

Zeitschrift: Archives des sciences [1948-1980]

Band: 22 (1969)

Heft: 3

Artikel: Étude par résonance magnétique d'alliages à haute susceptibilité

Kapitel: Modèle du champ moléculaire pour le couplage ions-électrons

Autor: Dupraz, Jean

DOI: <https://doi.org/10.5169/seals-739163>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. [Voir Informations légales.](#)

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. [See Legal notice.](#)

Download PDF: 15.10.2024

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>

CHAPITRE II

MODÈLE DU CHAMP MOLÉCULAIRE POUR
LE COUPLAGE IONS-ÉLECTRONS

1. INTRODUCTION

Des expériences précédentes (PETER et al. 1962; SHALTIEL et al. 1964) ont mis en évidence un des effets dynamiques, à savoir un fort élargissement à basse température dû au fait que les électrons de conduction constituent un système résonnant couplé avec celui des ions, et avec un taux de dissipation dans le réseau qui ne peut pas être considéré comme infini. Un autre effet dynamique est que le déplacement de la raie de résonance n'est plus simplement proportionnel à la susceptibilité statique des électrons. Ces effets ont été étudiés par une analyse quantique (GIOVANNINI et al. 1966; GIOVANNINI, 1968). Le point important est que les effets dynamiques peuvent être abordés par une voie phénoménologique: elle consiste à décrire les propriétés de résonance des électrons et des ions à l'aide de deux équations de Bloch, où le couplage entre les deux systèmes figure sous forme de champs moléculaires. L'idée d'écrire un tel système n'est pas nouvelle; elle a permis par exemple à WANGSNES (1953) de calculer le facteur g de deux systèmes ferromagnétiques couplés. Le souci d'inclure dans les équations de Bloch des termes de relaxation appropriés est récent: HASEGAWA (1959); PETER et al. (1967), GIOVANNINI (1967), et COTTET et al. (1968), avec des termes de relaxation plus satisfaisants.

La réponse complète du système ions-électrons est obtenue sous forme d'une fonction de susceptibilité, valable aussi bien dans le cas statique que dans le cas dynamique.

2. LE MODÈLE

On considère un système d'électrons de conduction caractérisés par leur aimantation \vec{m} , un système de ions caractérisés par \vec{M} , une constante de couplage ion-ions λ_{ii} , électrons-électrons λ_{ee} et ions-électrons λ_{ie} , et enfin un champ extérieur \vec{f} .

$(\vec{f} + \lambda_{ee}\vec{m} + \lambda_{ie}\vec{M})$ est le champ agissant sur les électrons.

$(\vec{f} + \lambda_{ii}\vec{M} + \lambda_{ie}\vec{m})$ est le champ agissant sur les ions.

Cas statique

Si α^0 est la susceptibilité nue des électrons itinérants, et β^0 la quantité correspondante pour les ions, on peut écrire:

$$\left. \begin{aligned} m_z &= \alpha^0 (f_z + \lambda_{ee} m_z + \lambda_i^0 M_z) \\ M_z &= \beta^0 (f_z + \lambda_{ii} M_z + \lambda_{ie} m_z) \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Les équations (1) peuvent être réécrites:

$$\left. \begin{aligned} m_z &= \alpha (f_z + \lambda_{ie} M_z) \\ M_z &= \beta (f_z + \lambda_{ie} m_z) \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

$$\text{avec } \alpha = \frac{\alpha^0}{1 - \lambda_{ee} \alpha^0} \quad (3)$$

$$\text{et } \beta = \frac{\beta^0}{1 - \lambda_{ii} \beta^0} \quad (4)$$

α est la susceptibilité augmentée par l'échange λ_{ee} entre les électrons, et β est la quantité correspondante pour les ions (Nous pouvons aussi utiliser les notations χ_e et χ_i).

