	$-2p_2$	0	0	0
$A^{25} = A^{52}$	$-2p_2$	p_2	p_2	0	0	0
$A^{36} = A^{63}$	p_2	$-2p_2$	p_2	0	0	0

(27)

Les quantités p font intervenir des sommes dipolaires. Ces sommes ont été évaluées, en fonction du paramètre cristallin, pour la structure des grenats à l'aide de l'ordinateur IBM 7094.

On a :

$$\begin{aligned}
 p_1 &= a^{-3} \left\{ -6,159 - \frac{2}{5} J' \left(\frac{a}{4} \sqrt{5} \right) \right\} \\
 p_2 &= a^{-3} \left\{ 0,9726 + 2J' \left(\frac{a}{2} \right) \right\} \\
 p_3 &= a^{-3} \left\{ 3,880 + \frac{1}{2} J' \left(\frac{a}{8} \sqrt{6} \right) \right\} \\
 p_4 &= a^{-3} \left\{ 22,263 + J' \left(\frac{a}{8} \sqrt{6} \right) \right\} \\
 p_5 &= a^{-3} \left\{ -27,798 - \frac{1}{2} J' \left(\frac{a}{8} \sqrt{6} \right) \right\}
 \end{aligned} \tag{28}$$

a est le paramètre de la maille élémentaire (côté du cube, environ 12 Å).

c) Intégrales d'échange

Les intégrales d'échange isotrope peuvent également être exprimées en fonction de trois paramètres. On a en effet :

$$J_{\alpha\beta} = J_{\alpha'\beta'} \tag{29}$$

si α, β et α', β' font partie des ensembles (21a), (21b), (21c).

Il s'ensuit que

$$J_{\alpha\alpha} = J_1 \quad (\text{indépendamment du sous-réseau})$$

$$J_{\alpha, \alpha+3} = J_{\alpha+3, \alpha} = J_2 \tag{30}$$

$$J_{\alpha\beta} = J_3 \quad (\beta \neq \alpha + 3, \alpha - 3, \alpha)$$

Si on se restreint aux interactions entre premiers voisins on aura :

$$J_1 = 2J\left(\frac{a\sqrt{5}}{4}\right), \quad J_2 = 2J\left(\frac{a}{2}\right), \quad J_3 = J\left(\frac{a\sqrt{6}}{8}\right) \quad (31)$$

J_3 résulte d'une interaction de superéchange et sera par conséquent négatif. Dans le cas de J_1 et J_2 où il n'y a pas d'atome d'oxygène voisin des ions de terres rares considérés, il faut faire appel à des mécanismes d'ordre supérieur. En général J_1 et J_2 seront négligeables.

4) Éléments de matrice de l'opérateur moment magnétique. Facteur g généralisé

Soit A l'ion du réseau 1 dont les coordonnées sont $(0, 1/4, 1/8)$. Fixons l'origine des coordonnées en ce point. La symétrie du groupe O_h^{10} impose que s'il existe un ion M d'un élément quelconque en (ξ, η, ζ) (dans le nouveau système d'axe), il existe trois autres ions du même élément, à la même distance de A, en $(\eta, \xi, -\zeta)$, $(-\xi, -\eta, -\zeta)$ et $(-\eta, -\xi, \zeta)$. On voit que la symétrie de l'environnement de A est D_2 . Le champ cristallin aura la symétrie orthorombique^(*). Les trois axes binaires, sont :

$$X_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} [110], Y_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} [1-10] \text{ et } Z_1 = [001].$$

(*) voir appendice A.

Pour chaque site la symétrie est analogue. Les axes de symétrie seront déduits les uns des autres par les opérations du groupe O_h^{10} correspondantes. On remarquera que l'un des axes binaires de D_2 est parallèle à l'un des axes quaternaires du cube. Nous désignerons par A_4^α cet axe (α pour rappeler le sous-réseau) et nous le choisirons comme axe de quantification (Z_α), les deux autres axes binaires seront pris comme axes des X_α et axes des Y_α relatifs au site, selon la convention ordinaire.

Le groupe ${}^{\text{double}}D_2^+$ ne contient qu'une seule représentation irréductible supplémentaire [4] ; il s'ensuit que la dégénérescence des niveaux de l'ion libre est levée en doublets de Kramers. Ces doublets sous-tendent la représentation irréductible supplémentaire de D_2^+ . Les fonctions de base peuvent être choisies sous la forme :

$$|a\rangle_\alpha = \sum_{\sigma, J, M} a_{J, M}^\sigma | \sigma, J, M \rangle \quad (32)$$

$$|\bar{a}\rangle_\alpha = k |a\rangle_\alpha = \sum_{\sigma, J, M} a_{J, M}^\sigma (-1)^{J+M} | \sigma, J, -M \rangle$$

k est l'opérateur de renversement du sens du temps [6] et [7] .

Dans une rotation de π autour de l'axe Z_α (A_4^α), M se change en $M + 2k$ (k entier). On pourra donc choisir un état propre

sous la forme :

$$|\phi\rangle = \sum_{\sigma, J, M} b_{JM}^{\sigma} |\sigma J M\rangle \quad M = 2k + 1/2 \quad (33)$$

où σ représente les nombres quantiques additionnels. Le conjugué de Kramers de cet état est :

$$|\bar{\phi}\rangle = K|\phi\rangle = \sum_{\sigma, J, M} b_{J, M}^{\sigma*} K|\sigma J M\rangle = \sum_{\sigma, J, M} b_{J, M}^{\sigma*} (-)^{J+M} |\sigma J - M\rangle \quad (34)$$

on remarquera que $|\bar{\phi}\rangle$ n'introduit que $M = 2k + 1 + 1/2$.

Une rotation de π autour de l'axe Y_{α} doit fournir à partir de $|\bar{\phi}\rangle$ un état propre $|\phi'\rangle$ de même énergie que $|\phi\rangle$ et $|\bar{\phi}\rangle$.

$$|\phi'\rangle = D(0, \pi, 0)|\bar{\phi}\rangle = \sum_{\sigma, J, M} b_{J, M}^{\sigma*} (-)^{J+M} D(0, \pi, 0)|\sigma J - M\rangle = - \sum_{\sigma, J, M} b_{J, M}^{\sigma*} |\sigma J M\rangle \quad (35)$$

On a tenu compte de ce que J est demi-entier. Nous pouvons donc utiliser comme fonction de base les fonctions (non normalisées)

$$\begin{aligned} |\psi_1\rangle &= \sum_{\sigma, J, M} (b_{J, M}^{\sigma} + b_{J, M}^{\sigma*}) |\sigma J M\rangle \\ |\psi_2\rangle &= i \sum_{\sigma, J, M} (b_{J, M}^{\sigma} - b_{J, M}^{\sigma*}) |\sigma J M\rangle \end{aligned} \quad (36)$$

Une au moins de ces fonctions est différente de zéro. On la conservera et on formera son conjugué de Kramers. Il en résulte que dans (32), après rénormalisation, les coefficients a_{JM}^{σ} peuvent être choisis réels, et que $M = 2k + 1/2$.

La convention que nous avons choisie ici peut donner des facteurs \vec{g} négatifs. Ce résultat, (quoique différent des conventions ordinaires) est sans effet sur les propriétés physiques. Celles-ci sont en effet invariantes dans toute transformation linéaire des fonctions d'onde d'un doublet. La même convention sera utilisée pour tous les doublets de Kramers.

Nous allons maintenant calculer les éléments de matrice de l'opérateur moment magnétique entre deux doublets de Kramers E_i et E_j et montrer que l'on peut introduire avec la convention (32) pour les fonctions d'onde un facteur g généralisé.

L'opérateur \vec{m} est un opérateur imaginaire qui anticommute avec l'opérateur K . On a donc :

$$\begin{aligned} \langle a_i | \vec{m} | a_j \rangle &= - \langle \bar{a}_i | \vec{m} | \bar{a}_j \rangle^* \\ \langle a_i | \vec{m} | \bar{a}_j \rangle &= \langle \bar{a}_i | \vec{m} | a_j \rangle^* \end{aligned} \tag{37}$$

La composante m_z de \vec{m} n'a d'élément de matrice que pour $\Delta M = 0$ (opérateur tensoriel irréductible de degré 1). On voit alors que :

$$\langle a_i | m_z | \bar{a}_j \rangle = \langle \bar{a}_i | m_z | a_j \rangle = 0 \quad (38a)$$

Par contre pour les composantes m_α ($\alpha = x, y$), il faut $\Delta M = \pm 1$ et par conséquent :

$$\langle a_i | m_\alpha | a_j \rangle = \langle \bar{a}_i | m_\alpha | \bar{a}_j \rangle = 0 \quad (\alpha=x, y) \quad (38b)$$

Comme les coefficients de $|a_i\rangle$ et $|\bar{a}_i\rangle$ sont réels, les éléments de matrice de m_x et m_z sont réels, ceux de m_y imaginaires purs. Nous définissons alors un "spin fictif" S' tel que :

$$\langle a_i | S' | a_j \rangle = -\langle \bar{a}_i | S' | a_j \rangle = \langle \frac{1}{2} | \vec{S} | \frac{1}{2} \rangle = -\langle \frac{1}{2} | \vec{S} | -\frac{1}{2} \rangle \quad (39)$$

$$\langle \bar{a}_i | \vec{S}' | a_j \rangle = \langle a_i | S' | \bar{a}_j \rangle^* = \langle -\frac{1}{2} | \vec{S} | \frac{1}{2} \rangle = \langle \frac{1}{2} | \vec{S} | -\frac{1}{2} \rangle^*$$

Les relations (37) (38) et (39) nous permettent d'écrire

$$\begin{aligned} m_x &\approx -\mu_B g_x^{ij} S'_x \\ m_y &\approx -\mu_B g_y^{ij} S'_y \\ m_z &\approx -\mu_B g_z^{ij} S'_z \end{aligned} \quad (40)$$

Les paramètres g_x^{ij} , g_y^{ij} , g_z^{ij} sont réels et définis par :

$$\begin{aligned} -\mu_B g_x^{ij} &= 2 \langle a_i | m_x | \bar{a}_j \rangle \\ -\mu_B g_y^{ij} &= 2i \langle a_i | m_y | \bar{a}_j \rangle \\ -\mu_B g_z^{ij} &= 2 \langle a_i | m_z | a_j \rangle \end{aligned} \quad (41)$$

Dans le doublet fondamental on aura : $i = j = 0$. On retrouve g_p^{00} , $p = x, y, z$ le facteur g ordinaire que nous désignerons par g_p . Les définitions de g_x , g_y , g_z qui résultent de (41) sont en accord avec les conventions de Wolf et al [5] .

Dans l'appendice B nous démontrons qu'avec un choix approprié de fonctions de base des doublets de Kramers \vec{g}^{ij} est un tenseur. En particulier $\vec{g}^{ij\alpha}$ (pour le sous-réseau α) s'obtient à partir de \vec{g}^{ij1} par application des opérations correspondantes de O_h^{10} .

Nous pouvons alors dresser le tableau des facteurs \vec{g} généralisés.

	g^{ij1}	g^{ij2}	g^{ij3}	g^{ij4}	g^{ij5}	g^{ij6}
xx	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	g_z^{ij}	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	g_z^{ij}	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$
yy	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	g_z^{ij}	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	g_z^{ij}
zz	g_z^{ij}	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	g_z^{ij}	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}+g_y^{ij})$
=xy	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}-g_y^{ij})$	0	0	$\frac{1}{2}(g_y^{ij}-g_x^{ij})$	0	0
x=xz	0	0	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}-g_y^{ij})$	0	0	$\frac{1}{2}(g_y^{ij}-g_x^{ij})$
y=yz	0	$\frac{1}{2}(g_x^{ij}-g_y^{ij})$	0	0	$\frac{1}{2}(g_y^{ij}-g_x^{ij})$	0

(42)

Les équations (40) et (41) sont en fait une généralisation des relations données par Abragam pour le doublet de base [8]. Il est remarquable qu'elles ne résultent que des propriétés de symétrie de l'environnement (groupe D_2). Elles sont donc indépendantes du nombre de multiplets J ou de termes LS utilisés dans la définition de $|a\rangle$ et $|\bar{a}\rangle$.

III - TEMPERATURE DE TRANSITION ET ORDRE MAGNETIQUE

Dans ce qui suit nous allons utiliser des résultats du paragraphe précédent pour calculer les températures de transition et prévoir le type d'ordre magnétique qui s'établit à basse température. Nous verrons qu'il n'existe que des solutions antiferromagnétiques et ferrimagnétiques. Nous désignerons donc la température de transition, température de Néel, par le symbole T_N (voir pour les détails du calcul l'appendice C).

1) Température de Néel

Les équations (18) possèdent des solutions non nulles en champ extérieur nul pour une température inférieure à une certaine température T_N . Juste au-dessous de cette température, les équations (18) peuvent être linéarisées (on développe au premier ordre la tangente hyperbolique). Il vient

$$\vec{\mu}^\alpha = \frac{\beta}{4} \mu_B^2 \frac{\vec{z}^\alpha}{g} \cdot \left[\left\{ - \sum_{\beta=1}^6 \frac{\vec{z}^{\beta\alpha}}{A^{\beta\alpha}} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right\} \cdot \frac{\vec{z}^\alpha}{g} \right] \quad (43)$$

Le système d'équations (43) équivaut au problème aux valeurs propres :

$$\vec{\mu}^{\alpha} \lambda_0 + \mu_B^2 \vec{g}^{\alpha} \cdot \left\{ \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^{\beta} - \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^{\beta} \right\} \cdot \vec{g}^{\alpha} = 0 \quad (44)$$

La température de Néel [9] sera donnée par la plus grande valeur propre de (44),

$$\lambda_0 = 4k_B T_N \quad (45)$$

L'équation (44) conduit à diagonaliser une matrice 18 x 18. Ses éléments s'expriment en fonction de $p_1, p_2, p_3, p_4, p_5, J_1, J_2, J_3, g_x, g_y, g_z$.

Malgré l'apparente complication du problème, on peut exprimer les solutions de (44) sous forme d'expressions algébriques. Cette simplification résulte des propriétés de symétrie des solutions liées au groupe O_h^{10} . Nous en donnons ici que les résultats, pour les détails de calcul on se reportera à l'appendice C.

2) Ordre magnétique

Trois types de solutions apparaissent dans (44)

a) Solution antiferromagnétique de type A (AFA)

Pour ce type de solution les aimantations des sous-réseaux sont dirigées parallèlement à l'axe A_4^{α} . Les aimantations des sous-réseaux 1 et 4 sont antiparallèles et parallèles à l'axe z du cube.

Les aimantations des sous-réseaux 2 et 5 sont antiparallèles et parallèles à l'axe x du cube. Les aimantations des sous-réseaux 3 et 6 sont antiparallèles et parallèles à l'axe y du cube.

De plus si l'aimantation du sous-réseau 1 pointe dans la direction des z positifs, celle du sous-réseau 2 pointe dans la direction des x positifs, et celle du sous-réseau 3 dans la direction des y positifs.

La température de transition est donnée par :

$$\lambda_0^{(1)} = g_z^2 \mu_B^2 \left\{ 2(p_1 - p_2 - 2p_5) + J_1 - J_2 \right\} \quad (46a)$$

ou

$$\lambda_0^{(2)} = g_z^2 \mu_B^2 \left\{ 2(p_1 - p_2 + p_5) + J_1 - J_2 \right\} \quad (46b)$$

La valeur donnée par (46b) est une racine double de (44).

