

CEA 2336 — HARTMANN-BOUFRON Française

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA RESONANCE NUCLEAIRE DANS LES MILIEUX MAGNETIQUES (1963).**

**Sommaire :**

On se propose d'interpréter les résultats d'expériences de résonance magnétique nucléaire faites par divers auteurs sur des composés ferro et ferrimagnétiques du groupe du fer. Les problèmes abordés sont les suivants : effets des champs dipolaires et de l'anisotropie de structure hyperfine ; intensité des signaux ; déplacement de fréquence dû à l'interaction de Suhl-Nakamura entre spins nucléaires ; relaxation nucléaire et résonance ferrimagnétique dans les échantillons monodomains de grenat de fer et d'yttrium impur ; relaxation nucléaire dans les parois de Bloch des isolants. Les résultats des calculs sont généralement en bon accord avec l'expérience.

92 pages

1964

CEA 2336 — HARTMANN-BOUFRON Française

**CONTRIBUTION TO THE STUDY OF NUCLEAR RESONANCE IN MAGNETIC MEDIA (1963).**

**Summary :**

An attempt is made to interpret the results of nuclear magnetic resonance experiments made by various workers on ferro and ferrimagnetic compounds of the iron group. The problems encountered are the following : effects of the dipolar fields and the hyperfine structure anisotropy ; signal intensity ; frequency pulling due to the Suhl-Nakamura interaction between nuclear spins ; nuclear relaxation and ferrimagnetic resonance in single domain samples of impure YIG ; nuclear relaxation in the Bloch walls of insulators. The results of our calculations are generally in good agreement with experiment.

92 pages

1964

PREMIER MINISTRE  
COMMISSARIAT A  
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

C E A - R 2336

**CONTRIBUTION  
A L'ÉTUDE DE LA RÉSONANCE NUCLÉAIRE  
DANS LES MILIEUX MAGNÉTIQUES**

par

Françoise HARTMANN née BOUTRON

Rapport C. E. A. - R 2336

**1964**

CENTRE D'ÉTUDES  
NUCLÉAIRES DE SACLAY



# THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES  
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

**Françoise HARTMANN née BOUTRON**

PREMIÈRE THÈSE

Contribution à l'étude de la résonance nucléaire  
dans les milieux magnétiques

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 13 juin 1963 devant la Commission d'Examen

MM. KASTLER

Président

FRIEDEL  
DE GENNES  
ABRAGAM

Examineurs



Le présent travail a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay au cours des années 1960-1963. Durant cette période j'ai bénéficié d'une allocation d'Attachée de Recherches de la part du Centre National de la Recherche Scientifique.

Je remercie très vivement Monsieur le Professeur Abragam et Monsieur Herpin qui ont bien voulu m'accueillir dans le Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique où j'ai bénéficié d'excellentes conditions de travail.

Le sujet de cette étude m'a été proposé par Monsieur le Professeur De Gennes, qui s'est chargé de diriger mon travail, et à qui je suis heureuse d'exprimer toute ma gratitude pour l'aide et les conseils qu'il m'a apportés.

J'ai également bénéficié des belles expériences réalisées sur le grenat de fer et d'yttrium par Monsieur Claude Robert, avec qui j'ai eu à plusieurs reprises d'utiles discussions.

J'ai eu le plaisir de collaborer pendant six mois avec le Docteur Philip Pincus.

Monsieur Guillou et Madame Pillard, du Bureau de Calcul de Saclay ont écrit les deux programmes de calcul que j'ai utilisés.

Enfin je tiens à exprimer ma reconnaissance à Madame Gugenberger et à Mademoiselle Richard qui ont assuré la correction des épreuves et la frappe du manuscrit avec rapidité et précision.

## TABLE DES MATIÈRES

	<b>Pages</b>
INTRODUCTION.....	6
<b>PREMIERE PARTIE : ECHANTILLONS MONODOMAINES.....</b>	<b>7</b>
<b>I - CHAMP LOCAL.....</b>	<b>7</b>
A - Généralités.....	7
B - Application : étude de l'origine du champ local dans le grenat de fer et d'yttrium.....	10
<b>II - OBSERVATION DE LA RESONANCE NUCLEAIRE : SIGNAUX.....</b>	<b>15</b>
A - Ferromagnétique en champ fort.....	16
B - Ferrimagnétique à deux sous-réseaux en champ fort et antiferromagnétiques...	19
<b>III - MODES DE PRECESSION DE L'AIMANTATION NUCLEAIRE DANS UNE SUBSTANCE MAGNETIQUE. APPLICATION A L'INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE RESONANCE NUCLEAIRE DANS KMnF<sub>3</sub>.....</b>	<b>23</b>
A - Discussion qualitative.....	23
B - Interaction de Suhl et déplacement de fréquence dans un ferromagnétique.....	25
C - Effets du déplacement de fréquence sur la résonance nucléaire.....	27
D - Interaction de Suhl longitudinale.....	32
<b>IV - EFFETS DES IMPURETES DE TERRE RARE SUR LA RESONANCE FERRIMAGNETIQUE ET LA RELAXATION NUCLEAIRE DANS LE GRENAT DE FER ET D'YTTRIUM A BASSE TEMPERATURE.....</b>	<b>33</b>
A - Introduction.....	33
B - Formules générales.....	35
C - Hypothèses de Kittel.....	39
D - Hypothèse de relaxation lente.....	40
<b>DEUXIEME PARTIE : ECHANTILLONS POLYDOMAINES.....</b>	<b>51</b>
<b>V - EFFET DE L'ANISOTROPIE DU CHAMP LOCAL SUR LA RESONANCE NUCLEAIRE DANS LES PAROIS DE BLOCH DU GRENAT DE FER ET D'YTTRIUM.....</b>	<b>52</b>
A - Introduction.....	52
B - Parois de Bloch du grenat.....	53
C - Structure de la raie de résonance nucléaire des sites 16a en un point donné de la paroi.....	54

D - Réponse des parois de Bloch à une excitation radiofréquence.....	55
E - Forme de la raie de résonance fournie par les noyaux $^{16}\text{O}$ d'une paroi de Bloch	55
VI - RESONANCE NUCLEAIRE DANS LES PAROIS DE BLOCH : SIGNAUX.....	58
A - Introduction.....	58
B - Mouvement des parois de Bloch d'une particule en l'absence de spins nucléaires	58
C - Effet des spins nucléaires sur le mouvement de la paroi de Bloch.....	64
D - Déplacement de la fréquence de résonance nucléaire.....	69
E - Conclusion.....	70
VII - EXCITATIONS ELEMENTAIRES DE BASSE FREQUENCE ET RELAXATION NU- CLEAIRE DANS LES PAROIS.....	71
A - Introduction.....	71
B - Etude des excitations de basse fréquence dans les parois de Bloch.....	72
C - Contribution des modes de basse fréquence à la relaxation nucléaire.....	74
D - Conclusion.....	80
CONCLUSION.....	81
APPENDICE A - Relations entre les susceptibilités radiofréquence et les fonctions de corrélation du moment magnétique.....	82
APPENDICE B.....	86
A - Evaluation rapide de la susceptibilité électronique des domaines.....	86
B - Comparaison des signaux de résonance fournis par les parois et les domaines	87
BIBLIOGRAPHIE.....	89

## INTRODUCTION

Nous nous proposons dans ce travail, de discuter ou d'interpréter les caractéristiques et les résultats d'expériences de résonance magnétique nucléaire, faites sur des composés ferro ou ferrimagnétiques du groupe du fer. La résonance nucléaire dans les substances magnétiques ordonnées présente beaucoup de particularités remarquables ; nous nous sommes plus précisément intéressés aux points suivants :

1 / Dans ces substances, les moments magnétiques électroniques, dont la valeur moyenne est non nulle, créent à l'emplacement des noyaux un "champ local" extrêmement grand (200 000 à 500 000 Oe). Dans les composés ioniques, ce champ local est dû essentiellement aux électrons de l'ion qui porte le moment nucléaire ("champ hyperfin"), mais aussi pour une petite part aux électrons des autres ions ("champ dipolaire"). Ce *champ dipolaire* joue un rôle très important dans l'interprétation des expériences de résonance dans le grenat de fer et d'yttrium, dont l'étude détaillée permet également de mettre en évidence une très légère *anisotropie de structure hyperfine* des ions  $Fe^{3+}$  dans ce composé (chap. I et V).

2 / On sait que du couplage entre moments électroniques et nucléaires, résulte également une *augmentation* spectaculaire (par un facteur  $10^3$  ou  $10^6$ ) des signaux de résonance nucléaire. Une étude détaillée montre que cet effet d'augmentation est beaucoup plus grand dans les échantillons polydomaines (où le signal est essentiellement dû aux noyaux des parois de Bloch) que dans les échantillons uniformément aimantés. Il n'existe pas dans les antiferromagnétiques (chap. II et VI).

3 / Les composantes oscillantes des aimantations électronique et nucléaire ont des fréquences propres différentes. Leur couplage va modifier ces fréquences propres. Comme il est proportionnel à la polarisation nucléaire moyenne, on va donc observer un *déplacement de la raie de résonance nucléaire* lorsqu'on essaie de saturer cette raie. On peut aussi considérer que cet effet est dû au couplage indirect des spins nucléaires par les ondes de spin électroniques. Ce déplacement de fréquence, qui est habituellement très petit et observable seulement à très basse température, joue un rôle important dans les expériences faites par Heeger et al. sur le ferromagnétique faible  $K Mn F_2$  (chap. III et VI).

4 / Dans les échantillons de grenat de fer et d'yttrium impur, uniformément aimantés en champ magnétique fort, on peut de même attribuer la relaxation nucléaire des noyaux  $^{57}Fe$  à une interaction indirecte entre les spins de ces noyaux et les impuretés de terre rare à relaxation rapide que contiennent ces échantillons.

De façon analogue le couplage des spins électroniques des fers avec ces mêmes impuretés est à l'origine du déplacement de fréquence et de la largeur de raie anisotropes qui caractérisent la *résonance ferrimagnétique* dans le grenat impur (chap. IV).

5 / Par contre, dans les échantillons polydomaines de grenat la *relaxation nucléaire* est beaucoup plus rapide dans les parois que dans les domaines. Ceci semble dû à l'existence, dans les parois de Bloch, d'excitations magnétiques de basse fréquence, qui fournissent une contribution supplémentaire à la relaxation nucléaire (chap. VII).

Historiquement la résonance nucléaire a d'abord été observée dans les échantillons polydomaines (qui fournissent des signaux beaucoup plus intenses). Mais l'interprétation de ces expériences est compliquée. Nous commencerons donc par traiter en grand détail le cas des échantillons monocristallins uniformément aimantés en champ magnétique fort, cas bien plus simple, et qui a permis les comparaisons les plus précises entre le calcul et l'expérience.

## PREMIÈRE PARTIE

# ÉCHANTILLONS MONODOMAINES

## I - CHAMP LOCAL

### A - GENERALITES -

Le moment magnétique nucléaire  $\vec{\mu}_I = \hbar \gamma_n \vec{I}$  d'un atome O placé dans un cristal, est soumis de la part des électrons de ce cristal à un champ magnétique statique, créé par les moments magnétiques de spin des électrons et par la distribution de courant associée à leurs mouvements. L'opérateur associé à ce champ ("champ local") est :

$$\hat{H}_{loc} = -2\beta_n \sum_i \left[ \frac{\vec{l}_i}{r_i^3} + 3 \frac{\vec{r}_i (\vec{s}_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^5} - \frac{\vec{s}_i}{r_i^3} + \frac{8\pi}{3} \vec{s}_i \delta(\vec{r}_i) \right] \quad [1.1]$$

(où  $\vec{r}_i$  et  $\vec{l}_i$  sont respectivement le rayon-vecteur et le moment cinétique orbital du ième électron, par rapport au noyau pris comme origine O).

Expérimentalement, les études de résonance nucléaire faites sur les ions du groupe du fer dans des composés ferro ou ferrimagnétiques, mettent en évidence dans tous les cas une structure hyperfine pratiquement isotrope, à laquelle on peut associer un hamiltonien :

$$\mathcal{H} = -\alpha \vec{\mu}_I \cdot \vec{M} \quad [1.2]$$

(où  $\vec{M}$  est la densité d'aimantation électronique) : le "champ local"  $\alpha \vec{M}$  est de l'ordre de quelques  $10^3$  oersteds, et est antiparallèle au moment magnétique de l'atome (ou ion) O auquel appartient  $\vec{\mu}_I$ .

On peut montrer que, pour les composés ioniques et métalliques du groupe du fer, la contribution principale à  $\hat{H}_{loc}$  est due au terme de contact  $-2\beta_n \frac{8\pi}{3} \sum_i \vec{s}_i \delta(\vec{r}_i)$ . Il faut, pour l'évaluer, connaître la densité électronique au niveau du noyau. Dans les métaux cette densité est mal connue. Nous examinerons donc le cas des composés ioniques.

Le champ local au niveau du noyau est alors essentiellement dû aux électrons de l'ion O lui-même (champ hyperfin). La contribution des autres ions est en effet de l'ordre de  $\beta_n / a^3 \sim 10^6$  Oe (champ dipolaire).

#### 1/ Champ hyperfin dans les composés ioniques. (1) (2)

Pour en comprendre l'origine, il est nécessaire de regarder comment sont formées les fonctions d'onde électroniques de l'ion.

Dans le cas du couplage Russell Saunders, et si on néglige les interactions qui dépendent du spin, l'hamiltonien de l'ion libre s'écrit :

$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^n \left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \frac{Ze^2}{|\vec{r}_i|} \right] + \sum_{i=1}^n \sum_{j \neq i}^n \frac{e^2}{|\vec{r}_{ij}|}$$

Cet hamiltonien commute avec  $\vec{L}^2$ ,  $\vec{S}^2$ ,  $L_z$ ,  $S_z$  (où  $\vec{L}$  et  $\vec{S}$  sont le moment cinétique orbital total et le moment de spin total de l'ion).

La méthode de Hartree-Fock (champ self-consistent central) revient à chercher a priori les fonctions propres de  $\mathcal{H}$  sous la forme  $\psi_{LS}$  de combinaisons linéaires de déterminants de Slater, bâtis à partir de fonctions d'onde à un électron :

$$\Phi_{nlm}^+ = R_{nl}(r) Y_l^m(\theta, \varphi) \chi^+$$

( $Y_l^m(\theta, \varphi)$  harmonique sphérique,  $\chi^+ = |s = 1/2, s_z = +1/2\rangle$ ). Les  $\Phi_{nlm}$  doivent de plus être fonctions propres de  $\vec{L}^2, S^2, L_z, S_z$ .

Généralement le problème peut être traité à l'intérieur d'une configuration. Dans le groupe du fer, la configuration d'énergie la plus basse comprend un certain nombre de couches pleines, et une couche incomplète 3d.

Ayant ainsi déterminé la fonction d'onde  $\Phi_{nlm}$  de l'état fondamental de l'ion libre, considérons cet ion dans un cristal. Son niveau d'énergie le plus bas sera sous-tendu par une fonction d'onde  $\psi = \sum_{n_1 n_2} a_{n_1 n_2} \Phi_{l_1 m_1} \Phi_{l_2 m_2}$ . L'énergie d'interaction hyperfine  $\langle \psi | W_{hfr} | \psi \rangle$  sera la somme de trois termes :

- un terme

$$2\beta_0 \hbar \gamma_n \vec{I} \cdot \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{3d} \langle \vec{L} \rangle$$

ce terme est presque toujours nul à cause du blocage du moment orbital.

- un terme

$$- 2\beta_0 \hbar \gamma_n \frac{2l+1-4S}{S(2l+3)(2l-1)(2L-1)} \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{3d} \sum_{j,k} I_j S_k \left\langle \frac{3}{2} (L_j L_k + L_k L_j) - \delta_{jk} L(L+1) \right\rangle$$

ce terme ne conduit pas à une structure hyperfine isotrope dans un cristal de symétrie quelconque. Il est trop petit. Enfin il est nul quand  $L = 0$ . Or les ions "S",  $Mn^{2+}$  et  $Fe^{3+}$  possèdent une structure hyperfine aussi importante que les autres ions du groupe du fer.

- le terme de Fermi

$$\langle 2\beta_0 \gamma_n \hbar \vec{I} \cdot \left( \sum_i \frac{8\pi}{3} \vec{s}_i \delta(\vec{r}_i) \right) \rangle$$

Seuls les électrons ns ( $l = 0$ ) ont une densité non nulle au niveau du noyau et peuvent contribuer à ce terme. Mais cette contribution est nulle car les couches ns sont pleines et les électrons ns avec  $s_z = \pm \frac{1}{2}$  ont même fonction d'onde radiale.

On est donc amené à penser (1) (2) que, dans un atome dont le spin total n'est pas nul, il est sans doute incorrect d'attribuer aux électrons nl dont le spin est parallèle ou antiparallèle au spin résultant (et qui sont de ce fait soumis de la part des autres électrons à des interactions d'échange différentes) la même fonction d'onde radiale. Levant cette "restriction" on construira donc les fonctions d'onde  $\Phi_{nlm}$  comme précédemment mais à partir de fonctions d'onde à un électron (2):

$$\Phi_{nlm}^+ = R_{nl}^+(r) Y_l^m(\theta, \varphi) \chi^+$$

$$\Phi_{nlm}^- = R_{nl}^-(r) Y_l^m(\theta, \varphi) \chi^-$$

Les fonctions  $\Phi_{nlm}$  ainsi construites sont encore fonctions propres de  $\vec{L}^2, L_z, S_z$  mais plus nécessairement de  $\vec{S}^2$  (en pratique, elles le seront à très peu près). Comme auparavant on détermine les fonctions radiales  $R_{nl}^+(r)$  et  $R_{nl}^-(r)$  en minimisant l'énergie de l'ion. On obtient ainsi des fonctions  $R_{nl}^+, R_{nl}^-$  légèrement différentes.

La contribution au champ hyperfin du terme de Fermi est alors du bon ordre de grandeur ( $\sim 10^3$  Oe). Dans un cristal, à cause des effets de champ cristallin, elle est réduite de 10 à 20 %.

Cette méthode de calcul peut être interprétée de la manière suivante : si l'on garde à l'intérieur d'une configuration la même fonction radiale pour les électrons  $n_1 l_1$  et  $n_2 l_2$ , elle revient à bâtir a priori  $\Phi_{nlm}$  à partir de déterminants de Slater appartenant et à la configuration la plus basse (...  $d^n$ ) et à toutes les configurations qui peuvent en être déduites en transportant les électrons de la configuration initiale dans des couches d'énergie plus élevées sans modifier leurs nombres quantiques  $l, l_z$  et  $s_z$ .

Remarquons enfin que les termes  $- 2\beta_0 \sum_i \frac{1}{r_i^3}$  et  $- 2\beta_0 \left[ 3 \frac{\vec{r}_i (s_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^5} - \frac{s_i}{r_i^3} \right]$ , dont la contribu-

tion à  $H_{loc}$  est nulle au premier ordre, peuvent au deuxième ordre être responsables de petites anisotropies de l'interaction hyperfine, si l'environnement de l'ion O n'a pas la symétrie cubique.

## 2/ Champ dipolaire dans les composés ioniques.

On peut aisément démontrer que le champ magnétique créé au niveau d'un ion O par les électrons d'un ion A distinct de O, est assimilable au champ d'un dipôle classique  $\vec{\mu}_A = -\beta_e [\langle \vec{L}_A \rangle + 2\langle \vec{S}_A \rangle]$  placé au point A. Il est donc donné par les formules :

$$H_{A,O}^{\pm} = \frac{3x^2 - r^2}{r^5} \mu_x + \frac{3xy}{r^5} \mu_y + \frac{3xz}{r^5} \mu_z = A_{xx} \mu_x + A_{yy} \mu_y + A_{zz} \mu_z$$

Le champ dipolaire  $\vec{H}_d$  au point O sera la somme des champs créés par tous les dipôles de l'échantillon. Dans ce qui suit, nous supposons toujours que l'échantillon a la forme d'un ellipsoïde  $S_2$  : ainsi lorsque l'échantillon est uniformément aimanté, le champ démagnétisant<sup>10</sup> est uniforme à l'intérieur de  $S_2$ , ce qui permet d'observer la résonance nucléaire dans de bonnes conditions (pas d'élargissement inhomogène par ce champ).

Considérons donc un échantillon monocristallin uniformément aimanté par un champ  $\vec{H}_0$  assez grand (fig. 1). Nous pouvons, pour calculer le champ dipolaire au point O, utiliser la méthode de Lorentz.

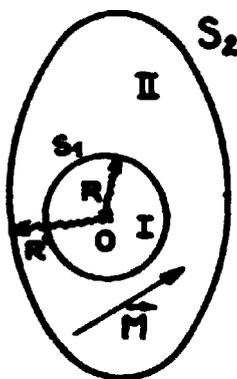


Fig. 1

a) Traçons une sphère  $S_1$  de centre O, de rayon  $R > a$  (côté de la maille) et intérieure à l'échantillon. On vérifie aisément que le champ dipolaire  $\vec{H}_{II}$  créé en O par les ions II extérieurs à  $S_2$  est très peu différent du champ dipolaire qui serait créé par une densité en volume  $\vec{M}(\vec{r})$  définie de la façon suivante : si  $\vec{r}$  appartient à la maille de centre O,

$$\vec{M}(\vec{r}) = \frac{1}{v} \sum_j \vec{\mu}_j$$

(v volume de la cellule ; la sommation porte sur les j ions de la cellule).

L'erreur relative due à cette approximation est de l'ordre de  $\frac{a}{R}$  dans le cas général, et est comprise entre  $\frac{a^2}{R^2}$  et  $\frac{a}{R^2}$  si la symétrie globale de l'environnement de O est cubique.

Donc en vertu d'un résultat classique :

$$\vec{H}_{II} = \vec{H}_v + \vec{H}_{s_1} + \vec{H}_{s_2}$$

<sup>10</sup> Ceci n'est vrai que si la distance OA est assez grande pour qu'il n'y ait pas d'"échange direct" entre ces ions ( $OA > 2,5 \text{ \AA}$ ).

<sup>11</sup> Par définition ce champ, différent du champ dipolaire, est égal, avec les notations de la page suivante, à  $\vec{H}_1 + \vec{H}_{s_2}$ .

où  $\vec{H}_V$  est le champ qui serait créé par une distribution en volume de masses magnétiques fictives,  $\rho = -\text{div } \vec{M}$ , dans le volume II.

$\vec{H}_{S_2}, \vec{H}_{S_1}$  sont les champs qui seraient créés par des distributions superficielles fictives de masses magnétiques,  $\sigma_2(\vec{r}_2) = \vec{M}(\vec{r}_2) \cdot \vec{n}_2(\vec{r}_2)$ ,  $\sigma_1(\vec{r}_1) = \vec{M}(\vec{r}_1) \cdot \vec{n}_1(\vec{r}_1)$  sur  $S_2$  et  $S_1$  ( $\vec{n}_2, \vec{n}_1$  normales extérieures).

Ici  $\vec{M}$  est uniforme :  $\rho = 0$ ,  $\vec{H}_{S_1} = +\frac{4\pi}{3} \vec{M}$ ,  $\vec{H}_{S_2} = -[N] \vec{M}$  (champs démagnétisants d'une sphère et d'un ellipsoïde). Si  $S_2$  est une sphère :  $\vec{H}_{S_2} = -\frac{4\pi}{3} \vec{M}$  et  $\vec{H}_{II} = 0$ .

b) Le champ  $\vec{H}_I$  créé en O par les ions I intérieurs à  $S_2$  sera calculé par sommation directe des quantités  $H_{i,1}, \dots$ . Supposons que les dipôles  $\mu_i$  soient tous égaux ; s'ils sont répartis sur un réseau de Bravais hexagonal ou cubique dont O occupe un noeud,  $H_I = 0$ . S'il n'en est pas ainsi,  $H_I \neq 0$  ; rappelons cependant que si le cristal a une symétrie globale cubique :  $\sum_j \hat{\mu}_{Ij} \vec{H}_{Ij} = 0$  (où la somme porte sur les ions d'une maille) ; par suite la contribution des interactions dipolaires à l'anisotropie magnétique du cristal est nulle au 1er ordre (3), mais si les champs dipolaires  $\vec{H}_{Ij}$  ne sont pas nuls, ce qui tendrait à faire oublier leur existence. Il en est ainsi, par exemple, dans le grenat de fer et d'yttrium.

Dans le cas où  $H_I \neq 0$ , on peut le calculer, soit par sommation directe sur les ions situés à l'intérieur de  $S_1$ , soit par sommation dans le réseau réciproque. Dans le premier cas le rayon R de  $S_1$  sera choisi de façon que :

- la sommation ne porte pas sur un nombre d'ions excessivement grand,
- mais néanmoins l'erreur due à l'approximation faite dans le calcul de  $\vec{H}_{II}$  soit petite,

et sans oublier que de toute façon la précision relative de ces calculs sera au mieux du 1/200, car les ions ne sont assimilables à des dipôles magnétiques qu'à 1/200 près.

c) En conclusion, dans un échantillon sphérique uniformément aimanté,  $\vec{H}_e = \vec{H}_{S_2} + \vec{H}_V + \vec{H}_{S_1} + \vec{H}_I$  se réduit à  $\vec{H}_I$  que l'on peut calculer en tout point par sommation directe sur les ions situés dans une petite sphère de centre ce point.

## B - APPLICATION : ETUDE DE L'ANISOTROPIE DU CHAMP LOCAL DANS LE GRENAT DE FER ET D'YTTRIUM (4) -

Le grenat de fer et d'yttrium (5), de formule  $5 \text{Fe}_2 \text{O}_3, 3 \text{Y}_2 \text{O}_3$ , est un composé ferrimagnétique ionique dont la température de Néel est élevée ( $T_N \sim 450^\circ \text{K}$ ). Sa structure cristalline est compliquée ( $n^\circ 230$ ,  $\text{Oh}^{10}$  Ia 3d) ; mais les différents ions qui le composent ont une charge bien définie et sont localisés sur des sites cristallins également bien définis (ce qui est un avantage par rapport aux ferrites).

La symétrie globale est celle d'un réseau cubique centré. La maille cubique comprend 40 ions fer magnétiques, 24 ions yttrium et 96 ions oxygène diamagnétiques, soit 16 ions  $\text{Fe}^{3+}$  (16a) dont les plus proches voisins sont 6 ions  $\text{O}^{2-}$  formant un octaèdre déformé, 24 ions  $\text{Fe}^{3+}$  (24d) dont les plus proches voisins sont 4 ions  $\text{O}^{2-}$  formant un tétraèdre déformé, 24 ions  $\text{Y}^{3+}$  (24c) dont les plus proches voisins sont 8 ions  $\text{O}^{2-}$  formant un polyèdre déformé.

Les ions  $\text{Fe}^{3+}$  (16a) et  $\text{Fe}^{3+}$  (24d) constituent deux sous-réseaux magnétiques dont les moments magnétiques sont opposés, et dont les densités d'aimantation sont  $-2\vec{M}$  et  $+3\vec{M}$  (où  $\vec{M}$  est la densité d'aimantation résultante).

Seul l'isotope  $^{57}\text{Fe}$  (concentration : 2 % des ions fer) possède un spin nucléaire  $I = 1/2$ . Les expériences de résonance nucléaire ont d'abord porté sur des échantillons avec parois de Bloch (6) et ont permis de mesurer un champ local "moyen" dans les parois :

$$H_e(16a) = 550\,000 \text{ Oe}$$

$$H_e(24d) = 470\,000 \text{ Oe} \quad (\text{à } 4^\circ \text{K}).$$

### 1/ Champ dipolaire.

En fait la symétrie de l'environnement des ions fer n'est pas cubique et le champ dipolaire au niveau de ces ions doit donc être différent de zéro. J'ai donc calculé ce champ ce qui a permis de

préciser et d'interpréter les résultats des expériences faites par Robert (sur un monocristal sphérique en champ fort à très basse température). Ce calcul a été fait de la façon suivante :

a) J'ai vérifié que, pour chaque ion  $Fe^{3+}$ , on pouvait trouver un système local d'axes  $Fe^{3+}XYZ$  parallèles aux côtés  $Oxyz$  de la maille cubique et tel que, par rapport à ces axes, tous les ions  $Fe^{3+}$  16a (ou 24d) aient le même environnement magnétique. Les axes locaux  $Fe^{3+}XYZ$ ,  $Fe^{3+}X'Y'Z'$ , liés à deux ions  $Fe^{3+}$  16a (ou 24d) distincts, se correspondent dans des rotations de  $\pm \frac{\pi}{2}$ ,  $\pm \pi$  autour des directions  $Oxyz$  ou des rotations de  $\pm 2 \frac{\pi}{3}$  autour des axes ternaires  $\langle 111 \rangle$ .

Par ailleurs, l'environnement d'un site a donné admet l'une des directions  $\langle 111 \rangle$  comme axe de symétrie ternaire, et l'environnement d'un site d donné admet l'une des directions  $[100]$ ,  $[010]$ ,  $[001]$  comme axe de rotation inversion d'ordre 4. On en déduit que si l'on somme, soit sur les ions 16a, soit sur les ions 24d entourant un ion  $Fe^{3+}$  donné :

$$\text{Pour un site 16a } A_{xx} = A_{yy} = A_{zz} = \sum \frac{3X^2 - R^2}{R^5} = \dots = 0 \text{ et } A_{xy} = A_{yz} = A_{zx}$$

$$\text{Pour un site 24d } A_{xx} = A_{yy} = A_{zz} = \sum \frac{3XY}{R^5} - \dots = 0 \text{ et } A_{xy} = A_{yz} = \frac{A_{zz}}{2}$$

J'ai ensuite calculé à la main la contribution de tous les ions situés à l'intérieur d'une sphère centrée soit en un site 16a, soit en un site 24d, de rayon égal au côté  $a$  de la maille (12,376 Å). On trouve :

$$\text{Site 16a : } A_{xy}^{16a} = 0 \text{ (les ions 16a forment un réseau cubique) ;}$$

$$[A_{zz}^{24d}]_0^a = -79/a^3$$

$$\text{Site 24d : } A_{zz}^{24d} = -45,17/a^3 ; [A_{zz}^{16a}]_0^a = -50,14/a^3$$

On en déduit pour les sites 16a un champ dipolaire de l'ordre de 4 000 Oe, pour les sites 24d un champ de l'ordre de 100 Oe ( $\propto A_{zz}^{24d} - A_{zz}^{16a}$ ). Pour ce dernier champ, obtenu par différence de deux quantités presque égales, la précision de ce calcul doit être très mauvaise.

Dans un nouveau calcul, fait à la machine, la sommation a porté sur tous les ions situés à l'intérieur d'une sphère de rayon  $10a$  et a fourni :

$$\text{Site 16a } [A_{zz}^{24d}] = -83,58/a^3$$

$$\text{Site 24d } [A_{zz}^{24d}]_{10a}^{10a} = -49,274/a^3 \quad [A_{zz}^{24d}]_{10a}^{10a} = -0,042/a^3$$

$$[A_{zz}^{16a}]_{10a}^{10a} = -48,570/a^3 \quad [A_{zz}^{16a}]_{10a}^{10a} = -0,061/a^3$$

Les quantités  $[A_{zz}^{24d}]_{10a}^{10a} \dots$  permettent d'évaluer une limite supérieure de l'erreur relative commise en limitant la somme à la sphère de rayon  $10a$ . Si l'erreur varie comme l'inverse du carré du rayon de la sphère, elle sera de l'ordre de :

$$1/3 [A_{zz}^{24d}]_{10a}^{10a} / [A_{zz}^{24d}]_0^{10a} \sim 1/4 000.$$

Nous devons signaler que M. Bertaut a calculé le champ dipolaire au niveau du site 16a par une méthode de sommation dans le réseau réciproque et a retrouvé notre résultat. Par contre les deux valeurs voisines  $[A_{zz}^{24d}]_0^a = -45,2$  et  $[A_{zz}^{24d}]_0^{10a} = -49,27$  sont en désaccord avec le résultat donné par Burns : -35,165 (7).

b) Pour un noyau donné, le champ dipolaire ( $\sim 10^3 - 10^4$  Oe) est très petit par rapport au champ hyperfin "vu" par ce même noyau ( $\sim 10^5$  Oe). La seule quantité observable est la projection du champ dipolaire sur la direction du champ hyperfin.

Soient  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  les cosinus directeurs de la densité d'aimantation  $\vec{M}$  par rapport aux axes cristallographiques  $Oxyz$  (la direction de  $\vec{M}$  est imposée par le champ extérieur appliqué). Si les moments magnétiques des ions  $Fe^{3+}$  (parallèles à  $\vec{M}$ ) sont égaux à  $\pm 5\mu_B$  (très basse température), on obtient pour les différents sites, les valeurs suivantes de  $H_d = (H_{dip}, \vec{M})/|\vec{M}|$  Oe (avec pour chaque site des poids statistiques égaux) :

\* Dans le grenat, le calcul du champ dipolaire peut inclure même les plus proches voisins car la distance minimum entre ions fer est grande (3,48 Å).

$$\begin{array}{ll}
 \text{Sites 16a : } -4088(\alpha_1\alpha_2 + \alpha_2\alpha_3 + \alpha_3\alpha_1) & \text{Sites 24d : } -17,2(3\alpha_1^2 - 1)/2 \\
 -4088(-\alpha_1\alpha_2 + \alpha_2\alpha_3 - \alpha_3\alpha_1) & -17,2(3\alpha_2^2 - 1)/2 \\
 -4088(-\alpha_1\alpha_2 - \alpha_2\alpha_3 + \alpha_3\alpha_1) & -17,2(3\alpha_3^2 - 1)/2 \\
 -4088(\alpha_1\alpha_2 - \alpha_2\alpha_3 - \alpha_3\alpha_1) & 
 \end{array}$$

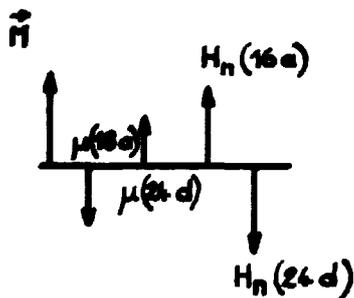


Fig. 2

ou, sous une forme plus condensée :

$$\text{Sites (16a): } H_a = -2044(3\cos^2\theta - 1)\text{Oe}$$

$$\text{Sites (24d): } H_a = -8,6(3\cos^2\theta' - 1)\text{Oe}$$

où  $\theta$  est l'angle de  $\vec{M}$  et de celle des quatre directions  $\langle 111 \rangle$  qui est un axe de symétrie ternaire pour l'environnement du site 16a considéré ; de même  $\theta'$  est l'angle de  $\vec{M}$  et de celle des trois directions  $\langle 100 \rangle$  qui est un axe de rotation inversion d'ordre 4 pour le site 24d considéré.

On prévoit donc, pour le signal de résonance nucléaire des sites 16a, une structure d'origine dipolaire comportant quatre raies d'égale intensité ; l'écart maximum des raies extrêmes, obtenu quand  $\vec{M}$  est dirigée suivant un axe  $\langle 111 \rangle$  (direction de facile aimantation) est  $\Delta H = 5450$  Oe. De même pour les ions  $\text{Fe}^{3+}$  24d on prévoit une structure comportant trois raies d'égale intensité ; l'écart maximum des raies extrêmes, obtenu quand  $\vec{M}$  est parallèle à  $\langle 100 \rangle$ , est  $\Delta H = 3/2 \times 17,2 \sim 26$  Oe, écart sans doute trop petit pour être observé.

c) Expérimentalement, il est avantageux d'utiliser un champ  $H_a \left( > \frac{4\pi}{3} M, \text{ et donc grand par rapport au champ d'anisotropie} \right)$  situé dans le plan (100). Alors  $\vec{M}$  est parallèle à  $\vec{H}_a$ , et, si l'on désigne par  $\varphi$  l'angle de  $H_a$  avec la direction [100], on doit obtenir :

Pour le site 16a, deux raies correspondant à  $H_a = \pm A' \sin 2\varphi$ .

Pour le site 24d, trois raies correspondant à  $H_a = -D'$  ;  $H_a = D'(3\cos^2\varphi - 1)$  ;  $H_a = D'(3\sin^2\varphi - 1)$  avec  $A' = 2044$  Oe et  $D' = -8,6$  Oe.

L'expérience montre que la variation angulaire prévue est correcte mais  $A = 2500$  Oe et  $D = +316$  Oe ; par rapport aux valeurs prévues  $A$  est donc trop grand de 456 Oe et  $D$  de 324 Oe.

Nous allons montrer que cet écart est probablement dû à une très légère anisotropie de l'interaction hyperfine.

## 2/ Anisotropie de l'interaction hyperfine.

Comme nous l'avons vu, les contributions au champ local des termes  $-2\beta_s \sum_i \frac{1}{r_i^3}$  et  $-2\beta_s \sum_i \left[ \frac{3\vec{r}_i (\vec{s}_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^5} - \frac{\vec{s}_i}{r_i^3} \right]$  sont nulles au premier ordre pour l'ion "S"  $\text{Fe}^{3+}$ . Mais elles ne le sont peut être pas au second ordre, car les environnements en oxygène des ions  $\text{Fe}^{3+}$  dans le grenat ne sont pas rigoureusement cubiques, mais sont étirés suivant les axes de symétrie ( $\langle 111 \rangle$  ou  $\langle 100 \rangle$ ) décrits précédemment, ce qui rajoute au potentiel cristallin rapporté à ces axes une composante axiale. D'où, dans le hamiltonien, un terme supplémentaire  $V_{ax} = (-e) \sum_i (-eV) r_i^2 (3\cos^2\theta_i - 1) = e^2 V \sum_i r_i^2 (3\cos^2\theta_i - 1)$ .

a) En combinant le couplage spin orbite  $\lambda \vec{L} \vec{S}$  ( $\lambda \sim 400$   $\text{cm}^{-1}$ ) et l'opérateur  $-2\beta_s \beta_n \vec{I} \sum_i \frac{1}{r_i^3}$ , opérateurs tensoriels d'ordre 1 par rapport aux variables orbitales, on obtient un couplage :

$$\sum_n \frac{\langle {}^6S | \lambda \vec{L} \cdot \vec{S} | n \rangle \langle n | -2\beta_0 \beta_n \vec{L} \cdot \sum_i \frac{\vec{L}_i}{r_i^3} | {}^6S \rangle + CC}{E_{6S} - E_n}$$

$$= -2\beta_0 \beta_n \sum_{S, L} S, L \left\{ \lambda \sum_n \frac{\langle {}^6S | L_n | n \rangle \langle n | \sum_i \frac{L_i}{r_i^3} | {}^6S \rangle}{E_{6S} - E_n} + CC \right\}$$

L'expression entre {} rappelle celle de  $g_{\rho_0} - 2$  ( $g$  facteur de Landé), mais ne peut s'y ramener, car  $n$  peut ne pas appartenir à la configuration  $d^5$  et pour cette raison

$$\frac{\langle n | \sum_i \frac{L_i}{r_i^3} | {}^6S \rangle}{\langle n | L_n | {}^6S \rangle}$$

n'est pas indépendant de  $n$ .

On voit néanmoins que ce couplage conduira à un champ dont la partie anisotrope sera de l'ordre de  $\frac{1}{3} 2\beta_0 \langle \frac{1}{r^3} \rangle (g_{\parallel} - g_{\perp}) \leq 20 \text{ Oe}$  (calculé avec  $\langle \frac{1}{r^3} \rangle \sim \langle \frac{1}{r^3} \rangle_{3d}$  de Watson (8),  $\sim 30 \text{ \AA}^{-3}$ ; et  $(g_{\parallel} - g_{\perp}) \leq 10^{-2}$  (9)) donc trop petite.

b) L'opérateur  $V_{ee}$  ( $\sim 10^3 \text{ cm}^{-1}$ ) n'agit que sur les variables orbitales, et est un opérateur tensoriel d'ordre 2. Il ne peut donc coupler  ${}^6S$  qu'à un état  ${}^6D$ . L'opérateur  $-2\beta_0 \sum_i \left[ \frac{3\vec{r}_i (\vec{S}_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^3} - \frac{\vec{S}_i}{r_i^3} \right]$  dont la projection sur le moment magnétique de l'ion est (compte tenu de la symétrie de l'environnement) :

$$H_{ee} = \frac{3\cos^2\theta - 1}{2} 2\beta_0 \sum_i \frac{3\cos^2\theta_i - 1}{r_i^3} s_i^z \quad [1.3]$$

peut également coupler ces deux états. L'état  ${}^6D$  ne peut appartenir qu'à une configuration différent de  $d^5$  par au plus un électron : en pratique  $3d^4 4s$ . D'où, en remarquant que  $s_i^z = 1/2$  (états de spin maximum) :

$$H_{ee} = \frac{3\cos^2\theta - 1}{2} \beta_0 e^2 V \sum_i \left[ \frac{\langle {}^6S | \sum_i \frac{3\cos^2\theta_i - 1}{r_i^3} | {}^6D \rangle \langle {}^6D | \sum_i r_i^2 (3\cos^2\theta_i - 1) | {}^6S \rangle}{E_{6D} - E_{6S}} + CC \right]$$

$$= - (3\cos^2\theta - 1) \frac{4}{5} \beta_0 \frac{e^2 V}{\Delta E} \int \psi_{3d}(r) \frac{1}{r^3} \psi_{4s}(r) r^2 dr \int \psi_{3d}(r) (r^2) \psi_{4s}(r) r^2 dr \quad [1.4]$$

$$= \langle H_{ee} \rangle (3\cos^2\theta - 1)$$

Il faut maintenant vérifier que  $H_{ee}$  est de l'ordre de la valeur expérimentale, 456  $(3\cos^2\theta - 1)$  Oe pour les sites 16a, et 324  $(3\cos^2\theta - 1)$  Oe pour les sites 24d. Bien entendu le calcul ne peut être que très approximatif. On peut estimer que  $\Delta E = E_{6D} - E_{6S} \sim 9 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$  (en comparant les raies connues du  $\text{Mn}^{III}$  et du  $\text{Fe}^{IV}$ ). Mais  $V$  et les fonctions d'onde radiales sont mal connus. Pour rendre plus large la comparaison entre le calcul et l'expérience, il m'a donc paru intéressant de calculer simultanément une autre quantité qui contient également  $V/\Delta E$  et des intégrales radiales analogues : la contribution au second ordre de l'interaction spin-spin entre les électrons :

$$W_{ss} = 4\beta^2 \sum_i \left[ \frac{\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right] \quad [1.5]$$

au terme  $D \left[ S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1) \right]$  du hamiltonien de spin en résonance électronique (10) (Cette contribution n'est peut-être pas la seule; cf (9)).

L'expression de  $D$ , due à Pryce (10), s'écrit (en remplaçant  $H'$  par  $eV$ ) :

$$D_{ss} = -\frac{24}{25} \beta^2 \frac{e^2 V}{\Delta E} (3w - 2v) \int \psi_{3d}(r) (r^2) \psi_{4s}(r) r^2 dr \quad [1.6]$$

avec :

$$v = \int_0^{\infty} \frac{1}{r} \psi_0(r) \psi_0(r) \int_0^{\infty} r'^2 \psi_0^2(r') dr' dr \quad [L.7]$$

$$w = \int_0^{\infty} \frac{1}{r^3} \psi_0^2(r) \int_0^{\infty} r'^4 \psi_0(r') \psi_0(r') dr' dr$$

$3w - 2v$  est, comme  $\int_0^{\infty} \psi_{3d}(r) \frac{1}{r^3} \psi_{4s}(r) r^2 dr$ , une quantité de l'ordre de  $\langle \frac{1}{r^3} \rangle$ . Expérimentalement  $D \sim -0,1 \text{ cm}^{-1}$ .

c) Calculs numériques.