De la résolution du système (2) nous obtenons m_z , M_z et la susceptibilité totale χ_z du système ions-électrons:

$$\frac{m_z}{f_z} = \frac{1 + \lambda_{ie} \beta}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} \alpha \quad (5)$$

$$\frac{M_z}{f_z} = \frac{1 + \lambda_{ie} \alpha}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} \beta \quad (6)$$

$$\chi_z = \frac{M_z + m_z}{f_z} = \frac{\alpha + \beta + 2\lambda_{ie} \alpha \beta}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} = \alpha + \frac{\beta (1 + \lambda_{ie} \alpha)^2}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} \quad (7)$$

Remarques:

- (i) Les grandeurs mesurables sont α pour la matrice hôte et χ_z pour l'alliage avec les impuretés magnétiques. β n'est pas directement accessible à l'expérience.
- (ii) Si $\lambda_{ie} \rightarrow 0$, alors $m_z/f_z \rightarrow \alpha$, $M_z/f_z \rightarrow \beta$, $\chi_z \rightarrow \alpha + \beta$. En parlant par exemple des ions, il importe de ne pas confondre M_z/f_z avec β , ces deux quantités ne sont égales qu'en l'absence de couplage avec les électrons.
- (iii) Si $\lambda_{ee} \rightarrow 0$, alors $\alpha \rightarrow \alpha^0$.

On remarque que pour les électrons la susceptibilité augmentée par échange est égale à la susceptibilité nue multipliée par un facteur que l'on peut identifier à celui de Stoner.

- (iv) Si $\lambda_{ii} \rightarrow 0$, alors $\beta \rightarrow \beta^0$.
- (v) Si $(1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta) \rightarrow 0$, alors les aimantations m_z et M_z peuvent exister spontanément sans champ extérieur et l'on obtient ainsi une *limite ferromagnétique*. Le modèle développé ici n'est valable que pour la région paramagnétique.
- (vi) Si $\lambda_{ie} < 0$, il peut arriver à basse température que m_z soit *néгатif*, puisque si $T \searrow$, $\beta \nearrow$ et d'après (5) $m_z < 0$ si $\lambda_{ie} \beta < -1$. Cette remarque jouera un rôle dans la discussion de la loi de bilan détaillé.
- (vii) Il est naturel d'admettre que la susceptibilité nue des ions suit la loi de Curie $\beta^0 = C/T$. Alors l'équation (4) prend la forme de Curie-Weiss $\beta = C/(T - \lambda_{ii}C)$ et la susceptibilité (7) du système ions-électrons devient:

$$\chi_z = \alpha + \frac{C(1 + \lambda_{ie} \alpha)^2}{T - C(\lambda_{ii} + \lambda_{ie}^2 \alpha)} \quad (8)$$

$(\chi_z - \alpha)^{-1}$ n'est plus fonction linéaire de la température dans le cas où α dépend de la température. En se rappelant que la constante de Curie est proportionnelle au carré du moment effectif paramagnétique, on peut aussi écrire:

$$\mu_{eff} = \mu_{eff}^* (1 + \lambda_{ie} \alpha) \quad (9)$$

L'astérisque désigne le moment sans effet d'échange λ_{ie} . Ces équations ont déjà été données par de nombreux auteurs, par exemple la forme (8) se trouve implicitement dans l'article d'OWEN et al. (1957). La mesure de l'échange λ_{ie} peut se faire à l'aide de l'une des relations (8) ou (9). L'emploi de cette dernière se fait usuellement dans un petit domaine de température et requiert la connaissance précise de la concentration, de sorte que le résultat est facilement erroné. Tandis qu'à l'aide de la relation (8), si l'on a une forte dépendance de température pour la susceptibilité α , la courbure observée sur un graphique $(\chi_z - \alpha)^{-1}$ en fonction de la température permet de déterminer λ_{ie} sans connaître la concentration. Enfin la constante λ_{ii} est déterminée de façon indépendante, puisqu'elle ne fait qu'une translation et n'agit pas sur la courbure.

