



HAL
open science

Etude par diffusion inélastique des neutrons des ondes de spin dans FeRh

Alain Castets

► **To cite this version:**

Alain Castets. Etude par diffusion inélastique des neutrons des ondes de spin dans FeRh. Physique [physics]. Université scientifique et médicale et institut polytechnique de Grenoble, 1977. Français. NNT: . tel-03682319

HAL Id: tel-03682319

<https://hal.science/tel-03682319>

Submitted on 31 May 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

T0098
1977/DS

1977.5
(043) D.E.

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE GRENOBLE

pour obtenir le grade

DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Alain CASTETS

SUJET

**ETUDE PAR DIFFUSION INELASTIQUE
DES NEUTRONS DES ONDES DE SPIN
DANS FeRh**

Soutenue le 8 décembre 1977 devant la Commission d'Examen

J.C. BARBIER

Président

B. DREYFUS

F. GAUTIER

B. HENNION

M. NAUCIEL-BLOCH

J. VILLAIN

Examineurs

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

Monsieur Gabriel CAU : Président
Monsieur Pierre JULLIEN : Vice Président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM	AMBLARD Pierre	Clinique de dermatologie	GAVEND Michel	Pharmacologie
	ARNAUD Paul	Chimie	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	ARVIEU Robert	I.S.N	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	AUBERT Guy	Physique	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	AYART Yves	Physique approfondie	GIRAUD Pierre	Géologie
Mme	BARRIER Marie-Jeanne	Electrochimie	JANIN Bernard	Géographie
MM	BARRIER Jean-Claude	Physique Expérimentale	KAHANE André	Physique généralé
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	BARJON Robert	Physique nucléaire	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose	KRA/TCHENKO Julien	Mécanique
	BARRA Jean-René	Statistiques	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale	LACAZE Albert	Thermodynamique
	BEAUDOING André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture	LACHARME Jean	Biologie végétale
	BELORIZLY Elie	Physique	Mme LAJZEROWICZ Janine	Physique
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures	MM. LAJZEROWICZ Joseph	Physique
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures	LATREILLE René	Chirurgie générale
MM	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures	LATURAZE Jean	Biochimie Pharmaceutique
	BEZEZ Henri	Pathologie chirurgicale	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)	LE ROY Philippe	Mécanique (IUT I)
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	BONNET-EYHARD Joseph	Clinique gastro-entérologique	LOISEAUX Pierre	Sciences Nucléaires
Mme	BONNIER Marie-Jeanne	Chimie générale	LONGQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
MM	BOUCHERLE André	Chimie et toxicologie	LOUP Jean	Céographie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire	Melle LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées	MM. MALINAS Yves	Clinique Obstétricale
	BOUTET DE MONTVEL Louis	Mathématiques Pures	MARTIN-NOEL Pierre	Clinique Cardiologique
	BRAVARD Yves	Géographie	MAZARE Yves	Clinique Médicale A
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologique	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	CALAS François	Anatomie	MICLOUD Max	Clinique Maladies infectieuses
	CARLIER Georges	Biologie végétale	MOURIQUAND Claude	Histologie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie	MOUSSA André	Chimie Nucléaire
	CAU Gabriel	Médecine légale et toxicologie	NOZIERES Philippe	Spectrométrie Physique
	CAUQUIS Georges	Chimie organique	OZENDA Paul	Botanique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	CHABACHON Robert	Clinique Oto-rhino-laryngologique	PERAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	CHATEAU Robert	Clinique de neurologie	PERRET Jean	Seméiologie Médicale (Neurologie)
	CHIBON Pierre	Biologie animale	RASSAT André	Chimie systématique
	COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique	RENAUD Michel	Thermodynamique
	CONTANTIN Robert	Clinique gynécologique	REVOL Michel	Urologie
	COUDERC Pierre	Anatomie pathologique	RINALDI Renaud	Physique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale	DE ROUGEOMONT Jacques	Neuro-Chirurgie
MM	DEBELMAS Jacques	Géologie générale	SEIGNEURIN Raymond	Zoologie
	DEGRANGE Charles	Zoologie	SENGEL Philippe	Microbiologie et Hygiène
	DELONGAS Pierre	Pneumophtisiologie	SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT I)
MM	DEPORTES Charles	Chimie minérale	SOUTIF Michel	Physique générale
	DESRE Pierre	Métallurgie	TANCHE Maurice	Physiologie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée (IUT I)	MM. VAILLANT François	Zoologie
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
	DUCROS Pierre	Cristallographie	Mme VERAÏN Alice	Pharmacie galénique
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique	MM. VERAÏN André	Physique
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures	VEYRET Paul	Géographie
	GASTINEL Noël	Analyse numérique	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale

PROFESSEURS ASSOCIES

MM	CRABBE Pierre	CERMO	JOHNSON Thomas	Mathématiques appliquées
	DEMBICKI Eugénius	Mécanique	PENNEY Thomas	Physique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mlle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	ALARY Josette	Chimie analytique	JULLIEN Pierre	Mathématiques Appliquées
MM	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie	Mme KAHANE Josette	Physique
	ARMAND Gilbert	Géographie	MM. KRAJCIAC Sacha	Mathématiques Appliquées
	BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées	KUHN Gérard	Physique (IUT I)
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique	LIU DUC Cuong	Chimie organique
	BILLET Jean	Géographie	MAYNARD Roger	Physique du solide
	BOUCHET Yves	Anatomie	Mme MINIER Colette	Physique (IUT I)
	BRUGEL Lucien	Energétique (IUT I)	MM. PELMONT Jean	Biochimie
	BUISSON René	Physique (IUT I)	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Minéralogie
	BUTEL Jean	Orthopédie	PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
	COHEN ADDAD Pierre	Spectrométrie physique	Mlle PIERY Yvette	Physiologie animale
	COLOMB Maurice	Biochimie	MM RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
	CONTE René	Physique (IUT I)	REBEQ Jacques	Biologie (CUS)
	DELOBEL Claude	M.I.A.G.	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides	RICHARD Lucien	Biologie végétale
	FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures	Mme RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
	GAUTRON René	Chimie	MM. ROBERT André	Chimie papetière
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	GLENAT René	Chimie organique	SARROT-REYNAUD Jean	Géologie
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale	SIROT Louis	Chirurgie générale
	HACQUES Gérard	Calcul numérique	Mme SOUTIF Jeanne	Physique générale
	HOLLARD Daniel	Hématologie	MM. STEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive	TIALON Pierre	Géologie
	IDELMAN Simon	Physiologie animale	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM. ARMAND Yves	Chimie (IUT I)	JUNEN-LAVILLAVROY Claude	O. R. I.
BACHELOT Yvan	Endocrinologie	LOLOBIE Lucien	Hématologie
BARGE Michel	Neuro chirurgie	LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
BEGUIN Claude	Chimie organique	MACRE Régis	Physiologie végétale
Mme BERTHEL Hélène	Pharmacodynamie	MAGNIE Robert	Hygiène et médecine préventive
MM. BOST Michel	Pédiatrie	MALLON Jean-Michel	Médecine du travail
BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes	MM. MARECHAL Jean	Mécanique (IUT I)
Mme BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
MM. BRODEAU François	Mathématiques (IUT B) (Personne étrangère habilitée à être directeur de thèse)	MICHOULIER Jean	Physique (IUT I)
		MEGRE Robert	Mécanique (IUT I)
		NEMOZ Alsaia	Thermodynamique
		NOUSARET Marcel	Automatique (IUT I)
		PARAMELLE Bernard	Pneumologie
		PECCOUD François	Analyse (IUT B) (Personnalité étrangère habilitée à être directeur de thèse)
CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale	PEFFEN René	Métallurgie (IUT I)
CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse	PERRIER Guy	Géophysique-Glaciologie
CHARDON Michel	Géographie	PHILIP Xavier	Rhumatologie
CHERADAME Hervé	Chimie papetière	RACHAIL Michel	Médecine Interne
CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EPF)	RACINET Claude	Gynécologie et Obstétrique
COTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire	RAMBAUD André	Hygiène et Hydrologie (Pharmacie)
CORDONNIER Daniel	Néphrologie	RAMBAUD Pierre	Pédiatrie
COULOMB Max	Radiologie	RAPHAEL Bernard	Stomatologie
CROUZET Guy	Radiologie	RENAUDET Jacqueline	Bactériologie (Pharmacie)
CYROT Michel	Physique du solide	MM. ROBERT Jean-Bernard	Chimie Physique
DENIS Bernard	Cardiologie	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B) (Personnalité étrangère habilitée à être directeur de thèse)
DOUCE Roland	Physiologie végétale		
DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)	SCHAEZER René	Cancérologie
Mme ETERRADOSI Jacqueline	Physiologie	SHOM Jean-Claude	Chimie Générale
MM. FAURE Jacques	Médecine légale	STOEBNER Pierre	Anatomie Pathologie
FAURE Gilbert	Urologie	VROUSOS Constantia	Radiologie
GAUTIER Robert	Chirurgie générale		
GIDON Maurice	Géologie		
GROS Yves	Physique (IUT I)		
GUIGNIER Michel	Thérapeutique		
GUITTON Jacques	Chimie		
HICTER Pierre	Chimie		
JALBERT Pierre	Histologie		

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM. DEVINE Roderick	Spectro Physique
MODGES Christopher	Transition de Phases

Fait à SAINT MARTIN D'HERES, NOVEMBRE 1976

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

ANNEE 1976-1977

Président : M. Philippe TRAYNARD

Vice-Présidents : M. Pierre-Jean LAURENT
M. René FAUTHENET

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité	FELICI Noël	Electrostatique
BESSON Jean	Electrochimie	FOULARD Claude	Automatique
BLOCH Daniel	Physique du solide	LESPINARD Georges	Mécanique
BONNETAIN Lucien	Chimie minérale	MOREAU René	Mécanique
BONNIER Etienne	Electrochimie et Electrometallurgie	PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
BRISSONNEAU Pierre	Physique du solide	PAUTHENET René	Physique du solide
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique	PERRET René	Servomécanismes
COUMES André	Radioélectricité	POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
DURAND Francis	Métallurgie	VEILLON Gérard	Informatique fondamentale et appliquée

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BLIMAN Samuel	Electronique	LANCIA Roland	Electronique
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique	ROBERT François	Analyse numérique
COHEN Joseph	Electrotechnique	ZADWORYN François	Electronique
LACOURNE Jean-Louis	Géophysique		

MAITRES DE CONFERENCES

MM. ANCEAU François	Mathématiques Appliquées	LESIEUR Marcel	Mécanique
CHARTIER Germain	Electronique	MORET Roger	Electrotechnique Nucléaire
GUYOT Pierre	Chimie Minérale	PIAU Jean-Michel	Mécanique
IVANES Marcel	Electrotechnique	PIERRARD Jean-Marie	Mécanique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du solide	SABONNIARDIERE Jean-Claude	Informatique Fondamentale et Appliquée
		Mme. SAUCIER Gabrièle	Informatique Fondamentale et Appliquée

CHERCHEURS DU C.N.R.S. (Directeur et Maîtres de Recherche).

M. FRUCHART Robert	Directeur de Recherche	LANDAU Ioan Doré	Maître de Recherche
MM. ANGARA Ibrahim	Maître de Recherche	MATHIEU Jean-Claude	Maître de Recherche
CARRE René	Maître de Recherche	MUNIER Jacques	Maître de Recherche
DRIOLE Jean	Maître de Recherche		

Il y a plus de choses sur la terre et dans le ciel,
Horatio, que vous n'en imaginez dans votre
philosophie.

"Hamlet" (Acte I, scène 5)

Shakespeare

Ce travail a été effectué, pour sa partie essentielle, à l'Institut Laue-Langevin où j'étais boursier. C'est dans le cadre du Laboratoire Louis Néel, où j'ai été accueilli lors de mon entrée au C.N.R.S., que la phase finale de ce travail a été réalisée. Je remercie Monsieur J.C. Barbier, Directeur de ce Laboratoire d'avoir accepté de présider ce jury, soulignant ainsi l'intérêt qu'il a bien voulu porter à cette étude.

Je remercie Monsieur B. Dreyfus, alors Directeur de l'Institut Laue-Langevin, de l'appui qu'il a toujours su m'accorder, et de l'intérêt qu'il montre pour ce travail en acceptant de faire partie de ce jury.

Monsieur F. Gautier, Professeur à l'Université de Strasbourg, m'a proposé ce sujet. Tout au long de cette étude il m'a apporté critiques et encouragements. Son aide efficace, lors de la rédaction du manuscrit, m'a été précieuse. Je l'en remercie.

Micheline Nauciel-Bloch et Jacques Villain, dont l'amitié et le soutien ne m'ont jamais fait défaut, ont accepté de faire partie de ce jury. Qu'il me soit permis ici de les remercier.

Cette thèse est le résultat d'une collaboration étroite avec Bernard Hennion. Que cet ami trouve ici l'expression de ma profonde gratitude pour m'avoir fait profiter de sa compétence.

L'ensemble du Laboratoire Louis Néel et particulièrement Remy Lemaire m'a accueilli avec générosité et amitié. Cette atmosphère de sympathie a été favorable à la phase finale de ce travail.

Je remercie Gislaine Menéroud dont la compétence et l'amitié ont permis - malgré ma lenteur - de transformer rapidement le manuscrit original en un mémoire dactylographié.

Madame Trévisson s'est chargée de l'édition de cet ouvrage avec diligence et beaucoup de gentillesse. C'est également avec plaisir que je la remercie.

Enfin, je ne voudrais pas oublier le soutien moral qu'a été pour moi la présence de Christine et Juliette. C'est aussi à elles que je dois ce travail.

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I : ONDES DE SPIN DANS LES ANTIFERROMAGNETIQUES ET</u> <u>FERROMAGNETIQUES ITINERANTS</u>	3
<u>Ondes de spin dans les ferromagnétiques itinérants</u>	
A - Résultats expérimentaux	5
1 - Fer	5
2 - Nickel	8
3 - Cobalt	11
B - Interprétation	11
<u>Ondes de spin dans les antiferromagnétiques itinérants</u>	
A - Résultats expérimentaux	16
1 - le chrome	16
2 - Manganèse γ	17
B - Interprétation	17
<u>Propriétés physiques de FeRh</u>	
A - Introduction	20
B - Propriétés physiques	20

<u>CHAPITRE II : LA DIFFUSION INELASTIQUES DES NEUTRONS :</u>	
<u>TECHNIQUE DU "TROIS AXES"</u>	27
A - Rappel théorique sur la diffusion inélastique des neutrons	28
1 - Section efficace de diffusion inélastiques dans les métaux	28
2 - Principe du spectromètre	34
3 - Réalisation	34
4 - Description de l'appareillage	35
B - Méthode de mesure	37
1 - Méthode à " \vec{k} constant"	37
2 - Méthode à " ω constant"	40
C - Problèmes associés à la mesure	40
1 - Combinaison d'harmoniques	40
2 - Bruit de fond	42
D - La fonction de résolution	45
1 - Introduction	45
2 - Méthode de calcul de $R(\vec{k}, \omega)$	46
3 - Intensité détectée	48
4 - Conditions de focalisation	51
5 - Influences de la mosaïque de l'échantillon	55
<u>CHAPITRE III : ETUDE EXPERIMENTALE DU COMPOSE EQUIATOMIQUE FeRh</u>	
A - Généralités et dispositifs expérimentaux	57
1 - Réseau réciproque	58
2 - Réalisation expérimentale	58
3 - Zones de travail	62
4 - Temps de comptage	62
5 - Dispositifs expérimentaux	62
B - Echantillon	69
1 - Préparation de l'échantillon	69
2 - Température de transition	69
3 - Rôle des inhomogénéités dans les mesures	73

	Pages
C - Résultats expérimentaux	74
1 - Phase antiferromagnétique	75
2 - Etude de la transition	78
3 - Phase ferromagnétique mesurée à 470 K	80
4 - Etude de la phase ferromagnétique en fonction de la température	88
5 - Intensité et forme du groupe de neutrons diffusés	89
<u>CHAPITRE IV : MODELES PERMETTANT DE RENDRE COMPTE DES COURBES DE</u>	
<u>DISPERSION DE PHONONS ET DES COURBES DE DISPERSION</u>	
<u>DE MAGNONS</u>	95
A - Modèle d'ions rigides pour FeRh	95
1 - Introduction	95
2 - Modèle de forces	96
3 - Calcul de D	99
B - Modèle d'Heisenberg pour FeRh	103
1 - Introduction	103
2 - Phase ferromagnétique	103
3 - Phase antiferromagnétique	111
<u>CONCLUSION</u>	115
<u>APPENDICE 1</u>	117
<u>APPENDICE 2</u>	123
<u>APPENDICE 3</u>	131
<u>APPENDICE 4</u>	135
<u>REFERENCES</u>	143

I N T R O D U C T I O N

Nous nous proposons dans ce travail d'étudier le spectre d'ondes de spin en fonction de la température dans le composé défini FeRh. Cet alliage métallique outre sa structure nucléaire simple présente au voisinage de la température ambiante une transition du premier ordre entre une phase antiferromagnétique et une phase ferromagnétique. Nous nous sommes d'abord attachés à la détermination des spectres d'ondes de spin dans les phases antiferromagnétique et ferromagnétique puis à la modification de ces spectres au passage de la transition. L'étude dans ces spectres d'ondes de spin des excitations élémentaires à haute énergie nécessite un spectromètre à "trois axes" utilisant les neutrons sortant d'une source chaude (l'énergie des neutrons incidents est comprise entre 400 meV et 30 meV). La construction du spectromètre IN1 à l'Institut Laue-Langevin, réalisé avec D. Tochetti et B. Hennion a permis cette étude.

Dans un premier chapitre, nous faisons un rappel des résultats obtenus tant du point de vue théorique qu'expérimental à propos des ondes de spin dans les antiferromagnétiques et ferromagnétiques itinérants, puis un résumé des propriétés de FeRh permet de souligner l'intérêt de l'étude des ondes de spin dans ce composé.

Dans le deuxième chapitre, après un bref rappel sur la section efficace de diffusion inélastique des neutrons dans un métal, nous exposons le principe et la réalisation d'un spectromètre à trois axes. Puis nous calculons la fonction de résolution d'un tel appareil et en expliquons l'utilisation lors des expériences.

Le troisième chapitre expose les réalisations expérimentales nécessaires à l'étude des ondes de spin dans FeRh. Puis les résultats expérimentaux obtenus sont décrits et discutés. Le passage de la transition est examiné de façon détaillée et plusieurs hypothèses sont envisagées et discutées.

Le quatrième chapitre se divise en deux parties. La première est consacrée à l'exposé du modèle qui permet de rendre compte des courbes de dispersion de phonons observées. Dans la deuxième partie, nous montrons qu'il est possible de paramétrer les courbes obtenues en utilisant un modèle d'Heisenberg.

CHAPITRE I

ONDES DE SPIN DANS LES ANTIFERROMAGNÉTIQUES ET FERROMAGNÉTIQUES ITINÉRANTS

Depuis une quarantaine d'années, le ferromagnétisme itinérant est un sujet qui a suscité un grand intérêt. Malgré les progrès enregistrés du point de vue théorique nous ne pouvons à l'heure actuelle donner une description complète et satisfaisante du magnétisme itinérant.

Les propriétés particulières des métaux de transition sont liées à l'existence de couches nd ($n = 3, 4, 5$) se remplissant peu à peu lorsque le numéro atomique croît. Un modèle simple de structure de bandes permet de rendre compte qualitativement des propriétés physiques telles que chaleur spécifique, résistivité électrique, etc. . Pour rendre compte du fait que certains métaux sont dans un état ferromagnétique ou antiferromagnétique, il est nécessaire d'étendre le modèle de structure de bande précédent. On utilise alors le modèle de Mott-Slater*. Quantitativement pour $T = 0$ K les calculs de structure de bandes type Hartree-Fock-Slater permettent de prévoir les propriétés de l'état de base et d'interpréter les propriétés physiques des métaux magnétiques (nickel par exemple) qui ne font pas intervenir d'excitations avec renversement de spin. Cependant, l'interprétation de propriétés magnétiques telles que la variation de l'aimantation avec la température, la section efficace de diffusion, a nécessité l'introduction de la méthode de la phase aléatoire (RPA) qui prévoit l'existence d'excitations collectives (ondes de spin) et non plus seulement d'excitations individuelles (paires électron-trou). Ces méthodes ont été utilisées - avec des approximations supplémentaires nécessaires pour surmonter les difficultés numériques - pour calculer entre autres la constante de rigidité D des

* (WAK 65, WAK 64, YAM 63)

ondes de spin, la susceptibilité magnétique dynamique $\chi(\vec{q}, \omega)$, etc... Lorsque la température croît, les prédictions qualitatives de ces modèles (HF, RPA) ne sont plus en accord avec l'expérience et il faut utiliser une méthode tenant compte de façon plus correcte des corrélations électron-électron : la plus simple est la méthode de la phase aléatoire renormalisée (MOR 73).

Cependant, d'un point de vue théorique, la validité de tels modèles reste à prouver et le problème du magnétisme itinérant dans les métaux de transition reste largement incompris. De plus, d'un point de vue expérimental, les données physiques sur les excitations des ferromagnétiques en dessous et au-dessus de la température de Curie sont relativement rares ; quant aux données sur les antiferromagnétiques, elles sont pratiquement inexistantes. Il est donc très difficile dans l'état actuel de faire une comparaison détaillée entre données expérimentales et théoriques et donc de déterminer le domaine de validité des modèles théoriques. C'est pourquoi d'un point de vue général, il apparaît nécessaire de poursuivre les études expérimentales dans ce domaine difficile. Pour notre part, nous nous proposons d'étudier les excitations magnétiques dans le composé FeRh. Celui-ci est intéressant à plus d'un titre : il présente en particulier au voisinage de la température ambiante une transition du premier ordre entre une phase antiferromagnétique et une phase ferromagnétique, permettant ainsi une étude des spectres d'ondes de spin dans les deux phases.

Afin de clarifier la situation expérimentale et théorique, nous rappelons successivement pour les ferromagnétiques puis les antiferromagnétiques de bandes les principaux résultats expérimentaux obtenus. Nous décrivons alors les interprétations de ces résultats en explicitant les hypothèses de calcul qui ont été faites dans l'approximation de la phase aléatoire (RPA) pour évoquer ensuite les limites de ces calculs. Enfin, nous résumerons les propriétés physiques du composé FeRh en montrant les liens existant entre celui-ci et les métaux précédemment décrits.

ONDES DE SPINS DANS LES FERROMAGNETIQUES ITINERANTS

Nous nous limitons dans ce paragraphe à une revue des principaux résultats concernant les ondes de spin dans le fer, le nickel et le cobalt.

A - RESULTATS EXPERIMENTAUX

1 - Fer (cubique centré)

Le fer a été le premier ferromagnétique de bandes qui a été étudié. Les premières études datent de 1954 (LOW 54) et 1960 (LOW 60) mais elles se limitaient aux petits vecteurs d'onde q . Des travaux ultérieurs sur le FeSi (4 % de silicium) par Shirane (SHI 65) et Pickart (PIC 67) puis sur le fer pur par Collins et al (COL 69) et Mook et Nicklow (MOO 73a) ont permis d'établir les résultats suivants :

a - Courbes de dispersion

La courbe de dispersion est isotrope dans les trois directions de symétrie et augmente d'une manière presque quadratique selon la relation $\hbar\omega = Dq^2$, avec $D = 280 \text{ meV} \cdot \text{Å}^2$ (cf. fig. I.1).

b - Intensité et spectre de Stoner

L'intensité des ondes de spin diminue lentement jusqu'aux environs de 90 meV puis décroît brusquement (cf. fig. I-2). Cette chute soudaine d'intensité a été interprétée comme l'intersection de la courbe de dispersion avec le spectre d'excitations individuelles dit "de Stoner".

c - Variation du spectre d'ondes de spin avec la température

L'étude du spectre de dispersion en fonction de la température a été faite par Collins et al (COL 69). Ils ont montré que D décroît lorsque la température augmente suivant une loi $(1 - \frac{T_c}{T})^{0,37}$ et en conséquence D tend vers zéro quand T tend vers T_c (cf. fig. I-3).

d - Persistance des ondes de spin pour $T > T_c$

Des mesures à haute énergie ont montré la persistance d'excitations bien définies avec une courbe de dispersion dans la phase paramagnétique voisine de celle qui est observée dans la phase ferromagnétique. Ces résultats ne peuvent être expliqués qualitativement par une théorie de type RPA (COL 69).

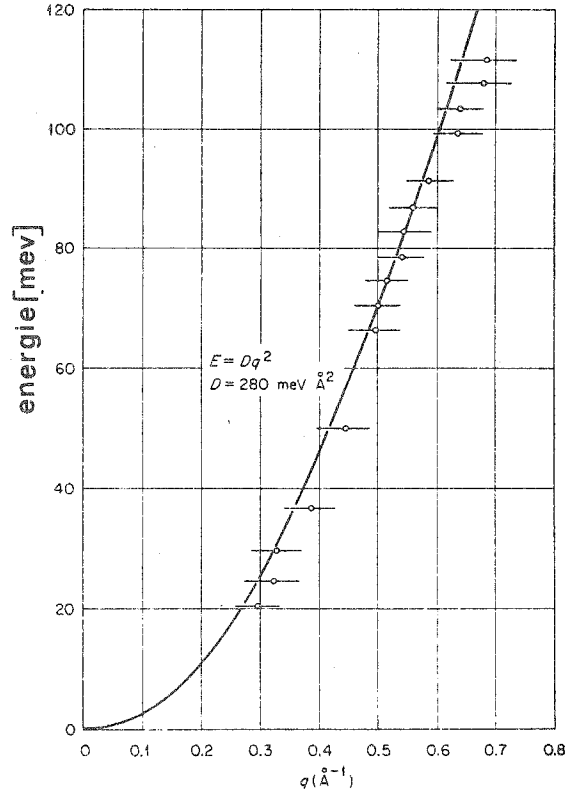


Figure I-1 : Spectre d'ondes de spin du fer dans la direction $[110]$; la courbe représente la relation $\hbar\omega = Dq^2$ avec $D = 280 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$ (MOO 73a).

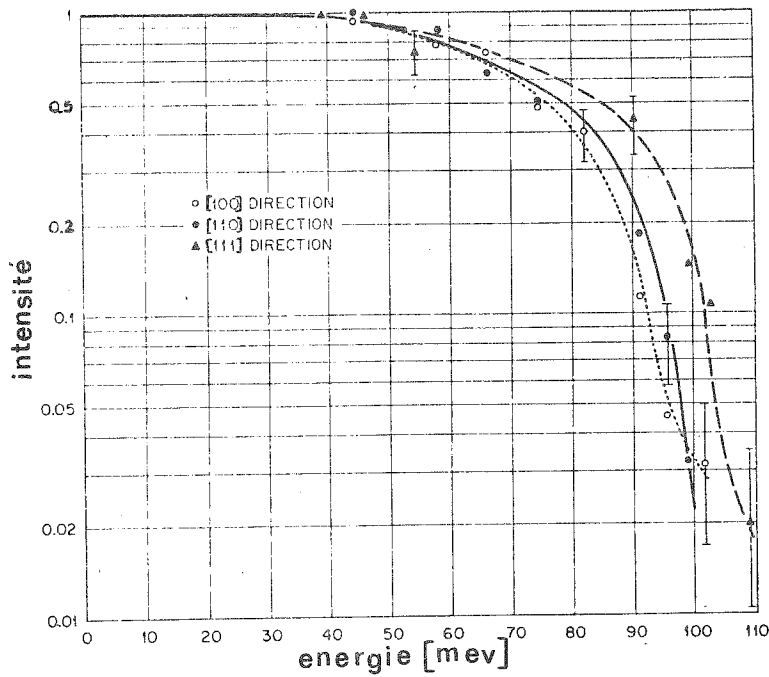


Figure I-2 : Intensités en fonction de l'énergie des ondes de spin dans le fer (avec 4 % de silicium) (MOO 73a).

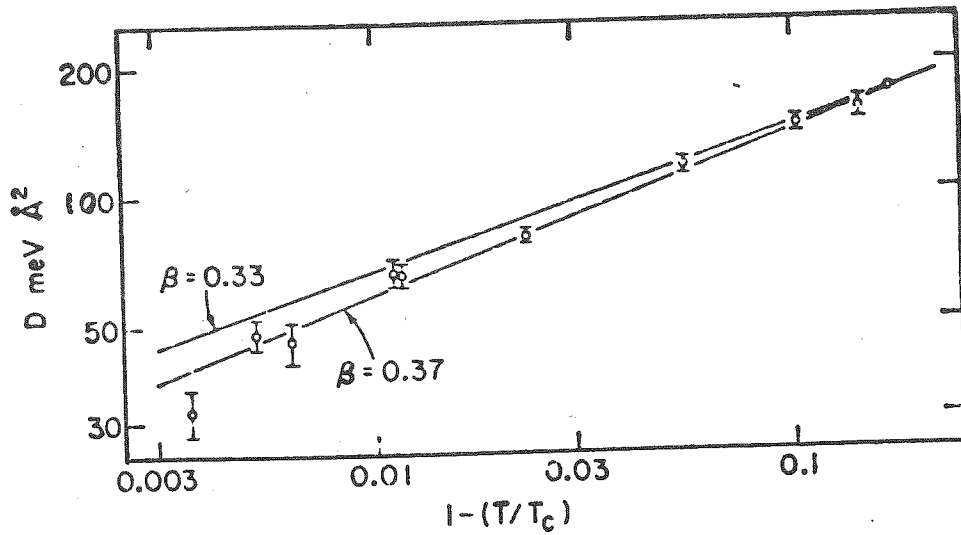


Figure I-3 : D en fonction de $1 - T/T_c$ sur une échelle Log - Log. La droite montre que D tend vers 0 quand T tend vers T_c (COL 69).

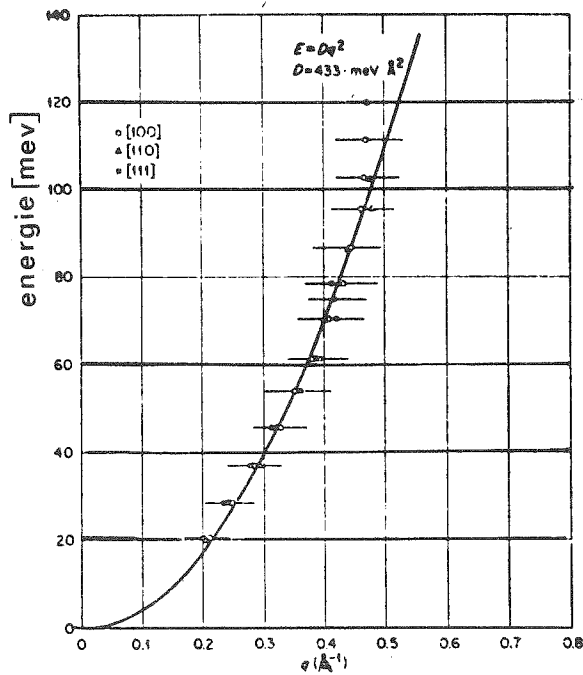


Figure 1-4 : Spectre d'ondes de spin du nickel (MOO 69).

e - Enfin, les mesures citées précédemment montrent que la variation de la position du point d'intersection de la courbe de dispersion avec le spectre de Stoner est indépendante de la température.

2 - Nickel (cubique à faces centrées)

On montre sur la figure I-4 les résultats obtenus sur le nickel par différents auteurs (MOO 69, MIN 69, FRI 71, RIS 64).

a - Courbe de dispersion

La courbe de dispersion montre pour un vecteur de diffusion $q > 0,2$ une légère différence suivant la direction de symétrie considérée. La valeur de D à la température ambiante a été déterminée comme étant de $400 \text{ meV } \text{Å}^2$.

b - Intensité et spectre de Stoner

Mook et Nicklow ont constaté une décroissance brusque de l'intensité des ondes de spin diffusées à partir d'une énergie dont la valeur dépend de la direction de symétrie (100 meV pour la direction [100]). Ceci a été interprété ici encore par l'intersection de la courbe de dispersion des ondes de spin avec le spectre de Stoner.

c - Variation du spectre d'ondes de spin avec la température

Les mêmes auteurs (MOO 73b) ont montré que lorsque la température augmente, D décroît depuis une valeur de $555 \text{ meV } \text{Å}^2$ à une température de $4,2 \text{ K}$ jusqu'à une valeur de $280 \text{ meV } \text{Å}^2$ à la température critique. Ceci est en opposition avec les résultats de Minkiewicz et al (MIN 69) qui ont déterminé que D décroissait jusqu'à la valeur zéro suivant une loi en $(1 - \frac{T}{T_c})^{0,39}$ lorsque T approche de T_c (résultat similaire à ceux observés dans le fer). Cette différence de résultats provient sans doute de ce que les premiers ont déterminé D à partir de groupes de neutrons dont la position en q_{1u} est supérieure à $0,12$ alors que Minkiewicz et al ont utilisé des groupes dont la position en q_{1u} est inférieure à $0,10$. Ceci illustre la difficulté de telles mesures.

d - Persistance des ondes de spin pour $T > T_c$

Comme dans le cas du fer, les courbes de dispersion d'ondes de spin ont été observées dans la phase paramagnétique (cf. figure I-5) (MIN 69, MOO 69).

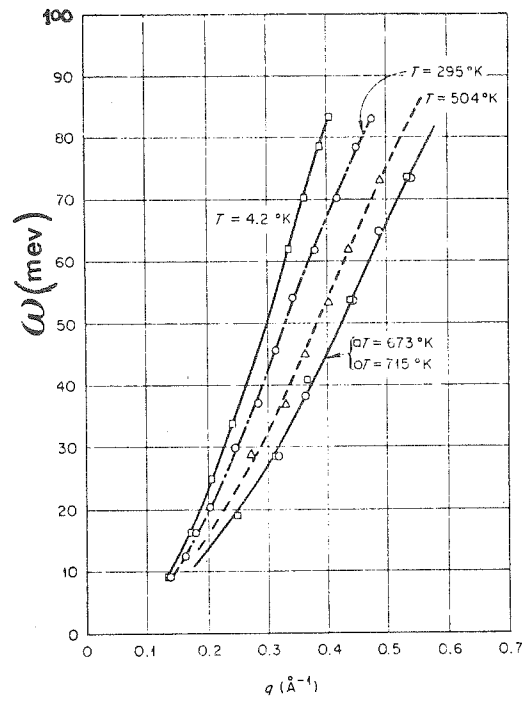


Figure I-5 : Spectre d'ondes de spin du nickel en fonction de la température (MOO 73b).

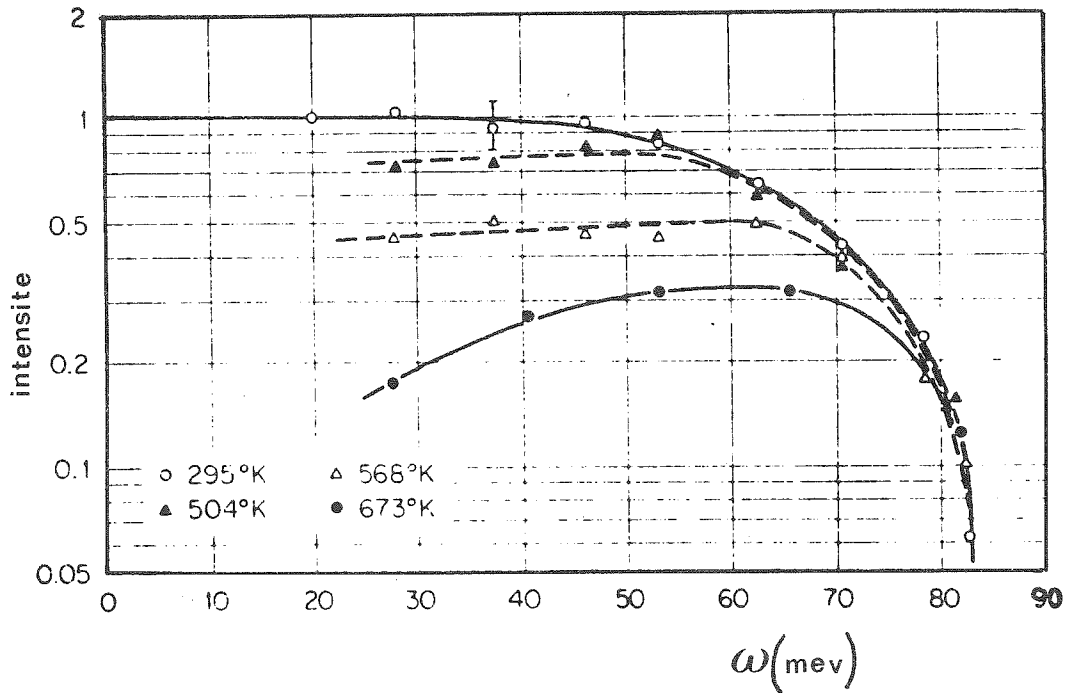


Figure I-6 : Intensité en fonction de l'énergie des ondes de spin dans le nickel dans la direction $|111|$ et à différentes températures (MOO 73b).

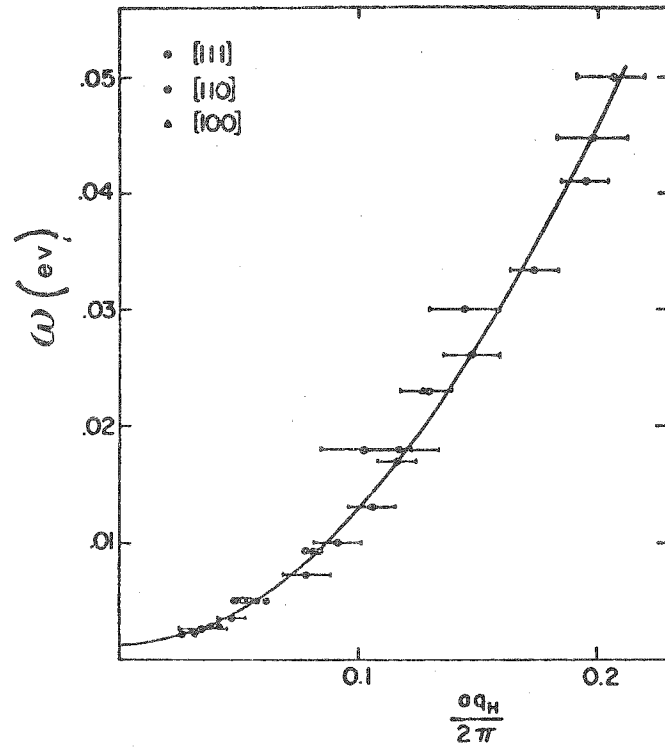


Figure I-7 : Courbe de dispersion des ondes de spin dans le cobalt (SIN 60).

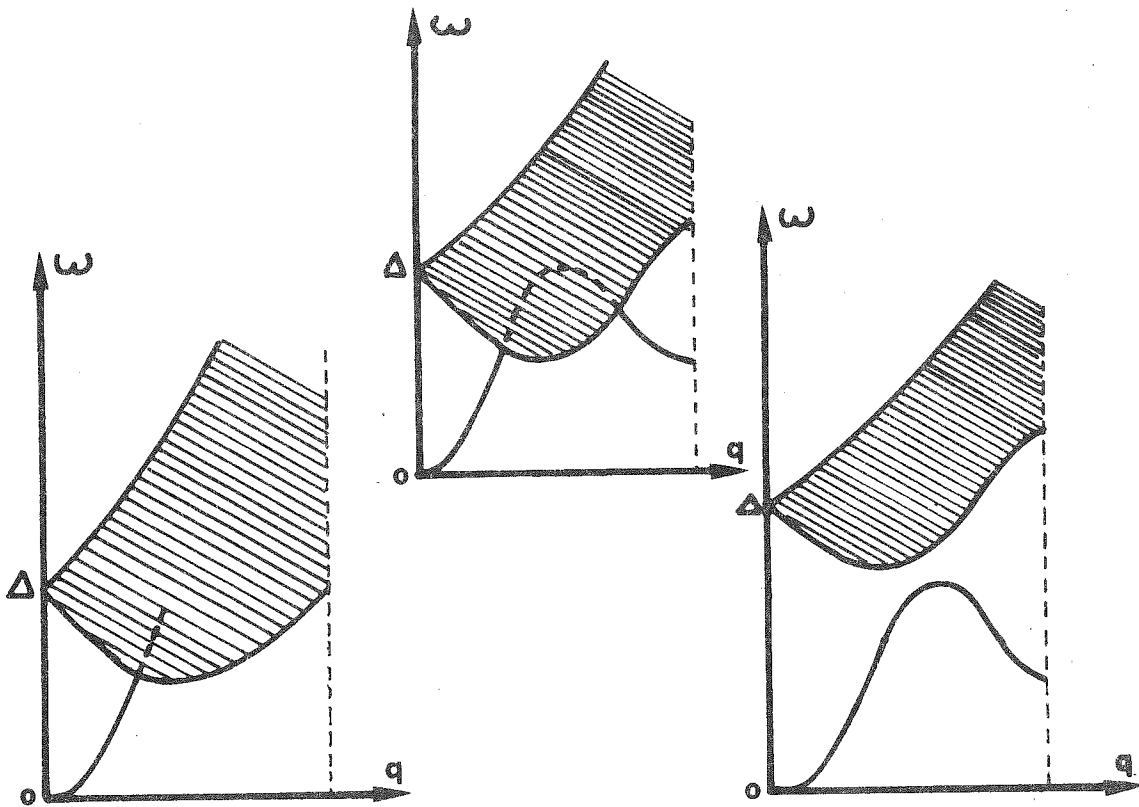


Figure I-8 : Différents tracés possibles du spectre d'excitations collectives par rapport au spectre d'excitations individuelles.

e - Ici encore, l'étude en température a montré que le point d'intersection du spectre collectif avec le spectre de Stoner ne varie pas avec la température (figure I-6).

3 - Cobalt (hexagonal compact)

La figure I-7 montre les résultats obtenus pour le cobalt par Sinclair et al (SIN 60).

Courbe de dispersion

Les courbes de dispersion sont isotropes dans les trois directions mesurées. La valeur de D à la température ambiante est de $371 \text{ meV } \text{Å}^2$. Pickart et al (PIC 67), en utilisant la diffusion inélastique des neutrons polarisés, ont montré que la courbe de dispersion d'ondes de spin quand q est petit pouvait se mettre sous la forme $\hbar\omega = Dq^2(1 - \beta q^2)$ dans laquelle $D = 384 \text{ meV } \text{Å}^2$ et $\beta = 3,1 \text{ Å}^2$. Ce qui est en bon accord avec les mesures de Sinclair et al. Malgré une structure très différente le CoFe a une courbe de dispersion presque identique.

A notre connaissance, il n'existe actuellement aucune analyse d'intensité des ondes de spin diffusées ni aucune étude en fonction de la température.

B - INTERPRETATION

Dans un modèle de Hartree-Fock (Stoner), un ferromagnétique itinérant est caractérisé par un spectre d'excitations individuelles électron-trou avec des renversements de spin dont le vecteur d'onde \vec{q} et l'énergie $\omega_{\vec{k}\vec{q}}$ sont reliés aux énergies de Hartree-Fock $\epsilon_{\vec{k}\sigma}$ par la relation :

$$\hbar\omega_{\vec{k}\vec{q}} = \epsilon_{\vec{k}+\vec{q}\downarrow} - \epsilon_{\vec{k}\uparrow}$$

Le spectre correspondant est représenté sur la figure I-8. C'est en 1963 que Izuyama, Kim et Kubo (IZU 63) ont montré qu'il était possible d'obtenir conjointement au spectre de Stoner un spectre d'excitations collectives (ondes de spin) en utilisant l'approximation de la phase aléatoire (RPA).

La méthode RPA est équivalente à la méthode de champ moléculaire : le champ effectif auquel sont soumis les électrons au point \vec{r} est égal à la somme du champ extérieur H_0 et du champ moléculaire dû aux interactions :

$$H(\vec{r}) = H_0 + H_n(\vec{r})$$

ce dernier étant proportionnel à l'aimantation $m(\vec{r})$ au point \vec{r} . Ce calcul a été fait en représentant la structure de bandes des électrons de conduction par une bande unique traitée dans l'approximation des liaisons fortes. Cette bande est alors issue d'orbitales 's' non dégénérées $\phi(\vec{r} - \lambda)$ centrées sur chaque site λ . Comme nous le montrons plus loin (cf. II-A1), le spectre d'ondes de spin est obtenu en cherchant les poles de la susceptibilité généralisée $\chi(\vec{q}, \omega)$. Celle-ci s'écrit :

$$\chi(\vec{q}, \omega) = \frac{\chi^0(\vec{q}, \omega)}{1 - v(\vec{q}) \chi^0(\vec{q}, \omega)}$$

dans laquelle $v(\vec{q})$ contient les interactions entre électrons et $\chi^0(\vec{q}, \omega)$ est la transformée de Fourier de la susceptibilité sans interaction :

$$\chi^0(\vec{q}, \omega) = \sum_{\lambda} \chi_{\lambda\mu}^0(\omega) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{\lambda}}$$

et

$$\chi_{\lambda\mu}^0(\omega) = \sum_{\vec{n}\vec{k}\sigma, \vec{n}'\vec{k}'\sigma'} \frac{f_{\vec{n}\vec{k}\sigma} - f_{\vec{n}'\vec{k}'\sigma'}}{\omega - \epsilon_{\vec{n}'\vec{k}'\sigma'} - \epsilon_{\vec{n}\vec{k}\sigma}} \langle \phi_{\vec{n}\vec{k}\sigma} | S_{\lambda}^{+} | \phi_{\vec{n}'\vec{k}'\sigma'} \rangle \langle \phi_{\vec{n}'\vec{k}'\sigma'} | S_{\mu}^{-} | \phi_{\vec{n}\vec{k}\sigma} \rangle$$

$f_{\vec{n}\vec{k}\sigma}$ est la distribution de Fermi-Dirac pour un état $\vec{k}\sigma$

n est l'indice de bandes

λ et μ sont des indices de sites

$\phi_{\vec{k}}$ sont les fonctions d'onde des électrons dans l'état \vec{k}

Si on néglige les interactions électron-électron interatomiques $v(\vec{q}) = U$, où U est l'intégrale de Coulomb intra-atomique :

$$U = \int \frac{\phi^2(\vec{r}) e^2 \phi^2(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r} d\vec{r}'$$

\mathcal{H} dépend des énergies Hartree-Fock $\epsilon_{\vec{k}\sigma}^{\uparrow}$ via χ^0 et de l'intégrale de Coulomb U .

La figure I-8 montre plusieurs tracés possibles des excitations élémentaire suivant la position relative du spectre de Stoner et des ondes de spin. On voit qu'il peut y avoir :

- disparition du spectre d'excitations collectives dans le continuum d'excitations individuelles ainsi qu'il l'a été constaté dans le nickel et dans le fer,
- disparition puis réapparition du spectre d'excitations collectives dans le spectre d'excitations individuelles (continuum),
- aucune interaction entre le spectre collectif et le continuum de Stoner.

On peut étendre ce calcul au cas plus réaliste d'une structure de bandes "d". Dans ce cas, les fonctions d'onde sont des combinaisons linéaires des orbitales $d \phi_m(r - \lambda)$ (avec $m = 1, 5$) centrées sur les sites du réseau. Le calcul du spectre d'ondes de spin se fait à partir du calcul de la susceptibilité généralisée obtenue dans l'approximation de la phase aléatoire (ou de champ moléculaire). Celle-ci dépend d'une part des énergies $\epsilon_{k\sigma}^{(n)}$ (n est l'indice de bandes) des fonctions d'onde Hartree-Fock, et d'autre part des éléments de matrice de l'interaction de Coulomb entre fonctions d'onde d centrées sur les différents sites. On se borne en général à considérer les intégrales de Coulomb et d'échange intra-atomiques :

$$U^{mm'} = \int \frac{\phi_m^2(\vec{r}) e^2 \phi_m^2(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r} d\vec{r}'$$

$$J^{mm'} = \int \frac{\phi_m^*(\vec{r}) \phi_m(\vec{r}') e^2 \phi_m(\vec{r}) \phi_m^*(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r} d\vec{r}'$$

et on néglige les interactions interatomiques. Ce calcul est complexe mais possible. Il a été réalisé dans son ensemble pour le nickel par plusieurs auteurs (LOW 70, COO 72) avec en général - et pour des raisons de complexité numérique - quelques hypothèses simplificatrices non essentielles. Il y a cependant quelques limites à la validité du calcul précédent :

- en principe, les interactions interatomiques devraient être prises en comptes,
- les corrélations entre électrons modifient considérablement les intégrales de Coulomb et d'échange ; ces effets sont difficilement calculables de sorte que U et J dans les calculs numériques sont traités comme des paramètres.

Il faut remarquer que le coefficient de rigidité des ondes de spins $D = \lim_{q \rightarrow 0} \frac{\omega}{q^2}$ peut être calculé directement à partir de la structure de bandes.

A titre d'exemple, nous montrons sur la figure I-9 les résultats obtenus pour le nickel et le fer (COO 72 et COO 76). Ces calculs dépendent des intégrales U_{mm} et J_{mm} , qui sont traitées comme des paramètres ainsi que nous le signalons plus haut. La méthode utilisée est une méthode de champ moléculaire valable à $T = 0$ K mais inapte à la description de phénomènes à température plus élevée et en particulier au-dessus de T_c . Moriya et Kawabata (MOR 73) ont développé une théorie modifiée de RPA, où pour calculer la susceptibilité généralisée, ils utilisent l'expression modifiée suivante :

$$\chi(\vec{q}, \omega) = \frac{\chi_0(\vec{q}, \omega)}{1 - v(\vec{q})\chi_0(\vec{q}, \omega) + \lambda}$$

et ils ajustent λ de manière self-consistante en négligeant sa dépendance en q et ω . Cette renormalisation leur a permis d'étudier les variations en température de la susceptibilité et de montrer ainsi que l'existence d'ondes de spins au-dessus de la température critique était possible (MOR 76).

En résumé, d'un point de vue expérimental, les courbes de dispersion dans le fer, le nickel et le cobalt présentent une croissance parabolique que l'on peut décrire analytiquement par une équation du type $\omega = Dq^2$. Dans le fer et le nickel, on a constaté une diminution brusque d'intensité pour un vecteur d'onde q_c et une énergie ω_c qui dépend de la direction de symétrie considérée. Celle-ci est attribuée à la pénétration du spectre d'ondes de spin dans le spectre de Stoner. Lors d'une élévation de la température, la constante D décroît alors que q_c et ω_c ne varient pas. Enfin au-dessus de T_c il y a persistance du spectre d'ondes de spin.

D'un point de vue théorique, le calcul du spectre d'ondes de spin complet dans l'approximation RPA, bien que difficile, est possible moyennant certaines approximations :

- négliger les interactions interatomiques,
- considérer U et J comme des paramètres.

Il ne permet cependant pas d'expliquer les variations du spectre avec la température.

Remarquons que la différence fondamentale existant entre les courbes de dispersion dans les métaux et les courbes de dispersion dans les isolants est la diminution brusque d'intensité pour $q > q_c$ attribuée à l'interaction avec le continuum de Stoner.