Potentiel V : un calcul de charges ponctuelles faisant intervenir uniquement les premiers voisins oxygène conduit à  $4V_{16a} = 0,34 \text{ \AA}^{-3}$ ,  $4V_{24d} = 0,3 \text{ \AA}^{-3}$ . Les formules de Burns (7) fournissent  $4V_{16a} = 0,270 \text{ \AA}^{-3}$ ,  $4V_{24d} = 0,128 \text{ \AA}^{-3}$  (?). De toute façon  $V_{16a} > V_{24d}$  donc l'anisotropie doit être plus grande pour les sites 16a, en accord avec l'expérience. Si  $4V \approx 0,3 \text{ \AA}^{-3}$  :

$$\langle H_{aa} \rangle_{Oe} \approx - (3 \cos^2 \theta - 1) \times 1350 \left( \langle r^2 \rangle \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle \right)_{u.A} \quad [L.8]$$

$$\frac{D_{aa}}{\beta_{00}} \approx - 1700 (\langle r^2 \rangle (3w - 2v))_{u.A} ; D_{33,ca-1} = - 0,08 (\langle r^2 \rangle (3w - 2v))_{u.A} \quad [L.9]$$

Fonctions d'onde : Pour la fonction  $\psi_{3d}(\text{Fe}^{3+} 3d^5)$  nous avons utilisé les résultats du calcul de Watson. Pour la fonction  $\psi_{4s}(\text{Fe}^{3+} 3d^5 4s)$  nous avons pris à titre d'essai

- soit une fonction hydrogénoïde 4s

- soit une fonction  $f = (a + br + cr^2 + dr^3) e^{-\frac{Z-\sigma}{4}r}$  à laquelle nous imposons (11) d'être normée et orthogonale aux fonctions 1s, 2s, 3s de Watson. Dans l'un et l'autre cas la quantité  $\frac{Z-\sigma}{4} = z^*$  était prise comme paramètre (pour Fe :  $Z = 26$  et  $\sigma \sim 13$  à  $16$  ?). Les calculs numériques ont été faits à la machine, à partir des expressions algébriques des éléments de matrice.\*\*

Comme on pouvait s'y attendre, les quantités calculées dépendent assez fortement de  $z^*$  et du type de fonction choisi (car les fonctions  $\psi_{4s}$  et  $\psi_{3d}$  n'ont pas du tout la même allure). Par exemple, pour  $Z - \sigma = 10$ ,

$$\text{fonction hydrogénoïde } \langle r^2 \rangle \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{u.A} = - 1,124 ; \langle r^2 \rangle (3w - 2v)_{u.A} = + 0,56$$

$$\text{fonction "de Watson" } \langle r^2 \rangle \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{u.A} = - 0,013 ; \langle r^2 \rangle (3w - 2v)_{u.A} = - 0,41$$

ce qui conduit pour  $\langle H_{aa} \rangle$  à deux valeurs, + 1 500 Oe et + 16 Oe, encadrant la valeur expérimentale + 500 Oe. Quant à D, l'ordre de grandeur serait correct, à un facteur 2 près, mais le signe ne l'est pas dans le deuxième cas.

Ces résultats permettent néanmoins de penser que les écarts entre le champ dipolaire calculé, et le champ d'anisotropie mesuré, sont effectivement bien dus à une anisotropie de structure hyperfine.

-----

\* Ces approximations ne sont certainement pas très bonnes, car les orbitales 4s doivent participer à la liaison chimique.

\*\* Ces expressions se présentent sous la forme de sommes à plusieurs indices qui comportent un très grand nombre de termes.

## II - OBSERVATION DE LA RÉSONANCE NUCLÉAIRE DANS LES SUBSTANCES MAGNÉTIQUES : FERRO ET FERRIMAGNÉTIQUES EN CHAMP FORT, ET ANTIFERROMAGNÉTIQUES (12)

Nous allons maintenant étudier en détail le mécanisme de l'excitation et de la détection de la résonance nucléaire dans les substances magnétiques. Ceci nous permettra de comprendre comment, grâce à un double effet d'amplification, les signaux de résonance observés dans les ferro et ferrimagnétiques sont considérablement plus grands que ceux obtenus dans les substances diamagnétiques - il n'en est pas de même pour les antiferromagnétiques. Nous verrons aussi apparaître un petit déplacement de la fréquence de résonance nucléaire (13), associé au couplage entre spins nucléaires et spins électroniques, dont l'origine profonde sera discutée dans le chapitre III.

Notations : Nous avons vu (chap. I) que les ions voisins et l'anisotropie de structure hyperfine n'apportent au champ local de l'ion  $i$  que des contributions très petites ; négligeant ces termes, nous écrirons le hamiltonien du spin nucléaire  $\hat{I}_i$  sous la forme  $\mathcal{H}_i = A_i \hat{I}_i \cdot \hat{S}_i$ . Le spin nucléaire est donc soumis à un champ hyperfin moyen  $\vec{H}_{n,i} = - (A_i \langle \hat{S}_i \rangle) / \hbar \gamma_n$  ; ( $H_n \sim 10^3$  Oe). Inversement le spin électronique est soumis à un champ  $-(A_i \langle \hat{I}_i \rangle) / \hbar \gamma_e$ , qui est au plus de l'ordre de quelques oersteds, même au plus basses températures ( $T > 1^\circ\text{K}$ ), et dont la contribution à l'anisotropie magnétique est presque toujours négligeable.

Supposons que tous les ions aient le même environnement et le même comportement moyen, et soient  $\vec{M}$  et  $\vec{m}$  les densités d'aimantation électronique et nucléaire moyennes de l'échantillon. L'énergie hyperfine emmagasinée sera  $E$ , telle que :

$$\frac{E}{V} = - \alpha \vec{M} \cdot \vec{m} \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{A}{\hbar^2 \gamma_e \gamma_n} \quad [\text{II.1}]$$

( $V$  volume de l'échantillon,  $v$  volume par atome magnétique).

Le rapport gyromagnétique de l'électron est négatif ;  $\gamma_n$  est en général positif,  $\alpha$  est négatif dans tous les cas étudiés. A l'équilibre on a donc le schéma suivant (fig. 3).

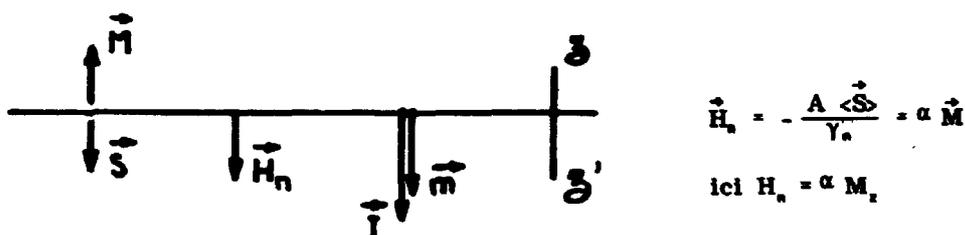


Fig. 3

La pulsation de résonance nucléaire du spin  $\hat{I}$  placé dans le champ  $\vec{H}_n$  et dans un champ extérieur éventuel  $\vec{H}_e$  parallèle à  $\vec{H}_n$ , sera  $\omega = \gamma_n (H_n + H_e) = \omega_n + \gamma_n H_e > \omega_n$ . Pour les ions du groupe du fer  $\nu_n = \frac{\omega_n}{2\pi} \sim 60$  à  $600$  Mc/s.

Nota : les susceptibilités électroniques par unité de volume seront toujours définies par rapport au champ appliqué.

A - FERROMAGNETIQUE EN CHAMP FORT -

1/ Origine des effets d'amplification.

Considérons un monocristal ferromagnétique sphérique (fig. 4), placé dans un champ  $H_0 > \frac{4\pi}{3} M$ , donc uniformément aimanté ( $M \sim 200-2000$  c. g. s.,  $H_0 \sim 10^3 - 10^4$  Oe). Soit  $\vec{H}_A$  (supposé colinéaire à  $\vec{H}_0$ ) le champ d'anisotropie des spins électroniques (pour des matériaux doux  $H_A \sim 10^2 - 10^3$  Oe). Nous négligeons l'amortissement des spins électroniques et admettons par avance que la réaction des spins nucléaires sur  $M$  est petite.

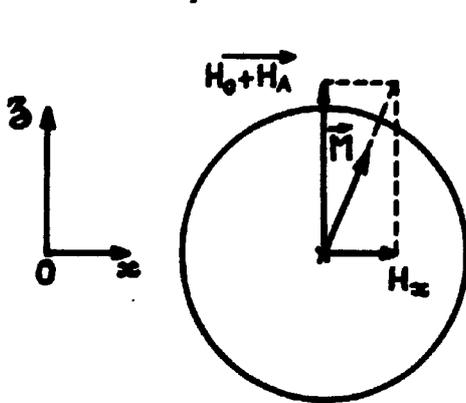


Fig. 4

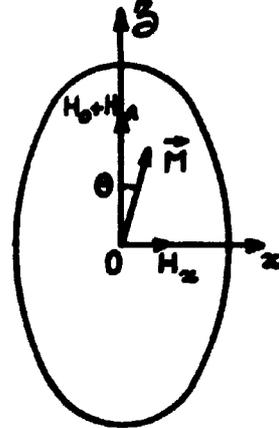


Fig. 5

Un petit champ radiofréquence transversal,  $H_1 = 2H_1 \cos \omega t$ , de pulsation  $\omega \sim \omega_0$  ( $\omega_0 = \gamma_e |H_0 + H_A|$ ) agit sur  $\vec{M}$  comme une perturbation statique et provoque de petites oscillations de  $M$  de part et d'autre de sa position d'équilibre  $\vec{M}_0$  (fig. 4). Il apparaît donc une aimantation transversale oscillante  $M_x = \chi_e H_x = \frac{M_0}{H_0 + H_A} H_x$  qui agit sur les spins nucléaires comme un champ radiofréquence

$H'_1 = \alpha M_x = \alpha \chi_e H_x = \frac{H_A}{H_0 + H_A} H_x \sim 100 H_x > H_A$ . On posera  $\eta = \frac{H_A}{H_0 + H_A}$ ;  $\eta$  est le facteur d'amplification du champ radiofréquence par les spins électroniques.

De façon identique une déflexion  $m_x$  des spins nucléaires provoquera une déflexion  $M_x = \chi_e (\alpha m_x) = \eta m_x$  de l'aimantation électronique. La densité d'aimantation induite par le champ radiofréquence sera donc égale à  $\eta m_x (H'_1)$  soit, si la résonance nucléaire n'est pas saturée, à  $\eta^2 \xi H_x$  (où  $\xi$  est la susceptibilité radiofréquence nucléaire). On voit que le signal observé sera, à largeur de raie égale,  $\eta^2$  fois plus grand que celui qu'on obtiendrait avec un échantillon diamagnétique placé dans un champ  $H_x$ .

Remarque: effets du champ démagnétisant pour un échantillon non sphérique. (fig. 5).

Supposons que l'échantillon soit un ellipsoïde de révolution allongé, les directions de  $\vec{H}_0$  et  $\vec{H}_A$  coïncidant avec son grand axe  $Ox$ . En présence d'un champ radiofréquence (quasi statique)  $H_x$ , la densité d'énergie emmagasinée pour une déflexion  $\theta$  de  $\vec{M}$  dans le plan  $(\vec{H}_0, \vec{H}_A)$  est :

$$\frac{E}{V} = -M(H_0 + H_A) \cos \theta + \frac{1}{2} (N_{||} \cos^2 \theta + N_{\perp} \sin^2 \theta) M^2 - MH_x \sin \theta$$

( $N_{||} = N_x = N_z$ ,  $N_{\perp} = N_y$  : facteurs démagnétisants ;  $N_{||} + 2N_{\perp} = 4\pi$ ,  $N_{||} > N_{\perp}$ ). En minimisant  $E$  par rapport à  $\theta$  supposé petit, on obtient la susceptibilité statique, d'où l'on tire  $\eta = \frac{H_A}{H_0 + H_A + (N_{||} - N_{\perp}) M}$ . Si  $M$  est grand et  $N_{||}$  nettement différent de  $N_{\perp}$ , l'effet sur  $\eta$  des champs démagnétisants peut être appréciable.

\* Que la largeur de raie nucléaire soit due aux interactions spin-spin entre noyaux ou à une inhomogénéité macroscopique, la saturation se produit pratiquement en deux étapes ((14) chap. III et XIII). Soit  $\xi_{\omega} = \xi_{\omega}'' + i \xi_{\omega}'$  la susceptibilité radiofréquence nucléaire dans le référentiel tournant, et supposons  $\omega > \omega_0$ ; si le champ radiofréquence effectif  $H'_1$  est très faible,  $\xi_{\omega}''$  et  $\xi_{\omega}'$  sont des constantes (calculables, en l'absence d'élargissement inhomogène, au moyen des équations de Bloch). Lorsque la saturation au sens de Bloch est réalisée ( $\gamma^2 H_1^2 T_1 T_2 \sim 1$ ),  $\xi_{\omega}'' > 0$ , et  $\xi_{\omega}'$  reste sensiblement constante. Enfin lorsque  $H_1$  devient de l'ordre de la largeur de raie ( $\geq 80$  Oe dans les cas étudiés ici),  $\xi_{\omega}''$  tend vers zéro à son tour.

2/ Calcul général de l'absorption d'énergie radiofréquence.

Pour simplifier la présentation, nous supposons que le champ radiofréquence appliqué est un champ tournant :  $H_x = H_1 \cos \omega t$ ,  $H_y = -H_1 \sin \omega t$ ,  $H' = H_x + iH_y$ . Sous l'effet de la radiofréquence apparaissent des densités d'aimantation transversales,  $M'$ ,  $m'$ , couplées entre elles et au champ radiofréquence. Si  $\chi_e'$  et  $\chi_n'$  sont les susceptibilités électronique et nucléaire dans le référentiel tournant:

$$\begin{cases} M' = \chi_e' (\alpha m' + H') \\ m' = \chi_n' (\alpha M' + H') \end{cases} \quad [\text{II } 2]$$

$$m' = \frac{\chi_n' (1 + \alpha \chi_e')}{1 - \alpha^2 \chi_e' \chi_n'} H' \quad \text{et} \quad M' = \frac{\chi_e' (1 + \alpha \chi_n')}{1 - \alpha^2 \chi_e' \chi_n'} H'$$

La susceptibilité radiofréquence de l'échantillon sera égale à

$$\frac{M' + m'}{H'} = \frac{\chi_e' + 2\alpha \chi_e' \chi_n' + \chi_n'}{1 - \alpha^2 \chi_e' \chi_n'} = \chi_e' + \frac{(1 + \alpha \chi_n')^2}{\chi_e' - \alpha^2 \chi_n'} \quad [\text{II } 3]$$

Dans cette expression  $\alpha \sim 10^2$  et  $\chi' \sim \frac{M_z}{H_0 + H_A} \sim 10^{-1}$  à 1 ;  $\alpha \chi_e'$  étant très supérieur à 1, on peut simplifier l'expression de la susceptibilité radiofréquence de l'échantillon. Donc

$$\frac{M' + m'}{H'} \approx \chi_e' \left( 1 + \frac{\alpha^2 \chi_n'}{\chi_e' - \alpha^2 \chi_n'} \right) \quad [\text{II } 4]$$

Pour avoir un ordre de grandeur de  $\chi_n'$ , nous utiliserons l'expression valable loin de la saturation :

$$\chi_n' = - \frac{\gamma_n m_z}{\omega - \gamma_n (\alpha M_z + H_0) + \frac{1}{T_2}}$$

(où  $\frac{1}{T_2}$  représente une largeur inhomogène), et nous utiliserons les données numériques correspondant au cas, relativement standard, du moment nucléaire de  $^{59}\text{Co}$  dans le cobalt métallique (rapelons que le cobalt naturel est concentré à 100 % en isotope  $^{59}\text{Co}$ ) :

Pour  $^{59}\text{Co}$ ,  $I = \frac{7}{2}$ ,  $\gamma_n = 2\pi \cdot 10^3$ ,  $\nu_n = 220 \text{ Mc/s}$  donc  $H_n = 220 \text{ 000 Oe}$  (correspondant à  $M = 1 \text{ 400 c. g. s.}$ ,  $\alpha = 155$ ) ;  $v$  volume par atome  $\sim 11 \text{ \AA}^3$ . On trouve :

$$m_z = \frac{3,2 \cdot 10^{-2}}{T} \text{ c. g. s.} ; \text{ à } 300 \text{ }^\circ\text{K} : m_z \sim 10^{-5}$$

Par ailleurs la largeur de raie nucléaire est de l'ordre de 400 kc/s (400 Oe). Les extréma des parties réelle et imaginaire de  $\chi_n'$  seront donc :

$$\chi_{n, \text{re}}' \sim \frac{\gamma_n m_z}{1/T_2} \sim 2 \cdot 10^{-7}$$

Lorsqu'on fait varier  $\omega$  au voisinage de  $\omega_n$ ,  $\chi_e'$  ne change pratiquement pas mais  $\chi_n'$  change. La partie réelle de :

$$\frac{1}{\chi_e'} - \alpha^2 \chi_n' = \frac{1}{-\gamma_n m_z} \left[ \omega - \gamma_n (H_n + H_0) + \gamma_n m_z \alpha^2 \text{Re } \chi_{n, \text{re}}' + \frac{1}{T_2} + i \gamma_n m_z \alpha^2 \text{Im } \chi_{n, \text{im}}' \right] \quad [\text{II } 5]$$

devient égale à zéro pour  $\omega = \gamma_n (H_n + H_0) - \gamma_n m_z \alpha^2 \text{Re } \chi_{n, \text{re}}'$ . Ceci définit la pulsation de résonance nucléaire, qui n'est pas égale à  $\omega = \gamma_n (H_n + H_0)$  comme on s'y attendait. En fait le déplacement de fréquence :

$$\delta\omega = -\omega_n \frac{m}{M_1} \propto \text{Re } \chi_{\omega_n}^* \quad \text{[II 6]}$$

est habituellement très petit devant  $\omega_n$  ( $\sim 10^{-3}\omega_n$  à  $1^\circ\text{K}$ ). De même le terme d'élargissement homogène  $\gamma_n m \alpha^2 \text{Im } \chi_{\omega_n}^*$  sera très petit devant  $(1/T_2^*)$ . Donc :

$$\frac{M^* + m^*}{H^*} \approx \frac{M^*}{H^*} = \chi_{\omega}^* + \alpha^2 \chi_{\omega}^{*2} \xi_{\omega}^* \quad \text{[II 7]}$$

Ceci dit, on voit que la présence des spins nucléaires revient à ajouter à la susceptibilité électronique un terme supplémentaire  $\alpha^2 \chi^{*2} \xi^*$ . L'interprétation de ce terme a été donnée au paragraphe 1. Seule différence : dans le cas général  $\chi^*$  aura une partie imaginaire non nulle, due aux effets d'amortissement.

Calculons maintenant la puissance absorbée par l'échantillon (cf. App. A).

$$\dot{P} = +\omega H_1^2 \text{Im} [\chi_{\omega}^* + \alpha^2 \chi_{\omega}^{*2} \xi_{\omega}^*]$$

$$\text{Si } \chi_{\omega}^* = \chi_{\omega}^{\prime*} + i \chi_{\omega}^{\prime\prime*} \text{ et } \xi_{\omega}^* = \xi_{\omega}^{\prime*} + i \xi_{\omega}^{\prime\prime*}$$

$$\dot{P} = +\omega H_1^2 \{ \chi_{\omega}^{\prime\prime*} + \alpha^2 [ (\chi_{\omega}^{\prime*2} - \chi_{\omega}^{\prime\prime*2}) \xi_{\omega}^{\prime\prime*} + 2 \chi_{\omega}^{\prime*} \chi_{\omega}^{\prime\prime*} \xi_{\omega}^{\prime*} ] \}$$

Au voisinage de  $\omega = \omega_n$ , les quantités  $\chi_{\omega}^{\prime*}$ ,  $\chi_{\omega}^{\prime\prime*}$  sont pratiquement constantes. Le passage par la résonance se traduira par une variation de  $\dot{P}$  :

$$\Delta \dot{P} = +\omega H_1^2 \alpha^2 [ (\chi_{\omega}^{\prime*2} - \chi_{\omega}^{\prime\prime*2}) \xi_{\omega}^{\prime\prime*} + 2 \chi_{\omega}^{\prime*} \chi_{\omega}^{\prime\prime*} \xi_{\omega}^{\prime*} ] \quad \text{[II 8]}$$

La courbe  $\Delta \dot{P}$  sera la somme d'une courbe d'absorption (termes en  $\xi_{\omega}^{\prime\prime*}$ ) et d'une courbe de dispersion (termes en  $\xi_{\omega}^{\prime*}$ ).

Ordres de grandeur pour un isolant (termes d'amortissement petits) ; si l'équation de mouvement de l'aimantation électronique est du type de Landau-Lifshitz\*\* :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \vec{M} \wedge \vec{H} - \frac{\lambda}{M^2} \vec{M} \wedge (\vec{M} \wedge \vec{H})$$

où  $H_z = H_0 + H_A$  et où le second terme représente de façon phénoménologique l'amortissement :

$$\chi_{\omega_n}^{\prime*} = \frac{M_z}{H_z} \left[ 1 + \frac{\omega_n (-\omega_n + \gamma H_z)}{(-\omega_n + \gamma H_z)^2 + \frac{1}{T_2^*}} \right] \text{ et } \chi_{\omega_n}^{\prime\prime*} = \frac{M_z}{H_z} \left[ \frac{\omega_n 1/T_2^*}{(-\omega_n + \gamma H_z)^2 + \frac{1}{T_2^*}} \right] \quad \text{[II 9]}$$

(avec  $1/T_2^* = \lambda \frac{H_z}{M}$ ). Usuellement :

$$\omega_n \sim 10^8 - 10^9, \quad \gamma H_z \sim 10^{10} - 10^{11}, \quad M/H_z \sim \text{qq. } 10^{-1}, \quad \frac{(1/T_2^*)}{\gamma H_z} \sim 10^{-2} \text{ à } 10^{-1}$$

Donc :

$$\chi_{\omega_n}^{\prime*} \sim \text{qq. } 10^{-1} \text{ et } \chi_{\omega_n}^{\prime\prime*} \sim 10^{-3} \text{ à } 10^{-2} \ll \chi_{\omega_n}^{\prime*}$$

Par conséquent :

Si la résonance nucléaire n'est pas saturée du tout,  $\Delta \dot{P}$  aura la forme d'une courbe d'absorption correspondant à une susceptibilité  $\alpha^2 \chi^{\prime*2} \xi^{\prime\prime*} \sim 10^{-5}$  à  $10^{-3}$ . Si la résonance est saturée au sens de Bloch, ce qui se produit facilement à cause des effets d'amplification du champ radiofré-

-----

\* Voir aussi chap. III p. 28.

\*\* L'équation de Bloch permet de décrire assez correctement le comportement des spins nucléaires, lorsque le champ radiofréquence a une pulsation  $\omega \sim \omega_n$  et n'est pas trop grand. Mais pour les spins électroniques, dont les fréquences propres sont très supérieures à  $\omega_n$  et la relaxation relativement rapide ( $1/T_2^* \gg \omega_n$ ), il est nécessaire d'utiliser une équation de mouvement dans laquelle la relaxation s'effectue vers le champ (assisté) (15).

quence,  $\Delta\bar{P}$  aura la forme d'une courbe de dispersion et  $\frac{\Delta\bar{P}}{P}$  sera de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-3}$ , correspondant à une susceptibilité de l'ordre de  $10^{-7}$  à  $10^{-6}$ .

En fait, presque tous les ferromagnétiques sont des conducteurs de l'électricité (16), et les effets dissipatifs dus aux courants de Foucault peuvent introduire dans  $\chi$  des termes d'amortissement très importants. Mais la plupart des mesures sur les métaux ont été faites sur des échantillons polydomaines : nous reviendrons sur les effets des courants de Foucault dans le chapitre correspondant.

Remarquons enfin que si l'amortissement des spins électroniques est négligeable ( $\chi_{\omega}^* = \text{Re } \chi_{\omega}^* = \chi_0^* = \frac{M_A}{H_0 + H_A}$ ), la variation relative  $\alpha \eta \xi'$  de la susceptibilité électronique sous l'effet des spins nucléaires, et le déplacement de la fréquence de résonance nucléaire :

$$\delta\omega = -\omega_n \eta \frac{m_x}{M_x} = -\omega_n \frac{H_0}{H_0 + H_A} \frac{m_x}{M_x} = -\gamma_n \alpha \eta m_x, \quad [\text{II. 10}]$$

sont deux quantités proportionnelles.

## B - FERRIMAGNETIQUE A DEUX SOUS-RESEAUX .N CHAMP FORT ET ANTIFERROMAGNETIQUES -

Soient A et B les deux sous-réseaux de spins électroniques,  $\vec{H}_A$  et  $\vec{H}_B$  les champs d'anisotropie correspondants,  $\vec{H}_0$  le champ extérieur ( $\vec{H}_A, \vec{H}_B, \vec{H}_0$  parallèles à Oz,  $\frac{H_B}{H_A} < 0$ ),  $-\lambda, \vec{M}_A, \vec{M}_B$  le couplage d'échange entre sous-réseaux ( $\lambda < 0$ ),  $\vec{m}_A, \vec{m}_B$  les densités d'aimantation nucléaire associées aux sous-réseaux A, B.

$$\begin{aligned} (1/V)\mathcal{E}_{\alpha_1, \alpha_2} &= -\alpha_A \vec{M}_A \cdot \vec{m}_A \\ (1/V)\mathcal{E}_{\alpha_1, \alpha_2} &= -\alpha_B \vec{M}_B \cdot \vec{m}_B \end{aligned} \quad [\text{II. 11}]$$

### 1/ Effets d'amplification : discussion qualitative.

La différence essentielle avec le cas ferromagnétique vient de ce que, ici, le champ radiofréquence appliqué  $H^*$ , et les champs  $\alpha_A m_A^*, \alpha_B m_B^*$  exercés par les spins nucléaires sur les spins électroniques ne jouent pas le même rôle. En effet le champ  $H^*$  agit à la fois sur les deux sous-réseaux, tandis que le champ  $\alpha_A m_A^*$  n'est couplé qu'au sous-réseau A. Les réponses d'un sous-réseau en présence des champs  $H^*, \alpha_A m_A^*, \alpha_B m_B^*$  seront donc différentes. Cette remarque permettra de comprendre pourquoi, dans un antiferromagnétique, le déplacement de fréquence est du même ordre que dans un ferromagnétique. alors que l'absorption d'énergie est beaucoup plus faible.

On conçoit que, pour un ferrimagnétique, qui possède un moment résultant non nul et un mode uniforme de basse fréquence, les résultats seront analogues à ceux déjà obtenus pour un ferromagnétique. Nous discuterons donc le cas antiferromagnétique (en supposant  $\vec{H}_0 = 0$ ).

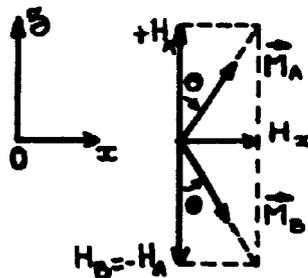


Fig. 6

Dans ce cas (cf. fig. 6)  $H_A = -H_B$  et à l'équilibre  $\vec{M}_A = -\vec{M}_B$ . Nous poserons  $H_{ex} = \lambda_e M_B$  ( $H_{ex}$  est le champ d'échange auquel sont soumis les spins du sous-réseau A). Appliquons au système un petit champ radiofréquence  $H^*$ . Ce champ tend à produire des déflexions  $\theta$  des aimantations des sous-réseaux. Mais de telles déflexions font varier l'énergie d'échange et l'on voit que la susceptibilité d'un sous-réseau va être de l'ordre de  $|M| / |\lambda_e M| \sim |M| / H_{ex} \ll 1$ . Donc le facteur d'am-

plification du champ radiofréquence sera  $\frac{\alpha |M|}{H_{\text{eff}}} = \frac{H_0}{H_{\text{eff}}} \sim 10^3 10^{-4} \sim \frac{1}{10} < 1$ . L'effet d'amplification directe a donc disparu.

Supposons maintenant que le couplage direct de l'aimantation nucléaire avec le champ radiofréquence ait créé une composante transversale  $m_A^x$ . Le sous-réseau A (et lui seul) va être soumis à un champ  $\alpha_A m_A^x$ . En l'absence d'anisotropie la susceptibilité transversale d'un sous-réseau serait très grande et la susceptibilité totale du système nulle comme le montre la figure 7a.



fig. 7a

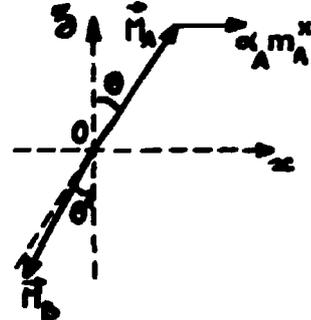


fig. 7b

En fait, l'anisotropie limitant la rotation des sous-réseaux, la situation sera la suivante :

- la susceptibilité de chaque sous-réseau sera de l'ordre de  $\frac{|M|}{H_A}$  : le champ  $\alpha_A m_A^x$  entraîne donc des déflexions importantes des sous-réseaux (fig. 7b). Par suite, le déplacement de la fréquence de résonance nucléaire sera aussi important que dans un ferromagnétique.

- malheureusement ces susceptibilités  $\eta_{AA} / \alpha_A$ ,  $\eta_{BA} / \alpha_A$  sont de signes contraires, et la puissance absorbée par les spins électroniques du fait de leur couplage avec les spins nucléaires est proportionnelle à  $\left( \frac{\eta_{AA} + \eta_{BA}}{\alpha_A} \right) \xi^* \sim \frac{H_A}{H_{\text{eff}}} \frac{\eta_{AA}}{\alpha_A} \xi^* \sim \frac{H_A}{H_{\text{eff}}} \xi^* < \xi^*$  : le second effet d'amplification disparaît donc aussi. Par suite, dans un antiferromagnétique comme dans une substance diamagnétique, la résonance nucléaire ne pourra être excitée et détectée que par couplage direct de l'aimantation nucléaire et du champ radiofréquence.

## 2/ Formules explicites.

Nous négligeons l'amortissement des spins électroniques. Dans l'approximation statique les aimantations  $M_A^*$ ,  $M_B^*$  des deux sous-réseaux électroniques sont données par :

$$\begin{cases} (H_A + H_0 + \lambda_B M_B) M_A^* - \lambda_B M_A M_B^* = \alpha_A M_A m_A^* + M_A H^* \\ - \lambda_B M_B M_A^* + (H_B + H_0 + \lambda_A M_A) M_B^* = \alpha_B M_B m_B^* + M_B H^* \end{cases} \quad \text{II. 12}$$

D'où l'on tire :

$$M_A^* = \frac{\alpha_A M_A (H_B + H_0 + \lambda_B M_B) m_A^* + \alpha_B M_B \lambda_B M_A m_B^* + M_A (H_B + H_0 + \lambda_B (M_A + M_B)) H^*}{\lambda_B (M_A H_A + M_B H_B) + H_0 \lambda_B (M_A + M_B) + H_0^2 + H_0 (H_A + H_B) + H_A H_B} \quad \text{II. 13}$$

et une expression analogue pour  $M_B^*$  en intervertissant les indices A et B.

Soit en résumé

$$\begin{cases} M_A^* = \eta_{AA} m_A^* + \eta_{AB} m_B^* + \chi_A H^* \\ M_B^* = \eta_{BA} m_A^* + \eta_{BB} m_B^* + \chi_B H^* \end{cases} \quad \text{II. 14}$$

avec :  $\eta_{AA} + \eta_{BA} = \alpha_A \chi_A$ ,  $\eta_{BB} + \eta_{AB} = \alpha_B \chi_B$

\* Il n'en est pas de même dans les "canted antiferromagnets" (ferromagnétiques faibles) comme  $KM_2F_7$ , ... dont le moment résultant est non nul et pour lesquels le champ d'anisotropie "ordinaire" est très faible (cf. chap. III).

Par ailleurs, pour les aimantations nucléaires:

$$\begin{cases} m_A^* = \xi_{AA}^* (H^* + \alpha_A M_A^*) \\ m_B^* = \xi_{BB}^* (H^* + \alpha_B M_B^*) \end{cases} \quad \text{[II 15]}$$

d'où l'on déduit finalement :

$$\begin{aligned} & \frac{M_A^* + M_B^* + m_A^* + m_B^*}{H^*} \\ \chi_A + \chi_B + & \frac{(1 + \eta_{AA} + \eta_{BA}) [\xi_A^* (1 + \alpha_A \chi_A) (1 - \alpha_B \eta_{BB} \xi_B^*) + \xi_A^* \xi_B^* (1 + \alpha_B \chi_B) \alpha_A \eta_{AB}]}{(1 - \alpha_A \eta_{AA} \xi_A^*) (1 - \alpha_B \eta_{BB} \xi_B^*) - \xi_A^* \xi_B^* \alpha_A \alpha_B \eta_{AB} \eta_{BA}} \\ & + \frac{(1 + \eta_{BB} + \eta_{AB}) [\xi_B^* (1 + \alpha_B \chi_B) (1 - \alpha_A \eta_{AA} \xi_A^*) + \xi_A^* \xi_B^* (1 + \alpha_A \chi_A) \alpha_B \eta_{BA}]}{(1 - \alpha_A \eta_{AA} \xi_A^*) (1 - \alpha_B \eta_{BB} \xi_B^*) - \xi_A^* \xi_B^* \alpha_A \alpha_B \eta_{AB} \eta_{BA}} \end{aligned} \quad \text{[II 16]}$$

Les formules (II 13, 14) montrent, comme nous l'avions annoncé, que:

$$\frac{\eta_{AA}}{\alpha_A} \sim \frac{\eta_{BA}}{\alpha_B} \sim \frac{|M|}{H_A}$$

$\eta_{AA}$ ,  $\eta_{BA}$  sont donc du même ordre que le facteur d'amplification dans un ferromagnétique. Mais on a aussi :

$$\eta_{AA} + \eta_{BA} = \alpha_A \chi_A \text{ avec } \begin{cases} \alpha_A \chi_A \sim \frac{H_A}{H_A} > 1 \text{ dans un ferrimagnétique} \\ \text{mais} \\ \alpha_A \chi_A = \frac{H_A (H_A - H_0)}{2 H_{0A} H_A} < 1 \text{ dans un antiferromagnétique } (H_{0A} = \lambda_A M_B). \end{cases}$$



Fig. 8

Dans un ferrimagnétique  $\omega_A^* \neq \omega_B^*$ , et dans un antiferromagnétique les vitesses angulaires de précessions des aimantations  $m_A^*$ ,  $m_B^*$  autour de Oz, à résonance, sont de signes contraires (fig. 8). Donc si  $\xi_A^* \neq 0$ ,  $\xi_B^* \approx 0$  et inversement, ce qui permet de récrire l'équation (II 16) (pour  $\xi_A^* \neq 0$ ) :

$$\frac{M_A^* + M_B^* + m_A^* + m_B^*}{H^*} = \chi_A + \chi_B + \frac{(1 + \alpha_A \chi_A)^2}{\xi_A^* - \alpha_A \eta_{AA}} \quad \text{[II 17]}$$

(dans le cas ferromagnétique  $\chi_B = 0$ ,  $\eta_{AA} = \alpha_A \chi_A$  et l'on retrouve la formule (II 3)). On voit que le déplacement de fréquence est égal à

$$\delta \omega^* = - \omega_A^* \eta_{AA} \frac{m_A^*}{M_A^*} \quad \text{[II 18]}$$

expression analogue à (II. 10), avec pour un ferromagnétique  $\eta = \frac{H_0}{H_0 + H_A}$  et pour un antiferromagnétique  $\eta_{AA} \approx \frac{H_0}{2H_A}$ .

Plus précisément dans un antiferromagnétique la pulsation de résonance nucléaire du sous-réseau A est égale à

$$\begin{aligned} \omega &= \omega_A^A + \gamma_0 H_0 - \omega_A^A \frac{H_0^A (H_{0A} + H_A)}{2H_{0A} H_A + H_A^2 - H_0^2} + \gamma_0 H_0 \frac{H_0^{A2}}{2H_A H_{0A} + H_A^2 - H_0^2} \frac{m_A^2}{M_A} \\ &\approx \omega_A^A \left[ 1 - \frac{H_0^A m_A^2}{2H_A M_A} \right] + \gamma_0 H_0 \left[ 1 + \frac{H_0^2}{2H_A H_{0A}} \frac{m_A^2}{M_A} \right] \end{aligned}$$

Le déplacement de fréquence s'accompagne donc en principe d'une anomalie de rapport gyromagnétique, mais beaucoup trop petite pour être observable.

Enfin, en ce qui concerne l'absorption d'énergie radiofréquence, elle est beaucoup plus importante dans les ferrimagnétiques, comme on l'avait prévu. *L'intérêt des ferrimagnétiques est donc double* : d'une part les signaux de résonance nucléaire y sont aussi intenses que dans les ferromagnétiques ; d'autre part les ferrimagnétiques sont presque tous des isolants électriques (17). Par suite :

- a) la pénétration de la radiofréquence n'est pas limitée par l'effet de peau
- b) les effets dissipatifs parasites dus aux courants de Foucault y sont inexistantes.

### III - MODES DE PRÉCESSION DE L'AIMANTATION NUCLÉAIRE DANS UNE SUBSTANCE MAGNÉTIQUE APPLICATION A L'INTERPRÉTATION DES EXPÉRIENCES DE RÉSONANCE NUCLÉAIRE DANS $K Mn F_3$ (13) (18)\*

Au chapitre précédent nous avons vu que, dans une substance magnétique, la fréquence de résonance nucléaire est légèrement différente de la valeur prévue par un raisonnement simple. Nous allons relier cet effet à l'interaction indirecte de Suhl-Nakamura entre spins nucléaires.

Suhl (19 a) et Nakamura (19 b) ont en effet démontré que dans les substances magnétiques, il existait entre les spins nucléaires un couplage indirect par l'intermédiaire d'ondes de spin (électroniques) virtuelles. Cette interaction est faible, mais a une très grande portée, si bien qu'elle apporte une contribution appréciable à la largeur de raie nucléaire. Nous verrons qu'elle est également responsable du déplacement de la fréquence de résonance nucléaire, déplacement qui peut être observable à très basse température sur des échantillons concentrés en spins nucléaires, et qui - ainsi que l'a remarqué De Gennes - joue un rôle essentiel dans les expériences faites sur le ferromagnétique faible  $K Mn F_3$ .

Dans toutes les expériences de résonance magnétique (cf. chap. II) on étudie en quelque sorte les effets du couplage entre le mode uniforme des spins électroniques et le mode uniforme des spins nucléaires. De façon plus générale, nous verrons que l'interaction indirecte de Suhl-Nakamura donne naissance à un spectre d'ondes de spin nucléaires, et que ce spectre a un sens, même si les spins nucléaires sont très éloignés d'un état ordonné, à cause de la grande portée de l'interaction.

#### A - DISCUSSION QUALITATIVE (CAS FERROMAGNETIQUE) -

1/ Au début du chapitre II nous avons, pour obtenir la pulsation de résonance  $\omega_n$ , fait le raisonnement suivant : si l'interaction hyperfine entre les spins  $S_i$  et  $I_i$  est :  $\mathcal{H} = A I_i S_i$ , le champ hyperfin moyen "vu" par le noyau est égal à  $\vec{H}_n = -\frac{A \langle S_i \rangle}{\hbar \gamma_n}$ , et, dans ce champ, la pulsation de résonance nucléaire est  $\omega_n = \gamma_n H_n$ . Ce raisonnement néglige l'effet au 2e ordre du couplage  $\mathcal{H}'$  entre le spin nucléaire et les excitations des spins électroniques :

$$\mathcal{H}' = A (S_i^+ I_i^- + S_i^- I_i^+) \quad \text{[III 1]}$$

Considérons par exemple le cas d'un échantillon ferromagnétique uniformément aimanté, à une température très inférieure à la température de Curie : dans ce cas, en désignant par  $a_i^+$  et  $a_i^-$  les opérateurs de création et d'annihilation de l'onde de spin électronique de vecteur d'onde  $k$ , et par  $\omega_k$  sa pulsation propre :

$$\mathcal{H}' = \frac{A \sqrt{2S}}{2 \sqrt{N}} \sum_k (a_k^- I_i^- + a_k^+ I_i^+) \quad \text{[III 2]}$$

et l'on vérifie aisément que  $\mathcal{H}'$  donne naissance à un terme de "self énergie" du spin nucléaire :

$$\frac{A^2 S}{2N} \sum_k \frac{2n_k^+ + 1}{\hbar \omega_k} I_i^- - \frac{A^2 S}{2N} \left( \sum_k \frac{1}{\hbar \omega_k} \right) (I(I+1) - I_i^2) \quad \text{[III 3]}$$

\* Ce travail a été fait en collaboration avec P. Pincus, sous la direction de M. de Gennes à qui nous devons de nombreuses suggestions et remarques. Nous nous bornerons ici à essayer de dégager les grandes lignes de cette étude.

qui est de l'ordre de :

$$\hbar \omega_e \times \left[ \omega_e \cdot \frac{1}{N} \sum \frac{1}{\omega_i} \right] \sim \omega_e \times \frac{\omega_e}{\omega_{ee}}$$

(où  $\omega_{ee}$  est la pulsation associée au couplage d'échange entre spins électroniques :  $\omega_{ee} = \gamma_e H_{ee} \sim 10^{13}$ ), donc effectivement très petit (20).

Il n'en est plus de même si l'échantillon est concentré en spins nucléaires : en effet, comme nous allons le voir, toute distorsion de l'un d'entre eux,  $\vec{I}_i$ , est immédiatement transmise à un très grand nombre d'autres spins nucléaires  $\vec{I}_j$  : autrement dit, il existe entre les spins nucléaires une interaction à très grande portée,  $b$ , qui peut donc avoir un effet appréciable sur les excitations collectives de grande longueur d'onde ( $\lambda \gg b$ ) de ces spins.

Bien entendu, puisqu'il s'agit d'effets collectifs, faisant intervenir les corrélations entre les mouvements de différents spins nucléaires, ces effets ne pourront être importants que dans les substances très concentrées en spins nucléaires (composés de  $\text{Co}^{59}$  : 100 % de  $\text{Co}^{59}$  ou de  $\text{Mn}^{55}$  : 100 % de  $\text{Mn}^{55}$ ) ; en particulier ils sont absolument négligeables dans le grenat de fer et d'yttrium (2 % de  $^{57}\text{Fe}$ ).

2/ Essayons de retrouver par des considérations qualitatives simples, quels sont les facteurs qui déterminent la portée et la grandeur de l'interaction de Suhl-Nakamura. Nous négligeons dans ce qui suit tout effet de champ démagnétisant, et supposons les spins électroniques soumis :

- ( $\alpha$ ) à des couplages d'échange caractérisés par la pulsation  $\omega_{ee}$ ,
- ( $\beta$ ) au champ d'anisotropie  $\vec{H}_A$  et au champ appliqué  $\vec{H}_0$  ( $\omega_e = \gamma_e (H_0 + H_A)$ ).

Supposons de plus que l'un des spins électroniques,  $\vec{S}_i$ , soit couplé à un spin nucléaire  $\vec{I}_i$ , et que  $\vec{I}_i$  subisse une déflexion  $\theta$  (fig. 9) :

- (a) Si  $\omega_{ee}$  était nul tous les spins électroniques subiraient une déflexion  $\theta$  (fig. 10). Donc, si l'un d'eux  $\vec{S}_j$  est couplé à un spin nucléaire  $\vec{I}_j$ , ce spin  $\vec{I}_j$  subirait aussi une déflexion  $\theta$  : il existerait donc entre  $\vec{I}_i$  et  $\vec{I}_j$  une interaction indirecte de portée infinie.
- (b) Si  $\omega_{ee}$  était nul, le spin  $\vec{S}_i$  subirait une déflexion :

$$\theta' = \frac{AI\theta}{\hbar \omega_e} \ll \theta$$

les autres spins ne seraient pas défléchis (fig. 11) ; l'interaction indirecte  $\vec{I}_i, \vec{I}_j$  aurait donc une portée nulle.

(c) En pratique nous aurons une situation intermédiaire (fig. 12) : les spins voisins de  $i$  subiront une distorsion, les autres non - la distorsion (en "toile de tente") s'étendant évidemment

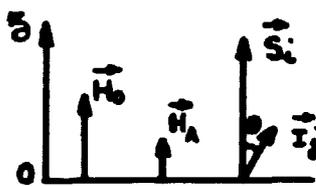


Fig. 9

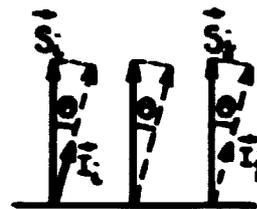


Fig. 10

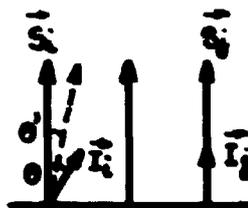


Fig. 11

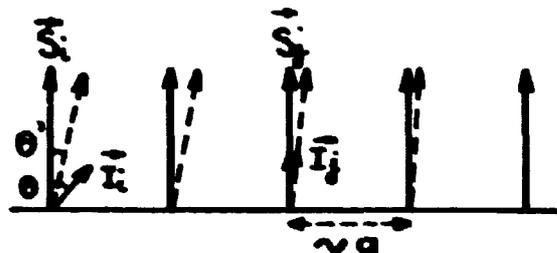


Fig. 12

d'autant plus loin que le couplage d'échange est plus grand. On est donc amené à penser que la portée de l'interaction dépend du rapport  $\frac{\omega_{ex}}{\omega_q}$  : nous verrons effectivement bientôt que  $b \sim a \sqrt{\frac{\omega_{ex}}{\omega_q}}$  (où  $a$  est la longueur - de l'ordre des distances interatomiques - qui intervient dans la loi de dispersion des ondes de spin : cf. éq. III 5 ci-dessous). Typiquement  $b \sim 30 a$ .

Venons en maintenant à la grandeur de la déflexion  $\theta^i(r_{ij})$  subie par le  $j^o$  spin nucléaire : elle sera évidemment d'autant plus grande que la constante  $A$  de couplage hyperfin sera plus grande. On conçoit d'autre part que, pour  $\omega_q$  donné, la déflexion sera d'autant plus faible que le nombre de spins électroniques défléchis, et donc  $\omega_{ex}$ , seront plus grands.