Comme p_5 est une quantité négative, $\lambda_0^{(1)} > \lambda_0^{(2)}$. Il nous suffit de retenir la solution (46a). La température de Néel est donc,

$$T_N = \frac{\mu_B^2 g_z^2}{4k_B} \left\{ 2(p_1 - p_2 - 2p_5) + J_1 - J_2 \right\} \quad (47)$$

Au-dessous de cette température, les aimantations des sous-réseaux ont toutes la même longueur.

b) Solution antiferromagnétique de type B (AFB)

Pour ce type de solution les aimantations des sous-réseaux sont parallèles à l'un des axes orthorombiques perpendiculaire à A_4^α . Les solutions se répartissent ainsi :

Les aimantations des sous-réseaux 1 et 4 sont parallèles à (110) ou (1-10)
 " " " " " 2 et 5 " " " (011) ou (01-1)
 " " " " " 3 et 6 " " " (101) ou (-101)

On ne peut affirmer a priori que les aimantations des sous-réseaux 1 et 4 (ou 2 et 5 ou 3 et 6) sont égales et antiparallèles. Mais la somme des aimantations des six sous-réseaux est nulle. Nous donnerons dans le paragraphe suivant les diverses possibilités pour ces aimantations.

A ce type de solution de (44) correspondent deux racines triples de (45). L'une de ces racines triples est négative, l'autre positive. Nous ne retenons, bien entendu, que cette dernière et la température de Néel est donnée par :

$$T_N = \frac{\mu_B^2}{4k_B} \left[-\frac{1}{2} g_x^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 - 2p_4) - \frac{1}{2} g_y^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 + 2p_4) \right. \\ \left. + \frac{1}{2} \left\{ \left(g_x^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 - 2p_4) - \frac{1}{2} g_y^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 + 2p_4) \right)^2 \right. \right. \\ \left. \left. + 4g_x^2 g_y^2 \left(4p_4^2 - (p_1 + p_2 + 4p_3 - J_1 - J_2 + 2J_3)(p_1 - p_2 - 2p_5 - J_1 + J_2) \right) \right\}^{+1/2} \right] \quad (48)$$

c) Solution ferrimagnétique de type C (FC)

Dans ce type de solution l'arrangement des aimantations est beaucoup plus complexe. Il existe une aimantation totale parallèle à l'un des axes ternaires du cube. A ce type de solution correspondent trois racines triples de (45). Comme le produit des valeurs propres est négatif, il y aura soit deux racines positives et une négative, soit trois racines négatives. Avec les valeurs des paramètres p et g il existe deux racines positives et une négative (*). La température de Néel est donnée par la plus grande des deux valeurs propres, et est donnée par la plus petite racine de l'équation en β :

$$1 + d_1 \beta_N \frac{\mu_B^2}{4} + d_2 \left(\frac{\beta_N \mu_B^2}{4} \right)^2 + d_3 \left(\frac{\beta_N \mu_B^2}{4} \right)^3 = 0 \quad (49)$$

d_1, d_2, d_3 sont des constantes données par :

$$d_1 = g_x^2 (p_1 - 2p_3 + p_5 - J_1 - J_3 + 2p_4) + g_y^2 (p_1 - 2p_3 + p_5 - J_1 - J_3 - 2p_4) - g_z^2 (2p_1 + 2p_2 + J_1 + J_2)$$

$$d_2 = g_x^2 g_y^2 \left\{ (p_1 + p_2 - 4p_3 - J_1 - J_2 - 2J_3) (p_1 - p_2 + 2p_5 - J_1 + J_2) - 4p_4^2 \right\}$$

$$- g_x^2 g_z^2 \left\{ (2p_1 + 2p_2 + J_1 + J_2) (p_1 - 2p_3 + p_5 - J_1 - J_3 + 2p_4) + 4(p_3 + p_4 - J_3)^2 \right\}$$

$$- g_y^2 g_z^2 \left\{ (2p_1 + 2p_2 + J_1 + J_2) (p_1 - 2p_3 + p_5 - J_1 - J_3 - 2p_4) + 4(p_3 - p_4 - J_3)^2 \right\}$$

$$d_3 = g_x^2 g_y^2 g_z^2 \left\{ -(2p_1 + 2p_2 + J_1 + J_2) (p_1 - p_2 + 2p_5 - J_1 + J_2) (p_1 + p_2 - 4p_3 - J_1 - J_2 - 2J_3) \right.$$

$$\left. - 8(J_3 - p_3)^2 (p_1 - p_2 + 2p_5 - J_1 + J_2) + 4p_4^2 (16p_3 + 3J_1 + 3J_2 - 4J_3) \right\} \quad (50)$$

(*) voir pour les valeurs de g l'article de Wolf et al [10] et ci-dessous.

3) Prévision de l'ordre magnétique dans les divers grenats

Pour décider entre les trois types de solution proposés il faut connaître les paramètres cristallins qui interviennent dans les paramètres p , les valeurs des intégrales d'échanges (isotropes et anisotropes) et les valeurs des facteurs g . Les intégrales d'échange sont inconnues, et en première approximation nous les négligeons. Dans le cas de MAlG , le côté a de la maille est $12,003 \text{ \AA}$, dans celui de MGaG $12,273 \text{ \AA}$ [10] , [11] .

Restent à connaître les facteurs g . Des valeurs de ceux-ci ont été données par Wolf et al [10] . En réalité ces facteurs sont mesurés par résonance magnétique des ions de terre rare substitués au lutécium ou à l'yttrium dans LuAlG , LuGaG , YAlG , YGaG . Il n'est pas évident que les facteurs g , ainsi mesurés, et qui sont relatifs à des ions de terre rare dilués, soient les mêmes que ceux qui existent dans un grenat ne contenant que des terres rares. En particulier, les résultats des mesures ne sont pas exactement identiques pour des terres rares substituées au lutécium et des terres rares substituées à l'yttrium. En particulier, dans le cas de l'erbium et du dysprosium, la différence est si grande qu'on ne peut avoir que peu de confiance lorsqu'on estime le facteur g pour un grenat de ces terres rares.

Il pourrait être tentant de calculer, a priori, les facteurs g en calculant les effets du champ cristallin sur le multiplet de l'ion libre. La précision obtenue par cette méthode sera cependant

très médiocre. En effet, même si on écarte les objections émises à l'encontre du modèle des charges ponctuelles, beaucoup d'imprécisions demeurent. La position des atomes d'oxygène dans les grenats est sans doute connue à 1% (par diffraction de neutrons [12]), mais le développement du potentiel cristallin reste incertain. En utilisant pour les atomes d'oxygène des positions qui diffèrent de 2% au plus de celles utilisées par Ayant [13], nous trouvons des résultats complètement différents de ceux de cet auteur pour les termes du second degré (les termes du quatrième degré diffèrent d'environ 10 %). De plus si nous calculons le terme de deuxième ordre en ajoutant la contribution des quatre atomes d'oxygène, premiers voisins, et des quatre atomes d'oxygène seconds voisins (leur distance diffère de 4% de celle des premiers voisins), on constate que ces deux contributions, qui sont chacune grandes, se compensent presque exactement. Malgré cet effet le terme de second ordre reste important, mal connu, et ne peut être négligé devant le terme de quatrième ordre^(*).

Si on tient, quand même, à estimer les énergies et les fonctions propres des doublets de Kramers, on peut utiliser les termes du quatrième et du sixième ordre du développement du potentiel, les valeurs de $\langle r^n \rangle$ calculées par Freeman et Watson [14] et adapter les valeurs des coefficients A_2^0 et A_2^2 des termes du deuxième ordre pour retrouver les valeurs de g mesurées par Wolf

(*) Ceci est lié à la faible valeur du rayon de la couche 4f, comparé à la distance des atomes d'oxygène à l'ion de terre rare .

et al [10] . Il est clair que cette méthode ne peut mener qu'à un ordre de grandeur.

Nous avons préféré utiliser les résultats expérimentaux de Wolf [10] pour calculer les températures de Néel. Lorsque les différences entre les facteurs g mesurés dans les grenats de lutécium et d'yttrium étaient par trop importantes, nous avons calculé les deux températures correspondantes. Les résultats sont reportés dans le tableau I.

4) Comparaison avec l'expérience. Discussion des résultats

Ball et al [15] ont mesuré la température de transition dans DyAlG. Ils trouvent $T_N = 2,55^\circ\text{K}$. Si nous prenons pour g_z la valeur 17,7 donnée par Wolf, la température T_N calculée est de $2,73^\circ\text{K}$.

Récemment Herpin et Mériel [21] ont entrepris l'étude de DyAlG par diffraction de neutrons. Ils ont trouvé une température de Néel $T_N = 2,54 \pm 0,02^\circ\text{K}$ et ils ont pu démontrer que les aimantations des sous-réseaux sont dirigées parallèlement à l'axe A_4^α . Ce qui confirme que l'ordre magnétique est vraiment un antiferromagnétisme du type A.

Récemment Vivet et Carrara [2] ont étudié ErGaG par des measurements de la susceptibilité et de la chaleur spécifique. Ils trouvent une température de transition $T_N = 0,78^\circ\text{K}$,

Tableau 1

Températures de Néel des divers grenats de terres rares

Les températures sont obtenues à partir des valeurs du tenseur g , mesurées dans les grenats de lutécium (a) et d'yttrium (b).

Grenat	Solution AFA (°K)	Solution AFB (°K)	Solution FC (°K)
NdGaG	0,10 (a) 0,11 (b)	< 0,01	0,03
NdAlG	0,13		0,03
DyGaG	0,09 (a) 0,50 (b)	0,23 (a) 0,16 (b)	0,18 (a) 0,35 (b)
DyAlG	2,41 (a) 2,83 (b)	< 0,01	< 0,01
ErGaG	1,30 (a) 0,94 (b)	0,03 (a) 0,09 (b)	0,19 (a) 0,28 (b)
ErAlG	0,62 (a) 0,47 (b)	0,08 (a) 0,10 (b)	0,31 (a) 0,29 (b)
YbGaG	0,07	0,02	0,11
YbAlG	0,06 (a) 0,05 (b)	0,03	0,13

La température de Néel calculée à partir des facteurs g mesurés dans YGaG substitué vaut $0,94^\circ\text{K}$. L'accord entre les valeurs calculées et les valeurs expérimentales n'est pas mauvais parce qu'il peut bien arriver que le modèle du champ moléculaire donne une surestimation de l'ordre de 20 % de la température de Néel.

Il faut remarquer que le bon accord obtenu entre les températures calculées et mesurées ne signifie pas nécessairement que toutes les interactions d'échange sont petites. Dans la solution antiferromagnétique A, l'échange isotrope entre premiers voisins J_3 ne figure pas dans l'expression de la température de transition. Si une telle solution est la plus stable, il va de soi qu'un calcul n'utilisant que l'énergie dipolaire sera en assez bon accord avec la température mesurée. Par contre le paramètre J_3 apparaît explicitement dans les températures de transition des solutions AFB et FC, et pourrait avoir une grande influence sur leurs températures.

Le tableau I permet de prévoir les arrangements magnétiques. Dans le cas de DyGaG la différence des facteurs g est si grande qu'aucune prévision ne peut être faite en réalité. La comparaison avec les autres résultats incline à penser que la solution AFB est peu probable.

Un cas plus intéressant est fourni par les grenats d'ytterbium où le calcul prévoit un arrangement ferrimagnétique de type C, pour des températures inférieures à $0,11$ et $0,13^\circ\text{K}$.

Vivet a entrepris l'étude des grenats de dysprosium et d'ytterbium pour permettre de trancher entre les diverses prévisions.

IV - CALCUL DES AIMANTATIONS POUR $0 < T < T_N$

En champ nul et pour une température quelconque inférieure à T_N , le calcul des aimantations des sous-réseaux exige la résolution du système d'équations implicites :

$$\vec{\mu}^\alpha = \mu_B \vec{g}^\alpha \left\{ \left(- \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right\} \frac{\text{th} \frac{\beta}{2} \mu_B \left| \left(- \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right|}{2 \left| \left(- \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right|} \quad (51)$$

Si les quantités

$$\left| \left(- \sum_{\beta} \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta} J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right| \quad (52)$$

sont indépendantes du sous-réseau α , les aimantations peuvent être obtenues à partir du système linéarisé (43). Ce système fournit les aimantations à une constante multiplicative près que l'on obtiendra en égalant

$$\frac{2 \left| \left(- \sum_{\beta} \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta} J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right|}{\text{th} \frac{\beta}{2} \mu_B \left| \left(- \sum_{\beta} \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta} J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right|} \quad \text{à} \quad \frac{4k_B T_N}{\mu_B} \quad (53)$$

Toutefois les quantités (52) ne sont indépendantes du sous-réseau que pour la solution antiferromagnétique A. Pour les deux autres types de solution il faudra résoudre le système (57).

Cependant les solutions des équations linéarisées (43) suggèrent d'utiliser pour les aimantations des sous-réseaux les formes ci-dessous : (voir appendice C)

Aimantation	Antiferromagnétisme A	Antiferromagnétisme B (quatre possibilités)				Ferrimagnétisme C quatre possibilités			
		a	b	c	d	a	b	c	d
$\mu_x^{(1)}$	0	ρ	σ	ρ	σ	κ	λ	κ	λ
$\mu_y^{(1)}$	0	ρ	$-\sigma$	ρ	$-\sigma$	κ	$-\lambda$	κ	$-\lambda$
$\mu_z^{(1)}$	α	0	0	0	0	μ	ν	$-\mu$	$-\nu$
$\mu_x^{(2)}$	α	0	0	0	0	μ	ν	ν	μ
$\mu_y^{(2)}$	0	σ	ρ	$-\rho$	σ	κ	$-\lambda$	λ	$-\kappa$
$\mu_z^{(2)}$	0	σ	ρ	$-\rho$	σ	κ	λ	$-\lambda$	$-\kappa$
$\mu_x^{(3)}$	0	$-\rho$	$-\rho$	σ	σ	κ	κ	λ	λ
$\mu_y^{(3)}$	α	0	0	0	0	μ	$-\mu$	ν	$-\nu$
$\mu_z^{(3)}$	0	$-\rho$	$-\rho$	σ	σ	κ	κ	$-\lambda$	$-\lambda$
$\mu_x^{(4)}$	0	σ	ρ	σ	ρ	λ	κ	λ	κ
$\mu_y^{(4)}$	0	σ	$-\rho$	σ	$-\rho$	λ	$-\kappa$	λ	$-\kappa$
$\mu_z^{(4)}$	$-\alpha$	0	0	0	0	ν	μ	$-\nu$	$-\mu$
$\mu_x^{(5)}$	$-\alpha$	0	0	0	0	ν	μ	μ	ν
$\mu_y^{(5)}$	0	$-\rho$	σ	σ	$-\rho$	λ	-	κ	$-\lambda$
$\mu_z^{(5)}$	0	ρ	σ	σ	$-\rho$	λ	κ	$-\nu$	$-\lambda$
$\mu_x^{(6)}$	0	σ	σ	$-\rho$	$-\rho$	λ	λ	κ	κ
$\mu_y^{(6)}$	$-\alpha$	0	0	0	0	ν	$-\nu$	μ	$-\mu$
$\mu_z^{(6)}$	0	σ	σ	ρ	ρ	λ	λ	$-\kappa$	$-\kappa$

$\alpha, \rho, \sigma, \kappa, \lambda, \mu$ et ν sont des paramètres que l'on peut exprimer en fonction des paramètres p et J .

Nous avons indiqué dans le tableau ci-dessus quatre possibilités pour l'antiferromagnétisme B et le ferrimagnétisme C. Ceci peut paraître en contradiction avec les résultats du chapitre III où nous avons trouvé trois solutions pour B et trois pour C (valeurs propres à triple dégénérescence). En réalité les solutions du tableau (54) correspondant à l'antiferromagnétisme B ne sont pas linéairement indépendantes, et lorsque la température tend vers T_N , ν tend vers μ et les quatre solutions du type ferrimagnétique C se réduisent à trois linéairement indépendantes.