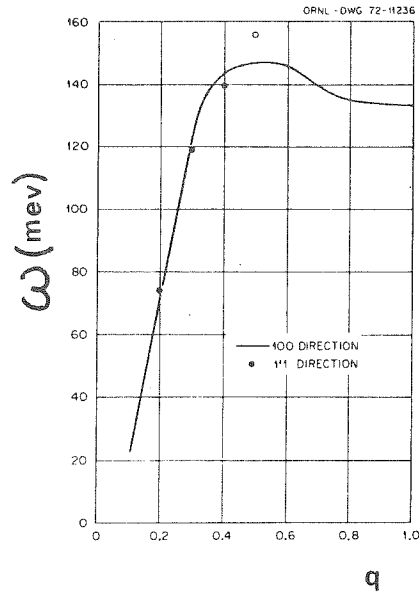
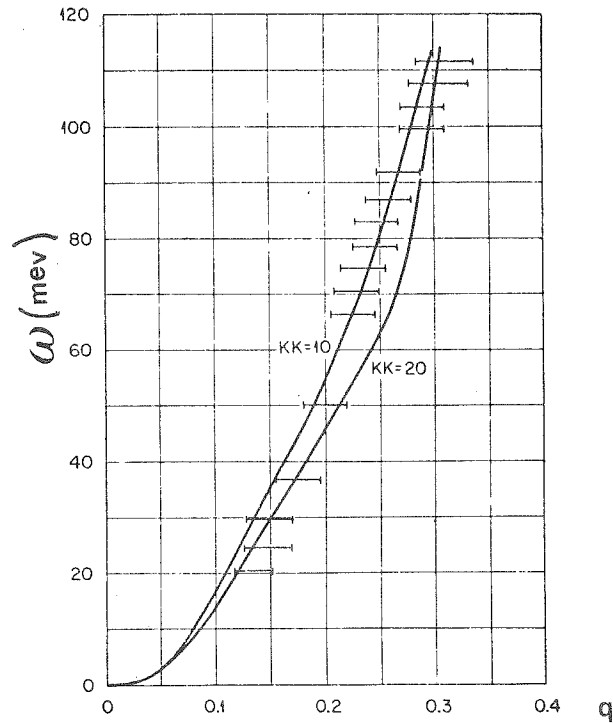


Figure I-9 : a) Courbe de dispersion d'ondes de spin calculée dans le nickel (COO 72).



b) Courbe de dispersion d'ondes de spins calculée dans le fer. Les barres représentent les résultats expérimentaux de Mook et Nicklow (MOO 73) les deux tracés représentent les meilleurs calculs (COO 76).

ONDES DE SPINS DANS LES ANTIFERROMAGNETIQUES ITINERANTS

A l'heure actuelle les études sur les antiferromagnétiques itinérants sont assez peu nombreuses, et seuls le chrome et le manganèse γ ont donné lieu à des études aussi bien théoriques qu'expérimentales. Nous allons décrire brièvement les résultats expérimentaux obtenus pour ensuite parler des études théoriques que ces résultats ont suscités.

A - RESULTATS EXPERIMENTAUX

1 - Le chrome (cubique centré)

Pour obtenir une structure antiferromagnétique simple, il est nécessaire d'utiliser un échantillon de chrome-manganèse (1,6 à 5 % de manganèse) au lieu de chrome pur. La très grande pente de la courbe de dispersion conjointement à un moment magnétique par atome très petit rendent les expériences difficiles.

a - Courbes de dispersion

La courbe de dispersion d'un antiferromagnétique est linéaire lorsque q est petit et s'écrit analytiquement $\hbar\omega = Cq$. Sinha et al, les premiers, ont mesuré la pente C de la courbe de dispersion (MUH 69) et ont trouvé une valeur de 220 meV.Å. Als-Nielsen et Dietrich déterminèrent une valeur de 450 meV.Å (ALS 69), tandis que les premiers cités publiaient quelques mois plus tard une valeur de 845 meV.Å (SIN 69). Als-Nielsen et al après de nouvelles expériences déterminèrent une nouvelle valeur de 1020 meV.Å (ALS 71). Différentes méthodes ont été utilisées pour la détermination de C ce qui pourrait expliquer les différences entre les valeurs données.

b - Intensité et spectre de Stoner

Seule une petite partie de la courbe de dispersion a pu être étudiée. On ne peut donc tirer aucune conclusion à propos de l'interaction avec le spectre de Stoner.

c - Variation du spectre d'ondes de spin avec la température

Les auteurs cités précédemment ont constaté que C décroissait d'une manière linéaire quand T approchait de T_c .

d - Persistance des ondes de spin au-dessus de T_c

La courbe de dispersion d'ondes de spin a été suivie bien au-dessus de T_c ($1,52 T_c$) par plusieurs auteurs (SIN 69 et ALS 69). Dans la phase paramagnétique la valeur de C est indépendante de la température et est de 100 meV.Å. Cependant dans l'ensemble de ces mesures, la résolution est mauvaise et d'autres expériences semblent nécessaires.

2 - Manganèse γ (cubique faces centrées)

B. Hennion et al (HEN 76) ont étudié la diffusion inélastique des neutrons dans un cristal désordonné de $Mn_{73}Ni_{27}$.

a - Courbe de dispersion

Ils ont obtenu une courbe de dispersion (cf. figure I-10) présentant en $q = 0$ un écart en énergie de 3 meV dû à l'anisotropie. Malgré la largeur assez importante des groupes de neutrons diffusés ils ont pu déterminer la constante C comme étant de 201 ± 3 meV.Å (à une énergie de 70 meV la largeur du groupe de neutrons couvre toute la zone de Brillouin !).

b - Intensité et spectre de Stoner

La largeur inusitée observée sur les groupes est due sans aucun doute à une interaction avec le spectre de Stoner.

A notre connaissance aucune étude en fonction de la température n'a été entreprise.

B - INTERPRETATION

L'ensemble des considérations développées lors de l'interprétation des courbes de dispersion des ferromagnétiques est applicable au cas des antiferromagnétiques ; cependant, le calcul en est un peu plus complexe. Dans le cas d'un ferromagnétique, \vec{k} est un bon nombre quantique et le calcul de la susceptibilité est simple ; dans le cas d'un antiferromagnétique, la symétrie de translation est réduite et chaque état électronique est une combinaison des états \vec{k} et $\vec{k} + \vec{Q}$, où \vec{Q} est le vecteur d'onde de la densité de spin ($m(\vec{r}) \propto \cos \vec{Q} \cdot \vec{r}$ aimantation au point \vec{r}). La dimension de la matrice susceptibilité qui détermine les ondes de spins est donc multipliée par deux par rapport au cas ferromagnétique.

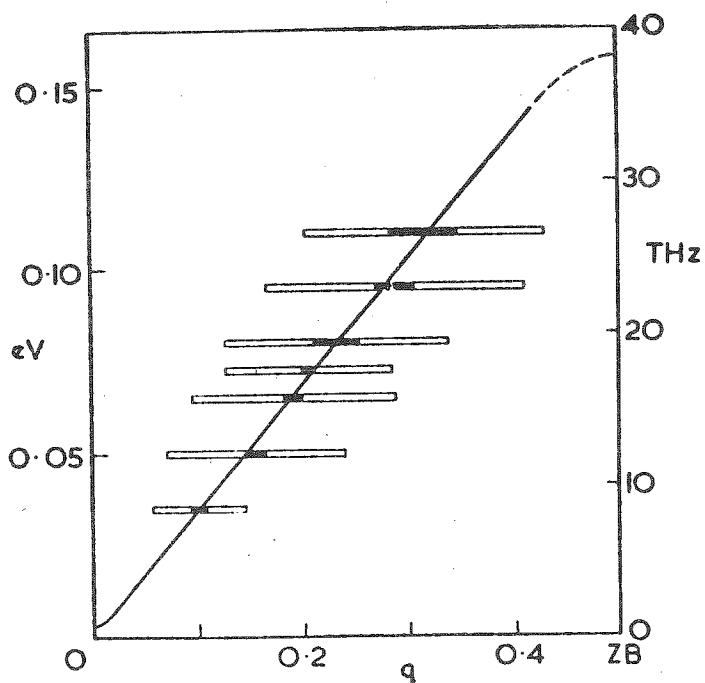


Figure I-10 : Courbe de dispersion d'ondes de spin dans le manganèse γ (HEN 76).

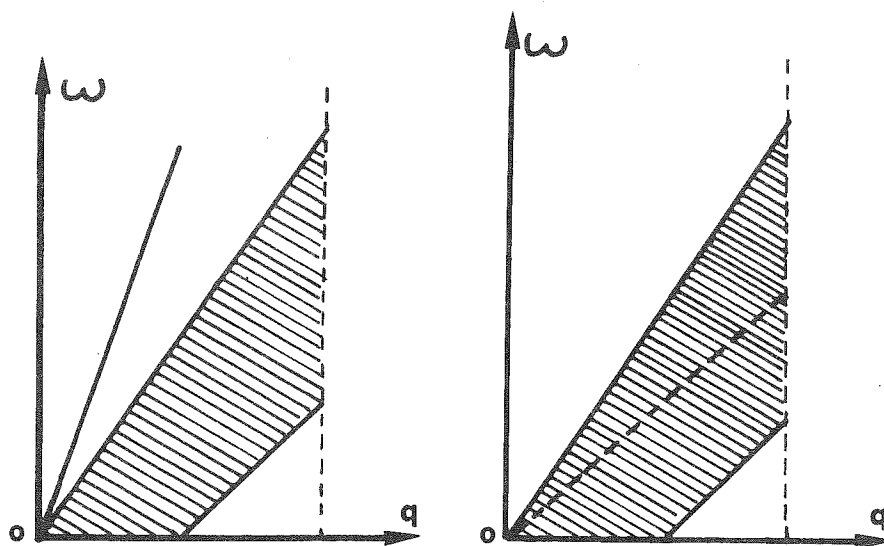


Figure I-11 : Différents tracés possibles suivant les positions du spectre d'excitations collectives par rapport au spectre d'excitations individuelles

Le spectre d'excitations individuelles est différent de celui du cas ferromagnétique du fait que les bandes + et - sont les mêmes. La figure I-11 montre les différents cas possibles suivant les positions relatives des spectres d'excitations individuelles et collectives. Deux cas se présentent suivant la position du spectre d'excitations collectives par rapport au spectre d'excitations individuelles :

- 1 - Si la vitesse des ondes de spin est grande, le spectre d'ondes de spin ne tombe pas dans une région (ω, q) où il existe des excitations individuelles et l'onde de spin est bien définie (on appelle vitesse des ondes de spin la quantité C dans l'équation analytique $\hbar\omega = Cq$, qui décrit la courbe de dispersion d'ondes de spin pour des vecteurs d'onde q petits).
- 2 - Si la vitesse est relativement faible, l'onde de spin devient dégénérée avec les excitations individuelles et est alors amortie par interaction avec ces excitations.

Les limitations à la validité du calcul RPA que nous signalons plus haut pour le ferromagnétique sont naturellement les mêmes dans le cas de l'antiferromagnétique.

Malgré les difficultés rencontrées, un calcul a été fait par Young (YOU 76) pour interpréter les résultats expérimentaux obtenus sur le manganèse γ . L'accord obtenu est bon, mais il faut souligner l'imprécision des résultats expérimentaux obtenus dans les antiferromagnétiques itinérants.

En résumé, les courbes de dispersion dans le chrome et le manganèse γ présentent une croissance linéaire que l'on peut décrire analytiquement par une équation du type $\omega = Cq$. Les largeurs inusitées rencontrées dans le manganèse γ montrent qu'il y a dans ce cas interaction entre le spectre individuel et le spectre collectif. Lors de mesures en températures faites sur le chrome on a constaté de plus une décroissance linéaire de C lorsque la température augmente et une persistance des ondes de spin au-dessus de la température de Curie. D'un point de vue théorique, le calcul développé dans le cas ferromagnétique est applicable aux antiferromagnétiques, bien que dans ce dernier cas il soit plus complexe. Par contre les limitations à sa validité sont les mêmes.

PROPRIETES PHYSIQUES DE FeRh

A - INTRODUCTION

Dans ce paragraphe nous allons exposer les données expérimentales et théoriques que nous possédons à propos de l'alliage ordonné de fer et de rhodium. Après avoir rappelé la structure nucléaire et magnétique de FeRh, ainsi que la manière dont varie la température de transition avec différents facteurs tels que pression, champ magnétique, etc..., nous exposerons les résultats de la détermination des moments magnétiques du fer et du rhodium dans les phases antiferromagnétique et ferromagnétique. Puis nous décrirons les tentatives à la fois expérimentales et théoriques qui ont été faites pour essayer de préciser le mécanisme de la transition. Nous parlerons enfin des mesures de résistivité, chaleur spécifique...

B - PROPRIETES PHYSIQUES

Les alliages ordonnés de fer et de rhodium présentent au voisinage de la composition équiatomique une transition du premier ordre d'un état antiferromagnétique vers un état ferromagnétique pour une température T_T qui dépend fortement de facteurs tels que la pression, la température, etc... Cette transition a été mise en évidence par Fallot en 1938 (FAL 38) qui constata un accoissement subit de l'aimantation sous l'effet d'une élévation de température, le phénomène étant accompagné d'une dilatation en volume de 1 %. Des mesures de rayons X (BER 61) et de diffraction neutronique (BER 62) ont permis à la fois de préciser la structure cristalline du composé et de montrer que l'alliage, antiferromagnétique à basse température, devenait ferromagnétique au-dessus de T_T . Le composé FeRh a la structure nucléaire de CsCl, c'est-à-dire cubique à deux atomes par maille. Si l'on considère que le fer est à l'origine du cube, dans ce cas l'atome de rhodium se trouve en $(\frac{a}{2}, \frac{a}{2}, \frac{a}{2})$ a étant le paramètre de la maille. En dessous de 693 K, température de Curie de l'alliage Fe₅₀Rh₅₀, et au-dessus de la température de transition T_T , Bertaut et ses collaborateurs ont montré que les moments magnétiques du fer et du rhodium s'ordonnent ferromagnétiquement et que les raies magnétiques se superposent aux raies nucléaires (cf. figure I-12). En dessous de la température de transition T_T , la phase est antiferromagnétique car les raies de surstructure magnétique s'indexent dans une maille cubique doublée dans toutes les directions (cf. figure I.13).

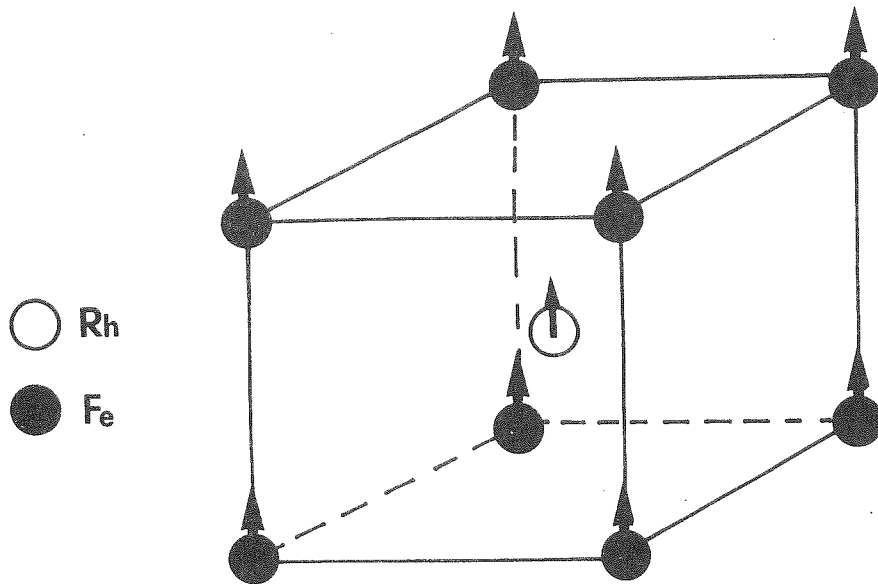


Figure I-12 : Structure ferromagnétique de FeRh.

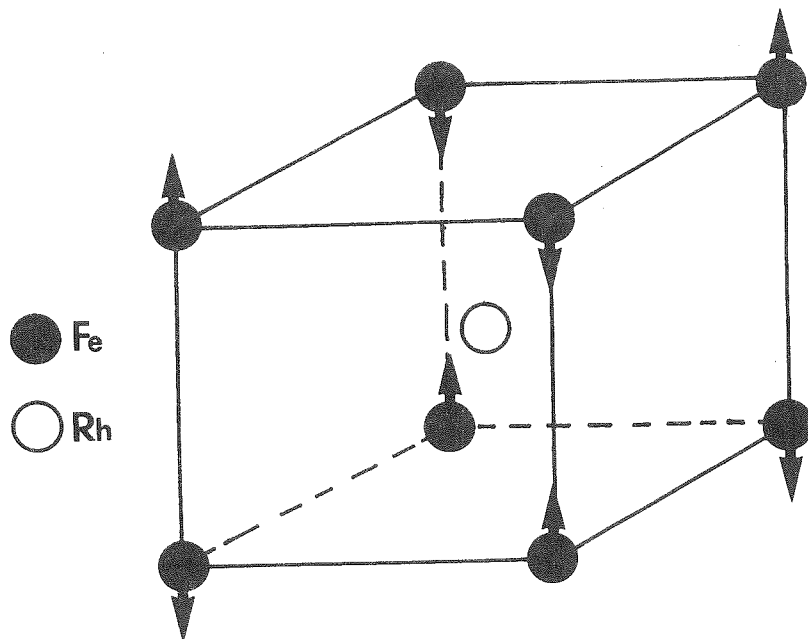


Figure I-13 : Structure antiferromagnétique de FeRh.

Dans cette étude réalisée sur un alliage à 53 % de rhodium pour lequel $T_c = 680$ K et $T_T = 333$ K, les moments des atomes de fer et de rhodium dans la phase ferromagnétique ont été déterminés comme étant respectivement de $\mu_{Fe} = 3,2 \mu_B$ et $\mu_{Rh} = 0,9 \mu_B$. Ultérieurement, Shirane et al (SHI 63 et SHI 64) ont précisé les valeurs de ces moments par une étude de neutrons polarisés sur un alliage à 48 % de Rh qui est ferromagnétique à l'ambiante. Cette étude plus précise a permis d'évaluer l'influence de l'environnement sur la valeur du moment du fer, les alliages étudiés n'étant pas stoechiométriques. Les valeurs des moments obtenus pour différentes concentrations en rhodium sont montrées sur la figure I-14. On note Fe_I les atomes situés sur le réseau du fer et Fe_{II} les atomes substitués sur le réseau du rhodium. Par contre dans l'arrangement antiferromagnétique il est difficile de séparer les atomes de fer des atomes de rhodium. En supposant le moment du rhodium nul, un moment de $3,3 \mu_B$ par atome de fer a été déterminé par Bertaut et al. Shirane a remarqué que les atomes de rhodium dans cet arrangement antiferromagnétique ont un environnement de quatre atomes de fer dont les moments sont parallèles et de quatre atomes de fer couplés antiparallèlement aux précédents : les interactions d'échange agissant sur le rhodium s'annulent donc et les moments du rhodium ne sont donc pas ordonnés. Dans cette hypothèse, il détermine la même valeur que celle donnée par Bertaut (BER 62) pour le moment du fer : $\mu_{Fe} = 3,3 \mu_B$. L'analyse de leurs résultats montre en outre que la détermination de μ_{Fe} n'est presque pas affectée par l'incertitude sur le moment du rhodium. Des études plus récentes de diffusion diffuse des neutrons semblent montrer une disparition du moment du rhodium (KUN 71). Cependant, la précision des résultats obtenus ne peut conduire à une affirmation probante.

Ainsi que nous l'avons indiqué plus haut, la température de transition T_T dépend fortement de la pression, de la stoechiométrie, du champ appliqué et d'une manière plus difficile à comprendre du mode de fabrication. Les trois premières dépendances sont illustrées sur la figure I-15 (VIN 75, WAY 68, ZAV 67). Lommel et Kouvel (LOM 67) ont montré sur des échantillons en poudre, que d'une part l'augmentation du temps de recuit entraînait une augmentation de la température de transition, et que d'autre part la température de transition d'un échantillon en film était plus élevée que celle d'un échantillon massif. Malheureusement, ces informations ne semblent pas s'appliquer pour un monocristal.

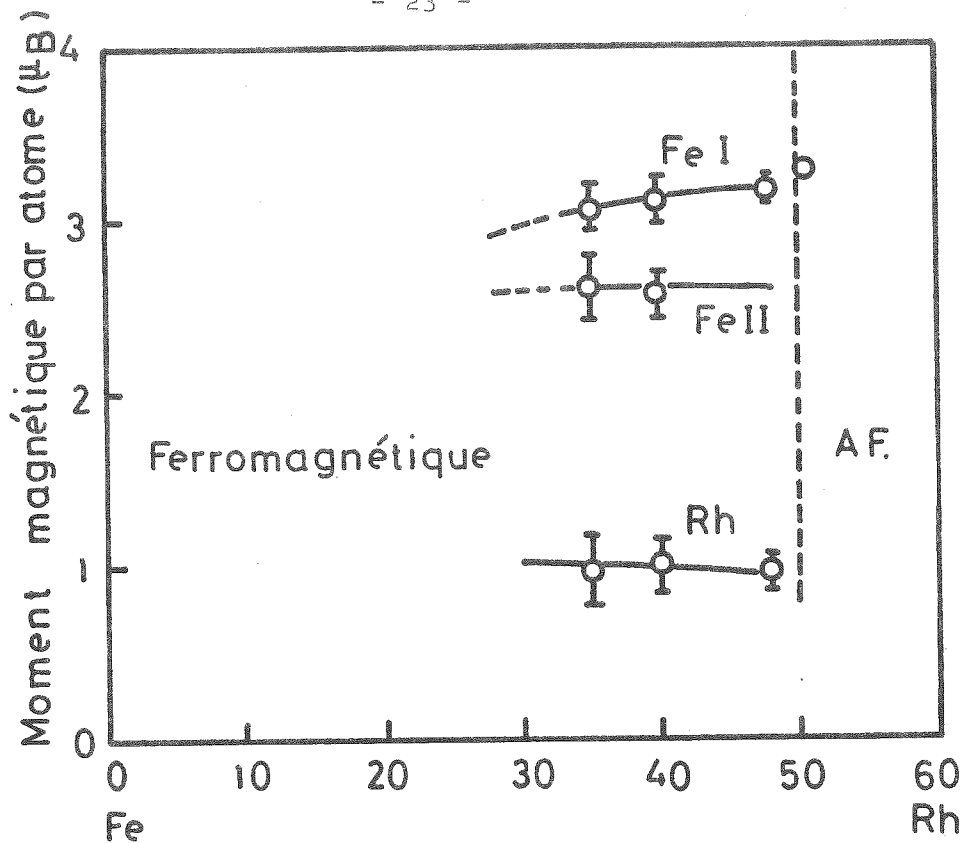


Figure I-14 : Moment magnétique des atomes de fer (SHI 64) dans $Fe_{1-x}Rh_x$ en fonction de la concentration en rhodium.

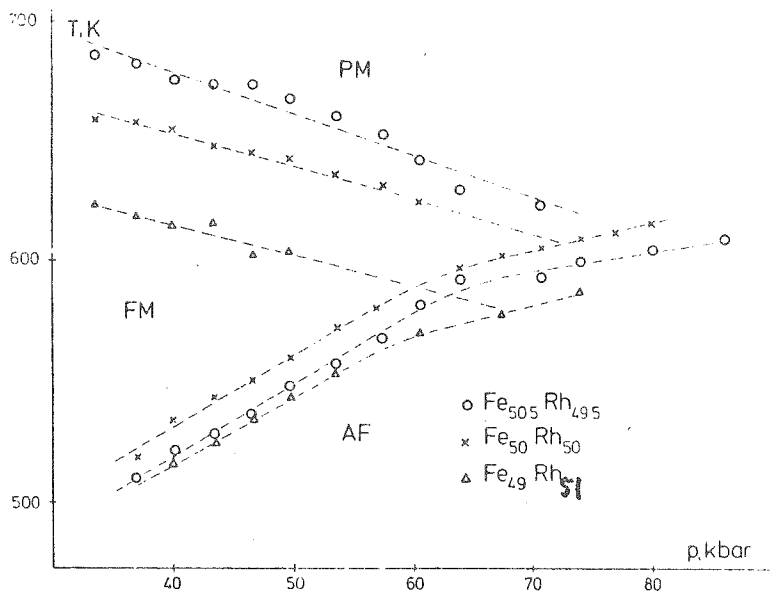


Figure I-15 : a) Variation de la température de transition de FeRh en fonction de la pression (VIN 75).

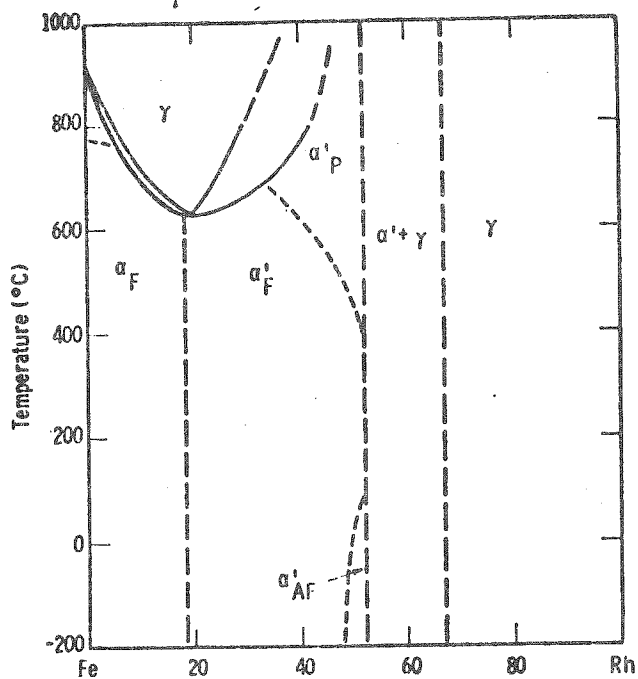


Figure I-15 : b) Diagramme de phase de FeRh (SHI 63).

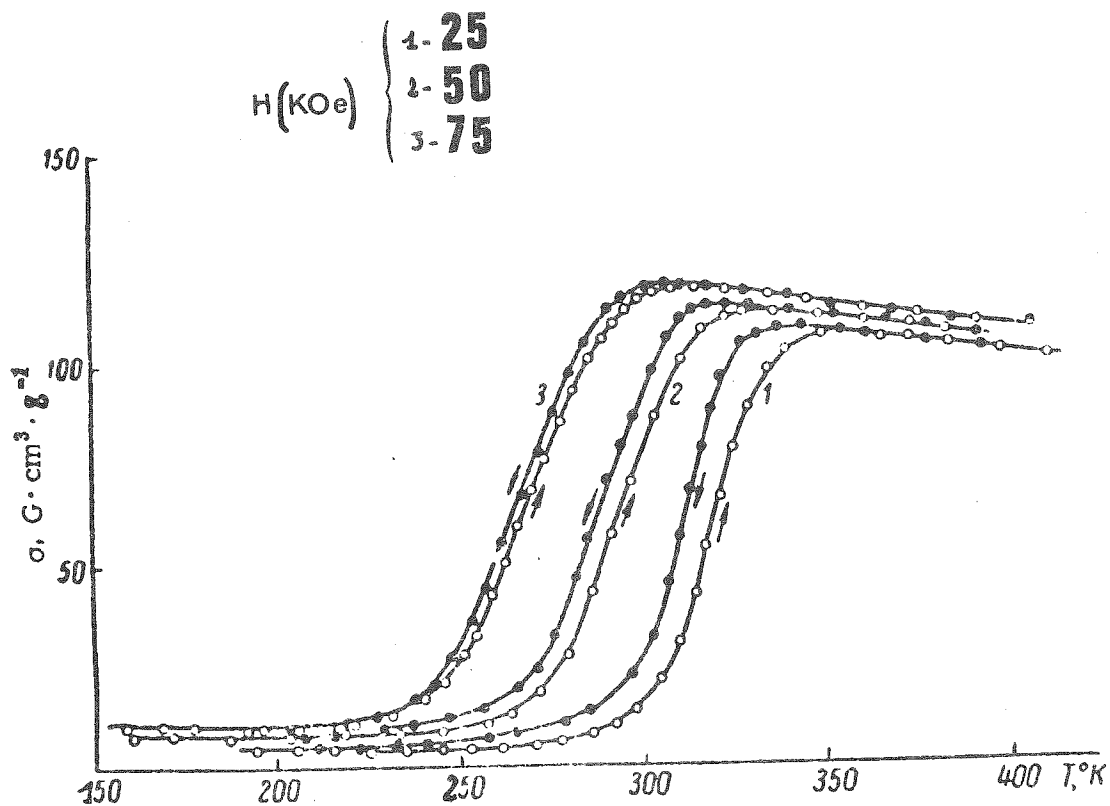


Figure I-15 : c) Variation de la température de transition T_T dans FeRh avec le champ appliqué (ZAV 67).

Une étude détaillée de l'évolution de la température critique (KOU 66) avec le champ appliqué a mis en évidence un accroissement important d'entropie à la transition, supérieur à celui prévu pour l'entropie de réseau. Cet accroissement a été lié à la différence entre les coefficients de chaleur spécifique électronique dans les phases ferromagnétique et antiferromagnétique due elle-même à la différence probable des structures de bandes dans les deux phases magnétiques (TU 69, IVA 71, RIC 73). Ricodeau et Melville (RIC 72) ont fait une étude théorique approfondie de la transition, examinant les différentes contributions possibles à l'énergie libre et leur évolution en fonction de la température. Les résultats de leurs estimations ont été dans l'ensemble en bon accord avec l'expérience tant en ce qui concerne la variation d'entropie à la transition que l'évolution du champ critique en fonction de la température. Toutefois, ces calculs avaient pour base des données macroscopiques mesurées, et non une connaissance microscopique de la structure électronique de l'alliage ordonné. Par ailleurs, des mesures détaillées, en fonction de la température et du champ magnétique appliqué, de l'aimantation, de la résistivité, des chaleurs spécifiques sur des alliages de compositions différentes, ainsi que sur des alliages ternaires où une impureté de transition était substituée partiellement au rhodium (KOU 66, TU 69, SCH 72, 74) ont montré en particulier l'extrême sensibilité de l'ensemble des propriétés (T_{crit} , chaleurs spécifiques, résistivités à haute température par exemple) à la présence et à la nature des impuretés. L'existence probable de moments géants entraînant une inhomogénéité magnétique a été suggérée pour les alliages ayant un excès même faible de fer (SCH 74). Récemment, Y. Khwaja et M. Nauciel-Bloch (KHW 77) ont traité d'un point de vue théorique l'effet d'une impureté isolée sur la structure de FeRh dans la phase antiferromagnétique. Ils ont montré que les effets d'un écart à la stoechiométrie ne se font pas sentir de façon symétrique suivant qu'il s'agit d'un excès de fer ou de rhodium. Ceci confirme l'existence possible de moments géants. Leurs résultats sont en accord avec les calculs de structure de bande achevés récemment à Strasbourg (KHA 76).

L'ensemble de ces résultats montre l'intérêt d'un tel composé, tant du point de vue théorique qu'expérimental. La structure simple de FeRh conjointement à l'existence des deux phases antiferromagnétique et ferromagnétique sont des raisons supplémentaires pour une étude plus complète des propriétés magnétiques d'un tel composé.

C H A P I T R E I I

LA DIFFUSION INÉLASTIQUE DES NEUTRONS : TECHNIQUE DU "TROIS AXES"

La recherche des excitations élémentaires dans un solide peut s'effectuer par un grand nombre de techniques expérimentales (diffusion raman, diffraction X, diffusion des neutrons, ect...). L'intérêt de la diffusion des neutrons vient de ce que les neutrons thermiques issus d'un réacteur ont des énergies et des quantités de mouvement du même ordre de grandeur que celle des excitations à étudier. D'autre part, en raison de la faible absorption des neutrons par la matière condensée, une analyse en énergie et en impulsion de la diffusion peut être effectuée, afin de déterminer les spectres dans la totalité de la zone de Brillouin. Le neutron étant porteur d'un moment magnétique, il est possible d'obtenir non seulement les spectres de phonons mais aussi ceux des magnons (excitations magnétiques). L'appareil qui va nous permettre une telle étude utilise la diffusion et la diffraction des neutrons comme moyen d'analyse en énergie et en impulsion. Il est appelé un "trois axes".

Après un rappel théorique sur la diffusion inélastique des neutrons, nous donnerons brièvement le principe de cet appareil et sa réalisation technique. Les paragraphes suivants seront consacrés aux méthodes de mesure, puis aux difficultés inhérentes à de telles expériences. Nous présenterons ensuite la fonction de résolution d'un spectromètre à trois axes et son utilisation lors des dépouillements.

A - RAPPEL THEORIQUE SUR LA DIFFUSION INELASTIQUE DES NEUTRONS

1 - Section efficace de diffusion inélastique dans les métaux

Les neutrons possédant un moment magnétique vont interagir avec les moments magnétiques des atomes considérés. C'est le cas lors de la recherche des ondes de spin dans un isolant en utilisant la diffusion inélastique des neutrons comme technique expérimentale. Le calcul de la section efficace différentielle se rapportant à ces interactions est alors fait en considérant que les moments localisés dans le cristal ont le même moment magnétique que le moment isolé. Le résultat de ce calcul est maintenant bien connu (VAN 54, GUR 68) et s'écrit si l'on considère à la fois que les corrélations spin-réseau et le magnétisme orbital sont négligeables :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = (r_0 \gamma_n)^2 \frac{k_F}{k_I} \sum_{jj'} F_j(\vec{q}) F_{j'}(\vec{q}) e^{-i\vec{q}(\vec{R}_j - \vec{R}_{j'})} \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - e_\alpha e_\beta) \times$$

$$\times \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-i \frac{Et}{\hbar}) \cdot \langle S_j^\alpha(0) S_j^\beta(t) \rangle \quad (\text{II-1})$$

où $\langle \rangle$ représente la moyenne prise sur les états de spin et d'énergie du cristal,

k_F et k_I sont les vecteurs d'onde diffusés et incidents,

r_0 est le rayon classique de l'électron,

γ_n est le rapport gyromagnétique du neutron,

$F_j(\vec{q})$ est le facteur de forme de l'ion j du cristal,

α, β sont les indices des composantes $x y z$,

$\vec{q} = \vec{k}_F - \vec{k}_I$ vecteur de diffusion,

$\vec{e} = \frac{\vec{q}}{|\vec{q}|}$ vecteur de diffusion unitaire

et S_j^α composante suivant α du spin de l'ion j .

Cette formule n'est valable que pour les isolants magnétiques. Par contre, dans un métal, le recouvrement des orbitales des électrons entraîne une délocalisation de ces électrons et en conséquence il y a une grande différence entre le moment magnétique d'un atome dans le métal et celui de l'atome isolé. Nous allons chercher une expression générale de la section efficace dans laquelle la densité de spin n'est pas discrète comme dans le cas de l'isolant mais distribuée continuellement dans tout le cristal. Nous montrerons que cette section efficace est proportionnelle à la fonction de corrélation des densités de spin. Puis dans le paragraphe suivant, nous ferons apparaître le facteur de forme de la densité élec-

tronique dans l'expression de la densité. Enfin, nous montrerons la proportionnalité de la section efficace et de la susceptibilité généralisée $\chi(\vec{q}, \omega)$ avant de calculer explicitement cette susceptibilité dans le cas d'électrons en interaction les uns avec les autres. L'expression de la section est alors donnée, et nous comparons celle-ci avec la section efficace calculée dans le cas d'un isolant.

a - Expression générale de la section efficace

En remarquant que lors du calcul des éléments de matrice de l'interaction moment magnétique - neutron on peut séparer la partie correspondant au neutron de la partie correspondant au diffuseur, (IZY 70) on peut écrire :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{1}{4} (r_0 \gamma_n)^2 \frac{k_F}{k_I} \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - e_\alpha e_\beta) S_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) \quad (\text{II-2})$$

avec :

$$S_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_V d\vec{r} \int_V d\vec{r}' \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r} - i\omega t} \langle \sigma_\alpha(\vec{r} + \vec{r}', t) \sigma_\beta(\vec{r}') \rangle dt \quad (\text{II-3})$$

où $\sigma_\alpha(\vec{r})$ est la composante α de la densité de spin des électrons dans le métal. Elle peut s'exprimer dans le formalisme de la seconde quantification :

$$\sigma(\vec{r}) = \tilde{\Psi}^*(\vec{r}) \tilde{\Psi}(\vec{r}) \quad (\text{II-4})$$

$$\text{où } \tilde{\Psi}(\vec{r}) = \begin{pmatrix} \Psi_\uparrow(\vec{r}) \\ \Psi_\downarrow(\vec{r}) \end{pmatrix} \text{ et } \tilde{\Psi}^*(\vec{r}) = (\Psi_\uparrow^*(\vec{r}) \quad \Psi_\downarrow^*(\vec{r}))$$

$\tilde{\Psi}(\vec{r})$ est la fonction d'onde à deux composantes des électrons et σ un vecteur ayant les matrices de Pauli comme composantes. En introduisant la transformée de Fourier de la densité de spin :

$$\sigma(\vec{q}) = \int_V e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \sigma(\vec{r}) d\vec{r} \quad (\text{II-5})$$

L'équation (II-3) se réécrit :

$$S_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega t} \langle \sigma_\alpha(\vec{q}, t) \sigma_\beta(-\vec{q}) \rangle dt \quad (\text{II-6})$$

b - Facteur de forme

Afin d'exprimer $\sigma(\vec{q})$ remarquons qu'il est possible d'écrire la densité de spin au moyen des opérateurs de particules utilisés en seconde quantification. Soit :

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_{\vec{k}} \Psi_{\vec{k}}(\vec{r}) C_{\vec{k}}$$

et

$$\Psi^+(\vec{r}) = \sum_{\vec{k}} \Psi_{\vec{k}}^+(\vec{r}) C_{\vec{k}}^+$$

(II-7)

l'opérateur Ψ diminue le nombre total de particules d'une unité alors que l'opérateur Ψ^+ l'augmente d'une unité. La densité de spin s'écrit alors dans le formalisme de la deuxième quantification :

$$\sigma(\vec{r}) = \Psi^+(\vec{r}) \sigma \Psi(\vec{r}) \quad (II-8)$$

Cette équation s'écrit alors en utilisant des fonctions de Bloch $\Phi_{\vec{k}\sigma}$

$$\sigma(\vec{r}) = \sum_{\vec{k}} \sum_{\vec{k}'} \sum_{\sigma} \sum_{\sigma'} \Phi_{\vec{k}\sigma}^*(\vec{r}) C_{\vec{k}\sigma}^+ \sigma \Phi_{\vec{k}'\sigma'} C_{\vec{k}'\sigma'} \quad (II-9)$$

On peut séparer la fonction $\Phi_{\vec{k}\sigma}$ en une partie de spin et une partie spatiale :

$$\Phi_{\vec{k}\sigma} = \Phi_{\vec{k}} \chi_{\sigma}$$

Exprimons alors $\sigma(\vec{q})$:

$$\sigma(\vec{q}) = \int d\vec{r} e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \sum_{\vec{k}} \sum_{\vec{k}'} \Phi_{\vec{k}} \Phi_{\vec{k}'}^* \sum_{\sigma} \sum_{\sigma'} C_{\vec{k}\sigma}^+ \chi_{\sigma}^+ \sigma \chi_{\sigma'} C_{\vec{k}'\sigma'} \quad (II-10)$$

dans laquelle $\chi_{\uparrow} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ et $\chi_{\downarrow} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$

Le calcul de la somme sur σ et σ' ne présente aucune difficulté et n'est pas reproduit ici. Pour continuer notre calcul nous introduisons l'approximation des liaisons fortes, et nous nous limitons par simplicité à une bande étroite non dégénérée. Dans ce cas, si on appelle $\theta(\vec{r})$ l'orbitale sur laquelle est développée la fonction de Bloch et en négligeant la partie spin :

$$\sigma(\vec{q}) = \int d\vec{r} e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} |\theta(\vec{r})|^2 \sum_{\vec{k}} \sum_{\vec{k}'} \delta_{\vec{k}', \vec{k}+\vec{q}} A \quad (II-11)$$

dans laquelle $F(\vec{q}) = \int d\vec{r} e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} |\theta(\vec{r})|^2$ n'est autre que le facteur de forme de la densité électronique dans le métal.

c - Relation entre section efficace et susceptibilité généralisée

Pour évaluer $S_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$ on se sert du théorème de fluctuation dissipation démontré par Kubo (KUB 66) et qui relie $S_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$ à la partie symétrique du tenseur de susceptibilité magnétique. Soit :

$$g^2 \mu_B^2 \bar{S}_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = - \frac{2\hbar}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \text{Im} \chi_{\alpha\beta}^{(s)}(\vec{q}, \omega - i\epsilon) \quad (\text{II-12})$$

$$\text{dans laquelle } \bar{S}_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2} \left[S_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) + S_{\beta\alpha}(\vec{q}, \omega) \right] \quad (\text{II-13})$$

La relation (II-12) nous montre que l'intensité recueillie dans le détecteur est directement proportionnelle à la susceptibilité magnétique généralisée. Cette dernière est donc en relation direct avec la détermination expérimentale du spectre d'ondes de spin. Montrons alors que le calcul de cette susceptibilité généralisée se ramène au calcul d'une fonction de Green. Celle-ci s'écrit (KUB 57) :

$$\chi_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = g^2 \mu_B^2 \frac{i}{\hbar} \int_0^\infty e^{-i\omega t - \epsilon t} \langle [\sigma_\alpha(\vec{q}, t) \sigma_\beta(-\vec{q})] \rangle dt \quad (\text{II-14})$$

avec l'aide de (II-9) et (II-11), $\chi_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$ peut s'écrire sous la forme :

$$\chi_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = g^2 \mu_B^2 F^2(q) \chi'_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$$

$$\text{où } \chi'_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = \frac{i}{\hbar} \int_0^\infty e^{-i\omega t - \epsilon t} \langle [\sigma'_\alpha(\vec{q}, t), \sigma'_\beta(-\vec{q})] \rangle dt \quad (\text{II-16})$$

$$\text{et } \sigma'(\vec{q}) = \sum_{\vec{k}} \sum_{\sigma\sigma'} C_{\vec{k}\sigma}^+ \chi_\sigma^+ \sigma \chi_\sigma, C_{\vec{k}+\vec{q}\sigma'} \quad (\text{II-17})$$

Si on introduit alors la fonction de Heaviside $Y(t)$, $\chi'_{\alpha\beta}(q, \omega)$, apparaît alors comme la composante de Fourier de la fonction de Green s'écrivant dans le cas général :

$$\langle\langle A(t) | B \rangle\rangle = \frac{i}{\hbar} Y(t) \langle [A(t), B] \rangle$$

d - Calcul de la susceptibilité généralisée

Ainsi le problème de calcul de la section efficace a été ramené au calcul d'une fonction de Green. Le calcul de la susceptibilité transverse $\chi_{-+}(\vec{q}, \omega)$ est effectué à partir de l'Hamiltonien des électrons dans le métal.

$$H = H_0 + H_c = \sum_{\vec{k}\sigma} \epsilon_{\vec{k}} C_{\vec{k}\sigma}^+ C_{\vec{k}\sigma} + \frac{1}{2} v \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2} \sum_{\sigma_1, \sigma_2} C_{\vec{k}_1 + \nu\sigma_1}^+ C_{\vec{k}_1\sigma_1} C_{\vec{k}_2\sigma_2} C_{\vec{k}_2 + \nu\sigma_2} \quad (\text{II-18})$$

$H_c = \sum_{\lambda, \lambda'} \epsilon_{\vec{k}} U_{\uparrow}(\lambda) n_{\downarrow}(\lambda')$, où U est l'interaction de Coulomb intra-atomique. $\epsilon_{\vec{k}}$ est l'énergie propre des électrons et le terme H_c décrit les interactions coulombiennes entre électrons. On a pris les éléments de matrice de cette interaction comme constantes. L'utilisation de

l'approximation de la phase aléatoire (RPA) nous permet d'effectuer le calcul et le résultat s'écrit (IZU 63) :

$$\chi_{-+}(\vec{q}, \omega) = g^2 \mu_B^2 F^2(\vec{q}) \frac{\Gamma_{-+}(\vec{q}, \omega)}{1 - v \Gamma_{-+}(\vec{q}, \omega)} \quad (\text{II-19})$$

où

$$\Gamma_{-+}(\vec{q}, \omega) = \sum_{\vec{k}} \frac{f_{\vec{k}\uparrow} - f_{\vec{k}+\vec{q}\downarrow}}{\bar{\epsilon}_{\downarrow}(\vec{k}+\vec{q}) - \bar{\epsilon}_{\uparrow}(\vec{k}) - \hbar\omega} \quad (\text{II-20})$$

et $\bar{\epsilon}_{\sigma}(\vec{k}) = \epsilon_{\vec{k}} - v \sum_{\vec{k}'\sigma'} f_{\vec{k}'\sigma'}$ est l'énergie Hartree-Fock de l'électron \vec{k} de spin σ ; $f_{\vec{k}\uparrow}$ est la distribution de Fermi-Dirac pour un état de Bloch $\vec{k}\uparrow$. Examinons maintenant deux cas particuliers :

- Cas où il n'y a pas d'interaction entre électrons ($v = 0$)

dans ce cas :

$$\chi_{-+}(\vec{q}, \omega) = g^2 \mu_B^2 F^2(q) \Gamma_{-+}(\vec{q}, \omega) \quad (\text{II-21})$$

Le calcul de la section efficace transverse donne alors en tenant compte des relations (II-2), (II-12) et (II-21) et en utilisant l'identité

$$\frac{1}{x-i\epsilon} = \frac{1}{x} - i\pi\delta(x)$$

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{1}{4} (r_0 \gamma_n)^2 \frac{k_F}{k_I} F^2(\vec{q}) \sum_{\sigma\sigma'} (1 - \eta_{\sigma}\eta_{\sigma'} e_z^2) \sum_{\vec{k}} f_{\vec{k}\sigma} \left[1 - f_{\vec{k}+\vec{q}\sigma'} \right] \times \delta \left[\bar{\epsilon}_{\sigma}(\vec{k}+\vec{q}) - \bar{\epsilon}_{\sigma'}(\vec{k}) - \hbar\omega \right] \quad (\text{II-22})$$

On voit donc qu'en l'absence d'interactions entre les électrons la diffusion inélastique des neutrons ne donne lieu qu'à des excitations individuelles d'électrons ; ceux-ci passent d'un état \vec{k}, σ à un état $\vec{k}+\vec{q}, \sigma'$. Les processus sans changement de projection de spin apparaissent avec un facteur $1 - e_z^2$ dans la section efficace alors que les processus avec changement de projection de spin apparaissent avec un facteur $1 + e_z^2$. En fait, lors d'une expérience on ne voit pas d'excitations individuelles mais des excitations collectives. Le désaccord entre l'expérience et le calcul ci-dessus vient de ce que l'on néglige les interactions entre électrons.

- Cas où l'interaction entre électrons est non nulle ($v \neq 0$)

Dans ce cas on obtient pour la section efficace transverse :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = (r_0 \gamma_n)^2 \frac{k_F}{k_I} F^2(\vec{q}) (1 + e_z^2) \frac{\hbar}{4v} \frac{1}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \delta \left[1 - v \Gamma_{-+}(\vec{q}, \omega) \right] \quad (\text{II-23})$$

On voit donc que maintenant la section efficace a des pics très étroits pour des valeurs de $\omega = \omega_s$ qui satisfont la relation :

$$1 - v\Gamma_{-+}(\vec{q}, \omega) = 0 \quad (\text{II-24})$$

ou encore :

$$1 = v \sum_{\vec{k}} \frac{f_{\vec{k}\uparrow} - f_{\vec{k}+\vec{q}\downarrow}}{\varepsilon_{\downarrow}(\vec{k}+\vec{q}) - \varepsilon(\vec{k}) - \hbar\omega} \quad (\text{II-25})$$

L'expression (II-24) exprime que la susceptibilité généralisée a un pôle (cf. équation (II-19)). Cela détermine donc le spectre d'excitations élémentaires du système. La solution de l'équation (II-25) donne donc à la fois des excitations individuelles (Stoner) et des excitations collectives, qui correspondent à l'expérience.

Pour des valeurs de ω proches de $\omega_s(\vec{q})$, nous avons la relation :

$$1 - v\Gamma(\vec{q}, \omega) = \frac{\hbar}{2nv} \left[\omega_s(\vec{q}) - \omega \right] \quad \text{avec } n = \frac{1}{2} [N_{\uparrow} - N_{\downarrow}] \quad (\text{II-26})$$

où n est le moment de spin total du système d'électrons dans le métal.

En remplaçant (II-26) dans l'équation (II-23) où ω est > 0 pour l'émission d'une onde de spin et $\omega < 0$ pour l'absorption d'une onde de spin :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = (r_{0Yn})^2 F^2(\vec{q}) \frac{k_F}{k_I} \frac{n}{2} (1+e_z^2) \left[n_q + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \right] \delta \left[E_p, - E_p \pm \hbar\omega_s(\vec{q}) \right] \quad (\text{II-27})$$

où $n_q = \frac{1}{\beta\hbar\omega_s}$ est le facteur de population, autrement dit le nombre d'occupations relatif à l'état d'énergie $\hbar\omega_s$ et de vecteur \vec{q} .

Sous cette forme, l'expression (II-27) est identique à la section efficace correspondant au modèle localisé. Un examen de cette section efficace différentielle permet de dégager quelques enseignements utiles à la réalisation d'une expérience.

- le facteur de forme de la densité électronique décroissant rapidement avec \vec{q} l'intensité diffusée sera plus intense au voisinage de l'origine du réseau réciproque.

- Le facteur de population de bosons devient négligeable quand $\omega_Y(\vec{q})$ croît. Donc on aura avantage à étudier les phénomènes de création plutôt que d'annihilation.

2 - Principe du spectromètre

La diffusion inélastique d'un neutron correspond à un transfert de moment et d'énergie entre le neutron et le corps étudié. En appliquant alors les règles de conservation du moment et de l'énergie pour l'ensemble du système neutron-échantillon, on écrit :

$$\hbar(\vec{k}_I - \vec{k}_F) = \hbar\vec{K} \quad (\text{II-28})$$

$$\hbar^2/2m_n (k_I^2 - k_F^2) = \hbar\omega$$

où \vec{k}_I et \vec{k}_F sont les vecteurs d'ondes du neutron incident et du neutron diffusé et \vec{K} et $\hbar\omega$ le moment et l'énergie transférée. La connaissance de \vec{k}_I et \vec{k}_F permet de déterminer \vec{K} et ω et de tracer point par point la courbe de dispersion $\omega = f(\vec{K})$.