Comparons ceci aux résultats du calcul : on peut démontrer, par un calcul de perturbation du 2e ordre, que le hamiltonien nucléaire correspondant à l'interaction de Suhl s'écrit :

$$\mathcal{H} = - \frac{A^2 S}{2} \sum_{i,j} I_i^+ I_j^- \frac{1}{N} \sum_q \frac{e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}_i - \vec{r}_j)}}{\hbar \omega_q} = \sum_{i,j} \mathcal{H}_{ij} \quad \text{[III 4]}$$

où  $\omega_q$  est la pulsation propre de l'onde de spin électronique de vecteur d'onde  $\vec{q}$  ; rappelons à ce propos que si l'on tient compte de façon approximative des effets de champ démagnétisant :

$$\begin{aligned} \text{pour } \vec{q} = 0 & \quad \omega_q = \omega_0 & \quad \text{avec } \omega_0 = \gamma_0 (H_0 + H_A) \\ \text{pour } \vec{q} \neq 0 & \quad \omega_q = \omega_0 + \omega_{ex} a^2 q^2 & \quad \text{avec } \omega_0 = \gamma_0 (H_0 + H_A - NM) \end{aligned} \quad \text{[III 5]}$$

On déduit alors de III 4 et III 5, que si les atomes  $i$  et  $j$  ne sont pas trop rapprochés ( $r_{ij}/a \gg 1$ ):

$$\mathcal{H}_{ij} \approx - \frac{\hbar \omega_{ex}}{2S} \frac{\omega_0}{4\pi \omega_{ex}} \frac{a}{r_{ij}} \exp. \left( - \sqrt{\frac{\omega_0}{\omega_{ex}}} \frac{r_{ij}}{a} \right) (I_i^+ I_j^- + I_j^+ I_i^-) \quad \text{[III 6]}$$

résultat qui est en bon accord avec les considérations qualitatives précédentes ( $\omega_{ex} \sim \omega_0$ ).

### B - INTERACTION DE SUHL ET DEPLACEMENT DE FREQUENCE DANS UN FERROMAGNETIQUE -

1/ La forme même (III 4) de l'interaction de Suhl donne à penser que, dans un milieu concentré à 100 % en spins nucléaires, et tout au moins aux températures extrêmement basses ( $< \frac{1}{100}$  °K) pour lesquelles  $\langle I_z \rangle \sim I$ , les modes propres des spins nucléaires seront des "ondes de spin nucléaires"  $A_q^+$ , telles que :

$$I_i^+ = \frac{1}{N} \sum_q A_q^+ e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_i} \quad \text{[III 7]}$$

Ecrivons l'équation d'évolution de  $A_q^+$  :

$$\begin{aligned} \frac{\hbar}{i} \frac{d}{dt} \left( \sum_q I_i^+ e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_i} \right) &= \left[ \mathcal{H}, \sum_q I_i^+ e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_i} \right] \\ &= (+ AS - \hbar \gamma_0 H_0) \sum_q I_i^+ e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_i} + \frac{1}{N} \sum_q \sum_{i,j} I_i^+ I_j^+ e^{i(\vec{q}-\vec{q}') \cdot \vec{r}_i + i\vec{q}' \cdot \vec{r}_j} \frac{A^2 S}{\hbar \omega_q} \end{aligned} \quad \text{[III 8]}$$

Supposons que nous puissions, au 2e membre de cette équation, remplacer  $I_j^+$  par  $\langle I_z \rangle$ , valeur moyenne de la polarisation nucléaire à la température  $T$ . Cette méthode est certainement valable à très très basse température ( $\langle I_z \rangle \sim I$ ). Nous vérifierons ultérieurement qu'elle le reste à des températures  $T \sim 1^\circ K, 4^\circ K$  pour lesquelles  $\langle I_z \rangle \ll I$ . Il vient pour finir :

$$\frac{\hbar}{i} \frac{d A_q^+}{dt} = \left( AS + \frac{A^2 S \langle I_z \rangle}{\hbar \omega_q^2} \right) A_q^+ - \hbar \gamma_0 H_0 A_q^+ \quad \text{[III 9]}$$

La pulsation propre  $\Omega_q^+$  du mode nucléaire  $A_q^+$  est donc :

$$\hbar \Omega_q^+ = - AS \left( 1 + \frac{A \langle I_z \rangle}{\hbar \omega_q^2} \right) + \gamma_0 H_0 \quad \text{[III 10]}$$

et l'on vérifie aisément que le déplacement de fréquence relatif :

$$\frac{A \langle I_z \rangle}{\hbar \omega_q} = - \left| \frac{\omega_n \langle I_z \rangle}{\omega_q S} \right| \quad \text{[III, 11]}$$

est aussi égal, pour le mode uniforme à :

$$- \eta \frac{m_I}{M_I} \quad \text{[III, 12]}$$

en accord avec la formule (II, 10) obtenue dans le chapitre II.

2/ La méthode utilisée dans ce chapitre, qui revient à écrire les équations de mouvement couplées des modes uniformes électronique et nucléaire, peut également être généralisée de la façon suivante : dans un milieu concentré à 100 % en spins nucléaires, les équations de mouvement couplées des spins électroniques et nucléaires s'écrivent, après linéarisation :

$$\begin{cases} \omega S_n^* = \sum_m \omega_{nm} (S_n^* - S_m^*) + \omega_n S_n^* - \frac{A}{\hbar} \langle I_z \rangle S_n^* - S I_n^* \\ \omega I_n^* = - \frac{A}{\hbar} (S I_n^* - \langle I_z \rangle S_n^*) + \gamma_n H_n I_n^* \end{cases} \quad \text{[III, 13]}$$

(où  $S^{-1} \hbar \omega_{nm}$  est le couplage d'échange entre les spins électroniques  $\vec{S}_n$  et  $\vec{S}_m$ ). Les modes propres de l'équation (III, 13) sont des ondes progressives :

$$\begin{cases} S_n^* = u e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_n} \\ I_n^* = v e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_n} \end{cases} \quad \text{[III, 14]}$$

En fonction de u et v les équations (III, 13) deviennent :

$$\begin{cases} (\omega - \omega_q + (A/\hbar) \langle I_z \rangle) u - (A/\hbar) S v = 0 \\ - (A/\hbar) \langle I_z \rangle u + (\omega + (A/\hbar) S - \gamma_n H_n) v = 0 \end{cases} \quad \text{[III, 15]}$$

Ces équations sont tout à fait analogues à celles qui décriraient les oscillations de deux circuits électriques de pulsations propres très différentes ( $\omega_q$  et  $\omega_n$ ), faiblement couplés entre eux : ce couplage va donc avoir pour effet d'écarter légèrement leurs fréquences d'oscillation.

L'équation séculaire correspondante s'écrit :

$$\left[ \omega - \omega_q + \frac{A}{\hbar} \langle I_z \rangle \right] \left[ \omega + \frac{AS}{\hbar} - \gamma_n H_n \right] - A^2 S \langle I_z \rangle = 0 \quad \text{[III, 16]}$$

et, puisque le terme de couplage est faible, cette équation va donc avoir une racine de pulsation élevée ( $\omega \approx \omega_q$ ), correspondant aux ondes de spin électronique, et une racine de basse fréquence ( $\Omega \approx \omega_n$ ) :

$$\Omega_q = - \frac{AS}{\hbar} \left[ 1 + A \frac{\langle I_z \rangle}{\hbar \omega_q} \right] + \gamma_n H_n \quad \text{[III, 17]}$$

qui correspond bien aux "ondes de spin nucléaires" introduites dans le paragraphe précédent.

Remarquons que, physiquement, il est assez facile de comprendre pourquoi le déplacement de fréquence relatif d'un mode nucléaire quelconque dépend de la polarisation nucléaire  $\langle I_z \rangle$  : en effet, dans l'approximation linéaire utilisée ici, le couple exercé par la composante (transversale) oscillante d'un spin électronique sur le spin nucléaire correspondant est proportionnel à  $\langle I_z \rangle$ . Bien entendu, l'effet sera d'autant plus important que  $\langle I_z \rangle$  ( $\propto \frac{1}{T}$  pour  $T > \frac{1}{10}$  °K) sera plus grand et donc la température plus basse (en pratique, comme nous allons le voir, il n'est observable qu'aux températures de l'hélium liquide).

-----  
\* Pour simplifier nous négligeons tout effet de champ démagnétisant.

3/ Il reste à montrer que la méthode de linéarisation utilisée pour obtenir les équations (III.8) est justifiée, même à des températures assez "élevées" ( $T > 1^\circ\text{K}$ ), alors que le système nucléaire est très éloigné de la saturation ( $\langle I_z \rangle \ll I$ ) : en effet, lorsque la polarisation nucléaire moyenne diminue, l'effet des termes anharmoniques du hamiltonien nucléaire devient de plus en plus important ; par suite la durée de vie  $\tau$  d'une onde de spin nucléaire, et donc aussi son libre parcours moyen, deviennent de plus en plus courts ; inversement la largeur de raie des modes croît.

On prévoit donc que les excitations des spins nucléaires ne pourront être décrites par des "ondes de spin nucléaires", que si le spectre en fréquence  $P_f(\Omega)$  de  $A_f^+$

$$P_f(\Omega) = \int dt A_f^+(0) A_f^+(t) e^{i\Omega t} \quad \text{[III. 18]}$$

présente un pic assez aigu à la pulsation  $\Omega = \Omega_f$  de l'onde de spin nucléaire. Dans le cas de désordre élevé que nous considérons ici, il est particulièrement avantageux pour étudier  $P_f(\Omega)$ , d'utiliser une méthode de moments : on vérifie alors que le premier moment de  $P_f(\Omega)$  est bien égal à la pulsation  $\Omega_f$  de l'onde de spin nucléaire. Il faut aussi s'assurer que le libre parcours moyen :

$$l = \frac{\partial \Omega_f}{\partial q} \tau$$

de cette onde de spin n'est pas trop faible. Pour fixer les idées, nous imposerons au libre parcours moyen de l'onde de spin de longueur d'onde  $\lambda = b$  (portée de l'interaction), d'être grand par rapport à  $b$ . En remarquant que  $\tau_f^{-1} \sim \Delta \Omega_f$  [où  $(\Delta \Omega_f)^2$  est le second moment réduit de  $P_f(\Omega)$ ] ceci se réécrit :

$$\left| \frac{\delta \omega}{\Delta \Omega_f} \right| \gg 1 \quad \text{[III. 19]}$$

autrement dit, pour que les ondes de spin nucléaires correspondent à des excitations élémentaires bien définies, il faut que la largeur  $\Delta \Omega_f$  du pic de la courbe  $P_f(\Omega)$  soit petite devant la largeur de bande  $\delta \omega$  du spectre d'ondes de spin.

Le calcul de  $(\Delta \Omega_f)^2$  se fait très simplement si l'on considère le cas limite de spins nucléaires complètement désordonnés ( $AS \ll k_B T$ ), ce qui revient à surestimer la largeur de raie. On trouve alors que  $\Delta \Omega_f$  est indépendant de  $q$ , et donc égal à la largeur  $\Delta \Omega_0$  calculée par Suhl pour le mode uniforme

$$\left( \frac{\Delta \Omega_0}{4\pi^2} \right)^2 = \frac{I(I+1)}{24\pi^2} \frac{\omega_n^2}{\omega_n^2 \omega_0^{1/2}} \quad \text{[III. 20]}$$

d'où l'on déduit que, pour des substances concentrées à 100 % en spins nucléaires, et de faible anisotropie ( $H_A < 1000 \text{ Oe}$ ), le rapport

$$\frac{\delta \omega}{\Delta \Omega_0} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{24\pi}{I(I+1)} \right)^{1/2} \langle I_z \rangle \frac{\omega_n^{3/4} \omega_0^{1/4}}{\omega_n} \quad \text{[III. 21]}$$

sera supérieur à 1 pour  $T < 3^\circ\text{K}$  environ. C'est seulement au dessous de cette température que le spectre d'ondes de spin nucléaires aura un sens, et que le déplacement de fréquence  $\delta \omega$  sera observable (il faut en effet qu'il soit supérieur à la largeur de raie  $\Delta \Omega$ ).

Dans tout ceci nous avons légèrement surestimé la largeur de raie : un calcul récent de Pincus (21) (supposant la température des spins nucléaires grande, mais non infinie) montre effectivement que le déplacement de fréquence s'accompagne d'un rétrécissement de la raie de résonance nucléaire, qui, en valeur relative, est de l'ordre de  $\frac{\delta \omega}{\omega_n}$

## C - EFFETS DU DEPLACEMENT DE FREQUENCE SUR LA RESONANCE NUCLEAIRE DANS LES SUBSTANCES MAGNETIQUES -

### 1/ Ordres de grandeur.

#### a) Cas ferromagnétique.

Nous avons trouvé :

$$-\frac{\delta \omega}{\omega_n} = \eta \frac{m_1}{M_1} \quad \text{[III. 22]}$$

Pour une concentration de 100 % en spins nucléaires ceci se récrit :

$$-\frac{\delta\omega}{\omega_n} = \frac{\omega_n \langle I_z \rangle}{\omega_n \langle S_z \rangle} = \frac{I(I+1)}{3S} \left| \frac{\omega_n}{\omega_e} \right| \left| \frac{\hbar \omega_n}{kT} \right| \quad \text{[III 23]}$$

Avec  $\omega_n \sim 3 \cdot 10^9$ ,  $H_e$  et  $H_A \sim 10^3$  Oe,  $I = S = 5/2$  (valeurs raisonnables pour des composés cubiques de  $Mn^{2+}$ ) nous obtenons  $\omega_n \sim 3 \cdot 10^{10}$  et  $|\delta\omega/\omega_n| \sim 3 \cdot 10^{-3}/T$ . Comme nous l'avons vu dans le paragraphe A, ce déplacement de fréquence ne sera supérieur à la largeur de raie homogène  $\Delta\Omega$ , qu'à des températures  $T < 3^\circ K$ ; il sera alors de l'ordre de  $10^{-3}$  en valeur relative (soit environ 1 Mc/s). Un déplacement de fréquence de 0,5 Mc/s a effectivement été mis en évidence récemment dans le ferromagnétique  $Mn Fe_2 O_4$  (22).

Bien entendu, puisque  $\eta$  dépend de  $H_e$ , le déplacement de fréquence va s'accompagner d'une anomalie du rapport gyromagnétique, qui peut ne pas être négligeable, mais ne semble pas avoir été déjà observée.

Par ailleurs, comme nous l'avons vu, si le mouvement des spins électroniques est amorti, le déplacement de fréquence s'accompagne d'une petite contribution à la largeur de raie homogène  $1/T_2' = \gamma_n m_z \alpha^2 \text{Im}(\chi_{\omega_n}^*)$ . Cependant cet effet de relaxation est très petit : si nous remplaçons  $\text{Im} \chi_{\omega_n}^*$  par l'expression (II 9) déduite de l'équation de Landau-Lifschitz, il vient (pour  $\omega_n$  et  $1/\tau_e \ll \omega_e$ )

$$\left| \frac{1/T_2'}{\delta\omega} \right| = \left| \eta \frac{\gamma_n}{\gamma_e} \frac{1/\tau_e}{\omega_e} \right| \quad \text{[III 24]}$$

avec  $(\gamma_n/\gamma_e) \sim 10^{-3}$ ,  $\eta \sim 100$ . Supposons  $\left| \frac{1/\tau_e}{\omega_e} \right| \sim 10^{-1}$  nous obtenons  $\left| \frac{1/T_2'}{\delta\omega} \right| \sim 10^{-2}$ . Or la largeur de raie homogène due à l'interaction de Suhl, est habituellement supérieure ou égale à  $\delta\omega/10$  ( $T > 1^\circ K$ ). Cette autre contribution à la relaxation est donc négligeable.

Remarque : l'équation (III 22) montre que le déplacement de fréquence est proportionnel au facteur d'amplification  $\eta$ . Ceci donne à penser que  $\delta\omega$  pourra être appréciable dans les parois de Bloch, où  $\eta$  est de l'ordre de  $10^3$  ou plus. Nous verrons qu'il en est bien ainsi (chap. VI).

#### b) Cas antiferromagnétique.

Nous avons obtenu pour les aimantations nucléaires des 2 sous-réseaux les pulsations de résonance :

$$\frac{\pm\omega}{\gamma_n} = H_n \left[ 1 - \frac{\omega_{en} \omega_n \gamma_n}{\omega_1 \omega_2 \gamma_e} \frac{m_z}{M_z} \right] \pm H_e \left[ 1 + \frac{\omega_n^2 \gamma_n^2}{\omega_1 \omega_2 \gamma_e^2} \frac{m_z}{M_z} \right] \quad \text{[III 25]}$$

où  $m_z$  et  $M_z$  sont les densités d'aimantation électronique et nucléaire moyennes d'un sous-réseau,  $\omega_{en} = \gamma_e H_{en}$  et  $\omega_1, \omega_2$  sont les 2 fréquences de résonance antiferromagnétique :

$$\frac{\omega_{1,2}}{\gamma_e} = (2H_{en} H_A + H_A^2)^{1/2} \pm H_e$$

Dans ce calcul nous avons pour  $\omega \approx \gamma_n H_n$  négligé  $\xi_3^*$  et pour  $\omega \approx -\gamma_n H_n$  négligé  $\xi_4^*$ .

En fait, si nous avons écrit les équations de mouvement et résolu l'équation aux valeurs propres correspondante, nous aurions obtenu le résultat exact :

$$\frac{\pm\omega}{\gamma_n} = H_n \left[ 1 - \frac{2 \omega_{en} \omega_n \gamma_n}{\omega_1 \omega_2 \gamma_e} \frac{m_z}{M_z} \right]^{1/2} \pm H_e \left[ 1 + \frac{\omega_n^2 \gamma_n^2}{\omega_1 \omega_2 \gamma_e^2} \frac{m_z}{M_z} \right] \quad \text{[III 26]}$$

qui ne diffère du précédent que par des termes de l'ordre de  $\delta\omega^2$ .

Comme nous l'avons déjà vu, dans les antiferromagnétiques ordinaires, pour lesquels  $H_A \sim 10^3$  Oe et  $(2H_{en} H_A)^{1/2} \gg H_e, H_A$  :  $\delta\omega \approx \frac{1}{2} \frac{H_n}{H_A} \frac{m_z}{M_z}$  expression voisine de celle qui a été obtenue pour les ferromagnétiques. Par ailleurs l'anomalie de rapport gyromagnétique, de l'ordre de  $\frac{\gamma_n \omega_n}{\gamma_e \omega_{en}} \delta\omega$  est négligeable.

On peut aussi faire les remarques suivantes : le champ moyen "vu" par les spins électroniques, du fait de leur couplage avec les spins nucléaires, est  $\alpha m_z$  ( $\alpha m_z \ll \text{qq Oe} \ll H_A, H_e \ll H_{en}$ ). Par suite :

-----  
\* Ceci n'est vrai qu'aux fréquences assez élevées ( $\omega \gg \omega_1$ ) pour que les spins nucléaires ne "suivent" pas le mouvement des spins électroniques. Dans le cas des parois de Bloch ce point est discuté en détail dans le chap. VI.

- Dans un ferromagnétique la pulsation de résonance électronique est en toute rigueur  $\omega_e = \gamma_e (H_e + H_A + \alpha m_z)$ , et l'on voit que le déplacement de fréquence relatif  $-\frac{\delta\omega}{\omega_e} = \frac{\alpha m_z}{\omega_e/\gamma_e}$  est égal à la contribution relative des spins nucléaires à la fréquence de résonance électronique.

- Dans un antiferromagnétique, la pulsation de résonance électronique,  $\omega_e$  est telle que  $\frac{\omega_e^2}{\gamma_e^2} = 2 H_{ex} (H_A + \alpha m_z) + (H_A + \alpha m_z)^2 - H_e^2$ , et  $-\frac{2\delta\omega}{\omega_e} = \frac{2H_{ex}\alpha m_z}{\omega_e^2/\gamma_e^2}$  est égal à la contribution relative des spins nucléaires au carré de la fréquence de résonance électronique.

Ces remarques donnent à penser qu'il serait particulièrement avantageux, pour pouvoir observer un déplacement de fréquence appréciable, de disposer d'un antiferromagnétique dans lequel le champ d'anisotropie  $H_A$  soit très faible. Une telle situation se trouve effectivement réalisée, non dans les antiferromagnétiques vrais, mais dans les ferromagnétiques faibles ("canted antiferromagnets") comme  $MnCO_3$  (23) et  $KMnF_3$  (24) dont nous allons parler à présent.

### c) Ferromagnétiques faibles.

Le ferromagnétique faible  $KMnF_3$  a été étudié en très grand détail par Portis, Heeger, Witt, Teaney, Beckman (24) (25) (26) (27). Nous nous contenterons ici de discuter qualitativement ses propriétés. Nous adapterons pour ceci un modèle très simplifié qui nous permettra de voir immédiatement les analogies et les différences entre ferromagnétiques faibles et antiferromagnétiques vrais.

(a) Nous supposons donc qu'en l'absence de spins nucléaires le hamiltonien des ions magnétiques s'écrit :

$$\mathcal{H} = 2 \sum_{\langle ij \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + g\beta H_A (\sum_i S_i^z - \sum_j S_j^z) + K (\sum_i S_i^z S_i^z - \sum_j S_j^z S_j^z) \quad [III, 27]$$

Dans cette expression  $i, j$  repèrent les 2 sous-réseaux magnétiques,  $H_A$  est le champ d'anisotropie "ordinaire" et le dernier terme est responsable du "canting" : on trouve en effet que ce terme provoque une déflexion  $\theta$  des positions d'équilibre des sous-réseaux antiferromagnétiques (fig. 13), telle que  $\text{tg } 2\theta = \frac{K}{2Jz}$  ( $z$  : nombre de voisins magnétiques d'un ion magnétique donné).

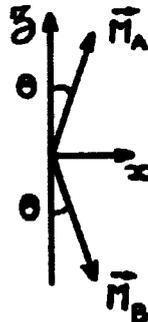


Fig. 13

Numériquement dans  $KMnF_3$

- le champ d'échange  $H_{ex} = \frac{2JzS}{h\gamma_e} \sim 1,6 \cdot 10^6$  Oe
- le champ "de canting"  $H_c = \frac{KS}{h\gamma_e} \sim 1300$  Oe
- le champ d'anisotropie "ordinaire"  $H_A$  est très faible :  $H_A \sim 3,6$  Oe.

On voit que l'angle de "canting" est lui aussi très faible :  $2\theta \sim 10^{-3}$ .

On remarque aussi que  $KMnF_3$  est quelque peu analogue à un antiferromagnétique de très faible anisotropie qui serait placé dans un champ extérieur  $H_e \sim H_c$  parallèle à  $Ox$ . En l'absence de canting les fréquences propres d'un tel système seraient telles que

$$\omega^2/\gamma^2 = 2H_{ex} H_A$$

Puisque  $H_A$  est très faible elles seraient donc faibles ( $\sim$  q. q. kMc/sec). Quel va être l'effet du "canting" ? De façon très schématique, considérons un antiferromagnétique, d'anisotropie négligeable, placé dans un champ  $H_e$  parallèle à  $Ox$  : il possède donc un petit moment résultant parallèle à  $Ox$  (fig. 14).

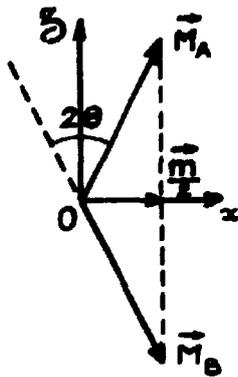


Fig. 14

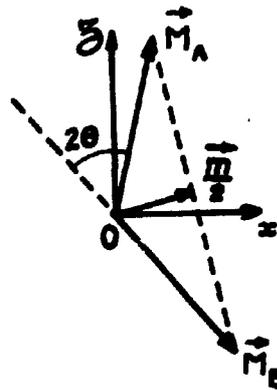


Fig. 15

Appliquons à l'échantillon un petit champ radiofréquence perpendiculaire à  $Ox$  : on voit que son aimantation résultante va se mettre à précesser autour de  $Ox$  (fig. 15) et que la pulsation propre de ce mouvement sera

$$\omega \sim \gamma H_0$$

tout comme dans un ferromagnétique.

Cet exemple simple nous laisse donc penser que l'existence du canting va n'apporter à  $\omega^2/\gamma^2$  que des contributions de l'ordre de  $H_c^2$ , à la différence du champ d'anisotropie "ordinaire"  $H_A$  qui intervient par son produit,  $H_{ex} H_A$ , par le champ d'échange. Par suite, bien que le champ de "canting" soit relativement grand, sa contribution à  $\omega/\gamma$  sera faible. Le calcul montre effectivement, que dans un champ extérieur  $H_0$  parallèle à  $Ox$ , (champ destiné à chasser les parois de Bloch), les pulsations propres des modes uniformes correspondant au hamiltonien (III, 27) sont données par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left( \frac{\omega_1}{\gamma} \right)^2 = 2 H_{ex} H_A + (H_0 + H_c) (H_0 + 4 H_c) \\ \left( \frac{\omega_2}{\gamma} \right)^2 = 2 H_{ex} H_A + (H_0 + H_c) H_c \end{array} \right. \quad \text{[III 28]}$$

Elles sont donc basses (expérimentalement  $\omega_1/2\pi \sim 9 \text{ kMc/s}$ ).

Avant de continuer, nous remarquerons également (en retournant à l'exemple simple traité ci-dessus) qu'un champ oscillant de basse fréquence  $H_1 \cos \omega t$  parallèle à  $Oz$  va provoquer une déflexion  $\varphi \sim H_1 \frac{\cos \omega t}{H_c}$  du très petit moment résultant des 2 sous-réseaux, et donc des spins de chacun d'eux. De sorte que, bien que la susceptibilité globale ou système soit très faible (car le moment résultant est très petit), le facteur d'amplification du champ radiofréquence dans les expériences de résonance nucléaire pourra être grand ( $\sim \frac{H_0}{H_c}$ ) : dans  $\text{K Mn F}_2$  il en est bien ainsi (26) pour le mode  $\omega_1$ , dont l'excitation est assez bien schématisée par l'exemple que nous venons de considérer ( $\eta_1 \sim 180$ ).

(B) Les spins nucléaires des ions magnétiques ( $\text{Mn}^{2+}$ ) exercent sur les spins électroniques auxquels ils sont couplés un champ  $H_n^i = \alpha m_n$ , dont l'effet est analogue à celui du champ d'anisotropie ordinaire et est du même ordre puisque  $H_n^i = \frac{8}{T} \text{ Oe (T}^\circ\text{K)}$ . Ce champ va donc apporter à  $\omega^2/\gamma^2$  une contribution

$$2 H_{ex} H_n^i$$

qui peut représenter une fraction appréciable de  $\omega^2/\gamma^2$  à basse température (2/10 à 4°K). Par suite :

- la mesure de la fréquence de résonance (antiferromagnétique) électronique permet de déterminer avec beaucoup de précision la polarisation nucléaire  $m_n$ .

- le déplacement de la fréquence de résonance nucléaire, qui est justement égal à la contribution relative des spins nucléaires à  $\omega^2$ , va être très important ( $\nu_n = 690 \text{ Mc/sec}$  et  $(\delta\nu) \text{ max} \sim 110 \text{ Mc/sec}$  à 4°K expérimentalement). Bien entendu, la largeur de raie nucléaire due à l'inté-

raction de Suhl va également être grande (quelques Mc/sec), si bien qu'il est particulièrement avantageux de disposer d'un moyen de détection indirect permettant de mesurer  $m_z$ .

Les formules qui donnent le déplacement de fréquence dans ce cas sont données dans les références (18) et (27). Elles diffèrent des formules obtenues dans le cas antiferromagnétique car, ici, les modes uniformes des moments magnétiques électroniques ne sont pas dégénérés et ont des polarisations très différentes - à chacun d'eux correspondra donc un mode nucléaire bien défini, et ces 2 modes nucléaires auront des fréquences propres différentes. En pratique, puisque seul le mode électronique  $\omega_1$  possède un facteur d'amplification appréciable, seule sera observée la résonance du mode nucléaire  $\Omega_1$  correspondant.

## 2/ Effets du déplacement de fréquence sur l'observation de la résonance nucléaire.

La caractéristique essentielle du terme donnant le déplacement de la pulsation de résonance nucléaire

$$\delta\omega = \delta\omega_0 \frac{m_z}{m_0}$$

est qu'il dépend de la polarisation nucléaire moyenne. Par suite la pulsation de résonance nucléaire qui, en l'absence de toute saturation était :

$$\omega = \omega'_0 + \delta\omega_0$$

va varier lorsqu'on essaiera de saturer la résonance nucléaire ou de faire une expérience d'échos de spin. En particulier l'existence du déplacement de fréquence va rendre plus difficile la réalisation d'impulsions à 90° ou 180°, car le champ radiofréquence ne pourra pas avoir la "bonne fréquence" durant toute la durée du "pulse". Inversement, en "passage lent", il sera possible d'obtenir des signaux de résonance nucléaire dans un très grand domaine de fréquences du champ radiofréquence appliqué

$$\omega_0 + \delta\omega_0 < \omega < \omega_0$$

(soit pour K Mn F<sub>2</sub> de 580 à 690 Mc/s à 4°K), et ces expériences seront caractérisées par l'apparition d'effets non linéaires, dus au caractère non linéaire de l'absorption d'énergie radiofréquence; plus précisément, lorsque la puissance radiofréquence n'est ni trop faible, ni trop forte, il pourra exister pour le système des spins nucléaires deux régimes d'équilibre stable - le premier (seul stable aux très faibles puissances) caractérisé par une polarisation nucléaire élevée  $m_z^{(1)} \gg m_0$  et une pulsation propre

$$\omega_0 + \delta\omega_0$$

- l'autre (seul stable aux très fortes puissances) caractérisé par une polarisation nucléaire  $m_z^{(2)}$ , pour laquelle la pulsation propre des spins nucléaires est très voisine de la pulsation du champ radiofréquence appliqué :

$$\omega_0 + \delta\omega_0 \frac{m_z^{(2)}}{m_0} \approx \omega \quad \text{[III 29]}$$

En principe la puissance radiofréquence nécessaire pour que le système nucléaire "saute" de la solution de type (1) à la solution de type (2) devrait dépendre beaucoup de  $\omega$  : en effet lorsque, par exemple,  $\omega = \omega_0$  et  $m_z = m_z^{(1)}$ , la fréquence du champ radiofréquence appliqué se trouve initialement dans les ailes de la courbe de résonance, et la saturation devrait être difficile à réaliser.

En pratique, même à cette fréquence, la saturation s'obtient relativement facilement. Portis et ses collaborateurs (27) attribuent ceci à l'existence de "spin pinning" dans les échantillons étudiés. Pour analyser les conséquences de ce "spin pinning", Portis et al. supposent que l'on peut définir une fréquence locale de précession des spins nucléaires, qui varie d'un point à l'autre de l'échantillon, à cause du "pinning" des spins électroniques : alors, quel que soit  $\omega$  tel que :

$$\omega_0 + \delta\omega_0 < \omega < \omega_0$$

il existe toujours une zone de l'échantillon, pour laquelle la fréquence de précession locale est égale à  $\omega$ , et la saturation se fait de proche en proche à partir de cette zone. En fait, puisqu'il s'agit de phénomènes collectifs, il n'est pas sûr qu'il soit toujours légitime de définir une fréquen-

ce de résonance locale ? Le problème des conditions d'excitation de la solution de type (2) n'est donc pas encore tout à fait clarifié.

#### D - INTERACTION DE SUHL "LONGITUDINALE" -

Le couplage indirect entre spins nucléaires auquel nous nous sommes intéressés jusqu'à présent, et qui avait été introduit initialement par Suhl et Nakamura, fait intervenir uniquement les composantes transversales des spins nucléaires. En fait il existe aussi un couplage indirect entre leurs composantes longitudinales, qui est également d'ordre  $A^2/J$ , et est donné dans un ferromagnétique par \*

$$\mathcal{H} = - \frac{A^2}{2} \sum_{ij} I_i^z I_j^z \left[ \frac{1}{N} \sum_{\substack{k, k'}} e^{i(k-k') \cdot (r_i - r_j)} \frac{n_k - n_{k'}}{\hbar \omega_k + \hbar \omega_{k'}} \right] \quad \text{[III 35]}$$

Si  $\left| \frac{\hbar \omega_k}{k T} \right| \gg 1$  ( $T > 1^\circ\text{K}$ ) et pour des spins nucléaires  $\hat{I}_i, \hat{I}_j$  assez éloignés l'un de l'autre ( $r_{ij}/a \gg 1$ ), ce couplage prend la forme

$$\mathcal{H}_{ij} = - A^2 I_i^z I_j^z \left( \frac{k_B T}{\hbar} \right) \left( \frac{1}{4 \pi \omega_{ex}} \frac{a}{r_{ij}} \exp \left( - \sqrt{\frac{\omega_0}{\omega_{ex}}} \frac{r_{ij}}{a} \right) \right)^2 \quad \text{[III 36]}$$

On voit que la fonction qui caractérise la portée de l'interaction "longitudinale"

$$\left( \frac{1}{4 \pi \omega_{ex}} \frac{a}{r_{ij}} \exp \left( - \sqrt{\frac{\omega_0}{\omega_{ex}}} \frac{r_{ij}}{a} \right) \right)^2 = [R(r_{ij})]^2 \quad \text{[III 37]}$$

est égale au carré de celle qui est associée à l'interaction de Suhl "transversale" : la décroissance de  $\mathcal{H}_{ij}$  à grande distance est donc beaucoup plus rapide. Par ailleurs  $\mathcal{H}_{ij} \rightarrow 0$  quand  $T \rightarrow 0$  si bien que l'effet de cette interaction sur le déplacement de la fréquence de résonance nucléaire est absolument négligeable (il est au moins  $\frac{T_0}{T}$  fois plus petit que celui dû à l'interaction transversale).

A des températures qui ne sont plus petites devant  $T$ , les interactions "transversale" et "longitudinale" seront du même ordre et il serait intéressant d'étudier leur effet sur la largeur de raie nucléaire ; mais il n'est plus possible d'utiliser, pour décrire les spins électroniques, le modèle d'ondes de spin des basses températures. Il en résulte une certaine incertitude sur le choix et la validité des différents modèles possibles : approximation du champ moléculaire local (de Gemmes et Villain (28), Moriya (29)) ou extrapolation aux températures élevées de la théorie des ondes de spin (Kawazaki et Mori (30)). De toute façon le problème doit être entièrement repris.

\* Ce calcul de même que celui de Suhl, suppose que la température est assez basse ( $T < T_0$ ) pour qu'on puisse décrire les spins électroniques à l'aide d'un modèle d'ondes de spin.

## IV - EFFETS DES IMPURETÉS DE TERRES RARES SUR LA RÉSONANCE FERRIMAGNÉTIQUE ET LA RELAXATION NUCLÉAIRE DANS LE GRENAT DE FER ET D'YTRIUM A BASSE TEMPÉRATURE (31)\*

### A - INTRODUCTION -

1/ Historique. Comme nous l'avons déjà vu, le grenat de fer et d'yttrium est un composé ferrimagnétique isolant, qui présente par rapport aux ferrites traditionnels l'avantage d'avoir une composition bien définie (positions des ions sur les différents sites, états de valence), si bien que les effets d'élargissement (en particulier ceux qui sont produits par les sauts des électrons de valence d'un ion à l'autre) devraient y être réduits au minimum. Tout ceci explique que, dès son apparition, il ait fait l'objet d'études très poussées (expériences de résonance ferrimagnétique par Dillon, Nielsen, Walker, Teale et Tweedale... et, plus tard, étude de la résonance nucléaire de  $^{57}\text{Fe}$  par Robert).

En fait, les premières expériences sur monocristaux ont mis en évidence d'importantes anisotropies de la fréquence de résonance ferrimagnétique et de la largeur de raie correspondante (lorsqu'on modifiait l'orientation du champ appliqué  $\vec{H}_0$ ). Divers auteurs, parmi lesquels Dillon et Nielsen, (32) ont attribué ces anomalies à la présence, dans l'yttrium utilisé pour préparer le grenat, d'impuretés paramagnétiques de terres rares à relaxation rapide (les ions de terre rare trivalents, ayant le même rayon que l'ion  $\text{Y}^{3+}$  peuvent se substituer à lui sur les sites (24c)). Les ions de terre rare sont couplés aux ions fer par des interactions d'échange ; ils sont également couplés aux vibrations du réseau, car ils ont en général un moment orbital non nul, et peuvent donc contribuer à la relaxation de l'aimantation des ions fer.

Cette interprétation a été confirmée par le fait que la largeur de raie, de l'ordre de 200 Oe pour le grenat ordinaire, peut descendre jusqu'à 1/10 d'Oe pour un grenat très pur (on voit simultanément disparaître l'anisotropie de la fréquence de résonance). De plus, si on prépare des échantillons contenant une quantité connue d'une terre-rare bien déterminée, on constate que tous les ions de terre rare ont un effet important sur la largeur de raie, excepté le  $\text{Gd}^{3+}$  (L = 0 état  $^8\text{S}$ ) (33) et, dans une certaine mesure, l'euprium (J = 0) (34).

2/ De façon plus précise les faits expérimentaux sont les suivants. Nous nous intéressons ici aux expériences faites à basse température,  $T < 150 \text{ }^\circ\text{K}$ , sur des monocristaux sphériques de fer et d'yttrium en *champ extérieur fort*  $H_0 \sim 10^3 - 10^4 \text{ Oe}$  : l'échantillon est alors *monodomaine*.

a) Résonance ferrimagnétique : quand on fait tourner  $\vec{H}_0$  par rapport aux axes cristallins, on observe une anisotropie marquée de la fréquence de résonance  $\omega/2\pi$  (35) (37) et de la largeur de raie  $\Delta\omega$  (36) (38). Ces effets dépendent de la nature de l'impureté de terre rare introduite dans l'yttrium, et sont proportionnels à sa concentration. Quand la température varie, la largeur de raie passe par un maximum pour  $T \sim 40$  à  $100 \text{ }^\circ\text{K}$ . Ce maximum a lieu à une température d'autant plus élevée que la fréquence de résonance  $\omega/2\pi$  est plus élevée.

b) Résonance nucléaire : on constate que la fréquence de relaxation *longitudinale*,  $\frac{1}{2\pi T_1}$ , des noyaux  $^{57}\text{Fe}$  passe, comme  $\Delta\omega$  par un maximum (38 a) quand la température croît. Elle présente aussi une anisotropie (38 b) (39), analogue à celle de la largeur de raie.

Nous allons essayer de donner une interprétation d'ensemble de ces faits qui, nous le verrons, présentent à certains points de vue d'étroites analogies avec le phénomène de déplacement de fréquence étudié dans le chapitre précédent.

-----  
\*Certains des résultats présentés ici ont également été obtenus indépendamment par J.H. Van Vleck et R. Orbach, dans une étude de la résonance ferrimagnétique du grenat dopé à l'ytterbium. (31 bis).

3/ Nous rappellerons pour commencer que, dans le grenat :

a) Les ions fer  $Fe^{3+}$  sont très fortement couplés entre eux par d- interactions d'échange responsables du ferrimagnétisme du grenat (le "champ d'échange" correspondant  $H_e$ , est de l'ordre de  $4 \cdot 10^5$  Oe, et la température de Néel  $T_N \sim 500$  °K) : ils ont par ailleurs un moment orbital nul, donc une anisotropie magnétique faible ( $H_A \sim 200$  Oe) et une relaxation très lente (car ils sont très peu couplés au réseau cristallin).

b) Les ions de terre rare (concentration  $\leq 1\%$ ) sont couplés aux ions fer par des interactions d'échange qui sont petites par rapport à l'échange fer-fer, et dont l'effet sur les ions de terre rare est, pour cette raison, habituellement assimilé à celui d'un champ moléculaire rigide<sup>o</sup>  $\sim 10^3$  Oe (40).

Ils ont par ailleurs (excepté  $Gd^{3+}$ ) un moment orbital non nul et, (excepté  $Eu^{3+}$ ) un niveau fondamental de  $J \neq 0$ . Par suite:

a) le champ cristallin a un effet important sur leur niveau fondamental, dont il tend à lever la dégénérescence : en l'absence d'échange les décompositions obtenues seraient de l'ordre de  $10$  à  $50$   $cm^{-1}$  ( $\sim 10$  à  $50$  °K), correspondant à un "champ d'anisotropie"  $\sim 10^3$  Oe. En réalité, du fait de l'échange (qui est du même ordre), les positions des niveaux et leurs distances relatives dépendent fortement de l'orientation de l'aimantation des fers, et donc de  $H_e$ , par rapport aux axes cristallin ; et Kittel (40) a pu attribuer les "anomalies géantes" observées dans certaines directions, à l'existence de deux niveaux très rapprochés (distance inférieure à  $3$   $cm^{-1}$ ) parmi les niveaux d'énergie de l'ion de terre rare.

β) ils sont assez fortement couplés aux vibrations cristallines d'où une relaxation relativement rapide ( $\tau \sim 2 \cdot 10^{-11}$  s vers  $50$  °K correspondant à une largeur de raie de  $1/3$   $cm^{-1}$ , d'après des résultats expérimentaux récents sur le grenat dopé au  $Pr^{3+}$  par exemple).

4/ Application : origine physique des anomalies observées en résonance électronique. Nous avons donc en présence deux systèmes couplés de fréquences propres différentes.

a) Le système des fers qui possède des modes collectifs, dont certains ont une fréquence assez basse (la pulsation du mode uniforme est  $\omega \sim \gamma$ ,  $H_e \sim 10^{10}$ ).

β) Le système constitué par les ions de terre rare<sup>\*\*</sup> qui jouent ici un rôle tout à fait analogue à celui des spins nucléaires dans les chapitres (II) et (III). Dans ces chapitres, nous avons étudié l'effet du couplage entre les composantes transversales des spins électroniques et nucléaires sur la fréquence de résonance nucléaire ; il est bien évident que ce couplage modifie aussi la fréquence de résonance électronique, mais l'effet est très petit car les spins nucléaires exercent sur les spins électroniques un champ de quelques oersteds au plus ( $T > 1$  °K).

Il n'en sera plus de même ici car le champ d'échange fer-terre rare est de l'ordre de  $10^5$  Oe, et les effets de déplacement et d'élargissement de la résonance électronique des fers seront proportionnels au carré de ce couplage. Ils seront aussi (cf. chap. II) proportionnels aux susceptibilités des ions de terre rare, susceptibilités fortement anisotropes, d'où leur anisotropie.

-----  
<sup>o</sup> Ceci suppose que les niveaux de l'ion ne sont pas (éventuellement) élargis par des effets de relaxation associés à la partie non diagonale du hamiltonien d'échange terre rare-ondes de spin des fers. Un calcul très simple, négligeant les effets de champ cristallin, montre que

$$\alpha) \text{ si } \frac{\langle J_z \rangle}{\langle S_z \rangle} < 0 : \frac{\Delta E}{h} = 0 ;$$

$$\beta) \text{ si } \frac{\langle J_z \rangle}{\langle S_z \rangle} > 0 : \frac{\Delta E}{h} \sim \frac{\omega_J^{3/2}}{16\pi S \omega_e^{1/2}} (2n(\omega_J) + 1), \text{ où } \omega_J, \text{ pulsation propre de l'ion de terre rare est de l'ordre de } 10^{12} \text{ (distance entre niveaux } \sim 10 \text{ cm}^{-1}) \text{ et } \omega_e, \text{ pulsation d'échange des fers est de l'ordre de } 10^{13}.$$

On trouve  $\frac{\Delta E}{h} \sim 10^3$ ,  $\Delta E \sim \frac{1}{10}$   $cm^{-1}$  ce qui est très petit.

<sup>\*\*</sup> Les ions de terre rare sont trop dilués pour que leur couplage indirect par les ondes de spin des fers puisse donner lieu à des effets collectifs importants et donc les fréquences propres de ce système seront, à peu de choses près, celles d'un ion de terre rare :  $E/h \sim 10^{12}$ ,  $10^{13}$  [Le rôle des interactions indirectes dans les grenats de terres rares est discuté dans la référence (49 c)].

5/ Origine de la relaxation des noyaux  $^{57}\text{Fe}$  (20). Dans le grenat en champ fort, la relaxation directe des spins nucléaires des ions  $^{57}\text{Fe}^{3+}$ , par émission ou absorption d'une seule onde de spin, est interdite (à cause de la condition de conservation de l'énergie :  $|\omega_h| \gg |\omega_n|$ ), et la contribution des processus d'ordre supérieur est très faible. Par contre les moments cinétiques des terres rares pourront, eux, posséder des composantes fluctuantes de pulsation  $\omega = \pm \omega_n$ , si leur relaxation est suffisamment rapide ; ces fluctuations seront transmises (par échange) aux spins électroniques des ions  $\text{Fe}^{3+}$  voisins, et donc aussi à leurs spins nucléaires (ce couplage indirect est analogue à l'interaction de Suhl Nakamura), d'où possibilité de relaxation directe<sup>\*\*\*</sup> et<sup>\*\*\*</sup>. Nous verrons que  $1/T_1$  peut, tout comme la fréquence de résonance électronique, être relié aux susceptibilités des ions de terre rare. D'où l'intérêt de traiter parallèlement ces deux questions qui se ramènent en définitive au calcul des susceptibilités d'un ion de terre rare, compte tenu de la relaxation (l'introduction des susceptibilités est due à Dillon et Walker (35)).