Les champs internes \vec{H}^α peuvent être écrits également sous une forme analogue à (54)^(*). Il suffit de remplacer $\alpha, \rho, \sigma, \kappa, \lambda, \mu, \nu$ par $\alpha_1, \rho_1, \sigma_1, \kappa_1, \lambda_1, \mu_1, \nu_1$. Les quantités $\alpha_1, \rho_1, \sigma_1, \kappa_1, \lambda_1, \mu_1, \nu_1$ sont des combinaisons linéaires des $\alpha, \rho, \sigma, \kappa, \lambda, \mu, \nu$, tels que :

$$\begin{aligned}
 \alpha_1 &= (2p_1 - 2p_2 - 4p_5 + J_1 - J_2)\alpha \\
 \rho_1 &= -\rho(p_1 + 2p_3 - 2p_4 - p_5 - J_1 + J_3) - \sigma(p_2 + 2p_3 + p_5 - J_2 + J_3) \\
 \sigma_1 &= -\rho(p_2 + 2p_3 + p_5 - J_2 + J_3) - \sigma(p_1 + 2p_3 + 2p_4 - p_5 - J_1 + J_3) \\
 \kappa_1 &= -\kappa(p_1 - 2p_3 + 2p_4 + p_5 - J_1 - J_3) - \lambda(p_2 - 2p_3 - p_5 - J_2 - J_3) - (\mu + \nu)(p_3 + p_4 - J_3) \\
 \lambda_1 &= -\kappa(p_2 - 2p_3 - p_5 - J_2 - J_3) - \lambda(p_1 - 2p_3 - 2p_4 + p_5 - J_1 - J_3) - (\mu + \nu)(p_3 - p_4 - J_3) \\
 \mu_1 &= -\kappa(2p_3 + 2p_4 - 2J_3) - \lambda(2p_3 - 2p_4 - 2J_3) - \mu(-2p_1 + 2p_5 - J_1) - \nu(-2p_2 - 2p_5 - J_2) \\
 \nu_1 &= -\kappa(2p_3 + 2p_4 - 2J_3) - \lambda(2p_3 - 2p_4 - 2J_3) - \mu(-2p_2 - 2p_5 - J_2) - \nu(-2p_1 + 2p_5 - J_1)
 \end{aligned} \tag{55}$$

(*) Pour trouver ce résultat on réécrira l'équation (8) explicitement en fonction de $\vec{\mu}, p$ et g .

les quantités $|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|$ peuvent être écrites sous la forme

	Antiferro. A	Antiferro. B				Ferrimagnétisme C			
		a	b	c	d	a	b	c	d
(57) $ \vec{H}^1 \cdot \vec{g}^1 $	a	r	s	r	s	k	l	k	l
$ \vec{H}^2 \cdot \vec{g}^2 $	a	s	r	r	s	k	l	l	k
$ \vec{H}^3 \cdot \vec{g}^3 $	a	r	r	s	s	k	k	l	l
$ \vec{H}^4 \cdot \vec{g}^4 $	a	s	r	s	r	l	k	l	k
$ \vec{H}^5 \cdot \vec{g}^5 $	a	r	s	s	r	l	k	k	l
$ \vec{H}^6 \cdot \vec{g}^6 $	a	s	s	r	r	l	l	k	k

avec

$$\begin{aligned}
 a &= |\alpha_1| g_z & k &= \left\{ 2g_x^2 \kappa_1^2 + g_z^2 \mu_1^2 \right\}^{1/2} \\
 r &= g_x |\rho_1| \sqrt{2} & l &= \left\{ 2g_y^2 \lambda_1^2 + g_z^2 \nu_1^2 \right\}^{1/2} \\
 s &= g_y |\sigma_1| \sqrt{2}
 \end{aligned} \tag{57}$$

Toutes ces transformations n'avaient pour but que nous permettre la détermination des aimantations à toute température au dessous de T_N en utilisant autant que possible la forme des solutions pour $T = T_N$.

Si on reporte les expressions (54) (55) (56) et (57) dans l'équation générale (51) on obtiendra des solutions que nous

continuerons à classer dans les trois groupes A,B,C.

a) Antiferromagnétisme de type A

Le seul paramètre apparaissant dans (51) est maintenant α ($\mu_z^1, \mu_x^2, \mu_y^3$ etc ...). Si on pose

$$\alpha = \frac{1}{2} \mu_B g_z a(T) \quad (58)$$

$a(T)$ est donné par l'équation :

$$a(T) = \text{th} \frac{T_N}{T} a(T) \quad (59)$$

Pour $T=0$ on a $|a(0)| = 1$ comme attendu.

b) Antiferromagnétisme de type B

Deux paramètres sont maintenant en jeu. Ce sont ρ et σ .

Si on pose

$$\begin{aligned} \rho &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \mu_B g_x b_1(T) \\ \sigma &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \mu_B g_y b_2(T) \end{aligned} \quad (60)$$

les équations (51) se réduisent à :

$$b_1(T) = \text{th} \left[\frac{\mu_B^2 g_x^2}{4k_B T} \left\{ -g_x (p_1 + 2p_3 - 2p_4 - p_5 - J_1 + J_3) b_1(T) - g_y (p_2 + 2p_3 + p_5 - J_2 + J_3) b_2(T) \right\} \right] \quad (61)$$

$$b_2(T) = \text{th} \left[\frac{\mu_B^2 g_y^2}{4k_B T} \left\{ -g_x (p_2 + 2p_3 + p_5 - J_2 + J_3) b_1(T) - g_y (p_1 + 2p_3 + 2p_4 - p_5 - J_1 + J_3) b_2(T) \right\} \right]$$

Pour $T = 0$ on a $|b(0)| = |b_2(0)| = 1$ comme attendu.

En général les équations (61) auront deux solutions non équivalentes. Il ne faudra retenir que celle correspondant à la valeur positive de T_N .

On remarquera que lorsque $b_1(T) = 0$, $b_2(T)$ est également nul. Il en résulte que $b_2(T)/b_1(T)$ a un signe donné. La solution à retenir sera celle qui présentera pour ce rapport le signe de $\left(\frac{b_2(T)}{b_1(T)} \right)_{T=T_N}$: Pour $T \rightarrow T_N$, le problème linéarisé (43), montre que

$$\frac{b_2(T)}{b_1(T)} = - \frac{4k_B T_N + \mu_B^2 g_x^2 (p_1 + 2p_3 - 2p_4 - p_5 - J_1 + J_3)}{\mu_B^2 g_x g_y (p_2 + 2p_3 + p_5 - J_2 + J_3)} \quad (62)$$

c) Ferrimagnétisme de type C

Quatre paramètres doivent être utilisés. Si on pose :

$$\begin{aligned} \kappa &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \mu_B \varepsilon_x \sin \theta_1(T) c_1(T) \\ \lambda &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \mu_B \varepsilon_y \sin \theta_2(T) c_2(T) & 0 \leq \theta_i(T) \leq \pi \\ \mu &= \frac{1}{2} \mu_B \varepsilon_z \cos \theta_1(T) c_1(T) \\ \nu &= \frac{1}{2} \mu_B \varepsilon_z \cos \theta_2(T) c_2(T) \end{aligned} \quad (63)$$

les équations (57) se ramènent à l'ensemble d'équations implicites

$$\begin{aligned} \sqrt{2} k_B T \sin \theta_1(T) \operatorname{Arg} \operatorname{th} c_1(T) &= -\mu_B^2 \varepsilon_x \left[\frac{\varepsilon_x}{2\sqrt{2}} (p_1 - 2p_3 + 2p_4 + p_5 - J_1 - J_3) c_1(T) \sin \theta_1(T) \right. \\ &+ \frac{\varepsilon_y}{2\sqrt{2}} (p_2 - 2p_3 - p_5 - J_2 - J_3) c_2(T) \sin \theta_2(T) \\ &\left. + \frac{1}{2} g_z (p_3 + p_4 - J_3) \{ c_1(T) \cos \theta_1(T) + c_2(T) \cos \theta_2(T) \} \right] \end{aligned} \quad (64a)$$

$$\begin{aligned} 2 k_B T \sin \theta_2(T) \operatorname{Arg} \operatorname{th} c_2(T) &= -\mu_B^2 g_y \left[\frac{g_x}{2\sqrt{2}} (p_2 - 2p_3 - p_5 - J_2 - J_3) c_1(T) \sin \theta_1(T) \right. \\ &+ \frac{g_y}{2\sqrt{2}} (p_1 - 2p_3 - 2p_4 + p_5 - J_1 - J_3) c_2(T) \sin \theta_2(T) \\ &\left. + \frac{1}{2} g_z (p_3 - p_4 - J_3) \{ c_1(T) \cos \theta_1(T) + c_2(T) \cos \theta_2(T) \} \right] \end{aligned} \quad (64b)$$

$$\begin{aligned}
 2k_B T \cos \theta_1(T) \operatorname{Arg} \operatorname{th} c_1(T) = & - \mu_B^2 g_z \left[\frac{g_x}{2\sqrt{2}} (2p_3 + 2p_4 - 2J_3) c_1(T) \sin \theta_1(T) \right. \\
 & + \frac{g_y}{2\sqrt{2}} (2p_3 - 2p_4 - 2J_3) c_2(T) \sin \theta_2(T) \\
 & - \frac{1}{2} g_z (2p_1 - 2p_5 + J_1) c_1(T) \cos \theta_1(T) \\
 & \left. - \frac{1}{2} g_z (2p_2 + 2p_5 + J_2) c_2(T) \cos \theta_2(T) \right]
 \end{aligned} \tag{64c}$$

$$\begin{aligned}
 2k_B T \cos \theta_2(T) \operatorname{Arg} \operatorname{th} c_2(T) = & - \mu_B^2 g_z \left[\frac{g_x}{2\sqrt{2}} (2p_3 + 2p_4 - 2J_3) c_1(T) \sin \theta_1(T) \right. \\
 & + \frac{g_y}{2\sqrt{2}} (2p_3 - 2p_4 - 2J_3) c_2(T) \sin \theta_2(T) \\
 & - \frac{1}{2} g_z (2p_2 + 2p_5 + J_2) c_1(T) \cos \theta_1(T) \\
 & \left. - \frac{1}{2} g_z (2p_1 - 2p_5 + J_1) c_2(T) \cos \theta_2(T) \right]
 \end{aligned} \tag{64d}$$

Pour $T = 0$ on trouve comme attendu $|c_1(0)| = |c_2(0)| = 1$.

Pour $T = 0$, les équations (54) ne peuvent être utilisées directement à cause de l'indétermination $T/\operatorname{Arg} \operatorname{th} c(T)$. On trouvera deux équations couplées pour $\theta_1(0)$ et $\theta_2(0)$ en faisant les rapports des équations (64a) et (64c) et (64b) et (64d). En toute généralité

les équations (64) peuvent présenter trois solutions. Il est impossible de dire a priori celle qui correspond avec la solution du problème linéarisé fournissant la plus haute température de Néel. Il serait nécessaire de résoudre le problème (64) numériquement et de suivre l'évolution des solutions avec la température. Au voisinage de T_N , on a : $\mu = \nu$ et :

$$c_1(T) \cos \theta_1(T) = c_2(T) \cos \theta_2(T)$$

$$\operatorname{tg} \theta_1 = \frac{g_z}{g_x} \sqrt{2} \left\{ \frac{a_1 k_{BN}^T + a_2}{16(k_{BN}^T)^2 + a_3 k_{BN}^T + a_4} \right\} \quad (65)$$

$$\operatorname{tg} \theta_2 = \frac{g_z}{g_y} \sqrt{2} \left\{ \frac{a_5 k_{BN}^T + a_6}{16(k_{BN}^T)^2 + a_3 k_{BN}^T + a_4} \right\}$$

avec

$$a_1 = -8\mu_B^2 g_x^2 (p_3 + p_4 - J_3)$$

$$a_2 = 2\mu_B^4 g_x^2 g_y^2 \left\{ (p_3 - J_3)(p_2 - p_1 - 2p_5 + J_1 - J_2) - p_4(p_1 + p_2 - 6p_3 - J_1 - J_2) + 2p_4^2 \right\}$$

$$a_3 = 4\mu_B^2 \left\{ g_x^2 (p_1 - 2p_3 - J_1 - J_3 + 2p_4) + g_y^2 (p_1 - 2p_3 + p_5 - J_1 - J_3 - 2p_4) \right\} \quad (66)$$

$$a_4 = \mu_B^4 g_x^2 g_y^2 \left\{ (p_1 + p_2 - 4p_3 - J_1 - J_2 - 2J_3)(p_1 - p_2 + 2p_5 - J_1 + J_2) - 4p_4^2 \right\}$$

$$a_5 = -8\mu_B^2 g_y^2 (p_3 - p_4 - J_3)$$

$$a_6 = 2\mu_B^4 g_x^2 g_y^2 \left\{ (p_3 - J_3)(p_2 - p_1 - 2p_5 + J_1 - J_2) + p_4(p_1 + p_2 - 6p_3 - J_1 - J_2) + 2p_4^2 \right\}$$

Les formes (54) sont telles que l'aimantation résultante est parallèle à un des axes ternaires du cube (le choix $a \rightarrow (1,1,1)$, $b \rightarrow (1,-1,1)$, $c \rightarrow (1,1,-1)$, $d \rightarrow (1,-1,-1)$). Le moment magnétique permanent par ion sera :

$$\begin{aligned} \mu &= \frac{1}{6} \mu_B \sqrt{3} (2\kappa + 2\lambda + \mu + \nu) \\ &= \frac{1}{12} \mu_B \sqrt{3} \left[\sqrt{2} \{ g_x c_1(T) \sin \theta_1(T) + g_y c_2(T) \sin \theta_2(T) \} \right. \\ &\quad \left. + g_z \{ c_1(T) \cos \theta_1(T) + c_2(T) \cos \theta_2(T) \} \right] \quad (67) \end{aligned}$$

La formule (67) montre que le comportement du moment résultant en fonction de la température risque d'être complexe, et fort éloigné de la fonction de Brillouin. Son étude nécessite également la solution numérique des équations (64).

Remarque. Villain a démontré que la solution d'un ensemble d'équations linéarisées dans l'approximation du champ moléculaire, qui fournit la plus haute température de Néel, reste la solution la plus stable à basse température [9], [16]. Ce théorème a été démontré dans le cas des énergies d'échange isotrope. Il peut être étendu au cas anisotrope si on suppose que les quantités $|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|$ sont indépendantes du sous-réseau. Cette hypothèse n'est pas correcte pour les solutions de type B et les solutions de type C. Il ne nous est pas possible de dire s'il existe une démonstration du théorème de Villain dans ce cas.

V - SUSCEPTIBILITE

1) Calcul de la susceptibilité^{paramagnétique} dans le doublet de Kramers
fondamental

Au dessus du point de Néel, la susceptibilité par ion peut être définie par l'équation :

$$\vec{\chi} = \frac{1}{6} \sum_{\alpha=1}^6 \vec{\chi}^{\alpha} \quad (68)$$

$\vec{\chi}^{\alpha}$ est la susceptibilité correspondant au sous-réseau α , c'est-à-dire :

$$\vec{\chi}^{\alpha} = \lim_{H \rightarrow 0} \frac{\partial \vec{\mu}^{\alpha}}{\partial \vec{H}} \quad (69)$$

Nous pouvons nous borner aux termes linéaires dans le développement de la tangente hyperbolique de la formule (18) puisque $\vec{\mu}^{\alpha}$ tend vers zéro avec \vec{H} au dessus de T_N . Il vient :

$$\vec{\mu}^{\alpha} = \frac{\beta}{4} \mu_B^2 \vec{g}^{\alpha} \left\{ \vec{H} - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^{\beta} + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^{\beta} \right\} \cdot \vec{g}^{\alpha} \quad (70)$$

et par conséquent,

$$\vec{\chi}^\alpha = \frac{\beta}{4\mu_B g} \left\{ (\vec{u} - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\chi}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\chi}^\beta) \cdot \vec{g}^\alpha \right\} \quad (71)$$

où \vec{U} est le tenseur unité.