3 - Réalisation

La connaissance de \vec{k}_I est obtenue en interposant dans le faisceau sortant de la pile un monocristal orienté. Celui-ci en position de diffraction sous un angle θ_M donné, sélectionne les neutrons possédant une impulsion $|\vec{k}_I|$ telle que la loi de Bragg $\lambda_I = 2d \sin\theta_M = \frac{2\pi}{|\vec{k}_I|}$ soit satisfaite. d est la distance interréticulaire correspondant au plan de diffraction utilisé. Pour connaître $|\vec{k}_F|$ on disposera après l'échantillon sur une direction de diffusion, un monocristal dit analyseur en position de diffraction sous un angle θ_A . Les neutrons de vecteur d'onde \vec{k}_F seront alors diffractés suivant un angle $2\theta_A$ si ils satisfont à la relation $\lambda_F = 2d' \sin\theta_A = \frac{2\pi}{|\vec{k}_F|}$. Un détecteur placé dans la direction ainsi définie permettra de compter les neutrons d'impulsion $|\vec{k}_F|$. Un changement de θ_A et donc de $2\theta_A$ définit un autre vecteur d'onde \vec{k}_F . Il y a donc possibilité d'analyser dans la direction de diffusion choisie toute une gamme de vecteurs d'onde \vec{k}_F .

Après avoir déterminé les modules des vecteurs \vec{k}_I et \vec{k}_F , la connaissance de la direction de diffusion permet de les orienter angulairement l'un par rapport à l'autre. Une nouvelle direction de diffusion est obtenue par modification du positionnement du monochromateur et de l'analyseur, tout en restant dans le même schéma de diffusion. Le processus de diffusion caractérisé par les relations ci-dessous est alors défini (cf. figure II-1).

$$\hbar (\vec{k}_I - \vec{k}_F) = \hbar \vec{K}$$
$$\frac{\hbar^2}{2m_n} (k_I^2 - k_F^2) = \hbar \omega$$

Ces équations permettent de positionner dans l'espace réciproque le point \vec{K} , ω du spectre étudié. Les effets des neutrons diffusés selon ce processus résultent d'un transfert de moment $\hbar \vec{K}$ et d'un transfert d'énergie $\hbar \omega$

Lors de la diffusion sur un monocristal on sait que $\vec{K} = \vec{\tau} + \vec{q}$, où $\vec{\tau}$ est un vecteur du réseau réciproque et \vec{q} le vecteur de diffusion ramené dans la première zone de Brillouin. La connaissance de l'orientation de l'échantillon est donc nécessaire pour projeter le schéma de diffusion défini dans le repère du laboratoire dans un repère lié à l'échantillon. Aux difficultés expérimentales associées au positionnement des angles du goniomètre 3 axes, s'ajoutent les difficultés de la mesure de l'intensité diffusée. Au signal étudié va s'ajouter le bruit de fond (neutrons rapides, neutrons provenant de l'échantillon...) et des phénomènes parasites (raies de Bragg provenant de l'environnement de l'échantillon, ordres multiples).

Dans le but d'optimiser le rapport signal sur bruit de fond, nous discutons lors des paragraphes II-C et II-D des problèmes de résolution et de ceux liés aux combinaisons d'harmoniques donnant lieu à la diffusion multiple.

4 - Description de l'appareillage

Les différents goniomètres utilisés ont été respectivement IN1 et IN8 de l'Institut Laue-Langevin et H4 du Service de Physique et de Résonance Magnétique à Saclay. Le choix de leur utilisation a été déterminé par les différents transferts d'énergie étudiés. IN1 permet l'étude des transferts d'énergie compris entre 20 meV et 150 meV. H4 et IN8 ont été utilisés pour les transferts compris entre 1 meV et 60 meV. Nous allons décrire plus particulièrement le spectromètre IN1 pour lequel nous avons participé à la réalisation. Les deux autres spectromètres utilisés diffèrent seulement par la conception mécanique et la réalisation.

IN1 est situé à la sortie du canal H8 qui est lui-même tangent à la source "chaude". Les neutrons issus de cette source ont un spectre dont le maximum est situé à $0,7 \text{ \AA}$, par opposition au spectre du modérateur qui est centré autour de $1,1 \text{ \AA}$. Sur cet appareil on va distinguer

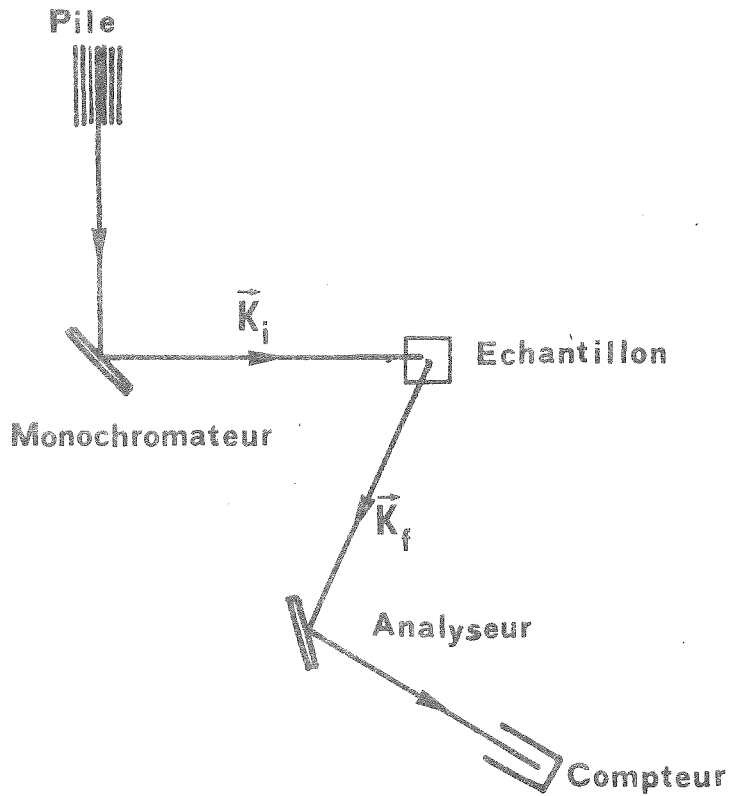


Figure II-1 : Schéma de diffusion tel qu'il est réalisé dans un "trois axes".

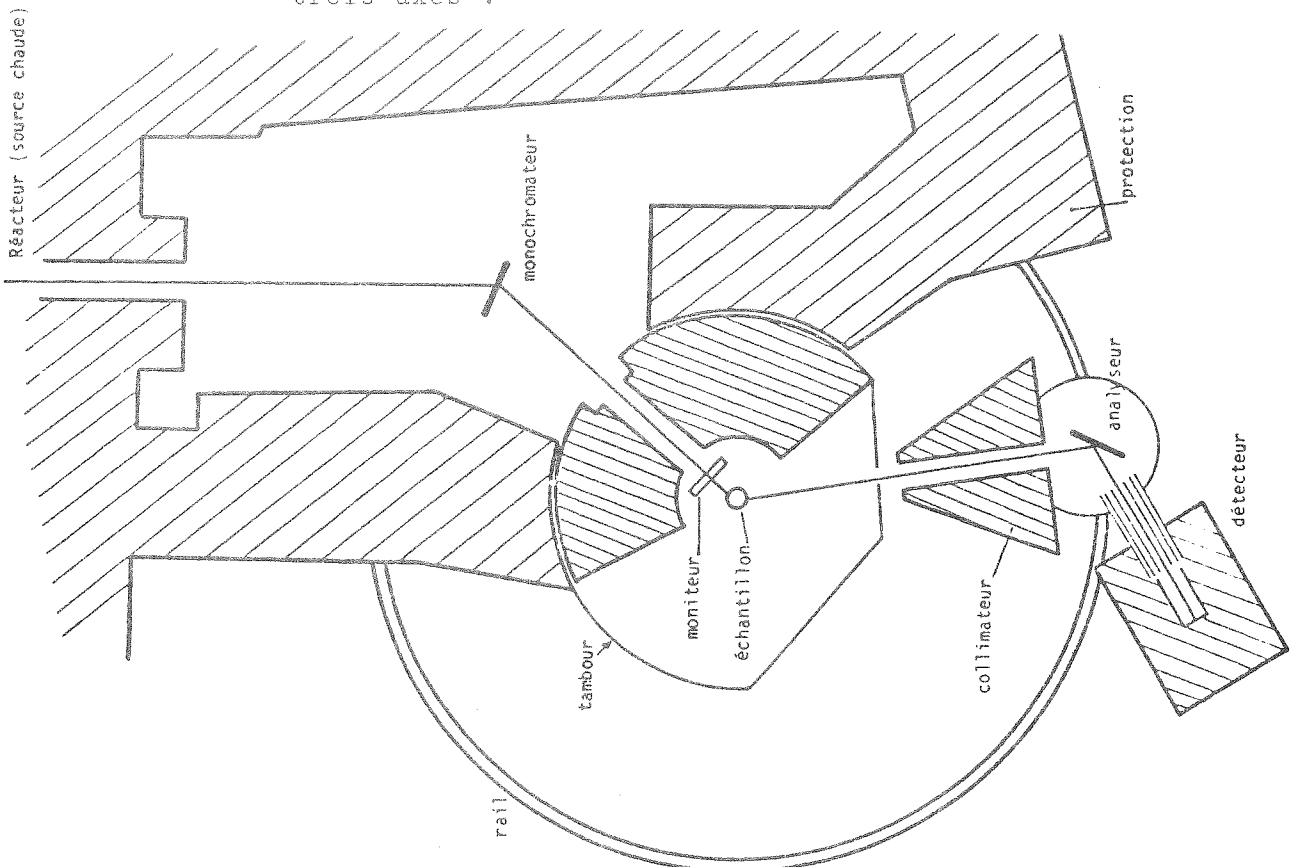


Figure II-2 : Le "trois axes" IN1 implanté sur la source chaude à l'I.L.L.

trois parties qui correspondent aux 3 axes : la partie monochromateur, la partie échantillon et la partie analyseur. Entre les parties monochromateur et échantillon, on dispose d'une protection biologique. Afin d'obtenir des neutrons incidents monochromatiques dont on peut faire varier l'énergie, cette protection tourne autour d'un axe de rotation qui passe par l'échantillon (figure II-2). La partie monochromateur proprement dite est constituée d'un traînard mobile (L_M) se déplaçant dans l'axe du faisceau direct, et d'un plateau permettant de faire tourner le cristal monochromateur sur lui-même (θ_M). Le faisceau "blanc" (neutrons sortant du réacteur) arrive sur le cristal monochromateur sous un angle θ_M . Il est réfléchi suivant la loi de Bragg vers l'échantillon sous un angle $2\theta_M$ par rapport au faisceau incident. Sur IN1 les angles minimum et maximum pour $2\theta_M$ sont de 22° et 43° . A l'angle minimum conjointement à une position du traînard proche du coeur du réacteur correspondent les neutrons de plus haute énergie (400 meV). Les neutrons ayant emprunté le canal de la protection biologique arrivent sur l'échantillon avec une impulsion $|\vec{k}_I|$ et sous un angle ψ par rapport aux axes du cristal définissant le plan de diffusion. Les neutrons diffusés par l'échantillon ont subi des transferts d'énergie et sont émis avec des impulsions $|\vec{k}_F|$ dans des directions faisant des angles ϕ avec la direction des neutrons incidents.

Le système analyseur consiste en un monocristal sur lequel se réfléchissent, suivant la loi de Bragg, les neutrons d'impulsion $|\vec{k}_F|$ (l'angle d'arrivée des neutrons sur l'analyseur est θ_A) ; les neutrons réfléchis suivant un angle $2\theta_A$ sont alors comptés.

Le positionnement mécanique des différents angles de l'appareil est assuré par un ordinateur Télémécanique 2000 qui calcule les angles θ_M , $2\theta_M$, L_M , ψ , ϕ , θ_A et $2\theta_A$ suivant les données de la sorte de mesures à effectuer. On peut voir sur les figures II-3 et II-4 la correspondance entre le positionnement angulaire de l'appareil et le schéma du réseau réciproque qu'il reproduit.

B - METHODE DE MESURE

1 - Méthode à " \vec{k} constant"

La mesure d'un magnon (ou d'un phonon) consiste à effectuer des comptages dans l'espace (\vec{k}, ω) en déplaçant le point figuratif du spectromètre le long d'une courbe de cet espace. Dans la méthode à \vec{k}

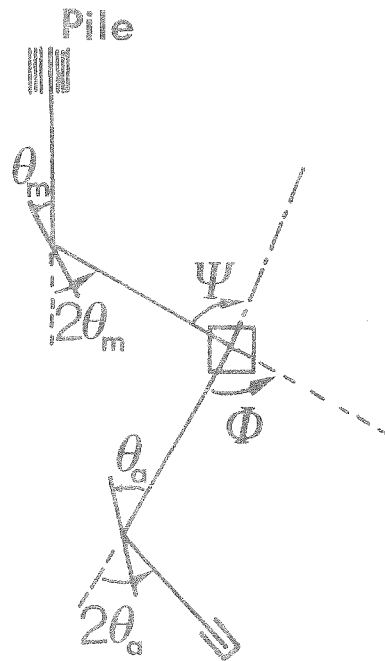


Figure II-3 : Schéma de diffusion avec les angles correspondants.

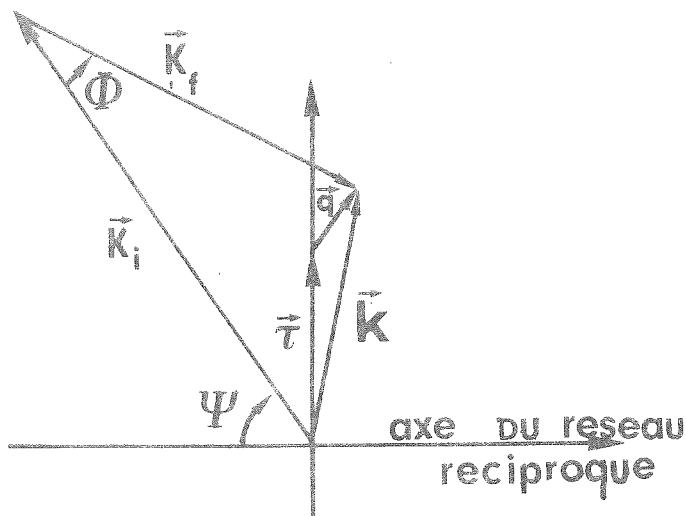


Figure II-4 : Représentation du schéma de diffusion de la figure II-3 dans le réseau réciproque de l'échantillon.

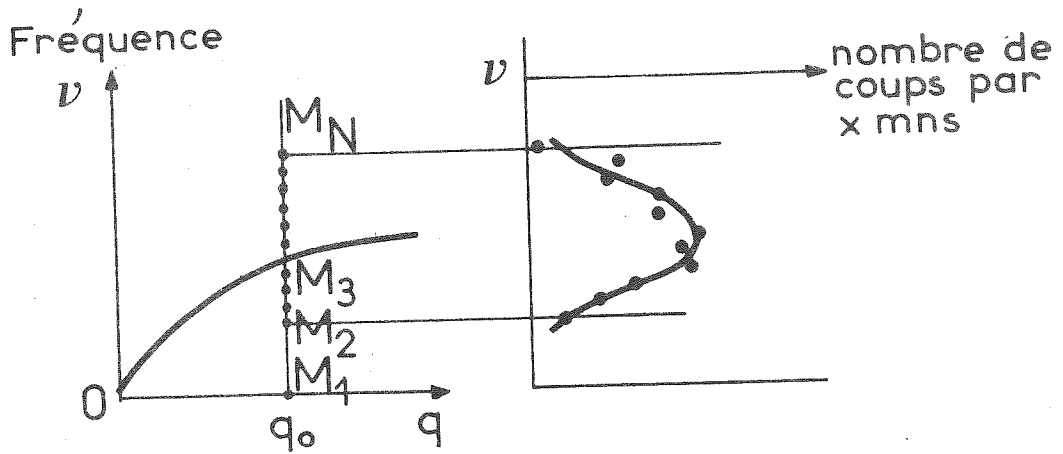


Figure II-5 a) Mesure à \vec{k} constant.

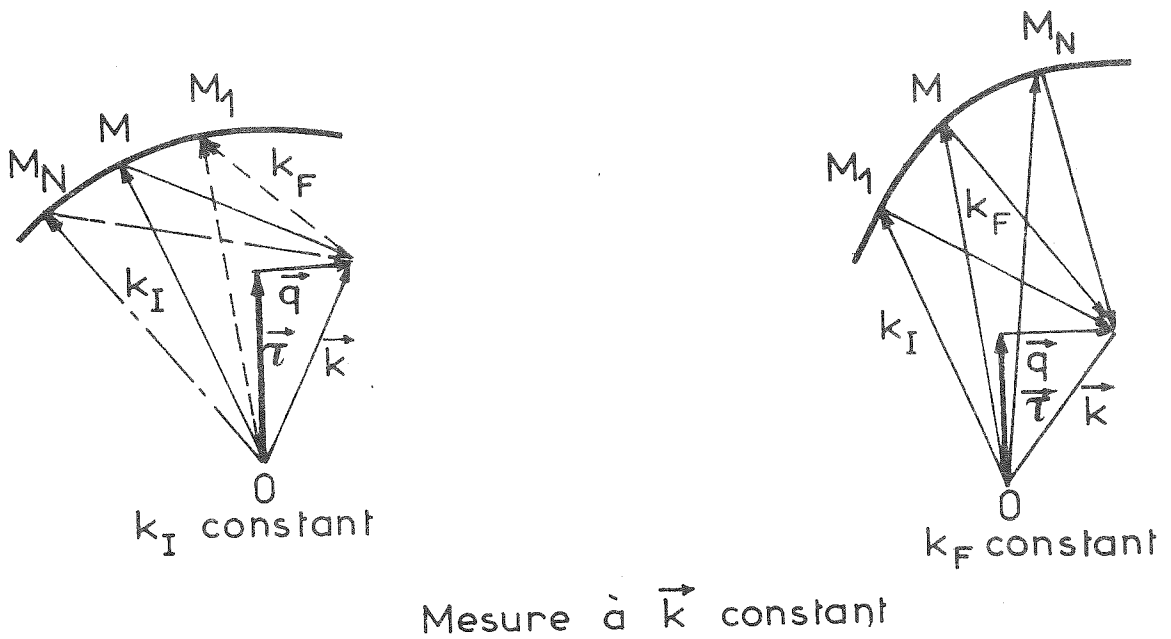


Figure II-5 b) Représentations dans le réseau réciproque de la mesure à \vec{k} constant.

constant, le vecteur d'onde \vec{K} est gardé constant en module (et par conséquent \vec{q} et \vec{r} puisque $\vec{K} = \vec{q} + \vec{r}$). Le seul paramètre variable est la fréquence ω . Dans l'espace (\vec{K}, ω) , la mesure consiste à décrire une portion de droite $A_1 A_N$ (figure II-5a). En chacun des points A_i , on compte le nombre de neutrons diffusés pendant un certain temps. On obtient ainsi un groupe de neutrons. Dans le schéma de diffusion dans le réseau réciproque le point M se déplace sur un cercle centré en O si l'énergie des neutrons incidents ($|\vec{k}_I|$) est gardée constante. L'extrémité du vecteur k_I se déplace de M_1 à M_N . Si l'énergie des neutrons diffusés $|\vec{k}_F|$ est gardée constante, le point M décrit un arc de cercle $M_1 M_N$ centré en R (figure II-5b).

2 - Méthode à " ω constant"

L'énergie de transfert $h\omega$ est gardée constante. La mesure dans l'espace (\vec{K}, ω) consiste à se déplacer sur une droite de l'espace réciproque du cristal ($[111]$, $[110]$, $[001]$). La figure II-6 montre le schéma de diffusion correspondant. Le réseau réciproque a été gardé fixe dans cette figure : $|\vec{k}_I|$ et $|\vec{k}_F|$ sont constants, ϕ et ψ varient. La mesure s'effectue en se déplaçant du point O_1 au point O_N . Dans le diagramme (ω, Q) de la figure II-7, où Q représente la droite considérée du réseau réciproque, on a représenté le chemin $O_1 O_N$.

C - PROBLEMES ASSOCIES A LA MESURE

1 - Combinaisons d'harmoniques

Lors de la monochromatisation, on sélectionne non seulement un neutron d'impulsion $|\vec{k}_I|$, mais également des neutrons correspondant aux harmoniques $2|\vec{k}_I|$, $3|\vec{k}_I|$, etc... Il en est de même pour l'analyseur lors de la sélection de $|\vec{k}_F|$, d'où la possibilité d'une infinité de schémas de diffusion. Dans la plupart des cas, seuls deux ou trois schémas sont possibles ; les autres sont éliminés pour plusieurs raisons : soit il n'y a aucun neutron ayant l'impulsion correspondante, soit le schéma de diffusion correspondant aux harmoniques n'a pas d'intersection avec la courbe de dispersion, ou bien encore si cette intersection existe la section efficace en est négligeable. En effet, l'harmonique le plus gênant est l'harmonique d'ordre 2 du monochromateur. Le troisième harmonique est souvent suffisamment faible pour être négligé. Par conséquent, au magnon recherché il risque de ne se superposer qu'une seule contribution complémentaire résultant de ce deuxième harmonique, mais qui peut être recueilli par le compteur s'il correspond à un harmonique de

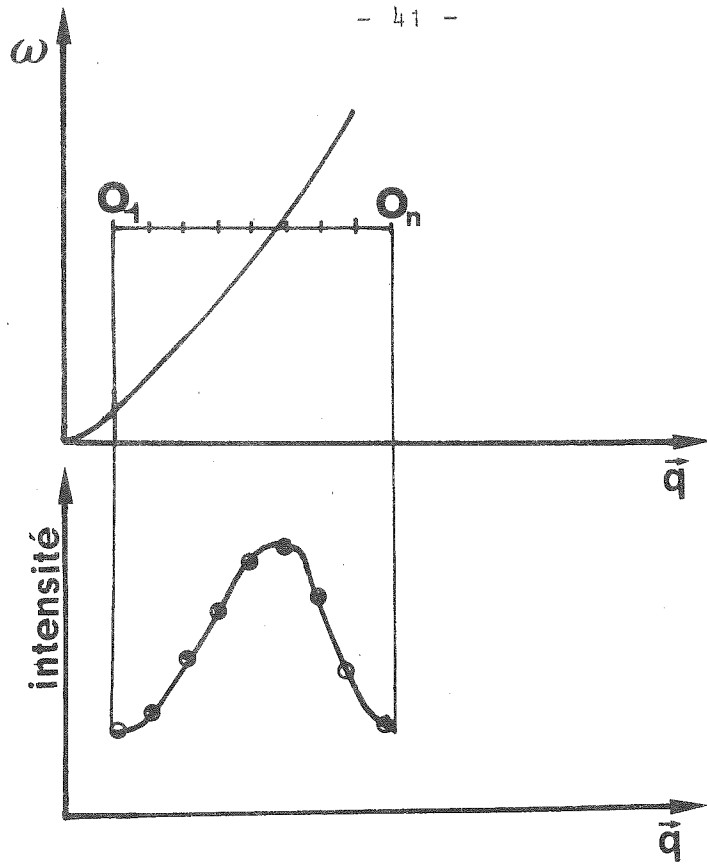


Figure II-6 : Mesure à ω constant.

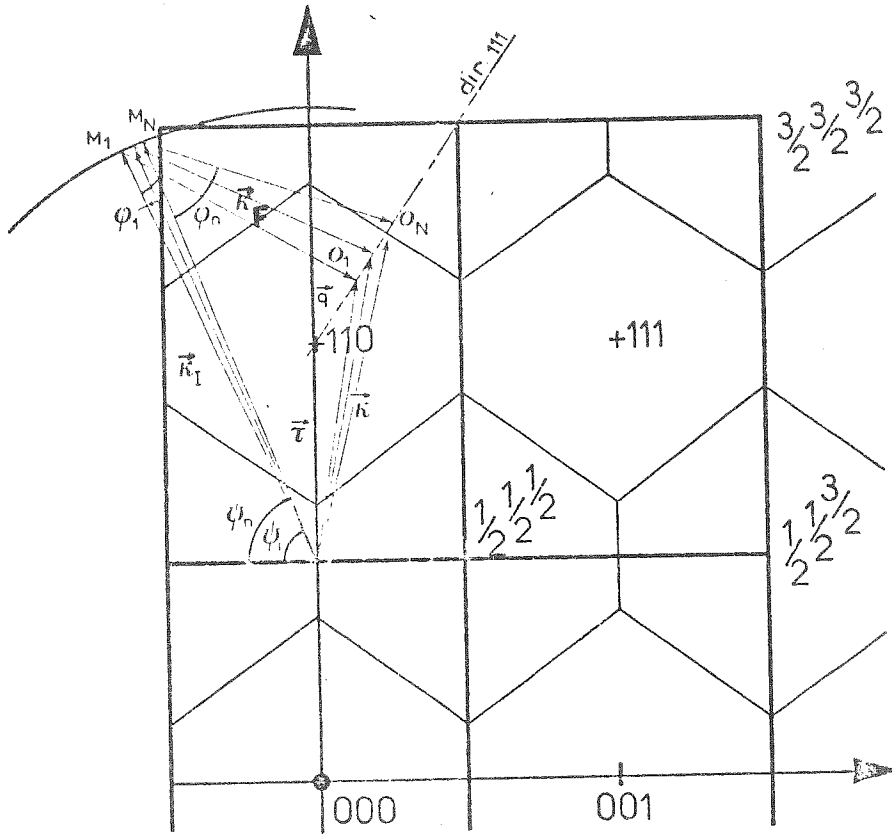


Figure II-7 : Représentations dans le réseau réciproque de la mesure à ω constant.

l'analyseur. Le fait de changer l'énergie initiale modifie les conditions de réflexion de l'analyseur, et dans la plupart des cas, alors que l'intensité diffusée par les magnons n'est pas modifiée, le pic correspondant à cette contribution supplémentaire disparaît. Cette méthode est régulièrement utilisée pour contrôler que l'intensité observée correspond à une diffusion par un magnon. Pour déterminer les conditions expérimentales de ces processus de diffusion multiple nous avons mis au point des diagrammes permettant de prévoir les positions des pics parasites et alors de les éliminer. Le schéma de principe de ces diffusions est porté sur la figure II-8. Les déplacements effectués par le spectromètre sont alors interdits dans les zones hachurées de cette figure.

Un exemple de contamination correspondant à une expérience effectuée sur IN1 est schématisée sur la figure II-9. Le neutron incident choisi a une impulsion $|\vec{k}_I| = 8.2 \text{ \AA}^{-1}$. La recherche d'une énergie transférée de 18.15 THz (75 meV) nous oblige à choisir une impulsion finale $|\vec{k}_F|$ de 5.57 \AA^{-1} . On constate que le plan (112) de l'échantillon est en position de diffraction pour les neutrons incidents d'impulsion $2|\vec{k}_I| = 16,4 \text{ \AA}^{-1}$ et dans les conditions angulaires ϕ et ω définissant l'expérience. Comme $2|\vec{k}_I| = 3|\vec{k}_F|$, toutes les conditions sont réunies pour que la raie diffractée (112) se superpose au signal inélastique recherché. Dans certains cas, on peut éliminer cette difficulté. D'une part l'utilisation d'un monochromateur tel que le Ge permet, en raison de sa structure diamant, d'éliminer les harmoniques d'ordre 2 lorsque le plan (111) est en position de réflexion. D'autre part l'interposition d'un filtre tel que le graphite, en raison de ses propriétés d'absorption, permet un affaiblissement du pic de Bragg.

2 - Bruit de fond

L'extraction d'un signal inélastique dans une expérience dépend comme on vient de le montrer de nombreux facteurs mais le problème le plus crucial est celui du bruit de fond. Les principales sources de bruit de fond sont :

- la perméabilité de la protection aux neutrons rapides,
- le bruit de fond de l'électronique,
- le bruit de fond intrinsèque à l'échantillon.

Il est possible de se protéger contre ces deux premières sources. Par contre, le bruit de fond lié à l'échantillon est difficile à supprimer si ce n'est impossible. Il provient de la diffusion incohérente de

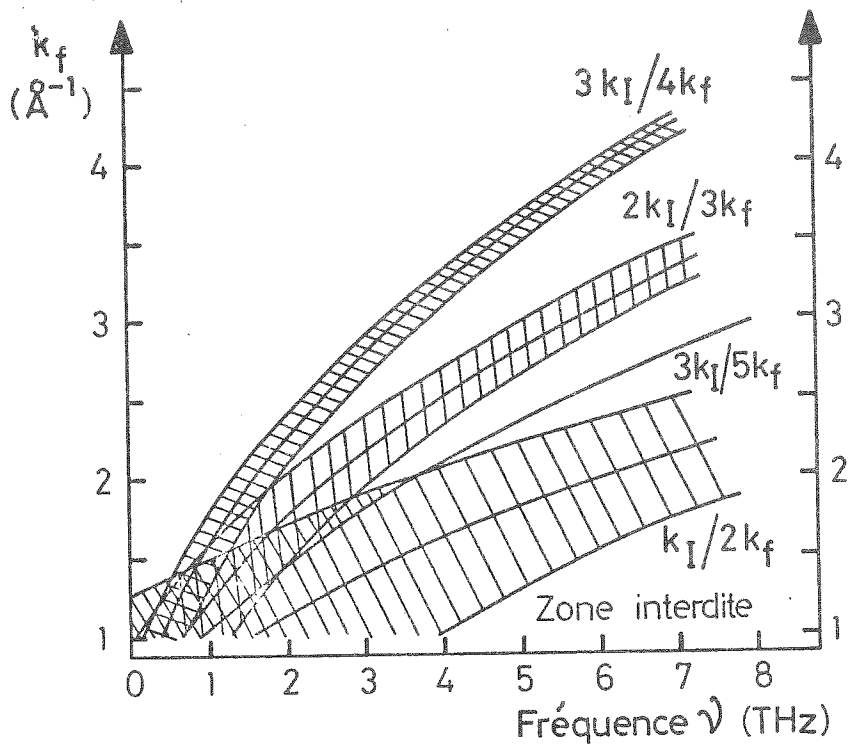


Figure II-8 : b) Ordres multiples : balayage à énergie finale constante.

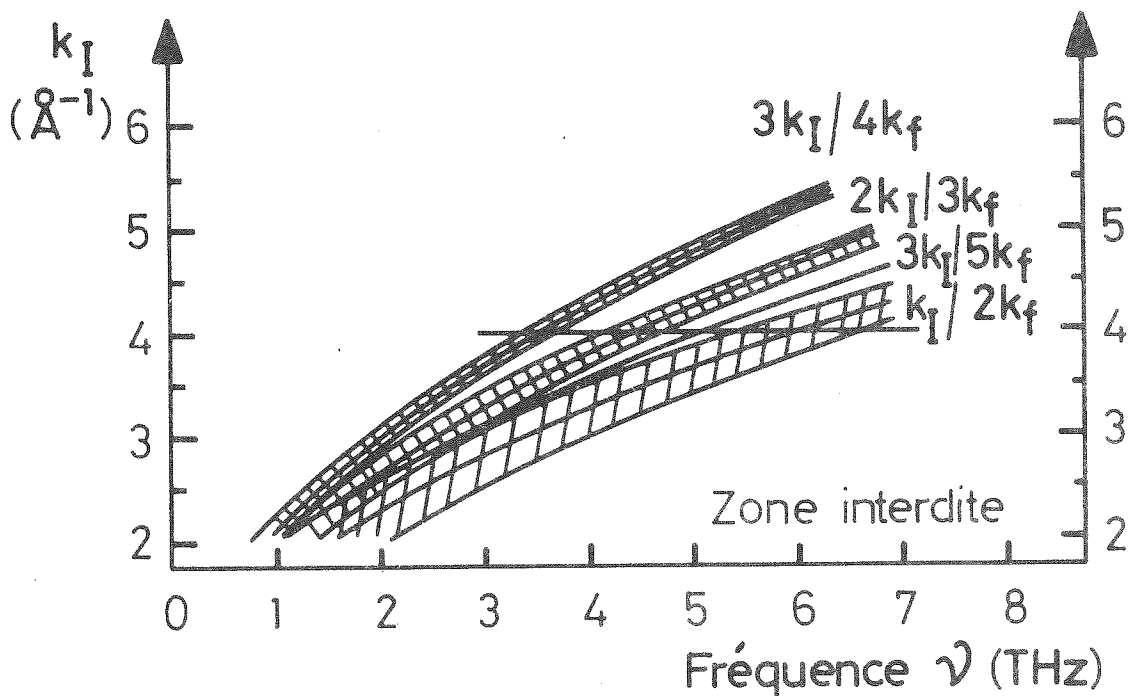


Figure II-8 : a) Ordres multiples : balayage à énergie initiale constante. Les bandes correspondent à l'étendue de l'ellipsoïde de résolution.

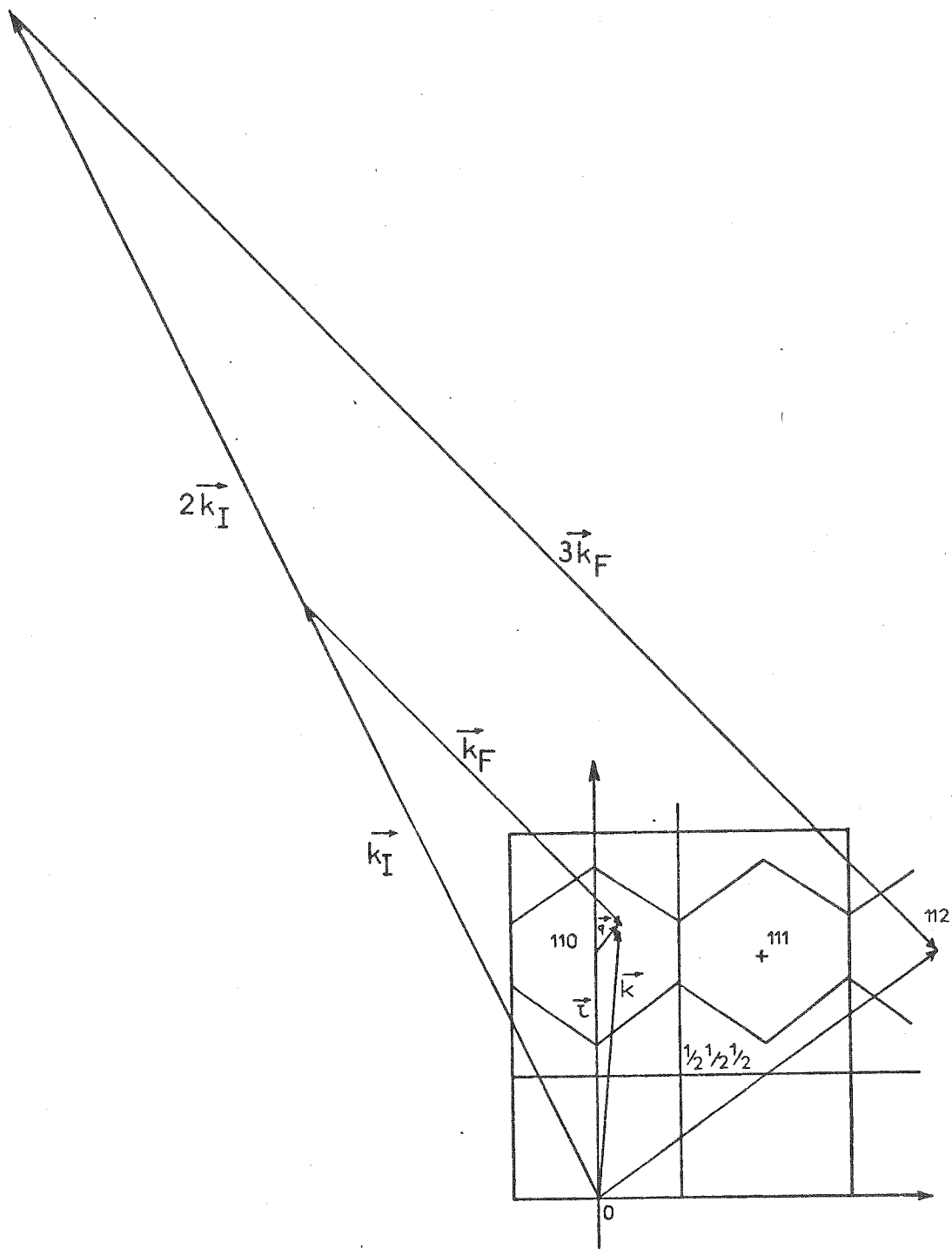


Figure II-9 : Exemple de contamination.

l'échantillon et de la contribution de l'environnement de l'échantillon dans le faisceau. Lorsque l'essentiel de la diffusion incohérente provient d'un mélange isotopique, la solution est d'utiliser un monocristal mono-isotopique, solution cependant très onéreuse. La polarisation nucléaire de l'échantillon, quand elle est possible, supprime l'incohérence de la diffusion par les spins nucléaires.

D - LA FONCTION DE RESOLUTION

1 - Introduction

Du processus de diffusion inélastique écrit ci-dessus, il apparaît que l'observation d'une excitation élémentaire ne serait possible que si le spectromètre à 3 axes est exactement positionné dans le schéma correspondant à une création d'excitations élémentaires. Cependant, dans la réalité, le processus a une certaine largeur qui en facilite l'étude. Cette largeur provient des imperfections de l'appareil : divergences angulaires horizontales et verticales, mosaïque des cristaux. Autrement dit, un neutron a toujours une certaine probabilité $R(\vec{k}, \omega)$ d'être diffusé dans des schémas \vec{k}', ω' différents du schéma primitif \vec{k}, ω . L'intensité que l'on recueille dans le détecteur est alors le produit de convolution de cette probabilité par la section efficace de diffusion inélastique, qui définit les points ω, \vec{q} pour lesquels la diffusion inélastique a lieu, avec leurs poids respectifs.

L'idéal serait de pouvoir déconvoluer ce produit afin d'atteindre directement la section efficace et donc la courbe de dispersion. En fait, cette déconvolution n'est actuellement pas possible. La seule possibilité pour tenir compte de la résolution de l'appareil est d'utiliser un modèle mathématique pour la section efficace et pour la fonction de résolution, d'en faire le produit de convolution et de comparer le résultat à l'expérience. Ce calcul d'intensité diffusée fait apparaître les principaux paramètres caractéristiques de l'appareil et permet de les optimiser :

- par le choix du monochromateur et de l'analyseur,
- par le choix des divergences angulaires,
- par le choix du schéma \vec{k}, ω qu'on peut a priori réaliser d'une infinité de façons, en changeant \vec{k}_I (et donc \vec{k}_F) ou \vec{r} .

Plusieurs auteurs se sont penchés sur le problème de la résolution des trois axes et son application à la mesure des excitations élémentaires. Parmi ceux-ci, on peut donner quelques références (COO 67, DOR 72, CHE 73, WER 71, COO 68a, COO 68b).

2 - Méthode de calcul de $R(\vec{k}, \omega)$

Soit $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ ($\beta_0, \beta_1, \beta_2, \beta_3$) les divergences angulaires horizontales-(verticales) des différentes parties du faisceau :

- 0 correspond au faisceau source-monochromateur,
- 1 correspond au faisceau monochromateur-échantillon,
- 2 correspond au faisceau échantillon-analyseur,
- 3 correspond au faisceau analyseur-détecteur.

Les indices M et A sont affectés au monochromateur et à l'analyseur.

On suppose que les lois de transmission des collimateurs et de distribution des mosaïques sont gaussiennes (les angles α_i correspondent alors à la largeur à mi-hauteur). Un neutron ayant des écarts γ et δ par rapport aux positions centrales a une probabilité $f(\gamma, \delta)$ de franchir le $i^{\text{ème}}$ collimateur :

$$f(\gamma, \delta) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\gamma}{\alpha_i} \right)^2 - \frac{1}{2} \left(\frac{\delta}{\beta_i} \right)^2 \right] \quad (\text{II-29})$$

de même la probabilité de réflexion d'un neutron sur un plan faisant les écarts ε et ε' avec le plan du cristal parfait :

$$\varepsilon_{M(A)}(\varepsilon, \varepsilon') = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\varepsilon}{\eta_{M(A)}} \right)^2 - \frac{1}{2} \left(\frac{\varepsilon'}{\eta'_{M(A)}} \right)^2 \right] \quad (\text{II-30})$$

avec $\eta_{M(A)}$ la mosaïque horizontale et $\eta'_{M(A)}$ la mosaïque verticale. On démontre aisément (cf. appendice 1) que les probabilités horizontales et verticales sont indépendantes lorsque les divergences et les mosaïques sont petites. Dans ce cas, la probabilité pour qu'un neutron de vecteur $\vec{k}_I = \vec{k}_I + d\vec{k}_I$ faisant des angles γ_0 et δ_0 par rapport à la position centrale arrive sur l'échantillon s'écrit :

$$P_1 = \frac{\beta_0 r_M}{\sqrt{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M}} \exp \left[-\frac{\delta_0^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_1} + \frac{1}{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M} \right) \right] \times \quad (\text{II-31})$$

$$\times \exp \left[-\frac{1}{2\alpha_0^2} \left(2\text{tg}\theta_M \frac{dk_I}{k_I} + \gamma_1 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_M^2} \left(\gamma_1 + \text{tg}\theta_M \frac{dk_I}{k_I} \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{\gamma_1^2}{2\alpha_1^2} \right]$$

r_M étant la réflectivité du monochromateur.

La probabilité d'obtenir dans le détecteur un neutron sortant de l'échantillon avec un vecteur d'onde $\vec{k}_F + d\vec{k}_F = \vec{k}_F'$ saisissant des angles γ_2 et δ_2 avec la direction centrale a une forme analogue :

$$P_2 = \frac{\beta_3 r_A}{\sqrt{\beta_3^2 + 4\eta_A'^2} \sin^2 \theta_A} \exp \left[-\frac{\delta_2^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_2^2} + \frac{1}{\beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A} \right) \right] \times \quad (II-32)$$

$$\times \exp \left[-\frac{1}{2\alpha_3^2} \left(2 \operatorname{tg} \theta_A \frac{dk_F}{k_F} - \gamma_2 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{\gamma_2^2}{2\alpha_2^2} \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_A^2} \left(\operatorname{tg} \theta_A \frac{dk_F}{k_F} - \gamma_2 \right)^2 \right]$$

Les neutrons incidents ($\vec{k}_I + d\vec{k}_I, \gamma_1, \delta_1$) et diffusés ($\vec{k}_F + d\vec{k}_F, \gamma_2, \delta_2$) définissant un schéma \vec{K}', ω' différent du schéma central défini par les neutrons ($\vec{k}_I, 0, 0$) et ($\vec{k}_F, 0, 0$).

Pour connaître la probabilité d'un schéma \vec{K}, ω lorsque les positions centrales définissent un schéma \vec{K}_0, ω_0 , il convient de sommer toutes les possibilités de réaliser le schéma \vec{K}, ω à partir de \vec{k}_I et \vec{k}_F en les pondérant par les probabilités P_1 et P_2 définies ci-dessus ; la résolution de l'appareil s'écrit alors :

$$R(\vec{K}, \omega) = \int P_1(\vec{k}_I + d\vec{k}_I, \gamma_1, \delta_1) P_2(\vec{k}_F + d\vec{k}_F, \gamma_2, \delta_2) \delta(\vec{k}_I + d\vec{k}_I - \vec{k}_F - d\vec{k}_F - \vec{Q}) \times$$

$$\times \delta \left[\frac{\hbar^2}{2m_n} \left[(\vec{k}_I + d\vec{k}_I)^2 - (\vec{k}_F + d\vec{k}_F)^2 \right] - \hbar\omega \right] d(dk_I) d(dk_F) d\delta_1 d\delta_2 d\gamma_1 d\gamma_2 \quad (II-33)$$

Cette intégrale à 6 dimensions est ramenée à 2 dimensions en tenant compte des fonctions δ qui donnent directement 4 relations. En raison de l'indépendance des variables horizontales et verticales, on intègre la probabilité horizontale sur γ_1 et la probabilité verticale sur δ_1 . Un calcul algébrique sans difficulté de principe montre que lorsque le domaine d'interprétation s'étend à l'infini, on obtient (cf. appendice 2) :

$$R(\vec{K}, \omega) = R_0 \exp \left[-\sum_{ij} X_i A_{ij} X_j \right] \quad (II-34)$$

avec $X_i = (\vec{K} - \vec{K}_0)_i \quad i = 1, 3$

$X_4 = \omega - \omega_0$

et $A_{i3} = 0 \quad \text{si } i \neq 3.$

R_0 et les A_{ij} sont fonction des paramètres caractéristiques du spectromètre et des valeurs centrales \vec{k}_0 , ω_0 , \vec{k}_I et \vec{k}_F ; les surfaces d'équiprobabilité $R(\vec{K}, \omega) = \text{cte}$ sont des ellipsoïdes centrées sur \vec{k}_0, ω_0 . On parle d'ordinaire de l'ellipsoïde de résolution en faisant référence à l'ellipsoïde $R(\vec{K}, \omega) = \frac{1}{2} R_0$.

3 - Intensité détectée

L'intensité détectée pour une position du spectromètre est le résultat de la convolution de cette fonction $R(\vec{K}, \omega)$ avec la section efficace de diffusion inélastique des neutrons. Soit :

$$I = C \int R(\vec{K} - \vec{k}_0, \omega - \omega_0) S(\vec{K}, \omega) d\vec{K} d\omega \quad (\text{II-35})$$

ou encore :

$$I = C \int R(\vec{X}) S(\vec{X} + \vec{X}_0) d_4 X \quad (\text{II-36})$$

où C est une constante d'appareillage qui tient compte du flux sortant du réacteur, du volume de l'échantillon et de l'efficacité du détecteur. C étant une simple constante multiplicative, nous n'en tiendrons plus compte dans la suite.

A ce stade du calcul, une remarque s'impose : les expériences sont effectuées dans un plan de diffusion horizontale. Dans ce cas, si la section efficace de diffusion inélastique ne présente pas de singularité autour de $q_z = 0$ ou de corrélation forte entre q_z et q_x et q_y , on peut continuer à séparer la partie verticale des formules de résolution. Autrement dit, cette résolution verticale se comporte comme un facteur multiplicatif. Pour rendre l'intensité diffusée la plus importante possible, le spectromètre doit être compact afin que les divergences verticales soient grandes. Le calcul de l'intensité diffusée n'est plus à effectuer que dans l'espace à trois dimensions K_x, K_y, ω .

La forme théorique de la section efficace inélastique nécessaire à la suite du calcul contient 2 termes : l'un est composé d'une fonction delta donnant l'équation de la surface de dispersion pour une largeur intrinsèque nulle du phénomène de diffusion inélastique ; l'autre contient les facteurs qui définissent les poids à attribuer aux différents points de la surface de dispersion (facteur de structure dynamique, facteur de population...). Nous allons supposer que ce dernier terme est constant dans le domaine d'intégration où la fonction de résolution est importante. Soit :

$$S(\vec{K}, \omega) = F \delta(\omega - f(\vec{K})) \quad (\text{II-37})$$

où $\omega = f(\vec{K})$ est l'équation de la surface de dispersion, donc :

$$I = F \int_{-\infty}^{+\infty} R(\vec{K} - \vec{K}_0, \omega - \omega_0) \delta(\omega - f(\vec{K})) d\vec{K} d\omega \quad (\text{II-38})$$

soit en introduisant la forme intégrale de la fonction delta, et les X_i comme précédemment :

$$I = F \int_{-\infty}^{+\infty} d_4 X R(\vec{X}) \frac{1}{2\pi} \exp\left[-i\mu(\omega_0 + X_4 - f(\vec{K}_0 + \vec{X}))\right] d\mu \quad (\text{II-39})$$

avec $(\vec{K} - \vec{K}_0)_{i=1, 3} = X_i$ et $\omega - \omega_0 = X_4$

or

$$R(\vec{X}) = R_0 \exp\left[-\sum_{ij} X_i A_{ij} X_j\right]$$

et si on développe $f(\vec{K}_0 + \vec{X})$:

$$f(\vec{K}_0 + \vec{X}) = f(\vec{K}_0) + \sum_i \left(\frac{\partial f}{\partial X_i}\right)_{\vec{K}_0} X_i + \frac{1}{2} \sum_{ij} X_i \left(\frac{\partial^2 f}{\partial X_i \partial X_j}\right)_{\vec{K}_0} X_j + \dots \quad (\text{II-40})$$

L'intensité s'écrit alors :

$$I = \frac{F \cdot R_0}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\mu \int_{-\infty}^{+\infty} d_4 X \exp\left[-\sum_{ij} X_i C_{ij} X_j - \sum_i D_i X_i - E\right] \quad (\text{II-41})$$

avec
$$C_{ij} = A_{ij} - \frac{i\mu}{2} \left(\frac{\partial^2 f}{\partial X_i \partial X_j}\right)_{\vec{K}_0}$$

sachant que $\frac{\partial^2 f}{\partial X_i \partial X_j} = 0$, si i ou $j = 4$

$$D_i = -i\mu \left(\frac{\partial f}{\partial X_i}\right)_{\vec{K}_0} \quad \text{et} \quad D_4 = i\mu$$

$$E = i\mu \left[\omega_0 - f(\vec{K}_0)\right]$$

après un changement de variable sur les X_i , l'intensité s'écrit :

$$I = \frac{F \cdot R_0}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\mu \int_{-\infty}^{+\infty} d_4 X' \exp\left[-\sum_i a_i(\mu) X_i'^2\right] \exp\left[-K(\mu)\right] \quad (\text{II-42})$$

avec
$$K(\mu) = \frac{\mu^2}{4} \sum_i d_i \frac{\det \bar{C}'_i}{\det \bar{C}} + i\mu(\omega_0 - f(\vec{K}_0))$$

où
$$d_i = \left(\frac{\partial f}{\partial X_i}\right)_{\vec{K}_0} \quad \text{et} \quad d_4 = -1$$

Les matrices \bar{C}'_i sont obtenues en remplaçant dans la matrice \bar{C} la ième colonne par la colonne formée par les d_i . L'intégration sur les X' conclut à :

$$I = \frac{F.R_o}{2\Pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\mu \frac{(\sqrt{2\Pi})^4}{\sqrt{\alpha_1 \alpha_2 \alpha_3 \alpha_4}} \exp[-K(\mu)] \quad (\text{II-43})$$

avec $\alpha_1 \alpha_2 \alpha_3 \alpha_4 = \det \bar{C}$

$$\text{et } I = (2\Pi)^2 \frac{F.R_o}{2\Pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\mu}{\sqrt{\det \bar{C}}} \exp[-K(\mu)] \quad (\text{II-44})$$

Finalement, le calcul aboutit à l'intégration à une dimension d'une fonction complexe d'une variable réelle.

Dans l'approximation d'un développement de la surface de dispersion au premier ordre $\bar{C} = \bar{A}$ et on peut écrire :

$$I = F.R_o \frac{2\Pi}{\sqrt{\det \bar{A}}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\mu \exp\left[-\frac{\mu^2 \sigma^2}{4} + i\mu d_o\right] \quad (\text{II-45})$$

$$\text{avec } \sigma^2 = \sum_i d_i \frac{\det \bar{C}'_i}{\det \bar{A}} \quad \text{et } d_o = \omega_o - f(\vec{K}_o)$$

L'intégration de cette fonction simple donne alors l'expression analytique de l'intensité :

$$I = R_o F \frac{(2\Pi)^{3/2}}{\sqrt{\det \bar{A}}} \frac{2}{|\sigma|} \exp\left[-\frac{d_o^2}{\sigma^2}\right] \quad (\text{II-46})$$

Dans cette expression, l'importance relative des différents paramètres apparaît ; le volume de l'ellipsoïde de résolution qui s'écrit :

$$\frac{4\Pi^2 R_o}{\sqrt{\det \bar{A}}} \quad (\text{cf. Appendice 2})$$

montre comme on pouvait s'y attendre que l'intensité détectée est proportionnelle à ce volume. D'autre part, la distance du point de mesure à la surface de dispersion intervient par d_o (car cette distance est égale à :

$$\frac{d_o}{\sqrt{1 + \left|\frac{\partial f}{\partial K}\right|_o^2}})$$

L'expression de cette distance montre que l'on a intérêt à prendre un chemin expérimental parallèle au gradient de la courbe de dispersion.