6/ Résultats des calculs antérieurs et plan. La première interprétation, qualitativement très satisfaisante, des résultats expérimentaux relatifs à la *résonance ferrimagnétique*, est due à Kittel ; Kittel avait été amené à faire l'hypothèse que les temps de relaxation des ions de terre rare étaient extrêmement courts :  $\tau \lesssim 10^{-12}$  s (hypothèse de la "relaxation rapide"). Néanmoins, des expériences plus précises conduisent à rejeter ce modèle et Teale et Tweedale ont pu expliquer, de façon semi-quantitative, les résultats obtenus avec un échantillon dopé à l'ytterbium en adaptant à ce cas particulier un calcul thermodynamique fait par Clogston, dans l'hypothèse de la "relaxation lente".

A première vue, il existe peu de ressemblances entre les calculs de Kittel et de Clogston, et c'est précisément pour rechercher les points communs à ces deux calculs que nous avons entrepris cette étude, dont les grandes lignes seront les suivantes :

Au § B nous relierons les propriétés de la résonance électronique et de la relaxation nucléaire aux susceptibilités des ions de terre rare, ce qui nous permettra ensuite de retrouver comme cas limites les résultats de Kittel (§C) et Teale et Tweedale (§D).

Au § C, nous montrons que, si l'on abandonne l'hypothèse de la relaxation rapide, les faits expérimentaux ne peuvent s'expliquer que s'il existe un couplage entre l'aimantation transversale des ions d'une part, et des composantes, à éléments de matrice diagonaux non tous nuls, des moments magnétiques de terres rares d'autre part - et nous indiquons pour quelles raisons de tels couplages doivent effectivement exister en pratique.

Au § D, faisant l'hypothèse de la "relaxation lente", qui conduit à un meilleur accord avec l'expérience, nous établissons rigoureusement l'équation d'évolution d'un ion de terre rare en présence de la perturbation adiabatique associée au champ radiofréquence ; nous en déduisons l'expression formelle des susceptibilités de l'ion, et nous appliquons en grand détail les formules obtenues au cas du grenat dopé à l'ytterbium, ce qui nous permettra en particulier de retrouver les résultats de Teale et Tweedale.

## B - FORMULES GÉNÉRALES -

### 1/ Notations.

On s'intéresse aux propriétés d'une petite sphère de grenat impur dans un champ extérieur  $H_0$  assez grand, à basse température :  $T < 150$  °K. On considérera le cas schématisé suivant

a) les  $N$  ions  $\text{Fe}^{3+}$  de moments magnétiques  $h \gamma_i \vec{S}_i$  constituent un réseau de Bravais ferromagnétique ; on choisira le système d'axes OXYZ tel que OZ coïncide avec la direction des  $\langle \vec{S}_i \rangle$  en présence de  $H_0$  ;

b) les  $n$  ions de terre rare ( $n \ll N$ ) de moments magnétiques  $\vec{\mu}_i = h \gamma_i \vec{J}_i$  sont répartis au hasard sur des sites cristallographiques identiques ; ils seront rapportés aux axes Oxyz tels que Oz soit parallèle à  $\langle \vec{J}_i \rangle$  ; Oz sera généralement distinct de OZ à cause des effets de champ cristallin ;

\*Ce mécanisme nous a été suggéré par Monsieur de Gennes. Remarquons que, dans une substance concentrée en spins nucléaires, il pourra exister d'autres mécanismes de relaxation en présence d'impuretés (mécanismes faisant intervenir les excitations collectives des spins nucléaires).

\*\* Les fluctuations du champ magnétique dipolaire créé par les ions de terre rare à l'emplacement des noyaux voisins, n'apportent à  $1/T_1$  qu'une contribution négligeable (de l'ordre de  $10^{-6}$  s<sup>-1</sup> alors que  $(1/T_{1, \text{e}}) \sim 10^2$  s<sup>-1</sup>). Par contre la partie statique de ce même champ est probablement responsable de la largeur inhomogène ( $\sim 80$  Oe) des raies de résonance nucléaire dans le grenat en champ fort (38).

\*\*\* L'effet de ce couplage sur la fréquence de résonance nucléaire est négligeable.

c) chaque ion de terre rare  $\vec{J}_i$  n'est couplé qu'à un seul ion fer  $\vec{S}_i$ .

En présence d'un champ radiofréquence (de fréquence  $\frac{\omega}{2\pi}$ ), tous les  $\vec{S}_i$  auront le même comportement moyen; de même tous les  $\vec{J}_i$ . On pourra donc raisonner sur les densités d'aimantation correspondantes  $\vec{M}$  et  $\vec{m}_i$ . Dans ce cas le couplage d'échange terre rare-fer :

$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^N B^{\alpha} J_i^{\alpha} S_i^{\alpha} \text{ peut se récrire } \mathcal{H} = -V \sum_{\alpha} \lambda^{\alpha} m_i^{\alpha} M^{\alpha} \quad \text{[IV. 1]}$$

$$\text{où } \alpha = x, y, z; a = X, Y, Z \text{ et } \lambda^{\alpha} = -\frac{V}{N \hbar^2 \gamma_i \gamma_s} B^{\alpha} = -\frac{n}{N} \frac{v}{\hbar^2 \gamma_i \gamma_s} B^{\alpha}$$

(V volume de l'échantillon,  $v = \frac{V}{N}$  volume associé à un ion de terre rare).

Ceci dit, nous remarquons que :

. A des températures de l'ordre de 0 à 150 °K, le système magnétique constitué par les ions fer est pratiquement saturé. Un champ radiofréquence ne pourra donc induire sur ces ions aucune aimantation oscillante de même fréquence suivant OZ. Plus précisément, seules les composantes du champ suivant OX et OY seront efficaces et elles ne pourront modifier que  $M^x$  et  $M^y$ .

. Il n'en est pas de même pour les ions de terre rare, et un champ radiofréquence induira sur chacun d'eux un moment magnétique oscillant de même fréquence, dont la composante suivant Oz, tout comme les composantes transversales, ne sera généralement pas nulle. Le champ radiofréquence modifiera donc les trois composantes de  $\vec{m}_i$ ; nous désignerons par  $\chi_{\alpha}^{\beta} = \chi_{\alpha}^{\beta} + i \chi_{\alpha}^{\beta}$  ( $\alpha, \beta = x, y, z$ ) les différentes susceptibilités radiofréquence d'un ion de terre rare, divisées par le volume  $v$  qui lui est associé.

Nous remarquerons enfin que les fréquences  $|\frac{\omega}{2\pi}| \sim 10^{10} \text{ s}^{-1}$  employées en résonance ferromagnétique sont habituellement petites devant les distances  $|\frac{E_{\alpha_1} - E_{\alpha_2}}{\hbar}| \sim 10^{11} - 10^{12}$  des niveaux d'énergie d'un ion de terre rare. Il en est de même de la fréquence de résonance nucléaire  $|\frac{\omega_h}{2\pi}| \sim 10^8$  des noyaux de  $^{57}\text{Fe}$ .

## 2/ Résonance ferromagnétique.

Appliquons à l'échantillon un champ radiofréquence  $H_1$  de fréquence  $\frac{\omega}{2\pi}$ . Les composantes  $M^a$  ( $a = X, Y$ ) induites par ce champ, agiront sur les ions de terre rare comme un champ radiofréquence de composantes  $h^{\alpha} = \sum_{a} \lambda^{\alpha} M^a$  ( $\alpha = x, y, z$ ), très supérieur à  $H_1$ , car le champ d'échange "vu" par les ions de terres rares est très supérieur à  $H_1$ . Le champ  $h^{\alpha}$  induira sur ces ions une densité d'aimantation oscillante  $m_i^{\beta} = \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\beta} \lambda^{\alpha} M^a$  ( $\alpha, \beta = x, y, z, a = X, Y$ ), qui réagira à son tour sur les ions fer comme un champ de composantes  $h^b = \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\beta} \lambda^{\alpha} M^a$  (seules sont efficaces les composantes  $b = X, Y$ ).

Si l'on écrit les équations de mouvement de l'aimantation des ions fer, et si l'on cherche des solutions en  $\exp(-i\Omega t)$  on obtient ainsi un système d'équations couplées analogue à celui de Dillon et Walker (35), mais plus général :

$$\begin{cases} 0 = (i\Omega - \gamma_s M^z \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\beta} \lambda^{\alpha} \lambda^{\beta}) M^z + (\gamma_s H_{eff} - \gamma_s M^z \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\beta} \lambda^{\alpha} \lambda^{\beta}) M^x \\ 0 = (\gamma_s H_{eff} - \gamma_s M^z \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\beta} \lambda^{\alpha} \lambda^{\beta}) M^x + (-i\Omega - \gamma_s M^z \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\beta} \lambda^{\alpha} \lambda^{\beta}) M^y \end{cases} \quad \text{[IV. 2]}$$

Dans ces équations  $H_{eff}$  contient l'effet de  $H_0 \sim 5000 \text{ Oe}$ ; de l'anisotropie magnétique des ions fer,  $H_A \sim 200 \text{ Oe}$ ; de la partie statique du couplage d'échange terre rare-fer ( $\sim 10^2 \text{ Oe}$  si  $n/N \sim 10^{-3}$ ). Soit  $\Omega$  la solution de l'équation aux valeurs propres associée;  $\omega = \text{Re}\Omega$  est la pulsation de résonance ferromagnétique;  $\Delta\omega = -2 \text{Im}\Omega$  est la largeur de raie correspondante.

Supposons le déplacement de fréquence et la largeur de raie petits par rapport à  $\gamma_s H_{eff}$ : on trouve finalement à des termes en  $\chi^2$  près:

\* Cet effet d'amplification du champ radiofréquence est tout à fait analogue à celui qu'on observe en résonance nucléaire (cf. chap. II).

\*\* Nous supposons dans ces équations que  $\omega \approx \gamma_s H_{eff}$ .

$$\begin{aligned}
\text{Re } \Omega &= \gamma_s H_{eff} - \frac{\gamma_s M^2}{2} \sum_{\mathbf{q}} \left[ \left( \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{\prime\mu\mu} + \chi_{\mathbf{q}}^{\prime\sigma\sigma}}{2} \right) (\lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha} + \lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha}) - \left( \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{\prime\mu\mu} - \chi_{\mathbf{q}}^{\prime\sigma\sigma}}{2} \right) (\lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha} - \lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha}) \right] \\
\frac{\Delta \omega}{2} &= \frac{\gamma_s M^2}{2} \sum_{\mathbf{q}} \left[ \left( \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{\prime\mu\mu} + \chi_{\mathbf{q}}^{\prime\sigma\sigma}}{2} \right) (\lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha} + \lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha}) + \left( \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{\prime\mu\mu} - \chi_{\mathbf{q}}^{\prime\sigma\sigma}}{2} \right) (\lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha} - \lambda^{\nu\beta} \lambda^{\nu\alpha}) \right] \\
&+ \frac{1}{2} \frac{n}{N} \frac{Sv}{h^3 \gamma_s^2} \sum_{\mathbf{q}} \left[ \left( \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{\prime\mu\mu} + \chi_{\mathbf{q}}^{\prime\sigma\sigma}}{2} \right) (B^{\nu\beta} B^{\nu\alpha} + B^{\nu\beta} B^{\nu\alpha}) + \left( \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{\prime\mu\mu} - \chi_{\mathbf{q}}^{\prime\sigma\sigma}}{2} \right) (B^{\nu\beta} B^{\nu\alpha} - B^{\nu\beta} B^{\nu\alpha}) \right]
\end{aligned}$$

[IV. 3]

Signalons que dans tous ces calculs nous avons volontairement négligé les effets de diffusion des ondes de spin par les ions de terre rare, effets dont la contribution à la largeur de raie n'est effectivement observable qu'aux très très basses températures ( $T \sim 4 \text{ }^\circ\text{K}$ ) (41).

### 3/ Relaxation nucléaire.

Supposons que le  $j^{\text{ième}}$  ion  $\text{Fe}^{3+}$  possède un spin nucléaire  $\hat{I}_j$ , couplé à son spin électronique par une interaction hyperfine  $\hat{A}\hat{I}_j \cdot \hat{S}_j$  ( $-\frac{AS}{\hbar} = \omega_n = \gamma_n H_n \ll |\gamma_s H_n|$ ). Les ions de terre rare ayant un temps de relaxation assez court, leurs moments magnétiques possèdent des composantes fluctuantes (de faible amplitude) de pulsation  $\omega_n$ . Ces fluctuations seront transmises au spin  $\hat{I}_j$  par l'intermédiaire d'ondes de spin virtuelles du réseau des fers et fourniront un mécanisme de relaxation directe pour  $\hat{I}_j$  (20). Nous avons déjà remarqué que cette interaction indirecte est analogue à l'interaction de Suhl-Nakamura (19), dont nous reprenons le calcul dans ce cas particulier.

a) Comme d'habitude  $S_n^+$  et  $S_n^-$  sont liés aux opérateurs de création  $a_n^+$  et d'annihilation  $a_n^-$  des ondes de spin du réseau des fers par les équations

$$\begin{aligned}
S_n^+ &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^+ e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^- e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} \\
S_n^- &= -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^+ e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^- e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n}
\end{aligned}$$

et la pulsation propre du mode  $\mathbf{k} (\mathbf{k} \neq 0)$  est

$$\omega_n = \omega_0 + \omega_{ex} a^2 k^2 = \gamma_s \left( H_{eff} - \frac{4\pi}{3} M \right) + \gamma_s H_{ex} a^2 k^2 \quad (|\omega_n| > |\omega_n|)$$

b) Considérons le système Q constitué par

$\mathcal{H}_0$  : le  $i^{\text{ème}}$  ion de terre rare en présence du champ cristallin statique et du champ moléculaire rigide auxquels il est soumis

F : les phonons du cristal

G : le couplage entre l'ion de terre rare et les phonons, responsable de la relaxation de l'ion (par rapport aux états propres de F et  $\mathcal{H}_0$ , G ne possède que des éléments de matrice non diagonaux).

Soit  $\mathcal{H}_Q = \mathcal{H}_0 + F + G$  le hamiltonien de Q,  $E_j = \hbar\omega_j$ ,  $E_{q'} = \hbar\omega_{q'}$  ses états propres. A l'opérateur moment cinétique total de l'ion de terre rare,  $\hat{J}_i$ , correspond un opérateur dépendant du temps

$$\hat{J}_i(t) = e^{\frac{i\mathcal{H}_Q t}{\hbar}} \hat{J}_i e^{-\frac{i\mathcal{H}_Q t}{\hbar}} :$$

$$\langle q' | \hat{J}_i^{\alpha}(t) | q \rangle = e^{i\omega_{q'} - i\omega_q t} \langle q' | \hat{J}_i^{\alpha} | q \rangle$$

Seules nous intéressent les fluctuations de  $\hat{J}_i$  à la fréquence  $\pm \frac{\omega_{q'} - \omega_q}{2\pi}$ . Nous leur associerons les opérateurs  $\delta J_i^{\alpha}$  définis par :

$$\langle q' | \delta J_i^{\alpha} | q \rangle = \langle q' | \hat{J}_i^{\alpha} | q \rangle \delta_{q', -q + \omega_q}$$

Comme  $|\hbar \omega_k|$  est petit par rapport aux distances entre les niveaux d'énergie de  $\mathcal{H}_i$ , les éléments de matrice de  $\delta J_i^z$  seront petits (en l'absence de relaxation :  $G = 0$ , ils seraient nuls).

c) Ceci dit, l'interaction indirecte entre  $\delta J_i^z$  et  $I_j^z$  est due à l'effet, au second ordre, des deux termes de couplage doublement non diagonaux,  $V_i$  associé à l'échange entre  $\delta J_i^z$  et  $S_i^z$ ,  $V_j$  associé à l'interaction hyperfine  $A I_j \cdot S_j$  (bien que l'échange terre rare-fer soit grand devant  $|\hbar \gamma_i H_0| \sim |\hbar \omega_k|$ , les éléments de matrice de  $V_j$  seront petits devant cette même quantité, en vertu de la remarque faite ci-dessus, ce qui permet de faire un calcul de perturbation) :

$$\begin{aligned} V_i &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} \sum_k \delta J_i^z (B^{ak} - iB^{ak'}) \left( \sum_l a_l e^{-i\vec{k}\vec{r}_l} \right) \\ &+ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} \sum_k \delta J_i^z (B^{ak} + iB^{ak'}) \left( \sum_l a_l e^{+i\vec{k}\vec{r}_l} \right) \\ V_j &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} I_j^+ \sum_k a_k e^{+i\vec{k}\vec{r}_j} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2S}{N}} I_j^- \sum_k a_k e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \end{aligned}$$

d) Procédant comme dans l'article de Suhl (19 a) on obtient effectivement un couplage indirect :

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{ij} &= -\frac{AS}{2} \sum_k (B^{ak} - iB^{ak'}) \delta J_i^z I_j^+ \left( \frac{1}{N} \sum_l \frac{e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_l - \vec{q}\cdot\vec{r}_l}}{\hbar \omega_k} \right) \\ &- \frac{AS}{2} \sum_k (B^{ak} + iB^{ak'}) \delta J_i^z I_j^- \left( \frac{1}{N} \sum_l \frac{e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}_l - \vec{q}\cdot\vec{r}_l}}{\hbar \omega_k} \right) \end{aligned} \quad (IV. 4)$$

(où, au dénominateur, on a remplacé par  $\omega_k$  les expressions exactes  $\omega_k \pm \omega_n$ ).

Les fluctuations de l'ion de terre rare  $i$  apparaissent donc au noyau  $j$  comme un champ fluctuant :

$$H^z = H^z \pm iH^y = \frac{AS}{\hbar \gamma_n} \sum_k (B^{ak} \pm iB^{ak'}) \delta J_i^z \left( \frac{1}{N} \sum_l \frac{e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_l - \vec{q}\cdot\vec{r}_l}}{\hbar \omega_k} \right)$$

dont l'effet se fait sentir même à de grandes distances de l'ion de terre rare (20).

e) Ce champ fluctuant apportera à la pulsation de relaxation longitudinale  $\frac{1}{T_1}$ , du spin nucléaire  $i$  une contribution (14) :

$$\frac{\gamma_n^2}{2} \int_0^\infty \frac{H^z(0) H^z(-\tau) + H^z(-\tau) H^z(0)}{2} e^{-\gamma_n \tau} d\tau$$

D'où, en ajoutant les contributions de tous les ions de terre rare, supposés non corrélés entre eux :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\omega_n^2}{16\pi \omega_n^2 \omega_0^2} \frac{n}{N} \sum_{i,j,k} (B^{ak} - iB^{ak'}) (B^{ak} + iB^{ak'}) \frac{j^{ak}(\gamma_n H_0)}{\hbar^2 \gamma_i^2} \quad (IV. 5)$$

où :

$$j^{ak}(\omega) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} (\delta \mathcal{M}^a(0) \delta \mathcal{M}^a(-\tau) + \delta \mathcal{M}^a(-\tau) \delta \mathcal{M}^a(0)) \exp(i\omega\tau) d\tau \quad (IV. 6)$$

est la transformée de Fourier, à la fréquence  $\omega/2\pi$ , de la fonction de corrélation reliant les fluctuations des composantes  $\mathcal{M}^a$ ,  $\mathcal{M}^a$  du moment magnétique  $\mathcal{M}$  d'un ion de terre rare.

Ceci peut se récrire :

\* A basse température ( $T < 40^\circ \text{K}$ ) ce mécanisme fournit également la principale contribution à la relaxation transversale (38 a) et l'on a  $T_2 = 2T_1$  (14).

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\omega_s^2}{8\pi \omega_{cr}^{3/2} \omega_0^{1/2}} \frac{n}{N} \frac{1}{\hbar^4 \gamma_i^2} \left\{ \sum_{\omega} (B^{ee} B^{ee} + B^{ev} B^{ev}) (j^{\omega_s}(\omega_s) + j^{\omega_0}(\omega_0)) \right. \\ \left. + \sum_{\omega} (B^{ee} B^{ev} - B^{ev} B^{ee}) (ij^{\omega_s}(\omega_s) - ij^{\omega_0}(\omega_0)) \right\}$$

f) On peut par ailleurs démontrer que (cf. App. A) :

$$j^{\omega_s}(\omega) + j^{\omega_0}(\omega) = \hbar v \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) (\chi_{\omega_s}^{\omega_s} - \chi_{\omega_0}^{\omega_0}) \approx \frac{2k_B T}{\omega} v (\chi_{\omega_s}^{\omega_s} - \chi_{\omega_0}^{\omega_0})$$

et :

$$ij^{\omega_s}(\omega) - ij^{\omega_0}(\omega) = \hbar v \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) (\chi_{\omega_s}^{\omega_s} - \chi_{\omega_0}^{\omega_0}) \approx \frac{2k_B T}{\omega} v (\chi_{\omega_s}^{\omega_s} - \chi_{\omega_0}^{\omega_0})$$

(dans la deuxième série d'égalités on a supposé  $|\frac{\hbar\omega}{k_B T}| \ll 1$  ce qui est le cas pour  $\omega = \omega_s$ ).

Donc :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\omega_s^2}{8\pi \omega_{cr}^{3/2} \omega_0^{1/2}} \frac{n}{N} \frac{k_B T v}{\hbar^4 \gamma_i^2} \left\{ \sum_{\omega} (B^{ee} B^{ee} + B^{ev} B^{ev}) \left( \frac{\chi_{\omega_s}^{\omega_s} + \chi_{\omega_0}^{\omega_0}}{2\omega_s} \right) + \sum_{\omega} (B^{ee} B^{ev} - B^{ev} B^{ee}) \left( \frac{\chi_{\omega_s}^{\omega_s} - \chi_{\omega_0}^{\omega_0}}{2\omega_s} \right) \right\} \quad \text{[IV. 7]}$$

quantité bien réelle, comme on pouvait s'y attendre, et dont on notera la très grande analogie avec l'expression (IV. 3) de la largeur de raie ferrimagnétique  $\Delta\omega$ .

On remarque par ailleurs, que, quelles que soient les propriétés des ions de terres rares,  $T_1^2$  doit être proportionnel à  $\omega_s = \gamma_i (H_0 - \frac{4\pi}{3} M)$ . Cette relation est bien vérifiée expérimentalement (38 a), ce qui prouve bien que la relaxation nucléaire est due à une interaction indirecte spins nucléaires-terres rares.

4/ Ayant ainsi relié  $\Omega$  et  $\frac{1}{T_1}$  aux susceptibilités d'un ion de terre rare, il nous reste à évaluer ces dernières, exactement ou sinon de façon phénoménologique.

### C - HYPOTHESES DE KITTEL (42) -

Kittel suppose que

a)  $Ox$  et  $OZ$  sont colinéaires,

b) le couplage d'échange terre rare fer est scalaire :  $\mathcal{K} = B \vec{I}_i \cdot \vec{S}_i$ .

On trouve alors :

$$\omega = \gamma_i H_{eff} - \gamma_i M^2 \lambda^2 \text{Re } \chi_{\omega}^{\omega} = \gamma_i [H_0 + H_A + \lambda (m_i^2 - \lambda M^2 \text{Re } \chi^{\omega}(\omega))] \quad \text{[IV. 8]}$$

(en accord avec l'équation (4) de la référence (41)).

$$\frac{\Delta\omega}{2} = \gamma_i M^2 \lambda^2 \text{Im } \chi^{\omega}(\omega) = \frac{n}{N} \frac{B^2 S}{\hbar^3 \gamma_i^2} \text{Im} [v \chi^{\omega}(\omega)] \quad \text{[IV. 9]}$$

$$\frac{1}{T_1 T} = \frac{n}{N} \frac{\omega_s^2}{4\pi \omega_{cr}^{3/2} \omega_0^{1/2}} \frac{k_B B^2}{\hbar^4 \gamma_i^2} \text{Im} \left[ v \frac{\chi^{\omega}(\omega_s)}{\omega_s} \right] \quad \text{[IV. 10]}$$

D'où aussi :

$$\frac{\Delta\omega/\omega}{1/T_1 T} = \frac{8\pi \hbar S}{k_B} \frac{\omega_{cr}^{3/2} \omega_0^{1/2}}{\omega_s^2} \frac{\text{Im}[\chi^{\omega}(\omega)/\omega]}{\text{Im}[\chi^{\omega}(\omega_s)/\omega_s]} \quad \text{[IV. 11]}$$

Dans ces formules :  $\chi_{\omega}^{\omega} = \frac{1}{2} (\chi_{\omega}^{\omega} + \chi_{\omega}^{\omega} + i \chi_{\omega}^{\omega} - i \chi_{\omega}^{\omega})$  (cf. App. A).

Si

c) on néglige les effets du champ cristallin sur l'ion de terre rare,

d) l'on utilise pour calculer  $\chi''$  l'équation phénoménologique de Landau-Lifshitz et

e) l'on suppose que la fréquence de relaxation  $1/2\pi\tau$  de l'ion de terre rare est de l'ordre de grandeur de la distance  $|B/h|$  entre ses niveaux, on obtient des valeurs numériques raisonnables (par exemple, à 20 °K et pour une concentration  $n/N \sim 10^{-3}$  :  $\Delta\omega/\omega \sim 3/100$  et  $T_1 \sim 5$  ms (20)). On prévoit aussi (20) (38 a) que puisque  $|\omega_n|, |\omega| \ll |B/h|$ , on doit avoir :

$$(\Delta\omega/\omega)/(1/T_1 T) = (8\pi\hbar S/k_B) (\omega_n^{3/2} \omega_n^{1/2} / \omega_n^2) = \text{const.} \quad [\text{IV.11}']$$

Expérimentalement cette relation de proportionnalité n'est vérifiée de façon satisfaisante qu'à très basse température ( $T < 15$  °K) (38 a). Le comportement de la courbe  $\Delta\omega(T)$  quand on fait varier  $\omega$  n'est pas satisfaisant non plus (le maximum devrait avoir lieu à une température fixe ; ce n'est pas le cas). Enfin expérimentalement  $1/\tau \ll |B/h|$  ;  $1/\tau \sim |\omega| \sim |(\gamma, H_0)|$  ; la fréquence de relaxation de l'ion est petite par rapport à ses fréquences propres : on a affaire à un cas de "relaxation lente".

Ce point étant admis :  $\text{Im } \chi'(\omega) \approx \text{Im } \chi'(\omega_n) \approx 0$ , et l'on ne peut plus expliquer les résultats expérimentaux. La raison de cette impossibilité est la suivante : pour que  $\Delta\omega$  et  $1/T_1$  soient différents de zéro, il faut, si l'on fait les hypothèses a) et b), qu'il existe dans le spectre en fréquence de  $\mathcal{K}^i(t)$  et  $\mathcal{K}^j(t)$  des termes fluctuants de pulsations  $\omega$  et  $\omega_n$  ; or  $\mathcal{K}^i(t)$  et  $\mathcal{K}^j(t)$  qui, en l'absence de relaxation, ne possèdent que des éléments de matrice non diagonaux-oscillant à des fréquences très élevées

( $\sim \frac{E_{i_0} - E_{j_0}}{\hbar}$ ), n'auront de fluctuations à  $\omega$  et  $\omega_n$  que si les niveaux de l'ion sont très élargis par la

relaxation ( $\frac{1}{\tau} \sim \frac{E_{i_0} - E_{j_0}}{\hbar}$ ), ce qui n'est pas le cas. Il n'en est pas de même pour  $\mathcal{K}^i(t)$ , dont les éléments de matrice diagonaux sont certainement non tous nuls et qui, en présence de relaxation, possèdera donc des composantes fluctuantes à des pulsations de l'ordre de  $1/\omega$ . Donc, si abandonnant les hypothèses a) et b) on tient compte des éléments non diagonaux  $B^{ij}, B^{ji}$  du tenseur d'échange  $B$ , on obtiendra des valeurs finies pour  $\Delta\omega$  et  $1/T_1$ , même si  $\tau$  est long, pourvu que  $1/\tau \sim |\omega|, |\omega_n| < \left| \frac{E_{i_0} - E_{j_0}}{\hbar} \right|$

- l'abandon de a) et b) revenant à supposer que, soit à cause des effets d'anisotropie (a) c), soit parce que le couplage d'échange terre-fer n'est pas scalaire (b)), il existe un couplage entre l'aimantation longitudinale des terres rares et l'aimantation transversale des fers. Mais, il est également possible que, les effets du champ cristallin étant comparables à ceux de l'échange, les éléments de matrice diagonaux de  $\mathcal{K}^i, \mathcal{K}^j$  soient également non nuls. D'où une deuxième contribution possible à  $\Delta\omega$  et  $1/T_1$ , contribution qui n'avait pas été envisagée dans la publication préliminaire (31 a). En définitive, le succès de la théorie de la "relaxation lente" repose donc entièrement sur l'existence d'un couplage entre, l'aimantation des fers d'une part, et des composantes, à éléments de matrice diagonaux non tous nuls, des moments magnétiques de terres rares. Le mécanisme de la relaxation nucléaire est alors analogue à celui qui avait été proposé par Bloembergen ((43) et (14) p. 380) pour les cristaux ioniques diamagnétiques, où la relaxation nucléaire est due à la présence d'impuretés paramagnétiques.

#### D - HYPOTHESE DE RELAXATION LENTE (44) (45) -

La relaxation de l'ion de terre rare  $\mathcal{R}_0$  est due à son couplage G avec le système F, de grande capacité thermique, constitué par les phonons. Si cette relaxation est suffisamment lente

( $1/\tau < \left| \frac{E_{i_0} - E_{j_0}}{\hbar} \right|$ ), on peut, pour décrire l'ion, recourir au formalisme de F. Bloch (46). Dans

le paragraphe 1/ nous utilisons cette méthode pour établir l'équation d'évolution de l'ion en présence de la perturbation adiabatique  $\mathcal{R}_0(t)$  constituée par le champ radiofréquence. Nous trouverons que, si l'on utilise une représentation convenable, la matrice densité de l'ion est une matrice diagonale, dont la relaxation s'effectue à chaque instant vers la matrice de Boltzmann qui correspondrait à l'équilibre thermique pour les valeurs instantanées des énergies  $E_i(t)$ . Dans les paragraphes suivants nous déduisons de l'équation d'évolution les susceptibilités de l'ion et, dans le cas particulièrement simple d'impuretés à deux niveaux, ( $Yb^{3+}$ ), nous utilisons les formules générales ainsi obtenues pour calculer en détail  $\omega, \Delta\omega$  et  $1/T_1$ . Les expressions de  $\omega$  et  $\Delta\omega$  sont identiques à celles que Clogston (45) et Teale et Tweedale (37) avaient obtenues à partir d'un modèle thermodynamique.

##### 1/ Recherche de l'équation d'évolution de la matrice densité.

Notations (cf. p. 37): les valeurs propres (non dégénérées) de  $\mathcal{R}_0$  sont  $E_{i_0} = \hbar g_{i_0} \dots E_{j_0} = \hbar g_{j_0} \dots$

Les valeurs propres (éventuellement dégénérées) de F sont  $E_r = \hbar f$ ,  $E_{r'} = \hbar f'$ . Les différents états propres correspondant à la valeur propre  $E_r$  sont repérés par l'indice u. Pour simplifier les notations les états  $|f_u\rangle$  sont traités comme des états discrets.

a) Evolution de l'ion en l'absence de relaxation ( $G = 0$ ).

Si le champ radiofréquence est nul, le hamiltonien de l'ion et ses états propres sont  $\mathcal{H}_0$  et  $|g_0\rangle, \dots$  tels que  $\mathcal{H}_0 |g_0\rangle = E_{g_0} |g_0\rangle = \hbar \omega_{g_0} |g_0\rangle$ .

Le champ radiofréquence vu par l'ion ajoute à  $\mathcal{H}_0$  un terme  $-\sum_j \mathcal{M}^j H_1^j \cos(\omega t + \varphi_j)$  (que nous écrirons symboliquement  $\mathcal{H}_1 = -\mathcal{M} H_1 \cos \omega t$ , lorsqu'il s'agira d'évaluer des ordres de grandeur).

Utilisant l'approximation adiabatique, nous pouvons écrire la fonction d'onde de l'ion sous la forme :

$$\psi = \sum_g a_g(t) |g(t)\rangle \exp \left[ -\frac{i}{\hbar} \int_0^t E_g(t') dt' \right]$$

avec

$$(\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1(t)) |g\rangle = E_g(t) |g\rangle$$

$$|g\rangle = |g_0\rangle + \sum_{g'_0 \neq g_0} \frac{\langle g'_0 | \mathcal{H}_1(t) | g_0\rangle |g'_0\rangle}{E_{g_0} - E_{g'_0}} + \dots$$

$$E_g = E_{g_0} + \langle g_0 | \mathcal{H}_1(t) | g_0\rangle + \dots$$

Les coefficients  $a_g(t)$  sont alors donnés par l'équation (Schiff (47) eq. 31.8)

$$\frac{da_g(t)}{dt} = \sum_{g'_0} a_{g'_0}(t) \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t (E_{g_0}(t') - E_{g'_0}(t')) dt' \right\} \frac{\langle g | \frac{\partial \mathcal{H}_0}{\partial t} | g' \rangle}{E_{g_0} - E_{g'}}.$$

Définissons le hamiltonien  $h_1(t)$  par

a)  $\langle g | h_1(t) | g \rangle = 0$

et

b) si  $g \neq g'$  :

$$\langle g | h_1(t) | g' \rangle = i\hbar \frac{\langle g | \frac{\partial \mathcal{H}_0}{\partial t} | g' \rangle}{E_{g_0} - E_{g'}} \sim \frac{\hbar \omega}{E_{g_0} - E_{g'}} \langle g | \mathcal{H}_1(t) | g' \rangle.$$

L'équation précédente se réécrit :

$$\frac{da_g}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \sum_{g'} a_{g'}(t) \langle g | h_1(t) | g' \rangle \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t (E_{g_0}(t') - E_{g'}(t')) dt' \right\}$$

Cette équation ressemble à l'équation 29.5 de Schiff mais  $\mathcal{H}_1(t)$  est remplacé par  $h_1(t) \ll \mathcal{H}_0(t)$  : ceci vient de ce que la majeure partie des effets du champ radiofréquence se trouve (ici) contenue dans les fonctions de base  $|g\rangle$ .

En termes de matrice densité, si nous posons

$$\langle g | \tilde{\sigma} | g' \rangle = \overline{a_g a_{g'}^*}$$

et

$$\langle g | \tilde{h}_1(t) | g' \rangle = \langle g | h_1(t) | g' \rangle \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t (E_{g_0}(t') - E_{g'}(t')) dt' \right\}$$

ceci devient :

$$\frac{d}{dt} \langle g(t) | \tilde{\sigma}(t) | g'(t) \rangle = \frac{i}{\hbar} \langle g(t) | [\tilde{\sigma}(t), \tilde{h}_1(t)] | g'(t) \rangle$$

équation analogue à l'équation d'évolution habituelle de la matrice densité (en représentation d'interaction) en présence de la perturbation  $h_1(t)$ . La différence réside dans le fait que les kets  $|g\rangle, |g'\rangle$  sont des fonctions du temps.

b) Evolution de l'ion en présence de relaxation ( $G \neq 0$ ).

Nous devons modifier quelque peu la théorie de F. Bloch pour l'adapter au cas particulier considéré ici. Le hamiltonien de départ est :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + F + G + \mathcal{H}_1(t)$$

$\tilde{G}(t)$  est défini à partir de  $\tilde{G}(t) = \left[ \exp. \left( \frac{iFt}{\hbar} \right) G \exp. \left( - \frac{iFt}{\hbar} \right) \right]$  de la même façon que  $\tilde{h}_1(t)$  à partir de  $h_1(t)$ .

Comme nous l'avons déjà dit, les fréquences de relaxation  $\frac{1}{2\pi\tau}$  de l'ion de terre rare ( $\tau \sim 10^{-10}$  s) sont petites devant les distances  $(E_{q_0} - E_{q_1})/\hbar$ . Nous utiliserons aussi le fait que  $\tau$  et  $1/\omega$  ( $\sim 10^{-10}$ ) sont très longs par rapport aux temps de corrélation  $\theta_c$  ( $\sim 10^{-13}$  ...) qui caractérisent les fonctions de corrélation associées à  $G(t)$ .

Enfin, pour simplifier la discussion, nous supposons que l'ion de terre rare ne possède pas de couples de niveaux  $g, g'$  et  $g'', g'''$  tels que  $g-g' \approx g''-g'''$ .

Nous procédons comme dans les références (46) (48) et négligeons par avance les termes de couplage rapidement oscillants (cf. réf. (48), eq. 3.14), ce qui sera plausible a posteriori puisque  $1/\tau \ll |g-g'|$  ; il vient :

$$\frac{d}{dt} \langle g_t | \tilde{\sigma}(t) | g'_t \rangle = \frac{1}{\hbar} \langle g_t | [ \tilde{\sigma}(t), \tilde{h}_1(t) ] | g'_t \rangle$$

$$\begin{aligned} & + \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \int_0^t d\theta \langle (g+q)_{t-\theta} | \tilde{\sigma}(0) | (g'+q)_{t-\theta} \rangle \left\{ \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \mathcal{E}_p \langle f u_{g_t} | \tilde{G}(t) | f' u'(g+q) \rangle \langle f' u'(g'+q)_{t-\theta} | \tilde{G}(t-\theta) | f u_{g'_{t-\theta}} \rangle \right. \\ & \quad \left. + \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \mathcal{E}_p \langle f u_{g_{t-\theta}} | \tilde{G}(t-\theta) | f' u'(g+q)_{t-\theta} \rangle \langle f' u'(g'+q) | \tilde{G}(t) | f u_{g'_t} \rangle \right\} \\ & - \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \int_0^t d\theta \langle g_{t-\theta} | \tilde{\sigma}(0) | g'_{t-\theta} \rangle \left\{ \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \mathcal{E}_p \langle f u_{g_t} | \tilde{G}(t) | f' u'(g+q) \rangle \langle f' u'(g+q)_{t-\theta} | \tilde{G}(t-\theta) | f u_{g_{t-\theta}} \rangle \right. \\ & \quad \left. + \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \mathcal{E}_p \langle f u_{g'_{t-\theta}} | \tilde{G}(t-\theta) | f' u'(g'+q)_{t-\theta} \rangle \langle f' u'(g'+q) | \tilde{G}(t) | f u_{g'_t} \rangle \right\} \end{aligned}$$

où l'on a posé  $g_t = g(t)$ ,  $\mathcal{E}_p = [\exp.(-\hbar t/k_B T) / \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \exp.(-\hbar f'/k_B T)]$  et où, si  $g \neq g'$ , la première somme sur  $p$  se réduit au terme  $p = 0$ .

Nous allons maintenant examiner de plus près les termes de relaxation, en nous inspirant de la discussion qui se trouve dans le livre d'Abragam (14). Considérons par exemple la quantité :

$$\begin{aligned} I &= \int_0^t d\theta \langle (g+q)_{t-\theta} | \tilde{\sigma}(0) | (g'+q)_{t-\theta} \rangle \left\{ \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \mathcal{E}_p \langle f u_{g_t} | \tilde{G}(t) | f' u'(g+q) \rangle \langle f' u'(g'+q)_{t-\theta} | \tilde{G}(t-\theta) | f u_{g'_{t-\theta}} \rangle \right\} \\ &= \int_0^t d\theta \langle (g+q)_{t-\theta} | \tilde{\sigma}(0) | (g'+q)_{t-\theta} \rangle \exp. \left[ -i \int_{t-\theta}^t q(t') dt' \right] \left\{ \sum_{\frac{1}{\hbar^2}} \mathcal{E}_p \langle f u_{g_t} | G | f' u'(g+q) \rangle \times \right. \\ & \quad \left. \langle f' u'(g'+q)_{t-\theta} | G | f u_{g'_{t-\theta}} \rangle e^{i \int_{t-\theta}^t q(t') dt'} \right\} \\ &= \int_0^t d\theta \langle (g+q)_{t-\theta} | \tilde{\sigma}(0) | (g'+q)_{t-\theta} \rangle \exp. \left[ -i \int_{t-\theta}^t q(t') dt' \right] U(t, t-\theta) \end{aligned}$$

avec

$$U(t, t-\theta) = \langle (g'+q)_{t-\theta} | \tilde{G}(t-\theta) | g'_{t-\theta} \rangle \langle g_t | \tilde{G}(t) | (g+q)_t \rangle$$

La fonction de corrélation  $U$  représente une moyenne par rapport au système  $F$  et est telle que, par définition des temps de corrélation  $\theta_c$ , si  $\theta > \theta_c$  :  $U(t, t-\theta) = 0$ .

Par ailleurs les quantités  $q(t)$ ,  $g_t$ ,  $(g+q)_t$  ... sont la somme d'un terme constant et d'un terme oscillant de pulsation  $\omega$ , dont la variation sur un intervalle de temps  $\theta \sim \theta_c$  ou même  $\theta \sim 10 \theta_c$  est absolument négligeable. Il en est de même pour  $\tilde{\sigma}(t)$  dont l'évolution met en jeu des constantes de temps de l'ordre de  $\tau$  et  $1/\omega$ . Donc si  $t \gg \theta_c$  et  $t \ll \frac{1}{\tau}$ ,  $\omega$  (où  $\frac{1}{\tau} \sim G^2 \theta_c$ ) :

$$I \gamma \langle (g+q)_i | \tilde{\sigma}(t) | (g'+q)_i \rangle \int_0^t d\theta \exp(-iq(t)\theta) U(t, t-\theta)$$

Enfin il paraît raisonnable d'admettre que la fonction  $U'(t, \theta)$  :

$$U'(t, \theta) = \sum_{\substack{g'' \\ \omega''}} \mathfrak{E}_{g''} \langle f u_{g''} | G | f' u'(g+q)_i \rangle \langle f' u'(g'+q)_i | G | f u_{g''} \rangle e^{i(f'-f'')\theta}$$

qui est très voisine de  $U(t, t-\theta)$  si  $\theta < \theta_0$ , est également nulle si  $\theta > \theta_0$ . Par suite :

$$I \gamma \langle (g+q)_i | \tilde{\sigma}(t) | (g'+q)_i \rangle \int_0^{\theta_0} d\theta \exp(-iq(t)\theta) U'(t, \theta)$$

Nous pouvons donc récrire l'équation d'évolution de la matrice densité sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}'_i \rangle &= \frac{1}{\hbar} \langle \mathfrak{E}_i | [\tilde{\sigma}(t), \tilde{h}_1(t)] | \mathfrak{E}'_i \rangle + \sum_q \Lambda_{g''}^q \langle (g+q)_i | \tilde{\sigma}(t) | (g'+q)_i \rangle \\ &\quad - \sum_q (B_{g''}^q + B_{g'''}^q) \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}'_i \rangle \end{aligned}$$

avec :

$$B_{g''}^q = \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{\theta_0} \sum_{\substack{g'' \\ \omega''}} \mathfrak{E}_{g''} \langle f u_{g''} | G | f' u'(g+q)_i \rangle \langle f' u'(g'+q)_i | G | f u_{g''} \rangle e^{i(f'-f'')\theta} d\theta$$

Remarquant que :

$$\int_0^{\theta_0} e^{i(f'-f'')\theta} d\theta = \pi \delta(f-f'-q(t)) + i \mathfrak{E} \frac{1}{f-f'-q(t)}$$

nous définissons comme F. Bloch (46) :

$$\Gamma_{g''}^q = \frac{\pi}{\hbar^2} \sum_{\substack{g'' \\ \omega''}} \mathfrak{E}_{g''} \langle f u_{g''} | G | (f-q)_i, u', (g+q)_i \rangle \langle (f-q)_i, u', (g'+q)_i | G | f u_{g''} \rangle$$

On vérifie aisément que :

$$\Lambda_{g''}^q = 2 \exp\left(\frac{\hbar q_i}{k_B T}\right) \Gamma_{g''}^q$$

Par ailleurs  $B_{g''}^q$  ne diffère de  $\Gamma_{g''}^q$  que par un terme imaginaire qui correspond à un déplacement de niveau, en général très petit devant la largeur de raie  $1/\tau$ . Si nous négligeons ces petits termes imaginaires, l'équation d'évolution devient :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}'_i \rangle &= \frac{1}{\hbar} \langle \mathfrak{E}_i | [\tilde{\sigma}(t), \tilde{h}_1(t)] | \mathfrak{E}'_i \rangle \\ &+ \sum_q 2 \exp\left(\frac{\hbar q_i}{k_B T}\right) \Gamma_{g''}^q \langle (g+q)_i | \tilde{\sigma}(t) | (g'+q)_i \rangle - \sum_q (\Gamma_{g''}^q + \Gamma_{g'''}^q) \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}'_i \rangle \end{aligned}$$

La différence avec les équations de F. Bloch réside dans le fait que les quantités  $\exp\left(\frac{\hbar q_i}{k_B T}\right)$ ,  $\Gamma_{g''}^q$ , ... sont légèrement modulées à la pulsation  $\omega$ .

Omettons pour l'instant les termes en  $\tilde{h}_1(t)$ . L'équation d'évolution d'un élément de matrice non diagonal s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}'_i \rangle = - \left[ \sum_q (\Gamma_{g''}^q + \Gamma_{g'''}^q) - 2 \Gamma_{g''}^q \right] \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}'_i \rangle$$

La relaxation de ce terme s'effectue vers la valeur zéro.