Le système (71) est un système de 54 équations à 54 inconnues. Les solutions de ce système ont les mêmes propriétés de transformation que les tenseurs \vec{g}^α , nous pouvons donc exprimer les éléments des $\vec{\chi}^\alpha$ en fonction de trois paramètres p, r, q tout comme nous pouvons exprimer les \vec{g}^α en fonction des trois "paramètres"

$\frac{1}{2}(g_x + g_y)$, $\frac{1}{2}(g_x - g_y)$, g_z . Nous pouvons alors dresser le tableau suivant pour les composantes des $\vec{\chi}^\alpha$

$\alpha =$	1	2	3	4	5	6
xx	p	q	p	p	q	p
yy	p	p	q	p	p	q
zz	q	p	p	q	p	p
xy	r	0	0	-r	0	0
yz	0	r	0	0	-r	0
zx	0	0	r	0	0	-r

(72)

On voit alors que

$$\vec{\chi} = \chi \vec{u} \quad (73a)$$

avec

$$\chi = \frac{1}{6}(4p + 2q) \quad (73b)$$

Si on reporte les valeurs des $\chi^{\frac{2}{3}}$ dans les équations (71) celles-ci se réduisent à trois équations inhomogènes à trois inconnues p, q, r. En résolvant ce système on trouve :

$$\chi = \frac{1}{3} \frac{c_1 \left(\frac{\beta\mu_B^2}{4}\right) + c_2 \left(\frac{\beta\mu_B^2}{4}\right)^2 + c_3 \left(\frac{\beta\mu_B^2}{4}\right)^3}{1 + d_1 \frac{\beta\mu_B^2}{4} + d_2 \left(\frac{\beta\mu_B^2}{4}\right)^2 + d_3 \left(\frac{\beta\mu_B^2}{4}\right)^3} \quad (74)$$

avec

$$c_1 = g_x^2 + g_y^2 + g_z^2$$

$$c_2 = 2g_x^2 g_y^2 (p_1 - p_2 + 2p_5 - J_1 + J_2)$$

$$-g_x^2 g_z^2 (p_1 + p_2 + 6p_3 - p_5 + 2J_1 + J_2 - 3J_3 + 2p_4) \quad (75)$$

$$-g_y^2 g_z^2 (p_1 + p_2 + 6p_3 - p_5 + 2J_1 + J_2 - 3J_3 - 2p_4)$$

$$c_3 = g_x^2 g_y^2 g_z^2 \left\{ -3(p_1 - p_2 + 2p_5 - J_1 + J_2)(p_1 + p_2 + 4p_3 + J_1 + J_2 - 2J_3) - 4p_4^2 \right\}$$

d_1 , d_2 , et d_3 sont évidemment donnés par (50) puisque la susceptibilité doit devenir infinie, en $T = T_N$ pour la solution

ferrimagnétique et rester finie pour les deux solutions antiferromagnétiques.

2) Influence des niveaux d'énergie supérieurs

Nous allons utiliser maintenant le formalisme du chapitre II, paragraphe 4 pour évaluer les effets des niveaux de Kramers autres que le fondamental.

Sous l'influence d'un champ \vec{H} , un doublet de Kramers E_i est séparé en deux singulets : $|\phi_{i_1}\rangle$ et $|\phi_{i_2}\rangle$ tels que, à l'ordre zéro :

$$|\phi_{i_1}\rangle = \rho_i |a_i\rangle + \sigma_i |\bar{a}_i\rangle \quad (76)$$

$$|\phi_{i_2}\rangle = -\sigma_i^* |a_i\rangle + \rho_i^* |\bar{a}_i\rangle$$

ρ_i et σ_i sont donnés par l'équation (15) où l'on remplace \vec{g}^{00} par \vec{g}^{ii} .

Si nous nous bornons au premier ordre d'approximation, il y aura un mélange avec les autres fonctions des autres doublets E_j . Au lieu de (76) on obtiendra deux fonctions $|\phi'_{i_1}\rangle$ et $|\phi'_{i_2}\rangle$. Au premier ordre en \vec{H} on aura :

$$\langle \phi'_{i_1} | \vec{m} | \phi'_{i_1} \rangle = \langle \phi_{i_1} | \vec{m} | \phi_{i_1} \rangle + \sum_{E_j \neq E_i} \frac{\vec{A}^{ij} \cdot \vec{H}}{E_j - E_i} \quad (77)$$

avec

$$\vec{A}^{ij1} = \langle \phi_{i_1} | \vec{m} | \bar{a}_j \rangle \langle \bar{a}_j | \vec{m} | \phi_{i_1} \rangle + \langle \phi_{i_1} | \vec{m} | a_j \rangle \langle a_j | \vec{m} | \phi_{i_1} \rangle + c.c. \quad (78)$$

et une expression équivalente pour $\langle \phi_{i_2}' | \vec{m} | \phi_{i_2}' \rangle$.

Si nous utilisons les expressions (40), nous pourrions écrire \vec{A}^{ij1} sous la forme :

$$\vec{A}^{ij1} = \mu_B^2 \vec{g}^{ij} \cdot (\vec{A}\vec{A}^* + \vec{A}^*\vec{A} + \vec{B}\vec{B}^* + \vec{B}^*\vec{B}) \cdot \vec{\tilde{g}}^{ij} \quad (79)$$

$\vec{\tilde{g}}^{ij}$ est le tenseur transposé de \vec{g}^{ij} .

ou

$$\vec{A} = \langle \phi_{i_1} | \vec{S} | \bar{a}_j \rangle \quad \text{a les composantes } \frac{1}{2}\rho_i^*, -\frac{1}{2}i\rho_i^*, -\frac{1}{2}\sigma_i^* \quad (80)$$

et

$$\vec{B} = \langle \phi_{i_1} | \vec{S} | a_j \rangle \quad \text{a les composantes } \frac{1}{2}\sigma_i^*, \frac{1}{2}i\sigma_i^*, \frac{1}{2}\rho_i^*$$

On voit que

$$\vec{A}\vec{A}^* + \vec{B}\vec{B}^* + \vec{A}^*\vec{A} + \vec{B}^*\vec{B} = \frac{1}{2} \vec{U} \quad (81)$$

et

$$\vec{A}^{ij1} = \frac{1}{2} \mu_B^2 \vec{g}^{ij} \cdot \vec{\tilde{g}}^{ij} \quad (82)$$

\vec{A}_{ij}^2 est calculé de la même manière et on a :

$$\langle \phi'_{i_1} | \vec{m} | \phi'_{i_1} \rangle = \left[\frac{1}{2} \mu_B \frac{\vec{g}_{ii} \cdot \vec{g}_{ii}}{|\vec{H} \cdot \vec{g}_{ii}|} + \frac{1}{2} \mu_B^2 \sum_{E_j \neq E_i} \frac{\vec{g}_{ij} \cdot \vec{g}_{ij}}{E_j - E_i} \right] \cdot \vec{H} \quad (83)$$

$$\langle \phi'_{i_2} | \vec{m} | \phi'_{i_2} \rangle = \left[-\frac{1}{2} \mu_B \frac{\vec{g}_{ii} \cdot \vec{g}_{ii}}{|\vec{H} \cdot \vec{g}_{ii}|} + \frac{1}{2} \mu_B^2 \sum_{E_j \neq E_i} \frac{\vec{g}_{ij} \cdot \vec{g}_{ij}}{E_j - E_i} \right] \cdot \vec{H}$$

Pour calculer l'aimantation $\vec{\mu}^\alpha$ d'un sous-réseau, il faut sommer l'expression (53) multipliée par le facteur de Boltzmann. Dans cette sommation il suffit de se restreindre au premier ordre dans les énergies. Il vient :

$$\vec{\mu}^\alpha = \left\{ \sum_i \exp \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \operatorname{ch} \frac{1}{2} \mu_B \frac{|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}_{ii\alpha}|}{k_B T} \right\}^{-1} \sum_i \exp -\frac{E_i - E_0}{k_B T} \left[\frac{1}{2} \mu_B \frac{\vec{g}_{ii\alpha} \cdot \vec{g}_{ii\alpha}}{|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}_{ii\alpha}|} \operatorname{sh} \frac{1}{2} \mu_B \frac{|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}_{ii\alpha}|}{k_B T} + \frac{1}{2} \mu_B^2 \sum_{E_j \neq E_i} \frac{\vec{g}_{ij\alpha} \cdot \vec{g}_{ij\alpha}}{E_j - E_i} \operatorname{ch} \frac{1}{2} \mu_B \frac{|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}_{ii\alpha}|}{k_B T} \right] \cdot \vec{H}^\alpha \quad (84)$$

et pour $|\vec{H}^\alpha|$ petit devant $k_B T$ on a :

$$\vec{\mu}^{\alpha} = \frac{\sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \left[\frac{\mu_B^2}{4k_B T} \vec{g}_{ii\alpha} \cdot \vec{g}_{ii\alpha} + \frac{1}{2} \mu_B^2 \sum_{E_j \neq E_i} \frac{\vec{g}_{ij\alpha} \cdot \vec{g}_{ij\alpha}}{E_j - E_i} \right] \cdot \vec{H}^{\alpha}}{\sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T}} \quad (85)$$

Au premier ordre nous avons :

$$\vec{\mu}^{\alpha} = \frac{\mu_B^2}{4k_B T} (\vec{g}^{\alpha} \cdot \vec{g}^{\alpha}) \cdot \vec{H}^{\alpha} \quad (86)$$

\vec{H}^{α} est le champ moléculaire donné par la formule (8)

On voit que la susceptibilité au-dessus de T_N , et les températures de transition des solutions A,B,C peuvent être obtenues à partir de (74), (47), (48) et (49). en remplaçant g_p^2 (p=x,y,z) par $g_p'^2$, tel que :

$$g_p'^2 = \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \left\{ g_p^{ii^2} + 2k_B T \sum_{E_k \neq E_i} \frac{g_p^{ij^2}}{E_j - E_i} \right\} \left\{ \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \right\}^{-1} \quad (87)$$

L'équation (87) montre que l'existence des niveaux supérieurs a un effet sur les températures de Néel. Si $k_B T_N \ll (E_1 - E_0)$ la température de Néel de la solution A sera augmentée, dans un rapport

$$\frac{2k_B T_N}{g_z^2} \frac{g_z'^2}{E_1 - E_0} \sim \frac{2k_B T_N}{E_1 - E_0} \quad (88)$$

Dans ErGaG $E_1 - E_0 \simeq 34^\circ\text{K}$ et l'effet attendu est de l'ordre de 5 %.

Pour les solutions B et C l'effet est plus complexe. Cependant si les quantités $\frac{g_p^{o12}}{g_p}$ ne dépendent que peu de $p(=x,y,z)$ les températures de Néel seront accrues.

Pour des températures assez élevées pour que l'on puisse négliger dans l'expression de χ c_2, d_2 et d_3 dans les termes contenant \vec{g}^{ii} et c_2 et d_1 dans ceux contenant \vec{g}^{ij} , on obtient une loi de Curie-Weisz :

$$\chi = \frac{C}{T+\theta} + \alpha \quad (89)$$

avec

$$C = \frac{\mu_B^2}{12k_B} \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} (g_x^{ii^2} + g_y^{ii^2} + g_z^{ii^2}) \left\{ \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \right\}^{-1} \quad (90)$$

$$\theta = \frac{\mu_B^2}{4k_B} \left\{ d_1 - \frac{\mu_B^2 c_2}{12k_B C} \right\}$$

α correspond au paramagnétisme constant [17] et vaut :

$$\alpha = \frac{1}{6} \mu_B^2 \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \sum_{j \neq i} \frac{g_x^{ij^2} + g_y^{ij^2} + g_z^{ij^2}}{E_j - E_i} \left\{ \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \right\}^{-1} \quad (91)$$

C , θ et α ne dépendent pas de la température si

$$(E_i - E_0) \ll k_B T$$

pour un nombre fini de niveaux, et

$$(E_i - E_0) \gg k_B T$$

pour les autres. Autrement dit il ne faut pas qu'il y ait des niveaux, tels que

$$(E_i - E_0) \sim k_B T$$

3) Comparaison avec les résultats expérimentaux

On peut remarquer que, pour des températures légèrement au-dessus du point de Néel, le modèle de champ moléculaire conduit à une surestimation de la susceptibilité.

Si l'on prend le cas de DyAlG, où les susceptibilités ont été mesurées et calculées par Ball et al [15], on observe des déviations entre la mesure et le calcul dès que la température est inférieure à $3T_N$. Entre $3T_N$ et $2T_N$, les différences entre théorie et mesure restent faibles mais au voisinage de T_N la susceptibilité calculée est environ 1,5 fois trop forte. On s'attend à un comportement analogue pour ErGaG où la susceptibilité a été mesurée

par Wolf et al [10] entre 1,5°K et 4,2°K et au-dessus de 14,4°K. Vivet [2] a étendu ces mesures à des températures comprises entre 0,8°K et 4,2°K. Pour comparer les calculs de champ moléculaire à l'expérience, il faut déterminer C, α et θ . Ceci peut être fait par comparaison avec les résultats expérimentaux dans la région de température où la loi de Curie-Weisz est applicable. Cependant on ne peut utiliser les résultats de mesure au-dessus de 14,4°K, car l'existence d'un niveau excité à 34°K rend l'estimation de C, θ et α imprécise [10]. C, θ et α restent donc malconnus. On peut cependant dire que si l'on utilise les valeurs des facteurs g obtenus dans LuGaG les résultats seront franchement mauvais, alors que les valeurs des facteurs g tirées de YGaG conduisent à un meilleur accord avec l'expérience. Ceci est à rapprocher du fait que la température de Néel calculée est également meilleure avec ces dernières valeurs.

Cependant on peut utiliser la valeur $C = 4,79 \text{ mol}^{-1}$ calculée à partir des facteurs g du grenat YGaG. Cette valeur de C conduit à un très bon accord avec une loi de Curie Weisz, si on prend $\alpha = 0,15 \text{ mol}^{-1} \text{ C.C.}$ et $\theta = 0,30^\circ\text{K}$.

En utilisant la valeur de α nous pouvons estimer pour la distance du doublet excité

$$\Delta \sim \frac{2C}{\alpha} \sim 65^\circ\text{K}$$

(Cette valeur est d'environ deux fois plus grande que la valeur

donnée par Wolf $\Delta \sim \frac{C}{\alpha} \sim 34^\circ\text{K}$ [10]).

En utilisant les valeurs numériques des sommes dipolaires on peut déduire que θ est donnée par .

$$\theta = - 0,011 J_3 a^3 + 0,14$$

En adaptant le paramètre J_3 à la valeur de θ nous trouverons $J_3 = - 14a^{-3}$. Le signe de J_3 est juste parce que le paramètre J_3 provient d'un mécanisme de super échange. Cependant des petites différences qui peuvent exister entre les valeurs g du grenat pur de ErGaG et les valeurs g du grenat YGaG substitué rendent l'estimation de J_3 imprécise.

La loi de Curie Weisz et la formule exacte (44) conduisent à un bon accord avec les résultats expérimentaux au-dessus de $2,5^\circ\text{K}$. Pour $T = 1^\circ\text{K}$ la loi de Curie Weisz donne une surestimation de 31 %, la formule (44) une surestimation de 43%. Ceci est à rapprocher de l'approximation du champ moléculaire.

On peut, pour améliorer la concordance, utiliser une méthode de Bethe Peierls [18] , [19] , analogue à celle utilisée par Weisz pour le cas de l'échange isotrope.

Cependant la méthode de Bethe Peierls consiste à traiter correctement l'influence des proches voisins. Mais les interactions dipolaires sont à longue portée et dans les cas des grenats les convergences de sommes dipolaires sont suffisamment mauvaises pour qu'on ne puisse espérer qu'une faible amélioration par cette méthode. En fait au voisinage de T_N la susceptibilité calculée reste 1,25 fois trop forte.