σ représente la largeur de l'intensité dans l'espace réciproque. Cette largeur contient un mélange de résolution et de courbe de dispersion qu'il convient de minimiser pour obtenir les conditions de focalisation.

4 - Conditions de focalisation

Lors d'un balayage à \vec{q} constant si l'on veut calculer le nombre de neutrons arrivant sur le détecteur, il faut intégrer l'expression analytique de l'intensité sur la variable énergie qui varie entre 0 et l'infini :

$$N = R_0 F \frac{(2\pi)^{3/2} 2}{\sqrt{\det \bar{A}} |\sigma|} \int_0^{+\infty} \exp \left| -\frac{\omega_0^2}{\sigma^2} \right| d\omega_0 \quad (\text{II-47})$$

soit $N = \frac{FR_0 4\pi^2}{\sqrt{\det \bar{A}}} = F.V$, où V est le volume de l'ellipsoïde de résolution.

L'échantillon n'intervient dans cette intensité totale que par le facteur F. L'expression de N est calculée explicitement dans l'appendice 2. Soit en omettant le facteur F

$$N = \frac{(2\pi)^{3/2} \alpha_0 \alpha_1 \beta_0 \beta_1 \eta_M k_I^3 |\cotg \theta_M|}{\sqrt{(\beta_0^2 + \beta_1^2 + 4\eta_M^2 \sin^2 \theta_M)(\alpha_0^2 + \alpha_1^2 + 4\eta_M^2)}} \frac{(2\pi)^{3/2} \alpha_2 \alpha_3 \beta_2 \beta_3 \eta_A k_F^3 |\cotg \theta_A|}{\sqrt{(\beta_2^2 + \beta_3^2 + 4\eta_A^2 \sin^2 \theta_A)(\alpha_2^2 + \alpha_3^2 + 4\eta_A^2)}} \quad (\text{II-48})$$

D'autre part, un calcul sans difficulté de principe nous donne l'expression de la largeur σ (cf. Appendice 3) qui s'écrit :

$$\sigma^2 = \frac{(\alpha_1^2 + \alpha_0^2) \eta_M^2 + \alpha_1^2 \alpha_0^2}{\alpha_1^2 + \alpha_0^2 + 4\eta_M^2} k_I^4 \cotg^2 \theta_M + \frac{(\alpha_2^2 + \alpha_3^2) \eta_A^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2}{\alpha_2^2 + \alpha_3^2 + 4\eta_A^2} k_F^4 \cotg^2 \theta_A \quad (\text{II-49})$$

avec k_I exprimé en \AA^{-1} on obtient σ en TeraHertz (10^{12} Hz). Cette largeur qui a pu être calculée moyennant l'approximation du développement de la surface au premier ordre est exacte dans le cas d'une branche plate. On obtient alors la largeur en énergie d'un balayage à \vec{q} constant et sa dépendance en fonction des divergences angulaires.

Comparons les variations de la largeur en énergie ou de l'intensité en fonction de $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ sur un exemple : Dans le cas d'un balayage en température réalisé sur FeRh avec le spectromètre à trois axes IN8. Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- monochromateur de Cu réflexion sur (111) - mosaïque $\eta_M = 30'$
- analyseur graphite pyrolitique réflexion sur (002) - mosaïque $\eta_A = 30'$.

$$\alpha_0 = 60' ; \alpha_1 = 30' ; \alpha_2 = 40' ; \alpha_3 = 40'$$

$$\beta_0 = 60' ; \beta_1 = 60' ; \beta_2 = 60' ; \beta_3 = 60'$$

Le balayage est réalisé dans le réseau réciproque au point $K_x = 0,75$; $K_y = 0,75$; $K_z = 0,75$ en laissant k_F constant. Sa valeur est de $4,85 \text{ \AA}^{-1}$. Pour obtenir un transfert d'énergie variant entre $\omega = 9 \text{ THz}$ et $\omega = 14 \text{ THz}$, la valeur de k_I varie entre $6,51 \text{ \AA}^{-1}$ et $7,17 \text{ \AA}^{-1}$. Le point central du pic utilisé dans ce calcul est situé à $k_I = 6,81 \text{ \AA}^{-1}$ et $\omega = 11,5 \text{ THz}$. θ_M vaut $12,76^\circ$ et θ_A est égal à $-11,13^\circ$.

On obtient une largeur de $2,03 \text{ THz}$, résultat en accord avec l'expérience. L'intensité recueillie dans le détecteur a pour valeur $7,5 \cdot 10^{-5} \text{ FC}$ (C étant la constante d'appareillage précédemment définie et F la constante intervenant dans la section efficace). En changeant de collimateur α_1 passe de $30'$ à $60'$. La largeur devient alors de $2,71 \text{ THz}$, et l'intensité atteint $1,29 \cdot 10^{-4} \text{ FC}$. Une augmentation de 33% est obtenue pour la largeur et de 72% pour l'intensité. Donc si l'intensité du signal n'est pas très forte et que la largeur n'est pas critique, il est plus intéressant de travailler avec une forte divergence en α_1 , car les temps de comptage sont plus courts. Sur la figure II-10, nous avons porté l'intensité et la largeur en fonction de α_1 .

La diminution de la largeur en énergie d'un groupe de neutrons s'accompagne d'une chute très importante de l'intensité diffusée. Quoi qu'il en soit, c'est toujours la divergence la plus large qui va déterminer la largeur totale en énergie. Cependant, le meilleur compromis entre la largeur et l'intensité correspond à des valeurs des divergences angulaires α_0 , α_1 , α_2 et α_3 du même ordre de grandeur si l'obtention d'une faible largeur du groupe de neutrons n'est pas le critère essentiel.

Une fois les différentes collimations choisies on peut rechercher grâce aux formules ci-dessus le meilleur compromis entre \vec{k}_I et \vec{k}_F . Nous avons tracé sur la figure II-11, à titre d'exemple, les abaques représentant la largeur et l'intensité du groupe observé en fonction de l'énergie d'échange désirée et ceci pour une valeur de \vec{k}_I (donc de \vec{k}_F). On constate que lors de la recherche d'un magnon d'énergie 10 THz par une méthode à \vec{q} constant le meilleur compromis entre l'intensité et la largeur en énergie est obtenu pour une valeur de \vec{k}_I voisine de $6,5$. Le choix de cette valeur dépend également des risques de diffusion multiple et de la qualité de la réflectivité du monochromateur utilisé. En effet, la réflectivité d'un monochromateur dépend de l'énergie des neutrons

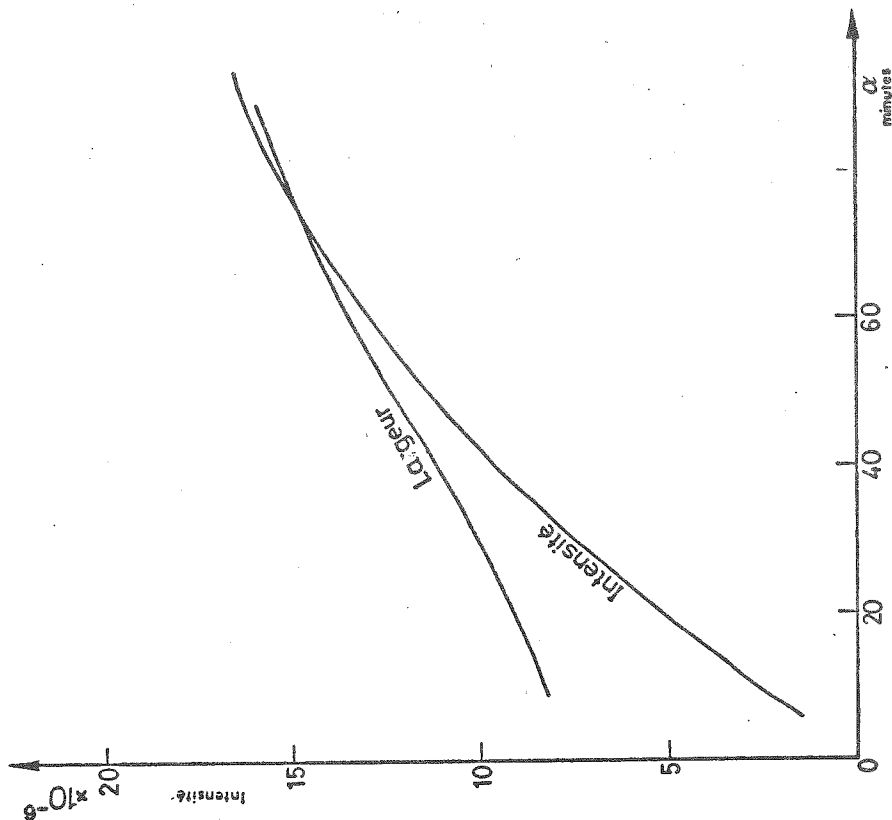


Figure II-10 : Intensité et largeur d'un groupe de neutrons en fonction de α_1 divergence horizontale du collimateur entre le monochromateur et l'échantillon.

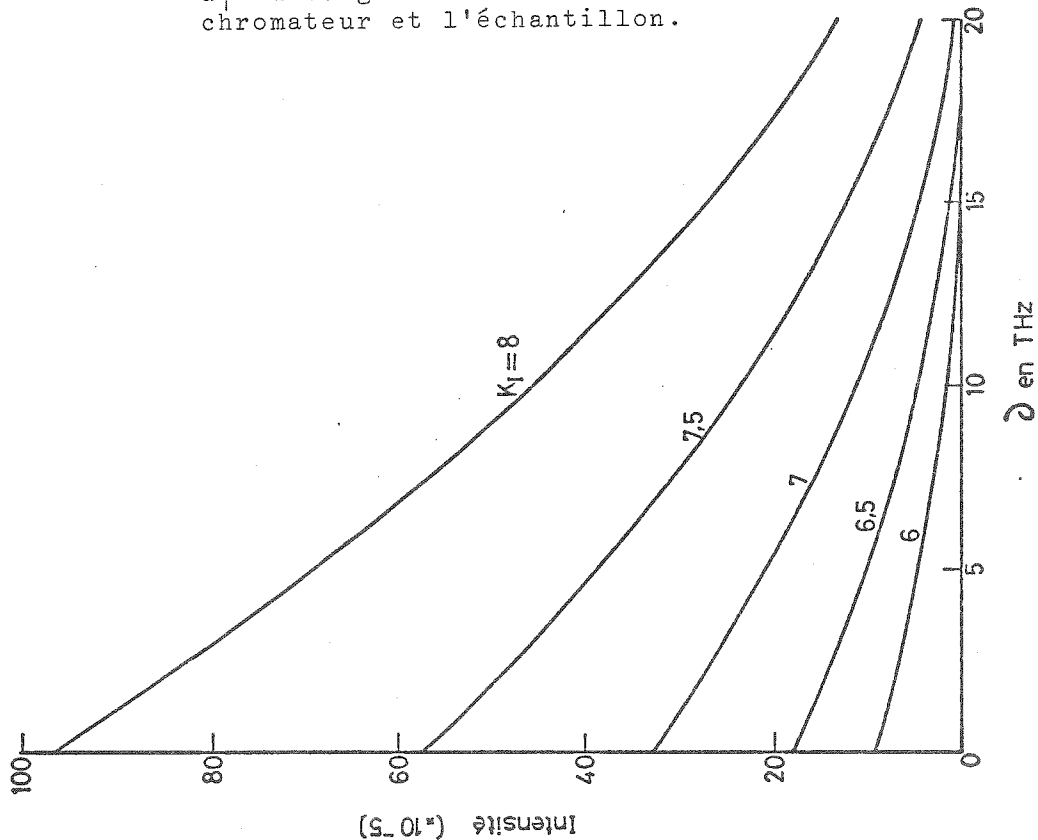
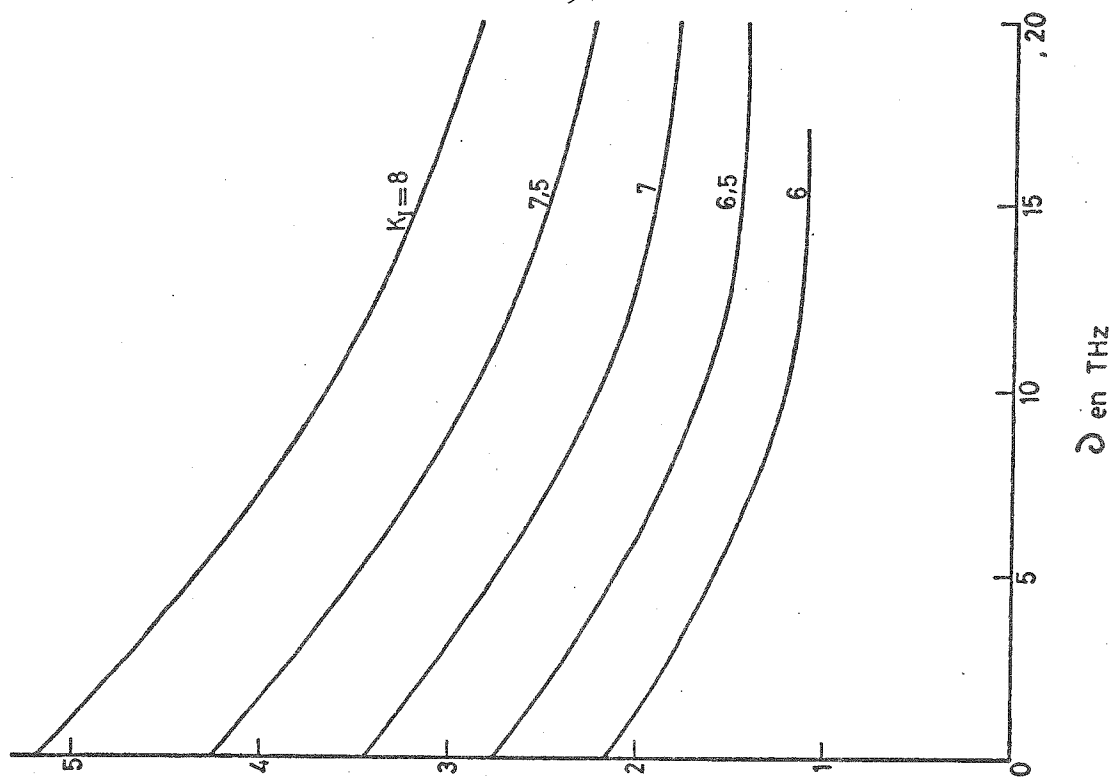
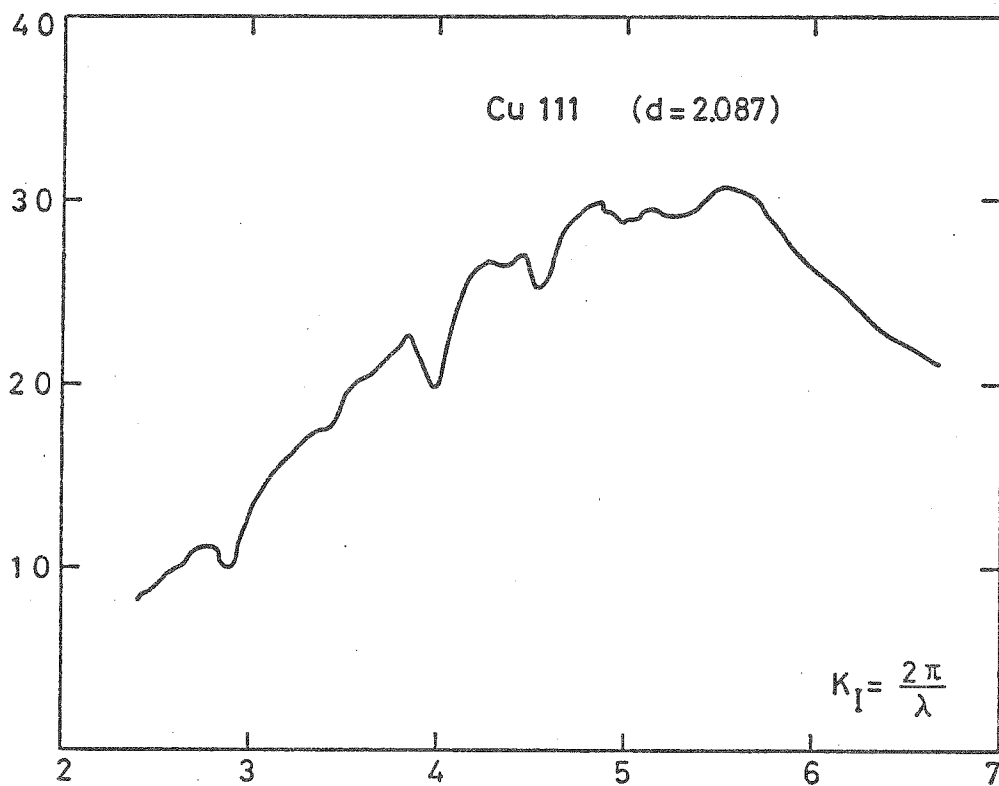


Figure II-11 : a) Intensité du groupe de neutrons en fonction de l'énergie d'échange choisie pour un k_I donné ($\alpha_0 = 50'$, $\alpha_1 = 30'$, $\alpha_2 = 40'$, $\alpha_3 = 40'$).



largeur W en THz

Figure II-11 : b) Largeur du groupe de neutrons en fonction de l'énergie d'échange choisie pour un k_I donné ($\alpha_0 = 50'$, $\alpha_1 = 30'$, $\alpha_2 = 40'$, $\alpha_3 = 40'$).



$$k_I = \frac{2\pi}{\lambda}$$

Figure II-12 : Flux de neutrons après le monochromateur de IN8 en fonction de k_I .

incidents. A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure II-12 le flux de neutrons après le monochromateur de IN8 en fonction du vecteur d'onde \vec{k}_I . C'est le produit de la réflectivité du monochromateur de Cu positionné sur la raie (111) et du spectre de neutrons sortant de la pile.

5 - Influence de la mosaïque de l'échantillon

Les calculs précédents ont été effectués en considérant que l'échantillon utilisé était parfait, c'est-à-dire avec une mosaïque nulle. En fait, chaque échantillon possède une mosaïque horizontale et verticale dont il faut tenir compte. Pour inclure ce facteur dans l'expression de l'intensité on doit intégrer celle-ci sur les angles polaires ϕ et ψ qui sont les variables intervenant dans la distribution de la mosaïque $\rho(\phi, \psi)$ (BJE 70) :

$$I = F \int_{-\infty}^{+\infty} d\phi \int_{-\infty}^{+\infty} d\psi \rho(\psi, \phi) \int_{-\infty}^{+\infty} R |(\vec{k} - \vec{k}_0), \omega - \omega_0| \delta(\omega - f(\vec{k})) d\vec{k} d\omega \quad (\text{II-50})$$

Si la distribution de la mosaïque est gaussienne, on peut transformer l'intégration par changement de variable et obtenir une expression analogue à celle obtenue au paragraphe 2. Soit :

$$R' |\vec{k}, \omega| = R_0 \exp - \sum_{ij} X_i' A_{ij}' X_j'$$

$$\text{avec } A_{ij}' = A_{ij} - \frac{A_{iz} A_{jz}}{\frac{1}{\eta_{sv}^2 K_0^2} + A} \quad (\text{II-51})$$

$$A_{33}' = A_{33} - \frac{A_{33}^2}{\left(\frac{1}{\eta_{sv}^2 K_0^2} + A_{33}\right)} \quad (\text{II-52})$$

$$\text{et } R_0' = \frac{R_0}{\eta_{sv} \eta_{sH} \sqrt{\left(\frac{1}{\eta_{sv}^2} + K_0^2 A_{33}'\right) \left(\frac{1}{\eta_{sH}^2} + K_0^2 A_{33}'\right)}} \quad (\text{II-53})$$

où η_{sv} et η_{sH} sont les mosaïques horizontales et verticales de l'échantillon. On note que A_{ij}' est plus petit que A_{ij} et en conséquence la nouvelle fonction de résolution R' est plus étendue que R dans l'espace ω, \vec{k} . A partir de ces nouvelles expressions, on obtient comme précédemment la largeur du groupe de neutrons et l'intensité diffusée.

Ces calculs laborieux rendent la préparation et l'analyse de l'expérience plus rapides. Cependant, ils sont effectués par un ordinateur grâce à un programme complexe. On obtient alors directement la forme théorique et l'intensité relative du groupe de neutrons recherchés dans les conditions de l'expérience.

C H A P I T R E I I I

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DU COMPOSÉ ÉQUIATOMIQUE FERH

INTRODUCTION

Nous présentons dans ce chapitre les résultats que nous avons obtenus en ce qui concerne les ondes de spin dans les phases antiferromagnétique et ferromagnétique. Ceux-ci ont été déterminés au moyen de la diffusion inélastique des neutrons sur les spectromètres à trois axes IN1 et IN8 à l'Institut Laue-Langevin ainsi que sur H4 et H1 à Saclay. Les études ont été faites dans l'intervalle de température 77 K - 800 K. L'utilisation intensive des calculs décrits au chapitre précédent nous a permis non seulement de choisir des paramètres tels que les collimations, les zones de mesure, la longueur d'onde incidente, etc... mais encore d'extraire des groupes de neutrons observés les largeurs physiques.

Dans un premier paragraphe, après une description du réseau réciproque du composé FeRh dans les phases antiferromagnétique et ferromagnétique, nous donnons un compte-rendu détaillé des différents monochromateurs, analyseurs et collimateurs utilisés sur les spectromètres. Nous énumérons ensuite les zones de Brillouin dans lesquelles les mesures ont été effectuées. Enfin, nous décrivons les différents dispositifs expérimentaux (fours, cryostats) qui ont été nécessaires à la réalisation de nos mesures. Le deuxième paragraphe est consacré à la fabrication et aux propriétés du monocristal étudié. Nous expliquons en détail son mode de préparation avant d'aborder le problème de la détermination de sa température de transition. Une étude détaillée de l'échantillon a montré en fait qu'il est formé d'un ensemble de cristaux de concentration légèrement voisine ; ceci étant d'ailleurs sans conséquence sur les mesures de diffusion inélastique comme nous l'expliquons ensuite.

Dans le troisième paragraphe, nous abordons les résultats expérimentaux proprement dits. La phase antiferromagnétique est décrite en premier lieu. Une comparaison est faite entre les résultats obtenus pour FeRh avec ceux obtenus pour d'autres métaux de transition (cf. chapitre I). Une étude de la diffusion des neutrons lors du passage de la transition est alors détaillée. Puis nous décrivons les résultats obtenus dans la phase ferromagnétique à 470 K et en fonction de la température, jusqu'à la température de Curie (710 K). Nous montrons l'importance qu'il y a de connaître avec exactitude la courbe de dispersion de phonons. Enfin, nous discutons l'intensité et la forme du groupe de neutrons diffusés.

A - GENERALITES ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

1 - Réseau réciproque

La zone de Brillouin de la phase ferromagnétique correspond à celle de la maille cristallographique et sa section par le plan de diffusion $(1\bar{1}0)$ est dessinée sur la figure III-1. Les expériences de diffusion inélastique que nous avons entreprises sont réalisées dans ce plan. En effet, l'arrangement des moments correspond à deux sous-réseaux cubiques faces centrés dont les moments sont antiparallèles. Ils se déduisent l'un de l'autre par une translation $(a, a, 0)$.

Les vecteurs qui engendrent la maille élémentaire d'une structure cfc sont donnés sur la figure III-2. La zone de Brillouin correspondante est représentée sur la figure III-3. En conséquence, la section de la zone de Brillouin de la phase antiferromagnétique par le plan de diffusion $(1\bar{1}0)$ est montrée sur la figure III-1. Elle est comparée à celle de la phase ferromagnétique. La direction (111) joue un rôle tout particulier car elle reflètera les transformations les plus importantes du changement de phases.

2 - Réalisation expérimentales (monochromateurs, analyseurs, collimateurs)

Pour les mesures à haute énergie effectuées sur le spectromètre IN1, le cristal monochromateur est en Cu. Sa mosaïque η_M est de 20'. Il est utilisé en réflexion sur le plan (111) . La raie de diffraction correspondante permet en raison des conditions géométriques imposées par la construction de l'appareil d'atteindre des vecteurs d'onde k_{\perp} de $8,7 \text{ \AA}^{-1}$. Au-delà de cette valeur, il convient d'utiliser la raie (220) avec en

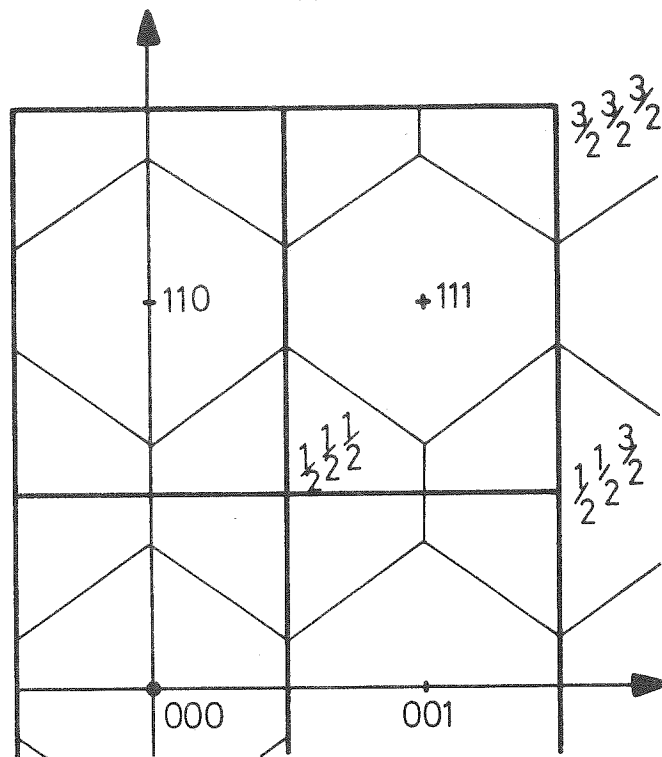


Figure III-1 : Section pour le plan $(1\bar{1}0)$ de la zone de Brillouin : la phase ferromagnétique est représentée en traits pleins ; la phase antiferromagnétique en traits fins.

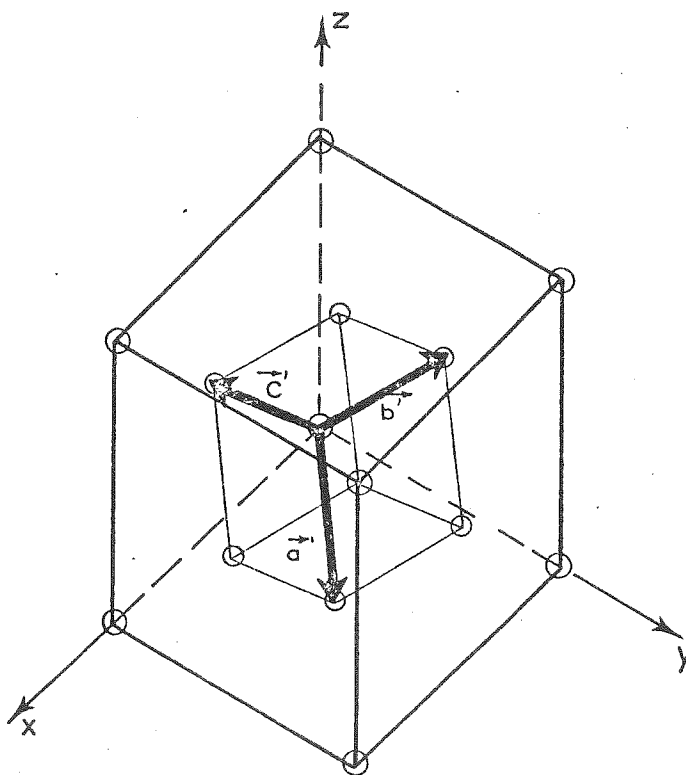


Figure III-2 : Vecteurs engendrant la maille élémentaire d'une structure c.f.c.

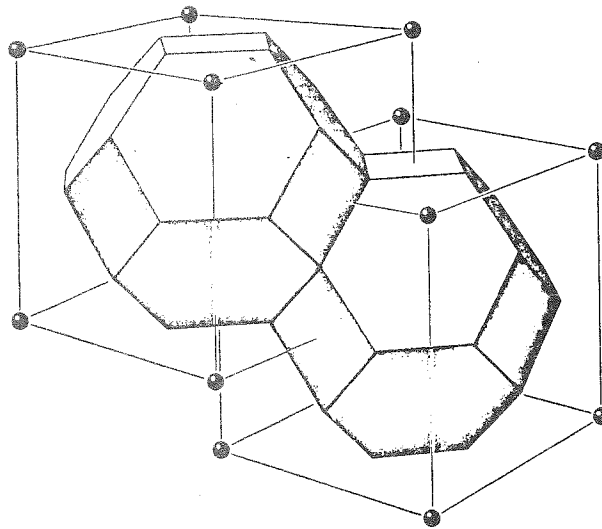


Figure III-3 : Zone de Brillouin de FeRh dans la phase antiferromagnétique.

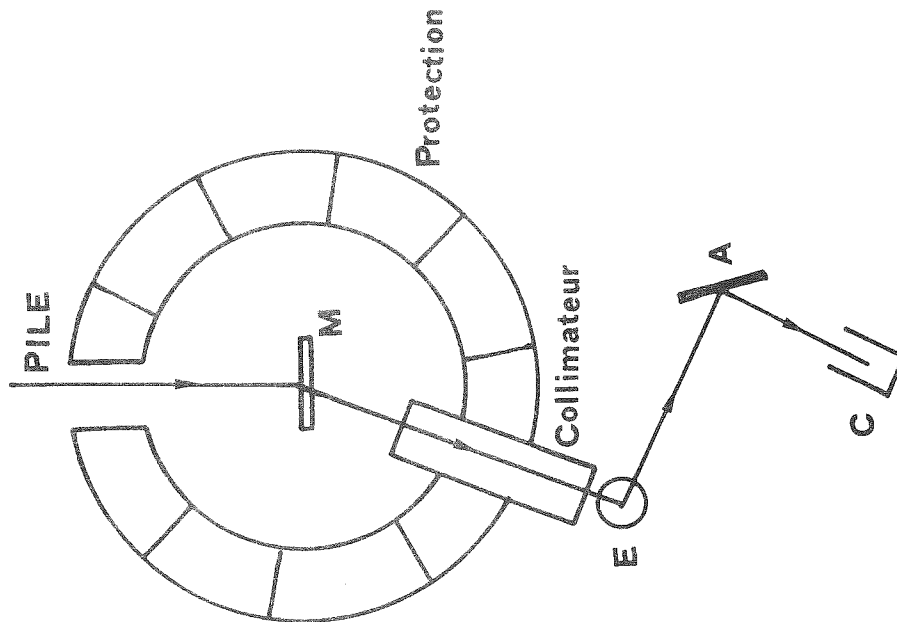


Figure III-4 : Schéma du spectromètre H4 (Saclay).

contrepartie une baisse de la réflectivité. La collimation entre le coeur de la pile et le monochromateur est fixée par la géométrie du canal à $\alpha_0 = 30'$. Entre le monochromateur et l'échantillon, le collimateur (α_1) est réglable entre $10'$ et $60'$. Entre l'échantillon et l'analyseur, la distance est de 2 m. La collimation résultante α_2 est de $30'$. Entre l'analyseur et le détecteur, un collimateur à lames amovibles de nickel cadmié permet, comme pour la collimation monochromateur-échantillon, de réaliser une collimation α_3 variable comprise entre $10'$ et $60'$. Les collimations verticales $\beta_0, \beta_1, \beta_2, \beta_3$ sont respectivement de $1^\circ, 2^\circ, 2^\circ, 5^\circ$.

IN8 a un ensemble monochromateur un peu différent de celui de IN1. Sur IN1, pour changer de vecteur d'onde \vec{k}_I , comme nous l'avons vu, on change de raie. Sur IN8, on change de cristal ; R. Currat a installé un dispositif de diffraction qui permet d'introduire le monochromateur préréglé sur une raie de diffraction bien définie. On dispose ainsi d'un cristal dont la réflectivité a été optimisée par une raie donnée. Il y a quatre cristaux monochromateurs disponibles : un en cuivre réglé sur la réflexion (111), un deuxième en cuivre réglé sur la réflexion (220), un en graphite réglé sur la réflexion (002) et enfin un en béryllium réglé sur la réflexion (002).

Le dispositif, bien que délicat, a montré son efficacité et sa souplesse. La collimation α_0 avant le monochromateur est réglable au moyen de quatre collimateurs différents que l'on peut placer dans le faisceau direct. Les valeurs de α_0 ainsi obtenues sont de $10', 30', 40'$ et $50'$. Les collimateurs α_1 avant l'échantillon, α_2 avant l'analyseur, et α_3 avant le compteur sont réglables au moyen de collimateurs à lames amovibles.

H₄, spectromètre situé dans le réacteur EL3 à Saclay, a pour monochromateur un monocristal de Ge écroui monté en transmission. On utilise la raie (111). En raison de la structure diamant du Ge, les neutrons de longueur d'onde moitié ne sont pas diffractés (la raie (222) étant interdite). Mécaniquement, sa construction est un peu différente (cf. figure III-4) et le changement de longueur d'onde se fait par simple rotation du monochromateur sur lui-même. L'avantage d'une telle construction (H₄) est sa compacité qui donne lieu à une plus grande divergence verticale et donc à une intensité résultante plus forte. Les collimations $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ sont respectivement de $50', 30', 2^\circ$ et $30'$.

Les analyseurs utilisés sont identiques sur les trois spectromètres ; il s'agit de graphie pyrolytique en réflexion-sur la raie (002).

3 - Zones de travail

Il a été dit au paragraphe II-A-1 lors des commentaires sur la section efficace de diffusion inélastique que le facteur de forme décroît lorsque le vecteur d'onde augmente. L'étude par neutrons polarisés de Shirane et Nathans (SHI 64) a précisé les facteurs de forme du Fe et du Rh dans $\text{Fe}_{52}\text{Rh}_{48}$ (figure III-5). La décroissance a pour conséquence principale d'obliger l'expérimentateur recherchant une bonne intensité diffusée à travailler dans une zone proche du centre du réseau. La figure III-1 nous montre que une des zones les plus proches dans la phase ferromagnétique est la zone (001). Celle-ci a effectivement été utilisée pour étudier le début de la courbe de dispersion dans la direction (001), mais c'est la zone (110) qui a été explorée intensivement en raison des problèmes de diffusion multiples rencontrés dans la zone (001). Dans la phase anti-ferromagnétique, les zones utilisées ont été la zone $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ et la zone (110). D'autres zones, comme la (111) ou la $(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \frac{3}{2})$ l'ont été occasionnellement.

4 - Temps de comptage

Pour mesurer un groupe de neutrons, le temps de comptage dépend de nombreux facteurs. Dans notre cas, le plus important est l'absorption par le cristal qui généralement décroît avec la longueur d'onde. Cette absorption dépend de l'épaisseur du cristal que le neutron doit traverser, et varie donc avec l'angle d'incidence ψ du faisceau sur la plaquette échantillon. Un autre facteur est la réflectivité du monochromateur pour la longueur d'onde incidente sélectionnée λ_I . Enfin, il convient de tenir également compte de la réflectivité de l'analyseur pour la longueur d'onde λ_F . L'ensemble de ces paramètres joints aux effets de résolution et de focalisation explique que la mesure d'un groupe de neutrons peut durer entre 1 h et 29 h.

5 - Dispositifs expérimentaux

Les mesures de diffusion inélastique ont été effectuées entre 77 K et 800 K. Pour les températures comprises entre 450 K et 300 K, nous disposons du four de l'I.L.L. dont nous présentons une coupe sur la figure III-6. L'échantillon est placé au centre de l'élément chauffant (résistor) en molybdène auquel on peut appliquer une tension de 6 v avec un courant de 400 Ampères. Un système de trois écrans en aluminium

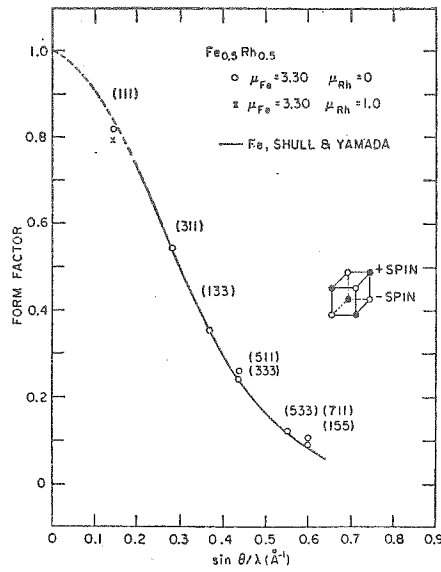


Figure III-5 : Facteur de forme du fer dans Fe₅₂Rh₄₈ (SHI 64).

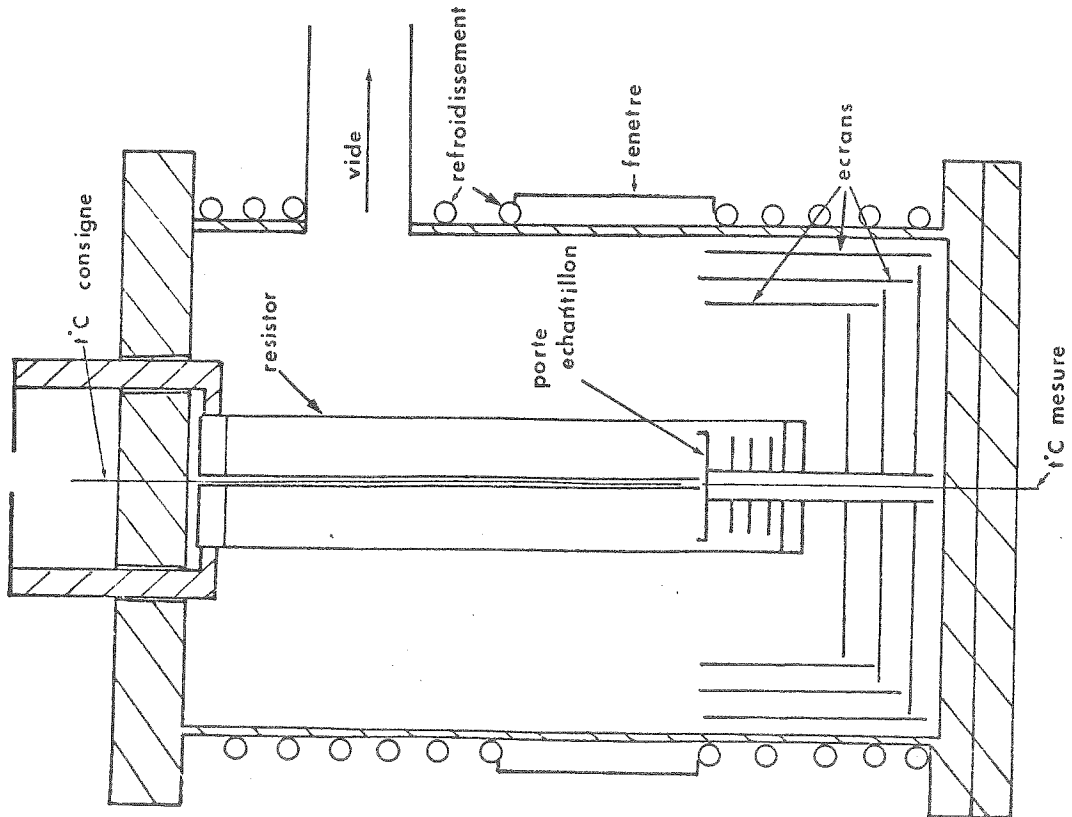
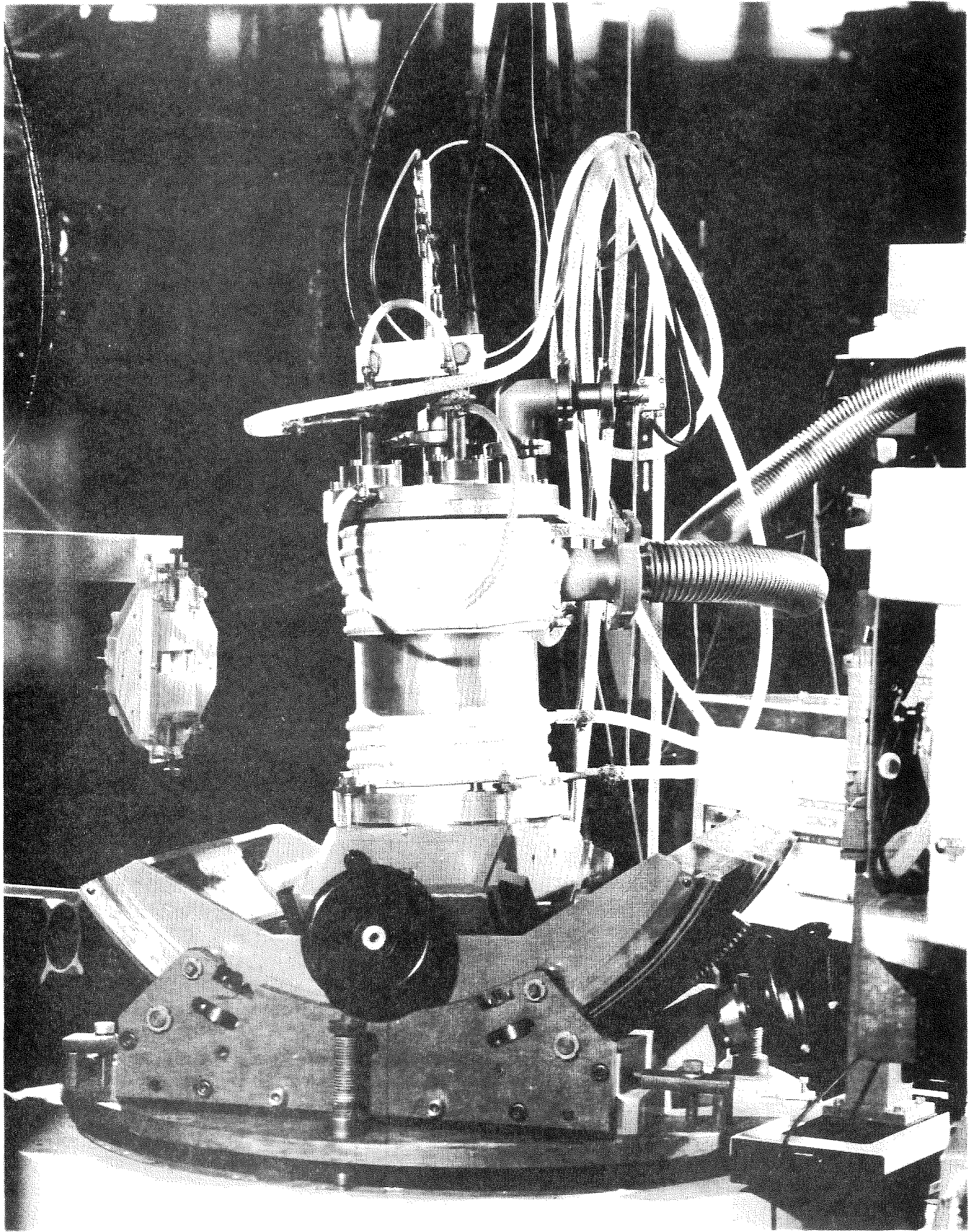
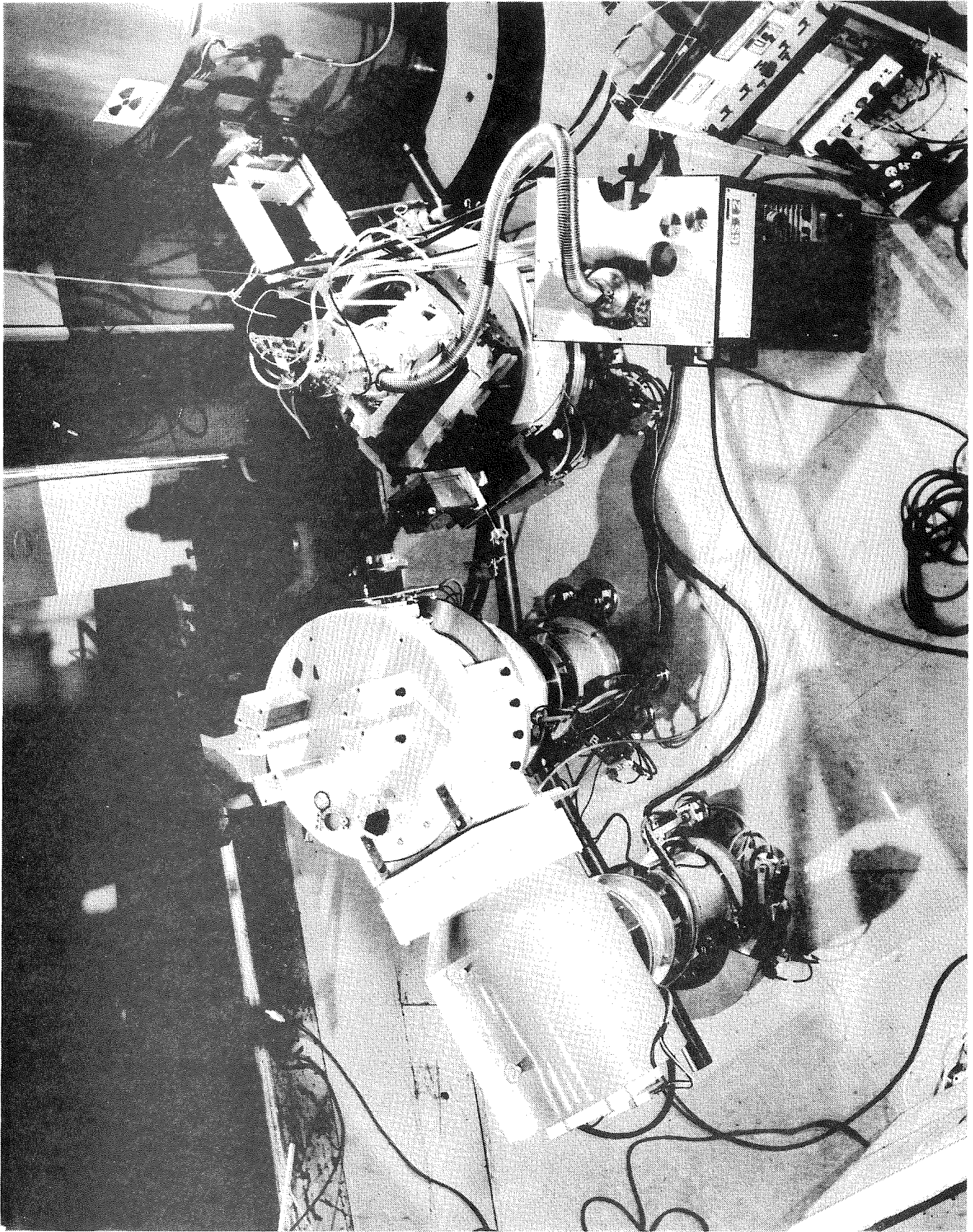


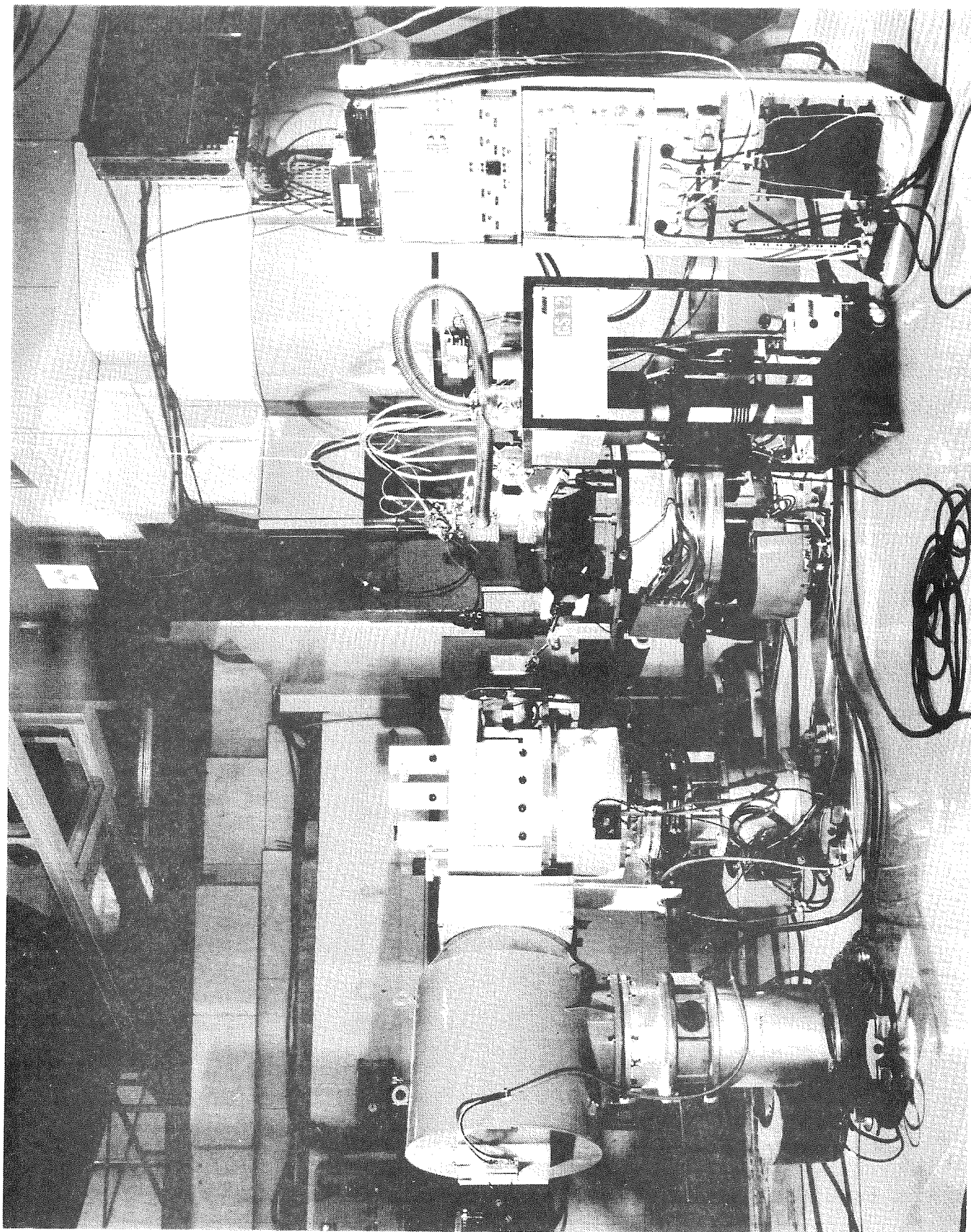
Figure III-6 : Four pour études de diffusion inélastique.

limite le rayonnement. L'enceinte extérieure, à l'intérieur de laquelle on peut faire le vide, est refroidie périphériquement avec de l'eau. Une fenêtre en aluminium est ménagée dans la paroi afin de diminuer l'absorption des neutrons qui atteignent l'échantillon. La température est mesurée par un thermocouple chromel-alumel se trouvant sous l'échantillon. La régulation, quant à elle, est pilotée par un autre thermocouple chromel-alumel placé au-dessus de l'échantillon. Ce four peut monter à une température maximum de 1000°C. La stabilité en température est de $\pm 2^\circ\text{C}$ à 1000°C. La photo ci contre montre le four sur les berceaux porte-échantillon avec ses alimentations en courant et en eau. On aperçoit également le tuyau de pompage qui permet de maintenir un vide dynamique de 10^{-4} Torr dans l'enceinte. Les photos suivantes montrent l'implantation générale du four avec ses annexes sur le spectromètre à trois axes IN8 de l'I.L.L.