Pour un élément de matrice diagonal :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}_i \rangle = \sum_q 2 \Gamma_{g''}^q \left\{ \exp\left(\frac{\hbar q_i}{k_B T}\right) \langle (g+q)_i | \tilde{\sigma}(t) | (g+q)_i \rangle - \langle \mathfrak{E}_i | \tilde{\sigma}(t) | \mathfrak{E}_i \rangle \right\}$$

Soit  $\sigma_{\alpha}(t)$  la matrice diagonale qui correspondrait à l'équilibre thermique pour les valeurs  $E_g(t), E_{g'}(t) \dots$  des niveaux d'énergie :

$$\langle g_i | \sigma_{\alpha}(t) | g_i \rangle = \exp. (-\hbar g_i / k_p T) / \sum_j \exp. (-\hbar g_j / k_p T)$$

L'équation précédente se écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle g_i | \tilde{\sigma}(t) | g_i \rangle &= \sum_j 2 \Gamma_{ij}^{\alpha} \exp. \left( \frac{\hbar g_j}{k_p T} \right) \langle (g+j)_i | \tilde{\sigma}(t) - \sigma_{\alpha}(t) | (g+j)_i \rangle \\ &- \sum_j 2 \Gamma_{ji}^{\alpha} \langle g_i | \tilde{\sigma}(t) - \sigma_{\alpha}(t) | g_i \rangle \end{aligned}$$

et l'on voit, sous cette forme, que la relaxation des éléments de matrice diagonaux de  $\tilde{\sigma}(t)$  s'effectue à chaque instant vers la matrice  $\sigma_{\alpha}(t)$ .

Tout ceci suggère que l'on peut réduire la matrice  $\tilde{\sigma}(t)$  à sa partie diagonale et raisonner en termes de populations  $p_g(t) = \langle g(t) | \tilde{\sigma}(t) | g(t) \rangle$ .

Mais nous devons d'abord vérifier que dans l'équation d'évolution de la matrice densité les termes en  $\tilde{h}_1(t)$  sont effectivement négligeables

$$\langle g | \tilde{h}_1(t) | g' \rangle \sim \frac{\hbar \omega}{E_g - E_{g'}} \langle g | (-\mathcal{K}H_1) | g' \rangle \exp. \left[ i \int_0^t (g'_i - g_i) dt' \right] \text{ (avec } g \neq g')$$

En effet

. d'une part ils oscillent très rapidement, à des fréquences de l'ordre de  $|g_g - g'_g| \gg \frac{1}{\tau}$ , donc leur effet moyen est nul car l'ion ne peut pas les "suivre".

. d'autre part ils ne sont pas très grands par rapport aux termes de relaxation :

$$\left\{ \begin{aligned} \langle g | \tilde{h}_1(t) | g' \rangle &\sim \frac{\hbar \omega}{E_g - E_{g'}} \langle g | \mathcal{K}H_1 | g' \rangle \sim \frac{1/10 \text{ cm}^{-1}}{\text{quelques cm}^{-1}} \langle g | \mathcal{K}H_1 | g' \rangle \sim \frac{1}{40} \langle g | \mathcal{K}H_1 | g' \rangle \\ \Gamma_{ij}^{\alpha} \langle g | \tilde{\sigma}(t) - \sigma_{\alpha}(t) | g \rangle &\sim \frac{1}{\tau} \frac{\langle g | \mathcal{K}H_1 | g' \rangle}{k_p T} \sim \frac{10\,000 \text{ Mc/s}}{20\,000 \text{ Mc/s} \times T} \sim \frac{1}{40} \langle g | \mathcal{K}H_1 | g \rangle \end{aligned} \right.$$

Nous pouvons donc négliger les termes non diagonaux de  $\sigma(t)$  et écrire l'équation d'évolution en termes de populations. Posons

$$W_{g \rightarrow g'} = \frac{1}{\tau_{g \rightarrow g'}} = 2 \Gamma_{g'g}^{\alpha}, \quad W_{g' \rightarrow g} = \frac{1}{\tau_{g' \rightarrow g}} = 2 \exp. \left( \frac{\hbar g_g}{k T} \right) \Gamma_{gg'}^{\alpha}$$

il vient

$$\frac{dp_g}{dt} = \sum_{g'} \left[ \frac{1}{\tau_{g' \rightarrow g}} (p_{g'} - p_{g'}) - \frac{1}{\tau_{g \rightarrow g'}} (p_g - p_{g'}) \right]$$

La relaxation de la matrice diagonale  $p(t)$  s'effectue donc à chaque instant vers la matrice diagonale  $p_{\alpha}(t)$ , et les probabilités de transition  $1/\tau$  qui figurent dans l'équation sont celles que l'on calculerait en supposant que les niveaux et les kets de l'ion de terre rare ont constamment les valeurs  $E_g(t)$  et  $|g_i\rangle$ . Ce résultat simple tient évidemment à la petitesse de  $\theta_i$ .

Les quantités  $1/\tau$  sont légèrement modulées à la pulsation  $\omega$ . Nous pouvons sans inconvénient négliger cette modulation dans ce qui va suivre.

## 2/ Calcul de la susceptibilité radiofréquence.

Nous avons démontré dans le paragraphe précédent qu'en présence du champ radiofréquence toutes les informations relatives à l'ion de terre rare se trouvaient contenues dans

- Les fonctions d'onde

$$|g\rangle = |g_i\rangle + \sum_{g'_i \neq g_i} \frac{\langle g'_i | \mathcal{K}_1(t) | g_i \rangle}{E_{g'_i} - E_{g_i}} |g'_i\rangle + \dots \quad \text{[IV. 12]}$$

- Les niveaux d'énergie

$$E_i = E_{i_0} + \langle g_i | \mathcal{H}_1(t) | g_i \rangle + \dots \quad [IV. 13]$$

- Les populations  $p_i$  de ces niveaux, données par les équations

$$\frac{dp_i}{dt} = \sum_j \left[ \frac{1}{\tau_{j \rightarrow i}} (p_j - p_{j_0}) - \frac{1}{\tau_{i \rightarrow j}} (p_i - p_{i_0}) \right] \quad [IV. 14]$$

avec

$$\sum_j p_j = \text{const} = 1, \\ p_{i_0} = (\exp. (-E_i/k_b T)) / \sum_j \exp. (-E_j/k_b T)$$

et

$$(1/\tau_{j \rightarrow i}) = (1/\tau_{i \rightarrow j}) \times \exp. \left( \frac{E_{i_0} - E_{j_0}}{k_b T} \right).$$

Les quantités  $1/\tau_{j \rightarrow i}, \dots$  sont des constantes.

Remarquons tout de suite que, pour un système à plus de deux niveaux, les équations exactes IV. 14 sont différentes des équations phénoménologiques postulées par Clogston, qui s'écriraient avec les notations utilisées ici :

$$\frac{dp_i}{dt} = \frac{P_{i_0} - p_i}{\tau}$$

Il en résulte que les formules obtenues par Clogston à l'aide de ces équations ne sont rigoureusement valables que si le (ou les) système perturbateur n'a que deux niveaux.

On vérifie par ailleurs aisément que les équations IV. 14, tout comme les équations de Clogston, conduisent en régime permanent à des solutions  $p_i(t)$  fonctions sinusoidales du temps. Les susceptibilités radiofréquence de l'ion peuvent alors se déduire des expressions :

$$\langle \mathcal{M}_i^{\omega} \rangle = \sum_j [p_j(t) - p_{j_0}] \mathcal{M}_{i_0, j_0}^{\omega} - \sum_j \sum_{i_0, j_0}^i p_{i_0} \frac{\mathcal{M}_{i_0, i_0}^{\omega} \mathcal{M}_{i_0, j_0}^{\omega} + C. C.}{E_{i_0} - E_{j_0}} H_1^{\omega} \cos(\omega t + \varphi_j) \quad [IV. 15]$$

Dans le cas d'impuretés à deux niveaux a, b ( $p_a + p_b = 1$ ), si l'on pose  $P_i^{\omega} = p_i - p_{i_0}$ ,  $P_{i_0}^{\omega} = P_{i_0}(t) - p_{i_0}$ ,  $1/\tau = 1/\tau_{a \rightarrow b} + 1/\tau_{b \rightarrow a}$  la méthode d'intégration de Clogston conduit à :

$$P_i(t) = P_{i_0}(t) - e^{-t/\tau} \int_0^t e^{t'/\tau} \frac{dP_{i_0}^{\omega}}{dt'} dt' + e^{-t/\tau} [P_i(0) - P_{i_0}(0)]$$

soit en régime permanent à :

$$P_i(t) = P_{i_0} + \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \sum_j \frac{\partial P_j}{\partial H^{\omega}} H_1^{\omega} \cos(\omega t + \varphi_j) + \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \sum_j \frac{\partial P_j}{\partial H^{\omega}} H_1^{\omega} \sin(\omega t + \varphi_j) \quad [IV. 16]$$

(dans cette expression et les suivantes, les champs  $H^{\omega} \dots$  qui figurent dans les dérivées sont supposés statiques)

D'où, pour  $\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i \chi''(\omega)$ , en remarquant que

$$\mathcal{M}_{i_0, i_0}^{\omega} = - \frac{\partial E_{i_0}}{\partial H^{\omega}}$$

et

$$\sum_{i_0, j_0} R_{i_0} \frac{\mathcal{M}_{i_0, i_0}^{\omega} \mathcal{M}_{i_0, j_0}^{\omega} + C. C.}{E_{i_0} - E_{j_0}} = \frac{\partial^2 E_{i_0}}{\partial H^{\omega} \partial H^{\omega}} \\ \nu \chi''^{\omega} = - \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \sum_{i_0} \frac{\partial P_{i_0}}{\partial H^{\omega}} \frac{\partial E_{i_0}}{\partial H^{\omega}} - \sum_{i_0} R_{i_0} \frac{\partial^2 E_{i_0}}{\partial H^{\omega} \partial H^{\omega}} \\ = \frac{(\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2} \sum_{i_0} \frac{\partial P_{i_0}}{\partial H^{\omega}} \frac{\partial E_{i_0}}{\partial H^{\omega}} - \sum_{i_0} \frac{\partial}{\partial H^{\omega}} \left( R_{i_0} \frac{\partial E_{i_0}}{\partial H^{\omega}} \right) \quad [IV. 17]$$

$$v \chi_{\alpha}^{\alpha\beta} = - \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \sum_{\beta} \frac{\partial p_{\beta}}{\partial H^{\alpha}} \frac{\partial E_{\beta}}{\partial H^{\alpha}} \quad \text{[IV. 18]}$$

expressions qui nous permettront tout à l'heure de retrouver les résultats de Clogston.

Dans le cas général où l'ion a plus de deux niveaux, la relaxation de l'ion est caractérisée par plusieurs temps de relaxation différents  $\tau_1 \dots \tau_n$ , et l'on prévoit que la solution de (IV. 14) sera de la forme :

$$p_{\beta}(t) = p_{\beta_0} + \sum_{\alpha} A_{\alpha\beta}(\omega, \tau_1 \dots \tau_n) \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} H_1^{\beta} \cos(\omega t + \varphi^{\beta}) + \sum_{\alpha} B_{\alpha\beta}(\dots) \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} H_1^{\beta} \sin(\omega t + \varphi^{\beta}) \quad \text{[IV. 19]}$$

avec

$$A_{\alpha\beta} = \sum_{\gamma} C_{\alpha\beta}^{\gamma} \frac{1}{1 + (\omega \tau_{\gamma})^2}, \quad B_{\alpha\beta} = \sum_{\gamma} C_{\alpha\beta}^{\gamma} \frac{\omega \tau_{\gamma}}{1 + (\omega \tau_{\gamma})^2}$$

d'où l'on déduit que :

$$\begin{cases} v \chi_{\alpha}^{\alpha\beta} = - \sum_{\gamma} C_{\alpha\beta}^{\gamma} \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial H^{\alpha}} \frac{1}{1 + (\omega \tau_{\gamma})^2} - \sum_{\gamma} p_{\alpha} \frac{\partial^2 E_{\alpha}}{\partial H^{\alpha} \partial H^{\beta}} \\ v \chi_{\alpha}^{\alpha\beta} = - \sum_{\gamma} C_{\alpha\beta}^{\gamma} \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial H^{\alpha}} \frac{\omega \tau_{\gamma}}{1 + (\omega \tau_{\gamma})^2} \end{cases} \quad \text{[IV. 20]}$$

Dans ces expressions les quantités  $1/\tau_{\gamma}$ ,  $C_{\alpha\beta}^{\gamma}$  sont des fonctions des probabilités de transition  $1/\tau_{\alpha\beta}$ , dont il n'est pas possible de préciser la forme sans faire un calcul détaillé. Tout ce que nous pouvons dire (en considérant le cas limite statique) est que  $\sum_{\gamma} C_{\alpha\beta}^{\gamma} = \delta_{\alpha\beta}$ . Ayant noté l'analogie entre IV. 20 et IV. 17-18 nous allons donc étudier plus en détail les propriétés des grenats de fer et d'yttrium qui contiennent des impuretés de terres rares à deux niveaux ( $\text{Yb}^{3+}$ ) : les conclusions auxquelles nous arriverons doivent rester valables dans le cas général. Dans les § 3-4 nous conservons le modèle simple adopté jusqu'à présent, qui conduit à des résultats dont l'interprétation est très facile. Dans le § 5 nous indiquons les modifications à introduire pour tenir compte de la structure complexe du grenat.

### 3/ Résonance ferrimagnétique du grenat dopé à l'yttrium.

Retournons aux formules (IV. 2) : elles contiennent des quantités de la forme :

$$I = \sum_{\alpha} \chi_{\alpha}^{\alpha} \lambda^{\alpha} \lambda^{\alpha} \quad \text{avec} \quad \begin{matrix} a, b = X, Y \\ \alpha, \beta = x, y, z \end{matrix}$$

soit encore, compte tenu de IV. 17 et IV. 18 :

$$I = nV^{-1} \sum_{\alpha} \lambda^{\alpha} \lambda^{\alpha} \left\{ \left[ \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2} - \frac{i \omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \right] \sum_{\beta} \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} - \sum_{\beta} \frac{\partial}{\partial H^{\alpha}} \left( p_{\alpha} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial H^{\beta}} \right) \right\}$$

Posons :

$$\frac{M^x}{M^z} = \phi^x = \theta, \quad \frac{M^y}{M^z} = \phi^y = \varphi$$

Il vient :

$$\lambda^{\alpha} = \frac{1}{M^z} \frac{\partial H^{\alpha}}{\partial \phi^{\alpha}} ; \quad \sum_{\alpha} \frac{\partial^2 E_{\alpha}}{\partial H^{\alpha} \partial H^{\beta}} \lambda^{\alpha} \lambda^{\beta} = \frac{1}{(M^z)^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^{\alpha} \partial \phi^{\beta}} \text{ etc ...}$$

Les équations IV. 2 deviennent donc :

$$\begin{aligned} -i\Omega M^z = -\gamma_s \frac{nV^{-1}}{M^z} \left\{ \left[ \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2} - \frac{i \omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \right] \sum_{\alpha} \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial \phi} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial \phi} - \sum_{\alpha} \frac{\partial}{\partial \phi} \left( p_{\alpha} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial \phi} \right) \right\} M^z \\ + \left( \gamma_s H_{\text{eff}} - \frac{\gamma_s nV^{-1}}{M^z} \left\{ \left[ \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2} - \frac{i \omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \right] \sum_{\alpha} \frac{\partial p_{\alpha}}{\partial \phi} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial \phi} - \sum_{\alpha} \frac{\partial}{\partial \phi} \left( p_{\alpha} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial \phi} \right) \right\} \right) M^z \quad \text{[IV. 21]} \end{aligned}$$

$$+ i \Omega M' = \left( \gamma_s H_{eff} - \frac{\gamma_s n V^{-1}}{M^2} \left\{ \left[ \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2} - \frac{i \omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \right] \sum_s \frac{\partial p_s}{\partial \theta} \frac{\partial E_{1s}}{\partial \theta} - \sum_s \frac{\partial}{\partial \theta} \left( p_s \frac{\partial E_{1s}}{\partial \theta} \right) \right\} \right) M'$$

$$- \frac{\gamma_s n V^{-1}}{M^2} \left\{ \left[ \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2} - \frac{i \omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \right] \sum_s \frac{\partial p_s}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \theta} - \sum_s \frac{\partial}{\partial \varphi} \left( p_s \frac{\partial E_{2s}}{\partial \theta} \right) \right\} M'$$

et les second membres de ces équations sont, rappelons le, respectivement égaux à  $-\gamma_s T_s$  et  $+\gamma_s T_s$ , où  $T_s$  et  $T_s$  sont les deux composantes du couple auquel est soumise  $M$ . Si nous calculons maintenant  $\Omega$  (cf. eq. IV.3) la contribution des termes croisés en  $\frac{\partial}{\partial \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi}$  et  $\frac{\partial^2}{\partial \theta \partial \varphi}$ , qui est proportion-

$$\sum_s \left( \frac{\partial p_s}{\partial \theta} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \varphi} - \frac{\partial p_s}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \theta} \right) = \sum_{s,s'} \left( \frac{\partial p_s}{\partial E_{s'}} - \frac{\partial p_{s'}}{\partial E_s} \right) \frac{\partial E_{s'}}{\partial \theta} \frac{\partial E_s}{\partial \varphi} = 0$$

s'élimine, et l'on trouve :

$$\omega = \pm \gamma_s \left[ H_{eff} + \frac{1}{2} n \frac{V^{-1}}{M^2} \left\{ \sum_s \frac{\partial}{\partial \theta} \left( p_s \frac{\partial E_{1s}}{\partial \theta} \right) + \frac{\partial}{\partial \varphi} \left( p_s \frac{\partial E_{1s}}{\partial \varphi} \right) - \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2} \sum_s \left( \frac{\partial p_s}{\partial \theta} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \theta} + \frac{\partial p_s}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \varphi} \right) \right\} \right] \quad [IV. 22]$$

et (pour  $\omega \approx +\gamma_s$  Heff) :

$$\frac{\Delta \omega}{2} = - \frac{\gamma_s n}{2} \frac{V^{-1}}{M^2} \left\{ \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \sum_s \left( \frac{\partial p_s}{\partial \theta} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \theta} + \frac{\partial p_s}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \varphi} \right) \right\} \quad [IV. 23]$$

en accord avec les équations 3-12 et 3-13 de Clogston  $\left( \frac{\gamma_s n V^{-1}}{M^2} = \frac{n}{N \hbar S^2} \right)$ .

Ces formules sont en bon accord avec les résultats expérimentaux\*, ce qui indique (cf. § C), qu'il existe effectivement un couplage entre  $\vec{M}$  et des composantes, à éléments de matrice diagonaux non tous nuls, des moments de terres rares. L'une des contributions les plus importantes (31 a) provient sans doute du couplage ( $\propto \lambda^{2s}, \lambda^{2s'}$ ) entre l'aimantation transversale des fers et l'aimantation longitudinale des terres rares : en effet, dans le grenat,  $\lambda^{2s}, \lambda^{2s'}$  seront généralement non nuls pour deux raisons :

α) le couplage d'échange terre rare-fer n'est pas nécessairement scalaire (49),

β) même s'il l'est, les positions d'équilibre des moments magnétiques de terres rares ne sont pas colinéaires à celles des moments de fers car, pour les ions de terres rares, les effets de champ cristallin sont comparables au couplage d'échange terre rare fer (50)\*\*.

Nous remarquons par ailleurs (cf. eq. IV. 23) que la largeur de raie ferrimagnétique  $\Delta \omega \propto \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2}$  passera par un maximum pour  $1/\tau \sim \omega$  : la température correspondante dépendra donc de la fréquence  $\omega/2\pi$  utilisée ; on prévoit que ces conclusions : existence d'un maximum, dont la position dépend de  $\omega$ , resteront qualitativement valables dans le cas général, en accord avec les résultats expérimentaux.

#### 4/ Relaxation nucléaire dans le grenat dopé à l'ytterbium.

On vérifie aisément que :

$$\frac{1}{T_1} = - \frac{\omega^2}{8\pi} \frac{\omega_s^2}{\omega_s^2} \frac{k_B T}{\hbar \omega_s} \frac{n}{N \hbar} \left\{ \frac{\omega_s \tau}{1 + (\omega_s \tau)^2} \sum_s \left( \frac{\partial p_s}{\partial \theta} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \theta} + \frac{\partial p_s}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{2s}}{\partial \varphi} \right) \right\} \quad [IV. 24]$$

\* Ces expressions établies initialement par Clogston pour expliquer les propriétés des ferrites ont permis à Teale et Tweedale d'interpréter de façon presque quantitative les résultats obtenus sur du grenat dopé à l'ytterbium (compte tenu du fait qu'il existe en réalité 8 sites non équivalents pour les ions de terres rares : cf. § 3).

\*\* Remarquons que si cette contribution longitudinale est prépondérante les formules générales IV.3 et IV.7 se simplifient considérablement (31a) : en effet, pour les impuretés de terres rares quelconques  $\chi^{2s,2s'} = 0$ , sauf si  $\alpha = \beta$  et  $\chi_{2s}^{2s} = \chi_{2s'}^{2s'} = \chi_{2s}^{2s}$ . On trouve en particulier que  $\Delta \omega \propto \chi_{2s}^{2s}$  (de même  $1/T_1 T \propto \frac{\chi_{2s}^{2s}}{\omega_s}$ ).

\*\*\* Ces valeurs ne peuvent être qu'approchées car les populations des niveaux varient également avec la température.

D'où l'on déduit que la quantité  $1/T_1 T \propto \frac{\tau}{1 + (\omega \tau)^2}$  passera par un maximum pour  $1/\tau \sim \omega$ . Comme la fréquence de résonance nucléaire ( $\nu_n \sim 10^8$ ) est petite par rapport aux fréquences utilisées en résonance électronique ( $\sim 10^9 - 10^{10}$ ), le maximum de  $1/T_1 T$  aura donc lieu à une température plus basse que le maximum de  $\frac{\Delta\omega}{\omega}$ . Ici encore, on peut raisonnablement penser que ce résultat est général, en accord avec les mesures de Robert et Winter ((38 a) et fig. 16). De même le rapport

$$\frac{\Delta\omega/\omega}{1/T_1 T} = \frac{8\pi n S}{k_n} \frac{\omega_n^{3/2} \omega_n^{1/2}}{\omega_n^2} \frac{\tau/[1 + (\omega\tau)^2]}{\tau/[1 + (\omega_n\tau)^2]} \quad \text{[IV. 25]}$$

ne sera constant qu'à très basse température ( $|\omega_n \tau| < 1$ ) ; on retrouve alors la relation (IV. 11').

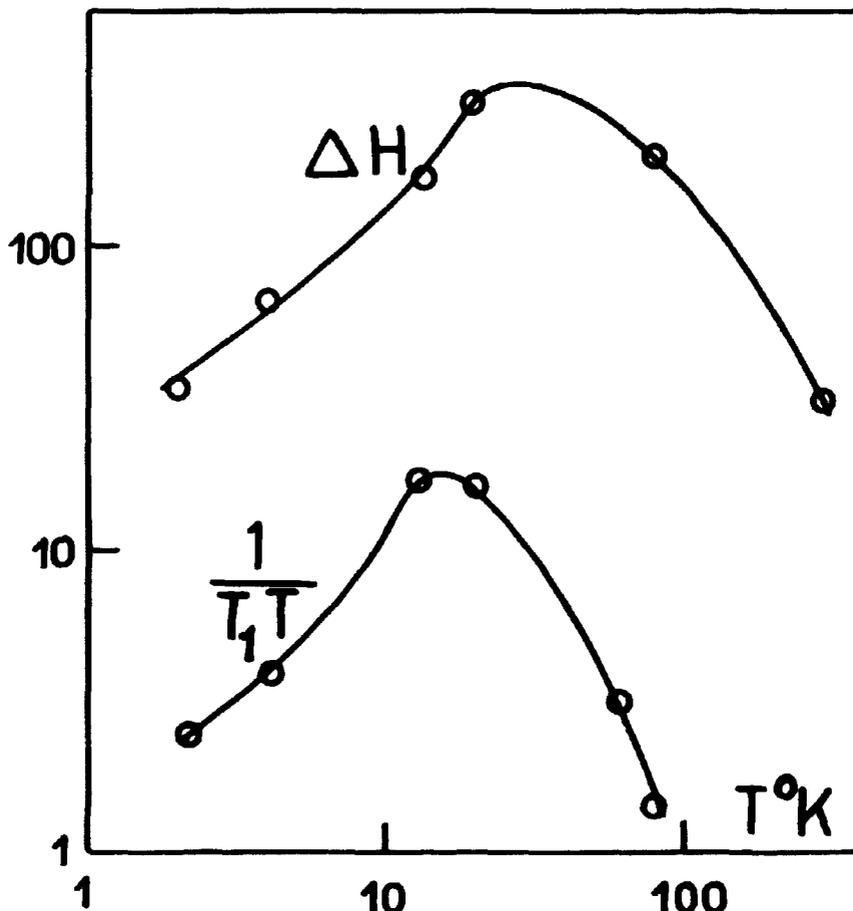


Fig. 16 - Comparaison entre la largeur ( $\Delta H$ ), de la raie de résonance ferrimagnétique (unités arbitraires), et le temps de relaxation nucléaire  $T_1$  ( $T$ ) des noyaux  $^{57}\text{Fe}$  (24 d) pour un échantillon de grenat impur dans un champ de 3 000 Oe ( $\nu$  ferrimagn. = 9 300 Mc/sec). D'après C. Robert.

### 5/ Généralisation.

Nous avons supposé jusqu'à présent que tous les ions de terre rare avaient le même environnement et que chacun d'eux n'était couplé qu'à un seul ion fer. En fait, dans le grenat de fer et d'yttrium, les ions  $24C$  peuvent occuper 6 positions  $j$  non équivalentes, et chaque ion de terre rare est couplé à plusieurs ions fer voisins. Il faut donc ajouter les différentes contributions correspondantes, ce qui complique légèrement les formules obtenues. A titre d'exemple, pour des impuretés d'ytterbium, les équations IV. 23-24 devront être remplacées par les équations plus exactes:

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\Delta\omega}{2} &= -\frac{Y_n}{2} \frac{n}{6} \frac{V^{-1}}{M^2} \sum_j \left\{ \frac{\omega \tau_j}{1 + (\omega \tau_j)^2} \sum_n \left( \frac{\partial R_{n,j}}{\partial \theta} \frac{\partial E_{n,j}}{\partial \theta} + \frac{\partial R_{n,j}}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{n,j}}{\partial \varphi} \right) \right\} \\ \frac{1}{T_1} &= -\frac{\omega_n^2}{8\pi \omega_n^{3/2} \omega_n^{1/2}} \frac{k_n T}{n \omega_n} \frac{n}{6 N h} \sum_j \left\{ \frac{\omega_n \tau_j}{1 + (\omega_n \tau_j)^2} \sum_n \left( \frac{\partial R_{n,j}}{\partial \theta} \frac{\partial E_{n,j}}{\partial \theta} + \frac{\partial R_{n,j}}{\partial \varphi} \frac{\partial E_{n,j}}{\partial \varphi} \right) \right\} \end{aligned} \right. \quad \text{[IV. 26]}$$

On prévoit néanmoins que les considérations précédentes resteront qualitativement valables. En toute rigueur on devrait aussi, pour  $1/T_1$ , tenir compte du fait que le réseau des fers est ferrimagnétique. Mais comme l'interaction indirecte terre rare-spin nucléaire est essentiellement due aux ondes de spin de grande longueur d'onde ( $\omega_1 \approx \omega_0$ ) ceci ne ferait guère qu'introduire une constante multiplicative ( $\sim 1$  à  $10$ ) dans l'expression de  $1/T_1$ .

Remarquons enfin que l'on peut modifier la direction des "champs" d'échange vus par les ions de terre rare, par rapport aux axes cristallographiques, en changeant l'orientation du champ extérieur  $H_0$ . Ceci pourra entraîner des variations importantes des susceptibilités (modification des niveaux et des temps de relaxation) d'où une anisotropie marquée de la largeur de raie  $\Delta\omega$  (36)(37) et du temps de relaxation nucléaire  $1/T_1$  (38 b).

Remarque : si l'on essaye d'exploiter les courbes  $\Delta\omega/\omega$  et  $1/T_1 T$  (fig. 16) (obtenues par Robert et Winter (38 a) sur un même grenat contenant des impuretés de terres rares diverses), à l'aide des formules simplistes  $\frac{\Delta\omega}{\omega} \propto \frac{1/\tau}{(1/\tau)^2 + \omega^2}$  et  $1/T_1 T \propto \frac{1/\tau}{(1/\tau)^2 + \omega^2}$ , on constate que les courbes  $(\Delta\omega/\omega)_T$  et  $(1/T_1 T)_T$  conduisent, pour une même température  $T$ , à des  $\tau$  très différents (par un facteur 100 par exemple). Ceci montre qu'il est impossible d'obtenir des renseignements précis sur les temps de relaxation des terres rares en utilisant des formules aussi simples.

Par contre, il serait extrêmement intéressant d'étudier simultanément la résonance ferrimagnétique et la résonance nucléaire d'échantillons de grenat contenant des quantités connues d'une terre rare bien déterminée, et d'essayer d'interpréter les résultats obtenus à l'aide des formules exactes IV.3.7, 20 - le cas de très loin le plus favorable étant évidemment celui du grenat dopé à l'ytterbium.



## DEUXIÈME PARTIE

# ÉCHANTILLONS POLYDOMAINES

On sait que ces échantillons donnent des signaux de résonance nucléaire particulièrement intenses, que l'on attribue aux noyaux situés dans les parois de Bloch (51). A cette grande intensité, seront donc associés en contre partie tous les inconvénients qui résultent de la structure même des parois de Bloch, zones de transition entre deux domaines : rotation continue de l'aimantation, donc élargissement inhomogène des raies si le champ local est anisotrope (chap. V) ; rotation non régulière donc distribution des facteurs d'augmentation (chap. VI) et des temps de relaxation (chap. VII) dans les parois, ce qui rend plus délicate l'interprétation des expériences, d'autant plus que les structures en domaines des échantillons sont complexes et mal connues (chap. VI et App. D). Néanmoins, outre leur intérêt dans la recherche des raies de résonance sur un corps nouveau, les expériences sur échantillons polydomaines permettent de recouper les renseignements obtenus en champ fort et fournissent d'utiles indications sur les excitations propres des parois de Bloch.

## V - EFFET DE L'ANISOTROPIE DU CHAMP LOCAL SUR LA RÉSONANCE NUCLÉAIRE DANS LES PAROIS DE BLOCH DU GRENAT DE FER ET D'YTTRIUM

### A - INTRODUCTION -

Puisque l'orientation de l'aimantation varie continûment dans les parois de Bloch, on s'attend à une disparition plus ou moins complète de la structure de raies observée en champ fort, s'accompagnant d'un élargissement de ces raies. Par ailleurs la pulsation du centre de gravité de la structure, qui dans les échantillons monodomaines était  $\omega = \gamma_n (H_n + H_e)$ , devrait ici être égale à  $\omega = \gamma_n \left( H_n + \frac{4\pi}{3} M \right)$ , où le champ  $+\frac{4\pi}{3} \vec{M}$  ( $\sim 800$  Oe) représente la différence entre les champs dipolaires dus aux ions éloignés, dans un échantillon polydomaine  $\left( +\frac{4\pi}{3} \vec{M} \right)$ , et dans un échantillon monodomaine sphérique (0) (cf. p. 10).

Il en est bien ainsi (6) pour le site 24d, qui fournit une raie unique de largeur de 150 Oe, alors que la largeur de raie en champ fort était de l'ordre de 80 Oe. Le site 16a (fig. 17) fournit également une raie unique, mais qui est beaucoup plus large (1 000 Oe) et est décalée de 2 100 Oe par rapport à la position prévue:  $\omega = \gamma_n \left( H_{n,16a} + \frac{4\pi}{3} M + 2\,100 \right)$ . Cette très grande largeur de raie ne pouvant s'expliquer par une inhomogénéité du champ macroscopique régnant dans l'échantillon, car une telle inhomogénéité affecterait également la résonance du site 24d.

Comme la structure de raies du site 16a en champ fort ( $\sim 5\,000$  Oe) est beaucoup plus importante que celle du site 24d ( $\sim 500$  Oe), on est donc conduit à penser que ces phénomènes sont également dus à l'inhomogénéité du champ local vu par les différents noyaux 16a d'une paroi. Pour nous en assurer nous avons calculé la forme de raie correspondante. Les résultats obtenus sont effectivement en bon accord avec l'expérience.

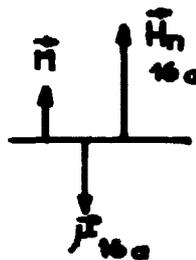


Fig. 17

### B - PAROIS DE BLOCH DU GRENAT -

La structure en domaines du grenat a été étudiée par Smith et Williams (52). Dans les domaines l'aimantation est parallèle à l'une des directions  $\langle 111 \rangle$  (anisotropie minimum). Ces directions font entre elles des angles égaux soit à  $109^\circ 28'$  soit à  $70^\circ 32'$  et Smith et Williams ont clairement mis en évidence des parois à  $110^\circ$  et  $70^\circ$ ; il existe aussi dans le grenat des parois à  $180^\circ$  mais elles sont moins bien connues et nous ne nous en occuperons pas.

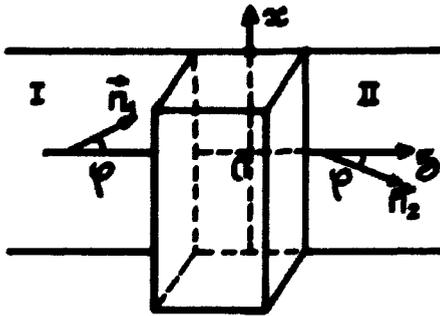


Fig. 18

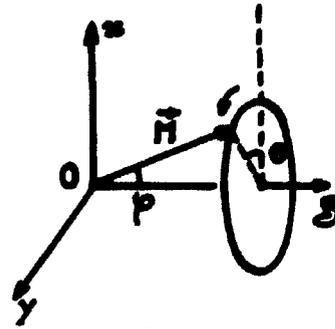


Fig. 19

Forme des parois (Fig. 18) : elle doit avant tout être telle qu'elle ne fasse pas apparaître de pôles magnétiques (auxquels serait associée une densité d'énergie en volume considérable). En pratique, soient  $\vec{n}_1, \vec{n}_2$  les directions de l'aimantation dans les domaines I et II  $(\vec{n}_1, \vec{n}_2) = 2\varphi$ , Oz et Ox les bissectrices intérieure et extérieure de l'angle correspondant : dans les parois la direction OM de l'aimantation tournera (fig. 19) en décrivant un cône dont l'axe sera situé dans le plan bissecteur yOz de  $\vec{n}_1, \vec{n}_2$ . Sur la figure et dans les calculs nous avons supposé que ce cône avait pour axe Oz conformément aux observations de Smith et Williams. Par suite  $(Oz, OM) = \varphi$ , et l'angle  $(Ox, OM) = \theta$  varie de 0 à  $\pi$  quand on traverse la paroi.

Pour une paroi à  $70^\circ$   $\sin \varphi = \frac{1}{\sqrt{3}}, \cos \varphi = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}}$

" " "  $110^\circ$   $\sin \varphi = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}}, \cos \varphi = \frac{1}{\sqrt{3}}$

Il reste donc, pour connaître la forme de la paroi, à déterminer la fonction  $\theta_0(z)$ . Bien que les résultats de ce calcul ne doivent pas nous servir par la suite, nous allons quand même les indiquer rapidement.  $\theta_0(z)$  doit être telle qu'en tout point de la paroi les densités d'énergie d'échange et d'anisotropie emmagasinées soient égales (53). Soient  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux côtés OXYZ de la maille cubique du grenat : ces densités d'énergie sont respectivement :

$$\frac{E_{ex}}{V} = A [(\vec{\nabla}\alpha_1)^2 + (\vec{\nabla}\alpha_2)^2 + (\vec{\nabla}\alpha_3)^2] \quad (V. 1)$$

$$\frac{E_{an}}{V} = -K [\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2 - 1/3] \quad (V. 2)$$

avec  $A = 4,3 \cdot 10^{-7}$  ergs/cm (54)  $\left\{ \begin{array}{l} K \sim 2,5 \cdot 10^5 \text{ ergs/cm}^3 \text{ à } 0^\circ \text{K} \text{ (55)} \\ (K \sim 3,5 \cdot 10^3 \text{ ergs/cm}^3 \text{ à } 300^\circ \text{K}). \end{array} \right.$

D'où l'on déduit :

$$\frac{E_{ex}}{V} = A \sin^2 \varphi \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \right)^2 \quad (V. 3)$$

et

- pour les parois à  $70^\circ$

$$\frac{E_{ex}}{V} = \frac{K}{36} \sin^2 \theta [3 \sin^2 \theta_0 + 8] \quad (V. 4)$$

d'où

$$\frac{\partial \theta_0}{\partial z} = \frac{1}{2\sqrt{3}} \left( \frac{K}{A} \right)^{1/2} \sin \theta_0 \sqrt{3 \sin^2 \theta_0 + 8} \quad (V. 5)$$

- pour les parois à  $110^\circ$

$$\frac{E_{ex}}{V} = \frac{4K}{9} \sin^2 \theta_0 \cos^2 \theta_0 \quad (V. 6)$$

d'où

$$\frac{\partial \theta}{\partial z} = \frac{1}{\sqrt{8}} \left(\frac{K}{A}\right)^{1/2} \sin(2 \theta_0) \quad [V. 7]$$

On voit que l'épaisseur de ces parois sera de l'ordre de 2 à 3 fois  $\left(\frac{K}{A}\right)^{1/2}$  - soit environ 1 000 Å - donc très supérieure aux dimensions de la maille (12,376 Å) ce qui permet d'utiliser pour le champ dipolaire dû aux ions proches voisins d'un ion donné, les formules obtenues dans le cas d'un échantillon monodomaine\*.

On remarque aussi qu'en principe la paroi à 110° devrait se dédoubler en deux parois correspondant à  $0 \leq \theta_0 \leq \frac{\pi}{2}$  et  $\frac{\pi}{2} \leq \theta_0 \leq \pi$ . En fait, comme pour les parois à 180° dans le fer cubique, ce dédoublement n'a pas lieu, par suite d'effets de magnétostriction (53).

### C - STRUCTURE DE LA RAIE DE RESONANCE NUCLEAIRE DES SITES 16a EN UN POINT DONNE DE LA PAROI -

Le champ "vu" par un spin nucléaire 16a est, comme nous venons de le voir, égal à

$$\vec{H}_{loc} = \vec{H}_0 + \frac{4\pi}{3} \vec{M} + H'_d \vec{M} \quad [V. 8]$$

où  $H'_d = \left(\frac{\vec{H}_{d12} + \vec{H}_{d21}}{M}\right) \vec{M}$  peut prendre, suivant la position de l'ion 16a dans la maille, les valeurs (avec des poids statistiques égaux).

$$\begin{cases} 2A'(\alpha_1 \alpha_2 + \alpha_2 \alpha_3 + \alpha_3 \alpha_1) \\ 2A'(-\alpha_1 \alpha_2 + \alpha_2 \alpha_3 - \alpha_3 \alpha_1) \\ 2A'(-\alpha_1 \alpha_2 - \alpha_2 \alpha_3 + \alpha_3 \alpha_1) \\ 2A'(\alpha_1 \alpha_2 - \alpha_2 \alpha_3 - \alpha_3 \alpha_1) \end{cases} \quad [V. 9]$$

avec  $A' = -2\ 500$  Oe (expérimental).

Soit encore

Pour une paroi à 70°

$$\begin{cases} \frac{2A'}{12} (8 \cos \theta_0 + 4 - 2 \sin^2 \theta_0) \\ \frac{2A'}{12} (-8 \cos \theta_0 + 4 - 2 \sin^2 \theta_0) \\ \frac{2A'}{12} (-2 \sqrt{2} \sin(2 \theta_0) - 4 + 2 \sin^2 \theta_0) \\ \frac{2A'}{12} (+2 \sqrt{2} \sin(2 \theta_0) - 4 + 2 \sin^2 \theta_0) \end{cases} \quad [V. 10]$$

Pour une paroi à 110°

$$\begin{cases} \frac{2A'}{3} (2 \cos \theta_0 + \cos 2 \theta_0) \\ \frac{2A'}{3} (-2 \cos \theta_0 + \cos 2 \theta_0) \\ \frac{2A'}{3} (-2 \sin \theta_0 - \cos 2 \theta_0) \\ \frac{2A'}{3} (2 \sin \theta_0 - \cos 2 \theta_0) \end{cases} \quad [V. 11]$$

\* L'aimantation moyenne de l'échantillon est nulle et  $\text{div. } \vec{M} = 0$  en tout point ; par suite le champ dipolaire dû aux ions éloignés (cf. chap. I p. 10) se réduit à  $\vec{H}_{d12} = +\frac{4\pi}{3} \vec{M}$ , où  $\vec{M}$  est la densité d'aimantation au point considéré.

Dans l'un et l'autre cas on vérifie que, pour  $\theta_0 = 0$  et  $\theta_0 = \pi$  (domaines), cette structure se réduit à une raie d'intensité 1 correspondant à  $H'_d = 2A'$  et une raie d'intensité 3 correspondant à  $H'_d = -\frac{2A'}{3}$  (fig. 20). Ceci dit, les figures 21 et 22 représentent les positions calculées des différentes

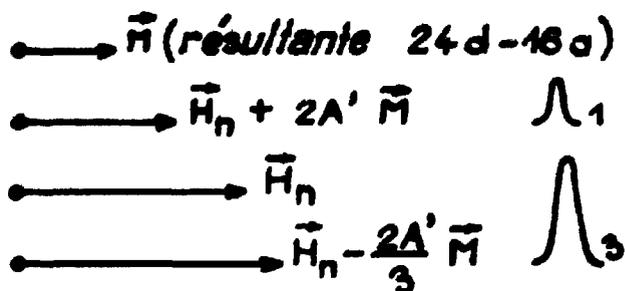


Fig. 20

raies en fonction de  $\theta_0$ , pour  $0 < \theta_0 < \frac{\pi}{2}$  (paroi à  $70^\circ$ ), et  $0 < \theta_0 < \frac{\pi}{4}$  (paroi à  $110^\circ$ ) (les structures étant invariantes quand on change  $\theta_0$  en  $\pi - \theta_0$  dans un cas, en  $\pi - \theta_0$  et  $\frac{\pi}{2} - \theta_0$  dans l'autre). On remarque que, quel que soit  $\theta_0$ , deux ou trois des quatre raies de la structure se trouveront au voisinage de  $H'_d = -\frac{2A'}{3}$ , ce qui explique qualitativement le décalage de la raie globale observée par rapport au centre de gravité extrapolé.

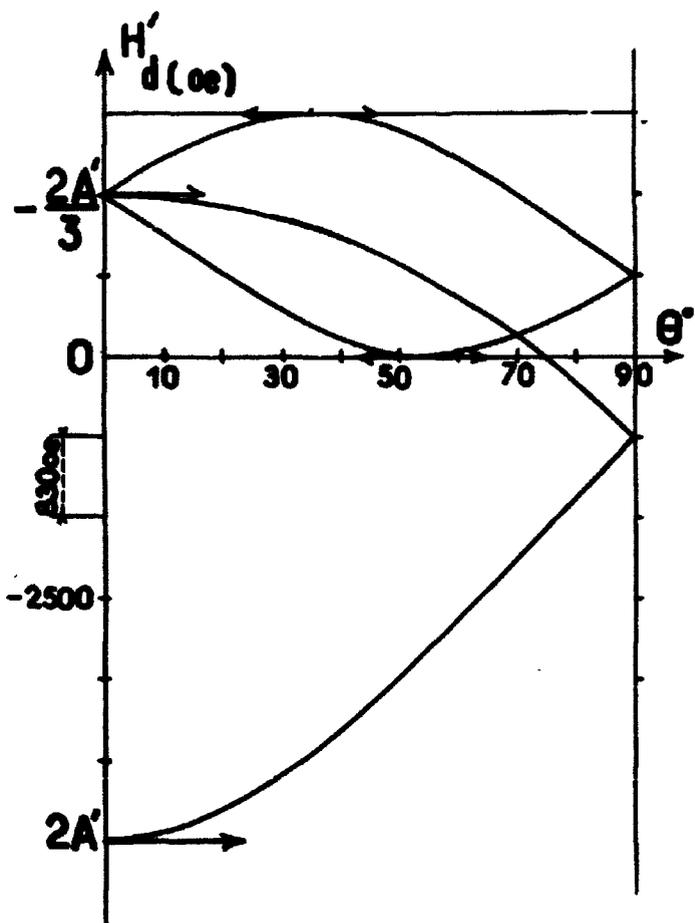


Fig. 21 - Structure de raies des noyaux  $^{57}\text{Fe}$  (16 a) en fonction de l'orientation de l'aimantation dans une paroi de Bloch à  $70^\circ$ .