4) La susceptibilité dans le domaine antiferromagnétique

Pour des températures inférieures à T_N nous pouvons définir une susceptibilité par les formules (68) et (69). Nous allons nous intéresser ici plus particulièrement aux antiferromagnétiques de type A. Pour $0 < T < T_N$ l'aimantation d'un sous-réseau donné n'est plus négligeable. Il faut donc utiliser les équations générales (18). Si l'on dérive les deux membres de (18) par rapport à \vec{H} , il vient, compte tenu de (68) et (69) :

$$\vec{\chi}^\alpha = \mu_B \frac{\vec{\chi}^\alpha}{g^\alpha} \left\{ \left(U - \sum_{\beta=1}^6 A^{\beta\alpha} \cdot \vec{\chi}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\chi}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right\} \frac{\text{th} \frac{\mu_B}{2k_B T} |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|}{2 |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|} +$$

$$+ \left\{ \frac{\mu_B}{4k_B T} \cosh^{-2} \frac{\mu_B}{2k_B T} |\vec{H} \cdot \vec{g}^\alpha| - \frac{\text{th} \frac{\mu_B}{2k_B T} |\vec{H} \cdot \vec{g}^\alpha|}{2 |\vec{H} \cdot \vec{g}^\alpha|} \right\} \mu_B (\vec{g}^\alpha \cdot \vec{e}_{H^\alpha}) \left[\vec{e}_{H^\alpha} \left\{ \left(U - \sum_{\beta=1}^6 A^{\beta\alpha} \vec{\chi}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\chi}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right\} \right]$$

\vec{e}_{H^α} est le vecteur unité de la direction $\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha$

$$\vec{e}_{H^\alpha} = \frac{\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha}{|\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|}, \quad \vec{H}^\alpha = \vec{H} - \sum_{\beta=1}^6 \frac{J_{\beta\alpha}}{A} \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta \quad (93)$$

Dans le cas de l'antiferromagnétisme A, on a :

$$\lim_{\vec{H} \rightarrow 0} \vec{e}_{H^\alpha} = \pm \vec{e}_{Z_\alpha} \quad (94)$$

\vec{e}_{Z_α} est le vecteur unité de la direction Z_α .

On a :

$$\begin{aligned} \lim_{\vec{H} \rightarrow 0} |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| &= a = |\alpha_1| g_Z = (2p_1 - 2p_2 - 4p_5 - J_1 + J_2) |\alpha| g_Z = \\ &= \frac{1}{2} \mu_B g_Z^2 (2p_1 - 2p_2 - 4p_5 - J_1 + J_2) a(T) = \frac{2k_B T_N}{\mu_B} a(T) \cdot \quad (95) \end{aligned}$$

C'est-à-dire :

$$\frac{\mu_B}{2k_B T} |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| = \frac{T_N}{T} a(T) \quad (96)$$

Pour établir (96) on a utilisé les équations (56) (57) (55) (58) et (47).

Des équations (96) et (59) on tire alors :

$$\frac{\text{th} \frac{\mu_B}{2k_B T} |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|}{2 |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha|} = \frac{\text{th} \frac{T_N}{T} a(T)}{\frac{4k_B T_N}{\mu_B} a(T)} = \frac{\mu_B}{4k_B T_N} \quad (97)$$

$$ch^{-2} \frac{\mu_B}{2k_B T} |\vec{H}^\alpha \cdot \vec{g}^\alpha| = 1 - \text{th}^2 \frac{T_N}{T} a(T) = 1 - a^2(T) \quad (98)$$

Par substitution des équations (94), (97) et (98) dans (92) on tire la susceptibilité :

$$\begin{aligned} \vec{\chi}^\alpha &= \frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} \vec{g}^\alpha \cdot \left(U - \sum_{\beta=1}^6 \frac{\vec{A}^{\beta\alpha}}{A^{\beta\alpha}} \cdot \vec{\chi}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\chi}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha + \\ &+ \frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} \left[\frac{T_N}{T} (1 - a^2(T)) - 1 \right] (\vec{g}^\alpha \cdot \vec{e}_{Z_\alpha}) \left\{ \vec{e}_{Z_\alpha} \cdot \left[\left(U - \sum_{\beta=1}^6 \frac{\vec{A}^{\beta\alpha}}{A^{\beta\alpha}} \cdot \vec{\chi}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\chi}^\beta \right) \cdot \vec{g}^\alpha \right] \right\} \end{aligned} \quad (99)$$

Si nous supposons que les équations (99) ont une solution de la forme (72), on voit que le second terme du membre de droite de (99) fournit une contribution indépendante de α , à $\chi_{Z_\alpha Z_\alpha}^\alpha$, ce qui montre que les équations (99) ont bien une solution de la forme (72).

Si on définit un facteur g dépendant de la température :
 $g_z^2(T)$ tel que :

$$g_z(T) = g_z^2 \frac{T_N}{T} \left\{ 1 - a^2(T) \right\} \quad (100)$$

on obtiendra la susceptibilité sous la forme (74) c'est-à-dire :

$$\vec{\chi} = \chi \vec{U},$$

où

$$\chi = \frac{\frac{1}{3} \left[c_1(T) \frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} + c_2(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} \right)^2 + c_3(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} \right)^3 \right]}{1 + d_1(T) \frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} + d_2(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} \right)^2 + d_3(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T_N} \right)^3} \quad (101)$$

où $c_1(T)$, $c_2(T)$, $c_3(T)$, $d_1(T)$, $d_2(T)$, $d_3(T)$ s'obtiennent à partir des équations (75) et (50) en remplaçant g_z^2 par $g_z^2(T)$.

Pour T tendant vers zéro, $g_z^3(T)$ tend vers zéro continûment, alors que g_x et g_y restent constants. On a là, l'analogie du comportement de la susceptibilité pour les antiferromagnétiques à deux sous-réseaux pour lesquels la susceptibilité dans la direction de l'aimantation d'un sous-réseau, $\chi_{//}$, tend vers zéro avec T tandis que la susceptibilité perpendiculaire à cette direction, χ_{\perp} , reste constante.

Pour $T = T_N$ la contribution de c_2, c_3, d_1, d_3 est petite, si la température correspondant à la transition ferrimagnétique est petite devant T_N , on s'attend donc à ce que χ présente un maximum à $T = T_N$ et décroisse continûment jusqu'à une valeur χ_0 quand T tend vers zéro.

VI - ETUDE SOMMAIRE DES IONS NON DE KRAMERS

Nous considérons ici rapidement les ions de terres rares ayant un nombre pair d'électrons dans la couche 4f. Dans la symétrie orthorombique de l'environnement, la dégénérescence est complètement

levée. Les singulets qui apparaissent peuvent appartenir soit à la représentation identité soit à l'une des représentations X, Y, Z du groupe D_2 [4]. On entend ici par représentation X, Y, Z les représentations dont une fonction de base est respectivement x, y, ou z.

Calculons les éléments de matrice de \vec{m} entre deux singulets $|a_i\rangle$ et $|a_j\rangle$.

i) Si $|a_i\rangle$ et $|a_j\rangle$ appartiennent à la même représentation :

$$\langle a_i | m_p | a_j \rangle = 0 \quad (p = x, y, z) \quad (102a)$$

ii) Si $|a_i\rangle$ et $|a_j\rangle$ appartiennent à deux représentations différentes P et Q telles que P et Q sont deux des représentations X, Y, Z on a :

$$\langle a_i | m_p | a_j \rangle = \langle a_i | m_q | a_j \rangle = 0 \quad (102b)$$

$$\langle a_i | m_r | a_j \rangle \neq 0$$

(R = X, si P et Q sont Y et Z, etc

iii) Si $|a_i\rangle$ appartient à la représentation identité et $|a_j\rangle$ à P (P = X, Y ou Z)

$$\langle a_i | m_p | a_j \rangle \neq 0$$

$$\langle a_i | m_q | a_j \rangle \neq 0 \quad (q = y \text{ ou } z \text{ si } P = X \text{ etc } \dots) \quad (102c)$$

On peut introduire ici un facteur g_p^{ij} défini par :

$$|\langle a_i | m_p | a_j \rangle| = \frac{1}{2} \mu_B g_p^{ij} \quad (103)$$

Si $|a_i\rangle$ et $|a_j\rangle$ appartiennent à la même représentation de D_2 g_p^{ij} est nul quel que soit p .

En présence d'un champ \vec{H} la fonction d'onde, au premier ordre, d'un singulet $|a_i\rangle$ deviendra :

$$|a_i'\rangle = |a_i\rangle + \sum_{E_j=E_i} \frac{\langle a_j | \vec{m} \cdot \vec{H} | a_i \rangle}{E_j - E_i} |a_j\rangle \quad (104)$$

et les éléments de matrice du moment magnétique dans ce singulet sont :

$$\langle a_i' | m_p | a_i' \rangle = 2 \sum_j \frac{|\langle a_i | m_p | a_j \rangle|^2}{(E_j - E_i)} H_p = \frac{1}{2} \mu_B^2 \sum_j \frac{g_p^{ij^2}}{E_j - E_i} H_p \quad (105)$$

L'aimantation d'un ion s'écrit :

$$\mu_p = \frac{\sum_i \exp\left(-\frac{(E_i - E_0)}{k_B T}\right)}{\sum_i \exp\left(-\frac{(E_i - E_0)}{k_B T}\right)} \frac{1}{2} \mu_B^2 \sum_j \frac{g_p^{ij^2}}{E_j - E_i} H_p \quad (106)$$

où

$$\mu_p = \frac{\mu_B^2}{4k_B T} g_p^2(T) H_p \quad (107)$$

avec

$$g_p^2(T) = 2k_B T \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \sum_j \frac{g_{ij}^2}{E_j - E_i} / \sum_i \exp - \frac{(E_i - E_0)}{k_B T} \quad (108)$$

L'équation (108) sous-entend que les axes sont les axes de D_2 .

Un traitement de champ moléculaire analogue à celui appliqué pour les ions de Kramers (cf. eq. (70)) conduit à :

$$\vec{\mu}^\alpha = \frac{\mu_B^2}{4k_B T} \vec{g}^\alpha(T) \cdot \left\{ (\vec{H} - \sum_{\beta=1}^6 \vec{A}^{\beta\alpha} \cdot \vec{\mu}^\beta + \sum_{\beta=1}^6 J_{\alpha\beta} \vec{\mu}^\beta) \cdot \vec{g}^\alpha(T) \right\} \quad (109)$$

Les aimantations sont définies dans le système d'axes du cube.

Les tenseurs $\vec{g}^\alpha(T)$ s'expriment en fonction de $g_p(T)$ comme les tenseurs \vec{g}^α avaient été exprimés en fonction de g_x, g_y, g_z .

Pour $H = 0$, on obtiendra un ensemble d'équations linéaires analogues aux équations (43). Il s'ensuit que l'ordre magnétique,

s'il existe, sera du type A, B ou C. Les températures de Néel s'obtiendront à partir des équations (48) (49) (50) en remplaçant g_k^2 , g_y^2 , g_z^2 par les facteurs $g_x^2(T)$, $g_y^2(T)$, $g_z^2(T)$ définis ci-dessus. Trois équations implicites en T_N doivent être alors résolues. En général il n'y aura pas de solution de ces équations et les ions non de Kramers ne présentent pas d'ordre magnétique.

Une exception doit cependant être faite dans le cas où un singulet E_1 est proche du fondamental E_0 . Si E_1 et E_0 appartiennent à deux représentations différentes, il existe une composante non nulle de g^{01} . Soit g_p^{01} cette composante. Si on néglige l'influence des autres niveaux on aura :

$$g_p^2(T) = 2k_B T \frac{(g_p^{01})^2}{\Delta} \text{th} \frac{\Delta}{2k_B T} \quad (110)$$

avec $\Delta = E_1 - E_0$. Les autres composantes de $g_p^2(T)$ sont nulles.

Plusieurs cas doivent alors être distingués :

i) Si la composante non nulle est la composante z (les niveaux E_0 et E_1 appartiennent soit aux représentations identité et z, soit aux représentations x et y) alors il peut exister une solution antiferromagnétique de type A où T_N est donnée par :

$$\frac{1}{2} \frac{2 \cdot 0 \cdot 1^2}{k_B g_z} (2p_1 - 2p_2 - 4p_5 + J_1 - J_2) \text{th} \frac{\Delta}{2k_B T_N} = 1 \quad (111a)$$

si

$$\frac{\frac{1}{2} \mu_B^2 \varepsilon_z^{01^2}}{\Delta} (2p_1 - 2p_2 - 4p_5 + J_1 - J_2) > 1 \quad (111b)$$

ii) Si la composante non nulle est la composante x (les niveaux E_0 et E_1 appartiennent soit aux représentations identité et x, soit aux représentations y et z), il peut exister une solution antiferromagnétique de type B où T_N est donnée par :

$$\frac{1}{2} \mu_B^2 \frac{\varepsilon_x^{01^2}}{\Delta} (p_5 + 2p_4 - p_1 - 2p_3 + J_1 - J_3) \text{th} \frac{\Delta}{2k_B T_N} = 1 \quad (112a)$$

si

$$\frac{1}{2} \mu_B^2 \frac{\varepsilon_x^{01^2}}{\Delta} (p_5 + 2p_4 - p_1 - 2p_3 + J_1 - J_3) > 1 \quad (112b)$$

iii) Si la composante non nulle est la composante y (les niveaux E_0 et E_1 appartiennent soit aux représentations identité et y, soit aux représentations z et x). Il peut exister une solution ferrimagnétique de type C, où T_N est donnée par :

$$\frac{1}{2} \mu_B^2 \frac{\varepsilon_y^{01^2}}{\Delta} (2p_4 - p_5 + 2p_3 - p_1 + J_1 + J_3) \text{th} \frac{\Delta}{2k_B T_N} = 1 \quad (113a)$$

si

$$\frac{1}{2} \mu_B^2 \frac{g_y^{01^2}}{\Delta} (2p_4 - p_5 + 2p_3 - p_1 + J_1 + J_3) > 1 \quad (113b)$$

Dans tout ce qui précède on a, bien entendu, supposé que les paramètres d'échange restent suffisamment petits pour ne pas modifier les coefficients de (111) (112) (113) de manière importante.

On peut estimer la distance Δ , en négligeant les effets d'échange pour que les transitions puissent se produire. Si on prend $a \approx 12 \text{ \AA}$ on voit qu'il faut

$$\Delta < 0,012 \left(g_z^{01} \right)^2 \text{ cm}^{-1} \quad \text{pour que la solution A existe}$$

$$\Delta < 0,002 \left(g_x^{01} \right)^2 \text{ cm}^{-1} \quad \text{pour que la solution B existe}$$

$$\Delta < 0,011 \left(g_y^{01} \right)^2 \text{ cm}^{-1} \quad \text{pour que la solution C existe}$$

(114)

on voit qu'aucun ordre magnétique ne pourra s'établir pour $\Delta > 5 \text{ cm}^{-1}$.

Comme les équations (109) ont une forme analogue aux équations (74), on peut écrire directement la susceptibilité par ion :

$$\vec{\chi} = \chi \vec{u}$$

avec

$$\chi = \frac{1}{3} \frac{c_1(T) \frac{\mu_B^2}{4k_B T} + c_2(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T} \right)^2 + c_3(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T} \right)^3}{1 + d_1(T) \frac{\mu_B^2}{4k_B T} + d_2(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T} \right)^2 + d_3(T) \left(\frac{\mu_B^2}{4k_B T} \right)^3} \quad (115)$$

Les coefficients $c_1, c_2, c_3, d_1, d_2, d_3$ s'obtiennent en remplaçant dans les formules (50) et (75), q_{jp}^2 par $g_p'^2(T)$.

L'expression (115) n'est utilisable que pour $T > T_N$ et pour toute température s'il n'y a pas d'ordre magnétique.

Pour des températures T telles que $(E_i - E_0) \ll k_B T$ pour un certain nombre de niveaux et $(E_j - E_0) \gg k_B T$ pour tous les autres, la susceptibilité sera indépendante de la température.

En général la susceptibilité tend vers zéro quand T tend vers l'infini, et devient indépendante de la température pour des faibles valeurs de T lorsque aucun ordre magnétique ne s'établit. Dans l'expression (115) $c_2(T), c_3(T), d_1(T), d_2(T), d_3(T)$ proviennent du couplage magnétique. Si la distance entre E_0 et les niveaux supérieurs est grande on pourra les négliger devant $c_1(T)$.