Entre 77 K et la température ambiante, nous avons utilisé un cryostat à circulation d'azote. Nous avons modifié ses caractéristiques afin de l'utiliser entre 77 K et 450 K. Le cryostat à refroidissement dynamique a été conçu par M. Roubeau et décrit dans la thèse de G. Pepy (PEP 72). Il permet l'orientation aisée de l'échantillon et stabilise la température à $0,1^\circ\text{C}$ près. Pour le rendre peu absorbant, les fenêtres traversées par les neutrons sont en aluminium. La figure III-7 montre le schéma de cet appareil. La source froide est une bonbonne de N_2 liquide dont on peut accélérer l'évaporation à l'aide d'une résistance chauffante. Le gaz ainsi obtenu est réchauffé à une température inférieure à celle désirée ; il est dirigé sur l'échantillon par un tube à double paroi appelé Pi de transfert. L'échantillon se trouve à l'intérieur d'une chambre en cuivre à paroi très mince qui sert à homogénéiser la température. Le gaz subit ensuite une détente irréversible en traversant du coton et des chicanes en cuivre. La source chaude qui permet de porter l'échantillon à la température désirée et de réguler cette température est une résistance de manganin parcourue par un courant et enroulée sur une masselotte en cuivre sur laquelle est collé l'échantillon. Ce type de cryostat a été utilisé car outre sa facilité de mise en oeuvre et son déplacement instantané, il était facilement modifiable pour obtenir des températures atteignant 450 K. Le Pi de transfert est conservé pour assurer la bonne homogénéisation de la température autour de l'échantillon. L'enroulement de manganin est directement branché à une source stabilisée de courant continu. Deux résistances au platine sont utilisées pour mesurer la température autour de l'échantillon et sur la







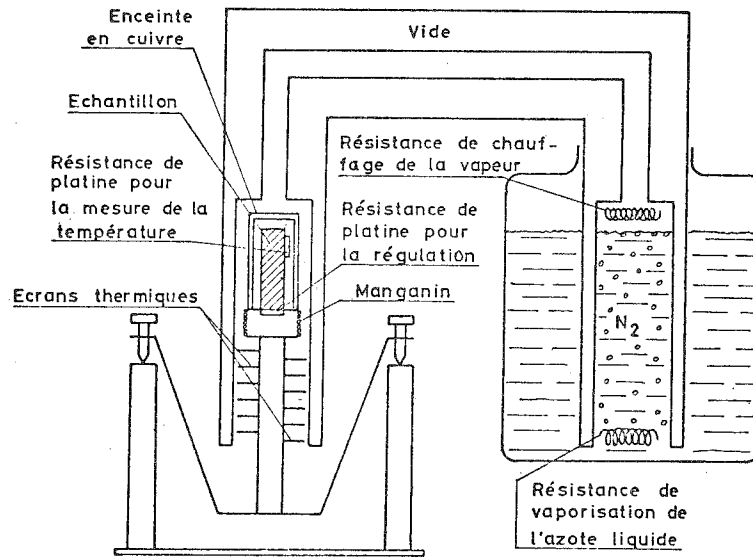


Figure III-7 : Cryostat à refroidissement dynamique (PEP 72).

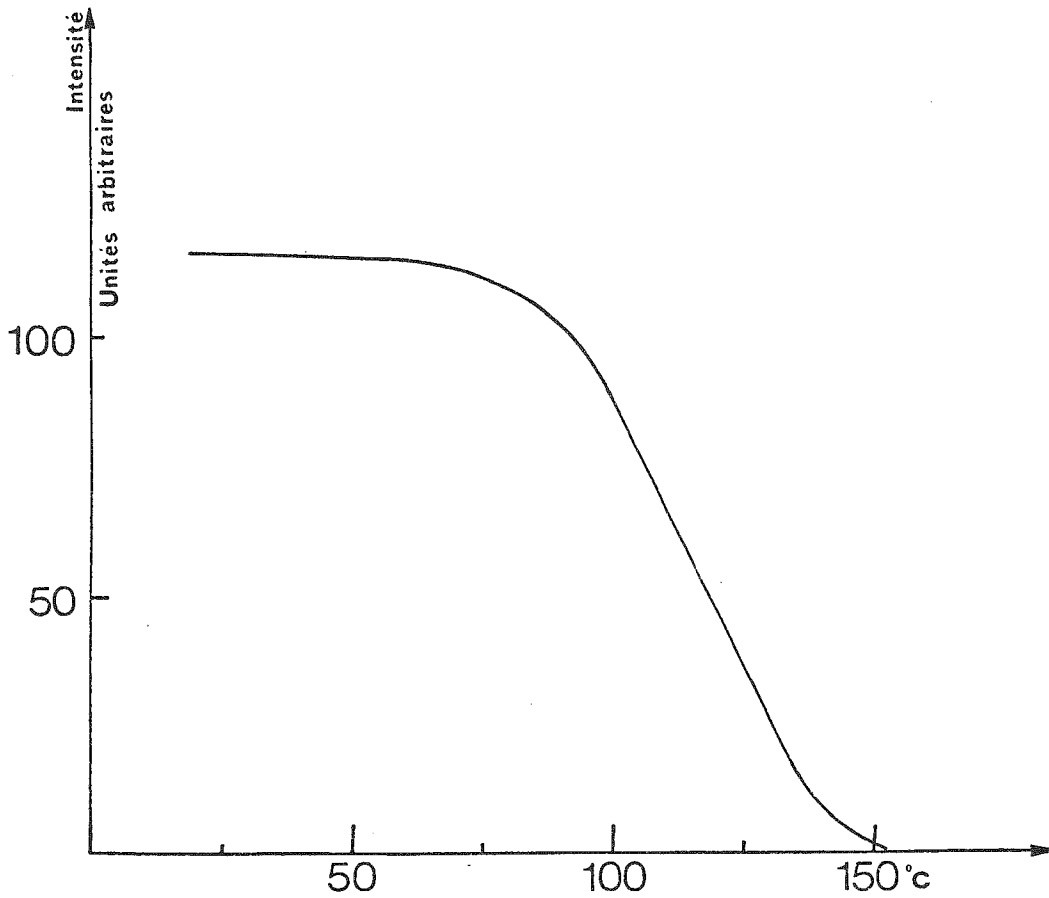


Figure III-8 : Variation thermique de l'intensité de la raie ($\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$).

masse de cuivre (sur laquelle est fixée l'échantillon), afin de vérifier que le gradient de température est négligeable. Les variations de température avec ce dispositif étaient de ± 1 degré.

B - ECHANTILLON

1 - Préparation de l'échantillon

La préparation de l'échantillon utilisé a été réalisée par Perrier de la Bâthie au Laboratoire de Magnétisme de Grenoble. Après plusieurs essais infructueux à la stoechiométrie 50 - 50, il a fait varier la concentration des constituants, suivant en cela les idées de Schinkel et Hartog (SCH 74). Un mélange a été préparé avec une concentration en Fe de 51 %. Un monocristal a été obtenu par la méthode de Bridgman. Elle consiste à refroidir à partir de 1720°C et sous atmosphère d'argon le mélange fondu, en créant un gradient de température de 20°C par cm. Dans le lingot obtenu, il a été possible de découper une plaquette monocristalline de 20 mm sur 10 mm. Son épaisseur de 2 mm a été choisie en raison de la forte absorption du Rh. En effet à une longueur d'onde de 1 \AA , la section efficace d'absorption est de 83 barns. Un calcul simple montre qu'une épaisseur de 2 mm absorbe 50 % du faisceau à cette longueur d'onde. Une analyse aux neutrons et aux rayons X a montré que la direction de croissance du monocristal, c'est-à-dire la direction de la plus grande longueur du cristal est parallèle à la direction $[1\bar{1}0]$. Par conséquent, dans la section de la plaquette se trouvent les axes $[001]$ et $[110]$ perpendiculaires entre eux, facilitant ainsi l'alignement du cristal. La mosaïcité de cet échantillon est de $30'$. Celle-ci s'est modifiée lors des expériences en température que nous avons faites pour atteindre, à l'heure actuelle, la valeur de 1 degré.

2 - Température de transition

Comme il est signalé page 20, la température de transition entre la phase ferromagnétique et antiferromagnétique est extrêmement sensible à la stoechiométrie et au traitement thermique que l'on fait subir à l'échantillon. Le tableau I donne quelques températures de transition obtenues par différents auteurs. Les différences entre les températures de transition pour des échantillons de composition identique sont trop importantes pour résulter de différences introduites par les méthodes expérimentales utilisées. Elles sont essentiellement dues aux différents traitements thermiques qu'ont subis les échantillons. La

T A B L E A U I

Températures de transition (T_T) et température de Curie (T_c) obtenues
par différents auteurs

Composition de l'échantillon	T_T	T_c	Référence
$Fe_{38,8}Rh_{61,2}$	380 K		(MCK 70)
$Fe_{46,1}Rh_{53,9}$	345 K		(ZSO 67)
$Fe_{46,9}Rh_{53,1}$	335 K		(MCK 70)
$Fe_{47}Rh_{53}$	335 K		(BLO 66)
$Fe_{47}Rh_{53}$	315 K		(WAY 68)
$Fe_{47}Rh_{53}$	333 K		(BER 62)
$Fe_{48}Rh_{52}$	350 K	675 K	(KOU 62)
$Fe_{49}Rh_{51}$	330 K	680 K	(LOM 67)
$Fe_{49}Rg_{51}$	316 K		(WAY 68)
$Fe_{49,5}Rh_{50,5}$	370 K		(VIN 70)
$Fe_{49,5}Rh_{50,5}$	360 K	680 K	(SCH 74)
$Fe_{49,8}Rh_{50,2}$	395 K	680 K	(SCH 74)
$Fe_{50}Rh_{50}$	340 K	675 K	(SHI 64)
$Fe_{50}Rh_{50}$	353 K	660 K	(ZAK 64)
$Fe_{50}Rh_{50}$	360 K		(PAL 65)
$Fe_{50}Rh_{50}$	360 K		(ZSO 67)
$Fe_{50}Rh_{50}$	410 K	680 K	(SCH 74)
$Fe_{50}Rh_{50}$	410 K	710 K	Cette étude
$Fe_{50,2}Rh_{49,8}$	350 K	680 K	(SCH 74)
$Fe_{50,4}Rh_{49,6}$	325 K		(ZSO 67)
$Fe_{50,5}Rh_{49,5}$	290 K	680 K	(SCH 74)
$Fe_{53}Rh_{47}$	323 K		(BER 61)

température de transition de notre échantillon a d'abord été mesurée à l'aide des neutrons. Pour cela, nous avons utilisé la raie de surstructure $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ caractéristique de la phase antiferromagnétique. L'intensité de cette raie permet de savoir si le cristal est dans la phase antiferromagnétique (intensité maximum) ou dans la région de transition (intensité comprise entre 0 et I_{\max}) ou dans la phase ferromagnétique (intensité nulle). La variation thermique de l'intensité est portée sur la figure III-8. On constate que la transition est extrêmement large et s'étale sur environ 100 K (entre 310 K et 410 K). La comparaison avec les résultats d'autres auteurs (SCH 74, LOM 67, KOU 62) montre que la largeur de la transition dans notre échantillon est anormalement grande. Par contre, l'hystérésis de la transition est d'une dizaine de degrés, en bon accord avec les études précédemment citées. Cette largeur de la transition a également été mesurée ultérieurement au cours des expériences de diffusion inélastique. Lors de la recherche de magnons antiferromagnétiques dans la direction $[111]$, nous avons travaillé au centre de la zone (110) qui est à la fois un centre de zone antiferromagnétique et un centre de zone ferromagnétique (cf. figure III-1). Il est apparu pour des températures supérieures à 310 K un signal ferromagnétique associé à un signal antiferromagnétique. L'intensité du signal ferromagnétique croît lorsque la température augmente et atteint son intensité maximale pour une température de 410 K, tandis que l'intensité du signal antiferromagnétique s'annule. La variation thermique de ce dernier signal a été étudiée plus précisément au bord de la zone (110) (qui correspond à un centre de zone antiferromagnétique) où son intensité est plus importante. Il y a donc coexistence de signal antiferromagnétique et de signal ferromagnétique dans un domaine de température de 100 K.

Différentes hypothèses ont été envisagées pour expliquer cette largeur inusitée (cf. paragraphe III-C-2). En dernière analyse elle résulte de l'inhomogénéité du cristal étudié, qui est constitué de cristallites de compositions légèrement différentes. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons extrait du bloc monocristallin préparé par Perrier de la Bâthie trois cylindres de diamètre 0,3 mm et de longueur 1 cm ayant une situation correspondant aux extrémités et au milieu du cristal taillé pour l'étude de diffusion inélastique. La variation thermique de l'aimantation a été étudiée sur ces trois cylindres. Le résultat de ces mesures est montré sur la figure III-9. Le cylindre un (correspondant à une des extrémités du cristal) a une partie ferromagnétique à toutes températures et la partie restante subit une transition antiferromagnétique-ferromagnétique vers 310 K. La partie centrale (cylindre 2) est un mélange de

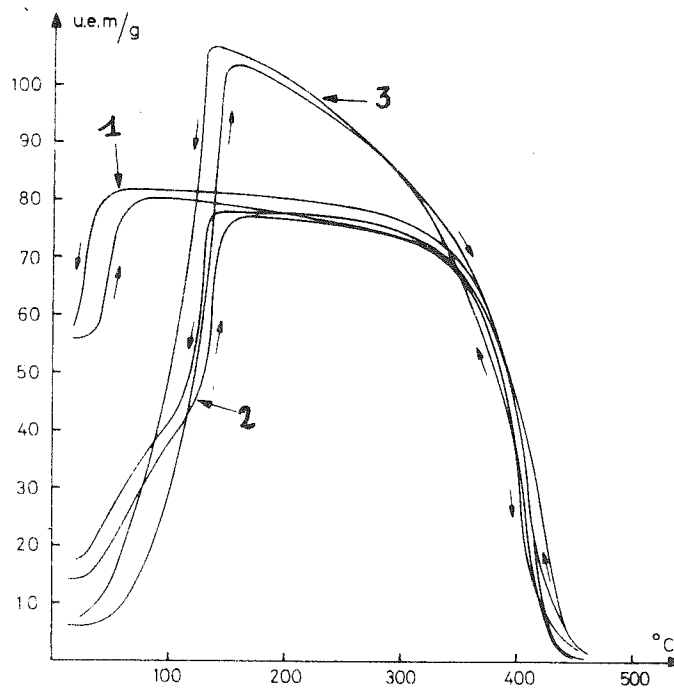


Figure III-9 : Variation thermique de l'aimantation dans 3 cylindres correspondant au haut, au milieu et au bas du cristal (voir page 71).

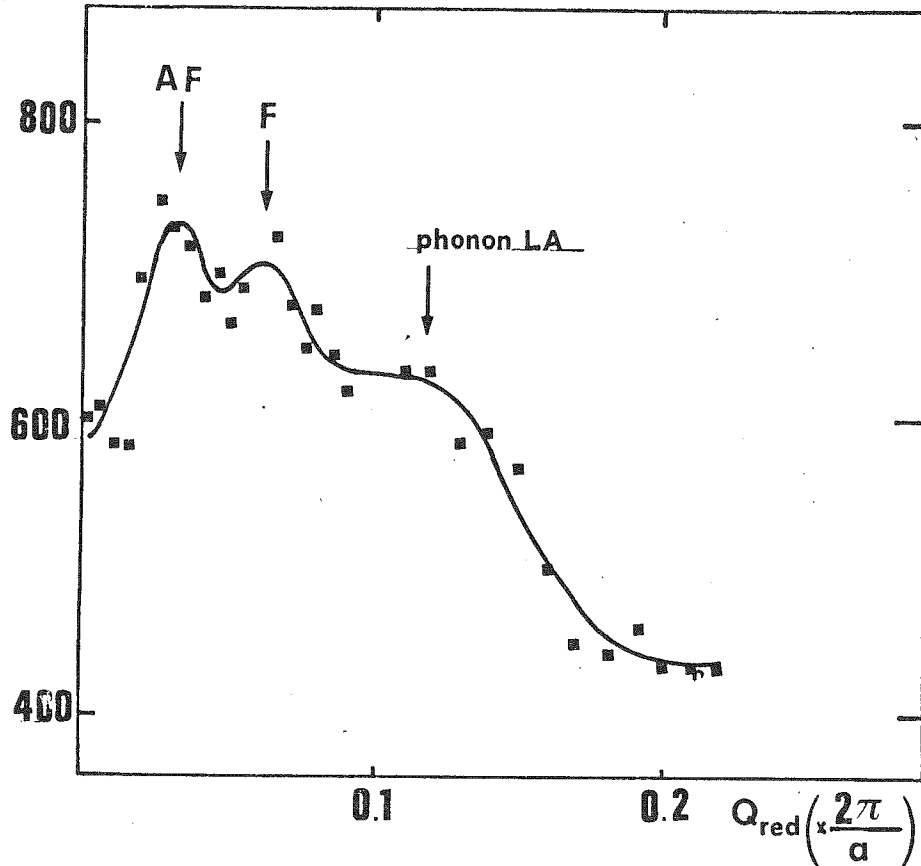


Figure III-10 : Groupe de neutrons montrant la coexistence d'un signal antiferromagnétique et d'un signal ferromagnétique.

cristallites : le plus important a une température de transition de 410 K ; les températures de transition des autres sont comprises entre la température ambiante et 410 K. Le cylindre trois, qui correspond à l'autre extrémité, est formé d'une seule cristallite dont la température de transition est 410 K. En conclusion, le cristal utilisé pour les expériences de diffusion inélastique est un ensemble de cristallites de concentrations légèrement voisines. Une estimation des écarts en composition peut être obtenue en utilisant les résultats de Schinkel, Hartog et Hostenbach (SCH 74) qui semblent être les plus reproductibles. Une extrémité étant un alliage $\text{Fe}_{50}\text{Rh}_{50}$ ($T_T = 410 \text{ K}$), le gradient de concentration en fer (valeurs croissantes à partir de 50 %) est estimé à 0,25 % par cm.

L'étude de la phase antiferromagnétique a été effectuée à des températures inférieures à 300 K, et celle de la phase ferromagnétique à des températures supérieures à 410 K. Cependant, jusqu'à 77 K, nous avons toujours observé un signal ferromagnétique conjointement au signal antiferromagnétique (cf. figure III-10), car comme le montrent les mesures d'aimantation, une partie du cristal (cylindre 1) est toujours ferromagnétique à cette température. Cette partie correspond à une inclusion monocristalline dont la concentration en fer est supérieure à 52 % (celle-ci est d'une taille négligeable par rapport au reste du cristal).

3 - Rôle des inhomogénéités dans les mesures

L'effet d'inhomogénéités en concentration, sur une mesure de diffusion inélastique dans le cas où les phénomènes observés dépendent fortement de la concentration est un élargissement du groupe de neutrons observés et donc entraîne une imprécision dans la détermination de la courbe de dispersion d'ondes de spin. Dans toutes les mesures faites, les largeurs expérimentales et les largeurs théoriques calculées à partir de la fonction de résolution de l'appareil sont en bon accord.

Nous en avons conclu que en dehors de la zone de transition les ondes de spin observées dépendaient peu de la concentration et que par conséquent l'étude des courbes de dispersion dans les phases antiferromagnétique et ferromagnétique était possible.

Par contre, l'étude de l'évolution de la température de transition en fonction de la concentration n'est pas possible car, comme nous le signalons plus haut, la valeur de la température de transition dépend fortement de la concentration.

C - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Introduction

La première étude sur le FeRh a été effectuée à la température ambiante, c'est-à-dire dans la phase antiferromagnétique. Nous avons d'abord recherché la courbe de dispersion des magnons dans la direction $|111|$ sachant que lors du passage de la phase antiferromagnétique à la phase ferromagnétique c'est dans cette direction que la courbe de dispersion subira les changements les plus importants. L'étude de la direction $|111|$ nous a amenés à déterminer la position des branches de dispersion de phonons. Des mesures dans les directions $[110]$ et $[001]$ ont ensuite été effectuées. Les mêmes expériences ont été répétées à plusieurs températures comprises entre 77 et 300 K, afin de contrôler l'influence de la température sur la forme des courbes de dispersion.

Tout en tenant compte de l'inhomogénéité du cristal étudié, nous avons également précisé le passage de la transition. Nous avons finalement étudié les courbes de dispersion dans la phase ferromagnétique en fonction de la température. La direction $[111]$ a été étudié intensivement en raison de son intérêt. Selon la direction $[110]$, nous avons pu préciser la forme de la courbe de dispersion de magnons pour la comparer à celle calculée à partir des résultats précédents. Afin que les courbes de dispersion observées soient bien caractéristiques de magnons, nous avons déterminé les différentes branches de dispersion de phonons.

Chaque courbe de dispersion résulte de la détermination d'une série de maxima d'intensité diffusée. La forme des groupes de neutrons a été analysée à l'aide du calcul de résolution exposé chapitre II. Deux avantages importants en résultent :

- une largeur intrinsèque différente de la largeur instrumentale peut être obtenue à la suite du calcul. Sa variation avec la température a pu être ainsi étudiée,
- l'influence de la focalisation des neutrons par l'appareillage a pu être optimisée. Ce type de calcul est auto-cohérent car il nécessite la connaissance de la forme de la courbe de dispersion et des paramètres qui la définissent. Nous avons toujours contrôlé que les mesures effectuées étaient compatibles avec la détermination de la courbe de dispersion obtenue par le calcul.

1 - Phase antiferromagnétique

Les figures III-11 montrent quelques un des groupes de neutrons diffusés par des magnons obtenus à la température ambiante sur le spectromètre à trois axes IN1. Sur la même figure, nous avons porté le calcul de résolution effectué. Une des courbes a été répétée pour différents vecteurs d'onde incidents \vec{k}_I pour montrer les effets conjugués de la résolution et de l'intensité. L'ensemble des résultats obtenus nous a permis de déduire les courbes de dispersion complètes présentées sur la figure III-12. Pour les faibles énergies, ces courbes peuvent être décrites analytiquement par l'équation $\omega = Cq$, avec $C = 117 \text{ meV.Å}$. L'énergie d'échange maximum obtenue est de 90 meV dans la direction $[111]$. Des mesures à des températures comprises entre 77 et 300 K ont été effectuées pour préciser la variation thermique éventuelle des courbes de dispersion. A toutes les températures étudiées, une vingtaine environ, les résultats obtenus sont, aux erreurs d'expérience près, les mêmes que celles obtenues à la température ambiante. L'intensité diffusée par les magnons est également indépendante de la température compte-tenu du facteur de population $n_T = \frac{1}{e^{h\omega/kT} - 1}$ qui augmente le bruit de fond et le signal magnétique dû aux magnons. Les largeurs sont toujours en bon accord avec celles déduites du calcul de la résolution. Un élargissement physique, s'il existe, se trouve à l'intérieur de la barre d'erreur de nos mesures. Nous n'avons pas observé de modification de la largeur avec la température.

Avant d'effectuer une analyse plus quantitative, au chapitre suivant, nous pouvons faire quelques remarques :

- il a été possible, pour la première fois dans un alliage métallique, de déterminer les courbes de dispersion jusqu'en bord de zone,
- la constante $C(\omega = Cq)$ déterminée dans la phase antiferromagnétique de Fe-Rh est beaucoup plus faible que celle déterminée par Lowde et al dans les matériaux conducteurs antiferromagnétiques tels que Mn_γ ou NiS (HEN 76), et est pratiquement indépendante de la température,
- les courbes de dispersion pour les trois directions $[111]$, $[110]$, $[001]$ sont confondues jusqu'à des valeurs du vecteur d'onde proches de 0,2. Ceci doit refléter une isotropie des phénomènes magnétiques.
- contrairement au Mn_γ les largeurs des groupes de neutrons sont faibles, ce qui suggère qu'il n'y a pas interaction avec le spectre de Stoner,

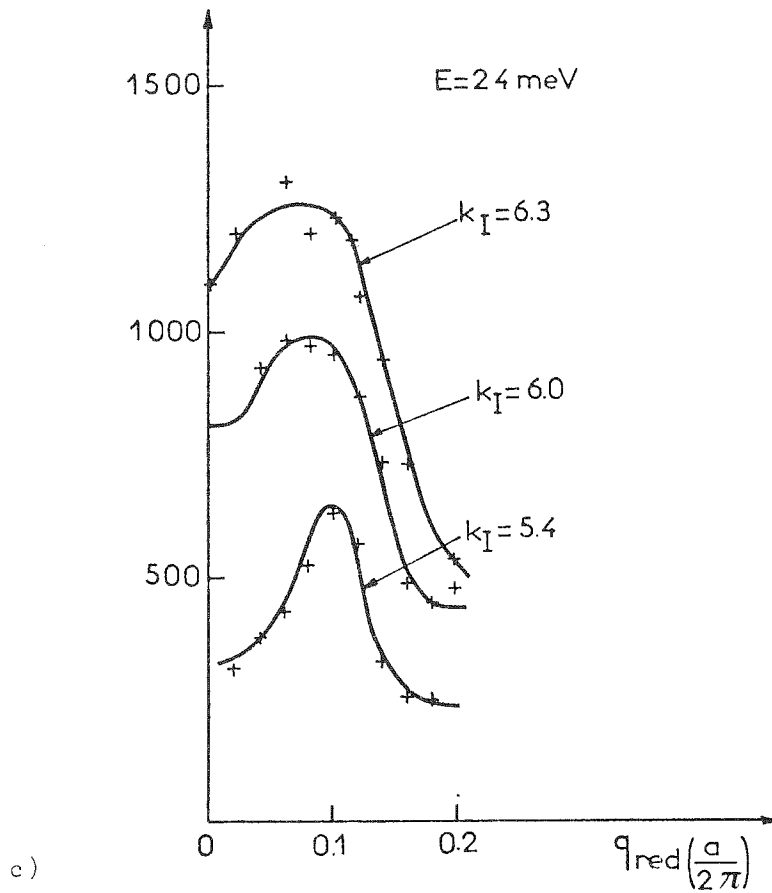
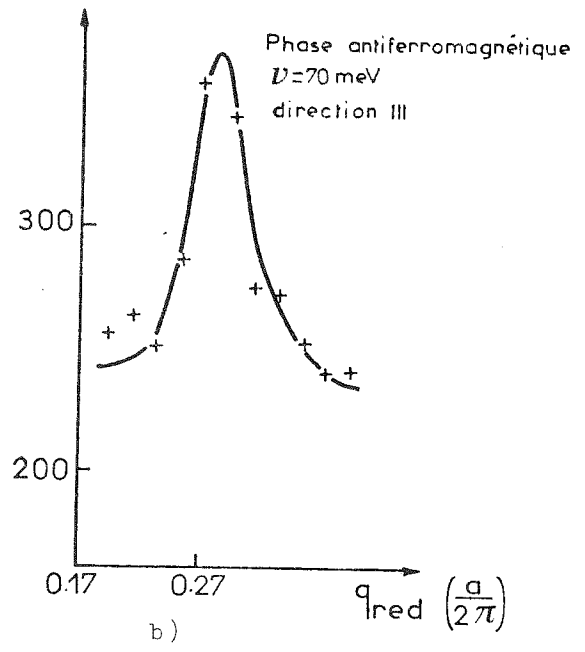
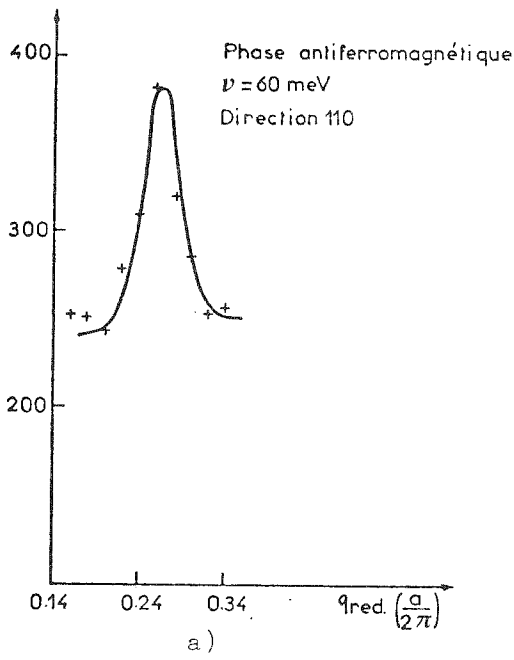


Figure III-11 : Magnons antiferromagnétiques à la température ambiante. La ligne continue représente le calcul des mêmes magnons à l'aide de la fonction de résolution.

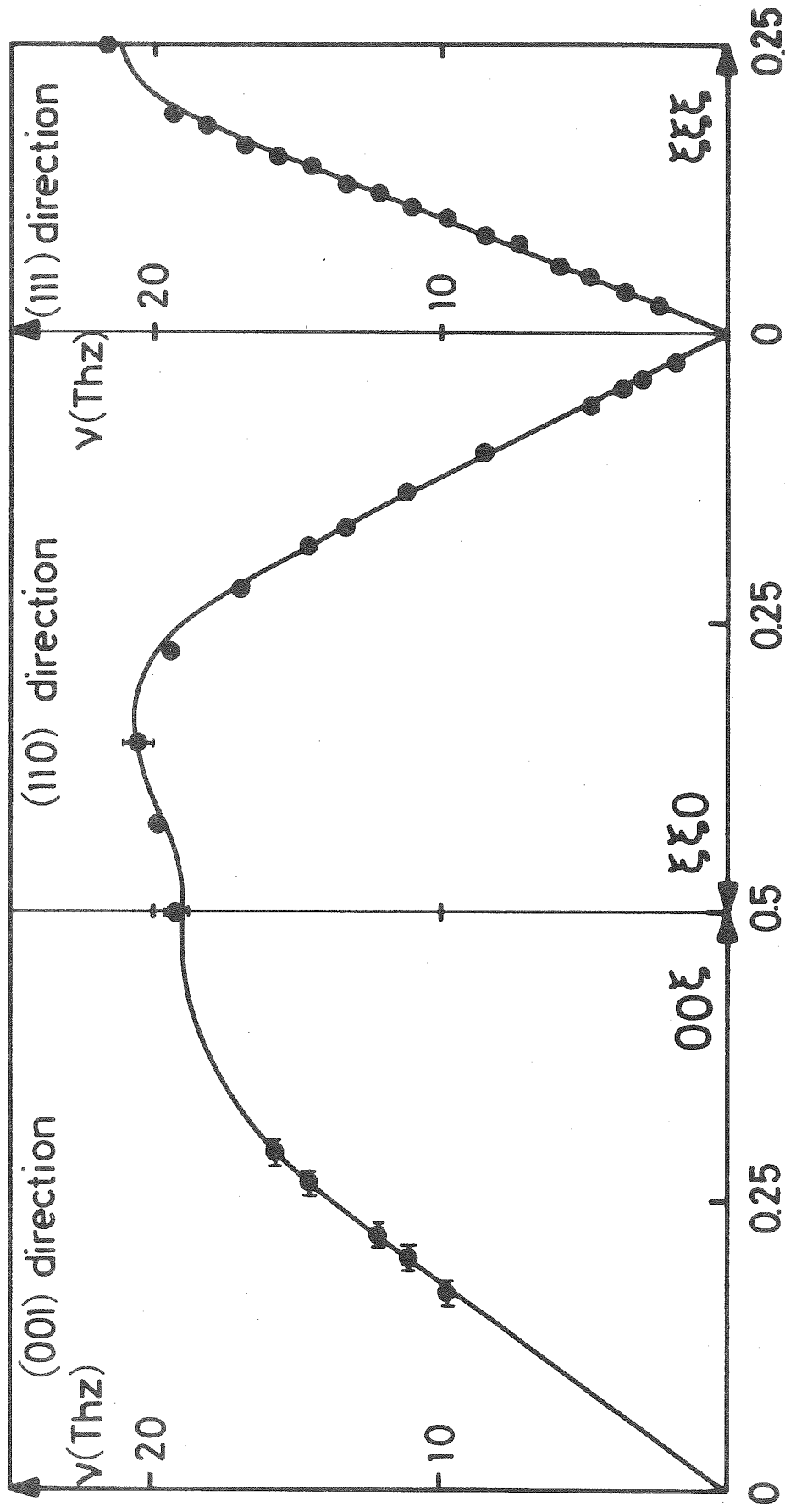


Figure III-12 : Courbe de dispersion des ondes de spin dans la phase antiferromagnétique de FeRh.

- le spectre des phonons dans la direction $[111]$ n'a été déterminé dans la phase antiferromagnétique que pour les petits vecteurs d'onde \vec{q} $[|\vec{q}| < 0,2]$ afin d'éviter une confusion entre phonons et magnons. La détermination complète des phonons a été précisée au cours de l'étude des magnons dans la phase ferromagnétique. Nous discuterons de celle-ci dans un prochain paragraphe.

2 - Etude de la transition

Comme nous l'avons discuté précédemment, l'étude entre 300 K et 420 K, c'est-à-dire dans le domaine de la transition, est caractérisée par la superposition d'un signal antiferromagnétique et d'un signal ferromagnétique dans les groupes de neutrons observés. Pour expliquer un tel phénomène, deux hypothèses sont possibles : la première est d'admettre l'existence d'une phase intermédiaire non colinéaire ayant une composante antiferromagnétique et une composante ferromagnétique. Cette possibilité avait déjà été envisagée par Kren (KRE 64) et Pal (PAL 64) pour expliquer le diagramme de diffraction de neutrons non polarisés dans le même intervalle de température. Les raies caractéristiques de l'arrangement cristallographique (raies nucléaires) ont une contribution magnétique provenant d'une composante ferromagnétique et il apparaît en outre des raies de surstructure qui doivent être associées à une composante antiferromagnétique. Cependant, une étude précise des paramètres de la maille cristalline avait montré l'existence de deux phases. La seconde explication peut provenir d'une inhomogénéité du cristal étudié qui entraînerait une variation de la température de transition à travers l'échantillon. Jacques Villain (VIL 76) s'est intéressé au problème de la phase non colinéaire et a calculé dans le cas général l'allure des groupes de neutrons correspondant à la diffusion inélastique dans un tel arrangement (cf. Appendice 4) ; les courbes de dispersion ainsi calculées sont tracées sur la figure III-13. Deux composantes, l'une antiferromagnétique, l'autre ferromagnétique, coexistent à une même température. L'intensité au centre de zone ferromagnétique $I_F(\vec{q})$ est grande pour \vec{q} voisin de zéro alors que celle de la composante antiferromagnétique $I_{AF}(\vec{q})$ reste finie. Par contre $I_F(\vec{q})$ et $I_{AF}(\vec{q})$ sont également grands en bord de zone ferromagnétique, celui-ci étant également un centre de zone antiferromagnétique. Ces résultats sont en accord avec l'expérience au centre de zone ferromagnétique. Cependant au bord de zone ferromagnétique (point $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ de la figure III-1), on devrait observer un signal antiferromagnétique et un signal ferromagnétique pour des vecteurs d'onde voisins. L'intensité de ces deux signaux devrait être comparable. En fait,

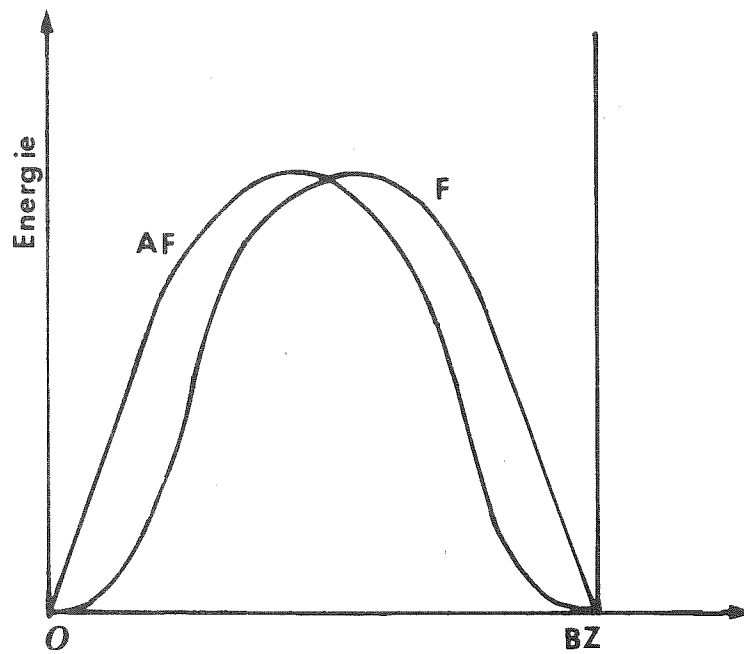


Figure III-13 : Courbes de dispersion théoriques dans le cas d'une structure non colinéaire (appendice 4).

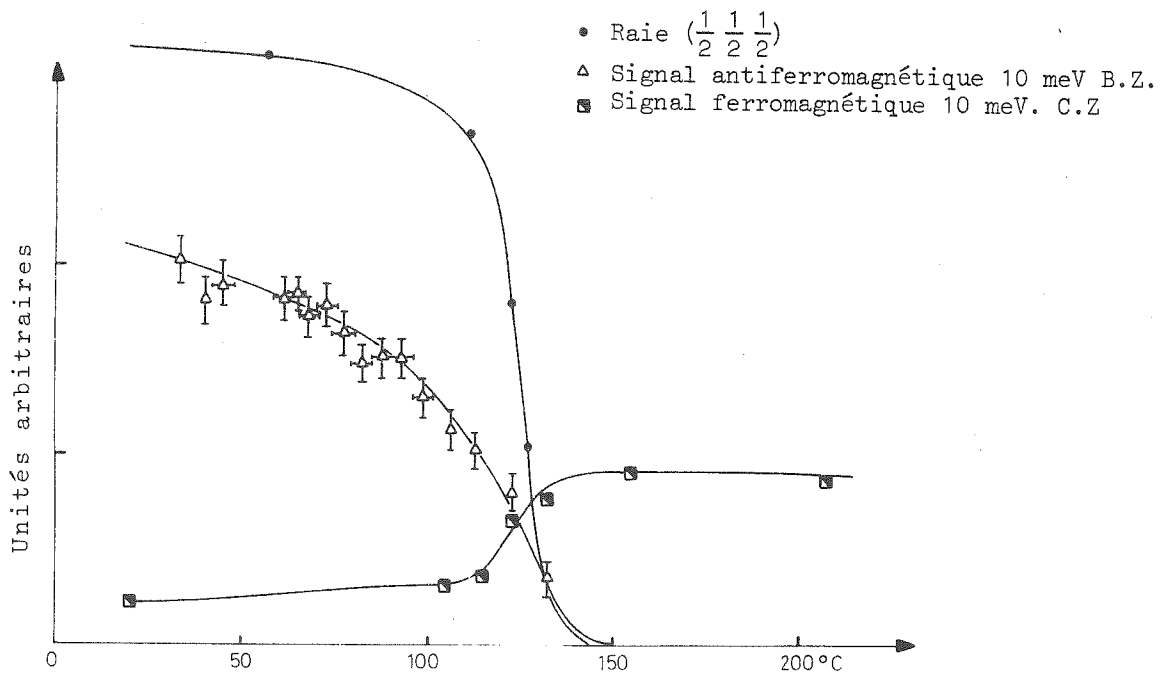


Figure III-14 : Variation avec la température de l'intensité du groupe de neutrons antiferromagnétique à 10 meV.

malgré de nombreuses expériences au voisinage du point $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ cette coexistence n'a jamais pu être mise en évidence. Seul le signal antiferromagnétique apparaissait. Il nous a donc fallu abandonner l'hypothèse de la phase non colinéaire et expliquer l'observation simultanée des deux signaux par une inhomogénéité du cristal étudié. Ce fait étant établi, nous avons étudié l'intensité des magnons antiferromagnétiques au centre de zone antiferromagnétique qui après la transition devient un bord de zone ferromagnétique (par exemple, le point $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$). Cette propriété devrait conduire à l'apparition d'un "gap" en énergie lors de la transition dans le domaine ferromagnétique. Nous avons alors étudié plus particulièrement la variation d'intensité des groupes de neutrons compris entre 10 meV et 40 meV. Le groupe de neutrons à 10 meV a une intensité qui diminue lorsque la température augmente. Sa variation est portée sur la figure III-14. Aucune variation de la constante C n'y est associée, où C est définie par l'équation analytique de la courbe de dispersion antiferromagnétique pour q petit ($\omega = Cq$).

Les groupes de neutrons d'énergie inférieure à 30 meV (2, 4, 7,5, 10, 20) sont toujours observables à 405 K. A 409 K, ils sont encore décelables. Par contre à 413 K, leur intensité est nulle. Seuls sont observables les groupes de neutrons d'énergie supérieure à 30 meV, énergie pour laquelle la courbe de dispersion observée atteint le bord de zone. Une certaine imprécision sur la position de ce point résulte de la superposition d'un groupe de neutrons diffusés par les phonons et de celui diffusés par les magnons. La séparation de ces deux groupes n'a pu être faite avec certitude et ceci a perturbé l'étude de la phase ferromagnétique.

3 - Phase ferromagnétique mesurée à 470 K

Comme nous l'avons vu, FeRh est ferromagnétique quand l'intensité de la raie de diffraction $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$ devient nulle. D'après la figure III-8, l'étude de cette phase peut s'effectuer entre 413 K et la température de Curie qui est de 710 K. Les courbes de dispersion ont été étudiées dans les directions $[111]$ et $[110]$.

Pour déduire les courbes de dispersion des magnons, il convient de connaître les courbes de dispersion des phonons. Deux méthodes permettent de séparer la diffusion par les magnons de la diffusion par les phonons :

- dans la première, on utilise l'effet d'un champ magnétique sur l'intensité diffusée. En effet, d'après la formule de la section efficace de diffusion inélastique, un champ appliqué parallèlement au vecteur de diffusion renforce l'intensité diffusée alors qu'un champ appliqué perpendiculairement la diminue.
- dans la deuxième on utilise le fait que la diffusion nucléaire est une diffusion ponctuelle, c'est-à-dire que l'intensité diffusée ne dépend pas de la position dans le réseau réciproque, alors que la diffusion magnétique décroît rapidement en fonction de $\sin \theta/\lambda$ (cf. figure III-5) en raison de la localisation autour du noyau des électrons responsables du magnétisme.

Ne disposant que d'un champ statique de 3 kGauss, la première méthode ne fournissait que des indications qualitatives. Nous avons utilisé la deuxième méthode. Les courbes de dispersion de phonons obtenues dans les directions $[111]$ et $[110]$ sont reportées sur la figure III-15.

Les énergies en bord de zone des phonons correspondant aux polarisations longitudinale acoustique et transverse acoustique, puis longitudinale optique et transverse optique sont de 5,57 THz et de 6,78 THz. Ceci indique que la recherche des magnons ferromagnétiques en bord de zone dans l'intervalle d'énergie 3,63 - 7,74 THz est délicate, en particulier dans la phase ferromagnétique car la courbe de dispersion s'arrête en bord de zone dans cet intervalle d'énergie. D'autre part, les mesures à petit vecteur d'onde q des magnons ferromagnétiques sont également difficile à étudier, car les courbes de dispersion de phonons longitudinale et transversale acoustique croisent la courbe de dispersion des magnons. Cependant, lors d'une mesure effectuée dans la zone de Brillouin (110) dans la direction $|110|$, l'intensité du groupe de neutrons associée au phonon transverse s'annule car la section efficace de diffusion inélastique des phonons (IZU 68) est proportionnelle au facteur $|\vec{q} \cdot \vec{e}_j(\vec{q})|^2$, où q est le vecteur de diffusion et $\vec{e}_j(\vec{q})$ la polarisation du mode recherché. Si l'on suppose que la courbe de dispersion des magnons est isotrope pour les faibles valeurs du vecteur d'onde q , la recherche des groupes de neutrons associés aux magnons de basse énergie sera effectuée dans la direction $|110|$.

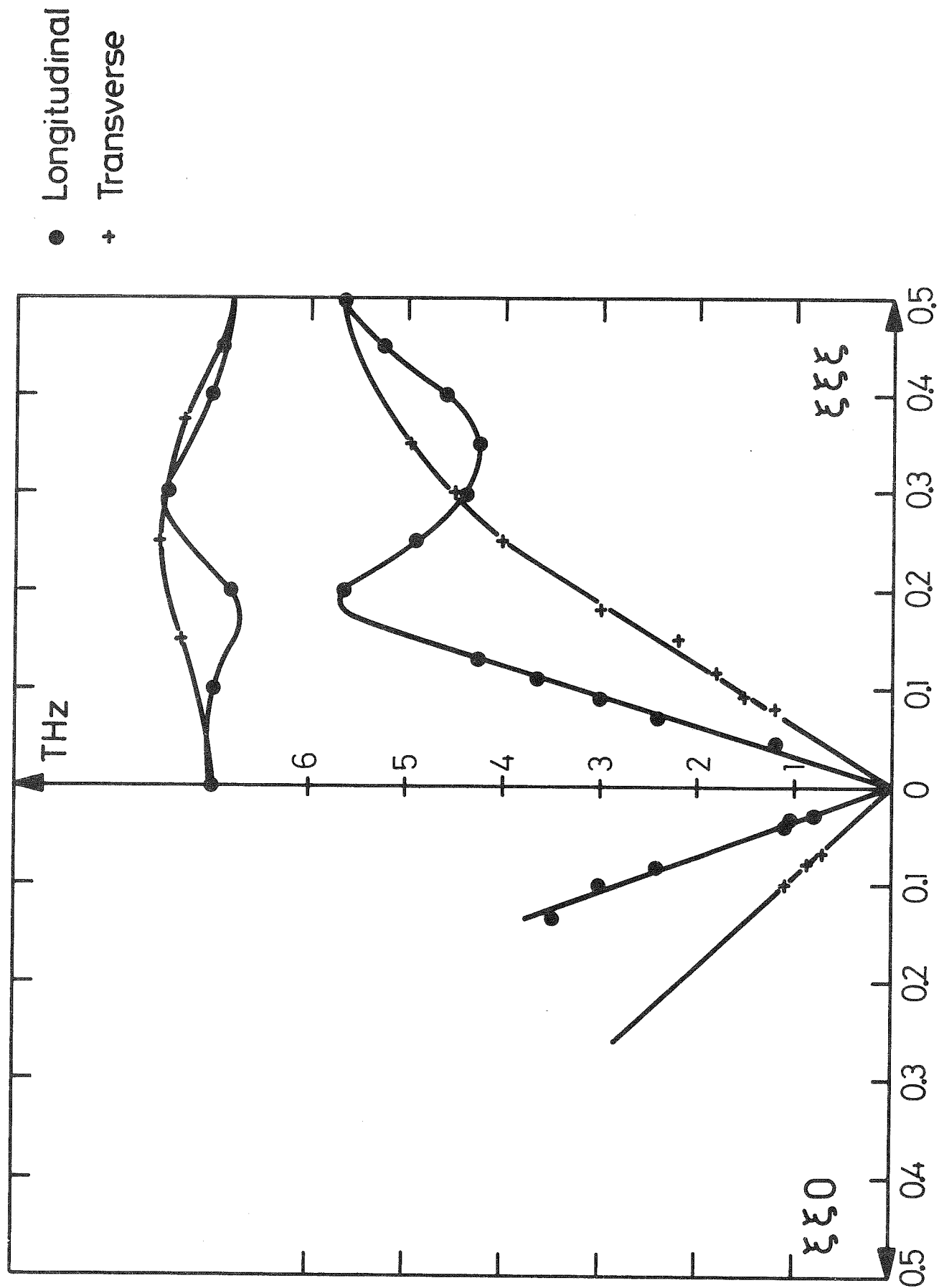


Figure III-15 : Courbes de dispersion de phonons dans FeRh.

Lors d'expériences faites à Saclay sur H4, on a pu séparer magnon et phonon longitudinal en utilisant des vecteurs d'onde incidents k_I petits (inférieur à $2,68 \text{ \AA}^{-1}$, c'est-à-dire correspondant à une longueur d'onde supérieure à $2,4 \text{ \AA}$). Un exemple du groupe de neutrons ainsi obtenu est donné sur la figure III-16. Une étude analogue a été effectuée sur H1, spectromètre à trois axes installé à Saclay et dont la particularité est d'utiliser des neutrons de plus grande longueur d'onde car émanant d'une source froide. L'amélioration de la résolution est contrebalancée par la diminution du flux de neutrons incidents résultant de l'utilisation d'un double monochromateur. Pour profiter de l'amélioration de la résolution, le temps devenait supérieur à 2 heures par point, ce qui nous a conduit à n'utiliser ce spectromètre que pour des vérifications.

Nous avons pu ainsi déterminer les courbes de dispersion de magnons dans les directions $[111]$ et $[110]$ (confère figure III-17).

- pour les faibles vecteurs d'onde, leur comportement est caractéristique d'un ferromagnétique. L'énergie des magnons a une variation parabolique en fonction du vecteur d'onde q , soit $\omega = Dq^2$, où D est la constante de rigidité et vaut $180 \text{ meV} \cdot \text{Å}^2$ à 470 K .
- le sommet de la courbe situé en milieu de zone se trouve à une énergie de $14,7 \text{ THz}$, c'est-à-dire à une valeur inférieure au point correspondant dans la phase antiferromagnétique (22 THz).
- l'allure des groupes de neutrons mesurés à énergie constante en bord de zone est portée sur la figure III-18. L'importance du fond continu au voisinage du bord de zone résulte de l'addition au bruit de fond intrinsèque du spectromètre d'une contribution magnétique par les magnons. A partir des différents groupes de neutrons mesurés dans ce voisinage, on déduit par extrapolation que la courbe de dispersion s'arrête en bord de zone pour une énergie voisine de $6,8 \text{ THz}$. Pour tenter de séparer les composantes magnétiques et nucléaires en bord de zone des expériences ont été réalisées dans les phases ferromagnétique et antiferromagnétique dans des configurations géométriques du spectromètre identiques. Les résultats obtenus à 423 K et à la température ambiante sont portés sur la figure III-19. Une fois la correction de facteur de population effectuée, la détermination du groupe de neutrons magnétique reste très imprécise.