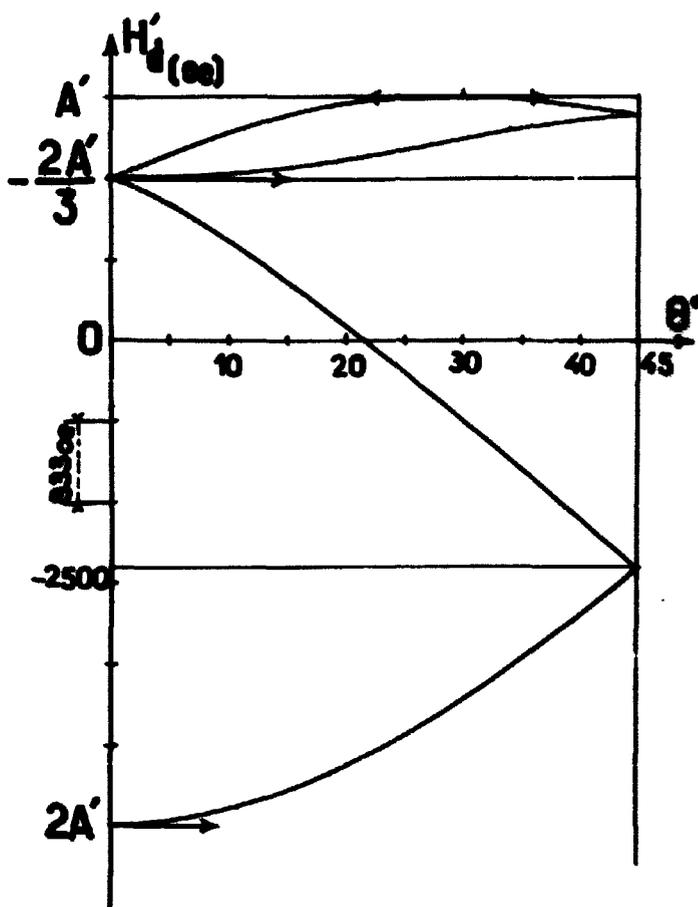


Fig. 22 - Structure de raies des noyaux  $^{57}\text{Fe}$  (16 a) en fonction de l'orientation de l'aimantation dans une paroi de Bloch à  $110^\circ$ .

Pour calculer plus précisément la forme de la raie globale fournie par les noyaux d'une paroi, il nous faut maintenant déterminer quelle est la contribution (relative) au signal de résonance, des noyaux dont le champ à résonance est compris entre  $H$  et  $H + dH$ .

Pour ceci nous admettrons (cf. chap. VI), que, comme dans les spécimens monodomaines, la présence des spins nucléaires résonnants se traduit essentiellement par une modification de la susceptibilité électronique de l'échantillon. Nous allons donc d'abord rechercher quelle est l'origine, à l'échelle microscopique, du signal radioélectrique fourni par le déplacement des parois de Bloch sous l'effet d'un champ radiofréquence.

#### D - REPONSE DES PAROIS DE BLOCH A UNE EXCITATION RADIOFREQUENCE -

Nous admettrons pour commencer (53) qu'un petit champ magnétique appliqué provoque un déplacement  $W \propto H_0^{eff}$  de la paroi suivant  $Ox$ , sans déformation appréciable de ladite paroi. A l'échelle microscopique, la densité d'aimantation  $\vec{M}$  au point  $z$ , d'angle polaire  $\theta$ ,  $\varphi$  subira donc une petite déflexion :  $\theta_0, \varphi \longrightarrow \theta_0 + \epsilon, \varphi$ , telle que  $\epsilon = -W \frac{\partial \theta_0}{\partial z}$ .

Macroscopiquement, le domaine I s'étant, par exemple, agrandi ( $W > 0$ ) aux dépens du domaine II, le déplacement de la paroi considérée fait apparaître une densité d'aimantation non compensée suivant  $Ox$ , égale à  $2 MWS \sin \varphi$  ( $S$  surface de la paroi), d'où une variation d'induction qui traduit la réponse de l'échantillon. Microscopiquement, ceci veut dire que la projection suivant  $Ox$  de la densité d'aimantation au point  $z$  a varié de  $-M \sin \varphi \sin \theta_0$ .  $\epsilon = +WM \sin \varphi \sin \theta_0 \frac{\partial \theta_0}{\partial z}$  soit, pour l'ensemble de la paroi,  $WSM \sin \varphi \int \sin \theta_0 \frac{\partial \theta_0}{\partial z} dz = 2WSM \sin \varphi$ . La contribution au signal, des spins électroniques tels que  $\theta_0 < (\vec{Ox}, \text{Proj}_{xy} \vec{M}) < \theta_0 + d\theta_0$  est donc proportionnelle à  $\sin \theta_0 d\theta_0$ .

Ceci reste vrai en présence de spins nucléaires, l'effet de ces derniers revêtant en effet (cf. chap. VI) à remplacer la relation  $\epsilon = g(z)H_0^{eff}$  par une relation analogue  $\epsilon = g(z)(1 + K)H_0^{eff}$ , où  $K$  est indépendant de  $z$  et  $|K| < 1$ .

#### E - FORME DE LA RAIE DE RESONANCE FOURNIE PAR LES NOYAUX 16 a D'UNE PAROI DE BLOCH -

Nous pouvons donc maintenant calculer la forme  $f(\nu)$  de la raie de résonance nucléaire d'une paroi de Bloch. Pour ceci, considérons les figures (21) ou (22) qui représentent  $H_{0i}$ , en fonction de  $\theta_0$  (l'indice  $i = 1, 2, 3, 4$  repère les différentes raies de la structure). Si, à l'intervalle  $H, H + dH$  correspondent des intervalles  $\theta_{0i}, \theta_{0i} + d\theta_{0i}$  on devra avoir :

$$f(\nu) d\nu \propto f \left[ \gamma_i \left| \vec{H}_0 + \frac{4\pi}{3} \vec{M} + H_i' \vec{M} \right| \right] dH_i' \propto \sum_{i=1,2,3,4} \sin \theta_{0i} d\theta_{0i}$$

soit

$$f(\nu) \propto \sum_i \sin \theta_{0i} \frac{d\theta_{0i}}{dH_i'} \text{ avec } \nu = \gamma_i \left| \vec{H}_0 + \frac{4\pi}{3} \vec{M} + H_i' \vec{M} \right|$$

Les résultats du calcul (fait de façon approchée en utilisant les graphiques (21) et (22)) sont représentés sur les figures 23 (paroi à  $70^\circ$ ) et 24 (paroi à  $110^\circ$ ).

En pratique, comme le montrent les photos de Smith et Williams, les parois à  $110^\circ$  semblent être beaucoup plus nombreuses dans le grenat que les parois à  $70^\circ$  dont nous pourrions par conséquent négliger l'existence lors de la comparaison avec l'expérience.

Ceci dit, on voit sur la figure (24) qu'on devra observer une raie (a) décalée d'environ  $-\frac{5A'}{6} \sim 2100$  Oe par rapport au centre de gravité  $\theta$ , et que la largeur de cette raie sera de l'ordre de 600 à 900 Oe, résultats en bon accord avec les mesures de Robert vu le caractère approximatif de ce calcul (on néglige en effet la contribution des parois à  $180^\circ$ ).

On remarque aussi qu'on devrait observer une deuxième raie (a') beaucoup plus faible correspondant à  $H_i' \sim A'$  donc distante de la première d'environ  $5000 + 2100 \sim 7000$  Oe soit en fréquence 1 MHz. Cette raie a effectivement été observée par Buyle-Bodin et Le Dang-Khoi (56) dans les grenats d'yttrium et de lutécium.

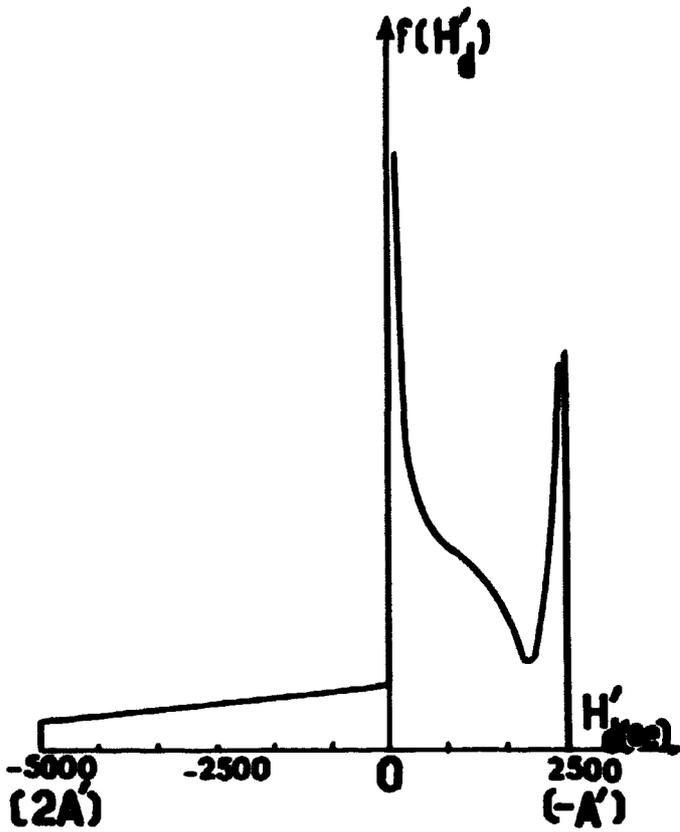


Fig. 23 - Forme théorique de la raie de résonance des noyaux  $^{56}\text{Fe}$  (16 a) pour une paroi à  $70^\circ$ .

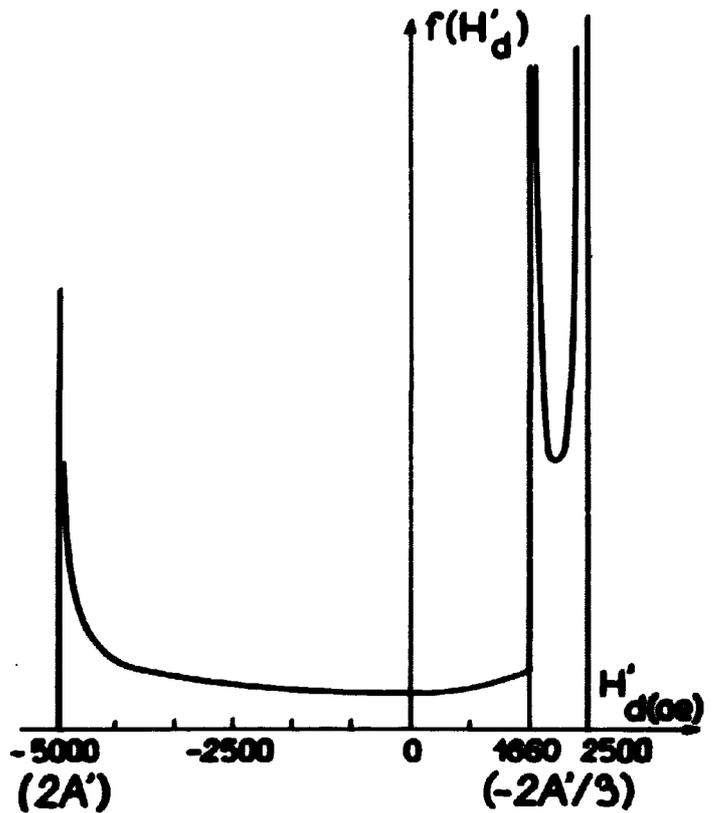


Fig. 24 - Forme théorique de la raie de résonance des noyaux  $^{56}\text{Fe}$  (16 a) pour une paroi à  $110^\circ$ .

Les mesures de Buyle-Bodin et al. sur le grenat de gadolinium fournissent une autre preuve de l'exactitude de cette interprétation : dans ce composé les ions gadolinium apportent au champ dipolaire une contribution qui doit varier assez rapidement avec la température (car les distances entre leurs niveaux ne sont pas très grandes). Or Buyle-Bodin et al. constatent effectivement que la distance entre les raies (a) et (a') varie de 1,6 MHz à  $77^\circ\text{K}$  à 1,1 MHz à  $300^\circ\text{K}$ , la différence entre les distances (a - a') dans les grenats d'yttrium et de gadolinium suivant la variation de l'aimantation spontanée du sous-réseau Gd.

## VI - RÉSONANCE NUCLÉAIRE DANS LES PAROIS DE BLOCH : SIGNAUX

### A - INTRODUCTION -

Les calculs que nous allons exposer maintenant avaient initialement (12) pour but de nous permettre d'interpréter semi-quantitativement les expériences de *Portis et Gossard* (51) sur le cobalt métal à la température ordinaire. Dans cet exposé nous continuerons à utiliser des valeurs numériques correspondant approximativement au cas du cobalt, qui fait l'objet de publications plus détaillées (51 a) (51 b) que celles relatives aux isolants comme le grenat de fer et d'yttrium (39) ou Cr Br<sub>2</sub> (57).

Dans le cas du cobalt, les expériences ont été faites sur<sup>\*</sup> de petites particules de un à quelques microns de diamètre, dimension de l'ordre de l'épaisseur de peau aux fréquences utilisées (220 Mc/s) Gossard et Portis ont étudié des particules de cobalt cubiques dont l'anisotropie magnétique n'est pas trop grande (comme pour les métaux Fe, Ni, le "champ d'anisotropie" H<sub>a</sub> doit être de l'ordre de 500 Oe). D'autres expérimentateurs (58) ont étudié Co hexagonal (dont l'anisotropie est environ dix fois plus grande).

Ici, comme dans les échantillons ferromagnétiques en champ fort, la présence de spins nucléaires résonnants aura essentiellement pour effet de modifier la susceptibilité électronique de l'échantillon, susceptibilité à laquelle contribuent à peu près également (cf. App. B) d'une part les déplacements des parois de Bloch, d'autre part la rotation des aimantations des domaines.

Si le signal de résonance nucléaire était dû aux noyaux des domaines, on s'attendrait à mesurer un facteur d'amplification du champ radiofréquence,  $\eta$ , du même ordre que pour un ferromagnétique en champ fort ( $\eta \sim 100$ ).

En réalité, le facteur d'augmentation mesuré est beaucoup plus grand que prévu :  $\eta \sim 1\ 300$ , ce qui conduit à penser que le signal observé est au contraire presque entièrement dû aux noyaux situés dans les parois de Bloch (51).

Pour vérifier cette interprétation, nous étudierons d'abord le mouvement d'une paroi de Bloch en l'absence de spins nucléaires, puis les modifications apportées à ce mouvement par la présence des spins nucléaires.

### B - MOUVEMENT DES PAROIS DE BLOCH D'UNE PARTICULE EN L'ABSENCE DE SPINS NUCLÉAIRES -

Pour fixer les idées nous raisonnerons sur une paroi à 180°. L'aimantation des deux domaines adjacents à la paroi étant orientée suivant  $\pm O_x$ , lorsqu'on se déplace parallèlement à O<sub>x</sub> à l'arrière de la paroi, l'aimantation tourne progressivement de 180° tout en restant parallèle au plan xOy de la paroi (fig. 25).

Pour décrire le déplacement<sup>\*</sup> W (suivant O<sub>x</sub>) d'une telle paroi sous l'effet d'un petit champ appliqué (statique ou oscillant)  $\vec{H}^{ap}$  ( $H^{ap} \ll O_e$ ), on utilise habituellement une équation de mouvement semi-phénoménologique (53), analogue à celle d'un oscillateur harmonique amorti, de la forme

$$m_s \frac{d^2 W}{dt^2} + b \frac{dW}{dt} + cW = 2\vec{M}_s \cdot \vec{H}^{ap} = 2M_s H_s^{ap} \quad [VI. 1]$$

Nous allons rappeler quelle est l'origine des différents termes de cette équation et essayer de les évaluer (en les rattachant à des quantités physiquement mesurables).

-----  
<sup>\*</sup> Nous supposons dans tout ceci qu'il s'agit de déplacements réversibles, ce qui est plausible car ces déplacements sont très petits par rapport à l'épaisseur  $\delta$  de la paroi : nous verrons que  $W \approx 10^{-3} \delta$ .

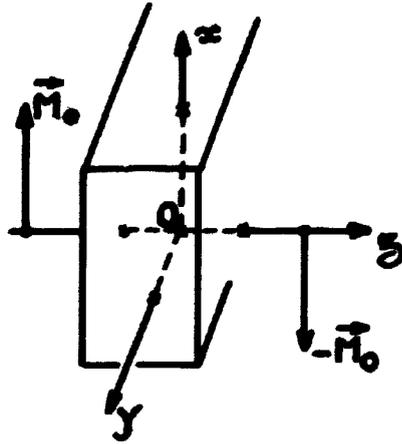


Fig. 25

1/ Origine du terme de rappel cW.

Ce terme est associé aux effets additifs

- du champ démagnétisant dû à l'apparition, lorsque les parois de Bloch se déplacent, de masses magnétiques non compensées à la surface de la particule (c').
- des imperfections de la particule : inclusions etc ... (c'').

Evaluation de c'

Appliquons à la particule (supposée à peu près sphérique) un petit champ statique  $\vec{H}$ . Si ses parois de Bloch se déplacent de longueurs de l'ordre de  $W$ , son aimantation moyenne, initialement nulle, deviendra:

$$\vec{M} \sim \frac{W}{l} M \frac{\vec{H}}{|\vec{H}|}$$

(où  $l$  est la distance moyenne entre parois). D'où un champ démagnétisant à l'intérieur de la particule:

$$- N \vec{M} \sim - \frac{W}{l} N M \frac{\vec{H}}{|\vec{H}|} \quad \left( N \sim \frac{4\pi}{3} \right)$$

qui tend à annuler le champ appliqué. Si  $c'' = 0$  on aura donc à l'équilibre, pour la paroi considérée

$$\frac{W}{l} N M \sim H_e$$

et l'on voit que  $c' \sim \frac{2NM^2}{l}$ . Numériquement pour le cobalt cubique, avec  $M = 1400$  cgs,  $l \sim 1 \mu \sim 10^{-4}$  cgs (ordre de grandeur raisonnable (59) p. 123)  $N \sim \frac{4\pi}{3}$  on trouve :  $c' \sim 1,8 \cdot 10^{11}$ .

Si  $c'' \neq 0$  nous pouvons donc récrire:

$$c'' W = 2M \left( H_e - \frac{NMW}{l} \right) = 2MH_i$$

où  $\vec{H}_i = \vec{H} - N\vec{M}$  "champ interne" est le champ magnétique à l'intérieur de la particule.

Evaluation de c''

Si la perméabilité initiale (statique)  $\mu_0$  de la particule est due essentiellement aux déplacements des parois de Bloch, on démontre aisément que:

$$\mu_0 = 1 + 4\pi \frac{\bar{M}}{H_0} \approx 1 + 4\pi \times \frac{2M^2}{1c^2} \quad \text{[VI 2]}$$

D'où l'on peut tirer  $c''$  si l'on connaît  $\mu_0$  et  $L$ .

En fait, les mesures de  $\mu_0$  se font sur des échantillons massifs en forme de barreaux ou de tores, de dimensions très supérieures à celles des particules de Portis et Gossard ; elles fournissent, pour les perméabilités initiales des métaux cubiques purs Fe, Ni ..., des valeurs de l'ordre de 100 à 200 d'où l'on déduit  $c'' \sim 10^6$  (60).

En l'absence de données plus précises nous utiliserons également cette valeur pour décrire l'effet des imperfections dans les particules de cobalt cubique. De toute façon le résultat essentiel est que  $c'' < c'$ .

## 2/ Origine du terme d'amortissement $b \frac{dW}{dt}$ .

Ce terme est associé

- d'une part, à l'effet des courants de Foucault qui engendrent au niveau de la paroi un champ de freinage proportionnel à sa vitesse et parallèle à Ox ( $b'$ ),

- d'autre part, à la relaxation intrinsèque de l'aimantation ( $b''$ ).

### Evaluation de $b'$

L'amortissement, par les courants de Foucault, du mouvement des parois de Bloch, a d'abord été étudié par Williams, Shockley et Kittel (61) (cas d'une seule paroi) puis par Pry et Bean (62) et Agarwal et Rabins (63) (plusieurs parois, dans un cas simple). Lorsque les parois sont assez éloignées pour que les lignes de courant associées aux mouvements de deux parois voisines ne se rencontrent pas, on a sensiblement, en tout point de la paroi :

$$H_1' \sim - \frac{128 M l \sigma_e}{\pi c^2} \frac{dW}{dt} \quad \text{[VI 3]}$$

( $\sigma_e$  : conductivité électrique en unités de Gauss).

Lorsque la paroi est en mouvement, il faut donc rajouter, à l'expression du champ interne au niveau de la paroi, un terme  $- \frac{128 l \sigma_e}{\pi c^2} \frac{dW}{dt} \frac{M_0}{|M_0|}$ . D'où l'on déduit que  $b' = \frac{356 M^2 l \sigma_e}{\pi c^2}$ .

Numériquement, pour le cobalt à 300°K :  $\sigma_e = 1,45 \cdot 10^{17}$  egs, et l'on prévoit  $b' \sim 2$ , en assez bon accord avec la valeur expérimentale de Portis et Gossard ( $b' \sim 12$ ) que nous adopterons dans la suite des calculs.

### Ordre de grandeur de $b''$

A la différence des termes  $cW$  et  $b' \frac{dW}{dt}$  qui correspondent à des champs de rappel et de freinage engendrés par le mouvement macroscopique de la paroi de Bloch, le terme  $b'' \frac{dW}{dt}$  traduit l'effet de la relaxation intrinsèque de l'aimantation. Plus précisément, si nous adoptons, pour l'équation de mouvement de l'aimantation en un point de la paroi, une équation phénoménologique de Landau-Lifshitz :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} - \frac{\lambda''}{M^2} \vec{M} \wedge (\vec{M} \wedge \vec{H}_{eff}) \quad \text{[VI 4]}$$

(où  $\vec{H}_{eff}$  est le champ effectivement "vu" par  $\vec{M}$  :  $\vec{H}_{eff}$  contient les effets du champ interne mais aussi ceux de l'anisotropie, de l'échange et du champ démagnétisant en volume cf. § 3/),  $b''$  sera relié à  $\lambda''$  par l'équation :  $b'' = 4\pi \lambda'' m_0$ .

Ceci dit, il est difficile de donner une estimation précise de  $b''$  : dans les métaux ce terme est certainement petit par rapport à  $b'$ , si bien qu'on ne peut pas le déduire de l'étude du mouvement

.....  
 \* La contribution des domaines étant de l'ordre de  $\frac{4\pi M}{H_1} \sim 30$ , ces perméabilités élevées sont effectivement bien dues aux déplacements de parois.

des parois de Bloch. On ne peut pas non plus le déduire des expériences de résonance ferromagnétique en champ fort, car elles ne mesurent pas la même quantité  $\lambda''$  (53) (64). Une valeur raisonnable serait  $\lambda'' \sim 10^6$  d'où  $b'' \sim 0,2$  ? De toute façon, ici encore, le fait essentiel est que  $b'' < b'$ .

### 3/ Origine du terme d'inertie $m \frac{d^2 W}{dt^2}$ .

On sait que ce terme est associé à l'existence, en tout point de la paroi en mouvement, d'un champ démagnétisant en volume, qui est proportionnel à la composante  $M_z$  de l'aimantation (53). En effet :

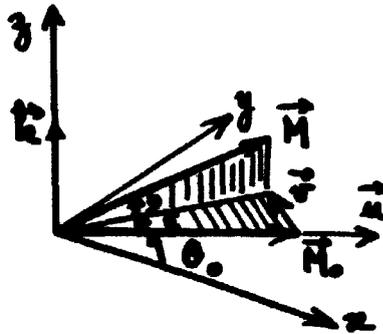


Fig. 26

Soit  $\vec{u}$  la position d'équilibre de l'aimantation ( $\vec{u} \perp Oz$ ;  $(Ox, \vec{u}) = \theta_0$ ),  $\epsilon$  et  $\eta$  les angles polaires qui repèrent l'aimantation défléchie par rapport au système d'axes  $\vec{u}, \vec{v}, \vec{k}$  (fig. 26). Si la paroi se déplaçait sans se déformer, on aurait:

$$\epsilon = -W \frac{\partial \theta_0}{\partial z}, \quad \eta = 0 \quad \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} = 0 \text{ hors de la paroi} \right)$$

En réalité, l'aimantation en tout point aura tendance à précesser autour du champ appliqué, la paroi se déformera et les formules précédentes ne seront pas valables ; en particulier  $\eta$  sera différent de zéro. Néanmoins cette déformation sera peu importante (car autrement les énergies d'échange et d'anisotropie mises en jeu seraient considérables), si bien qu'on pourra supposer que:

$$\epsilon \approx -W \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \quad [VI. 5]$$

Ceci dit, comme  $\text{div } \vec{M} = \frac{\partial M_z}{\partial z} = M \frac{\partial \eta}{\partial z}$  est différente de zéro, il va apparaître (pour assurer la conservation du flux de l'induction) un champ démagnétisant en volume parallèle à  $Oz$  :

$$H_z^d = -4\pi M \eta \quad [VI. 6]$$

et la vitesse de déplacement de la paroi devra donc être telle que, si l'on néglige les termes d'amortissement, on ait, à l'échelle microscopique :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \vec{M} \wedge (\vec{H}_i + \vec{H}_0) \quad [VI. 7]$$

soit en particulier:

\* Ce champ démagnétisant correspond à l'apparition de pôles au niveau de la paroi, situation très défavorable, car la densité d'énergie démagnétisante associée est très élevée:  $E/V = 2\pi M^2 \eta^2$ . Il en résulte en pratique que l'aimantation ne peut subir de déflexions importantes que parallèlement au plan de la paroi ( $\epsilon > \eta$ ), sauf peut-être aux très hautes fréquences :  $\omega \sim 4\pi \gamma M$  (mais alors  $\epsilon$  et  $\eta$  sont tous deux très petits).

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = - \frac{dW}{dt} \frac{\partial \theta_0}{\partial z} = \gamma (4 \pi M \eta) = \omega_u \eta \quad (\text{avec } \omega_u = 4 \pi \gamma M) \quad \text{[VI 8]}$$

On vérifie alors aisément que l'énergie magnéto-statique associée à  $H^0$  est proportionnelle à  $(\frac{dW}{dt})^2$ . En effet cette énergie est, par  $\text{cm}^2$  de surface de la paroi,

$$\int \frac{(H_z^0)^2}{8\pi} dz = \frac{1}{4\pi \gamma^2} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \right)^2 dz \right] \times \frac{1}{2} \left( \frac{dW}{dt} \right)^2 = \frac{1}{2} m_w \left( \frac{dW}{dt} \right)^2 \quad \text{[VI 9]}$$

où l'on a posé :

$$m_w = \frac{1}{4\pi \gamma^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \right)^2 dz \quad \text{[VI 10]}$$

Dans les mêmes conditions, si la paroi s'est déplacée de  $W$  par rapport à sa position d'équilibre, son énergie de couplage avec le champ interne a varié de:

$$- \int_0^W 2 M H_z^i dW \quad \text{[VI 11]}$$

par  $\text{cm}^2$  de la paroi. D'où, en écrivant la condition de conservation de l'énergie :

$$m_w \frac{d^2 W}{dt^2} = 2M H_z^i \quad \text{[VI 12]}$$

La quantité  $2M H_z^i$  ayant les dimensions d'une pression,  $m_w$  aura les dimensions d'une masse par  $\text{cm}^2$  de surface de la paroi. Pour le cobalt cubique  $m_w$  est de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-20} \text{ g/cm}^2$ .

Remarque : relation entre la masse de la paroi et son épaisseur.

Considérons pour simplifier le cas où l'anisotropie est de type uniaxe, la densité d'énergie d'anisotropie étant :

$$E/V = K \sin^2(\vec{O}_x, \vec{M}) = K \sin^2 \theta_0 \quad \text{avec } K \sim 4 \cdot 10^5, (H_A \sim 500 \text{ Oe})$$

et celle d'énergie d'échange:

$$E/V = \frac{A}{M^2} \left[ (\vec{\nabla} M_x)^2 + (\vec{\nabla} M_y)^2 + (\vec{\nabla} M_z)^2 \right] = A \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \right)^2 \quad \text{avec } A \sim 4 \cdot 10^{-4}$$

La configuration d'énergie minimum correspond à:

$$\frac{\partial \theta_0}{\partial z} = \left( \frac{K}{A} \right)^{1/2} \sin \theta_0 = \frac{1}{e} \sin \theta_0 \quad \text{[VI 13]}$$

et le paramètre d'épaisseur  $e$  est de l'ordre de  $300 \text{ \AA}$ . L'"épaisseur"  $\delta$  de la paroi est de l'ordre de  $\omega_e$ , soit  $\delta \sim 1000 \text{ \AA}$ .

En utilisant (VI. 13) et (VI. 10) on trouve:

$$m_w = \frac{1}{2\pi \gamma^2 e} \quad \text{[VI 14]}$$

#### 4/ En conclusion

Nous avons donc obtenu, pour les différents termes qui figurent dans l'équation de mouvement de la paroi

$$m_w \frac{d^2 W}{dt^2} + (a' + b'') \frac{dW}{dt} + (c' + c'') W = 2M_w H_z^i \quad \text{[VI 15]}$$

les ordres de grandeur:

$$m_w \sim 2 \cdot 10^{-20}; \quad b' \sim 12; \quad b'' \sim 0,2; \quad c' \sim 1,2 \cdot 10^{21}; \quad c'' \sim 10^8$$

qui montrent que le mouvement de la paroi est essentiellement déterminé (au terme d'inertie près) par la composante du champ interne suivant Ox :

$$H_x^i = H_x^{nr} - NM \frac{W}{l} - \frac{128Ml \alpha}{\pi c^2} \frac{dW}{dt} \quad [VI 16]$$

Avant de continuer, nous allons néanmoins récrire l'équation générale (VI 15) sous d'autres formes dont nous nous servirons également par la suite : utilisons la relation (approchée dans le cas général)  $m_n = \frac{1}{2\pi \gamma^2 e}$  ; il vient

$$+ \frac{d^2 W}{dt^2} + 4\pi(\lambda' + \lambda'') \frac{dW}{dt} + (\omega_1'^2 + \omega_1''^2) W = \gamma \omega_n e H_x^{nr} \quad [VI 17]$$

ou encore puisque  $\varepsilon = -W \frac{\partial \theta_n}{\partial z}$

$$+ \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial t^2} + 4\pi(\lambda' + \lambda'') \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + (\omega_1'^2 + \omega_1''^2) \varepsilon = -\gamma \omega_n \left( e \frac{\partial \theta_n}{\partial z} \right) H_x^{nr} \quad [VI 18]$$

avec

$$4\pi \lambda'' = \frac{b''}{m_n}, \quad 4\pi \lambda' = \frac{b'}{m_n} = \frac{32 \omega_1^2 e l \alpha}{\pi^2 c^2}, \quad \omega_1''^2 = \frac{c''}{m_n}, \quad \omega_1'^2 = \frac{c'}{m_n} = \frac{N_n}{4\pi} \omega_0^2 \frac{e}{l}$$

et

$$e \frac{\partial \theta_n}{\partial z} \approx 1$$

Remarquons en passant qu'on peut aisément retrouver les équations (VI 18) et (VI 8) si l'on suppose que dans l'équation de mouvement de l'aimantation à l'échelle microscopique, le champ efficace qui agit sur l'aimantation a pour composantes :

$$\text{Suivant } \hat{z} : H_y^{eff} = -H_x^i \frac{\partial \theta_n}{\partial z} e$$

$$\text{Suivant } \hat{k} : H_z^{eff} = H_z^0 = -4\pi M \eta$$

(lorsqu'on tient compte de la déformation de la paroi, l'expression de  $H_x^{nr}$  est évidemment beaucoup plus compliquée).

Ceci dit nous allons maintenant nous intéresser plus spécialement aux oscillations forcées de la paroi à des fréquences voisines de la fréquence de résonance nucléaire dans le cobalt cubique (230 Mc/a). Dans ce cas, les équations précédentes deviennent (si le champ radiofréquence varie en  $e^{-i\omega t}$ ).

$$\left[ -m_n \omega^2 - i(b' \omega + b'' \omega) + c' + c'' \right] W = 2 M_n H_x^{nr}$$

$\begin{matrix} \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow \\ 3,6 \cdot 10^{20} & 2 \cdot 10^{20} & 3,6 \cdot 10^{20} & 1,8 \cdot 10^{21} & 10^{20} & 2800 H_x^{nr} \text{ Oe} \end{matrix}$

ou encore

$$\left[ -\omega^2 - i(4\pi \lambda' \omega + 4\pi \lambda'' \omega) + \omega_1'^2 + \omega_1''^2 \right] \varepsilon = -\gamma \omega_n \left( e \frac{\partial \theta_n}{\partial z} \right) H_x^{nr}$$

$\begin{matrix} \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow \\ 1,86 \cdot 10^{20} & 10^{20} & 1,8 \cdot 10^{20} & 9 \cdot 10^{20} & 5 \cdot 10^{21} & 5,6 \cdot 10^{20} H_x^{nr} \text{ Oe} \end{matrix}$

(où l'on a utilisé pour  $\lambda'$  la valeur expérimentale de Portis et Gossard ( $\lambda' \sim |5\omega_n|$ )). On voit sur ces équations

- que le terme d'inertie est absolument négligeable aux fréquences considérées

- que, dans un champ appliqué :  $H_x^{nr} = 1 \text{ Oe}$ , l'élongation maximum de la paroi sera de l'ordre de 1,5 Å (donc très petite par rapport à son épaisseur), correspondant à une déflexion de

l'aimantation au centre de la paroi :  $\epsilon = \frac{1}{160}$  rad. Cette déflexion est relativement grande : à titre de comparaison, dans un échantillon aimanté à saturation par un champ statique  $H_s = 6\ 000$  Oe, un champ radiofréquence de 1 Oe ne produira qu'une déflexion  $\epsilon \sim \frac{1}{6\ 000}$ .

Sous une autre forme, si nous définissons une susceptibilité locale au centre de la paroi par

$$M\epsilon = \chi_p^{loc} \left( -H_s^{eff} e \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right) \quad \left( e \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \approx 1 \text{ au centre de la paroi} \right)$$

donc

$$\chi_p^{loc} = \frac{\gamma \omega_n M}{-\omega^2 - 4\pi(\lambda + \lambda')i\omega + \omega_r^2 + \omega_r'^2} \approx \frac{M}{N_s \frac{e}{1} - \frac{128 \sigma_e i \omega e l}{\pi c^2}} \quad [VL 19]$$

avec

$$\text{Re } \chi \sim 10 \text{ Im } \chi$$

cette susceptibilité, de l'ordre de 10, sera très supérieure aux susceptibilités des échantillons uniformément aimantés, qui sont au plus de l'ordre de  $\frac{M}{4\pi M} \sim \frac{1}{4} \left( H_s > \frac{4\pi}{3} M \right)$ .

### C - EFFET DES SPINS NUCLEAIRES SUR LE MOUVEMENT DE LA PAROI DE BLOCH -

#### 1/ Discussion générale.

Dans la paroi au repos l'aimantation électronique et l'aimantation nucléaire au point  $z$  ont la même direction d'équilibre  $\vec{u}$ . Si elles s'écartent de cette direction :

$$\begin{cases} \vec{M}_{e,n} \rightarrow M\epsilon \vec{v} + M\eta \vec{k} + M\left(1 - \frac{\epsilon^2}{2}\right)\vec{u} & (\epsilon \text{ et } \eta \text{ petits}) \\ \vec{m}_{e,n} \rightarrow m_e \vec{v} + m_n \vec{k} + m_n \vec{u} \end{cases}$$

leur énergie de couplage variera par  $\text{cm}^3$  de :

$$\frac{\Delta E}{V} = - \int \alpha M m_e d\epsilon - \int \alpha M m_n d\eta - \int M \alpha m_n \epsilon d\epsilon \quad [VL 20]$$

soit, puisque  $\eta$  est toujours très inférieur à  $\epsilon$  :

$$\frac{\Delta E}{V} \approx - \int \alpha M m_e d\epsilon - \int \alpha M m_n \epsilon d\epsilon \quad [VL 21]$$

Si la déflexion de l'aimantation électronique est due à un déplacement de paroi :

$$\epsilon = -W \frac{\partial \theta_s}{\partial z}$$

et

$$\frac{\Delta E}{V} \approx \int \alpha M m_e \frac{\partial \theta_s}{\partial z} dW - \int M \alpha m_n \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 W dW \quad [VL 22]$$

Pour l'ensemble de la paroi l'énergie emmagasinée correspondante est (par  $\text{cm}^2$  de paroi)\* :

$$\int_{-z}^{+z} \frac{\Delta E}{V} dz = \int \alpha M \left[ \int_{-z}^{+z} m_e \frac{\partial \theta_s}{\partial z} dz \right] dW - \int M \alpha m_n \left[ \int_{-z}^{+z} \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 dz \right] W dW \quad [VL 23]$$

\*On suppose, pour obtenir cette expression, que  $m_n$  a sensiblement la même valeur en tout point de la paroi.

Soit encore, en utilisant la définition de la masse de paroi :

$$m_p = \frac{1}{4\pi\gamma^2} \int_{-z}^{+z} \left(\frac{\partial\theta}{\partial z}\right)^2 dz :$$

$$\int_{-z}^{+z} \frac{\Delta E}{V} dz = \int_{-z}^{+z} \alpha M \left[ \int_{-z}^{+z} m_p d\theta \right] dW - \int_{-z}^{+z} 4\pi\gamma^2 \alpha m_p M (m_p W dW) \quad \text{[VI 24]}$$

Ceci montre que l'effet des spins nucléaires sur le mouvement de la paroi est double :

- D'une part ils ajoutent, à la pression  $2\vec{M}_0 \cdot \vec{H}_0^{nr}$  qui provoque ce mouvement, un terme supplémentaire  $-\alpha M \int_{-z}^{+z} m_p d\theta$ .

- D'autre part ils donnent naissance à une force de rappel  $-\gamma \alpha m_p \omega_n (m_p W)$ .

L'équation de mouvement de la paroi devient donc :

$$m_p \frac{d^2W}{dt^2} + 4\pi(\lambda + \lambda') \frac{dW}{dt} + (\gamma \alpha m_p \omega_n + \omega_p'^2 + \omega_r'^2) W = 2\vec{M}_0 \cdot \vec{H}_0^{nr} - \alpha M \int_{-z}^{+z} m_p d\theta \quad \text{[VI 25]}$$

Appliquons maintenant à l'échantillon un champ  $H_0^{nr} \propto e^{-i\omega t}$ ; les spins électroniques de la paroi vont se mettre à osciller et, comme dans les échantillons uniformément aimantés, les spins nucléaires vont être soumis de la part des spins électroniques à un champ radiofréquence  $H_1^{nr} \vec{v} = \alpha M \varepsilon \vec{v}$  très supérieur au champ appliqué.

Ce champ  $H_1^{nr}$  va donc induire une aimantation nucléaire oscillante:  $m_p \vec{v} = \xi_{nv} \alpha M \varepsilon \vec{v}$ ,  $m_p \vec{k} = \xi_{nv} \alpha M c \vec{k}$  qui va réagir en retour sur le mouvement de la paroi. Le terme  $(-\alpha M \int_{-z}^{+z} m_p d\theta)$  de l'équation (VI 25) devient en effet:

$$-\alpha M \int_{-z}^{+z} m_p d\theta = -\alpha^2 M^2 \xi_{nv} \int_{-z}^{+z} \varepsilon d\theta = +\alpha^2 M^2 \xi_{nv} W \int_{-z}^{+z} \frac{\partial\theta}{\partial z} d\theta = 4\pi\gamma^2 (m_p W) \alpha^2 M^2 \xi_{nv}$$

et (VI 25) se réécrit:

$$m_p \left[ -\omega^2 + 4\pi(\lambda + \lambda') i\omega + \omega_p'^2 + \omega_r'^2 + \gamma \alpha m_p \omega_n - \gamma \alpha \omega_n \alpha M \xi_{nv} \right] W = 2\vec{M}_0 \cdot \vec{H}_0^{nr} \quad \text{[VI 26]}$$

Dans cette expression le terme  $\gamma \alpha m_p \omega_n$  traduit l'effet de la composante statique  $m_p \vec{u}$  de l'aimantation nucléaire. Si l'on n'est pas au voisinage immédiat de la résonance nucléaire  $m_p$  sera toujours égal à  $m_0$ , valeur d'équilibre de l'aimantation nucléaire dans un champ  $H_0$ .

Numériquement pour Co:

$$\omega_n \sim 3 \cdot 10^{11}; \gamma \sim 1,7 \cdot 10^{17}; \alpha = \frac{H}{M} \sim 150 \text{ donc } \gamma \alpha \omega_n \sim 6 \cdot 10^{29}$$

$$\gamma_n \sim 2\pi \cdot 10^3, \omega_n \sim 10^9, v \sim 11 \text{ \AA}^3 \text{ (vol/at) donc } m_0 = \frac{3 \cdot 10^{-2}}{T \cdot K}$$

donc  $\gamma \alpha \omega_n m_0 \sim \frac{1,8 \cdot 10^{19}}{T}$  quantité très petite par rapport à  $\omega_p'^2 \sim 9 \cdot 10^{20}$ .

Le terme  $-\gamma \alpha \omega_n \alpha M \xi_{nv}$  traduit, lui, l'effet de la composante oscillante  $m_p \vec{v}$  de l'aimantation nucléaire.

- Si  $\omega \approx 0$ ,  $\xi_{nv}$  est égale à la susceptibilité nucléaire statique

$$\xi_{nv} = \xi_0 = \frac{m_p}{H_0} = \frac{m_p}{\alpha M}$$

et par suite

-----

\* Ces formules linéaires supposent qu'on ne se trouve pas dans une zone de saturation de la résonance nucléaire.

$$\gamma \alpha m_n \omega_n - \gamma \alpha \omega_n \alpha M \xi_{vv} = 0$$

le mouvement de la paroi est le même que s'il n'y avait pas de spins nucléaires (ce qui traduit le fait que l'aimantation nucléaire reste constamment colinéaire à l'aimantation électronique).

- Au contraire, si  $\omega$  est très grande, l'aimantation nucléaire n'arrive plus à "suivre" l'aimantation électronique :  $\xi_{vv} = 0$ . Par suite :

$$\gamma \alpha \omega_n m_n - \gamma \alpha \omega_n \alpha M \xi_{vv} \approx \gamma \alpha \omega_n m_n = \gamma \alpha \omega_n m_0$$

- Enfin, lorsque  $\omega = \omega_n$ , il se produit un effet de résonance :  $|\xi_{vv}| \gg |\xi_0|$  et :

$$|\gamma \alpha \omega_n m_n - \gamma \alpha \omega_n \alpha M \xi_{vv}| \gg |\gamma \alpha \omega_n \alpha M \xi_{vv}| \gg |\gamma \alpha \omega_n m_0|$$

Nous pouvons contrôler ceci par le calcul. Mais pour obtenir des résultats corrects dans tout le domaine de fréquence étudié nous devons

a) utiliser pour  $\vec{m}$  une équation qui décrit une relaxation vers le champ instantané

b) ne pas oublier que le champ radiofréquence  $H_1^{rf}$  est polarisé linéairement : lorsque  $\nu \neq \nu_n$  on ne peut pas utiliser pour  $\xi_{vv}$  la formule obtenue dans le cas d'un champ tournant. Dans ce cas, il est commode de supposer qu'on est loin de la saturation, ce qui permet d'utiliser des notations imaginaires.

Partant donc d'équations de mouvement (pour les composantes transversales (cf. fig. 27)) analogues à celles qui se trouvent dans le livre d'Abraham ((14) p. 54) :

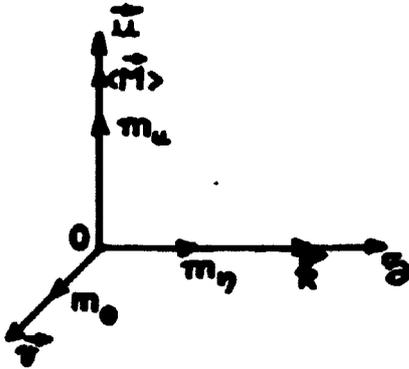


Fig. 27

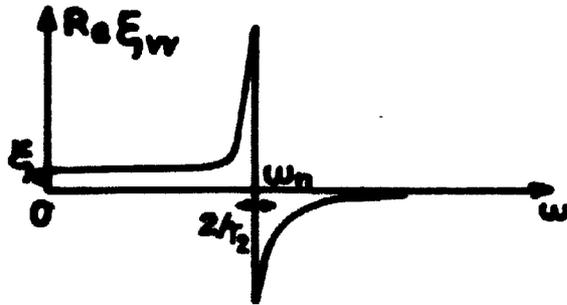


Fig. 28

$$\frac{dm_x}{dt} = -i\omega m_x = \gamma_n H_n m_y - \frac{1}{T_2} (m_x - \xi_0 H_1^{rf})$$

$$\frac{dm_y}{dt} = -i\omega m_y = -\gamma_n H_n m_x + \gamma_n m_n H_1^{rf} - \frac{1}{T_2} m_y$$

(où  $T_2$  est le temps de relaxation transversale : on néglige pour l'instant l'élargissement inhomogène  $\frac{1}{T_2^*} \gg \frac{1}{T_2}$  de la raie), on trouve aisément :

$$\xi_{vv} = \frac{(-i\omega + \frac{1}{T_2}) \frac{1}{T_2} + \gamma_n H_n \gamma_n m_n \xi_0}{(-i\omega + \frac{1}{T_2})^2 + \gamma_n^2 H_n^2} = \xi_0 + \frac{+\omega^2 + i\omega \frac{1}{T_2}}{[-\omega^2 + \gamma_n^2 H_n^2 + \frac{1}{T_2^2}] - 2i\omega \frac{1}{T_2}} \xi_0$$

expression sur laquelle on vérifie effectivement que (fig. 28) :  $\xi_{vv}(0) = \xi_0$ ,  $\xi_{vv} \rightarrow 0$  quand  $\omega \rightarrow \infty$  enfin que  $|\xi_{vv}|$  devient très supérieur à  $|\xi_0|$  quand (fig. 28) :  $|\omega - \gamma_n H_n| \lesssim \frac{1}{T_2}$ .