Wolf et al [10] ont observé un ordre magnétique dans TbAlG pour $T = 1,5^\circ\text{K}$. Les conditions (114) laissent penser qu'il s'agit d'un antiferromagnétique de type A. Dans le cas de HoGaG, HoAlG, TbGaG, aucun ordre magnétique n'a pu être détecté bien que la distance du premier niveau excité au fondamental soit inférieure

à 5 cm^{-1} . Par ailleurs dans TMGaG et TMAlG on a observé une susceptibilité faible et constante à basse température. On peut en déduire que la distance $E_1 - E_0$ est grande ($> 50 \text{ cm}^{-1}$).

Nous tenons à remercier Monsieur D. Saint-James pour son aide dans la réalisation de ce travail et Messieurs Vivet et Carrara et Messieurs Herpin et Mérieu qui nous ont communiqué leurs résultats expérimentaux avant publication et avec qui nous avons eu de nombreuses discussions. L'auteur tient également à remercier l'Organisation Néerlandaise pour le Développement de la Recherche Scientifique (ZWO) qui lui a obtenu une bourse de l'OTAN.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J.H. VAN VLECK, Phys. Rev., 1937, 52, 1178.
" J. Chem. Phys., 1937, 5, 320.
- [2] B. VIVET et P. CARRARA, à paraître
P. CARRARA, diplôme d'Etudes Supérieures, Université de Paris.
- [3] WYCKOFF, Crystal Structures, vol. III, ch. XII, a II 3,
Interscience Publishers Inc., New-York and London.
- [4] D. SAINT-JAMES, la théorie des groupes en Physique du Solide,
Cours professé à l'Institut National des Sciences et Techniques
Nucléaires.
F. BOUTRON et D. SAINT-JAMES, Opérateurs tensoriels irréduc-
tibles et potentiels cristallins, Rapport C.E.A., n° 1952, (1961)
- [5] D. BOAKES, G. GARTON, D. RYAN et W.P. WOLF, Proc. Phys. Soc.,
1959, 74, 663.
W.P. WOLF, Proc. Phys. Soc., 1959, 74, 665.
- [6] E. WIGNER, Nachr. Ges. Wissenschaften Göttingen, 1932, 546.
" Group Theory and its application to the quantum
mechanics of atomic spectra (1959), Academic Press, New-York
and London.
- [7] A. EDMONDS, Angular momentum in quantum mechanics (1957)
Princeton University Press.
- [8] A. ABRAGAM, Cours sur les propriétés des ions des terres rares,
Collège de France, 1963-1964.

- [9] A. HERPIN, Physique des basses températures, Ecole d'été de physique théorique, les Houches (1961), 309, Gordon and Breach Science Publishers, New-York.
- [10] M. BALL, G. GARTON, M.J.M. LEASK, D. RYAN et W.P. WOLF, J. Appl. Phys., suppl. to vol. 32, n°3, 1961, 267 S.
W.P. WOLF, M. BALL, M.T. HUTCHINGS, M.J.M. LEASK et A.F.G. WYATT, J. Phys. Soc. Japan, 1962, 17, suppl. BI, 443.
- [11] F. BERTAUT et E. FORRAT, C.R. Acad. Sci., 1956, 383, 1219.
- [12] M. BREÛIL, Thèse, Paris, 1963.
- [13] Y. AYANT et J. THOMAS, J. Phys. Soc. Japan, 1962, 17 suppl. BI, 448.
Y. AYANT et J. THOMAS, C.R. Acad. Sci., 1959, 250, 2688.
- [14] A.J. FREEMAN et R.E. WATSON, Phys. Rev., 1962, 127 n°6, 2058.
- [15] M. BALL, M.T. HUTCHINGS, M.J.M. LEASK et W.P. WOLF, 8 th Proc. 8 th Intern. Conf. on Low Temp. Phys. (1962) p. 248, London Butterworths.
- [16] J. VILLAIN, J. Phys. Chem. Solids, 1959, 11, 303.
- [17] J.H. VAN VLECK, Theory of electric and magnetic susceptibilities, 1932, Oxford University Press.
- [18] H.A. BETHE, Proc. Roy. Soc., 1935, A 150, 552.
- [19] T. MUTO et Y. TAKAGI, Solid State Physics, n°1, p.193, Academic Press, Inc. Publishers, New-York (1955).
- [20] P.R. WEISZ, Phys. Rev., 1948, 74, 1493.
- [21] A. HERPIN et P. MERIEL, à paraître.

Appendice A

SYMETRIE DU CHAMP CRISTALLIN

Soit A un point de coordonnées (x,y,z) où se trouve un ion d'un élément M. Soit B,C,D trois points en lesquels A est transformé par les trois opérations suivantes du groupe O_h^{10} (*) :

	Opération	Résultat
1)	$2_{3/4, 1/4, 1/4}'' + \text{translation pure } E_{-1, 0, 0}$	A \longrightarrow B
2)	$4_{1/4, 3/4, 1/4}''$, $4_{1/4, 3/4, 1/4}'$, $E_{1/2, 1/2, 1/2}$ et $E_{0, -1, -1}$	A \longrightarrow C
3)	$2_{3/4, 1/4, 1/4}''$ et $E_{-1, 0, 0}$	C \longrightarrow D

Les coordonnées de A, B, C, D et leurs coordonnées relatives à l'ion de terre rare sis en (0, 1/4, 1/8), sont :

	coordonnées	coordonnées relatives	
A	x, y, z	ξ η ζ	
B	$y - \frac{1}{4}$, $x + \frac{1}{4}$, $-z + \frac{1}{4}$	η $\xi - \zeta$	$\left(\begin{array}{l} \xi = x \\ \eta = y - 1/4 \\ \zeta = z - 1/8 \end{array} \right)$
C	$-x$, $-y + \frac{1}{2}$, z	$-\xi$ $-\eta$ ζ	
D	$-y + \frac{1}{4}$, $-x + \frac{1}{4}$, $-z + \frac{1}{4}$	$-\eta$ $-\xi$ $-\zeta$	

(*) Pour les notations, voir D. SAINT-JAMES [4] .

A tout ion d'un élément M sis en (ξ, η, ζ) correspondent trois ions du même élément M sis en B, C, D.

Le champ cristallin agissant sur un ion du sous-réseau 1 (auquel appartient $(0, 1/4, 1/8)$) a donc la symétrie orthorombique D_2 , les axes binaires étant :

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(1, 1, 0), \quad \frac{1}{\sqrt{2}}(1, -1, 0), \quad (001)$$

on tirerait des conclusions équivalentes pour les autres sous-réseaux.

Appendice B

PROPRIETES DE TRANSFORMATION DES FACTEURS \vec{g}

Nous allons montrer que les facteurs \vec{g}^{ij} du chapitre II se transforment comme des tenseurs. Pour cela nous utilisons les deux lemmes suivants :

Lemme A :

Appliquons une rotation R d'angles d'Euler α, β, γ . Les doublets de Kramers $|a_p\rangle$ et $|\bar{a}_p\rangle$ sont transformés en $|b_p\rangle = R|a_p\rangle$, $|\bar{b}_p\rangle = R|\bar{a}_p\rangle$. En général $|b_p\rangle$ et $|\bar{b}_p\rangle$ ne sont pas états propres du même hamiltonien, mais sont états propres de l'hamiltonien d'un ion dont l'environnement s'obtient à partir de celui de l'ion de départ par application de la rotation R.

Au lieu des états $|b_p\rangle$ et $|\bar{b}_p\rangle$ nous pouvons choisir comme état de base

$$|c_p\rangle = D^{1/2}(\alpha\beta\gamma)_{1/2,1/2} |b_p\rangle + D^{1/2}(\alpha\beta\gamma)_{-1/2,1/2} |\bar{b}_p\rangle \quad (B.1)$$

$$|\bar{c}_p\rangle = D^{1/2}(\alpha\beta\gamma)_{1/2,-1/2} |b_p\rangle + D^{1/2}(\alpha\beta\gamma)_{-1/2,-1/2} |\bar{b}_p\rangle$$

avec

$$D^{1/2}(\alpha\beta\gamma) = \begin{pmatrix} e^{i\alpha/2} \cos \frac{\beta}{2} e^{i\gamma/2} & e^{i\alpha/2} \sin \frac{\beta}{2} e^{-i\gamma/2} \\ -e^{-i\alpha/2} \sin \frac{\beta}{2} e^{i\gamma/2} & e^{-i\alpha/2} \cos \frac{\beta}{2} e^{-i\gamma/2} \end{pmatrix} \quad (\text{B.2})$$

$|b_p\rangle$, $|b_p^- \rangle$, $|c_p\rangle$ et $|\bar{c}_p\rangle$ sont conjugués de Kramers puisque toute rotation R et toute combinaison linéaire du type $D^{1/2}$ commute avec l'opérateur de reversement du sens du temps.

Le moment magnétique se transforme selon la formule

$$m_p = \sum_q T_{pq} m_p' \quad (\text{B.3})$$

où

$$T = \begin{pmatrix} \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \alpha \sin \gamma & -(\sin \alpha \cos \beta \cos \gamma + \cos \alpha \sin \gamma) \sin \beta \cos \gamma & \\ \cos \alpha \sin \beta \sin \gamma + \sin \alpha \sin \gamma & -(\sin \alpha \cos \beta \sin \gamma - \cos \alpha \cos \gamma) \sin \beta \sin \gamma & \\ -\cos \alpha \sin \beta & \sin \alpha \sin \beta & \cos \beta \end{pmatrix} \quad (\text{B.4})$$

on a évidemment :

$$\begin{aligned} \langle b_i | \vec{m}' | b_j \rangle &= -\langle \bar{b}_i | \vec{m}' | \bar{b}_j \rangle = \langle a_i | \vec{m}' | a_j \rangle = -\langle \bar{a}_i | \vec{m}' | \bar{a}_j \rangle \\ \langle b_i | \vec{m}' | \bar{b}_j \rangle &= \langle \bar{b}_i | \vec{m}' | b_j \rangle^* = \langle a_i | \vec{m}' | \bar{a}_j \rangle = \langle \bar{a}_i | \vec{m}' | a_j \rangle^* \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Les éléments de matrice de \vec{m} dans les doublets de Kramers $|a_i\rangle$ et $|a_j\rangle$ peuvent être obtenus à partir de la formule :

$$\vec{m} = - \mu_B \vec{g}^{ij} \cdot \vec{S}' \quad (\text{B.6})$$

De même les éléments de matrice de \vec{m} (dans le même système d'axe) dans les doublets de Kramers $|c_i\rangle$ et $|c_j\rangle$ peuvent être obtenus à partir de la formule :

$$\vec{m} = - \mu_B \vec{g}^{ij'} \cdot \vec{S}' \quad (\text{B.7})$$

$\vec{g}^{ij'}$ s'obtient à partir de \vec{g}^{ij} en écrivant que \vec{g}^{ij} se transforme comme un tenseur dans la rotation \vec{R} , c'est-à-dire :

$$g_{pq}^{ij'} = \sum_{r,s=x,y,z} g_{rs}^{ij} T_{pr} T_{qs} \quad (\text{B.8})$$

La formule (B.8) résulte directement des équations (B.5)

Lemme B :

Si nous effectuons une rotation d'axes R, le moment magnétique dans le nouveau système d'axes, \vec{m}' , s'obtient à partir de \vec{m} par l'expression

$$m'_p = \sum_q T_{pq} m_q \quad (\text{B.9})$$

T est donné par (B.3).

Si au lieu de $|a_i\rangle$ et $|\bar{a}_i\rangle$ nous utilisons des combinaisons linéaires $|c_i\rangle$ et $|\bar{c}_i\rangle$ avec les coefficients de (B.1), les éléments de matrice de \vec{m}' seront donnés par :

$$\vec{m}' = - \mu_B \vec{g}^{ij''} \cdot \vec{S}' \quad (\text{B.10})$$

$\vec{g}^{ij''}$ est obtenu à partir de \vec{g}^{ij} en écrivant que \vec{g}^{ij} se transforme comme un tenseur dans la rotation R

$$g_{pq}^{ij''} = \sum_{r,s} g_{rs}^{ij} T_{pr} T_{qs} \quad (\text{B.11})$$

La démonstration de (B.11) est analogue à celle de (B.8).

Pour l'ion 1, nous avons montré qu'avec le choix des fonctions d'onde (21) pour le doublet de Kramers $|a_i\rangle$ et $|\bar{a}_i\rangle$ les éléments de matrice de l'opérateur moment magnétique entre deux doublets E_i et E_j , dans le système d'axes orthorombiques, peuvent être représentés à l'aide d'un tenseur g effectif \vec{g}^{ij1} qui est diagonal et dont les éléments sont g_x^{ij} , g_y^{ij} , g_z^{ij} .

Si l'on veut définir \vec{g}^{ij} dans le système d'axes du cube, il faut introduire une nouvelle base $|c_i\rangle$ et $|\bar{c}_i\rangle$ pour le doublet de Kramers, que l'on obtient par une combinaison linéaire du type (B.1). Le tenseur \vec{g}^{ij1} s'obtient alors par la formule (B.11) où T

donnée par (B.9) est la matrice de transformation qui relie les composantes de \vec{m} dans le système d'axes orthorombique aux composantes de \vec{m}' dans le système d'axes cubiques. Les résultats sont donnés dans la première colonne de (42).

Si l'on fait un choix approprié des fonctions d'ondes de base des doublets de Kramers pour les ions des autres sous-réseaux α , (cf. (B.1)), l'équation (B.8) nous montre que le facteur \vec{g}^α se transforme comme un tenseur dans les opérations du groupe d'espace.

Pour obtenir les expressions (42), à partir de \vec{g}^{ij^1} , il suffit d'appliquer les relations (12) à \vec{g}^{ij^α} (au lieu de $\vec{A}^{\alpha\beta}$ en supprimant les indices β et β').