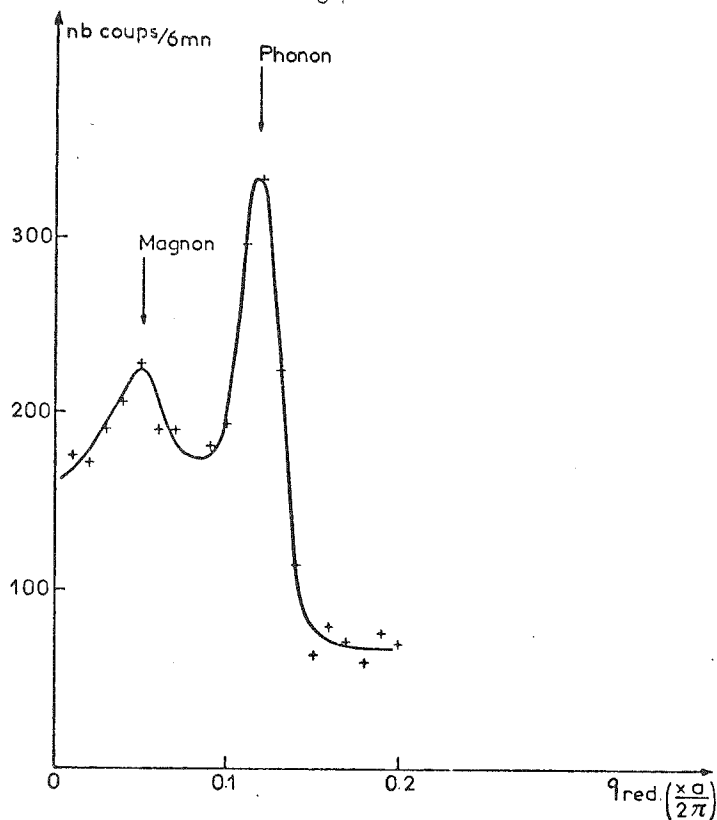


Figure III-16 : Exemple de séparation sur IN8 (I.L.L.) d'un phonon longitudinal et d'un magnon.

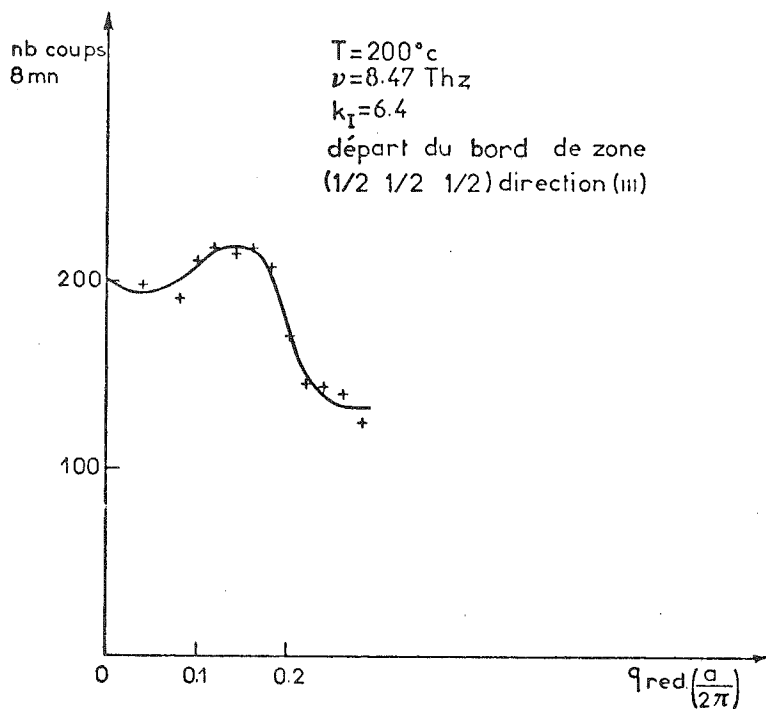


Figure III-18 : Balayage à énergie constante en bord de zone ferromagnétique.

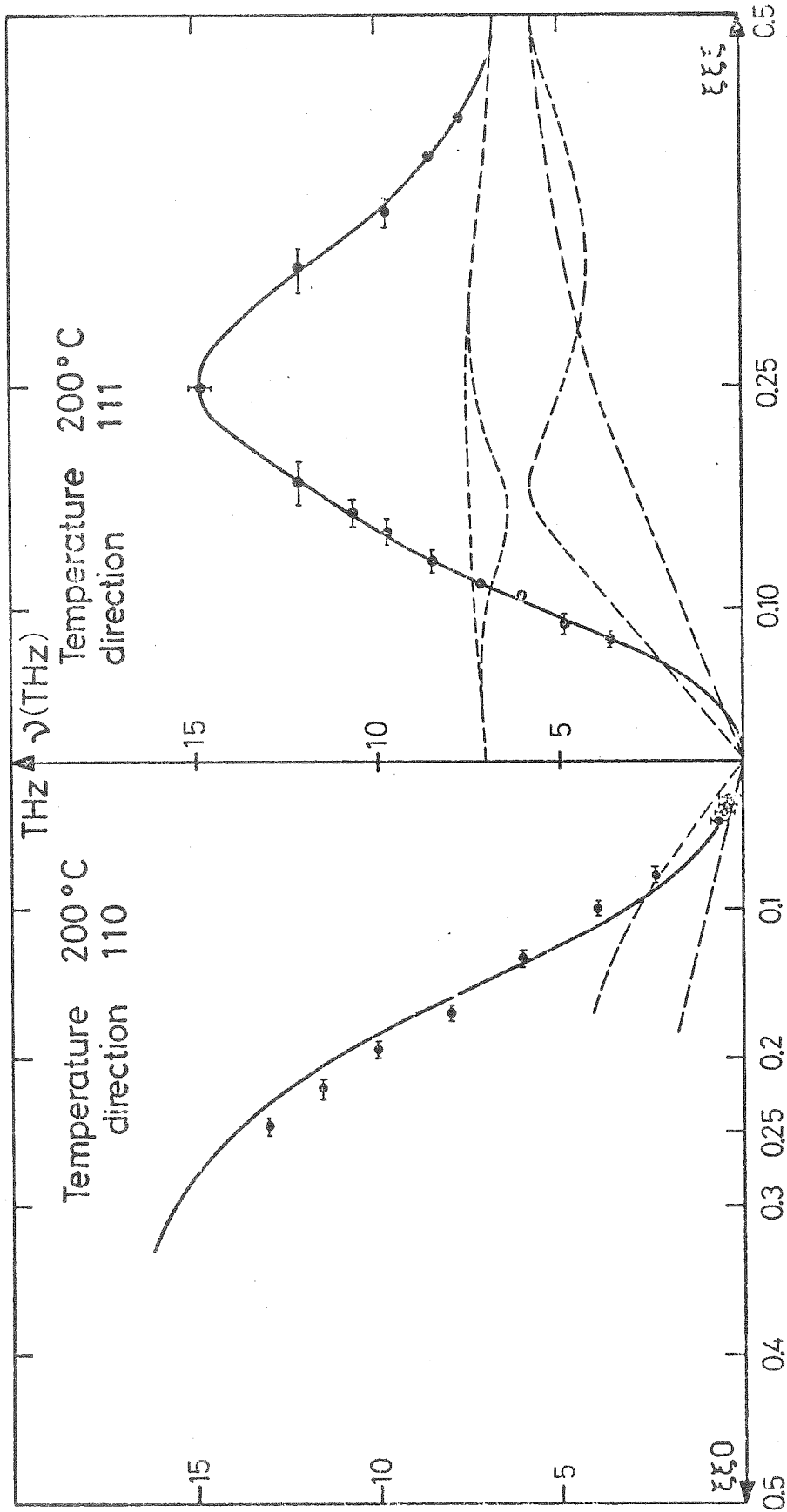


Figure III-17 : Courbe de dispersion d'ondes de spin dans la phase ferromagnétique.

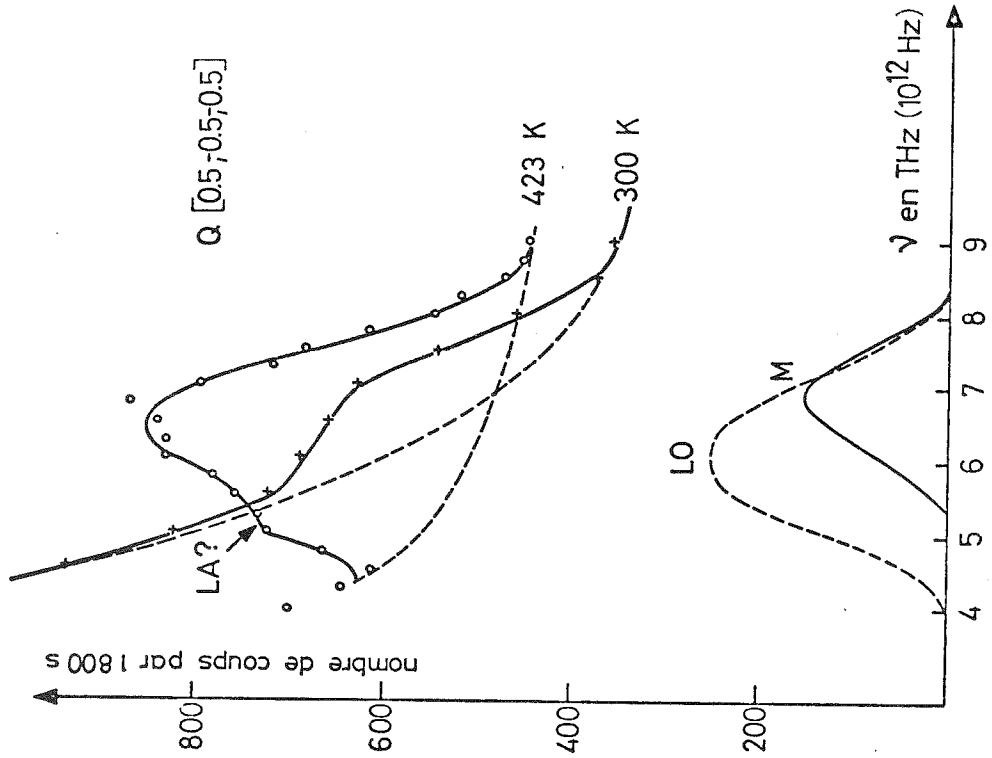


Figure III-19 : Tentative de séparation des composantes nucléaires et magnétique en bord de zone ferromagnétique.

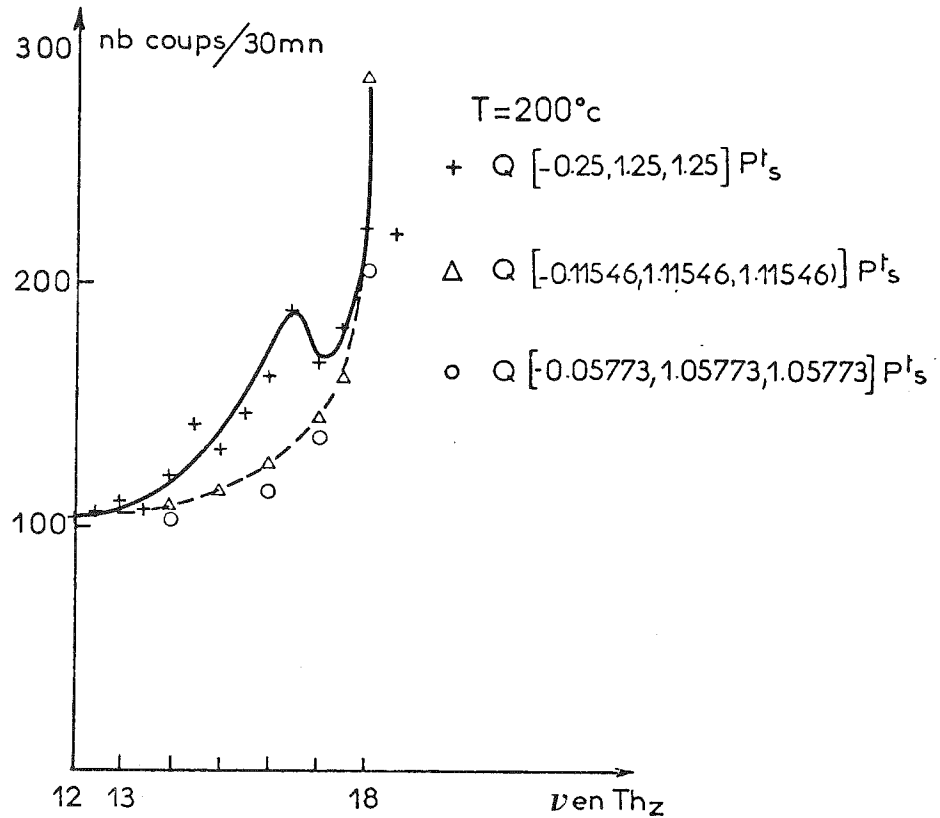


Figure III-20 : Exemple de magnon obtenu dans la phase ferromagnétique.

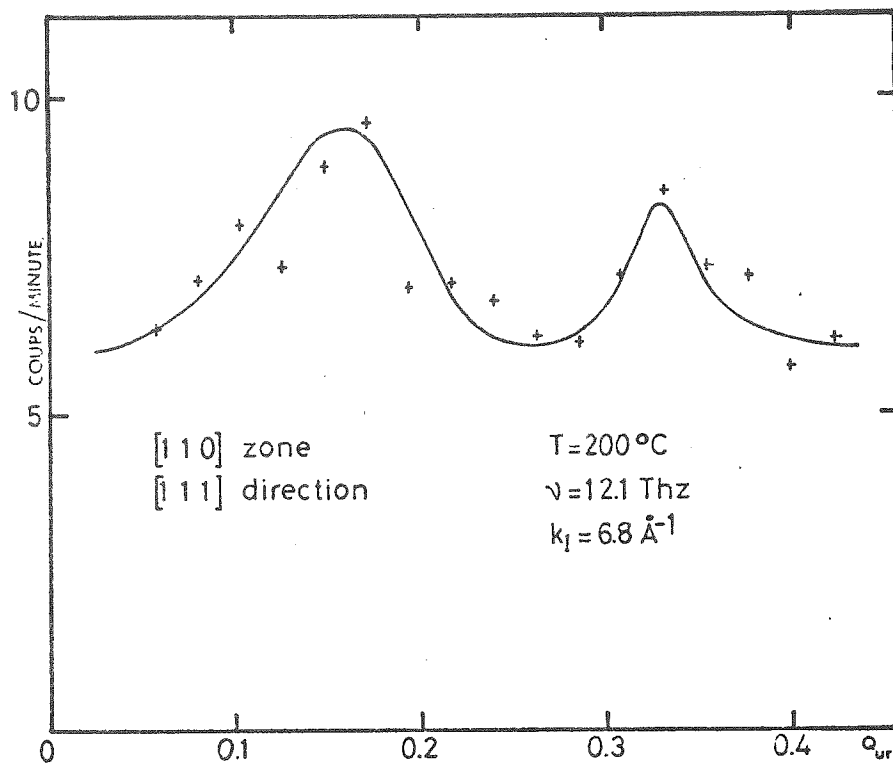


Figure III-21 : Exemple de magnon obtenu dans la phase ferromagnétique.

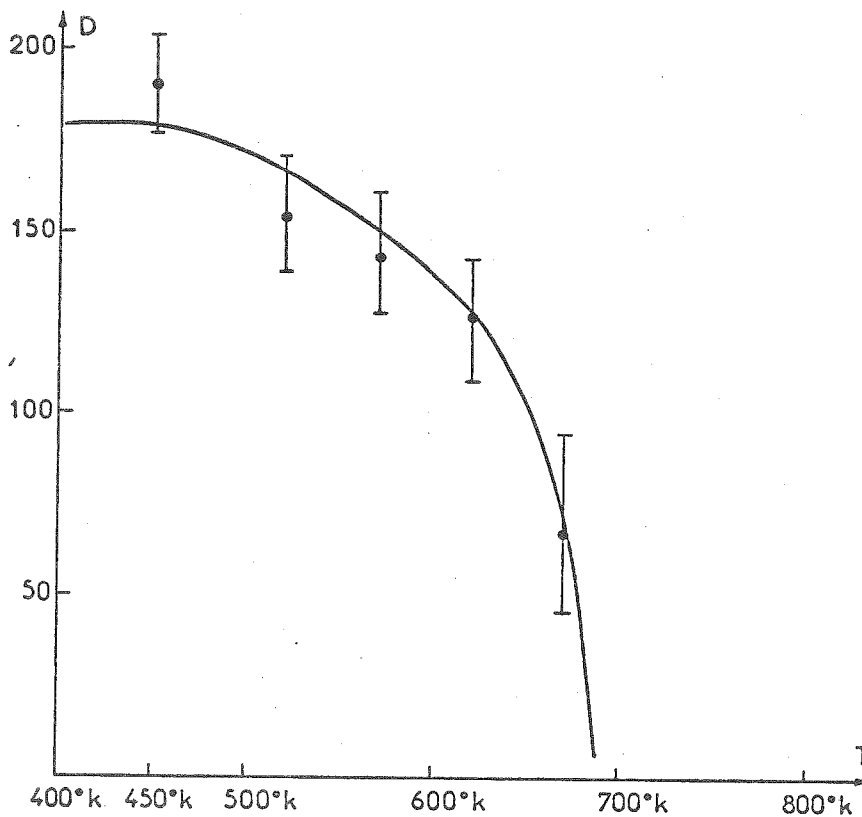


Figure III-22 : Variation de la constante de rigidité D avec la température.

La méthode utilisant l'application d'un champ magnétique a donné des différences d'intensité trop faibles pour que l'on puisse confirmer avec certitude que l'énergie des magnons en bord de zone est de 6,8 THz. A titre d'exemple, des groupes de neutrons diffusés par les magnons sont montrés sur les figures III-20 et III-21. La température d'étude est de 473 K :

- La première figure correspond à un magnon ferromagnétique en milieu de zone. Trois mesures à vecteur d'onde q constant y sont superposées. L'une a été faite en milieu de zone, et correspond au signal magnétique, les deux autres en des points voisins dans la zone de Brillouin, pour lesquels le signal magnétique est nul. On détermine ainsi le bruit de fond correspondant à la géométrie de l'expérience.
- Le deuxième exemple est une mesure à énergie constante dans laquelle le vecteur d'onde q varie entre le centre de zone et le bord de zone. Deux magnons, l'un correspondant à la courbe de dispersion au voisinage du centre de zone et l'autre à la partie de cette courbe près du bord de zone. Le tracé continu correspond au meilleur accord calculé à partir de la fonction de résolution.

4 - Etude de la phase ferromagnétique en fonction de la température

La phase ferromagnétique a été étudiée entre 470 K et la température de Curie (710 K).

Les principales caractéristiques des résultats obtenus sont les suivantes : la constante de rigidité décroît régulièrement avec la température (cf. figure III-22). En général, cette constante D a été déterminée à l'aide de la fonction de résolution. Pour certaines températures, la précision sur la position des magnons étant insuffisante, elle a été obtenue par extrapolation de la loi parabolique $\omega = Dq^2$. Pour les températures supérieures à 670 K, la détermination de D devient très imprécise, car les magnons et les phonons longitudinaux ont des caractéristiques voisines en énergie et en vecteur d'onde.

- L'énergie du magnon en bord de zone est indépendante de la température (6,8 THz). La mesure précise de cette énergie n'est pas possible car lors d'une mesure à vecteur d'onde $|\vec{q}|$ constant, les groupes de neutrons diffusés par les magnons se superposent à ceux diffusés par les phonons. De plus, la forme de la courbe de dispersion au voisinage du bord de zone ne permet pas de mesure à énergie constante dans cette région. Nous avons alors mesuré le groupe de neutrons diffusés par les

magnons de 8,47 THz. Les résultats obtenus en fonction de la température sont montrés sur la figure III-23. La variation de l'intensité et de la forme de ce groupe résulte de l'augmentation avec la température du rayon de courbure de la courbe de dispersion vers le bord de zone ; la valeur de l'énergie de ce point restant constante.

- L'énergie du magnon diffusant en milieu de zone diminue lorsque la température augmente. Sur la figure III-24 nous avons représenté les groupes de magnons mesurés en milieu de zone à différentes températures.

La courbe de dispersion à 670 K n'a pu être tracée en raison de la superposition de celle-ci avec les courbes de dispersion de phonons ; les méthodes de séparation des phonons et des magnons donnant des résultats trop imprécis. L'ensemble des courbes de dispersion déterminées en fonction de la température dans la phase ferromagnétique sont portées sur la figure III-25. Un essai de détermination de courbes de dispersion a été fait au-dessus de T_c (710 K) à différentes températures. Cependant, les groupes de neutrons observés ne nous ont pas permis de conclure quant à l'existence d'un signal magnétique. En effet, ces groupes de neutrons peuvent avoir deux causes :

- 1 - présence, à des énergies respectivement plus haute et plus basse que celle considérée, de phonons longitudinaux optiques et longitudinaux acoustiques.
- 2 - présence d'une excitation magnétique.

5 - Intensité et forme du groupe de neutrons diffusés

a - Intensité

L'intensité des groupes de neutrons est le produit de convolution de la section efficace de diffusion inélastique et de la fonction de résolution de l'appareil. Elle dépend donc de la réflectivité du monochromateur et de l'analyseur, du rapport $|\vec{k}_F|/|\vec{k}_I|$ des vecteurs d'ondes incidents et diffusés, de la transmission des collimateurs, au total d'un grand nombre de paramètres expérimentaux. Le calcul proprement dit de l'intensité dépend d'une part du modèle théorique choisi pour la section efficace et d'autre part d'un certain nombre d'approximations qu'il est nécessaire de faire pour exprimer analytiquement la fonction de résolution. En conséquence, le calcul de l'intensité diffusée ne peut être effectué que dans des cas particuliers correspondant à une méthode expérimentale donnée. Par exemple, l'étude de l'intensité le long de la courbe de dispersion s'effectue avec un même vecteur d'onde diffusé ;

350 °C

BF

300 °C

BF

$$\nu = 8.47 \text{ THz}$$

$$k_I = 6.4 \text{ \AA}^{-1}$$

Centre de Zone antiferro-
magnétique (1/2 1/2 1/2)
direction [111]

temps de comptage : 960 s

200 °C

BF

175 °C

BF

$$q_{\text{red}} \left(x \frac{a}{2\pi} \right)$$

0.1 0.2 0.3 0.4

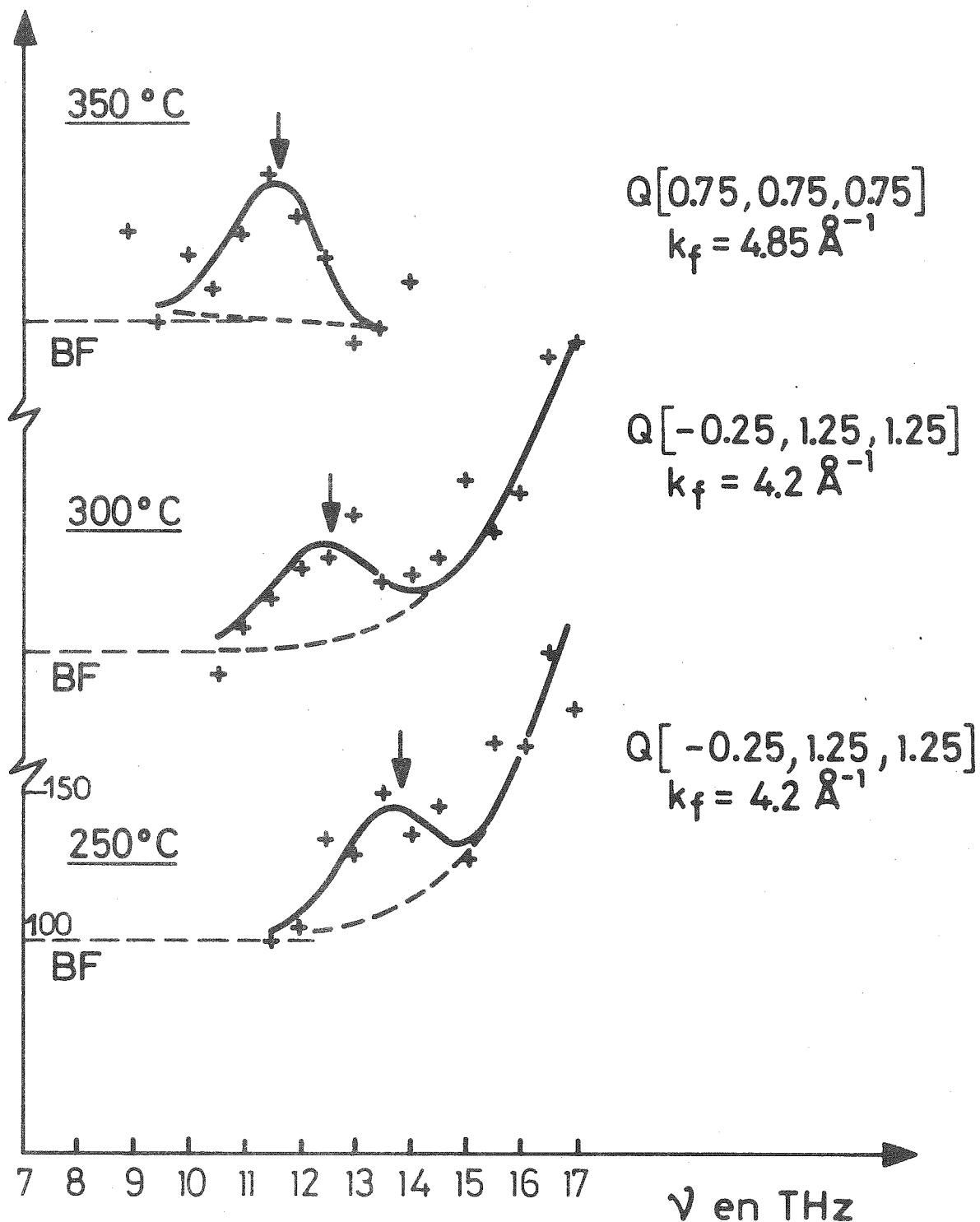


Figure III-24 : Variation avec la température de la position du magnon en milieu de zone.

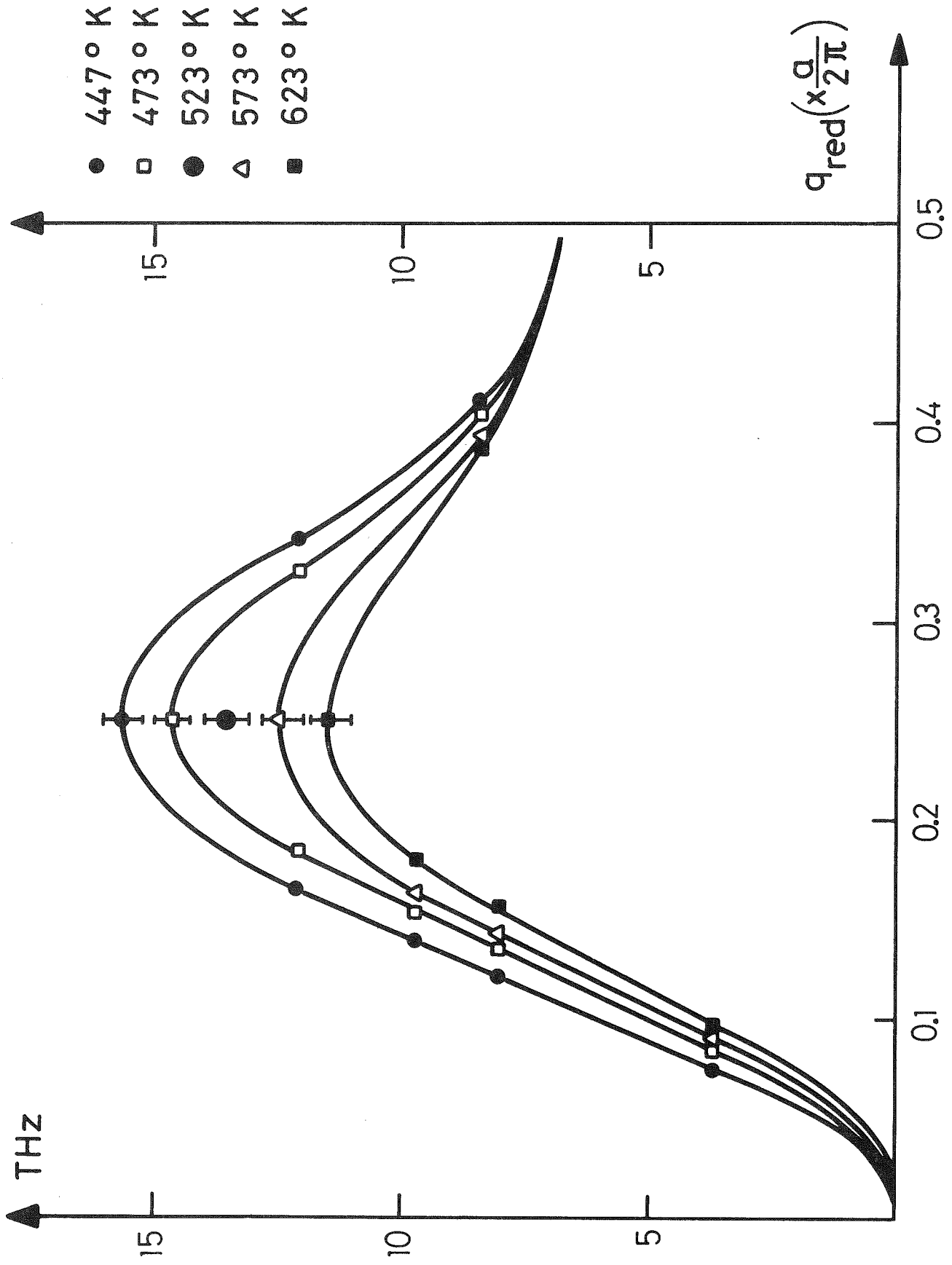


Figure III-25 : Courbe de dispersion des ondes de spin en fonction de la température dans la phase ferromagnétique. (dir 111)

on garde de plus le nombre de neutrons incidents constant tandis que leur vecteur d'onde varie. Ainsi, les variations de l'intensité mesurées sont indépendantes de la réflectivité du monochromateur et de l'analyseur. Si l'on peut négliger la diffraction d'ordre multiple par le monochromateur (cas du germanium où l'ordre deux est éteint), le facteur $|\vec{k}_F|/|\vec{k}_I|$ reste constant car l'efficacité du moniteur est inversement proportionnelle au vecteur d'onde incident. Lorsqu'il convient de tenir compte de la diffusion d'ordre multiple le taux de comptage du moniteur est décomposé en :

$$M = M_1 + M_2 + M_3 + M_4 + \dots$$

où les indices correspondent aux différents ordres.

M peut aussi s'exprimer :

$$M = M_1 \left[1 + f(k_I) \right]$$

avec $f(k_I) = \left[n_2(2k_I) + n_3(3k_I) + n_4(4k_I) + \dots \right] / n_1(k_I)$

où n_i est la densité de neutrons dans le faisceau incident d'ordre i . Les densités sont mesurées en fonction du vecteur d'onde k_I en mesurant l'activation de feuilles d'or d'épaisseurs différentes (WER 71).

b - Forme

La forme du groupe de neutrons diffusés dépend de la pente et de la concavité de la courbe de dispersion et de la méthode de mesure choisie à énergie constante, où à vecteur d'onde diffusé constant.

Pour calculer la largeur intrinsèque du groupe de neutrons, la courbe de dispersion est généralement développée au premier ordre, les termes du deuxième ordre étant négligés en raison de la complexité du calcul. En général, la courbe de dispersion est assimilée soit à une droite, soit à une parabole bien que le programme de calcul utilisé permette la description d'une courbe de dispersion plus générale s'exprimant sous la forme :

$$\sum_{ij} X_i C_{ij} X_j + \sum_i D_i X_i + E = 0$$

Ainsi, nous avons pu calculer systématiquement toutes les formes des groupes de neutrons observés. L'ensemble des résultats donne un excellent accord entre les formes calculées et les formes observées à condition que la correction due au facteur de population, lorsque les mesures sont effectuées à des températures différentes, soit faite.

Dans tous les calculs précédents, nous avons négligé dans la section efficace de diffusion le temps de vie associé au magnon. Pour en tenir compte, la section efficace prend une forme complexe, car elle ne peut plus s'exprimer à partir d'une fonction delta. Cependant, les accords obtenus entre le calcul et l'expérience montrent que seule de la courbe de dispersion et la méthode de mesure contribuent de façon notable à la largeur du groupe observé. L'hypothèse de calcul d'un temps de vie infini est donc largement justifiée.

CHAPITRE IV

MODÈLES PERMETTANT DE RENDRE COMPTE DES COURBES DE DISPERSION DE PHONONS ET DES COURBES DE DISPERSION DE MAGNONS

Dans ce chapitre, nous tentons de rendre compte par le calcul des résultats expérimentaux décrits au chapitre précédent.

Dans un premier paragraphe, nous exposons le modèle utilisé pour calculer la courbe de dispersion de phonons. Nous montrons ainsi que l'accord obtenu entre le calcul et l'expérience est satisfaisant. Dans un deuxième paragraphe, nous décrivons le modèle utilisé pour paramétrer les courbes de dispersion de magnons dans les phases ferromagnétique et antiferromagnétique. Dans chaque phase, un ensemble d'intégrales d'échange est déterminé ; l'accord entre l'expérience et le calcul est excellent.

A - MODELE D'IONS RIGIDES POUR FeRh

1 - Introduction

Le calcul des spectres de phonons et des constantes de force entre les différents atomes dans les métaux a été fait pendant longtemps au moyen de modèles phénoménologiques utilisés dans les cristaux ioniques (modèle à ions rigides, modèle en coquille (HAN 71a et b, WEB 72), etc..). Dans ce modèle, on suppose que les atomes interagissent par paires et par l'intermédiaire de forces dérivant d'un potentiel central ou non (forces angulaires). On détermine les constantes de forces à partir des valeurs expérimentales des constantes élastiques (si elles sont connues) ou en utilisant le spectre de phonons déterminé expérimentalement.

Depuis le travail de Toya (TOY 58) il y a eu beaucoup de tentatives pour calculer les courbes de dispersion de phonons dans les métaux normaux. Ces travaux ont trouvé leur aboutissement dans la théorie du pseudopotentiel (HAR 66). Pour calculer la matrice dynamique, on considère que le potentiel du noyau "nu" est fortement diminué par les électrons de conduction (électrons s) donnant ainsi naissance à un "pseudopotentiel". Celui-ci peut être calculé (HAR 66) ou déterminé en partie à partir d'informations expérimentales (HAN 72). Dans les métaux normaux, ce modèle est applicable car les électrons de valence forment un système d'électrons presque libres tandis que les ions restants n'ont aucun recouvrement entre eux et peuvent ainsi être considérés comme des ions isolés. Par contre dans le cas des métaux de transition le calcul de la matrice dynamique est plus complexe en raison de la présence des électrons "d" qui participent également à la conduction. Pour calculer la contribution des électrons "s" et "d" dans le nickel, Prakash et Joshi (PRA 71) ont utilisé pour les électrons un modèle à deux bandes sans interactions et pour les ions un "pseudopotentiel" local. Le résultat qu'ils obtiennent est en bon accord avec l'expérience.

En dépit de la progression des modèles que nous venons d'évoquer brièvement, la théorie des vibrations du réseau cristallin dans les métaux est loin d'être satisfaisante et les modèles phénoménologiques évoqués au début de ce paragraphe sont encore utilisés pour expliquer les spectres de dispersion de phonons dans les métaux.

2 - Modèle de forces

Le mouvement des électrons étant plus rapide que celui des noyaux, on admet qu'il est possible de séparer les deux mouvements (approximation adiabatique). Ainsi les forces entre noyaux vont dériver d'un potentiel effectif ne dépendant que de sa position :

$$\vec{r}_k^{(1)} = \vec{r}^{(1)} + r(k) + u_k^{(1)} \quad (\text{IV-1})$$

$\vec{r}^{(1)}$ vecteur position de la maille 1,

$\vec{r}(k)$ position de l'ion k dans la maille 1,

$u_k^{(1)}$ déplacement par rapport à la position d'équilibre.

Si ϕ est le potentiel évoqué plus haut :

$$\begin{aligned} \phi = \phi_0 + \sum_{l,k,\alpha} \phi_{\alpha}^{(l)} u_{\alpha}^{(l)} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{l,k,\alpha \\ l',k',\beta}} u_{\alpha}^{(l)} \phi_{\alpha\beta}^{(l \ l')} u_{\beta}^{(l')} \\ + \frac{1}{6} \sum_{\substack{l,k,\alpha \\ l',k',\beta \\ l'',k'',\gamma}} \phi_{\alpha\beta\gamma}^{(l \ l' \ l'')} u_{\alpha}^{(l)} u_{\beta}^{(l')} u_{\gamma}^{(l'')} + \dots \end{aligned}$$

avec
$$\phi_{\alpha\beta\gamma}^{(l \ l' \ l'')} = \left. \frac{\partial^3 \phi}{\partial u_{\alpha}^{(l)} \partial u_{\beta}^{(l')} \partial u_{\gamma}^{(l'')}} \right|_0$$

cette dérivée étant prise au point d'équilibre $\vec{u}^{(l)} = 0$, α, β, γ étant les coordonnées cartésiennes habituelles.

L'approximation harmonique consiste en une limitation du développement ci-dessus aux termes du deuxième ordre. De plus les constantes ϕ_0 , ϕ_{α} et $\phi_{\alpha\beta}$ satisfont à des propriétés telles que :

- ϕ_0 terme constant,
- ϕ_{α} est nul car le développement s'effectue autour de la position d'équilibre,
- $\phi_{\alpha\beta}^{(l \ l')}$ est un tenseur de rang 2 tel que :

$$\phi_{\alpha\beta}^{(l \ l')} = \phi_{\alpha\beta}^{(l' \ l)}$$

de plus, il vérifie les conditions suivantes :

- condition de stabilité :

$$\sum_{l',k'} \phi_{\alpha\beta}^{(l \ l')} = 0$$

- invariance par translation :

$$\phi_{\alpha\beta}^{(l \ l')} = \phi_{\alpha\beta}^{(l+m \ l'+m)} = \phi_{\alpha\beta}^{(0 \ l-l')}$$

- invariance par symétrie :

$$\phi_{\alpha\beta}^{(L \ L')} = \alpha \phi_{\alpha\beta}^{(l \ l')} \alpha^{\sim}$$

α étant une matrice représentant l'opération de symétrie du cristal

déplaçant la liaison $(\begin{smallmatrix} l & l' \\ k & k' \end{smallmatrix})$ sur la liaison $(\begin{smallmatrix} L & L' \\ k & k' \end{smallmatrix})$. On définit alors un Hamiltonien harmonique :

$$H_0 = \sum_{l,k,\alpha} \frac{P_{\alpha}^2(l)}{2M_k} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{l,k\alpha \\ l',k',\beta}} u_{\alpha}(l) \phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix} l & k \\ l' & k' \end{smallmatrix}) u_{\beta}(l') \quad (IV-3)$$

Les équations du mouvement sont obtenues en utilisant les équations de Hamilton :

$$M_k \frac{\partial^2 \vec{u}(l)}{\partial t^2} = - \sum_{l',k',\beta} \phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix} l & l' \\ k & k' \end{smallmatrix}) u_{\beta}(l') \quad (IV-4)$$

La périodicité du réseau et les condition de Born von Karman imposent des solutions de la forme :

$$u_{\alpha}(l) = \frac{1}{\sqrt{Nm_k}} \sum_{\vec{q}} B(\vec{q}) e_{\alpha}(\vec{q}) e^{i(\vec{q}, \vec{r}(l) - \omega(\vec{q}) \cdot t)}$$

N nombre de cellules par cristal

\vec{q} vecteur d'onde

$B(\vec{q})$ est l'amplitude du mouvement

$\vec{e}(\vec{q})$ est le vecteur de polarisation du mode.

En reportant cette solution dans l'équation on obtient 3n équations :

$$\omega^2(\vec{q}) e_{\alpha}(\vec{q}) = \sum_{\beta,k'} D_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix} \vec{q} \\ k & k' \end{smallmatrix}) e_{\beta}(\vec{q}) \quad (IV-5)$$

$$\text{où } D_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix} \vec{q} \\ k & k' \end{smallmatrix}) = - \frac{1}{\sqrt{m_k m_{k'}}} \sum_{l'} \phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix} l & l' \\ k & k' \end{smallmatrix}) e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}(l') - \vec{r}(l))}$$

Si on écrit que $\vec{e}(\vec{q})$ est une matrice colonne de 3n éléments rendant compte de la polarisation et que $D(\vec{q})$ est une matrice de dimensions 3n, appelée matrice dynamique, cette équation s'écrit (I étant la matrice identité) :

$$\omega^2(\vec{q}) \vec{e} = D \vec{e}, \text{ ou encore } \left[D - \omega^2(\vec{q}) I \right] \vec{e} = 0 \quad (IV-6)$$

Les 3n solutions sont obtenues en écrivant que :

$$\det \left[D_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix} \vec{q} \\ k & k' \end{smallmatrix}) - \omega_j^2(\vec{q}) \delta_{\alpha\beta} \delta_{kk'} \right] = 0 \quad (IV-7)$$

les valeurs $\omega_j(\vec{q})$ sont les valeurs propres réelles de la matrice dynamique

correspondant à l'énergie du phonon créé. $e_{\alpha}^j(\vec{k})$ sont les composantes du vecteur propre correspondant au mode j . Les $\omega_j(\vec{q})$ sont les relations de dispersion que l'on cherche. Les vecteurs propres ont été négligés car ceux-ci sont nécessaires seulement lorsque l'on veut calculer les constantes diélectriques etc... Nous devons donc évaluer D dans le cas du composé défini FeRh pour chercher les valeurs propres de cette matrice.

3 - Calcul de D

Les forces entre atomes s'écrivent d'une manière générale :

$$\phi\left(\begin{matrix} l & l' \\ k & k' \end{matrix}\right) = \begin{bmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & \beta_2 \\ \gamma_1 & \alpha_2 & \beta_3 \\ \gamma_2 & \gamma_3 & \alpha_3 \end{bmatrix} \quad (\text{IV-8})$$

L'utilisation des relations de symétrie correspondant au cristal considéré réduit le nombre de paramètres inconnus. La figure IV-1 représente la maille cristalline de FeRh. Les premiers, seconds et troisièmes voisins d'un atome de fer placé au centre de la maille q sont représentés. On suppose que les seules interactions non nulles sont celles entre les premiers et deuxièmes voisins.

a - Interactions entre premiers voisins

Un atome de Fe(Rh) est entouré de 8 premiers voisins Rh(Fe). Leurs coordonnées, si on met l'origine sur l'ion fer(Rh), sont :

$$\begin{pmatrix} 1/2 & 1/2 & 1/2 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} 1/2 & \bar{1}/2 & 1/2 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} \bar{1}/2 & \bar{1}/2 & 1/2 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} \bar{1}/2 & 1/2 & 1/2 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} \bar{1}/2 & \bar{1}/2 & \bar{1}/2 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} \bar{1}/2 & 1/2 & \bar{1}/2 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} 1/2 & 1/2 & \bar{1}/2 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} 1/2 & \bar{1}/2 & \bar{1}/2 \end{pmatrix}$$

Considérons la liaison entre l'atome de fer(rhodium) situé en 0, 0, 0 et l'atome de rhodium (fer) situé en $\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$. En appliquant les opérations de symétrie correspondant à cette liaison à l'équation générale de la force on obtient :

$$\phi_1^{\text{Fe-Rh}} = \begin{bmatrix} \alpha & \beta & \beta \\ \beta & \alpha & \beta \\ \beta & \beta & \alpha \end{bmatrix}$$

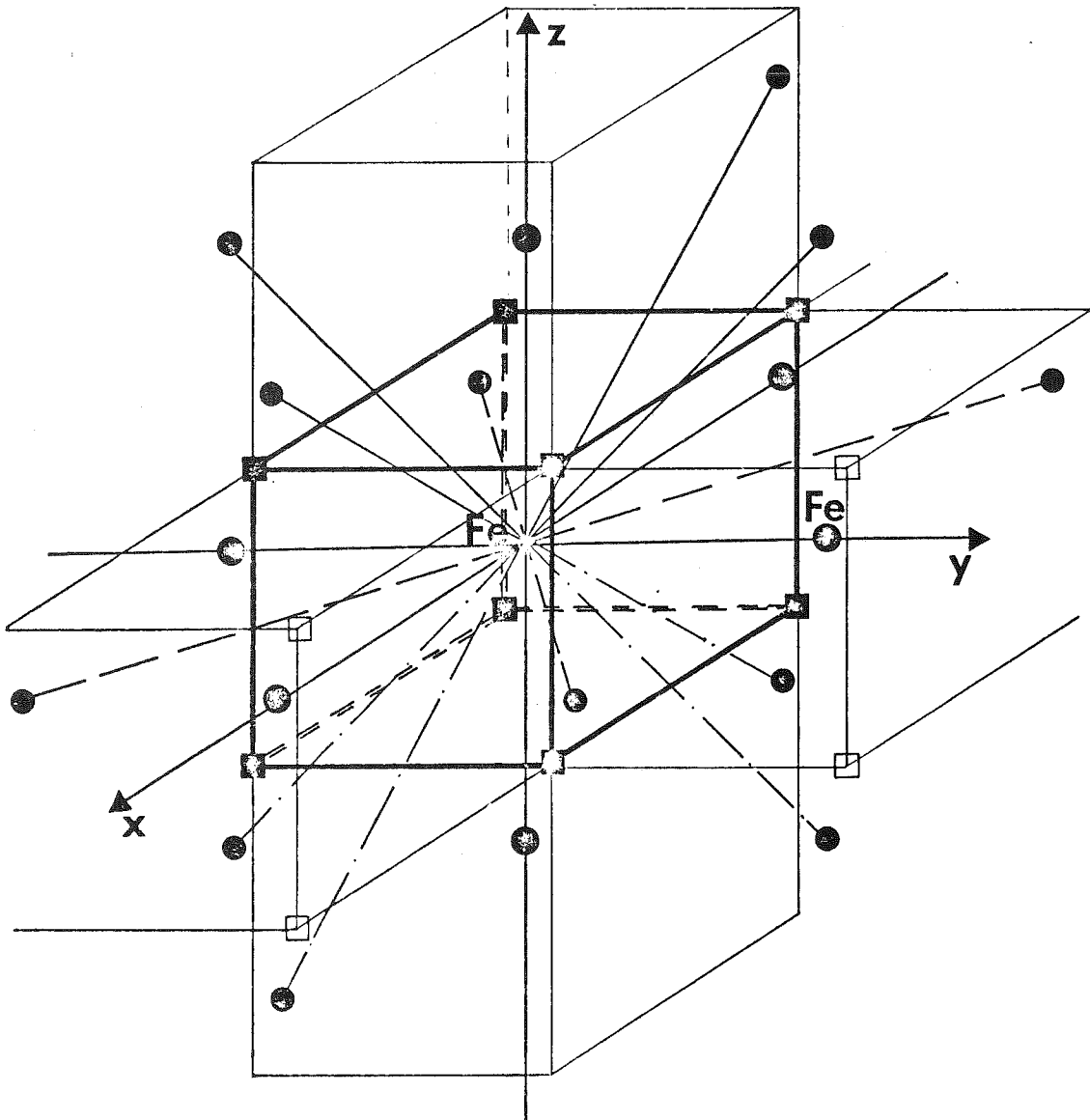


Figure IV-1 : Maille cristalline de FeRh ; les premiers, deuxièmes et troisièmes voisins sont représentés.

L'expression de cette force correspond aux liaisons entre les points $0\ 0\ 0 - \frac{1}{2}\ \frac{1}{2}\ \frac{1}{2}$ et $0\ 0\ 0 - \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}$. De même pour les liaisons entre les points $0\ 0\ 0 - \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{1}{2}\ \frac{1}{2}$ et $0\ 0\ 0 - \frac{1}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}$:

$$\phi_2^{\text{Fe-Rh}} = \begin{bmatrix} \alpha & -\beta & -\beta \\ -\beta & \alpha & \beta \\ -\beta & \beta & \alpha \end{bmatrix} \text{ pour les liaisons } \begin{cases} 0\ 0\ 0 - \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{1}{2}\ \frac{1}{2} \\ 0\ 0\ 0 - \frac{1}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{\bar{1}}{2} \end{cases}$$

puis :

$$\phi_3^{\text{Fe-Rh}} = \begin{bmatrix} \alpha & \beta & -\beta \\ \beta & \alpha & -\beta \\ -\beta & -\beta & \alpha \end{bmatrix} \text{ pour les liaisons } \begin{cases} 0\ 0\ 0 - \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{1}{2} \\ 0\ 0\ 0 - \frac{1}{2}\ \frac{1}{2}\ \frac{\bar{1}}{2} \end{cases}$$

et

$$\phi_4^{\text{Fe-Rh}} = \begin{bmatrix} \alpha & -\beta & \beta \\ -\beta & \alpha & -\beta \\ \beta & -\beta & \alpha \end{bmatrix} \text{ pour les liaisons } \begin{cases} 0\ 0\ 0 - \frac{1}{2}\ \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{1}{2} \\ 0\ 0\ 0 - \frac{\bar{1}}{2}\ \frac{1}{2}\ \frac{\bar{1}}{2} \end{cases}$$

b - Interactions entre deuxièmes voisins

Les deuxièmes voisins du fer (rhodium) sont des atomes de fer (rhodium) situés en 100 , $\bar{1}00$, $0\bar{1}0$, 010 , 001 , $00\bar{1}$. Le même procédé de calcul que celui utilisé au paragraphe précédent donne les expressions suivantes :

$$\phi_1^{\text{Fe-Fe}} = \begin{bmatrix} A & 0 & 0 \\ 0 & B & 0 \\ 0 & 0 & B \end{bmatrix} \text{ pour les liaisons } \begin{cases} 1\ 0\ 0 - 0\ 0\ 0 \\ \bar{1}\ 0\ 0 - 0\ 0\ 0 \end{cases}$$

$$\phi_2^{\text{Fe-Fe}} = \begin{bmatrix} B & 0 & 0 \\ 0 & A & 0 \\ 0 & 0 & B \end{bmatrix} \text{ pour les liaisons } \begin{cases} 0\ 1\ 0 - 0\ 0\ 0 \\ 0\ \bar{1}\ 0 - 0\ 0\ 0 \end{cases}$$

$$\phi_3^{\text{Fe-Fe}} = \begin{bmatrix} B & 0 & 0 \\ 0 & B & 0 \\ 0 & 0 & A \end{bmatrix} \text{ pour les liaisons } \begin{cases} 0\ 0\ 1 - 0\ 0\ 0 \\ 0\ 0\ \bar{1} - 0\ 0\ 0 \end{cases}$$

c - Expression de D

En utilisant l'expression (IV-7), il est aisé de calculer D.