En conclusion l'effet des spins nucléaires sur le mouvement de la paroi est

- nul si  $v < v_0$

- sans doute *trou petit* pour être observable, même à très basse température, si  $v > v_0$  (car  $\gamma \propto \omega_n m_n \propto \omega_n^2$ ).

Par contre, si  $v > v_0$ , la *résonance nucléaire* est parfaitement observable, comme l'ont montré de nombreuses expériences, car  $|\xi_{vv}/\xi_0|$  peut être supérieur à 1. C'est ce que nous allons étudier maintenant.

2/ Effet des spins nucléaires résonnants ( $v > v_0$ ).

a) facteur d'amplification du champ radiofréquence.

On a (cf. p. 64 et 65):

$$H_p^{nr} = \alpha M \epsilon = \alpha \chi_p^{loc} \left( -H_p^{nr} e^{\frac{\partial \theta_p}{\partial z}} \right) = -\alpha \chi_p^{loc} \left( e^{\frac{\partial \theta_p}{\partial z}} \right) \frac{\vec{M}_p \cdot \vec{H}^{nr}}{M_p}$$

d'où:

$$\eta_p = \alpha \chi_p^{loc} \left( e^{\frac{\partial \theta_p}{\partial z}} \right) \cos(\vec{M}_p \cdot \vec{H}^{nr}) \quad \left( e^{\frac{\partial \theta_p}{\partial z}} \sim 1 \right) \quad [VI 27]$$

Donc

a) le facteur d'amplification maximum

$$\eta_{p,max} = \alpha \chi_p^{loc} \sim 150 \times 10 \sim 1500$$

est très supérieur aux facteurs d'amplification ( $\times 100$ ) des échantillons uniformément aimantés, conformément aux observations de Portis et Gossard.

b)  $\eta_p$  n'a pas la même valeur pour tous les spins nucléaires d'une même paroi ( $\eta_p \propto \frac{\partial \theta_p}{\partial z}$ ): maximum au centre de la paroi ( $e^{\frac{\partial \theta_p}{\partial z}} \sim 1$ ) il est nul aux deux extrémités.

c)  $\eta_p$  dépend de l'orientation de la paroi considérée par rapport au champ radiofréquence  $\eta_p \propto \cos(\vec{M}_p \cdot \vec{H}^{nr})$ .

b) Effet des spins nucléaires sur la susceptibilité électronique locale de la paroi.

D'après (VI, 26) la composante oscillante de l'aimantation électronique au point  $z$  est donnée par

$$M \epsilon = \frac{\chi_p^{loc}}{1 - \alpha^2 \chi_p^{loc} \xi_{vv}} \quad \left( \text{avec } \chi_p^{loc} \approx \frac{M}{N_p \frac{e}{1} - \frac{128 \sigma_p i \omega c |1}{\pi c^2}} \approx 10 + i \right) \quad [VI 28]$$

On voit que cette formule est tout à fait analogue à celle qui avait été établie pour les ferromagnétiques en champ fort (nous pourrions d'ailleurs la retrouver en résolvant, comme dans les chap. II et III, les équations de couplage de l'aimantation électronique et de l'aimantation nucléaire en tout point de la paroi). La seule différence entre les deux formules (présence de  $\xi^* = \xi_{vv} + i \xi_{vv}$  dans (II, 4), de  $\xi_{vv}$  seulement ici) tient évidemment au fait que, dans les parois de Bloch, l'aimantation électronique est insensible à la composante  $m_y$  de  $m$ .

Le déplacement de fréquence étant toujours petit (cf. § D) on peut encore écrire

$$M \epsilon \sim \chi_p^{loc} (1 + \alpha^2 \chi_p^{loc} \xi_{vv}) = \chi_p^{loc} + \alpha^2 (\chi_p^{loc})^2 \xi_{vv} \quad [VI 29]$$

c) Intensité du signal de résonance nucléaire.

La puissance moyenne  $\dot{P}_p$  qu'absorbent les parois de Bloch de la particule est:

\* Ce point a été vérifié expérimentalement par Hervé et Aubrun (65) (66).

$$\bar{P}_p = -\bar{M} \cdot \frac{d\bar{H}^{nr}}{dt}$$

soit, puisque  $\bar{M} \sim \frac{W}{T} \bar{M} \frac{\bar{H}^{nr}}{|H^{nr}|}$

$$\bar{P}_p \sim \frac{|\omega|}{2} \frac{e}{1} |H^{nr}|^2 \operatorname{Im}(\chi_p^{loc} + \alpha^2 (\chi_p^{loc})^2 \xi_{vv}')$$

$$\bar{P}_p \sim \frac{|\omega|}{2} \frac{e}{1} |H^{nr}|^2 [\chi_p^{nloc} + \alpha^2 \{ (\chi_p^{loc})^2 - (\chi_p^{nloc})^2 \} \xi_{vv}'' + 2\alpha^2 \chi_p^{loc} \chi_p^{nloc} \xi_{vv}'] \quad [VL 30]$$

La variation relative de  $\bar{P}_p$  lors du passage par la résonance est donc égale à (cf. II, 8 p. 18)

$$\frac{\Delta \bar{P}_p}{\bar{P}_p} = \frac{\alpha^2 [ (\chi_p^{loc})^2 - (\chi_p^{nloc})^2 ] \xi_{vv}'' + 2\alpha^2 \chi_p^{loc} \chi_p^{nloc} \xi_{vv}'}{\chi_p^{nloc}} \quad [VL 31]$$

Nous démontrons par ailleurs dans l'appendice (B) que si  $\bar{P}_d$  et  $\Delta \bar{P}_d$  sont les quantités homologues de  $\bar{P}_p$  et  $\Delta \bar{P}_p$  en ce qui concerne l'aimantation des domaines:

- a)  $\bar{P}_d \sim \bar{P}_p$  [VL 32]
- b)  $\Delta \bar{P}_d \sim \frac{1}{40} \Delta \bar{P}_p$

La variation relative de  $\frac{\Delta \bar{P}}{\bar{P}}$  de la puissance absorbée par la particule lors du passage par la résonance est donc approximativement:

$$\frac{\Delta \bar{P}}{\bar{P}} \approx \frac{1}{2} \frac{\Delta \bar{P}_p}{\bar{P}_p} \quad [VL 33]$$

Ceci dit, puisque dans l'expression de  $\frac{\Delta \bar{P}_p}{\bar{P}_p}$ :

$$\chi_p^{loc} \sim 10 \text{ et } \chi_p^{nloc} \sim 1,$$

si la résonance n'était pas saturée au sens de Bloch,  $\Delta \bar{P}$  devrait avoir la forme d'une courbe d'absorption (terme en  $\xi_{vv}''$ ). En fait, par suite des effets d'amplification du champ radiofréquence, cette saturation se produit très facilement (dès que  $H^{nr} > 2 \cdot 10^3$  Oe) et l'on obtient alors pour  $\Delta \bar{P}$  une courbe de dispersion (terme en  $\xi_{vv}'$ ). Donc:

$$\frac{\Delta \bar{P}_p}{\bar{P}_p} \approx \alpha^2 \chi_p^{loc} \xi_{vv}' (= \alpha \eta_{sat} \xi_{vv}') \quad [VL 34]$$

d'où, avec  $\alpha \sim 150$ ,  $\chi_p^{loc} \sim 10$  et  $(\xi_{vv}')_{sat} \sim 2,6 \cdot 10^{-7}$  (cf. p. 17)\*

$$\left(\frac{\Delta \bar{P}_p}{\bar{P}_p}\right)_{sat} \sim 4 \% \quad [VL 35]$$

résultat qui est en assez bon accord avec les mesures de Gossard et Portis ( $\left(\frac{\Delta \bar{P}}{\bar{P}}\right)_{sat} \sim 1 \%$ ), compte tenu de l'incertitude sur  $\bar{P}_d / \bar{P}_p$  (qui n'est connu qu'à un facteur de l'ordre de 2 ou 4 près).

Insistons sur le fait que ce signal est très intense -  $\left|\frac{\Delta \bar{P}}{\bar{P}}\right| \sim 1 \%$  dans les petites particules de cobalt, à comparer à  $\left|\frac{\Delta \bar{P}}{\bar{P}}\right| \sim 10^{-3}$  à  $10^{-2}$  dans les échantillons uniformément aimantés - à tel point qu'on a pu récemment mettre en évidence la résonance nucléaire du cobalt à l'aide d'un simple appareil "Grid - Dip" (87).

\* On vérifie aisément que  $\xi_{vv} \sim 0,5 \cdot 10^{-9}$ , donc  $(\xi_{vv}')_{sat} \sim 400 \xi_{vv}$  est effectivement très supérieur à  $\xi_{vv}$  comme nous l'avions annoncé  $\left[ (\xi_{vv}')_{sat} / \xi_{vv} = \frac{\omega_a}{1/T_2^*} \right]$

Comme le montrent les formules ci-dessus, cette grande intensité des signaux est évidemment la conséquence directe de la très grande susceptibilité locale des moments magnétiques électroniques dans les parois de Bloch.

#### D - DEPLACEMENT DE LA FREQUENCE DE RESONANCE NUCLEAIRE -

Ici encore (cf. chap. II) la fréquence de résonance nucléaire sera solution de l'équation (cf. eq. VI 28)

$$\frac{1}{\xi_{\nu\nu}} - \alpha^2 \chi_p^{loc} = 0 \quad \text{[VI 33]}$$

soit, si l'on utilise pour  $\xi_{\nu\nu}$  la valeur obtenue à partir d'une équation de Bloch (en négligeant l'élargissement inhomogène) :

$$\frac{-\omega^2 - 2i\omega/T_2 + \frac{1}{T_2^2} + \gamma_n^2 H_n^2}{\gamma_n m_n \gamma_n H_n} - \alpha^2 \chi_p^{loc} = 0 \quad \text{[VI 34]}$$

D'où l'on déduit pour la pulsation à résonance

$$\omega = \pm \gamma_n H_n \left[ 1 - \frac{1}{2} \frac{m_n}{M} \alpha \operatorname{Re} \chi_p^{loc} \right] = \pm \gamma_n H_n \left[ 1 - \frac{1}{2} \eta_{\text{aux}}^p \frac{m}{M} \right] \quad \text{[VI 35]}$$

et pour le temps de relaxation nucléaire transversale ( $\frac{1}{T_2} < \gamma_n H_n$ ) :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{2} \gamma_n \alpha^2 m_n |\operatorname{Im} \chi_p^{loc}(\omega_n)| \quad \text{[VI 36]}$$

##### 1/ Déplacement de fréquence.

Numériquement dans le cobalt

- M, qui varie peu entre 0 et 300°K, est de l'ordre de 1 400
- $\eta_{\text{aux}}^p \sim 1\ 500$  à 300°K
- et si la résonance nucléaire n'est pas saturée :

$$m_n \sim m_n = \frac{3 \cdot 10^{-2}}{T}$$

Donc, si  $\eta_{\text{aux}}^p$  ne dépend pas de la température (cf. paragraphe suivant), le déplacement de fréquence sera égal à

$$\left| \frac{\delta\omega}{\gamma_n} \right| = \frac{3\ 300 \text{ Oe}}{T^\circ\text{K}} \quad \text{[VI 37]}$$

La largeur de raie inhomogène de la raie de résonance nucléaire étant de 400 Oe, on voit que ce déplacement devrait être observable à basse température ( $T \sim 4^\circ\text{K}$ ).

L'expérience n'a pas encore été faite dans le cas du cobalt; par contre Heeger et Houston (68) ont effectivement observé un déplacement de la fréquence de résonance nucléaire des noyaux  $^{55}\text{Mn}$  dans les parois de Bloch de  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$ ; malheureusement nous connaissons pas encore les détails de leurs expériences.

##### 2/ Etude du terme d'élargissement homogène $\frac{1}{2} \gamma_n \alpha^2 m_n |\operatorname{Im} \chi_p^{loc}|$

Numériquement, dans le cobalt

$$\gamma_n = 2\pi \cdot 10^3, \quad \alpha = 150, \quad m_n = \frac{3 \cdot 10^{-2}}{T}, \quad \operatorname{Im} \chi_p^{loc} = 1 \text{ à } 300^\circ\text{K}$$

d'où l'on déduit qu'à 300°K

$$\frac{1}{2} \gamma_n \alpha^2 m_u |\text{Im } \chi_p^{loc}| = \frac{1}{2} 10^{14} \text{ sec}^{-1}$$

résultat un peu inférieur à la valeur expérimentale de Portis et Gossard :  $1/T_2 = 4 \cdot 10^4 \text{ sec}^{-1}$ .

En fait ce résultat est certainement très surestimé. En effet  $\chi_p^{loc}$  est proportionnelle à la conductivité  $\sigma$ , du métal, elle-même proportionnelle à  $1/T$ ; par suite, si notre résultat était exact,  $T_2$  devrait diminuer quand la température décroît, comportement très inhabituel et contraire aux observations de Weger (69), qui enregistre au contraire une légère augmentation de  $T_2$ . Donc, si l'on suppose qu'à 4°K la résistivité résiduelle du cobalt est égale au 1/10 de sa résistivité à 300°K, ceci tiendrait à prouver que la valeur estimée pour  $\chi_p^{loc}$  est environ 5 fois trop grande (surestimation de  $\lambda'$  ?).

Dans ce cas, et si la valeur de  $\chi_p^{loc}$  est exacte :

$$\text{à } 300^\circ\text{K} \quad \chi_p^{loc} \text{ sera de l'ordre de } \frac{10}{1 - \frac{i}{50}} \left( \text{au lieu de } \frac{10}{1 - \frac{i}{10}} \right)$$

$$\text{à } 4^\circ\text{K} \quad \chi_p^{loc} \quad " \quad " \quad \frac{10}{1 - \frac{i}{5}}$$

et donc  $\eta_{max} = \alpha \text{Re}(\chi_p^{loc})$  sera sensiblement indépendant de la température, comme nous l'avons supposé dans le § 1/.

#### E - EN CONCLUSION -

Dans ce chapitre nous avons essayé, en nous appuyant sur un exemple concret, celui du cobalt, de dégager les caractéristiques essentielles des expériences de "passage lent" dans les échantillons polydomaines qui sont :

- l'existence d'un énorme facteur d'amplification du champ radiofréquence dans les parois de Bloch d'où résultent :

- des signaux de résonance très intenses,
- un déplacement de fréquence important.

Mais ce facteur d'amplification n'est pas uniforme dans une paroi donnée et dépend de l'orientation de la paroi par rapport au champ radiofréquence. Par suite :

- il est difficile de faire des prédictions quantitatives très précises, car il faudrait pour cela connaître la structure en domaines de l'échantillon et, même dans ce cas, le problème serait extrêmement complexe.

- ceci rend délicate l'interprétation des expériences de saturation et d'échos de spin.

Nous allons maintenant étudier le problème de la relaxation dans les parois : comme nous le verrons, le temps de relaxation nucléaire n'est pas uniforme à l'intérieur d'une paroi donnée : la relaxation n'est donc pas exponentielle, ce qui complique encore l'exploitation des résultats fournis par les méthodes d'échos.

## VII – EXCITATIONS ÉLÉMENTAIRES DE BASSE FRÉQUENCE ET RELAXATION NUCLÉAIRE DANS LES PAROIS (72)\*

### A - INTRODUCTION -

L'étude expérimentale (par les méthodes d'échos de spin) de la relaxation longitudinale des spins nucléaires dans les échantillons polydomaines a été faite, dans le cas des métaux (Fe, Co, Ni) par Robert et Winter d'une part (74) (39), Weger d'autre part (75). Robert a également étudié la relaxation de  $^{57}\text{Fe}$  dans le grenat de fer et d'yttrium (39) (76).

Ces expériences montrent :

- que le temps de relaxation mesuré dépend de la puissance radiofréquence utilisée pour produire l'impulsion.
- qu'à faible puissance on observe une relaxation relativement rapide et non exponentielle.
- qu'à forte puissance on observe une relaxation plus lente, exponentielle, caractérisée dans les métaux par un temps de relaxation  $T_{1p}$  proportionnel à  $\frac{1}{T}$ .

Tous ces faits conduisent à penser que la relaxation rapide et non exponentielle est attribuable aux noyaux des parois (son caractère non exponentiel étant dû à une distribution des temps de relaxation dans la paroi) ; la relaxation lente et exponentielle étant, elle, associée aux noyaux des domaines.

Le fait que la relaxation soit plus rapide dans les parois suggère qu'il existe dans celles-ci des excitations magnétiques supplémentaires. Ceci n'est pas surprenant : en effet les excitations élémentaires dans les domaines ont une pulsation supérieure ou égale à  $\gamma H_a$  ( $H_a$  champ d'anisotropie,  $\gamma H_a > 5 \cdot 10^9$ ), alors que le mode uniforme d'une paroi de Bloch (associé aux déplacements de parois qui ont été étudiés dans le chap. VI) aurait (en l'absence d'impuretés et d'effets de champ démagnétisant "superficiel") une fréquence propre nulle. De façon analogue la paroi possèdera des excitations de basse fréquence, correspondant à une déformation en "tôle ondulée" de ladite paroi (fig. 30a) :

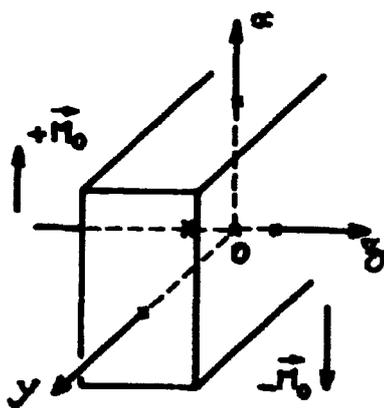


Fig. 29

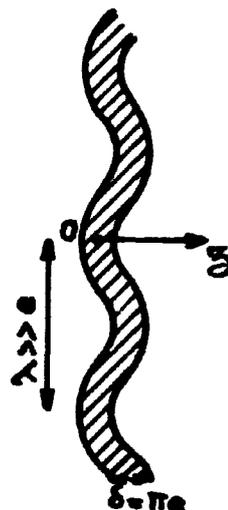


Fig. 30 a

.....  
Les processus de relaxation dans les parois sont également étudiés dans les références (70) (71) et (73).

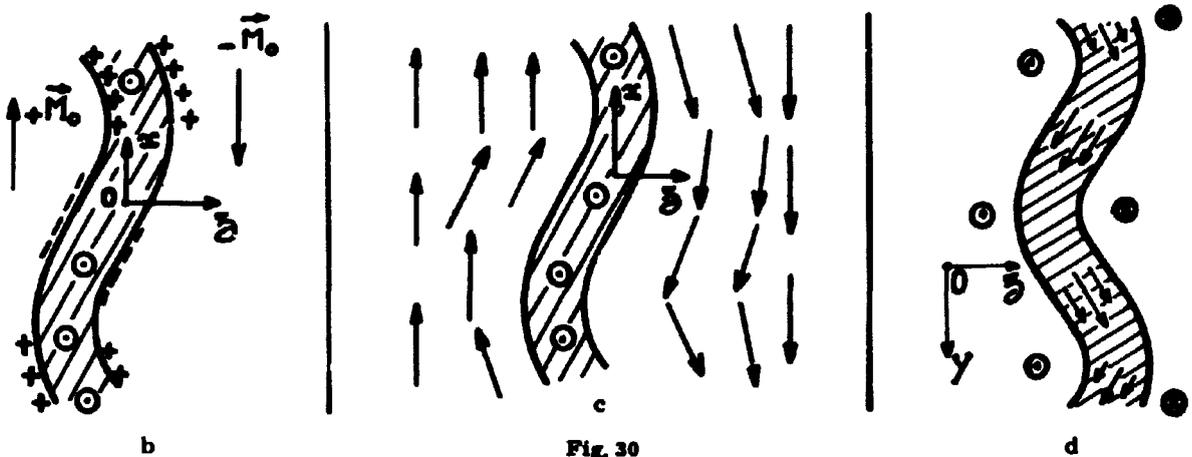
en effet, si leur vecteur d'onde  $\vec{k}$  ( $\vec{k}$  perpendiculaire à Oz) est suffisamment petit ( $|\vec{k}| < \frac{1}{a}$ ), de telles excitations ne modifient pas appréciablement le profil de la paroi (c. a. d.  $\frac{\partial \theta}{\partial z}$  pour x, y fixés) et par suite l'énergie de déformation correspondante est petite. Ces excitations pourront donc, le cas échéant, donner lieu à des processus de relaxation nucléaire directe.

Nous commencerons donc par faire une étude détaillée des modes de basse fréquence de la paroi. Nous calculerons ensuite leur contribution à la relaxation nucléaire

## B - ETUDE DES EXCITATIONS DE BASSE FREQUENCE DANS LES PAROIS DE BLOCH -

Dans tout ce paragraphe nous allons nous inspirer fortement d'un article de Néel : "Bases d'une nouvelle théorie générale du champ coercitif" (77)". Il existe, en effet, beaucoup d'analogies entre le problème des déformations périodiques d'une paroi et celui des "déplacements d'une paroi déformable" qui a été traité en grand détail par Néel.

### 1/ Considérations qualitatives.



Une déformation périodique (fig. 30 a) de la paroi (fig. 29) élèvera son énergie pour deux raisons :

- d'une part, sa surface ayant augmenté, il en résulte un accroissement de son énergie superficielle proportionnel à  $k^2$ .
- d'autre part, les distorsions de l'aimantation vont engendrer des champs démagnétisants importants, qui dépendront fortement de la direction de  $\vec{k}$ . En effet :

a) Si  $k_x \neq 0$ ,  $k_y = 0$  (fig. 30 b), la surface de la paroi déformée n'est pas parallèle à l'aimantation des domaines adjacents : il va donc apparaître sur la paroi des masses magnétiques fictives qui engendreront un champ de "dispersion" (Néel) auquel correspondra une énergie démagnétisante élevée. En pratique (fig. 30 c) cette formation de pôles sera évitée par une distorsion de l'aimantation des deux domaines adjacents (Néel). D'où une réduction très importante de l'énergie magnétique de dispersion, qui reste néanmoins assez élevée.

b) Au contraire (fig. 30 d), si  $k_x = 0$ ,  $k_y \neq 0$ , l'aimantation des domaines est parallèle à la paroi déformée et subit donc pas de distorsion. L'énergie magnétique de dispersion est alors nulle.

On voit donc que, pour  $|\vec{k}|$  donné, l'énergie d'une excitation de vecteur  $\vec{k}$  sera d'autant plus grande que  $k_y$  sera plus grand.

Nous allons maintenant confirmer ces considérations par un calcul quantitatif.

### 2/ Loi de dispersion des excitations élémentaires.

[Nous utilisons dans ce qui suit les mêmes notations que dans le chapitre précédent]. Considérons donc dans un cristal parfait une paroi à  $180^\circ$  dont la position au repos est donnée par

\* Cette référence nous a été indiquée par Monsieur de Gennes.

$W = 0$ , l'aimantation des deux domaines adjacents étant orientées suivant  $\pm O_x$  (fig. 29).

Etudions un mode pour lequel la paroi est déformée sinusoidalement :

$$W = h(t) \cos(k_x x + k_y y) = h \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_1) \quad [\text{VII } 1]$$

Nous calculerons l'énergie potentielle correspondante  $U$  (par  $\text{cm}^2$  de paroi) en suivant la méthode de Néel ((77) p. 313) : en dehors de la paroi, le champ magnétique et l'aimantation sont régis par les équations :

$$\text{div } \vec{H} = -4\pi \text{div } \vec{M} \quad [\text{VII } 2]$$

$$M_x = \epsilon M_o, \quad M_y = \frac{M_o H_y}{H_A}, \quad M_z = \frac{M_o H_z}{H_A} \quad [\text{VII } 3]$$

où  $H_A$  est le champ d'anisotropie et  $\epsilon = \pm 1$  selon que  $z \gtrless 0$ . Dans (VII 3) nous faisons usage de la susceptibilité statique du milieu, ce qui est correct aux basses fréquences ( $\omega \ll \gamma H_A$ ). Posant  $\vec{H} = -\nabla\Phi$ , on peut mettre (VII 2) et (VII 3) sous la forme :

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^2} + Q \left( \frac{\partial^2 \Phi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} \right) = 0 \quad [\text{VII } 4]$$

avec :

$$Q = 1 + \frac{4\pi M_o}{H_A} \quad [\text{VII } 5]$$

Au voisinage de la paroi, le potentiel  $\Phi$  doit satisfaire à la condition de conservation de flux de l'induction :

$$\left( \frac{\partial \Phi}{\partial z} \right)_{z=0} - \left( \frac{\partial \Phi}{\partial z} \right)_{z=0} = 4\pi \vec{n} \cdot [\vec{M}_{z=0} - \vec{M}_{z=0}] = 8\pi Q^{-1} M_o h k_x \sin(\vec{k} \cdot \vec{r}) \quad [\text{VII } 6]$$

où  $\vec{n}$  est un vecteur unitaire normal à la paroi. La solution de (VII 4) et (VII 6) s'écrit :

$$\Phi = \frac{4\pi M_o}{QK} h k_x e^{-K|z|} \sin(\vec{k} \cdot \vec{r}) \quad [\text{VII } 7]$$

avec :

$$K^2 = Q^{-1} (k_x^2 + Qk_y^2) \quad [\text{VII } 8]$$

La déformation de la paroi s'accompagne donc d'une distorsion en volume de l'aimantation sur une épaisseur de l'ordre de  $K^{-1} \gg e$  (cf. fig. c). L'énergie (magnétostatique et magnétocristalline) correspondante vaut (par  $\text{cm}^2$ ):

$$\int_{-\infty}^{\infty} dz \left[ \frac{H^2}{8\pi} + \frac{1}{2} M_o \frac{H_y^2 + H_z^2}{H_A} \right] = \frac{2\pi}{QK} M_o^2 h^2 k_x^2 \quad [\text{VII } 9]$$

On peut vérifier que l'énergie d'échange correspondant à des déformations sur des distances de l'ordre de  $K^{-1}$  ou  $k^{-1}$  est négligeable.

Par contre nous devons ajouter, à l'énergie de "dispersion" (VII 9), l'énergie due à la variation de surface de la paroi soit  $\frac{1}{4} k^2 h^2 \sigma$  (où  $\sigma$  est la tension superficielle de la paroi).

Donc, au total, l'énergie potentielle de la paroi est égale à :

$$U = \left[ \frac{2\pi}{QK} M_o^2 k_x^2 + \frac{1}{4} k^2 \sigma \right] h^2 \quad [\text{VII } 10]$$

Par ailleurs, si  $m_p$  est la masse de paroi (par  $\text{cm}^2$ ), son énergie cinétique est égale à :

$$C = \frac{1}{2} m_p \overline{\left( \frac{\partial W}{\partial t} \right)^2} = \frac{1}{4} m_p \left( \frac{dh}{dt} \right)^2 \quad [\text{VII } 11]$$

et la fréquence  $\frac{\omega_k}{2\pi}$  du mode étudié est donc donnée par :

$$\omega_k^2 = \frac{1}{m_s} \left[ 8\pi M_0^2 \frac{k_z^2}{QK} + k^2 \sigma \right] \quad \text{[VII 12]}$$

Dans le cas particulièrement simple considéré p. 62 (milieu uniaxe), le paramètre d'épaisseur de la paroi est

$$e = \left( \frac{A}{K} \right)^{1/2} = \sqrt{\frac{\omega_{ex}}{\omega_A}} a$$

avec  $\omega_{ex} = \frac{2AY}{Ma^2} = \gamma H_{ex}$ ,  $\omega_A = \frac{2KY}{M} = \gamma H_A$ , où  $H_{ex}$  est le champ d'échange et  $a$ , une distance de l'ordre de la distance interatomique.

Sa masse est

$$m_s = \frac{1}{2\pi\gamma^2 e}$$

et sa tension superficielle est (53):

$$\sigma = 4(KA)^{1/2}$$

La formule (VII 12) se réduit alors à :

$$\omega_k^2 = \omega_n^2 \frac{k_z^2 e}{QK} + \omega_n \omega_k k^2 e^2 = \omega_n^2 \frac{k_z^2 e}{QK} + \omega_n \omega_{ex} a^2 k^2 \quad \text{[VII 13]}$$

(avec  $\omega_n = 4\pi\gamma M$ ).

Enfin, si le cristal est imparfait, on pourra sans doute tenir compte assez correctement de l'effet des imperfections sur les excitations de *grande longueur d'onde* étudiées ici, en remplaçant (VII 12) et (VII 13) par

$$\omega_k^2 = \frac{1}{m_s} \left[ 8\pi M_0^2 \frac{k_z^2}{QK} + k^2 \sigma \right] + \omega_r^2 \quad \text{[VII 12']}$$

$$\omega_k^2 = \omega_n^2 \frac{k_z^2 e}{QK} + \omega_n \omega_{ex} a^2 k^2 + \omega_r^2 \quad \text{[VII 13']}$$

(où  $\omega_r^2 = \frac{c^2}{m_s}$  a été défini dans le paragraphe B. 1 du chap. VI p. 59).

Nous pouvons maintenant écrire l'équation de mouvement de  $h$  :

$$\frac{1}{2} \left[ m_s \frac{d^2 h}{dt^2} + \beta_k \frac{dh}{dt} + m_s \omega_k^2 h \right] = \frac{f_k}{S} \quad \text{[VII 14]}$$

Dans cette expression  $S$  est la surface de la paroi,  $\beta_k$  est un coefficient d'amortissement phénoménologique et  $f_k$  est une "force" extérieure éventuelle (variable conjuguée de  $h$ ) dont l'introduction nous sera utile lorsque nous voudrons calculer la fonction de corrélation de  $h$ .

## C - CONTRIBUTION DES MODES DE BASSE FREQUENCE A LA RELAXATION NUCLEAIRE -

### 1/ Formules générales.

Calculons la contribution des modes étudiés ci-dessus à la relaxation d'un spin nucléaire situé dans la paroi à la cote  $z$ . Au repos le spin électronique auquel il est couplé fait avec  $Ox$  l'angle  $\theta_0(z)$ . Lorsque la paroi est déformée conformément à (VII 1) cet angle devient  $\theta_0 + \varepsilon(z, r_{\perp}, t)$  avec:

$$\varepsilon = -\frac{\partial \theta_0}{\partial z} \cos(\vec{k}, \vec{r}_{\perp}) h(t) \quad \text{[VII 15]}$$

Les fréquences de relaxation longitudinale et transversale correspondantes sont \*\* :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} = \frac{1}{2} \omega_s^2 \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle \varepsilon(0) \varepsilon(t) \rangle e^{i\omega_s t} \quad \text{[VII 16]}$$

$$= \frac{\omega_s^2}{4} \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega_s t} \langle h_s(0) h_s(t) \rangle dt \quad \text{[VII 17]}$$

Pour évaluer la fonction de corrélation de  $h_s$ , nous remarquons qu'en vertu de l'équation (VII 14), la réponse du mode  $\mathbf{k}$  à une excitation sinusoidale fictive  $f_s = f e^{-i\omega_s t}$  peut-être caractérisée par une susceptibilité  $\alpha$  telle que :

$$h_s = \alpha f e^{-i\omega_s t}$$

avec :

$$\alpha = \alpha' + i\alpha'' = 2 \frac{m_s(\omega_s^2 - \omega^2) + i\beta_s \omega}{S [m_s^2(\omega_s^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \beta_s^2]}$$

D'où l'on déduit par application du théorème de Callen et Welton (78) (cf. Landau et Lifshitz (79) eq. 123-8)

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle h_s(0) h_s(t) \rangle e^{i\omega_s t} = \frac{4 \beta_s k_B T / S}{m_s^2(\omega_s^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \beta_s^2} \quad (|\hbar \omega| < k_B T) \quad \text{[VII 18]}$$

D'où en reportant (VII 18) dans (VII 17)

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} = \frac{1}{(2\pi)^3} \omega_s^2 k_B T \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 \int dk_x dk_y \frac{\beta_s}{m_s^2(\omega_s^2 - \omega_s^2)^2 + \omega_s^2 \beta_s^2} \quad \text{[VII 19]}$$

Enfin si l'amortissement est faible ( $\beta < m_s \omega$ ), on peut, en utilisant la définition de la masse:  $m_s = \frac{1}{4\pi \gamma^2} \int \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 dz$ , mettre (VII 19) sous la forme :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} = \frac{1}{2} \gamma^2 k_B T \left\{ \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 / \int_{-\infty}^{+\infty} dz \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 \right\} \int dk_x dk_y \delta(\omega_s - \omega_s) \quad \text{[VII 20]}$$

## 2/ Relaxation nucléaire dans les isolants.

Pour voir dans quelles conditions les modes envisagés ci-dessus peuvent effectivement contribuer à la relaxation nucléaire, nous allons étudier en détail le cas où l'amortissement est négligeable. Il en est ainsi dans les isolants, comme le grenat de fer et d'yttrium, que nous prendrons comme exemple dans les applications numériques. Dans un tel cas (formule VII 20), seuls contribueront à la relaxation les modes  $\vec{k}$  tels que  $\omega_{\vec{k}} = \omega_s$ .

Considérons donc dans l'espace à deux dimensions  $k_x, k_y$ , la courbe C telle que  $\omega(\vec{k}) = \omega(k_x, k_y) = \omega_s$ . Soit  $\vec{n}$  sa normale,  $ds_s$  un petit élément d'arc de C : (VII 20) se réécrit

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{2T_2} = \frac{1}{2} \gamma^2 k_B T \left\{ \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 / \int_{-\infty}^{+\infty} dz \left( \frac{\partial \theta_s}{\partial z} \right)^2 \right\} \int \frac{ds_s}{\left( \frac{d\omega}{dk} \right)_s} \quad \text{[VII 21]}$$

Dans cette expression la quantité entre crochets est de l'ordre de  $\frac{1}{e}$  (e paramètre d'épaisseur). La seule quantité inconnue est donc l'intégrale

$$I = \iint dk_x dk_y \delta(\omega_s - \omega_s) = \int_C \frac{ds_s}{\left( \frac{d\omega}{dk} \right)_s} \quad \text{[VII 22]}$$

\* Dans ces équations  $\varepsilon$  et  $h$  sont traités comme des variables classiques.

\*\* Il peut exister d'autres contributions à  $\frac{1}{T_2}$ .

a) *Etude de la courbe C*

Supposons que l'effet des imperfections soit négligeable. C est donc le lieu des points tels que\* :

$$\omega_n^2 = \omega_n^2 \frac{k_x^2 e}{QK} + \omega_n \omega_A k^2 e^2 \quad (K = \sqrt{\frac{k_x^2}{Q} + k_y^2}) \quad \text{[VII 23]}$$

Cette courbe admet les axes  $Ok_x$  et  $Ok_y$  comme axes de symétrie : on peut donc se contenter de l'étudier pour  $k_x, k_y > 0$ . On remarque également que tous ses points se trouvent à distance finie ( $k^2$  fini)

D'une façon générale  $\omega_n^2$  sera très petit par rapport à  $\omega_n^2$  et  $\omega_n \omega_A$ . De même  $\omega_A$  sera inférieur à  $\omega_n$  et donc  $\omega_n^2$  supérieur à  $\omega_n \omega_A$ . Enfin :

$$Q = 1 + \frac{4\pi M}{H_A} \approx \frac{4\pi M}{H_A} \approx \frac{\omega_n}{\omega_A} \text{ sera supérieur à 1 } (Q \sim 5 \text{ à } 30)$$

Donc

- α)  $k_e$  est toujours très inférieur à 1, conformément à nos hypothèses de départ ;
- β) le point d'intersection de C et de l'axe  $Ok_x$  est tel que

$$\frac{\omega_n^2}{\omega_n^2} \sqrt{\frac{\omega_n}{\omega_A}} = \frac{\omega_n^2}{\omega_n^2} \sqrt{Q} \quad \text{[VII 24]}$$

- γ) le point d'intersection de C et de l'axe  $Ok_y$  est tel que :

$$k_y^2 e = \frac{\omega_n}{\sqrt{\omega_A \omega_n}} = \frac{\omega_n}{\omega_n} \sqrt{\frac{\omega_n}{\omega_A}} = \frac{\omega_n}{\omega_n} \sqrt{Q} \quad \text{[VII 25]}$$

et l'on voit que  $k_y^2 e \gg k_x^2 e$  ce qui veut dire que la courbe sera étirée suivant la direction  $Ok_y$ ,

- δ) Les points à tangente verticale sont :

- d'une part :  $k_x e = k_x^2 e, k_y e = 0$  (intersection avec  $Ok_x$ )
- d'autre part le point de coordonnées :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_x^2 e = \frac{\sqrt{2}}{3^{3/4}} \frac{\omega_n^{3/2}}{\omega_n^{3/2}} Q^{3/4} \approx \frac{1}{\sqrt{2}} Q^{3/4} \left(\frac{\omega_n}{\omega_n}\right)^{3/2} k_x^2 e > k_x^2 e \\ k_y^2 e = \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{\omega_n}{\omega_n} Q = \frac{1}{\sqrt{3}} k_y^2 e \quad (k_y^2 \gg k_x^2) \end{array} \right. \quad \text{[VII 26]} \quad \text{[VII 27]}$$

La courbe C, inscrite dans un rectangle de côtés :  $k_x e = \pm k_x^2 e ; k_y e = \pm k_y^2 e$  est donc constituée, comme le montre la figure 31, par deux lobes très allongés.

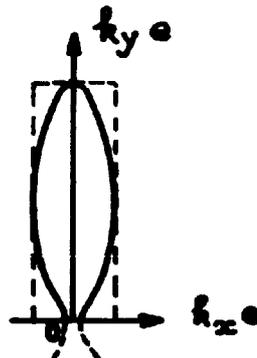


Fig. 31

\* Cette formule, plus parlante que (VII 12), n'est strictement valable que dans le cas uniaxe, mais les formules qu'on obtiendrait pour d'autres types de parois et de symétrie n'en différeraient que par des coefficients numériques de l'ordre de 2 ou 4.

b) Longueurs d'onde des modes de fréquence  $\omega_n$  dans le grenat.

Dans le cas du grenat à très basse température :

$$M \sim 200, \quad K = \frac{MH_A}{2} = 24,7 \cdot 10^3, \quad A = 4,3 \cdot 10^{-7} \text{ (cf. p. 53)}$$

donc :

$$\omega_A \approx 4 \cdot 10^9; \quad \omega_n \approx 4 \cdot 10^{10} \text{ et } Q \approx 11$$

Les fréquences de résonance des deux sites du grenat sont voisines de 60 Mc/s donc  $\omega_n \approx 4 \cdot 10^9$

$$\text{Enfin } e = \sqrt{\frac{A}{K}} = 4 \cdot 10^{-4} \text{ cm} = 400 \text{ \AA}$$

En résumé :

$$\frac{\omega_n}{\omega_A} \sim 10^{-2}, \quad Q = 11, \quad e = 4 \cdot 10^{-4} \text{ cm} = 0,04 \mu = 400 \text{ \AA}$$

Nous en déduisons que

$$k'_1 e \sim 3 \cdot 10^{-4} \text{ donc } \lambda^1 = 2\pi/k^1 \sim 10^{-1} \text{ cm} \sim 1 \text{ mm} \sim 1000 \mu$$

$$k'_2 e \sim 2 \cdot 10^{-2} \text{ donc } \lambda^2 = 2\pi/k^2 \sim 10^{-3} \text{ cm} \sim 10 \mu$$

$$k'_3 e \sim (2/\sqrt{3}) \cdot 10^{-2} \text{ donc } \lambda^3 = 2\pi/k^3 \sim 6 \cdot 10^{-4} \text{ cm} \sim 6 \mu$$

et ceci nous montre que dans les particules de très petites dimensions ( $d \lesssim 6 \mu$  dans le cas du grenat) il n'existera pas de modes de paroi de pulsation  $\omega_n$ , car les longueurs d'onde de ces modes seraient supérieures à la longueur d'onde de coupure  $\lambda \sim 2d$ . Il n'y a donc pas, dans ces particules, de processus de relaxation nucléaire directe même dans les parois.

c) Relaxation nucléaire dans les particules de dimensions supérieures à  $30 \mu$ .

Supposons maintenant les dimensions des particules qui constituent l'échantillon assez grandes pour que tous les points de la courbe  $C^{(h)}$  représentent des modes réels et calculons  $I = \int_c \frac{d\omega_n}{(d\omega_n/dk_n)}$  :

en pratique, comme on désire surtout obtenir un ordre de grandeur, il est commode de remplacer  $C$  par le rectangle dans lequel elle est inscrite. On trouve alors

$$\sqrt{I} \approx 2 \left( \frac{\omega_h}{\omega_n} \right)^{3/2} \frac{Q^{3/4}}{e^2} \frac{1}{\omega_n}$$

D'où en reportant dans l'équation (VII. 21)

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{4\pi} \frac{\gamma k_B T}{M_0 e^2} \left( \frac{\omega_h}{\omega_n} \right)^{3/2} Q^{3/4} \frac{(\partial \theta_0 / \partial z)^2}{\int_{-a}^{+a} (\partial \theta_0 / \partial z)^2 dz} \quad [\text{VII. 28}]$$

et l'on voit sur cette formule que la fréquence de relaxation longitudinale n'a pas la même valeur en tout point de la paroi, car  $\frac{1}{T_1} \propto \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \right)^2$  : la relaxation est donc plus rapide au centre de la paroi. L'existence d'une distribution des temps de relaxation est en accord avec les observations expérimentales de Robert (39).

-----  
\* A l'exception peut être de ceux qui sont situés tout près de l'origine si la particule a moins de 1 mm de diamètre : mais leur contribution est faible.

Valeurs numériques :

Le rapport  $(\partial \theta_0 / \partial z)^2 / \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \frac{\partial \theta_0}{\partial z} \right)^2 dz$ , de l'ordre de  $1/\epsilon$ , dépend du type de paroi considéré. Pour une paroi à  $180^\circ$  et une symétrie uniaxe, il est égal à  $(\sin^2 \theta / 2\epsilon)$  ; donc :

$$\left( \frac{1}{T_1} \right)_{\text{max}} \sim \frac{1}{25} Q^{3/4} \frac{\gamma k_B T}{M_0 e^3} \left( \frac{\omega_n}{\omega_H} \right)^{3/2} \quad [\text{VII. 29}]$$

d'où, en utilisant les valeurs numériques relatives au grenat :

$$\left( \frac{1}{T_1} \right)_{\text{max}} \sim 10^3 \text{ sec}^{-1} \text{ et } T_{1 \text{ min}} = 1 \text{ msec à } 4^\circ \text{K}^{(*)}$$

d) *Comparaison avec les résultats expérimentaux.*

Robert (76) a mesuré les temps de relaxation de  $^{57}\text{Fe}$  dans le grenat

- d'une part sur une poudre, de 1,7 à 77°K,
- d'autre part sur un monocristal de 3 mm, à 4°K.

Il a obtenu les résultats suivants :

Poudre : temps de relaxation dans les parois de Bloch

T°K	1,7°K	4,2°K	12°K	20°K	77°K
$T_{1 \text{ 16a}}$	58 ms	12 ms	6 ms	4 ms	2,1 ms
$T_{1 \text{ 24d}}$		24 ms	11,5 ms	7,5 ms	2,6 ms
$T_{2 \text{ 16a}}$		1,4 ms			0,42 ms
$T_{2 \text{ 24d}}$		4 ms			0,85 ms

Monocristal à 4,2°K site 24d.

$T_1$  domaine = 180 msec

$T_1$  paroi 1<sup>e</sup> exp. = 1,87 msec

$T_1$  paroi 2<sup>e</sup> exp. = 2,6 msec

$T_2$  paroi  $\sim T_1$  paroi

On remarque

- que, dans la poudre, ( $T_1$  paroi) décroît régulièrement lorsque la température croît, ce qui permet d'éliminer une éventuelle contribution des impuretés de terres rares.

- que, dans le monocristal,  $T_1$  mesuré est du même ordre de grandeur que  $T_1$  calculé.