Appendice C

CALCUL DES SOLUTIONS DU PROBLEME LINEARISE

Les équations linéarisées (43) conduisent à un problème aux valeurs propres de dimensions (18x18) dont les vecteurs propres sont les aimantations des sous-réseaux $\vec{\mu}^\alpha$. Les coefficients de la matrice à diagonaliser sont des fonctions de $g_x, g_y, g_z, p_1, p_2, p_3, p_4, p_5, J_1, J_2, J_3$.

$$\mu_x^{(1)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_x^{(1)} + \frac{1}{2}(g_x^2 - g_y^2) H_y^{(1)} \right\} = 0$$

$$\mu_y^{(1)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_y^{(1)} + \frac{1}{2}(g_x^2 - g_y^2) H_x^{(1)} \right\} = 0$$

$$\mu_z^{(1)} \quad \lambda - \mu_B g_z^2 H_z^{(1)} = 0$$

$$\mu_x^{(2)} \quad \lambda - \mu_B g_z^2 H_x^{(2)} = 0$$

$$\mu_y^{(2)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_y^{(2)} + \frac{1}{2}(g_x^2 - g_y^2) H_z^{(2)} \right\} = 0$$

$$\mu_z^{(2)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_z^{(2)} + \frac{1}{2}(g_x^2 - g_y^2) H_y^{(2)} \right\} = 0$$

$$\mu_x^{(3)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_x^{(3)} + \frac{1}{2}(g_x^2 - g_y^2) H_z^{(3)} \right\} = 0$$

$$\mu_y^{(3)} \quad \lambda - \mu_B g_z^2 H_y^{(3)} = 0$$

$$\mu_z^{(3)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_z^{(3)} + \frac{1}{2}(g_x^2 - g_y^2) H_x^{(3)} \right\} = 0$$

$$\mu_x^{(4)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_x^{(4)} + \frac{1}{2}(g_y^2 - g_x^2) H_y^{(4)} \right\} = 0$$

(C.1)

$$\mu_y^{(4)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_y^{(4)} + \frac{1}{2}(g_y^2 - g_x^2) H_x^{(4)} \right\} = 0$$

$$\mu_z^{(4)} \quad \lambda - \mu_B g_z^2 H_z^{(4)} = 0$$

$$\mu_x^{(5)} \quad \lambda - \mu_B g_z^2 H_x^{(5)} = 0$$

$$\mu_y^{(5)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_y^{(5)} + \frac{1}{2}(g_y^2 - g_x^2) H_z^{(5)} \right\} = 0$$

$$\mu_z^{(5)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_z^{(5)} + \frac{1}{2}(g_y^2 - g_x^2) H_y^{(5)} \right\} = 0$$

$$\mu_x^{(6)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_x^{(6)} + \frac{1}{2}(g_y^2 - g_x^2) H_z^{(6)} \right\} = 0$$

$$\mu_y^{(6)} \quad \lambda - \mu_B g_z^2 H_y^{(6)} = 0$$

$$\mu_z^{(6)} \quad \lambda - \mu_B \left\{ \frac{1}{2}(g_x^2 + g_y^2) H_z^{(6)} + \frac{1}{2}(g_y^2 - g_x^2) H_x^{(6)} \right\} = 0$$

Les champs internes apparaissant dans (C.1) sont donnés par :

$$H_x^{(1)} = - \left[p_1 \mu_x^{(1)} + p_2 \mu_x^{(4)} + p_3 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} - 2\mu_x^{(3)} - 2\mu_x^{(6)}) + p_4 (\mu_y^{(2)} + \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} + \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)} - \mu_y^{(5)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)}) \right] + J_1 \mu_x^{(1)} + J_2 \mu_x^{(4)} + J_3 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)})$$

$$H_y^{(1)} = - \left[p_1 \mu_y^{(1)} + p_2 \mu_y^{(4)} + p_3 (\mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} - 2\mu_y^{(2)} - 2\mu_y^{(5)}) + p_4 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)} + \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)}) \right] + J_1 \mu_y^{(1)} + J_2 \mu_y^{(4)} + J_3 (\mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)} + \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)})$$

$$H_z^{(1)} = - \left[-2p_1 \mu_z^{(1)} - 2p_2 \mu_z^{(4)} + p_3 (\mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)}) + p_4 (\mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)} + \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_x^{(2)} - \mu_x^{(5)} + \mu_y^{(3)} - \mu_y^{(6)}) \right] + J_1 \mu_z^{(1)} + J_2 \mu_z^{(4)} + J_3 (\mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)})$$

$$H_x^{(2)} = - \left[-2p_1 \mu_x^{(2)} - 2p_2 \mu_x^{(5)} + p_3 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)}) + p_4 (\mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} + \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(1)} - \mu_z^{(4)} + \mu_y^{(3)} - \mu_y^{(6)}) \right] + J_1 \mu_x^{(2)} + J_2 \mu_x^{(5)} + J_3 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)})$$

$$H_y^{(2)} = - \left[p_1 \mu_y^{(2)} + p_2 \mu_y^{(5)} + p_3 (\mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} - 2\mu_y^{(1)} - 2\mu_y^{(4)}) + p_4 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)} + \mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)}) \right] + J_1 \mu_y^{(2)} + J_2 \mu_y^{(5)} + J_3 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)})$$

$$H_z^{(2)} = - \left[p_1 \mu_z^{(2)} + p_2 \mu_z^{(5)} + p_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} - 2\mu_z^{(3)} - 2\mu_z^{(6)}) + p_4 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} + \mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)}) \right] + J_1 \mu_z^{(2)} + J_2 \mu_z^{(5)} + J_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)})$$

$$H_x^{(3)} = - \left[p_1 \mu_x^{(3)} + p_2 \mu_x^{(6)} + p_3 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} - 2\mu_x^{(1)} - 2\mu_x^{(4)}) + p_4 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} + \mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} + \mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)}) \right] + J_1 \mu_x^{(3)} + J_2 \mu_x^{(6)} + J_3 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)})$$

$$H_y^{(3)} = - \left[-2p_1 \mu_y^{(3)} - 2p_2 \mu_y^{(6)} + p_3 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)}) + p_4 (\mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} + \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)}) + \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(1)} - \mu_z^{(4)} + \mu_x^{(2)} - \mu_x^{(5)}) \right] + J_1 \mu_y^{(3)} + J_2 \mu_y^{(6)} + J_3 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)})$$

$$H_z^{(3)} = - \left[p_1 \mu_z^{(3)} + p_2 \mu_z^{(6)} + p_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} - 2\mu_z^{(2)} - 2\mu_z^{(5)}) + p_4 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} + \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)}) \right] + J_1 \mu_z^{(3)} + J_2 \mu_z^{(6)} + J_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} + \mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)})$$

$$H_x^{(4)} = - \left[p_1 \mu_x^{(4)} + p_2 \mu_x^{(1)} + p_3 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} - 2\mu_x^{(3)} - 2\mu_x^{(6)}) + p_4 (-\mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)} - \mu_y^{(3)} - \mu_y^{(6)} + \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(5)} - \mu_z^{(2)}) \right] + J_1 \mu_x^{(4)} + J_2 \mu_x^{(1)} + J_3 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)})$$

$$H_y^{(4)} = - \left[p_1 \mu_y^{(4)} + p_2 \mu_y^{(1)} + p_3 (\mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} - 2\mu_y^{(2)} - 2\mu_y^{(5)}) + p_4 (-\mu_x^{(2)} - \mu_x^{(5)} - \mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)} + \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(6)} - \mu_z^{(3)}) \right] + J_1 \mu_y^{(4)} + J_2 \mu_y^{(1)} + J_3 (\mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)} + \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)})$$

$$H_z^{(4)} = - \left[-2p_1 \mu_z^{(4)} - 2p_2 \mu_z^{(1)} + p_3 (\mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)}) + p_4 (\mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)} + \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_x^{(5)} - \mu_x^{(2)} + \mu_y^{(6)} - \mu_y^{(3)}) \right] + J_1 \mu_z^{(4)} + J_2 \mu_z^{(1)} + J_3 (\mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)})$$

$$H_x^{(5)} = - \left[-2p_1 \mu_x^{(5)} - 2p_2 \mu_x^{(2)} + p_3 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)}) + p_4 (\mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} + \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_z^{(4)} - \mu_z^{(1)} + \mu_y^{(6)} - \mu_y^{(3)}) \right] + J_1 \mu_x^{(5)} + J_2 \mu_x^{(2)} + J_3 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)})$$

$$H_y^{(5)} = - \left[p_1 \mu_y^{(5)} + p_2 \mu_y^{(2)} + p_3 (\mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} - 2\mu_y^{(1)} - 2\mu_y^{(4)}) + p_4 (-\mu_z^{(1)} - \mu_z^{(4)} - \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)} - \mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)}) \right. \\ \left. + p_5 (\mu_x^{(6)} - \mu_x^{(3)}) \right] + J_1 \mu_y^{(5)} + J_2 \mu_y^{(2)} + J_3 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)})$$

$$\begin{aligned}
 H_z^{(5)} &= - \left[p_1 \mu_z^{(5)} + p_2 \mu_z^{(2)} + p_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} - 2\mu_z^{(3)} - 2\mu_z^{(6)}) + p_4 (-\mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} - \mu_y^{(3)} - \mu_y^{(6)} + \mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)}) \right. \\
 &\quad \left. + p_5 (\mu_x^{(4)} - \mu_x^{(1)}) \right] + J_1 \mu_z^{(5)} + J_2 \mu_z^{(2)} + J_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)}) \\
 H_x^{(6)} &= - \left[p_1 \mu_x^{(6)} + p_2 \mu_x^{(3)} + p_3 (\mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} - 2\mu_x^{(1)} - 2\mu_x^{(4)}) + p_4 (-\mu_z^{(1)} - \mu_z^{(4)} - \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)} + \mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)}) \right. \\
 &\quad \left. + p_5 (\mu_y^{(5)} - \mu_y^{(2)}) \right] + J_1 \mu_x^{(6)} + J_2 \mu_x^{(3)} + J_3 (\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)}) \\
 H_y^{(6)} &= - \left[-2p_1 \mu_y^{(6)} - 2p_2 \mu_y^{(3)} + p_3 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)}) + p_4 (\mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} + \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)}) \right. \\
 &\quad \left. + p_5 (\mu_z^{(4)} - \mu_z^{(1)} + \mu_x^{(5)} - \mu_x^{(2)}) \right] + J_1 \mu_y^{(6)} + J_2 \mu_y^{(3)} + J_3 (\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)}) \\
 H_z^{(6)} &= - \left[p_1 \mu_z^{(6)} + p_2 \mu_z^{(3)} + p_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} - 2\mu_z^{(2)} - 2\mu_z^{(5)}) + p_4 (-\mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} - \mu_x^{(2)} - \mu_x^{(5)} + \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)}) \right. \\
 &\quad \left. + p_5 (\mu_y^{(4)} - \mu_y^{(1)}) \right] + J_1 \mu_z^{(6)} + J_2 \mu_z^{(3)} + J_3 (\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} + \mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)})
 \end{aligned}
 \tag{C.2}$$

Pour résoudre ce système d'équations, qui a première vue est fort complexe, on peut essayer d'utiliser des considérations de symétrie pour se faire une idée de la forme des solutions.

Rappelons que chaque sous-réseau α peut être caractérisé par la donnée de ses axes orthorombiques $X_\alpha, Y_\alpha, Z_\alpha$ où $Z_\alpha = A_4^\alpha$ est parallèle à un des axes quaternaires du cube.

Pour les sites 1, 2, 3, 4, 5, 6 Z_α est parallèle à l'un des axes quaternaires respectivement. Les solutions simples qui viennent à l'idée sont de deux sortes :

a) les aimantations d'un sous-réseau α sont parallèles à l'axe Z_α

b) les aimantations d'un sous-réseau α sont perpendiculaires à l'axe Z_α .

Solution du type A.

Nous cherchons donc des solutions telles que :

$$\mu_x^{(1)} = \mu_y^{(1)} = \mu_y^{(2)} = \mu_z^{(2)} = \mu_x^{(3)} = \mu_z^{(3)} = \mu_x^{(4)} = \mu_y^{(4)} = \mu_y^{(5)} = \mu_z^{(5)} = \mu_x^{(6)} = \mu_z^{(6)} = 0 \quad (C.3)$$

Les équations (C.1) et (C.2) nous imposent que :

$$\mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} = 0 \quad , \quad \mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} = 0 \quad , \quad \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} = 0 \quad (C.4)$$

Nous trouvons ici des solutions antiferromagnétiques (type A), Trois solutions linéairement indépendantes existent. On les écrira sous la forme

$$\mu_z^{(1)} = \alpha \quad , \quad \mu_z^{(4)} = -\alpha \quad , \quad (C.5)$$

α, β, σ seront donnés par la solution du système d'équations linéaires et homogènes (la valeur propre est désignée par λ).

$$\begin{aligned} \alpha [\lambda + g_z^2 \mu_B^2 (-2p_1 + 2p_2 - J_1 + J_2)] + 2p_5 g_z^2 \mu_B^2 \beta + 2p_5 g_z^2 \mu_B^2 \sigma &= 0 \\ 2p_5 g_z^2 \mu_B^2 \alpha + \beta [\lambda + g_z^2 \mu_B^2 (-2p_1 + 2p_2 - J_1 + J_2)] + 2p_5 g_z^2 \mu_B^2 \sigma &= 0 \quad (C.6) \\ 2p_5 g_z^2 \mu_B^2 \alpha + 2p_5 g_z^2 \mu_B^2 \beta + \sigma [\lambda + g_z^2 \mu_B^2 (-2p_1 + 2p_2 - J_1 + J_2)] &= 0 \end{aligned}$$

En annulant le déterminant des coefficients, on trouve comme valeurs propres :

$$\lambda_0^{(1)} = g_z^2 \mu_B^2 \left\{ 2(p_1 - p_2 - 2p_5) + J_1 - J_2 \right\} \quad (C.7a)$$

$$\lambda_0^{(2)} = g_z^2 \mu_B^2 \left\{ 2(p_1 - p_2 + p_5) + J_1 - J_2 \right\} \quad (C.7b)$$

Comme p_5 est une quantité négative $\lambda_0^{(1)} > \lambda_0^{(2)}$, nous ne retiendrons que la solution (C.7a). La température de Néel sera alors :

$$T_N = \frac{\mu_B^2 g_z^2}{4k_B} \left\{ 2(p_1 - p_2 - 2p_5) + J_1 - J_2 \right\} \quad (C.8)$$

Le vecteur propre correspondant à la valeur propre $\lambda_0^{(1)}$ est tel, que :

$$\alpha = \beta = \gamma \quad (C.9)$$

et par conséquent

$$\mu_z^{(1)} = \mu_x^{(2)} = \mu_y^{(3)} = -\mu_z^{(4)} = -\mu_x^{(5)} = -\mu_y^{(6)} = \alpha \quad (C.10)$$

les autres composantes des aimantations étant nulles.

Si on utilise pour les aimantations la forme (C.10), les équations générales (51) fournissent alors pour $0 < T < T_N$, la solution antiferromagnétique de type A (voir formules (58) et (59)).

Solution du type B

Pour ce type de solutions on aura :

$$\mu_z^{(1)} = \mu^{(4)} = \mu_x^{(2)} = \mu_x^{(5)} = \mu_y^{(3)} = \mu_y^{(6)} = 0 \quad (C.11)$$

Les équations (C.1) et (C.2) imposent en plus que :

$$\mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} + \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)} = 0$$

$$\mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} + \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)} = 0 \quad (C.12a)$$

$$\mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} + \mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)} = 0$$

$$\mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)} + \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)} = 0$$

$$\mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} + \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)} = 0 \quad (C.12b)$$

$$\mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} + \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)} = 0$$

On voit qu'il existe six solutions de ce type linéairement indépendantes. Les équations (C.12a) montrent que toutes ces solutions sont antiferromagnétiques (antiferromagnétisme B)

Si on définit les paramètres a,b,c,d,e,f par

$$\begin{aligned} \mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} &= a, & \mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} &= b, & \mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} &= c \\ \mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} &= d, & \mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} &= e, & \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)} &= f \end{aligned} \quad (C.13)$$

les aimantations prendront la forme

$\alpha =$	1	2	3	4	5	6	
$\mu_x^{(\alpha)}$	$\frac{1}{2}(a+d)$	0	$\frac{1}{2}(-a-f)$	$\frac{1}{2}(a-d)$	0	$\frac{1}{2}(a+f)$	
$\mu_y^{(\alpha)}$	$\frac{1}{2}(b+e)$	$\frac{1}{2}(-b+f)$	0	$\frac{1}{2}(b-e)$	$\frac{1}{2}(-b-f)$	0	(C.14)
$\mu_z^{(\alpha)}$	0	$\frac{1}{2}(c-d)$	$\frac{1}{2}(-c-e)$	0	$\frac{1}{2}(+c+d)$	$\frac{1}{2}(-c+e)$	

Les paramètres a,b,c,d,e,f seront les vecteurs propres d'un problème aux valeurs propres. On remarquera que si on substitue la forme (C.14) dans les équations (C.1) et (C.4) le problème aux valeurs propres se factorise en trois problèmes identiques. Il vient :

$$\begin{aligned} a[\lambda + k_1] + ek_2 &= 0 & b[\lambda+k_1] + dk_2 &= 0 & c[\lambda+k_1] + fk_2 &= 0 \\ ak_3 + e[\lambda+k_4] &= 0 & dk_3 + b[\lambda+k_4] &= 0 & ck_3 + f[\lambda+k_4] &= 0 \end{aligned} \quad (C.15)$$

où

$$\begin{aligned}
 k_1 &= \mu_B^2 \left[g_x^2 \left(\frac{1}{2}p_1 + \frac{1}{2}p_2 + 2p_3 - \frac{1}{2}J_1 - \frac{1}{2}J_2 + J_3 - p_4 \right) + g_y^2 \left(\frac{1}{2}p_1 + \frac{1}{2}p_2 + 2p_3 - \frac{1}{2}J_1 - \frac{1}{2}J_2 + J_3 + p_4 \right) \right] \\
 k_2 &= \mu_B^2 \left[g_x^2 \left(\frac{1}{2}p_1 - \frac{1}{2}p_2 - p_5 - \frac{1}{2}J_1 + \frac{1}{2}J_2 - p_4 \right) + g_y^2 \left(-\frac{1}{2}p_1 + \frac{1}{2}p_2 + p_5 + \frac{1}{2}J_1 - \frac{1}{2}J_2 - p_4 \right) \right] \\
 k_3 &= \mu_B^2 \left[g_x^2 \left(\frac{1}{2}p_1 + \frac{1}{2}p_2 + 2p_3 - \frac{1}{2}J_1 - \frac{1}{2}J_2 + J_3 - p_4 \right) + g_y^2 \left(-\frac{1}{2}p_1 - \frac{1}{2}p_2 - 2p_3 + \frac{1}{2}J_1 + \frac{1}{2}J_2 - J_3 - p_4 \right) \right] \\
 k_4 &= \mu_B^2 \left[g_x^2 \left(\frac{1}{2}p_1 - \frac{1}{2}p_2 - p_5 - \frac{1}{2}J_1 + \frac{1}{2}J_2 - p_4 \right) + g_y^2 \left(\frac{1}{2}p_1 - \frac{1}{2}p_2 - p_5 - \frac{1}{2}J_1 + \frac{1}{2}J_2 + p_4 \right) \right]
 \end{aligned} \tag{C.16}$$

On voit que l'on obtient deux valeurs propres triplement dégénérées. Les valeurs propres sont données par :

$$\begin{aligned}
 \lambda &= \mu_B^2 \left[-\frac{1}{2}g_x^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 - 2p_4) - \frac{1}{2}g_y^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 + 2p_4) \right. \\
 &\quad \left. \pm \frac{1}{2} \left\{ g_x^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 - 2p_4) + g_y^2 (p_1 + 2p_3 - p_5 - J_1 + J_3 + 2p_4) \right\}^2 \right. \\
 &\quad \left. + 4g_x^2 g_y^2 \left\{ 4p_4^2 - (p_1 + p_2 + 4p_3 - J_1 - J_2 + 2J_3)(p_1 - p_2 - 2p_5 - J_1 + J_2) \right\} \right]^{1/2}
 \end{aligned} \tag{C.17}$$

La plus grande racine de (C.17) est positive, si on reporte cette valeur propre dans l'équation (45) on obtient la température de Néel (48).