Pour les premiers voisins seuls, D s'écrit :

$$-\frac{1}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} \left| \begin{array}{l} 2\phi_1^{Fe-Rh} \cos \Pi (x+y+z) + 2\phi_2^{Fe-Rh} \cos \Pi (x-y-z) \\ + 2\phi_3^{Fe-Rh} \cos \Pi (x+y-z) + 2\phi_4^{Fe-Rh} \cos \Pi (x-y+z) \end{array} \right| \quad (IV-9)$$

De même pour les deuxièmes voisins on obtient :

$$-\frac{1}{m_{Fe}} \left| \begin{array}{l} 2\phi_1^{Fe-Fe} \cos 2\Pi x + 2\phi_2^{Fe-Fe} \cos 2\Pi y + 2\phi_3^{Fe-Fe} \cos 2\Pi z \end{array} \right| \quad (IV-10)$$

Compte tenu de ces résultats la matrice dynamique s'écrit :

$$\begin{array}{cccccc} \frac{1}{m_{Fe}} (2A+4B+8\alpha-2A'_x) & -\frac{8\alpha_{xyz}}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{\beta z}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{\delta \beta_y}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} \\ -\frac{8\alpha_{xyz}}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & \frac{1}{m_{Rh}} (2A'+4B'+8\alpha-2A'_x) & \frac{\delta \beta_z}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{\delta \beta_x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 \\ 0 & \frac{\delta \beta_z}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & \frac{1}{m_{Fe}} (2A+4B+8\alpha-2A'_y) & -\frac{8\alpha_{xyz}}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{\delta \beta_x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} \\ \frac{\delta \beta_z}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & -\frac{8\alpha_{xyz}}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & \frac{1}{m_{Rh}} (2A'+4B'+8\alpha-2A'_y) & \frac{\delta \beta_x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 \\ 0 & \frac{\delta \beta_x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{\beta x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & \frac{1}{m_{Fe}} (2A+4B+8\alpha-2A'_z) & -\frac{8\alpha_{xyz}}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} \\ \frac{\delta \beta_x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{\beta x}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} & 0 & \frac{1}{m_{Rh}} (2A'+4B'+8\alpha-2A'_z) & -\frac{8\alpha_{xyz}}{\sqrt{m_{Fe} m_{Rh}}} \end{array}$$

$$\begin{array}{ll} \text{avec } \alpha_{xyz} = \alpha \cos \Pi x \cos \Pi y \cos \Pi z & A_x = A \cos 2\Pi x + B(\cos 2\Pi y + \cos 2\Pi z) \\ \beta_x = \beta \sin \Pi y \sin \Pi z \cos \Pi x & A_y = A \cos 2\Pi y + B(\cos 2\Pi z + \cos 2\Pi x) \\ \beta_y = \beta \sin \Pi x \sin \Pi z \cos \Pi y & A_z = A \cos 2\Pi z + B(\cos 2\Pi x + \cos 2\Pi y) \\ \beta_z = \beta \sin \Pi x \sin \Pi y \cos \Pi z & \end{array}$$

Pour connaître les $\omega(\vec{q})$ qui seront les courbes de dispersion cherchées, il faut déterminer les valeurs propres de cette matrice dynamique. La résolution de l'équation (IV-7) a été faite par calcul numérique. Les valeurs de A, A', α et β ont été estimées au début du calcul en se servant de points expérimentaux simples (centre de zone et bord de zone). Une méthode de moindres carrés nous a permis d'obtenir le meilleur ensemble de paramètres A, A', B, B', α et β . La figure IV-2 montre les courbes de dispersion calculées conjointement à l'expérience. Les valeurs des paramètres sont reportées sur la figure IV-2.

B - MODELE D'HEISENBERG POUR FeRh

1 - Introduction

Depuis de nombreuses années le modèle d'Heisenberg est utilisé pour rendre compte des courbes de dispersion d'ondes de spin dans de nombreux corps. Ce modèle s'applique essentiellement au cas des isolants dans lesquels les atomes sont localisés. Par contre, dans le cas des métaux, les électrons sont délocalisés et pour calculer la courbe de dispersion d'ondes de spin il faut chercher les poles de la susceptibilité généralisée du corps considéré comme cela est expliqué au chapitre I, page 11. Alors que FeRh présente indiscutablement un caractère métallique nous présentons malgré tout un calcul de courbes de dispersion d'ondes de spin dans ce corps suivant le modèle d'Heisenberg en raison de l'excellent accord obtenu entre l'expérience et le calcul.

2 - Phase ferromagnétique

Le modèle utilisé est un modèle d'Heisenberg dont l'expression généralisée s'écrit :

$$H = - \sum_{ij} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (\text{IV-11})$$

J_{ij} représente l'intégrale d'échange entre l'ion i et l'ion j. \vec{S}_i est le spin correspondant à l'ion i. Dans la phase ferromagnétique, comme nous l'écrivons plus haut (chapitre I, p. 20), le moment sur le fer est de $3,2 \mu_B$ et le moment sur le rhodium de $0,9 \mu_B$. La maille magnétique est cubique avec 2 atomes dans la maille. Si l'atome de fer se trouve être un coin de cube dans ce cas, l'atome de rhodium en est le centre et vice-versa. Dans ce cas, si a est la maille cristalline, chaque atome de Fe(Rh) est entouré comme suit :

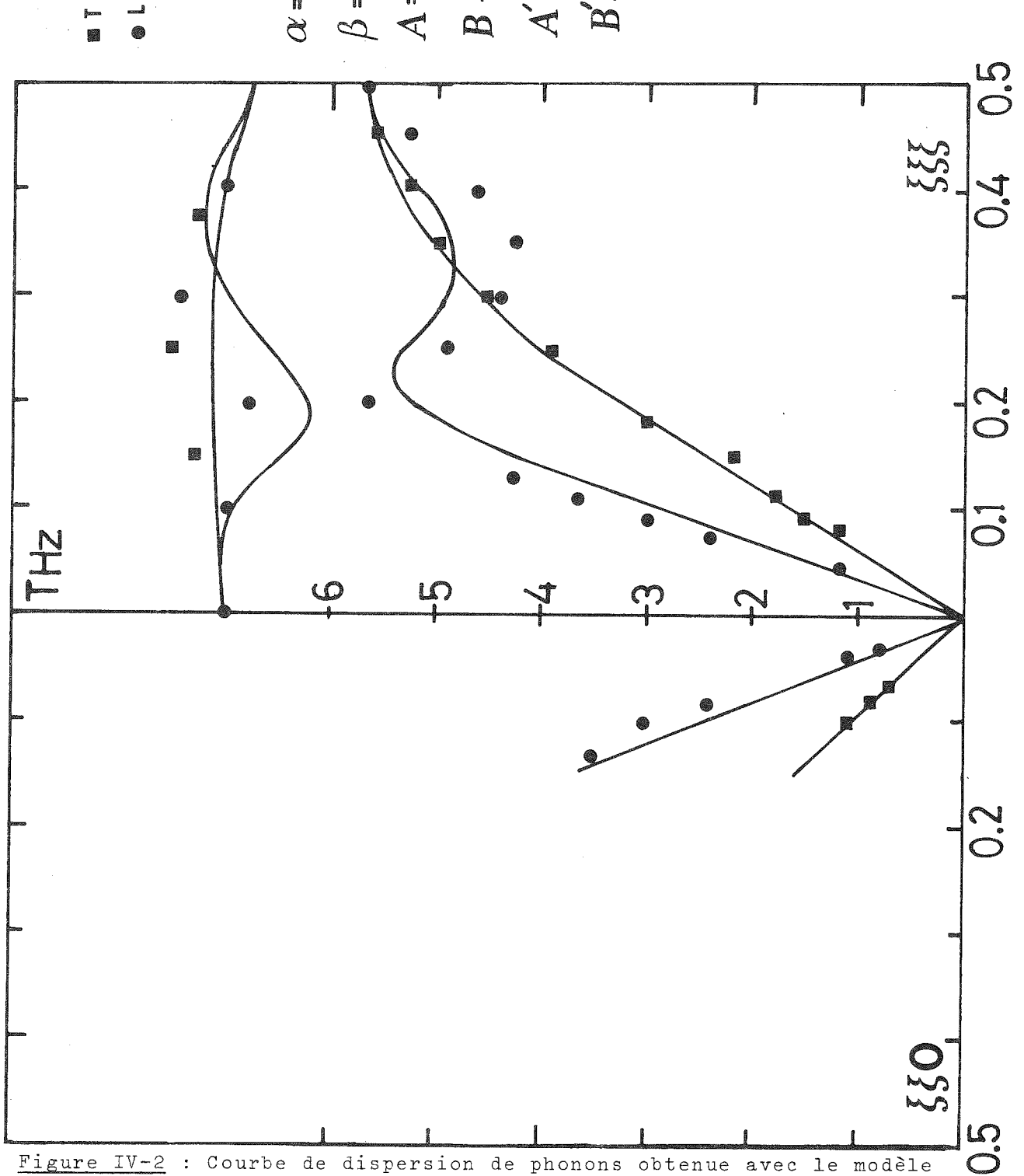


Figure IV-2 : Courbe de dispersion de phonons obtenue avec le modèle d'ions rigides. Les croix correspondent aux points expérimentaux.

	$\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$		$\bar{1} \bar{1} \bar{1}$
premiers voisins Rh(Fe)	$\bar{1} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$		$\frac{1}{2} \bar{1} \bar{1}$
à une distance de $\frac{a\sqrt{3}}{2}$	$\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$	et	$\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$
	$\frac{1}{2} \bar{1} \frac{1}{2}$		$\bar{1} \frac{1}{2} \bar{1}$
	$\frac{1}{2} \frac{1}{2} \bar{1}$		$\bar{1} \bar{1} \frac{1}{2}$
	1 0 0		$\bar{1}$ 0 0
deuxièmes voisins Fe(Rh)	0 1 0		0 $\bar{1}$ 0
à une distance de a	0 0 1		0 0 $\bar{1}$
	1 1 0		$\bar{1} \bar{1}$ 0
troisièmes voisins Fe(Rh)	0 1 1		0 $\bar{1} \bar{1}$
à une distance de $a\sqrt{2}$	1 0 1		$\bar{1}$ 0 $\bar{1}$
	1 0 $\bar{1}$		$\bar{1}$ 0 1
	0 1 $\bar{1}$		0 $\bar{1}$ 1
	$\bar{1}$ 1 0		1 $\bar{1}$ 0
	$\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{3}{2}$		$\bar{1} \bar{1} \frac{3}{2}$
quatrièmes voisins Rh(Fe)	$\bar{1} \frac{1}{2} \frac{3}{2}$		$\frac{1}{2} \bar{1} \frac{3}{2}$
à une distance de $\frac{a\sqrt{11}}{2}$	$\frac{1}{2} \bar{1} \frac{3}{2}$		$\bar{1} \frac{1}{2} \frac{3}{2}$
	$\bar{1} \bar{1} \frac{3}{2}$		$\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{3}{2}$

Nous allons diagonaliser cet Hamiltonien en suivant une méthode décrite la première fois par Holstein et Primakoff (HOL 40). En effet, l'indépendance des ondes de spin aux basses températures permet en particulier de les considérer comme un ensemble de quasi-particules obéissant à la statistique de Bose-Einstein. On utilise alors une méthode de développement de l'Hamiltonien de Heisenberg qui met en évidence un terme principal décrivant une assemblée de bosons indépendants.

Si on utilise les opérateurs locaux b_i^+ , b_i de création et d'annihilation de bosons on peut écrire les opérateurs de spin sous la forme suivante :

$$S_i^+ = \sqrt{2S} f_i b_i$$

$$S_i^- = \sqrt{2S} b_i^+ f_i$$

$$S_i^Z = S - b_i^+ b_i$$

avec
$$f_i = \left[1 - \frac{b_i^+ b_i}{2S} \right]^{1/2}$$

on posera $b_i^+ b_i = n_i$

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

$$[b_i, b_j^+] = \delta_{ij}$$

L'Hamiltonien (IV-11) s'écrit en fonction des composantes circulaires :

$$\mathcal{H}_H = - \sum_{ij} J_{ij} \left[\frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) + S_i^Z S_j^Z \right] \quad (\text{IV-12})$$

On est amené à écrire f_i sous la forme d'un développement binomial en série de puissances de n_i/S

$$f_i = 1 - \frac{1}{4} \left(\frac{n_i}{S} \right) - \frac{1}{32} \left(\frac{n_i}{S} \right)^2 - \dots$$

L'Hamiltonien est alors développé en une série infinie de termes :

$$\mathcal{H}_H = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \dots$$

L'approximation linéaire consiste à limiter l'Hamiltonien au premier terme \mathcal{H}_0 de la série soit à remplacer f_i et f_j par l'unité et à négliger le terme en $n_i n_j$ provenant du produit $S_i^Z S_j^Z$. On a donc supposé que $a_i^+ a_i$ est petit comparé à S car $\langle S_i^Z \rangle$ est presque égal à S . L'Hamiltonien se réécrit alors :

$$\mathcal{H} = - \sum_{ij} J_{ij} \left| \sqrt{S_i S_j} (b_i b_j^+ + b_i^+ b_j) + S_i S_j - S_j b_i^+ b_i - S_i b_j^+ b_j \right| \quad (\text{IV-13})$$

Du fait de l'invariance par translation de l'Hamiltonien il est plus aisé de travailler avec les composantes de Fourier des opérateurs. Soit :

$$b_i = \frac{2}{N} \sum_{\vec{q}} e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_i} b_{\vec{q}}$$

$$b_i^+ = \frac{2}{N} \sum_{\vec{q}} e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_i} b_{\vec{q}}^+$$

Alors en posant $\gamma(\vec{q}) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} e^{-i\vec{q}(\vec{r}_i - \vec{r}_j)}$

on appellera $\gamma_{1i}(\vec{q})$ le $\gamma(\vec{q})$ correspondant entre l'atome et les $i^{\text{èmes}}$ voisins. L'Hamiltonien total s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & \sum_{\vec{q}} J_{F-F}^{(2)} S_{Fe} \left[\gamma_{12}(\vec{q}) b_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^+ + \gamma_{12}^*(\vec{q}) b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} - 2\gamma_{12}(0) b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} \right] \\ & + J_{F-F}^{(3)} S_{Fe} \left[\gamma_{13}(\vec{q}) b_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^+ + \gamma_{13}^*(\vec{q}) b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} - 2\gamma_{13}(0) b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} \right] \\ & + \sum_{\vec{q}} J_{R-R}^{(2)} S_{Rh} \left[\gamma_{12}(\vec{q}) c_{\vec{q}} c_{\vec{q}}^+ + \gamma_{12}^*(\vec{q}) c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} - 2\gamma_{12}(0) c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} \right] \\ & + J_{R-R}^{(3)} S_{Rh} \left[\gamma_{13}(\vec{q}) c_{\vec{q}} c_{\vec{q}}^+ + \gamma_{13}^*(\vec{q}) c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} - 2\gamma_{13}(0) c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} \right] \\ & + \sum_{\vec{q}} 2J_{F-R}^{(1)} \left[S_{Fe} S_{Rh} \operatorname{Re} \gamma_{11}(\vec{q}) (b_{\vec{q}} c_{\vec{q}}^+ + b_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}}) - \gamma_{11}(0) S_{Rh} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} - \gamma_{11}(0) S_{Fe} c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} \right] \\ & + \sum_{\vec{q}} 2J_{F-R}^{(4)} \left[S_{Fe} S_{Rh} \operatorname{Re} \gamma_{14}(\vec{q}) (b_{\vec{q}} c_{\vec{q}}^+ + b_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}}) - \gamma_{14}(0) S_{Rh} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} - \gamma_{14}(0) S_{Fe} c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} \right] \end{aligned} \quad (IV-14)$$

Nous désirons mettre cet Hamiltonien sous la forme :

$$\mathcal{H} = \sum_{\vec{q}, \gamma} \hbar \omega_{\gamma}(\vec{q}) \hat{\alpha}_{\gamma \vec{q}}^+ \hat{\alpha}_{\gamma \vec{q}} \quad (IV-15)$$

c'est-à-dire que nous cherchons un opérateur $\alpha_{\vec{q}}$ tel que

$$[\hat{\alpha}_{\vec{q}}, \mathcal{H}] = \hbar \omega(\vec{q}) \hat{\alpha}_{\vec{q}} \quad \text{avec} \quad [\alpha_{\vec{q}}, \alpha_{\vec{q}}^+] = 1.$$

Supposons alors que $\hat{\alpha}_{\vec{q}} = x_1 b_{\vec{q}} + x_2 c_{\vec{q}}$, dans ce cas :

$$\begin{aligned}
 |\hat{\alpha}_q, \mathcal{H}| = & x_1 \left[J_{F-F}^{(2)} S_{Fe} (\gamma_{12}(q) + \gamma_{12}^*(q) - 2\gamma_{12}(0)) b_q + J_{F-F}^{(3)} S_{Fe} (\gamma_{13}(q) + \gamma_{13}^*(q) - 2\gamma_{13}(0)) b_q \right. \\
 & + J_{F-R}^{(1)} (\sqrt{S_{Fe} S_{Rh}} \operatorname{Re} \gamma_{11}(q) c_q - S_{Rh} \gamma_{11}(0) b_q) \\
 & \left. + 2J_{F-R}^{(4)} (\sqrt{S_{Fe} S_{Rh}} \operatorname{Re} \gamma_{14}(q) c_q - S_{Rh} \gamma_{14}(0) b_q) \right] \\
 & + x_2 \left[J_{R-R}^{(2)} S_{Rh} (\gamma_{12}(q) + \gamma_{12}^*(q) - 2\gamma_{12}(0)) c_q + J_{R-R}^{(3)} S_{Rh} (\gamma_{13}(q) + \gamma_{13}^*(q) - 2\gamma_{13}(0)) c_q \right. \\
 & + 2J_{F-R}^{(1)} (\sqrt{S_{Fe} S_{Rh}} \operatorname{Re} \gamma_{11}(q) b_q - S_{Fe} \gamma_{11}(0) c_q) \\
 & \left. + 2J_{F-R}^{(4)} (\sqrt{S_{Fe} S_{Rh}} \operatorname{Re} \gamma_{14}(q) b_q - S_{Fe} \gamma_{14}(0) c_q) \right] \quad (IV-16)
 \end{aligned}$$

En identifiant à $\vec{h}\omega(q)$ $\hat{\alpha}_q$ on obtient le système suivant à résoudre :

$$\begin{aligned}
 (2J_{F-F}^{(2)} S_{Fe} \Gamma_{12} + 2J_{F-F}^{(3)} S_{Fe} \Gamma_{13} - 2J_{F-R}^{(1)} S_{Rh} \gamma_{11}(0) - 2J_{F-R}^{(4)} S_{Rh} \gamma_{14}(0) - \vec{h}\omega(\vec{q})) x_1 \\
 + (2J_{F-R}^{(1)} \sigma \operatorname{Re} \gamma_{11}(q) + 2J_{F-R}^{(4)} \sigma \operatorname{Re} \gamma_{14}(q)) x_2 = 0
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 (2J_{F-R}^{(1)} \sigma \operatorname{Re} \gamma_{11}(q) + 2J_{F-R}^{(4)} \sigma \operatorname{Re} \gamma_{14}(q)) x_1 + (2J_{R-R}^{(2)} S_{Rh} \Gamma_{12} + 2J_{R-R}^{(3)} S_{Rh} \Gamma_{13} \\
 - 2J_{F-R}^{(1)} S_{Fe} \gamma_{11}(0) - 2J_{F-R}^{(4)} S_{Fe} \gamma_{14}(0) - \vec{h}\omega(\vec{q})) x_2 = 0
 \end{aligned}$$

avec

$$\sigma = \sqrt{S_{Fe} S_{Rh}}$$

$$\Gamma_{12} = \operatorname{Re} \gamma_{12}(q) - \gamma_{12}(0)$$

$$\Gamma_{13} = \operatorname{Re} \gamma_{13}(q) - \gamma_{13}(0)$$

en posant :

$$A = 2J_{F-F}^{(2)} S_{Fe} \Gamma_{12} + 2J_{F-F}^{(3)} S_{Fe} \Gamma_{13} - 2J_{F-R}^{(1)} S_{Rh} \gamma_{11}(0) - 2J_{F-R}^{(4)} S_{Rh} \gamma_{14}(0)$$

et

$$B = 2J_{R-R}^{(2)} S_{Rh} \Gamma_{12} + 2J_{R-R}^{(3)} S_{Rh} \Gamma_{13} - 2J_{F-R}^{(1)} S_{Fe} \gamma_{11}(0) - 2J_{F-R}^{(4)} S_{Fe} \gamma_{14}(0)$$

$$C = 2J_{F-R}^{(1)} \sigma \operatorname{Re} \gamma_{11}(q) + 2J_{F-R}^{(4)} \sigma \operatorname{Re} \gamma_{14}(q)$$

on est amené à résoudre le déterminant :

$$\begin{bmatrix} A - \hbar\omega & C \\ C & B - \hbar\omega \end{bmatrix} = 0$$

soit :

$$\hbar\omega(\vec{q}) = \frac{A+B}{2} + \frac{(A-B)^2 + 4C^2}{2} \quad (\text{IV-17})$$

et

$$\hbar\omega(\vec{q}) = \frac{A+B}{2} - \frac{(A-B)^2 + 4C^2}{2}$$

avec :

$$\gamma_{11}(q) = 2 \left[\cos \Pi(q_x + q_y + q_z) + \cos \Pi(q_x - q_y + q_z) + \cos \Pi(q_x + q_y - q_z) + \cos \Pi(q_y + q_z - q_x) \right]$$

$$\gamma_{12}(q) = 2(\cos 2\Pi q_x + \cos 2\Pi q_y + \cos 2\Pi q_z)$$

$$\gamma_{13}(q) = 2 \left[\cos 2\Pi(q_x + q_y) + \cos 2\Pi(q_y + q_z) + \cos 2\Pi(q_x + q_z) + \cos 2\Pi(q_x - q_z) \right. \\ \left. + \cos 2\Pi(q_x - q_y) + \cos 2\Pi(q_y - q_z) \right]$$

et

$$\gamma_{14}(q) = 2 \left[\cos \Pi(q_x + q_y + 3q_z) + \cos \Pi(q_y - q_x + 3q_z) + \cos \Pi(q_x - q_y + 3q_z) + \cos \Pi(3q_z - q_x - q_y) \right]$$

L'ensemble de ces données permet le calcul de $\hbar\omega(\vec{q})$ dans toute la zone de Brillouin. L'utilisation d'un programme de moindres carrés, conjointement à un programme calculant les fréquences de dispersion suivant les formules ci-dessus nous a permis de déterminer les intégrales d'échange $J_{F-R}^{(1)}$, $J_{F-F}^{(2)}$, $J_{F-F}^{(3)}$, $J_{F-F}^{(4)}$, $J_{R-R}^{(2)}$, $J_{R-R}^{(3)}$ pour lesquelles l'accord entre calcul et expérience est le meilleur. Soit :

$$J_{F-R}^{(1)} = 1,18 \text{ THz} \quad J_{R-R}^{(3)} = -0,40 \text{ THz}$$

$$J_{F-F}^{(2)} = 1,30 \text{ THz} \quad J_{F-R}^{(4)} = 0,04 \text{ Thz}$$

$$J_{R-R}^{(2)} = -1,82 \text{ THz} \quad J_{F-F}^{(3)} = 0,23 \text{ THz}$$

Les courbes de dispersion obtenues avec ces constantes sont représentées sur la figure IV-3 conjointement à l'expérience.

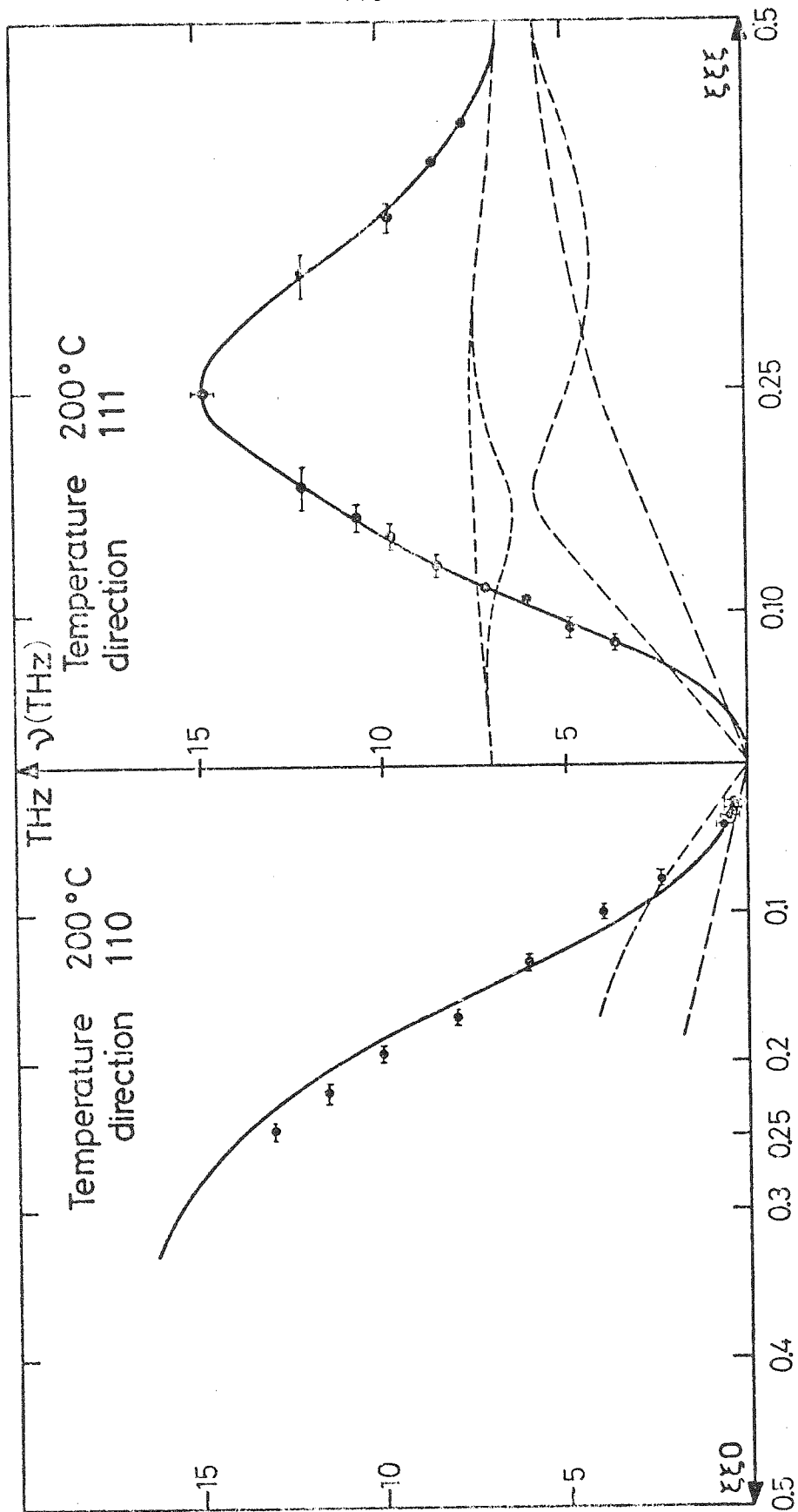


Figure IV-3 : Courbe de dispersion d'ondes de spin calculée dans la phase ferromagnétique. Les points représentent les mesures effectuées.

3 - Phase antiferromagnétique

Dans cette phase, on a considéré en accord avec de nombreux auteurs (cf. chapitre I, p. 20) que le moment sur le rhodium était nul. La maille magnétique est cubique faces centrées, de cote $2a$ (a étant le paramètre de maille cristalline). L'arrangement des moments magnétiques correspond à deux sous-réseaux cubiques faces centrées dont les moments sont antiparallèles.

La diagonalisation de l'hamiltonien correspondant à cet arrangement de moments magnétiques va demander l'utilisation de deux transformations d'Holstein-Primakoff, l'une pour le réseau c.f.c. ayant les spins en haut et l'autre pour le second réseau c.f.c. dont les spins sont antiparallèles aux premiers. Nous considérons les interactions entre l'atome de fer (rhodium) et les quatre premiers voisins, ce qui nécessite l'introduction de quatre intégrales d'échange J_1, J_2, J_3, J_4 . La méthode est formellement identique à celle exposée dans le cas de la phase ferromagnétique. Aussi, pour ne pas alourdir le texte nous ne reproduisons pas ici les calculs et donnons directement le résultat obtenu. Soit :

$$\omega = 6.6 \sqrt{A^2 - B^2}$$

avec

$$A = 3J_1 + J_2(\gamma_{12}(q) - 6) + 4J_3 + J_4(\gamma_{14}(q) - 3)$$

$$B = J_1 \gamma_{11}(q) + J_3 \gamma_{13}(q)$$

dans lesquels :

$$\gamma_{11}(q) = \cos 2\pi q_x + \cos 2\pi q_y + \cos 2\pi q_z$$

$$\begin{aligned} \gamma_{12}(q) = & \cos 2\pi(q_x + q_y) + \cos 2\pi(q_x + q_z) + \cos 2\pi(q_y + q_z) + \cos 2\pi(q_x - q_y) \\ & + \cos 2\pi(q_x - q_z) + \cos 2\pi(q_y - q_z) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \gamma_{13}(q) = & \cos 2\pi(q_x + q_y + q_z) + \cos 2\pi(q_x + q_y - q_z) + \cos 2\pi(q_x - q_y + q_z) \\ & + \cos 2\pi(q_x - q_y - q_z) \end{aligned}$$

$$\gamma_{14}(q) = \cos 4\pi q_x + \cos 4\pi q_y + \cos 4\pi q_z.$$

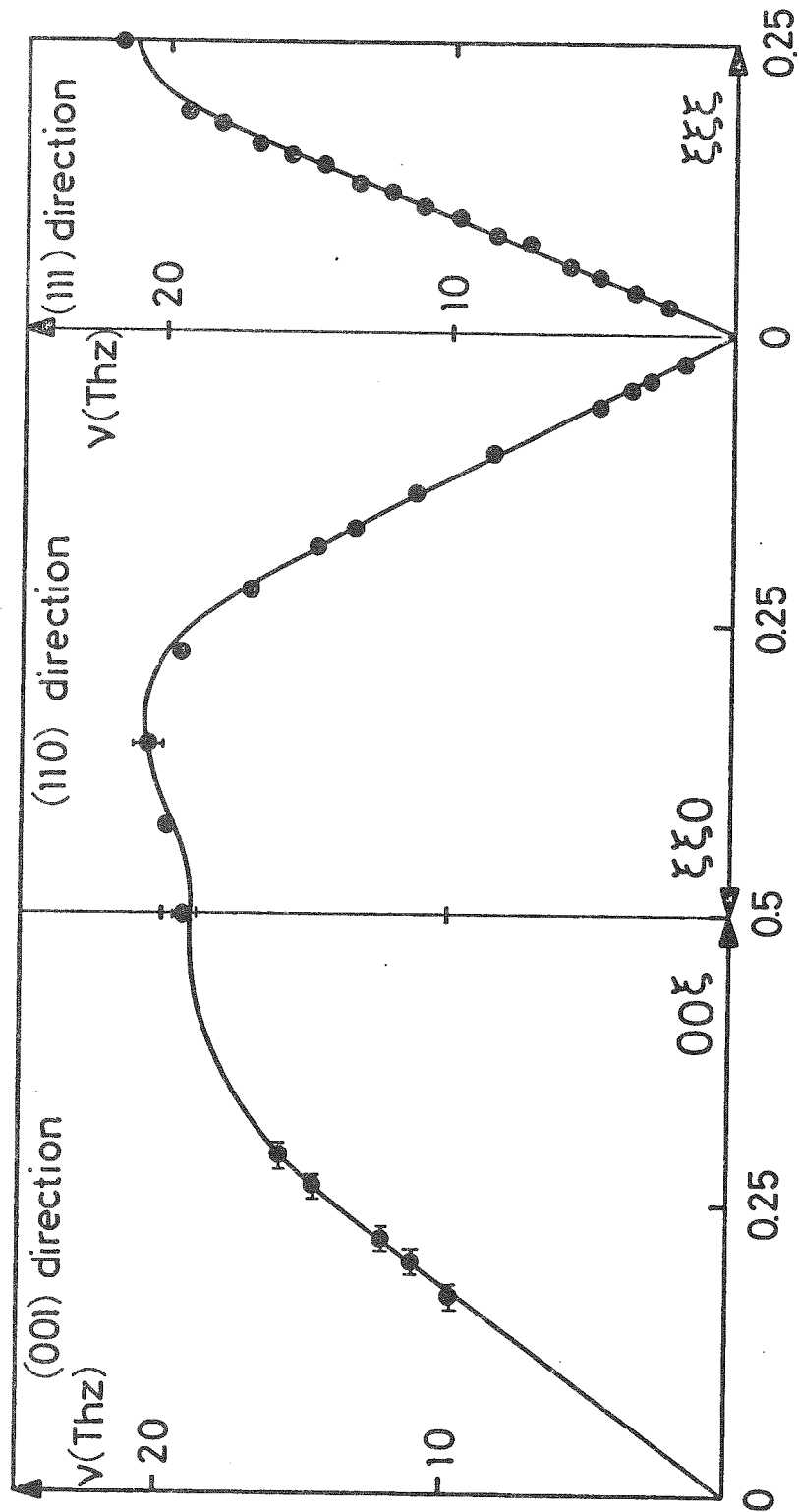


Figure IV-4 : Courbe de dispersion d'ondes de spin calculée dans la phase antiferromagnétique. Les points représentent les mesures effectuées.

L'utilisation d'un programme de moindres carrés conjointement à un programme calculant les ω_q suivant les formules ci-dessus nous a permis de déterminer les intégrales d'échange suivantes :

$$J_1 = -1.945 \pm 0.07 \text{ THz}$$

$$J_2 = -0.330 \pm 0.04 \text{ THz}$$

$$J_3 = -0.045 \pm 0.025 \text{ THz}$$

$$J_4 = -0.14 \pm 0.02 \text{ THz}.$$

Les courbes de dispersion obtenues avec ces valeurs des intégrales d'échange sont représentées sur la figure IV-4 en même temps que les points expérimentaux. L'accord entre le calcul et l'expérience est excellent.

C O N C L U S I O N

L'ensemble de ce travail a été centré sur deux aspects complémentaires : la mise au point et l'utilisation d'un spectromètre à neutrons et la détermination des courbes de dispersion d'ondes de spin dans le composé FeRh au moyen de cet appareil.

Après avoir participé à l'installation technique du spectromètre à trois axes IN1 il a été nécessaire d'optimiser l'utilisation de celui-ci. Pour cela, nous avons calculé la fonction de résolution de l'appareillage. Cette fonction étant utilisée lors de calculs ultérieurs pour estimer l'intensité et la forme du groupe de neutrons que l'on mesure. Cette manière de procéder nous a permis de fixer les différents paramètres nécessaires aux expériences de diffusion inélastique. Nous avons pu ainsi déterminer le spectre d'ondes de spin dans les phases antiferromagnétique et ferromagnétique du composé défini FeRh. Ces études ont été faites dans l'intervalle de température 77 - 640 K. Les principaux résultats obtenus sont les suivants :

Phase ferromagnétique $T > T_T = 470$ K

- la courbe de dispersion a été observée dans la direction de symétrie (111) jusqu'en bord de zone. Pour des vecteurs d'onde q petits, elle présente une croissance quadratique que l'on peut écrire analytiquement $\omega = Dq^2$ avec $D = 180 \text{ meV} \cdot \text{Å}^2$ à 470 K.
- aucune diminution d'intensité des ondes de spin n'a été constatée. Il n'y a donc pas d'intersection avec le spectre de Stoner.
- nous avons montré que D décroît lorsque T augmente mais nous n'avons pu conclure quant à la valeur de D au voisinage de la température critique.
- aucune mesure correcte n'a pu être faite dans la phase paramagnétique à cause de la présence des phonons.

phase antiferromagnétique $T < T_T = 470$ K

- le spectre d'ondes de spin a pu être observé dans les trois directions de symétrie jusqu'en bord de zone. Elle présente lorsque q est petit une croissance linéaire ($\omega = Cq$) avec une valeur de C de 170 meV.Å, à $T = 293$ K.
- la vitesse des ondes de spin est suffisamment grande pour que l'interaction avec le spectre d'excitations individuelles soit faible. Il n'y a donc pas d'amortissement des ondes de spin.
- nous n'avons constaté aucune variation de C avec la température (77 K $< T < 470$ K).

Enfin, nous avons pu déterminer la courbe de dispersion de phonons dans la direction (111) et partiellement dans la direction (110). Lorsque la température varie, la position du spectre n'en est pas affectée.

Ce bref résumé met en relief les différences existant entre les mesures dans FeRh et celles faites sur les métaux de transition : pas de diminution d'intensité quand l'énergie augmente, observation de la courbe jusqu'en bord de zone, pas d'interaction forte avec le spectre de Stoner dans la phase antiferromagnétique.

L'interprétation détaillée de ces résultats expérimentaux reste encore à faire. Des calculs préliminaires du coefficient de rigidité dans la phase ferromagnétique à partir de calculs de structure de bandes (KAH 77 et RIE 77) permettent de retrouver l'ordre de grandeur que nous avons observé. Des calculs plus détaillés sont en cours.

Bien que ces études aient été difficiles et longues, elles sont loin d'être terminées et de résoudre le problème du magnétisme de FeRh. Nous envisageons dans un premier temps de compléter les mesures de courbes de dispersion dans la phase ferromagnétique, d'examiner avec soin dans quelle mesure les ondes de spin persistent au dessus de la température de Curie comme dans les autres ferromagnétiques itinérants étudiés jusqu'à présent. Enfin, nous nous proposons d'étudier l'évolution sous pression des propriétés magnétiques de FeRh et en particulier la variation de la température de transition.

APPENDICE 1

CALCUL DE LA PROBABILITE POUR QU'UN NEUTRON D'ENERGIE DONNEE TOMBE SUR L'ECHANTILLON

a) Indépendance des probabilités verticales et horizontales

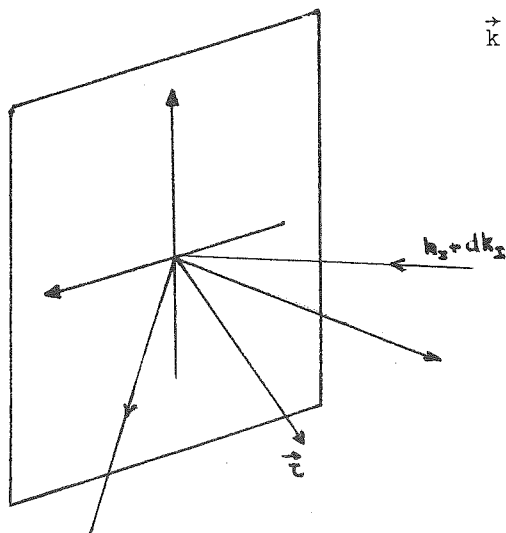
Supposons que les positions centrales des différents éléments du spectromètre définissent les vecteurs d'onde \vec{k}_I et \vec{k}_F respectivement pour le monochromateur et l'analyseur.

Qu'arrive-t-il si un neutron de vecteur d'onde $\vec{k}_I + d\vec{k}_I$ arrive sur le monochromateur avec des écarts angulaires γ_0 (horizontal) et δ_0 (vertical).

Pour qu'il soit réfléchi, il faut qu'il vérifie une loi de Bragg. Autrement dit qu'il existe un vecteur de diffusion $\vec{\tau} \left| \vec{\tau} \right| = \frac{2\pi}{d}$ d'étant une distance interréticulaire du monochromateur tel que

$$\vec{k} \cdot \vec{\tau} + \frac{\tau^2}{2} = 0 \quad (1)$$

Les coordonnées de $\vec{k}_I + d\vec{k}_I$ et de $\vec{\tau}$ dans le repère ci-dessous s'écrivent :



$$\vec{k} + d\vec{k} \quad \begin{cases} (k_I + dk_I) \cos (\theta + \gamma_0) \cos \delta_0 \\ -(k_I + dk_I) \sin (\theta + \gamma_0) \cos \delta_0 \\ (k_I + dk_I) \sin \delta_0 \end{cases}$$

$$\vec{\tau} \quad \begin{cases} -\tau \sin \epsilon \cos \epsilon' \\ \tau \cos \epsilon \cos \epsilon' \\ \tau \sin \epsilon' \end{cases}$$

On rappelle que ε et ε' sont les écarts horizontaux et verticaux du plan de réflexion liés à la mosaïque.

On dispose d'une relation, la loi de Bragg, pour définir 2 inconnues ε et ε' . Le problème a donc 1 infinité de solutions. Autrement dit le neutron considéré vérifiera une loi de probabilité de diffusion, fonction de γ_0 , δ_0 et d'un paramètre. Si dk_I , δ_0 , γ_0 , ε et ε' peuvent être considérés comme des infiniments petits, la loi de Bragg en la développant au 1er ordre, s'écrit :

$$-k_I \tau \varepsilon \cos \theta - \tau (k_I \sin \theta + dk_I \sin \theta - k_I \gamma_0 \cos \theta) + \frac{\tau^2}{2} = 0 \quad (2)$$

Or

$$-k_I \tau \sin \theta + \frac{\tau^2}{2} = -\tau \left(\frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta - \frac{2\pi}{2d} \right) = -\frac{\pi \tau}{\lambda d} (2d \sin \theta - \lambda) = 0$$

car $\lambda = 2d \sin \theta$ définit la position centrale

il reste :

$$-k_I \tau (\varepsilon - \gamma_0) \cos \theta - \tau dk_I \sin \theta = 0 \quad (3)$$

soit
$$\varepsilon = -\frac{dk_I}{k_I} \operatorname{tg} \theta + \gamma_0 \quad (4)$$

ε est défini de façon unique indépendamment de ε' et δ_0 . On en conclut la propriété importante suivante : au premier ordre la résolution horizontale et la résolution verticale sont indépendantes. La probabilité pour qu'un neutron $(\vec{k}_I + d\vec{k}_I, \gamma_0, \delta_0)$ soit diffracté par le monochromateur s'écrira donc :

$$P(k_I + dk_I, \gamma_0, \delta_0) = P_H(k_I + dk_I, \gamma_0) P_V(k_I + dk_I, \delta_0) \quad (5)$$

b) Probabilité horizontale :

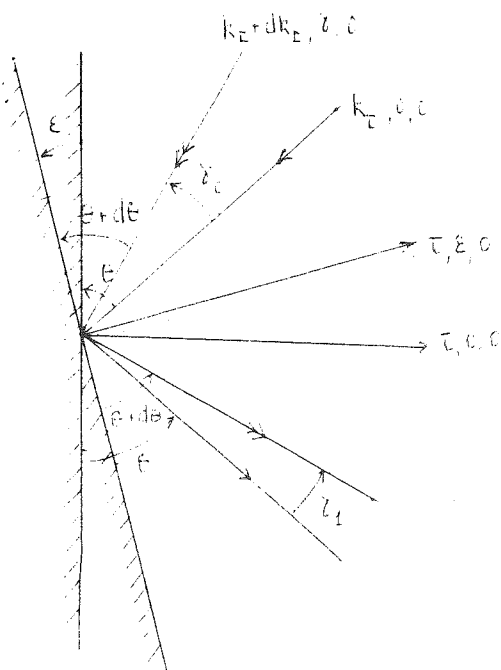
La probabilité horizontale d'après le calcul précédent est

égale à la probabilité d'existence d'un plan de réflexion défini par ε .

$$P_H(\vec{k}_I + d\vec{k}_I, \gamma_0) = \exp \left| - \frac{1}{2\eta_M^2} \left(\frac{dk_I}{k_I} \operatorname{tg}\theta - \gamma_0 \right)^2 \right| \quad (6)$$

En effet le neutron de vecteur d'onde $\vec{k} + d\vec{k}$ doit faire un angle $\theta + d\theta$ avec le plan de réflexion.

Comme $\frac{2\pi}{k_I} = 2d \sin\theta$, on a :



$$d\theta = - \operatorname{tg}\theta \frac{dk_I}{k_I}$$

d'après la figure ci-contre

$$\varepsilon = (\theta + d\theta) - \theta + \gamma_0$$

$$\text{soit } \varepsilon = -\operatorname{tg}\theta \frac{dk_I}{k_I} + \gamma_0$$

le neutron réfléchi faisant alors un angle γ_1 tel que :

$$\gamma_1 = (\theta + d\theta + \varepsilon) - \theta$$

$$\text{donc } \gamma_1 = -2\operatorname{tg}\theta \frac{dk_I}{k_I} + \gamma_0 \quad (7)$$

c) Probabilité verticale

Nous avons vu que la probabilité verticale n'était pas définie de façon unique. PAR contre, nous pourrions calculer la probabilité pour que le neutron soit réfléchi pour un vecteur $\vec{\tau}$ donné. On doit avoir

$$\vec{k}' - \vec{k}_I = \vec{\tau} \quad (8)$$

Projetons cette relation vectorielle sur l'axe Z et développons la au premier ordre. La loi de Bragg n'intervenant que sur la com-

posante horizontale, les composantes sur l'axe Z sont :

$$\begin{array}{ll} k' \sin \delta_1 & \text{pour } \vec{k}' \\ k_I \sin \delta_0 & \text{pour } \vec{k}_I \\ \tau \sin \varepsilon' & \text{pour } \vec{\tau} \end{array}$$

au premier ordre :

$$k(\delta_1 - \delta_0) = \tau \varepsilon' \quad (9)$$

la probabilité d'existence de ε' est donc :

$$P(\varepsilon') = \exp \left| - \frac{1}{2\eta_M'^2} \left(\frac{k_I}{\tau} (\delta_1 - \delta_0)^2 \right) \right| \quad (10)$$

Pour trouver la probabilité verticale $P_V(k_I + dk_I, \delta_0, \delta_1)$, il faut tenir compte que pour un écart angulaire δ_0 fixe, l'écart angulaire de sortie δ_1 a une infinité de valeurs. La diffraction d'un neutron est définie lorsque l'on a intégré sur toutes les possibilités de δ_1 . Soit
Soit :

$$P_V(k_I + dk_I, \delta_0, \delta_1) = \frac{1}{N} P(\varepsilon') \quad (11)$$

$$\text{avec } N = \int_{-A}^{+A} P(\varepsilon') d\delta_1$$

$$\text{donc } N = \sqrt{2\pi} \frac{\tau \eta_M'}{k_I}$$

$$\text{soit } P_V(k_I + dk_I, \delta_0, \delta_1) = \frac{k_I}{\sqrt{2\pi} \tau \eta_M'} \exp \left| - \frac{1}{2\eta_M'^2} \left(\frac{k_I}{\tau} (\delta_1 - \delta_0)^2 \right) \right| \quad (12)$$

Nous avons supposé que η_M' est suffisamment petit pour que par voie de conséquence δ' le soit également.

d) Probabilité totale :

La probabilité pour qu'un neutron $(k_I + dk_I, \gamma_0, \delta_0)$ parvienne sur l'échantillon après avoir franchi le collimateur entre la source et

le monochromateur, après avoir été réfléchi par le monochromateur et après avoir franchi le collimateur entre monochromateur et échantillon, s'écrit :

$$P^M \left[k_I + dk_I, \gamma_1, \delta_1 \right] = r_M P_H^M (k_I + dk_I, \gamma_1) P_V^H (k_I + dk_I, \delta_1) \quad (13)$$

r_M étant la réflectivité du monochromateur. Nous faisons apparaître l'angle γ_1 comme variable dans $P_H^M (k_I + dk_I, \gamma_1)$ en utilisant l'équation (7). Soit :

$$P_H^M (k_I + dk_I, \gamma_1) = \exp \left[-\frac{\gamma_1^2}{2\alpha_1^2} \right] \exp \left[-\frac{1}{2\alpha_0^2} \left(2 \frac{dk_I}{k_I} \operatorname{tg} \theta_M + \gamma_1 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_M^2} \left(\gamma_1 + \frac{dk_I}{k_I} \operatorname{tg} \theta_M \right)^2 \right] \quad (14)$$

le calcul de la probabilité dans un plan vertical nécessite une intégration sur l'angle δ_0 :

$$P_V^M (k_I + dk_I, \gamma_1) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\delta_0 \frac{k_I}{\sqrt{2\pi} \eta_M' \tau} \exp \left[-\frac{1}{2} \frac{\delta_0^2}{\beta_0^2} \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_M'^2} \left(\frac{k_I(\delta_1 - \delta_0)}{\tau} \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2} \frac{\delta_1^2}{\beta_1^2} \right] \\ P_V^M (k_I + dk_I, \delta_1) = \frac{\beta_0}{\sqrt{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta}} \exp \left[-\frac{\delta_1^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_1^2} + \frac{1}{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M} \right) \right] \quad (15)$$

En définitive la probabilité pour qu'un neutron défini par $k_I + dk_I$, γ_0 , δ_0 arrive sur l'échantillon est alors :

$$P^M = \frac{\beta_0 r_M}{\sqrt{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta}} \exp \left[-\frac{\delta_1^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_1^2} + \frac{1}{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M} \right) \right] \exp \left[-\frac{1}{2\alpha_0^2} \left(2 \operatorname{tg} \theta_M \frac{dk_I}{k_I} + \gamma_1 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_M^2} \left(\gamma_1 + \frac{dk_I}{k_I} \operatorname{tg} \theta_M \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{\gamma_1^2}{2\alpha_1^2} \right] \quad (16)$$

c'est l'expression II-31.

APPENDICE 2

EXPRESSION DE LA FONCTION DE RESOLUTION R(K, ω) ET
CALCUL DE L'INTENSITE ARRIVANT SUR LE DETECTEUR

:-:

A - Calcul de la fonction de Résolution R(k, ω)

Soit à calculer la fonction R définie par :

$$R(\vec{K}, \omega) = P_1(k_I + dk_I, \gamma_1, \delta_1) P_2(k_F + dk_F, \gamma_2, \delta_2) \delta \left[\vec{k}_F + dk_F - \vec{k}_I - dk_I - \vec{Q} \right] \delta \left[\omega - \left(\frac{\hbar}{2M_n} \left[(k_I + dk_I)^2 - (k_F + dk_F)^2 \right] \right) \right] d(k_I) d\gamma_1 d\delta_1 d(k_F) d\gamma_2 d\delta_2 \quad (1)$$

avec :

$$P_1(k_I + dk_I, \gamma_1, \delta_1) = \exp \left[-\frac{1}{2\alpha_0^2} \left(2 \operatorname{tg} \theta_M \frac{dk_I}{k_I} + \gamma_1 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{\gamma_1^2}{2\alpha_1^2} \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_M^2} \left(\gamma_1 + \frac{dk_I}{k_I} \operatorname{tg} \theta_M \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{\delta_1^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_1^2} + \frac{1}{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M} \right) \right] \frac{\beta_0 r_M}{\sqrt{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M}} \quad (2)$$

et

$$P_2(k_F + dk_F, \gamma_2, \delta_2) = \exp \left[-\frac{1}{2\alpha_3^2} \left(2 \operatorname{tg} \theta_A \frac{dk_F}{k_F} - \gamma_2 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{1}{2\eta_A^2} \left(\frac{dk_F}{k_F} \operatorname{tg} \theta_A - \gamma_2 \right)^2 \right] \exp \left[-\frac{\gamma_2^2}{2\alpha_2^2} \right] \exp \left[-\frac{\delta_2^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_2^2} + \frac{1}{\beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A} \right) \right] \frac{\beta_3 r_A}{\sqrt{\beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A}} \quad (3)$$

Pour simplifier l'écriture, posons :

$$A_1 = \frac{\operatorname{tg}^2 \theta_M}{k_I^2} \left[\frac{4}{\alpha_0^2} + \frac{1}{\eta_M^2} \right] \quad B_1 = \frac{\operatorname{tg} \theta_M}{k_I} \left[\frac{2}{\alpha_0^2} + \frac{1}{\eta_M^2} \right] \quad (4)$$

$$C_1 = \frac{1}{\alpha_0^2} + \frac{1}{\eta_n^2} + \frac{1}{\alpha_1^2} \quad D_1 = \frac{1}{\beta_1^2} + \frac{1}{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M}$$

et

$$P_1(k_I + dk_I, \gamma_1, \delta_1) = \frac{\beta_0 r_M}{\sqrt{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M}} \exp \left[-\frac{1}{2} (A_1 dk_I^2 + 2B_1 dk_I \gamma_1 + C_1 \gamma_1^2) - \frac{1}{2} D_1 \delta_1^2 \right]$$

On aura des formules identiques avec $P_2(k_F + dk_F, \gamma_2, \delta_2)$ en définissant A_2, B_2, C_2 et D_2 de la même manière.