- par contre, dans la poudre,  $T_1$  mesuré est 10 fois plus long ; ceci tient sans doute à ce que les grains de la poudre sont trop petits pour que tous les modes de fréquence  $\nu_n$  puissent exister : l'intégrale I, qui ne doit porter que sur les modes réels, est alors réduite,  $\frac{1}{T_1}$  diminue et  $T_1$  augmente. Il n'est donc pas possible de comparer les résultats détaillés qui ont été obtenus sur la poudre, aux prévisions théoriques que l'on déduirait de la formule (VII. 29). Il est néanmoins satisfaisant de constater qualitativement que le site 16a, qui a la fréquence de résonance nucléaire la plus élevée, a également le temps de relaxation le plus court.

\* Résultat qui ne peut être exact qu'à un facteur de l'ordre de 2 ou 4 près : on raisonne sur des parois à  $180^\circ$  et une symétrie uniaxe, alors que le grenat est cubique et possède aussi des parois à  $70^\circ$  et  $110^\circ$  (cf. chap. V).

- enfin le processus étudié ici conduirait à  $T_2 = 2T_1$  : cette relation n'est pas vérifiée pour la poudre, ce qui semble indiquer que, tout au moins dans cet échantillon, il existe d'autres contributions à la relaxation transversale. ●

En conclusion, il semble donc bien que, dans le grenat, la relaxation longitudinale des noyaux des parois soit due aux fluctuations thermiques de basse fréquence de ces parois.

e) *Remarque.*

On vérifie aisément que dans un cristal imparfait la formule (VII 29) doit être remplacée par :

$$\left(\frac{1}{T_1}\right)_{\text{max}} = \frac{1}{25} Q^{3/4} \frac{\gamma k_B T}{M_n e^3} \frac{\omega_n (\omega_n^2 - \omega_p^2)^{1/4}}{\omega_n^{3/2}} \quad \text{[VII 30]}$$

(où l'on a supposé  $\omega_n^2 > \omega_p^2$  : si  $\omega_n^2 < \omega_p^2$  la relaxation directe est interdite et  $1/T_1 = 0$  dans les isolants).

On a donc dans le grenat :

$$\omega_p^2 < \omega_{n_{24d}} < \omega_{n_{16a}}$$

Par ailleurs les formules (VII 29) et (VII 30) ne fourniront pour  $T_{1_{\text{min}}}$  des valeurs appréciablement différentes que si  $\frac{\omega_n^2 - \omega_p^2}{\omega_n^2} < \frac{1}{100}$ . Or dans le grenat les sites 16a et 24d ont des fréquences de résonance nucléaire assez différentes :  $\nu_{n_{24d}} = 65$  MHz et  $\nu_{n_{16a}} = 76$  MHz à 4°K. Par suite, si  $\nu_p^2$  avait une valeur bien définie et très voisine de  $\nu_{24d}$ , on devrait avoir :

$$(1/T_1)_{16a} / (1/T_1)_{24d} > 3,5$$

ce qui est contraire aux observations de Robert. Donc le rapport  $\frac{\nu_{24d} - (\nu_p^2)}{\nu_{24d}}$  moyen n'est certainement pas très petit et  $(\omega_n^2 - \omega_p^2)^{1/4} \sim \omega_n^{1/2}$  ; c'est la raison pour laquelle nous avons négligé l'effet des imperfections dans les paragraphes précédents.

Expérimentalement  $\nu_p^2$  devrait être fourni par l'étude de la perméabilité initiale de l'échantillon en fonction de la fréquence : des mesures de ce genre ont été faites (à la température ordinaire) par Duffie, Cunningham et Anderson (80) (81) qui trouvent  $\nu_p^2 \sim 10$  MHz (pour un échantillon en forme de tore) et Boyd et al. (82) qui observent (sur des échantillons de formes moins bien précisées) un très grand nombre de "résonance de parois" dont les fréquences s'échelonnent de 20 à 70 MHz. Même si  $\omega_p^2$  dépend quelque peu de la température et, également de l'échantillon considéré, comme semblent l'indiquer ces mesures, ces résultats sont donc qualitativement en bon accord avec les considérations précédentes.

### 3/ Relaxation nucléaire dans les métaux.

Comme nous l'avons vu, les études de résonance nucléaire dans les métaux utilisent, à cause de l'effet de peau, de très petites particules, dont les dimensions sont de l'ordre du micron. Il n'est donc pas certain que des modes de parois basse fréquence puissent exister dans ces particules.

Dans le cas du cobalt cubique par exemple :

$$\omega_n = 3 \cdot 10^{11} ; \omega_n \sim 10^{10} ; \omega_n \sim 1,3 \cdot 10^9 ; e \sim 3 \cdot 10^{-4} \text{ cm} \sim 300 \text{ \AA}$$

Donc

$$\frac{\omega_n^2}{\omega_n^2} \sim 0,2 \cdot 10^{-4} ; Q \sim 30$$

$$k_e^2 e \sim 10^{-4} \text{ donc } \lambda^2 \sim 2 \cdot 10^{-1} \text{ cm} \sim 2 \text{ mm} \sim 2000 \mu$$

$$k^2 e \sim 1,5 \cdot 10^{-2} \text{ donc } \lambda^2 \sim 10^{-3} \text{ cm} \sim 10 \mu$$

Il n'existe donc pas de mode de fréquence  $\omega_n$  dans les petites particules de cobalt : en fait la pulsation du mode le plus bas est, pour une particule de  $2\mu$  de diamètre ( $d = 2\mu$ )

$$\omega = \frac{\omega_n}{\sqrt{Q}} k e \text{ avec } k = \frac{2\pi}{2d} = 1,5 \cdot 10^5 ; k e \sim 6 \cdot 10^{-2}$$

soit :

$$\omega = 3.10^9$$

Cette pulsation est à peine inférieure à celle des ondes de spin de plus faible énergie dans les domaines ( $\omega_1 \sim 10^{10}$ ). Par ailleurs, le coefficient d'amortissement  $\beta_{\mu}$ , très grand pour le mode uniforme à cause des courants de Foucault, doit l'être beaucoup moins pour les déformations en "tôle ondulée" de la paroi. On est donc conduit à penser avec Weger (75), que la relaxation dans les parois de Bloch des particules métalliques est essentiellement due aux fluctuations thermiques, très amorties par les courants de Foucault, du mode uniforme de ces parois (75, 71, 73).

On trouve ici encore (cf. eq. VII.17) que :

$$1/T_1 \propto \left( \frac{\partial \theta_a}{\partial z} \right)^2$$

en accord avec les résultats expérimentaux de Weger, qui mettent en évidence une distribution des temps de relaxation à l'intérieur d'une même paroi.

#### D - EN CONCLUSION -

- La relaxation nucléaire dans les parois de Bloch des isolants paraît bien due aux excitations basse fréquence de ces parois. Cette relaxation est caractérisée par un effet de taille : elle est d'autant plus lente que les particules (et donc les dimensions des parois de Bloch) sont plus petites.

- Par contre ces excitations basse fréquence ne peuvent exister dans les très petites particules métalliques où la relaxation nucléaire est due aux fluctuations thermiques, très amorties par les courants de Foucault, du mode uniforme des parois.

## CONCLUSION

Nous avons essayé d'interpréter les résultats d'expériences de résonance nucléaire dans les ferro- et ferrimagnétiques, en insistant sur les caractères particuliers qui résultent du couplage entre spins nucléaires et spins électroniques.

Nous avons ainsi pu expliquer de façon satisfaisante un certain nombre de propriétés générales (effet des champs dipolaires, intensité des signaux, déplacement de fréquence).

Dans le cas particulier du grenat de fer et d'yttrium, une étude détaillée, menée en parallèle avec les expériences de Robert, nous a permis de prévoir et de comprendre la structure des raies de résonance nucléaire dans les échantillons mono- et polydomaines. Nous avons également réussi à établir une théorie complète et cohérente de l'effet des impuretés de terres rares sur la relaxation nucléaire et la résonance ferrimagnétique dans le grenat. Enfin, nous avons montré que la relaxation nucléaire dans les parois de Bloch était due à des excitations propres de ces parois.

La résonance nucléaire apparaît donc comme une méthode de choix dans l'étude des excitations collectives des substances magnétiques (en particulier des excitations basse fréquence), et des perturbations produites par les impuretés ; et l'on peut penser que les composés isolants de faible anisotropie, en particulier ceux du manganèse divalent ( $\text{KMnF}_3$ ,  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{MnCO}_3$ ), ainsi que les grenats de fer et de terres rares, devraient permettre d'obtenir de nombreux renseignements nouveaux et intéressants.

## APPENDICE A

# RELATIONS ENTRE LES SUSCEPTIBILITÉS RADIOFRÉQUENCE ET LES FONCTIONS DE CORRELATION DU MOMENT MAGNÉTIQUE

Dans cet appendice nous donnons les expressions quantiques des susceptibilités radiofréquence et les relations entre susceptibilités et fonctions de corrélation du moment magnétique. Nous nous sommes inspirés, d'une part de Landau-Lifshitz (79) (p. 375 à 408), d'autre part d'Abraham (14) (p. 100-102), mais certaines des formules obtenues sont un peu plus générales que celles qui figurent dans ces deux livres.

### I - SUSCEPTIBILITÉS ET FONCTIONS DE CORRELATION "TRANSVERSALES" -

#### 1/ Définitions.

a) Considérons un échantillon magnétique de volume  $V$ , éventuellement placé dans un champ permanent  $\underline{H}_0$ . Etant donné un système d'axes trirectangles  $Oxyz$ , nous supposons qu'en l'absence de perturbation les composantes  $M_x, V, M_y, V$  du moment magnétique de l'échantillon suivant  $Ox$  et  $Oy$  sont nulles. Appliquons à cet échantillon un champ magnétique oscillant de composantes

$$H_x = \text{Re } H_1^0 e^{-i\omega t} = \text{Re } \underline{H}_x, \quad H_y = \text{Re } H_1^0 e^{-i(\omega t + \alpha)} = \text{Re } \underline{H}_y \quad [\text{A. 1}]$$

Ce champ va induire un moment magnétique oscillant  $\underline{M}(\omega)V$ . Dans ce qui suit nous nous bornerons à envisager le cas où, lorsque  $\underline{H}_x$  et  $\underline{H}_y$  sont suffisamment petits, les composantes  $\underline{M}_x(\omega)V, \underline{M}_y(\omega)V$  sont des fonctions linéaires de  $\underline{H}_x$  et  $\underline{H}_y$  (la composante  $\underline{M}_z(\omega)$  étant, pour simplifier l'exposé, supposée négligeable). Pour  $H_1^0$  et  $H_1^0$  petits on écrira donc, par définition des susceptibilités radiofréquence complexes :

$$\begin{aligned} \underline{M}_x(\omega) &= \chi''''(\omega) \underline{H}_x + \chi''''(\omega) \underline{H}_y \\ \underline{M}_y(\omega) &= \chi''''(\omega) \underline{H}_x + \chi''''(\omega) \underline{H}_y \end{aligned} \quad [\text{A. 2}]$$

Avec  $\chi'''' = \chi'''' + i \chi''''$  ( $\chi''''$ ,  $\chi''''$  réelles).

b) Si les axes  $Ox$  et  $Oy$  jouent le même rôle

$$\chi'''' = \chi'''' \quad \chi'''' = -\chi'''' \quad [\text{A. 3}]$$

c) Si le champ radiofréquence appliqué est un champ tournant :

$$\underline{H}_x = H_1 \cos \omega t, \quad \underline{H}_y = -H_1 \sin \omega t, \quad \underline{H}_z = -i \underline{H}_x,$$

et si l'on pose

$$\underline{M}^* = \underline{M}_x + i \underline{M}_y, \quad \underline{H}^* = \underline{H}_x + i \underline{H}_y, \quad \chi'''' = \frac{1}{2} (\chi'''' + \chi'''' + i \chi'''' - i \chi'''')$$

on a :

$$\underline{M}^* = \chi'''' \underline{H}^* \quad [\text{A. 4}]$$

Cette relation est valable quel que soit le champ radiofréquence, si les relations (A. 3) sont vérifiées.

## 2/ Puissance moyenne absorbée.

Cas (1a)

$$\bar{P} = \frac{\omega}{2} [ \chi_{\omega}^{\alpha\alpha} H^2 + \chi_{\omega}^{\beta\beta} H^2 + (\chi_{\omega}^{\alpha\beta} - \chi_{\omega}^{\beta\alpha}) H_x^{\alpha} H_x^{\beta} \sin \alpha + (\chi_{\omega}^{\alpha\beta} + \chi_{\omega}^{\beta\alpha}) H_x^{\alpha} H_x^{\beta} \cos \alpha ] \quad [A. 5]$$

Cas (1c)

$$\bar{P} = \frac{\omega}{2} H_1^2 [ \chi_{\omega}^{\alpha\alpha} + \chi_{\omega}^{\beta\beta} + \chi_{\omega}^{\alpha\beta} - \chi_{\omega}^{\beta\alpha} ] = \omega H_1^2 \text{Im} (\chi_{\omega}^{\alpha}) \quad [A. 6]$$

## 3/ Expressions quantiques de la susceptibilité radiofréquence.

On obtient ces expressions en utilisant la méthode de calcul indiquée dans le livre d'Abragam (14) p. 100. Soient  $\mathcal{H}_0$  le hamiltonien total de l'échantillon,  $E_n, E_k \dots$  etc,  $|m\rangle, |k\rangle \dots$  etc,  $p_n, p_k \dots$  etc, respectivement les niveaux d'énergie<sup>(\*)</sup>, fonctions propres et populations (à l'équilibre thermique) correspondants en l'absence de perturbation ; et soit  $\mathcal{M}$  l'opérateur moment magnétique de l'échantillon<sup>(\*\*)</sup>. On trouve<sup>(\*\*\*)</sup> ( $\beta, \alpha = x, y$ ) :

$$\chi_{\omega}^{\alpha\alpha} = -\frac{V^{-1}}{i\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} \int_0^{\infty} e^{i(\frac{E_n - E_k - \omega}{\hbar})\tau} d\tau \quad [A. 7]$$

$$\chi_{\omega}^{\alpha\beta} = -\frac{V^{-1}}{\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\beta} \left[ \frac{1}{\frac{E_n - E_k + \omega}{\hbar}} - i\pi \delta\left(\frac{E_n - E_k}{\hbar} + \omega\right) \right] \quad [A. 8]$$

Soit pour les parties réelle et imaginaire de  $\chi$  :

$$\left\{ \begin{aligned} \chi_{\omega}^{\alpha\alpha} &= \frac{1}{\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} \int_0^{\infty} e^{i(\frac{E_n - E_k}{\hbar})\tau} \cos \omega\tau d\tau \\ \chi_{\omega}^{\alpha\beta} &= \frac{i}{\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\beta} \int_0^{\infty} e^{i(\frac{E_n - E_k}{\hbar})\tau} \sin \omega\tau d\tau \end{aligned} \right. \quad [A. 9]$$

$$\left\{ \begin{aligned} \chi_{\omega}^{\alpha\alpha} &= \frac{1}{\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} \int_0^{\infty} e^{i(\frac{E_n - E_k}{\hbar})\tau} \cos \omega\tau d\tau \\ \chi_{\omega}^{\alpha\beta} &= \frac{i}{\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\beta} \int_0^{\infty} e^{i(\frac{E_n - E_k}{\hbar})\tau} \sin \omega\tau d\tau \end{aligned} \right. \quad [A. 10]$$

ou encore en posant

$$A_{nk}^{\alpha\alpha} = \frac{\mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} + \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} \mathcal{M}_{nk}^{\alpha}}{2} = A_{nk}^{\alpha\alpha} \text{ (réel)}$$

$$B_{nk}^{\alpha\alpha} = \frac{\mathcal{M}_{nk}^{\alpha} \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} - \mathcal{M}_{kn}^{\alpha} \mathcal{M}_{nk}^{\alpha}}{2i} = -B_{nk}^{\alpha\alpha} \text{ (réel)}$$

$$\left\{ \begin{aligned} \chi_{\omega}^{\alpha\alpha} &= -\frac{V^{-1}}{2\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \left\{ A_{nk}^{\alpha\alpha} \left[ \frac{1}{\frac{E_n - E_k + \omega}{\hbar}} + \frac{1}{\frac{E_n - E_k}{\hbar} - \omega} \right] + B_{nk}^{\alpha\alpha} \pi \left[ \delta\left(\frac{E_n - E_k}{\hbar} + \omega\right) + \delta\left(\frac{E_n - E_k}{\hbar} - \omega\right) \right] \right\} \\ \chi_{\omega}^{\alpha\beta} &= \frac{V^{-1}}{2\hbar} \sum_{\substack{n,k \\ n \neq k}} (p_n - p_k) \left\{ A_{nk}^{\alpha\beta} \pi \left[ \delta\left(\frac{E_n - E_k}{\hbar} + \omega\right) - \delta\left(\frac{E_n - E_k}{\hbar} - \omega\right) \right] - B_{nk}^{\alpha\beta} \left[ \frac{1}{\frac{E_n - E_k}{\hbar} + \omega} - \frac{1}{\frac{E_n - E_k}{\hbar} - \omega} \right] \right\} \end{aligned} \right. \quad [A. 11]$$

[A. 12]

\* Supposés non dégénérés : cf. Landau-Lifshitz (79) p. 404 note en bas de page.

\*\* Puisque par hypothèse  $M_x = M_y = 0$  en l'absence de radiofréquence :

$$\sum_{\mathbf{R}} \langle m | \mathcal{M}' | m \rangle = \sum_{\mathbf{R}} \langle m | \mathcal{M}' | m \rangle = 0$$

\*\*\* Si les éléments de matrice diagonaux de  $\mathcal{M}'$  et  $\mathcal{M}$  ne sont pas nuls, l'application d'un champ statique ou lentement oscillant provoquera une variation au 1<sup>er</sup> ordre des populations des niveaux. Il n'en est pas de même pour les champs radiofréquence, dont la période est très courte par rapport au temps de relaxation du système macroscopique étudié.

On déduit aussi de ces formules que :

$$\chi^{\beta\alpha}(\omega) - \chi^{\alpha\beta}(\omega)^* = \chi_{\sigma}^{\beta\alpha} - \chi_{\sigma}^{\alpha\beta} + i(\chi_{\sigma}^{\beta\alpha} + \chi_{\sigma}^{\alpha\beta}) = -\frac{2V^{-1}}{\hbar} \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ \sigma, \sigma'}} (p_{\sigma} - p_{\sigma'}) \mathcal{M}_{k_1}^{\beta} \mathcal{M}_{k_2}^{\alpha} \pi \delta\left(\frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{\hbar} + \omega\right) \quad [\text{A. 13}]$$

$$\chi^{\beta\alpha}(\omega) + \chi^{\alpha\beta}(\omega)^* = \chi_{\sigma}^{\beta\alpha} + \chi_{\sigma}^{\alpha\beta} + i(\chi_{\sigma}^{\beta\alpha} - \chi_{\sigma}^{\alpha\beta}) = -\frac{2V^{-1}}{\hbar} \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ \sigma, \sigma'}} (p_{\sigma} - p_{\sigma'}) \mathcal{M}_{k_1}^{\beta} \mathcal{M}_{k_2}^{\alpha} \pi \frac{1}{\frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{\hbar} + \omega} \quad [\text{A. 14}]$$

#### 4/ Relations entre susceptibilités et fonctions de corrélation.

Venons en maintenant aux relations entre les fonctions de corrélation des fluctuations transversales du moment magnétique, et les susceptibilités calculées ci-dessus (nous utiliserons certaines de ces relations lorsque nous étudierons la relaxation dans le grenat).

L'opérateur associé aux fluctuations de la composante du moment suivant  $\alpha$  est  $\delta\mathcal{M}^{\alpha}$  tel que

$$\delta\mathcal{M}_{k_1}^{\alpha} = \mathcal{M}_{k_1}^{\alpha} (1 - \delta_{k_1,0})$$

Nous considérons les fonctions de corrélation<sup>(\*)</sup>

$$j^{\beta\alpha}(\omega) + i k^{\beta\alpha}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} [\delta\mathcal{M}^{\beta}(\tau) \delta\mathcal{M}^{\alpha}(-\tau) + \delta\mathcal{M}^{\alpha}(-\tau) \delta\mathcal{M}^{\beta}(\tau)] d\tau = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} S^{\beta\alpha} d\tau \quad [\text{A. 15}]$$

$$l^{\beta\alpha}(\omega) + i m^{\beta\alpha}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} [\delta\mathcal{M}^{\beta}(\tau) \delta\mathcal{M}^{\alpha}(-\tau) - \delta\mathcal{M}^{\alpha}(-\tau) \delta\mathcal{M}^{\beta}(\tau)] d\tau = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} A^{\beta\alpha} d\tau \quad [\text{A. 16}]$$

avec

$$j^{\beta\alpha}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} \frac{S^{\beta\alpha}}{2} d\tau = \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ \sigma, \sigma'}} (p_{\sigma} + p_{\sigma'}) \delta\mathcal{M}_{k_1}^{\beta} \delta\mathcal{M}_{k_2}^{\alpha} \pi \delta\left(\omega + \frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{\hbar}\right)$$

$$k^{\beta\alpha}(\omega) = \frac{1}{i} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} - \int_{-\infty}^{\infty} \right] = \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ \sigma, \sigma'}} (p_{\sigma} + p_{\sigma'}) \delta\mathcal{M}_{k_1}^{\beta} \delta\mathcal{M}_{k_2}^{\alpha} \pi \frac{1}{\omega + \frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{\hbar}}$$

$$l^{\beta\alpha}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} \frac{A^{\beta\alpha}}{2} d\tau = \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ \sigma, \sigma'}} (p_{\sigma} - p_{\sigma'}) \delta\mathcal{M}_{k_1}^{\beta} \delta\mathcal{M}_{k_2}^{\alpha} \pi \delta\left(\omega + \frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{\hbar}\right)$$

$$m^{\beta\alpha}(\omega) = \frac{1}{i} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} - \int_{-\infty}^{\infty} \right] = \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ \sigma, \sigma'}} (p_{\sigma} - p_{\sigma'}) \delta\mathcal{M}_{k_1}^{\beta} \delta\mathcal{M}_{k_2}^{\alpha} \pi \frac{1}{\omega + \frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{\hbar}}$$

D'où l'on déduit, en comparant à (A. 13), (A. 14) (cf. Landau-Lifshitz p. 404 eq. 124-10) :

$$j^{\beta\alpha}(\omega) = -\frac{i\hbar}{2V^{-1}} \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) (\chi_{\sigma}^{\beta\alpha} - \chi_{\sigma}^{\alpha\beta}) \quad [\text{A. 17}]$$

$$l^{\beta\alpha}(\omega) + i m^{\beta\alpha}(\omega) = -\frac{i\hbar}{V^{-1}} \chi^{\beta\alpha}(\omega) \quad [\text{A. 18}]$$

$$l^{\beta\alpha}(\omega) = -\frac{i\hbar}{2V^{-1}} (\chi^{\beta\alpha}(\omega) - \chi^{\alpha\beta}(\omega)^*), \text{ et } m^{\beta\alpha}(\omega) = -\frac{i\hbar}{2V^{-1}} (\chi^{\beta\alpha}(\omega) + \chi^{\alpha\beta}(\omega)^*) \quad [\text{A. 19}]$$

enfin, mais seulement si  $\omega$  est petit et  $\left| \frac{E_{\sigma} - E_{\sigma'}}{k_B T} \right| \ll 1$ ,  $\forall m$  et  $k$  (hypothèse de très hautes températures):

$$k^{\beta\alpha}(\omega) = -\frac{k_B T}{\omega V^{-1}} (\chi^{\beta\alpha}(\omega) + \chi^{\alpha\beta}(\omega)^* - \chi^{\beta\alpha}(0) - \chi^{\alpha\beta}(0)^*) \quad [\text{A. 20}]$$

\*  $\delta\mathcal{M}^{\alpha}(\tau)$  etc : opérateurs dépendant du temps en représentation d'Heisenberg.

Nous remarquons (eq. (A. 18)) que  $\chi^{\beta\alpha}(\omega)$  n'est pas autre chose, à une constante près, que la transformée de Fourier de la fonction de corrélation "antisymétrique" par rapport au temps  $A^{\beta\alpha}$  (eq. (A. 16)).

### 5/ Expressions complémentaires.

Posons  $\kappa^+ = \kappa^{\alpha} + i\kappa^{\beta}$ ,  $\kappa^- = \kappa^{\alpha} - i\kappa^{\beta}$ . On trouve :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\kappa^{\alpha}(0)\kappa^{\beta}(-\tau) + \kappa^{\beta}(-\tau)\kappa^{\alpha}(0)}{2} e^{i\omega\tau} d\tau = j^{\alpha\alpha}(\omega) + j^{\beta\beta}(\omega) + ij^{\alpha\beta}(\omega) - ij^{\beta\alpha}(\omega)$$

$$= \frac{2\hbar}{V-1} \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \text{Im}(\chi_{\omega}^{\alpha}) \quad [\text{A. 22}]$$

## II - GENERALISATION -

On vérifie aisément que les expressions établies dans les paragraphes I.3 et I.4 restent valables quels que soient  $\alpha, \beta = x, y, z$ .

## APPENDICE B

### COMPARAISON DES SIGNAUX DE RÉSONANCE FOURNIS PAR LES PAROIS ET LES DOMAINES (12)

#### A - EVALUATION RAPIDE DE LA SUSCEPTIBILITE ELECTRONIQUE DES DOMAINES -

Comme beaucoup d'auteurs l'ont remarqué, l'étude du mouvement des spins électroniques des domaines constitue un problème extrêmement compliqué, qu'on ne peut traiter que d'une façon très approximative [(17) p. 285]. Une étude rigoureuse devrait, en effet, tenir compte simultanément de l'anisotropie, du champ démagnétisant dû aux masses magnétiques superficielles et éventuellement aussi du champ démagnétisant en volume (si les spins de deux domaines adjacents vibrent de la façon qui est indiquée sur la figure 32). Expérimentalement, dans les cas très simples où l'on peut, en choisissant convenablement l'orientation du champ radiofréquence, exciter sélectivement la résonance d'un seul mode propre du système, on vérifie effectivement (83) que les pulsations de ces modes s'étalent sur une large bande (qui, ici, s'étendrait en gros de  $\omega = \gamma \sqrt{H_A (H_A + NM)}$  à  $\omega = \gamma \sqrt{(H_A + NM)(H_A + 4\pi M)}$  soit, pour le cobalt cubique, de  $3 \cdot 10^{10}$  à  $1,7 \cdot 10^{11}$  rad sec<sup>-1</sup>). La situation est donc très complexe, et, dans les métaux, les courants de Foucault apportent encore une complication supplémentaire. Aussi ne ferons-nous ici qu'un raisonnement très schématisé, basé sur une comparaison parois-domaines.

On remarque en effet que la susceptibilité locale dans les parois:

$$\chi_p^{loc} \approx \frac{1}{\frac{Ne}{l} + \frac{128 \sigma_e i \omega l e}{\pi c^2}} = \frac{M}{NM \frac{e}{l} + \frac{128 \sigma_e i \omega e l}{\pi c^2} M}$$

est inversement proportionnelle à  $e$ , paramètre d'épaisseur de la paroi, c'est-à-dire en fait au nombre (petit) de spins électroniques mis en jeu (ce qui explique qu'elle soit grande). Par analogie, on prévoit donc que la susceptibilité associée aux rotations de l'aimantation des domaines, qui font intervenir un beaucoup plus grand nombre de spins, sera de l'ordre de

$$\chi_d \sim \chi_p^{loc} \frac{e}{l} \sim \frac{M}{NM - \frac{128 \sigma_e i \omega l^2 M}{\pi c^2}} \quad \left( \frac{e}{l} \sim \frac{1}{40} \right)$$

En fait, cette expression ne tient pas compte de l'anisotropie et, au dénominateur,  $NM$  devrait être remplacé par  $(H_A + NM)^2$  (mais, dans les cas considérés,  $H_A < NM$ ). Par ailleurs le terme relatif aux courants de Foucault,  $\left( \frac{128 \sigma_e i \omega l^2 M}{\pi c^2} \right)$ , devrait peut-être faire intervenir les dimensions  $d$  de la particule elle-même, plutôt que celles des seuls domaines; mais ceci n'est pas grave non plus, car un calcul simpliste (assimilant la particule à un cylindre de diamètre  $d$ , d'aimantation uniforme perpendiculaire à son axe (fig. 33)) fournit pour cette contribution, le résultat:

$$\pi^2 \sigma \frac{i \omega d^2 M}{c^2}$$

\* On remarque que pour un échantillon polydomaine  $\eta \sim \frac{H_A}{H_A + NM}$  est limité par les effets de champ démagnétisant même si l'échantillon est sphérique. Il n'en est pas de même pour les échantillons uniformément aimantés ( $\eta \sim \frac{H_A}{H_0 + H_A}$ ). La différence vient de ce que, dans un échantillon polydomaine, le champ démagnétisant dû aux masses magnétiques superficielles est sensiblement nul en l'absence de champ appliqué.

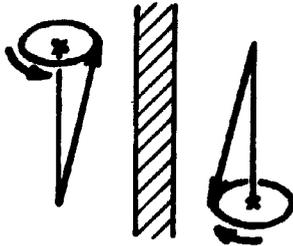


Fig. 32

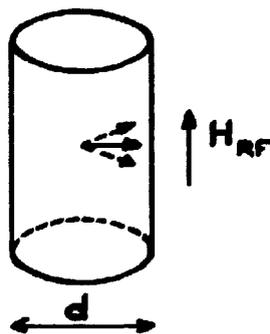


Fig. 33

qui, pour des particules de l'ordre du micron, ( $d \sim 2\mu$  par exemple), est du même ordre que la précédente.

Nous supposons donc, dans ce qui suit, que l'on a bien :

$$\chi_d \sim \chi_p^{loc} \frac{e}{1} \sim \frac{1}{40} \chi_p^{loc}$$

et nous admettrons également (cf. chap. II et VI) qu'en présence de spins nucléaires la déflexion angulaire  $\varepsilon$  de l'aimantation est donnée par une formule analogue à (VI.28) :

$$M \varepsilon = \frac{\chi_d}{\chi_d - \alpha^2 \chi_d \xi_{vv}} H_{rf}$$

#### B - APPLICATION : COMPARAISON DES SIGNAUX DE RESONANCE FOURNIS PAR LES PAROIS ET LES DOMAINES -

La contribution des domaines à la susceptibilité de la particule est donc égale à :

$$\chi_d^{part} = \frac{\bar{M}}{H_{rf}} \sim \frac{\chi_d}{1 - \alpha^2 \chi_d \xi_{vv}} = \chi_d + \frac{\alpha^2 \chi_d^2}{\frac{1}{\xi_{vv}} - \alpha^2 \chi_d} \quad [B.1]$$

et, dans les mêmes conditions, celle des déplacements de parois est donnée par :

$$\chi_p^{part} = \frac{\bar{M}}{H_{rf}} \sim \frac{W}{1} \frac{M}{H_{rf}} \sim \frac{e}{1} \frac{\chi_p^{loc}}{(1 - \alpha^2 \chi_p^{loc} \xi_{vv})} \sim \frac{e}{1} \chi_p^{loc} + \frac{e}{1} \frac{\alpha^2 \chi_p^{loc}}{\frac{1}{\xi_{vv}} - \alpha^2 \chi_p^{loc}} \quad [B.2]$$

soit encore, puisque  $\chi_d = \frac{e}{1} \chi_p^{loc} \left( \sim \frac{1}{40} \chi_p^{loc} \right)$  :

$$\chi_p^{part} = \chi_d + \frac{1}{e} \frac{\alpha^2 \chi_d^2}{\frac{1}{\xi_{vv}} - \alpha^2 \chi_p^{loc}} \quad [B.3]$$

et l'on voit immédiatement, en comparant les formules (B.1) et (B.3), que

a) Pour  $\nu \neq \nu_n$  ( $\xi_{vv} = 0$ ) les déplacements de parois et les rotations de domaines apportent à la susceptibilité radiofréquence de la particule des contributions du même ordre (17).

b) Par contre si  $\nu \approx \nu_n$  (à 400 kc/s près, ce qui correspond à la largeur de raie inhomogène observée par Portis et Gossard : 400 Oe) et si l'on suppose (cf. chap. VI) le déplacement de fréquence négligeable ( $\frac{1}{\xi_{vv}} - \alpha^2 \chi_p^{loc} \approx \frac{1}{\xi_{vv}}$ ) le signal de résonance nucléaire fourni par les noyaux des parois sera 40 fois plus intense que celui fourni par les noyaux des domaines (à largeur de raie égale ; sinon ce résultat n'est évidemment valable que pour les intensités intégrées).

En pratique, il paraît à peu près impossible de vérifier ces prédictions, s'il n'existe pas de différence appréciable entre les fréquences de résonance des noyaux des parois et des domaines (de façon que ces deux espèces de noyaux donnent naissance à des raies de résonance bien séparées). Et, de fait, il existe toujours une différence entre ces deux fréquences : Suhl (84) et Winter (70) ont en effet démontré que les excitations thermiques plus importantes de l'aimantation électronique dans les parois avaient pour effet de diminuer la fréquence de résonance  $[\omega_n]$  des noyaux des parois ; mais cet abaissement de fréquence n'est important que pour les substances dont les parois de Bloch sont très minces, ce qui n'est le cas, ni pour les métaux Fe, Co, Ni, ni pour le grenat de fer et d'yttrium.

Par contre Gossard, Jaccarino et Remeika (57) ont effectivement pu observer séparément les résonances des parois et des domaines dans Cr Br<sub>2</sub> (où l'effet précédent s'ajoute à un déplacement de la fréquence de résonance dans les parois par effet dipolaire ; cf. chap. V), et ils ont constaté que l'intensité intégrée de la raie fournie par les parois était égale à environ trente fois celle de la raie fournie par les domaines. Donc, bien que Cr Br<sub>2</sub> ait des propriétés très différentes de celles du cobalt, ce résultat semble indiquer que notre estimation théorique, faite longtemps avant cette expérience, n'était pas déraisonnable.

## BIBLIOGRAPHIE

- (1) A. ABRAGAM, J. HOROWITZ et M. H. L. PRYCE - Proc. Roy. Soc., 1955, 230A, 169
- (2) R. E. WATSON et A. J. FREEMAN - Phys. Rev., 1961, 123, 2027
- (3) J. H. VAN VLECK - Phys. Rev., 1937, 52, 1178
- (4) F. BOUTRON et C. ROBERT - C. R., 1961, 253, 433  
C. ROBERT et F. HARTMANN-BOUSTRON - J. Phys. Radium, 1962, 23, 74
- (5) F. BERTAUT et F. FORRAT - C. R., 1956, 242, 382  
S. GELLER et M. A. GILLES - J. Phys. Chem. Solids, 1957, 3, 30
- (6) C. ROBERT - C. R., 1960, 251, 2684
- (7) G. BURNS - Phys. Rev., 1961, 124, 524
- (8) R. E. WATSON - Iron Series Hartree-Fock calculations. Techn. Rep. n° 12 June 15, 1959. Solid State and Molecular Theory Group M. I. T.
- (9) S. GESCHWIND - Phys. Rev., 1961, 121, 363
- (10) M. H. L. PRYCE - Phys. Rev., 1950, 60, 1107
- (11) Cette méthode nous a été suggérée par Monsieur ABRAGAM
- (12) F. BOUTRON - Rapport S. P. S. R. M. n° 17, C. E. N. de Saclay (Janvier et Avril 1961).
- (13) P. G. DE GENNES, F. HARTMANN-BOUSTRON et P. PINCUS - C. R., 1962, 254, 1264
- (14) A. ABRAGAM - Principles of Nuclear Magnetism, Oxford University Press
- (15) G. E. PAKE - Paramagnetic Resonance, Benjamin Inc., N. Y., 1962, p. 23 et 114
- (16) T. R. Mc GUIRE, B. E. ARGYLE, M. W. SHAFER et J. S. SMART - Appl. Phys. Letters, 1962, 1, 17.
- (17) W. P. WOLF, - Ferrimagnetism, Reports on Progress in Physics, 1961, 24, 212
- (18) P. G. de GENNES, P. A. PINCUS, F. HARTMANN-BOUSTRON et J. M. WINTER - Phys. Rev. (1963), 129, 1105
- (19) a) H. SUHL - Phys. Rev., 1958, 109, 606. J. Phys. Rad., 1959, 20, 333  
b) T. NAKAMURA - Progr. Theor. Phys. Kyoto, 1958, 20, 542
- (20) Ce problème est également discuté dans :  
P. G. de GENNES et F. HARTMANN-BOUSTRON - C. R., 1961, 253, 2922
- (21) P. PINCUS - Phys. Rev. 1963, 131, 1530.
- (22) A. J. HEEGER, S. K. GHOSH et T. G. BLOCKER III - J. Appl. Phys., 1963, 34, 1034
- (23) M. DATE - J. Phys. Soc. Japan, 1960, 15, 2251  
H. J. FINK - Phys. Rev., 1963, 130, 177  
H. J. FINK et D. SHALTIEL, BAPS - Série II, vol. 8 n° 3, 1963, p. 214
- (24) A. J. HEEGER, O. BECKMAN et A. M. PORTIS - Phys. Rev., 1961, 123, 1652
- (25) A. J. HEEGER, A. M. PORTIS, D. T. TEANEY et G. WITT - Phys. Rev. Letters, 1961, 7, 307
- (26) A. J. HEEGER, A. M. PORTIS, et G. WITT - Proceedings of the XI<sup>th</sup> International Conference on Magnetic and Electric Resonance and Relaxation, Eindhoven 1962, North Holland Publ. p. 694.

- (27) A. M. PORTIS, G. WITT et A. J. HEEGER - *J. Appl. Phys.*, 1963, 34, 1052
- (28) P. G. DE GENNES et J. VILLAIN - *J. Phys. Chem. Solids*, 1960, 13, 10
- (29) T. MORIYA - *Progr. Theor. Phys.*, 1962, 27, 529.
- (30) H. MORI et K. KAWASAKI - *Progr. Théor. Phys.*, 1962, 27, 529  
 " " " " 1962, 28, 971
- (31) a) F. HARTMANN-BOUSTRON - *C. R.*, 1963, 256, 4412  
 b) " " " *Physique de la matière condensée* 1964, 2, 80
- (31 bis) J. H. VAN VLECK et R. ORBACH - *Phys. Rev. Letters*, 1963, 11, p. 65
- (32) J. F. DILLON Jr et J. W. NIELSEN - *Phys. Rev. Letters*, 1959, 3, 30
- (33) S. GESCHWIND - *J. Appl. Phys.*, 1959, 30 S, 163
- (34) J. F. DILLON Jr et J. W. NIELSEN - *Phys. Rev.*, 1960, 120, 105
- (35) J. F. DILLON Jr et L. R. WALKER - *Phys. Rev.*, 1961, 124, 1401
- (36) J. F. DILLON Jr - *Phys. Rev.*, 1962, 127, 1495
- (37) a) R. W. TEALE et K. TWEEDALE - *Physics Letters*, 1962, 1, 298  
 b) B. H. CLARKE, R. F. PEARSON, R. W. TEALE et K. TWEEDALE - *J. Appl. Phys.*, 1963, 1269
- (38) a) C. ROBERT et J. M. WINTER - *C. R.*, 1961, 253, 2925  
 b) C. ROBERT et J. M. WINTER - *Proceedings of the XI th International Conference on Magnetic and Electric Resonance and Relaxation*, Eindhoven 1962, North Holland Pub. p. 205
- (39) C. ROBERT - *Thèse, Paris* 1962
- (40) C. KITTEL - *Phys. Rev.*, 1960, 117, 681
- (41) P. G. DE GENNES, F. HARTMANN-BOUSTRON, P. PINCUS et D. SAINT-JAMES - *Physics Letters*, 1962, 1, 273
- (42) C. KITTEL - *Phys. Rev.*, 1959, 115, 1587  
 P. G. DE GENNES, C. KITTEL et A. M. PORTIS - *Phys. Rev.*, 1959, 116, 323
- (43) N. BLOEMBERGEN - *Physica*, 1949, 15, 386
- (44) L. NEEL - *J. Phys. Radium*, 1951, 12, 339 ; 1952, 13, 249
- (45) A. M. CLOGSTON - *Bell Syst. Techn. Journal*, 1955, 34, 739
- (46) F. BLOCH - *Phys. Rev.*, 1956, 102, 104
- (47) L. I. SCHIFF - *Quantum Mechanics*, Mc Graw Hill
- (48) R. K. WANGSNES et F. BLOCH - *Phys. Rev.*, 1953, 89, 278
- (49) a) K. A. WICKERSHEIM - *Phys. Rev.*, 1961, 122, 1376  
 b) K. A. WICKERSHEIM, et R. L. WHITE - *Phys. Rev. Letters*, 1962, 8, 483  
 c) A. J. SIEVERS III et M. TINKHAM - *Phys. Rev.*, 1963, 129, 1995
- (50) A. HERPIN, W. C. KOEHLER et P. MERIEL - *C. R.*, 1960, 251, 1359
- (51) a) A. C. GOSSARD - *Thèse, Berkeley, Californie*, 1960  
 b) A. M. PORTIS et A. C. GOSSARD - *J. Appl. Phys.*, 1960, 31 S, 205
- (52) A. W. SMITH et G. W. WILLIAMS - *Can. J. Phys.*, 1960, 38, 1187
- (53) C. KITTEL et J. K. GALT - *Ferromagnetic Domain Theory, Solid State Physics*, 1957, 3, 437
- (54) R. C. LECRAW et L. R. WALKER - *J. Appl. Phys.*, 1961, 32 S, 167
- (55) G. P. RODRIGUE, H. MEYER et R. V. JONES - *J. Appl. Phys.*, 1960, 31 S, 376
- (56) M. BUYLE-BODIN et LE DANG KHOI - *J. Phys. Radium*, 1962, 23, 565
- (57) A. C. GOSSARD, V. JACCARINO et J. P. REMEIKI - *Phys. Rev. Letters*, 1961, 7, 122  
 A. C. GOSSARD, V. JACCARINO et J. P. REMEIKI - *J. Appl. Phys.*, 1962, 33, 1187
- (58) Y. KOI, A. TSUJIMURA et T. KUSHIDA - *J. Phys. Soc. Japan*, 1960, 15, 2100

- (59) D. J. CRAIK et R. S. TEBBLE - *Magnetic Domains, Rep. Progr. Phys.*, 1961, 24, 116
- (60) D. M. S. BAGGULEY et J. OWEN - *Rep. Progr. Phys.*, 1957, 20, 304
- (61) H. J. WILLIAMS, W. SHOCKLEY et C. KITTEL - *Phys. Rev.*, 1950, 80, 1090
- (62) R. H. PRY et C. P. BEAN - *J. Appl. Phys.*, 1958, 29, 532
- (63) P. D. AGARWAL et L. RABINS - *J. Appl. Phys.*, 1960, 33 s, 246
- (64) W. A. YAGER, J. K. GALT et F. R. MERRITT - *Phys. Rev.*, 1955, 99, 1203
- (65) J. HERVE et J. N. AUBRUN - *C. R.*, 1962, 254, 2747
- (66) J. N. AUBRUN et J. HERVE - *C. R.*, 1962, 254, 4012
- (67) R. J. BLUME - *Amer. J. Phys.*, 1963, 31, 58
- (68) A. J. HEEGER et T. HOUSTON - *Bull. Am. Phys. Soc.*, Série II, 1963, 8, n° 3, 213
- (69) M. WEGER, E. L. HAHN et A. M. PORTIS - *J. Appl. Phys.*, 1961, 32 s, 124
- (70) J. M. WINTER - *Phys. Rev.*, 1961, 124, 452
- (71) E. SIMANEK, Z. SROUBEK - *Czechosl. J. Phys.*, 1961, 11, 764
- (72) P. G. DE GENNES et F. HARTMANN-BOUTRON - *C. R.*, 1961, 253, 1662
- (73) J. SEIDEN - *C. R.*, 1962, 254, 234 et 1774
- (74) C. ROBERT et J. M. WINTER - *Compte Rendu du 9ème Colloque Ampère, Pise*, p. 433
- (75) M. WEGER - *Phys. Rev.*, 1962, 128, 1503
- (76) C. ROBERT - communication privée
- (77) L. NEEL - *Ann. Univ. Grenoble*, 1946, 22, 299
- (78) H. B. CALLEN et T. WELTON - *Phys. Rev.*, 1951, 83, 34
- (79) L. LANDAU et E. M. LIFSHITZ - *Statistical Physics*, Pergamon Press (1958)
- (80) G. E. Mc DUFFIE jr, J. R. CUNNINGHAM jr et E. E. ANDERSON - *J. Appl. Phys.*, 1960, 31s, 47
- (81) E. E. ANDERSON et J. R. CUNNINGHAM jr - *J. Appl. Phys.*, 1960, 31, 1687
- (82) E. L. BOYD, J. I. BUDNICK, L. J. BRUNER et R. J. BLUME - *J. Appl. Phys.*, 1962, 33, 2484
- (83) J. O. ARTMANN - *Phys. Rev.*, 1957, 105, 62  
J. SMIT et H. G. BELJERS - *Phil. Res. Reports*, 1955, 10, 113
- (84) H. SUHL - *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1960, 5, 175



**FIN**