Les vecteurs propres sont tels que

$$\frac{e}{a} = - \frac{\left[\frac{4kT}{\mu_B N} + g_x^2 (p_1 + p_2 + 4p_3 - J_1 - J_2 + 2J_3 - 2p_4) \right]}{\left[\frac{4kT}{\mu_B N} + g_x^2 (p_1 - p_2 - 2p_5 - J_1 + J_2 - 2p_4) \right]} \quad (C.18)$$

$$\frac{(a-e) g_y}{(a+e) g_x} = - \left[\frac{4kT}{\mu_B N} + \mu_B g_x^2 (p_1 + 2p_3 - 2p_4 - p_5 - J_1 + J_3) \right] \quad (C.19)$$

La solution correspondant à la température de Néel (48) est évidemment telle que

$$\frac{e}{a} = \frac{d}{b} = \frac{f}{c} \quad (C.20)$$

Quatre possibilités s'offrent alors :

$$\begin{array}{llll} \text{a)} & b=c=a & \text{b)} & b=-a \quad c=a \\ \text{c)} & b=a \quad c=-a & \text{d)} & b=-a \quad c=-a \end{array} \quad (C.21)$$

$$\begin{array}{llll} d=f=e & d=-e \quad f=e & d=e \quad f=-e & d=-e \quad f=-e \end{array}$$

et les aimantations deviennent :

	a	b	c	d	
$\mu_x^{(1)}$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	
$\mu_y^{(1)}$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	
$\mu_y^{(2)}$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	
$\mu_z^{(2)}$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	
$\mu_x^{(3)}$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	
$\mu_z^{(3)}$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	(C.22)
$\mu_x^{(4)}$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	
$\mu_y^{(4)}$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	
$\mu_y^{(5)}$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	
$\mu_z^{(5)}$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(a-e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	
$\mu_x^{(6)}$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	$\frac{1}{2}(-a-e)$	
$\mu_z^{(6)}$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(-a+e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	$\frac{1}{2}(a+e)$	

En réalité, comme attendu, seules trois solutions sont linéairement indépendantes et on a :

$$(a) + (d) - (b) + (c) = 0 \quad (C.23)$$

Nous avons cependant donné la forme (C.22) qui est plus symétrique et parce que si une combinaison linéaire quelconque des quatre possibilités a) b) c) d) est solution du problème linéarisé il n'en sera plus de même pour le problème général des

équations (51) avec $0 < T < T_N$.

On peut cependant vérifier que les quatre types a), b), c), d), conduisent à une solution des équations générales (51).

Si on écrit les aimantations des sous-réseaux sous la forme (54) que l'on obtient à partir de (C.22) en remplaçant $\frac{1}{2}(a+e)$ par ρ et $\frac{1}{2}(a-e)$ par σ , on obtiendra finalement les équations (61). La solution qui apparaîtra, peut être déterminée à partir de l'équation (62) qui est équivalente à l'équation (C.19).

Autres solutions

Ces solutions auront nécessairement une aimantation ayant une composante parallèle à Z_α et une composante perpendiculaire à Z_α non nulle (ferrimagnétisme de type C). Il existera neuf solutions linéairement indépendantes de ce type. On pourra les déterminer en écrivant quelles sont orthogonales aux solutions des types A et B. Comme ces solutions doivent en particulier, être orthogonales à toute combinaison linéaire des aimantations de la forme (C.5) et (C.14), on obtient les conditions :

$$\mu_z^{(1)} - \mu_z^{(4)} = \mu_x^{(2)} - \mu_x^{(5)} = \mu_y^{(3)} - \mu_y^{(6)} = 0 \quad (C.24)$$

$$\begin{aligned}
 \mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} &= \mu_x^{(3)} + \mu_x^{(6)} \\
 \mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} &= \mu_y^{(2)} + \mu_y^{(5)} \\
 \mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} &= \mu_z^{(3)} + \mu_z^{(6)} \\
 \mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} &= \mu_z^{(2)} - \mu_z^{(5)} \\
 \mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} &= \mu_z^{(3)} - \mu_z^{(6)} \\
 \mu_y^{(2)} - \mu_y^{(5)} &= \mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)}
 \end{aligned} \tag{C.25}$$

Introduisons les paramètres $a, b, c, d, e, f, l, m, n$, tels que :

$$\begin{aligned}
 \mu_x^{(1)} + \mu_x^{(4)} = a, \quad \mu_y^{(1)} + \mu_y^{(4)} = b, \quad \mu_z^{(2)} + \mu_z^{(5)} = c, \quad \mu_x^{(1)} - \mu_x^{(4)} = d, \quad \mu_y^{(1)} - \mu_y^{(4)} = e \\
 \mu_x^{(3)} - \mu_x^{(6)} = f, \quad \mu_z^{(1)} + \mu_z^{(4)} = l, \quad \mu_x^{(2)} + \mu_x^{(5)} = m, \quad \mu_y^{(3)} + \mu_y^{(6)} = n
 \end{aligned} \tag{C.26}$$

Les aimantations s'écriront :

$\alpha =$	1	2	3	4	5	6	
$\mu_x^{(\alpha)}$	$\frac{1}{2}(a+d)$	$\frac{1}{2}(m)$	$\frac{1}{2}(a+f)$	$\frac{1}{2}(a-d)$	$\frac{1}{2}m$	$\frac{1}{2}(a-f)$	
$\mu_y^{(\alpha)}$	$\frac{1}{2}(b+e)$	$\frac{1}{2}(b+f)$	$\frac{1}{2}n$	$\frac{1}{2}(b-e)$	$\frac{1}{2}(b-f)$	$\frac{1}{2}n$	(C.27)
$\mu_z^{(\alpha)}$	$\frac{1}{2}l$	$\frac{1}{2}(c+d)$	$\frac{1}{2}(c+e)$	$\frac{1}{2}l$	$\frac{1}{2}(c-d)$	$\frac{1}{2}(c-e)$	

Les paramètres $a, b, c, d, e, f, l, m, n$ s'obtiendront d'un problème aux valeurs propres. Mais si on substitue (C.27) dans

(C.1) et (C.2), ce problème se factorise en trois problèmes identiques : c'est-à-dire à trois valeurs propres triplement dégénérées

$$\begin{aligned}
 (\lambda+k_1)a+k_2m+k_3e=0 & \quad (\lambda+k_1)b+k_2n+k_3d=0 & \quad (\lambda+k_1)c+k_2l+k_3f=0 \\
 k_4a+(\lambda+k_5)m+k_6e=0 & \quad k_4b+(\lambda+k_5)n+k_6d=0 & \quad k_4c+(\lambda+k_5)l+k_6f=0 & \quad (C.28) \\
 k_7a+k_8m+(\lambda+k_9)e=0 & \quad k_7b+k_8n+(\lambda+k_9)d=0 & \quad k_7c+k_8l+(\lambda+k_9)f=0
 \end{aligned}$$

où

$$\begin{aligned}
 k_1 &= \mu_B^2 \left\{ g_x^2(\alpha+p_4) + g_y^2(\alpha-p_4) \right\} \\
 k_2 &= \mu_B^2 \left\{ g_x^2(\sigma+p_4) + g_y^2(\sigma-p_4) \right\} \\
 k_3 &= \mu_B^2 \left\{ g_x^2(\beta+p_4) + g_y^2(-\beta+p_4) \right\} \\
 k_4 &= 4\mu_B^2 g_z^2 \sigma \\
 k_5 &= -\delta g_z^2 \mu_B^2 \\
 k_6 &= 4p_4 g_z^2 \mu_B^2 \\
 k_7 &= \mu_B^2 \left\{ g_x^2(\alpha+p_4) + g_y^2(-\alpha+p_4) \right\} \\
 k_8 &= \mu_B^2 \left\{ g_x^2(\sigma+p_4) + g_y^2(-\sigma+p_4) \right\} \\
 k_9 &= \mu_B^2 \left\{ g_x^2(\beta+p_4) + g_y^2(\beta-p_4) \right\}
 \end{aligned} \tag{C.29}$$

où α β σ sont donnés par

$$\alpha = \frac{1}{2}p_1 + \frac{1}{2}p_2 - 2p_3 - \frac{1}{2}J_1 - \frac{1}{2}J_2 - J_3$$

$$\beta = \frac{1}{2}p_1 - \frac{1}{2}p_2 + p_5 - \frac{1}{2}J_1 + \frac{1}{2}J_2$$

(C.30)

$$\sigma = p_3 - J_3$$

$$\delta = 2p_1 + 2p_2 + J_1 + J_2$$

On obtient alors l'équation séculaire

$$\lambda^3 + \mu_B^2 \lambda^2 d_1 + \mu_B^4 \lambda d_2 + \mu_B^6 d_3 = 0 \quad (C.31)$$

d_1, d_2, d_3 sont données par l'équation (50).

L'équation (45) mènera alors à l'équation (49) pour la température de Néel.

Le vecteur propre correspondant à la température T_N est tel que :

$$\frac{a+e}{n} = - \left(\frac{a_1 k_{\beta N}^T + a_2}{16(k_{\beta N}^T)^2 + a_3 k_{\beta N}^T + a_4} \right) \quad (C.32)$$

$$\frac{a-e}{m} = - \left(\frac{a_5 k_{\beta N}^T + a_6}{16(k_{\beta N}^T)^2 + a_3 k_{\beta N}^T + a_4} \right)$$

où les coefficients $a_1, a_2, a_3, a_4, a_5, a_6$ sont donnés par (66).

Les composantes des vecteurs propres doivent être tels que :

$$a : e : m = b : d : n = c : f : l \quad (C.33)$$

Quatre possibilités apparaissent alors, ce sont :

a)	$b = a$	$c = a$	b)	$b = -a$	$c = a$
	$d = e$	$f = e$		$d = -e$	$f = e$
	$n = m$	$l = m$		$n = -m$	$l = m$

(C.34)

c)	$b = a$	$c = -a$	d)	$d = -a$	$c = -a$
	$d = e$	$f = -e$		$d = -e$	$f = -e$
	$n = m$	$l = -m$		$n = -m$	$l = -m$

et les aimantations ont la forme :

$$\begin{array}{l}
 \mu_x^{(1)} \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \\
 \mu_y^{(1)} \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \\
 \mu_z^{(1)} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \\
 \mu_\lambda^{(2)} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \\
 \mu_y^{(2)} \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \\
 \mu_z^{(2)} \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \\
 \mu_\lambda^{(3)} \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \\
 \mu_y^{(3)} \quad \frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \\
 \mu_z^{(3)} \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \\
 \mu_x^{(4)} \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \\
 \mu_y^{(4)} \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \\
 \mu_z^{(4)} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \\
 \mu_x^{(5)} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \\
 \mu_y^{(5)} \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \\
 \mu_z^{(5)} \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \quad \frac{1}{2}(-a+e) \\
 \mu_x^{(6)} \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \quad \frac{1}{2}(a+e) \\
 \mu_y^{(6)} \quad \frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \quad \frac{1}{2^m} \quad -\frac{1}{2^m} \\
 \mu_z^{(6)} \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(a-e) \quad \frac{1}{2}(-a-e) \quad \frac{1}{2}(-a-e)
 \end{array} \tag{C.35}$$

Dans le problème linéarisé seules trois solutions sont linéairement indépendantes, car :

$$(a)+(d)-(b)-(c) = 0 \quad (C.36)$$

On ne peut cependant utiliser la forme (C.35) des aimantations pour des températures $0 < T < T_N$. En effet la composante de l'aimantation du sous-réseau α sur la direction Z_α vaut $\pm m$, et la composante perpendiculaire à l'axe Z_α est dirigée selon l'un des axes binaires X_α ou Y_α . Cette dernière composante a pour longueur, soit $\frac{1}{2}(a-e)\sqrt{2}$ soit $\frac{1}{2}(a+e)\sqrt{2}$. Ces deux cas sont notablement différents. En particulier l'angle θ entre l'aimantation et l'axe Z_α est différent selon que la composante perpendiculaire vaut $\frac{1}{2}(a-e)\sqrt{2}$ ou $\frac{1}{2}(a+e)\sqrt{2}$. Au zéro absolu, où l'aimantation est saturée dans sa direction la composante sur Z_α sera différente pour les deux possibilités.

On devra donc dans le tableau (C.35) remplacer $\frac{1}{2}m$ par μ si la composante perpendiculaire à l'axe Z_α a pour longueur $\frac{1}{2}(a+e)\sqrt{2}$, et $\frac{1}{2}m$ par ν dans le cas contraire.

Si l'on pose $\frac{1}{2}(a+e) = \mathcal{K}$ et $\frac{1}{2}(a-e) = \lambda$, on pourra dresser le tableau des aimantations sous la forme (54). Nous avons vu que les équations (51) conduisent alors aux équations (64). Nous remarquons également que les équations (65) sont équivalentes aux équations (C.32).

Remarque

Le problème linéarisé (43) nous a suggéré d'écrire les aimantations sous la forme (54). S'il est possible que de telles solutions apparaissent en fait nous n'avons pas démontré que le problème général sous sa forme (51) n'a pas d'autres solutions que celles de la forme (54).

De plus nous ne pouvons démontrer que les solutions de la forme (54) se raccordent à celles qui donnent la température de transition la plus élevée, c'est-à-dire si les solutions de la forme (54) sont les solutions stables pour $0 < T < T_N$. La démonstration de cette propriété semble délicate. On peut cependant penser que les solutions proposées restent les plus stables. Au zéro absolu par exemple, pour les solutions antiferromagnétiques de type B et ferrimagnétiques de type C, les composantes des aimantations et des champs internes des différents sous-réseaux qui sont perpendiculaires à l'axe Z_α sont parallèles entre elles. Cette circonstance semble favorable à un minimum de l'énergie libre.

Manuscrit reçu le 28 octobre 1964

FIN