Le calcul s'effectue en coordonnées sphériques. Ecrivons tout d'abord l'élément d'intégration. Soit :

$$k_I^2 dk_I \cos \delta_1 d\gamma_1 d\delta_1 k_F^2 dk_F \cos \delta_2 d\gamma_2 d\delta_2$$

comme δ_1 et δ_2 sont petits $\cos \delta_1 \approx 1 \approx \cos \delta_2$ et l'élément s'écrit :

$$k_I^2 k_F^2 dk_I dk_F d\gamma_1 d\gamma_2 d\delta_1 d\delta_2$$

les coordonnées de $(\vec{k}_I + d\vec{k}_I)$ s'expriment :

$$\vec{k}_I + d\vec{k}_I \begin{cases} (k_I + dk_I) \cos(\psi + \gamma_1) \cos \delta_1 \approx (k_I + dk_I) \cos(\psi + \gamma_1) \\ (k_I + dk_I) \sin(\psi + \gamma_1) \cos \delta_1 \approx (k_I + dk_I) \sin(\psi + \gamma_1) \\ (k_I + dk_I) \sin \delta_1 \approx (k_I + dk_I) \delta_1 \end{cases}$$

En développant et en négligeant les termes du deuxième ordre :

$$\vec{k}_I + d\vec{k}_I \begin{cases} k_I \cos \psi - k_I \gamma_1 \sin \psi + dk_I \cos \psi \\ k_I \sin \psi + k_I \gamma_1 \cos \psi + dk_I \sin \psi \\ k_I \delta_1 \end{cases}$$

de même $\vec{k}_F + d\vec{k}_F$ s'écrit sachant qu'il y a un angle ϕ entre \vec{k}_I et \vec{k}_F

$$\vec{k}_F + d\vec{k}_F \begin{cases} k_F \cos(\psi + \phi) - k_F \gamma_2 \sin(\psi + \phi) + dk_F \cos(\psi + \phi) \\ k_F \sin(\psi + \phi) + k_F \gamma_2 \cos(\psi + \phi) + dk_F \sin(\psi + \phi) \end{cases}$$

connaissant $\vec{k}_I + d\vec{k}_I$ et $\vec{k}_F + d\vec{k}_F$, on peut alors calculer les composantes des fonctions deltas.

Soit $\delta \left[(\vec{k}_I + d\vec{k}_I) - (\vec{k}_F + d\vec{k}_F) - (\vec{K}_O + \vec{X}) \right]$ où \vec{K}_O représente la position centrale de l'appareil et \vec{X} les déviations par rapport à cette position.

On obtient (les composantes de \vec{X})

$$\begin{aligned} X_1 &= dk_I \cos \psi - dk_F \cos (\psi + \phi) - k_I \gamma_1 \sin \psi - k_F \gamma_2 \sin (\psi + \phi) \\ X_2 &= dk_I \sin \psi - dk_F \sin (\psi + \phi) + k_I \gamma_1 \cos \psi - k_F \gamma_2 \cos (\psi + \phi) \\ X_3 &= k_I \delta_1 - k_F \delta_2 \end{aligned} \quad (6)$$

Calculons de même $\delta \left[\omega - \left[(k_I + dk_I)^2 - (k_F + dk_F)^2 \right] \right]$

Un calcul fastidieux conduit à :

$$X_4 = \omega - \left[(k_I + dk_I)^2 - (k_F + dk_F)^2 \right] = 2\alpha \left[k_I dk_I - k_F dk_F \right] \quad (7)$$

α est une constante qui dépend du système d'unité (meV ou ThZ). L'intégration sur les parties verticales s'écrit :

$$R_O^V = \int \frac{\beta_0}{\sqrt{\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M}} \frac{\beta_3}{\sqrt{\beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A}} d\delta_1 d\delta_2 \exp -\frac{1}{2} \left[D_1 \delta_1^2 + D_2 \delta_2^2 \right] \times \delta \left[X_3 - k_I \delta_1 + k_F \delta_2 \right] \quad (8)$$

et :

$$R_O^V = \left[\frac{2\pi}{D_1 k_F^2 + D_2 k_I^2} \right]^{1/2} \frac{\beta_0 \beta_3}{\left[\beta_0^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M \right]^{1/2} \left[\beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A \right]^{1/2}} \exp -\frac{1}{2} A_{33} X_3^2 \quad (10)$$

avec $A_{33} = \frac{D_1 D_2}{D_1 k_F^2 + D_2 k_I^2}$

Il reste alors à calculer la partie horizontale, soit :

$$R_O^H = \exp\left[-\frac{1}{2} (A_1 dk_I^2 + 2B_1 dk_I \gamma_1 + C_1 \gamma_1^2)\right] \exp\left[-\frac{1}{2} [A_2 dk_F^2 + 2B_2 dk_F \gamma_2 + C_2 \gamma_2^2]\right] \times$$

$$k_I^2 k_F^2 \delta \left[-X_1 + dk_I \cos \psi - dk_F \cos (\psi + \phi) - k_I \gamma_1 \sin \psi + k_F \gamma_2 \sin (\psi + \phi) \right] \times$$

$$\delta \left[-X_2 + dk_I \sin \psi - dk_F \sin (\psi + \phi) + k_I \gamma_1 \cos \psi - k_F \gamma_2 \cos (\psi + \phi) \right] \times$$

$$\delta \left[-X_4 + 2\alpha (k_I dk_I - k_F dk_F) \right] dk_I dk_F d\gamma_1 d\gamma_2$$

Pour pouvoir manier plus facilement cette intégrale, exprimons la sous forme matricielle comme l'a proposé B. HENNION.

Soit Y le vecteur inconnue :

$$Y = \begin{bmatrix} dk_I \\ dk_F \\ \gamma_1 k_I \\ \gamma_2 k_F \end{bmatrix} \quad \text{donc} \quad Y^t = (dk_I \quad dk_F \quad \gamma_1 k_I \quad \gamma_2 k_F)$$

On peut écrire :

$$A_1 dk_I^2 + 2B_1 dk_I \gamma_1 + C_1 \gamma_1^2 + A_2 dk_F^2 + 2B_2 dk_F \gamma_2 + C_2 \gamma_2^2 = Y^t S Y \quad (12)$$

$$\text{avec } S = \begin{bmatrix} A_1 & 0 & B_1/k_I & 0 \\ 0 & A_2 & 0 & B_2/k_F \\ B_1/k_I & 0 & C_1/k_I^2 & 0 \\ 0 & B_2/k_F & 0 & C_2/k_F^2 \end{bmatrix} \quad (13)$$

$R(\vec{k}, \omega)$ s'exprime alors :

$$R(\vec{k}, \omega) = R_O^V \exp \left| -\frac{1}{2} (Y^t S Y) \delta |t - MY| k_I k_F dY_1 dY_2 dY_3 dY_4 \right|$$

avec :

$$t = \begin{bmatrix} X_1 \\ X_2 \\ X_4 \\ k \end{bmatrix} \quad (15) \quad \text{et } M = \begin{bmatrix} \cos \psi & -\cos(\psi + \phi) & -\sin \psi & \sin(\psi + \phi) \\ \sin \psi & -\sin(\psi + \phi) & \cos \psi & -\cos(\psi + \phi) \\ 2\alpha k_I & -2\alpha k_F & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

En intégrant sur Y_1 , Y_2 et Y_3 et en tenant compte de la fonction delta :

$$R(\vec{K}, \omega) = R_0^V k_I k_F \int \exp \left| -\frac{1}{2} (t^t M^{-1} t^s M^{-1} t) \det M^{-1} dt_4 \right. \quad (16)$$

car $t_4 = Y_4$ et $Y = M^{-1} t$

$$\text{On montre facilement que } \det M^{-1} = \frac{1}{2\alpha L} \text{ ou } L = k_F - k_I \cos\phi \quad (17)$$

$$\text{donc } R(\vec{K}, \omega) = R_0^V \frac{k_I k_F}{2\alpha L} \int \exp - \frac{1}{2} |t^t B t| dt_4 \quad (18)$$

$$\text{avec } B = (M^{-1})^t S M^{-1} \quad (19)$$

on		$k_F \cos\psi$	$k_F \sin\psi$	$-2\alpha \cos\phi$	$-k_F \sin\phi$
on a alors $M^{-1} = \frac{1}{L}$		$k_I \cos\psi$	$k_I \sin\psi$	$-1/2\alpha$	$-k_I \sin\phi$
	x	y	$-\sin\phi/2\alpha$	$-L'$	(2)
	0	0	0	L	

$$\text{avec } L' = k_I - k_F \cos\phi$$

$$x = L' \sin\phi \cos\psi + L \sin\phi \cos(\psi + \phi) \quad (21)$$

$$y = L' \sin\phi \sin\psi + L \sin\phi \sin(\psi + \phi)$$

Le calcul de la matrice B qui ne présente pas de difficulté n'est pas reproduit. On vérifie par ailleurs sur cette matrice que $B_{i_4} = B_{4_i}$. La fonction de résolution s'écrit alors sous la forme suivante :

$$R(\vec{K}, \omega) = R_0^V \frac{k_I k_F}{2\alpha L} \int dt_4 \exp \frac{1}{2} \left| \sum_{i,j=1,3} t_i B_{ij} t_j + 2 \sum_{i=1,3} t_i B_{i_4} t_4 + B_{4_4} t_4^2 \right| \quad (22)$$

l'intégration effectuée :

$$R(\vec{K}, \omega) = R_0^V \frac{k_I k_F}{2\alpha L} \sqrt{\frac{2\pi}{B_{4_4}}} \exp - \frac{1}{2} \sum_{i,j=1,3} t_i \left[B_{ij} - \frac{B_{i_4} B_{j_4}}{B_{4_4}} \right] t_j \quad (23)$$

en explicitant R_0^V [cf. équation 9] et en introduisant $F_1 = \left[\beta_0^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_M \right]$

et $F_2 = \left| \beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A \right|$, $R(\vec{K}, \omega)$ devient :

$$R(\vec{K}, \omega) = \frac{2\pi\sqrt{A_{33}}}{\sqrt{D_1 D_2}} \frac{\beta_0 \beta_3}{\sqrt{F_1 F_2}} \frac{k_I k_F}{2\alpha L \sqrt{B_{4_4}}} \exp \left[-\frac{1}{2} A_{33} X_3^2 - \frac{1}{2} \left(\sum_{i=1,3} t_i \left[B_{ij} - \frac{B_{i_4} B_{j_4}}{B_{4_4}} \right] t_j \right) \right] \quad (24)$$

or $t_1 = X_1$, $t_2 = X_2$ et $t_3 = X_4$, on peut regrouper les facteurs des exponentielles en remarquant que :

$$A_{ij} = B_{ij} - \frac{B_{i4} B_{j4}}{B_{44}} \quad (25)$$

pour i et $j = 1, 2, 4$. En ajoutant alors A_{33} dans la diagonale :

$$R(\vec{K}, \omega) = R_0 \exp - \frac{1}{2} \sum_{\substack{i=1,4 \\ j=1,4}} X_i A_{ij} X_j \quad (26)$$

$$\text{avec } R_0 = \frac{2\pi\sqrt{A_{33}}}{\sqrt{D_1 D_2}} \frac{\beta_0 \beta_3}{\sqrt{F_1 F_2}} \frac{k_I k_F}{2\alpha L \sqrt{B_{44}}} \quad (27)$$

B - Nombre de neutrons N mesurés par le détecteur :

Le calcul du nombre N de neutrons arrivant sur le détecteur quand il n'y a pas d'échantillons s'écrit :

$$N = \int R(\vec{K}, \omega) d_4 X \quad (28)$$

le résultat est immédiat et

$$N = \frac{R_0 |\sqrt{2\pi}|^4}{\sqrt{\det A}} = \frac{R_0 4\pi^2}{\sqrt{A_{33}} \left[\det \left\| B_{ij} - \frac{B_{i4} B_{j4}}{B_{44}} \right\| \right]^{1/2}}$$

On montre alors facilement que :

$$\det \left\| B_{ij} - \frac{B_{i4} B_{j4}}{B_{44}} \right\| = \frac{\det B}{B_{44}}$$

or d'après (19) $B = (M^{-1})^t S M^{-1}$ donc :

$$\det B = \left[\det M^{-1} \right]^2 \det S \quad (31)$$

nous avons montré en (17) que $\det M^{-1} = \frac{1}{2\alpha L}$

donc :

$$N = \frac{R_0 4\pi^2 2\alpha L \sqrt{B_{44}}}{\sqrt{A_{33}} \left[\det S \right]^{1/2}} \quad (32)$$

$$\text{or det } S = \frac{|A_1 C_1 - B_1^2| |A_2 C_2 - B_2^2|}{k_I^2 k_F^2} \quad (33)$$

$$\text{d'où } N = \frac{4\pi^2 R_0 \ 2\alpha L \ \sqrt{B_{44}} \ k_I k_F}{\sqrt{A_{33}} \ \sqrt{A_1 C_1 - B_1^2} \ \sqrt{A_2 C_2 - B_2^2}} \quad (34)$$

en remplaçant R_0 par sa valeur le nombre N de neutrons mesurés par le détecteur a pour expression :

$$N = \frac{(2\pi)^3 \ \beta_0 \ \beta_3 \ k_I^2 \ k_F^2}{\sqrt{D_1 D_2} \ \sqrt{F_1 F_2} \ \sqrt{A_1 C_1 - B_1^2} \ \sqrt{A_2 C_2 - B_2^2}} \quad (35)$$

dans cette expression, on voit apparaître une partie monochromateur et une partie analyseur qui jouent chacune un rôle symétrique. En remplaçant A, B, C, D, E, F par leurs valeurs :

$$N = \frac{(2\pi)^{3/2} \ \alpha_0 \alpha_1 \ \beta_0 \ \beta_1 \ \eta_M \ k_I^3 \ \cotg \theta_M}{\sqrt{(\beta_0^2 + \beta_1^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M)} (\alpha_0^2 + \alpha_1^2 + 4\eta_M^2)} \frac{(2\pi)^{3/2} \ \alpha_2 \alpha_3 \ \beta_2 \ \beta_3 \ \eta_A \ k_F^3 \ \cotg \theta_A}{\sqrt{(\beta_2^2 + \beta_3^2 + 4\eta_A'^2 \sin^2 \theta_A)} (\alpha_2^2 + \alpha_3^2 + 4\eta_A^2)} \quad (36)$$

la symétrie de cette expression montre que la première partie de N est le nombre de neutrons arrivant sur l'échantillon.

Soit :

$$N_{\text{ech}} = \frac{(2\pi)^{3/2} \ \alpha_0 \alpha_1 \ \beta_0 \ \beta_1 \ \eta_M \ k_I^3 \ \cotg \theta_M}{\sqrt{(\beta_0^2 + \beta_1^2 + 4\eta_M'^2 \sin^2 \theta_M)} (\alpha_0^2 + \alpha_1^2 + 4\eta_M^2)} \quad (37)$$

On vérifie que N_{ech} est aussi égal à :

$$N_{\text{ech}} = \int P_1(k_I + dk_I, \gamma_1, \delta_1) \ k_I^2 \ dk_I \ d\gamma_1 \ d\delta_1 \quad (38)$$

A P P E N D I C E 3

CALCUL DE LA LARGEUR D'UN BALAYAGE A VECTEUR D'ONDE q CONSTANT

:-

L'expression de l'intensité s'écrit | cf. paragraphe II-D-3 | :

$$I = R_0 F \frac{2\pi}{\sqrt{\det A}} \int_{-\infty}^{+\infty} du \exp \left[\frac{\mu^2 \sigma^2}{4} + i\mu d_0 \right] \quad (1)$$

avec $\sigma^2 = \sum_i d_i \frac{\det \bar{C}'_i}{\det \bar{C}}$, $d_0 = \omega_0 - f(\vec{K})$
 $d_i = \left(\frac{\partial f}{\partial X_i} \right)_{\vec{K}}$

$$C_{ij} = A_{ij} - \frac{i\mu}{2} \left(\frac{\partial^2 f}{\partial X_i \partial X_j} \right)_{\vec{K}} \quad (2)$$

où $f(\vec{K}) = \omega$ est l'équation de la surface de dispersion. Si l'on développe la surface au premier ordre, $C_{ij} = A_{ij}$ et

$$\sigma^2 = \sum_i d_i \frac{\det \bar{A}'_i}{\det A} \quad (3)$$

où \bar{A}'_i est la matrice A dans laquelle la colonne i a été remplacée par la colonne des d_i . Nous avons montré que l'intégration de l'équation (1) donne

$$I = R_0 F \frac{(2\pi)^{3/2}}{\sqrt{\det \bar{A}}} \frac{2}{|\sigma|} \exp - \frac{d_0^2}{\sigma^2}$$

σ^2 est alors le carré de la largeur cherchée. Comme il s'agit d'un balayage à q constant $d_i = - \left(\frac{\partial f}{\partial X_i} \right)_{\vec{K}} = 0$ et $d_4 = 1$
 $i=1,3$

donc $\sigma^2 = \frac{\det \bar{A}'_4}{\det A}$

or comme la colonne de d_4 est $\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}$ le $\det \bar{A}'_4$ est le cofacteur de A_{44} .

D'après la structure de la matrice A donnée en Appendice 2, ce cofacteur s'écrit :

$$A_{33} \left[A_{11}A_{22} - A_{12}^2 \right]^2$$

et

$$\sigma^2 = \frac{A_{33} \left[A_{11}A_{22} - A_{12}^2 \right]}{\det A}$$

or

$$\det A = A_{33} \frac{\det B}{B_{44}} \quad \text{Cf. Appendice 2, équations (29) et (30)}$$

donc

$$\sigma^2 = \frac{A_{11}A_{22} - A_{12}^2}{\det B} B_{44}$$

il est facile de calculer les éléments A_{ij} en fonction des B_{ij} car

$$A_{ij} = B_{ij} - \frac{B_{i4}B_{j4}}{B_{44}}$$

soit $A_{11}A_{22} - A_{12}^2 = \left(B_{11} - \frac{B_{14}^2}{B_{44}} \right) \left(B_{22} - \frac{B_{24}^2}{B_{44}} \right) - \left(B_{12} - \frac{B_{14}B_{24}}{B_{44}} \right)^2$

Un calcul simple montre que $\sigma^2 = \frac{B_{33}^0}{\det B}$ où le terme B_{33}^0 désigne le cofacteur de B_{33} .

Soit :

$$\sigma^2 = \left[B^{-1} \right]_{33}$$

d'après l'appendice 2, équation (19)

$$B = \left[M^{-1} \right]^t S M^{-1}$$

donc $B^{-1} = M S^{-1} M^t$

finalement $\sigma^2 = \left[M S^{-1} M^t \right]_{33}$ avec :

$$M = \begin{bmatrix} \cos\psi & -\cos(\psi+\phi) & -\sin\psi & \sin(\psi+\phi) \\ \sin\psi & -\sin(\psi+\phi) & \cos\psi & -\cos(\psi+\phi) \\ 2\alpha k_I & -2\alpha k_F & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

$$\text{et } S = \begin{bmatrix} A_1 & 0 & B_1/k_I & 0 \\ 0 & A_2 & 0 & B_2/k_F \\ B_1/k_I & 0 & C_1/k_I^2 & 0 \\ 0 & B_2/k_F & 0 & C_2/k_F^2 \end{bmatrix}$$

le calcul de σ^2 s'effectue aisément et

$$\sigma^2 = [MS^{-1}M^t]_{33} = 4\alpha^2 k_I^2 A_1' + 4\alpha^2 k_F^2 A_2'$$

$$\text{avec } A_1' = \frac{1}{\det S} \left[\frac{A_2 C_1 C_2}{k_I^2 k_F^2} - \frac{B_2^2 C_1}{k_I^2 k_F^2} \right] = \frac{C_1}{A_1 C_1 - B_1^2}$$

$$A_2' = \frac{1}{\det S} \left[\frac{A_1 C_1 C_2}{k_I^2 k_F^2} - \frac{B_1^2 C_2}{k_I^2 k_F^2} \right] = \frac{C_2}{A_2 C_2 - B_2^2}$$

$$\text{car } \det S = \frac{(A_1 C_1 - B_1^2)(A_2 C_2 - B_2^2)}{k_I^2 k_F^2}$$

et en définitive :

$$\sigma^2 = (2\alpha)^2 \left[\frac{C_1 k_I^2}{A_1 C_1 - B_1^2} + \frac{C_2 k_F^2}{A_2 C_2 - B_2^2} \right]$$

Soit en remplaçant A_1 , B_1 , C_1 , A_2 , B_2 et C_2 par les valeurs données dans l'appendice 2, équation (4)

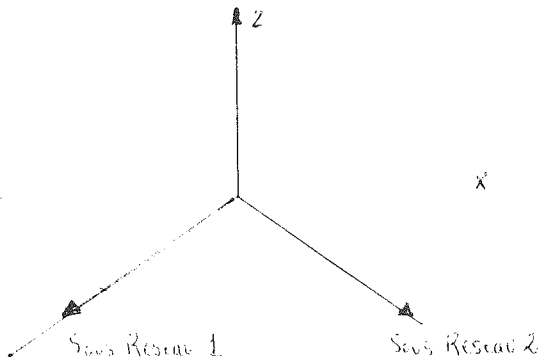
$$\sigma^2 = (2\alpha)^2 \left[\frac{(\alpha_1^2 \eta_M^2 + \alpha_0^2 \eta_M^2 + \alpha_1^2 \alpha_0^2)}{\alpha_1^2 + \alpha_0^2 + 4\eta_M^2} k_I^4 \cot g^2 \theta_M + \frac{(\alpha_2^2 \eta_A^2 + \alpha_3^2 \eta_A^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2)}{\alpha_2^2 + \alpha_3^2 + 4\eta_A^2} k_f^4 \cot g^2 \theta_A \right]$$

APPENDICE 4

ONDES DE SPIN ASSOCIEES A UN ARRANGEMENT NON COLINEAIRE DES MOMENTS

(Communication de J. VILLAIN)

Postulons l'existence d'une structure de spins non colinéaire ayant une composante antiferromagnétique parallèle à l'axe Ox et une composante ferromagnétique parallèle à Oz.



La dynamique du système de spins est décrite par les composantes de Fourier de l'aimantation statique M et de l'aimantation inhomogène P

$$\langle M_{\vec{k}}^{\alpha} \rangle = N^{1/2} M \delta_{\alpha z} \delta_{\vec{k}0}$$

$$\langle P_{\vec{k}}^{\alpha} \rangle = N^{1/2} P \delta_{\alpha x} \delta_{\vec{k}0}$$

Considérons l'existence d'ondes de spin dans ce système :

$$\begin{bmatrix} 0 \\ M_{\vec{k}} \\ 0 \\ P_{\vec{k}} \end{bmatrix} = i \Omega_{\vec{k}} \begin{bmatrix} M_{\vec{k}} \\ P_{\vec{k}} \end{bmatrix} \quad (1)$$

où $\Omega_{\vec{k}}$ est une matrice d'ordre 6 contenant les fréquences propres des ondes de spin. Introduisons la fonction de corrélation intégrée proposée par Kubo. Soit :

$$(A(t), B) = \int_0^{\beta} \langle A(t - ih\lambda) B \rangle d\lambda$$

ou encore :

$$(A(t), B) = \int_0^{\beta} \langle e^{\lambda} A(t) e^{-\lambda} B \rangle d\lambda$$

où A et B sont des opérateurs quelconques. Si on multiplie à droite

chaque membre de (1) par $\begin{bmatrix} M_{\vec{k}}(0) \\ P_{\vec{k}}(0) \end{bmatrix}^*$, (1) s'écrit :

$$\begin{bmatrix} 0 \\ M_{\vec{k}}(t) \\ 0 \\ P_{\vec{k}}(t) \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} M_{\vec{k}}(0) \\ P_{\vec{k}}(0) \end{bmatrix}^* = i\Omega_K \begin{bmatrix} M_{\vec{k}}(t) \\ P_{\vec{k}}(t) \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} M_{\vec{k}}(0) \\ P_{\vec{k}}(0) \end{bmatrix}^* \quad (2)$$

Or la dérivée par rapport au temps des fonctions de corrélation intégrées est reliée directement au commutateur des opérateurs :

$$\frac{d}{dt} (A(t), B) = \frac{i}{\hbar} \langle [B, A(t)] \rangle$$

on peut écrire :

$$(A, B^*) = \frac{i}{\hbar} \langle [B^*, A] \rangle$$

(A, B^*) est alors une susceptibilité. Si on désigne par $U_{\alpha\gamma}^{\rho\sigma}$ les éléments de la matrice inverse de cette susceptibilité. Soit :

$$\Theta(\vec{k}) = \chi^{-1}(\vec{k})$$

Elle peut être calculée aisément en tenant compte des éléments de symétrie du système et s'écrit :

$$\begin{bmatrix} U_{xx}^{MM} & 0 & 0 & 0 & 0 & U_{xz}^{MP} \\ 0 & U_{yy}^{MM} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U_{zz}^{MM} & U_{xz}^{MP} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U_{xz}^{PM} & U_{xx}^{PP} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & U_{yy}^{PP} & 0 \\ U_{zx}^{PM} & 0 & 0 & 0 & 0 & U_{zz}^{PP} \end{bmatrix}$$

Dans ce cas, l'équation (2) s'écrit :

$$\hbar\Omega_{\vec{k}} = \begin{bmatrix} 0 & M & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -M & 0 & 0 & 0 & 0 & P \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -P & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & M & 0 \\ 0 & 0 & P & -M & 0 & 0 \\ 0 & -P & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U_{xx}^{MM} & 0 & 0 & 0 & 0 & U_{xz}^{MP} \\ 0 & U_{yy}^{MM} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U_{zz}^{MM} & U_{zx}^{MP} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U_{xz}^{PM} & U_{xx}^{PP} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & U_{yy}^{PP} & 0 \\ U_{zx}^{PM} & 0 & 0 & 0 & 0 & U_{zz}^{PP} \end{bmatrix} \quad (3)$$

Le produit effectué s'écrit :

$$\begin{bmatrix} 0 & MU_{yy}^{MM} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ (PU_{xz}^{MP} - MU_{xx}^{MM}) & 0 & 0 & 0 & 0 & (PU_{zz}^{PP} - MU_{xz}^{MP}) \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -PU_{yy}^{PP} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & MU_{yy}^{PP} & 0 \\ 0 & 0 & (PU_{zz}^{MM} - MU_{xz}^{PM}) & (PU_{xz}^{MP} - MU_{xx}^{PP}) & 0 & 0 \\ 0 & -PU_{yy} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Cette matrice se sépare en deux blocs et le calcul des quatre valeurs propres est trivial :

$$\hbar\omega_{AF}(\vec{k}) = U_{yy}^{PP}(\vec{k}) \left[M^2 U_{xx}^{PP}(\vec{k}) - MP(U_{xz}^{PM}(\vec{k}) + U_{zx}^{MP}(\vec{k})) + P^2 U_{zz}^{MM}(\vec{k}) \right] \quad (4a)$$

$$\hbar\omega_F(\vec{k}) = U_{yy}^{MM}(\vec{k}) \left[M^2 U_{xx}^{MM}(\vec{k}) - MP(U_{zx}^{PM}(\vec{k}) + U_{xz}^{MP}(\vec{k})) + P^2 U_{zz}^{PP}(\vec{k}) \right] \quad (4b)$$

$$\text{Comme } U_{\alpha\gamma}^{MM}(\vec{k} + \vec{Q}) = U_{\alpha\gamma}^{PP}(\vec{k}) \quad \text{et} \quad U_{\alpha\gamma}^{MP}(\vec{k} + \vec{Q}) = U_{\alpha\gamma}^{PM}(\vec{k})$$

$$\text{alors } \hbar\omega_{AF}(\vec{k} + \vec{Q}) = \hbar\omega_F(\vec{k}) \quad (5)$$

\vec{Q} correspond à un noeud de surstructure. On en déduit donc que en bord de zone $\hbar\omega_{AF} = \hbar\omega_F$.

Pour exprimer ces fréquences au voisinage de $k = 0$, on développe U au premier ordre :

$$\begin{aligned} U_{yy}^{MM}(\vec{k}) &\approx Ak^2 \\ \text{et } U_{yy}^{PP}(\vec{k}) &\approx Bk^2 \end{aligned}$$

Lorsque $k = 0$, un champ uniforme suivant x, ou inhomogène suivant z transforme le système aimantation statique M et aimantation inhomogène P en : $P_z = -\epsilon P$ et $M_x = \epsilon M$

donc $[M, -P]$ est un vecteur propre de

$$\begin{bmatrix} U_{xx}^{MM}(0) & U_{xz}^{MP}(0) \\ U_{zx}^{PM}(0) & U_{zz}^{PP}(0) \end{bmatrix}$$

pour la valeur propre 0, ceci entraîne que pour $k = 0$:

$$M^2 U_{xx}^{MM}(0) - 2MPU_{xz}^{MP}(0) + P^2 U_{zz}^{PP}(0) = 0.$$

En supposant, comme l'a proposé Landau, que toutes les fonctions U sont analytiques, c'est-à-dire développables pour k petit :

$$M^2 U_{xx}^{MM}(\vec{k}) - MP \left[U_{xz}^{MP}(\vec{k}) + U_{zx}^{PM}(\vec{k}) \right] + U_{zz}^{PP}(\vec{k}) = Ck^2$$

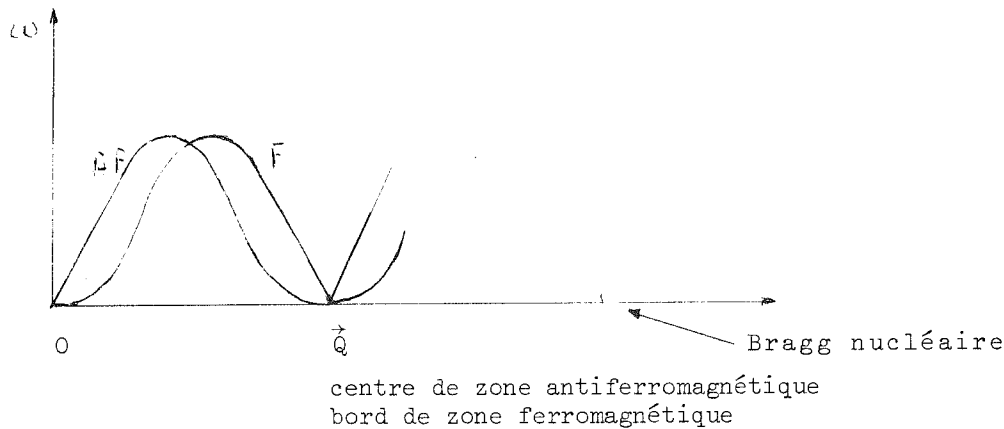
Il n'en est pas de même pour $U_{xx}^{PP}(\vec{k})$, $U_{xz}^{PM}(\vec{k})$, $U_{zx}^{MP}(\vec{k})$ et $U_{zz}^{MM}(\vec{k})$ qui pour $k = 0$ gardent des valeurs finies

$U_{xx}^{PP}(0)$, $U_{xz}^{PM}(0)$, $U_{zx}^{MP}(0)$ et $U_{zz}^{MM}(0)$, on en déduit que pour les valeurs de k petit :

$$\hbar\omega_F(\vec{k}) \propto k^2$$

$$\hbar\omega_{AF}(\vec{k}) \propto k$$

Une allure des courbes de dispersion théoriques peut alors être tracée : (on a tenu compte de la relation (5)).



Intensité diffusée

L'intensité diffusée est donnée à un facteur près par :

$$I_{\vec{k}} = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-i\omega t} (M_{\vec{k}}^{\alpha}(t), M_{\vec{k}}^{\gamma*}(0)) \left[\delta_{\alpha\gamma} - \frac{k_{\alpha} k_{\gamma}}{k^2} \right]$$

Comme $|M_{\vec{k}}(t), M_{\vec{k}}^*(0)|$ est une susceptibilité, l'intensité peut s'exprimer sous la forme :

$$I_{\vec{k}} = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-i\omega t} T_r e^{i\hat{\Omega}_{\vec{k}} t} \hat{\chi}_{\vec{k}} \theta_{\vec{k}}$$

avec :

$$\begin{bmatrix} 1 - k_x^2/k^2 & -k_x k_y/k^2 & -k_x k_z/k^2 & 0 & 0 & 0 \\ -k_y k_x/k^2 & 1 - k_y^2/k^2 & -k_y k_z/k^2 & 0 & 0 & 0 \\ -k_z k_x/k^2 & -k_z k_y/k^2 & 1 - k_z^2/k^2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$\hat{\Omega}_k$ est donné par la relation (3) qui peut s'écrire :

$$i\hbar\Omega_k = \Gamma\chi_k^{-1}$$

en introduisant les vecteurs propres correspondant à Ω_k

$$\Omega_k \Psi_{k\alpha} = \omega_{k\alpha} \Psi_{k\alpha} = \frac{1}{i\hbar} \Gamma\chi_k^{-1} \Psi_{k\alpha}$$

En posant $\phi_{k\alpha} = \chi_k^{-1/2} \Psi_{k\alpha}$, où χ_k est une matrice hermétique, la relation précédente devient :

$$\chi_k^{-1/2} \Gamma\chi_k^{-1/2} \phi_{k\alpha} = i\hbar\omega_{k\alpha} \phi_{k\alpha}$$

La norme de $\phi_{k\alpha}$ et $\Psi_{k\alpha}$ est fixée par :

$$\phi_{k\alpha}^* \phi_{k\gamma} = \Psi_{k\alpha}^* \chi_k^{-1} \Psi_{k\gamma} = \delta_{\alpha\gamma}$$

d'où :

$$-i \chi_k^{-1/2} \Gamma\chi_k^{-1/2} = \sum_{\alpha} \hbar\omega_{k\alpha} \phi_{k\alpha} \phi_{k\alpha}^*$$

On peut écrire alors que :

$$\begin{aligned} e^{it\Omega_k} &= \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{t}{\hbar} \Gamma\chi_k^{-1}\right)^n / n! \\ &= \chi_k^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{t}{\hbar} \chi_k^{-1/2} \Gamma\chi_k^{-1/2}\right)^n \chi_k^{-1/2} / n! \\ &= \chi_k^{1/2} \left(\exp \frac{t}{\hbar} \chi_k^{-1/2} \Gamma\chi_k^{-1/2}\right) \chi_k^{-1/2} \\ &= \sum_{\alpha} \chi_k^{1/2} e^{it\omega_{k\alpha}} \phi_{k\alpha} \phi_{k\alpha}^* \chi_k^{-1/2} \end{aligned}$$

L'intensité va s'écrire :

$$I_k = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega t} dt T_r \chi_k^{1/2} \phi_{k\alpha} \phi_{k\alpha}^* \chi_k^{1/2} \theta_k e^{it\omega_{k\alpha}}$$

ou encore :

$$I_k = 2\pi \sum_{\alpha} \delta(\omega - \omega_{k\alpha}) T_r (\psi_{k\alpha} \psi_{k\alpha}^*) \theta_k$$

$$I_k = 2\pi \sum_{\alpha} \delta(\omega - \omega_{k\alpha}) \psi_{k\alpha}^* \theta_k \psi_{k\alpha}$$

Diffusion associée à la composante antiferromagnétique

Le vecteur propre correspondant à $\hbar\omega_{AF}(\vec{k})$ est :

$$\psi_{AF}(\vec{k}) = \sqrt{\frac{U_{YY}^{PP}(\vec{k})}{2}} \frac{1}{\hbar\omega_{AF}(\vec{k})} \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ P \\ -M \\ i \frac{M^2 U_{xx}^{PP} - MP(U_{xz}^{PM} + U_{zx}^{MP}) + P^2 U_{zz}^{MM}}{U_{YY}^{PP}} \\ 0 \end{bmatrix}$$

L'intensité diffusée s'écrit :

$$I_{AF}(\vec{k}) = P^2 \Pi \left[1 - \frac{k_z^2}{k^2} \right] \left[M^2 U_{xx}^{PP}(\vec{k}) - MP(U_{xz}^{PM}(\vec{k}) + U_{zx}^{MP}(\vec{k})) + P^2 U_{zz}^{MM}(\vec{k}) \right]^{-1}$$

pour $k \approx 0$, cette intensité reste finie alors que la diffusion correspondant à la raie de type ferromagnétique devient intense (voir plus loin).

Pour $k \approx Q$:

$$I_{AF}(\vec{k}) = P^2 \Pi \left[1 - \frac{k_z^2}{k^2} \right] \left[M^2 U_{xx}^{MM}(\vec{k+Q}) - MP(U_{xz}^{MP}(\vec{k+Q}) + U_{zx}^{PM}(\vec{k+Q})) + P^2 U_{zz}^{PP}(\vec{k+Q}) \right]^{-1}$$

Cette intensité devient importante.

Diffusion associée à la composante ferromagnétique

Le vecteur propre s'écrit :

$$\psi_F(k) = \frac{1}{\hbar \omega_F(k)} \sqrt{\frac{U_{YY}^{MM}(k)}{2}}$$

$$\left[\begin{array}{c} M \\ \frac{M^2 U_{xx}^{MM} - MP(U_{xz}^{MP} + U_{zx}^{PM}) + P^2 U_{zz}^{PP}}{U_{yy}^{MM}} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ P \end{array} \right]_i$$

L'intensité s'écrit alors :

$$I_F = \frac{\Pi U_{YY}^{MM}(\vec{k})}{\hbar \omega_F^2(\vec{k})} \left[M^2 \left(1 - \frac{k_x^2}{k^2} \right) + \left(1 - \frac{k_y^2}{k^2} \right) \frac{M^2 U_{xx}^{MM} - MP(U_{xz}^{MP} + U_{zx}^{PM}) + P^2 U_{zz}^{PP}}{U_{yy}^{MM}} \right]$$

Pour $\vec{k} \rightarrow 0$, $I_F(\vec{k})$ augmente. Le terme entre crochets a une limite finie non nulle. Pour $k = Q$:

$$\begin{aligned} I_F &= \left(1 - \frac{k_y^2}{k^2} \right) \Pi \left[M^2 U_{xx}^{PP}(0) - 2MP U_{xz}^{PM}(0) + P^2 U_{zz}^{MM}(0) \right] / \hbar^2 \omega_F^2(\vec{k}) \\ &= \Pi \left(1 - \frac{k_y^2}{k^2} \right) / U_{yy}^{PP}(\vec{k} + \vec{Q}) \end{aligned}$$

L'intensité diffusée est importante.

En résumé, au voisinage de $k = 0$, la diffusion ferromagnétique est intense alors que la diffusion antiferromagnétique est négligeable. Par contre, au centre de zone antiferromagnétique ou bord de zone ferromagnétique, les intensités de diffusion ferromagnétique et antiferromagnétique sont fortes sauf si k est parallèle à Oy ou Oz .

Pour un arrangement de spins donné, les équations microscopiques sont calculées à partir de l'Hamiltonien d'Heisenberg. On prend sur chaque site un trièdre trirectangle u_i, v_i, w_i tel que w_i soit parallèle à $\langle S_i \rangle$ et \vec{v}_i indépendant de i , avec $u_i^2 = v_i^2 = w_i^2$. L'Hamiltonien s'exprime :

$$\begin{aligned} H &= 2 \sum_{ij} J_{ij} s_{ij} \vec{w}_i \vec{w}_j a_i^+ a_i + \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \sqrt{s_i s_j} (a_i^+ - a_i)(a_j^+ - a_j) \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \sqrt{s_i s_j} u_i u_j (a_i^+ + a_i)(a_j^+ + a_j) \end{aligned}$$

La condition de stabilité du système s'écrit :

$$\vec{u}_i \cdot \sum_j \vec{w}_j \cdot s_j = 0$$

La résolution de l'Hamiltonien permet d'obtenir des résultats quantitatifs analogues aux résultats présentés ci-dessus.

R É F É R E N C E S

- (ALS 69) J. ALS-NIELSON et D.W. DIETRICH
Phys. Rev. Lett., 22, 290 (1969).
- (ALS 71) J. ALS-NIELSON, J.D. AXE, G. SHIRANE
J. Appl. Phys., 42, 1666 (1971).
- (BER 61) F. de BERGEVIN, F. BERTAUT et G. ROULT
C.R. Acad. Sc. Paris, 252, 1347 (1961).
- (BER 62) E.F. BERTAUT, A. DELAPALME, F. FORRAT et G. ROULT
J. Appl. Phys., 33, 1123 (1962).
- (BJE 70) H. BJERRUM MOLLER, M. NIELSEN
Instrumentation for neutron inelastic scattering research,
Proc. of a PANEL Vienna, IAEA (1970).
- (BLO 66) D. BLOCH
Ann. Phys., 1, 121 (1966).
- (CH 73) N.J. CHESSER et J.D. AXE
Acta Cryst., A29, 160 (1973).
- (COL 69) M.F. COLLINS, V.J. MINKIEWICZ, R. NATHANS, L. PASSEL et
G. SHIRANE
Phys. Rev., 179, 417 (1969).
- (COO 72) J.F. COOKE et H.L. DAVIS
Magnetism and Magnetic Materials (A.I.P., New York 1972).
- (COO 76) J.F. COOKE, J.W. LYNN et H.L. DAVIS
Sol. Stat. Commun., 20, 799 (1976).
- (COO 67) M.J. COOPER et R. NATHANS
Acta. Cryst., 23, 357 (1967).

- (COO 68a) M.J. COOPER et R. NATHANS
Acta Cryst., A24, 481 (1968).
- (COO 68b) M.J. COOPER et R. NATHANS
Acta Cryst., A24, 619 (1968).
- (DOR 72) B. DORNER
Acta Cryst., A28, 319 (1972).
- (FAL 38) M. FALLOT
Ann. Phys., 10, 291 (1938).
- (FRI 71) E. FRIKKEE
Phys. Lett., 34A, 23 (1971).
- (GUR 68) I.I. GUREVITCH et L.V. TARASOV
Low energy neutron Physics, North Holland, Amsterdam (1968).
- (HAN 71a) W. HANKE
Intern. Conf. on Phonons, Proc. Conf. Rennes (1971).
- (HAN 71b) W. HANKE, H. BILZ
Z. Naturf., 26A, 585 (1971).
- (HAN 72) W. HANKE, H. BILZ
Neutron inelastic scattering, Grenoble, IAEA, 3 (1972).
- (HAR 66) N.A. HARRISSON
Pseudopotentials in the theory of metals, Benjamin, New York (1966).
- (HEN 76) B. HENNION, M.T. HUTCHINGS, R.D. LOWDE, M.W. STRINGFELLOW et D. TOCHETTI
Proc. of the conf. on Neutron Scattering II, 825 (1976).
- (HOL 40) T. HOLSTEIN et H. PRIMAKOFF
Phys. Rev., 58, 1098 (1940).
- (IVA 71) J. IVARSSON, G.R. PICKETT et J. TOTH
Phys. Lett., 35A, 167 (1971).
- (IZU 63) T. IZUYAMA, D.J. KIM et R. KUBO
J. Phys. Soc. Japan, 18, 1025 (1963).
- (IZY 70) Y.A. IZYUMOV et R.P. OZEVOV
Magnetic Neutron Scattering, IAEA, Vienna (1970).

- (KAH 76) KAHN
(à paraître).
- (KHW 77) Y. KHWAJA
Thèse de 3e Cycle, Strasbourg (1977)
Y. KHWAJA et M. NAUCIEL-BLOCH
A paraître dans Sol. Stat. Commun. (1977).
- (KOU 62) J.S. KOUVEL et C.C. HARTELIUS
J. Appl. Phys. Suppl. au Vol., 33, N° 3, 1343 (1962).
- (KOU 66) J.S. KOUVEL
J. Appl. Phys., 37, 1257 (1966).
- (KRE 64) E. KREN, L. PAL et P. SZABO
Phys. Lett., 9, 297 (1964).
- (KUB 57) R. KUBO
J. Phys. Soc. Japan, 12, 570 (1957).
- (KUB 66) R. KUBO
Rep. Prog. Phys., 29, 255 (1966).
- (KUN 71) N. KUNITOMI, J. KOHGI et Y. NAKAI
Phys. Lett., 37A, 333 (1971).
- (LOW 54) R.D. LOWDE
Proc. Roy. Soc., A221, 206 (1954).
Proc. Roy. Soc., A235, 305 (1956).
- (LOW 60) R.D. LOWDE et N. UMAKANTHA
Phys. Rev. Lett., 4, 452 (1960).
- (LOW 70) R.D. LOWDE et C.G. WINDSOR
Adv. in Phys., 3, 813 (1970).
- (LOM 67) J.M. LOMMEL et J.S. KOUVEL
J. Appl. Phys., 18, 1263 (1967).
- (MCK 70) J.B. MCKINNON, D. MELVILLE et E.W. LEE
J. Phys. C, 3, Suppl. N°1, 546 (1970).
- (MIN 69) V.J. MINKIEWICZ, M.F. COLLINS, R. NATHANS et G. SHIRANE
Phys. Rev., 182, 624 (1969).

- (MOO 69) H.A. MOOK, R.M. NICKLOW, E.D. THOMPSON et M.K. WILKINSON
J. Appl. Phys., 40, 1450 (1969).
- (MOO 73a) H.A. MOOK et R.M. NICKLOW
Phys. Rev., B7, 336 (1973).
- (MOO 73b) H.A. MOOK, J.W. LYNN et R.M. NICKLOW
Phys. Rev. Lett., 30, 556 (1973).
- (MOR 73) T. MORIYA et A. KAWABATA
J. Phys. Soc. Japan, 35, 639 (1973).
J. Phys. Soc. Japan, 35, 669 (1973).
Proc. Intern. Conf. on Magnetism, IV, 5, Moscou (1973).
- (MOR 76) T. MORIYA
J. Phys. Soc. Japan, 40, 933 (1976).
- (MUH 69) L.D. MUHLESTEIN et S.K. SINHA
Bull. Amer. Phys. Soc., 13, 468 (1969).
- (PAL 64) L. PAL, T. TARNOCZI, P. SZABO, E. KREN et J. TOTH
Proc. Intern. Conf. on Magnetism, Nottingham (1964).
- (PEP 72) G. PEPY
Thèse d'Etat (1972), Paris.
- (PIC 67) S.J. PICKART, H.A. ALPERIN, V.J. MINKIEWICZ, R. NATHANS,
G. SHIRANE et O. STEINVOLL
Phys. Rev., 156, 623 (1967).
- (PRA 71) S. PRAKASH, S.K. JOSHI
Phys. Rev., B4, 1770 (1971).
- (RIC 72) J.A. RICODEAU et D. MELVILLE
J. Phys. F, 2, 337 (1972).
- (RIC 73) M.J. RICHARDSON, D. MELVILLE et J.A. RICODEAU
Phys. Lett., 46A, 153 (1973).
- (RIE 77) R. RIEDINGER
Communication privée.
- (RIS 64) T. RISTE, G. SHIRANE, H.A. ALPERIN et S.J. PICKART
J. Appl. Phys., 36, 1076 (1964).

- (SCH 72) C.J. SCHINKEL et R. HARTOG
18th Conf. on Magn. and Magn. Mat., Denver, 10, 1365 (1972).
- (SCH 74) C.J. SCHINKEL, R. HARTOG et H.A.M. HOCHSTENBACH
J. Phys. F, 4, 1412 (1974).
- (SHI 63) G. SHIRANE, C.W. CHEN, P.A. FLINN et R. NATHANS
Phys. Rev., 131, 183 (1963).
- (SHI 64) G. SHIRANE et R. NATHANS
Phys. Rev., 134, A1547 (1964).
- (SHI 65) G. SHIRANE, R. NATHANS, O. STEINSVOLL, H.A. ALPERIN et
S.J. PICKART
Phys. Rev. Lett., 15, 146 (1965).
- (SIN 60) R.N. SINCLAIR et B.N. BROCKHOUSE
Phys. Rev., 120, 1638 (1960).
- (SIN 69) S.K. SINHA, S.H. LIU, L.D. MUHLEISTEIN et N. WAKABAYASHI
Phys. Rev. Lett., 23, 311 (1969).
- (TOY 58) T. TOYA
J. Res. Inst. Catalysis, Hokkaido Univ., 6, 183 (1958).
- (TU 69) P. TU, A.J. HEEGER, J.S. KOUVEL et J.B. COMLY
J. Appl. Phys., 40, 1368 (1969).
- (VAN 54a) L. VAN-HOVE
Phys. Rev., 95, 1, 249 (1954).
- (VAN 54b) L. VAN-HOVE
Phys. Rev., 95, 6, 1374 (1954).
- (VIN 70) L. VINOKUROVA et M. PARDAVI-HORVATH
Phys. Stat. Sol., 41, K5 (1970).
- (VIN 75) L. VINOKUROVA, A.V. VLASOV, M. PARDAVI-HORVATH
Hungarian Academy of Sci., KFKI 75-51 (1975).
- (WAK 64) S. WAKOH et J. YAMASHITA
J. Phys. Soc. Japan, 19, 1342 (1964).
- (WAK 65) S. WAKOH
J. Phys. Soc. Japan, 20, 1894 (1965).

- (WAY 68) R.C. WAYNE
Phys. Rev., 170, 523 (1968).
- (WEB 72) W. WEBER, H. BILZ et U. SCHRODER
Phys. Rev. Lett., 28, 600 (1972).
- (WER 71) S.A. WERNER et R. PYNN
J. Appl. Phys., 42, 4736 (1971).
- (YAM 63) J. YAMASHITA, M. FUKUCHI et S. WAKOH
J. Phys. Soc. Japan, 18, 999 (1963).
S. WAKOH et J. YAMASHITA
J. Phys. Soc. Japan, 21, 1712 (1966).
- (YOU 76) W. YOUNG
Physica, 91B, 213 (1977).
N. CADE et W. YOUNG
Physica, 86-88B, 363 (1977).
- (ZAK 64) A.I. ZAKHAROV, A.M. KADOMTSEVA, R.Z. LEVITIN et
E.G. PONYATOVSKII
Sov. Phys. J.E.T.P., 19, n° 6, 1348 (1964).
- (ZAV 67) E.A. ZAVADSKII et I.G. FAKIDOV
Sov. Phys. Sol. Stat., 9, n° 1, 103 (1967).
- (ZSO 67) L. ZSOLDOS
Phys. Stat. Sol., 20, K25 (1967).