Cas dynamique

Nous décrivons les propriétés de résonance par les équations bien connues pour deux systèmes de spins couplés (Voir par exemple VONSOVSKII, 1966, p. 174): μ_B est le magnéton de Bohr, g_i et g_e sont les facteurs g des ions et des électrons (Les quantités μ_B et g sont prises positives; les signes de (10) tiennent compte de ce que les moments cinétiques et magnétiques sont opposés). Dans une discussion due à

GIOVANNINI (1967), et aussi COTTET et al. (1968), on montre que \vec{R}_i et \vec{R}_e doivent satisfaire aux conditions suivantes:

$$\begin{aligned} \frac{d\vec{M}}{dt} &= -g_i\mu_B [\vec{M} \times (\vec{f} + \lambda_{ie}\vec{m})] + \vec{R}_i \\ \frac{d\vec{m}}{dt} &= -g_e\mu_B [\vec{m} \times (\vec{f} + \lambda_{ie}\vec{M})] + \vec{R}_e \end{aligned} \tag{10}$$

(i) Ils doivent dépendre explicitement de δ_{ie} , δ_{ei} , δ_{iL} et δ_{eL} , qui sont respectivement les taux de relaxation des ions vers les électrons, des électrons vers les ions, des ions vers le réseau et des électrons vers le réseau (Voir fig. II-1). L'introduction de δ_{ie} et δ_{ei} est essentielle pour obtenir l'effet d'étranglement de la relaxation, discuté par HASEGAWA (1959) et mis en évidence par la résonance du Mn^{++} dans le Cu (GOSSARD et al. 1967) et dans l'Ag (GOSSARD et al. 1968).

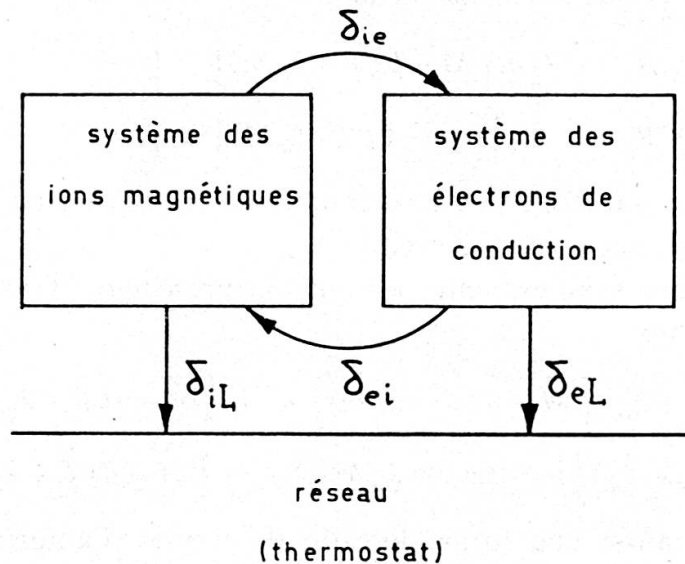


FIG. II-1. — Représentation des chemins de relaxation des ions vers le réseau (iL), des ions vers les électrons (ie), des électrons vers les ions (ei) et des électrons vers le réseau (eL).

(ii) Si $\delta_{iL} = \delta_{eL} = 0$, et si $g_i = g_e$, on doit avoir $\vec{R}_i + \vec{R}_e = 0$, en vertu du fait qu'une interaction d'échange seule ne doit pas avoir d'effet sur la forme d'une raie de résonance (KITTEL et MITCHELL, 1956; GIOVANNINI, 1968).

(iii) L'énergie absorbée doit être définie positive.

(iv) Lorsque le champ extérieur \vec{f} est constant, \vec{M} et \vec{m} doivent tendre vers leurs valeurs d'équilibre données par les équations statiques.

Des termes de relaxation, répondant partiellement aux exigences ci-dessus, ont été discutés par les auteurs suivants:

a) WANGSNES (1958) a pris les termes de LANDAU et LIFSHITZ (1935) et a montré qu'il était essentiel d'inclure les champs moléculaires en vue de satisfaire à la condition (iii):

$$\left. \begin{aligned} \vec{R}_i &= -\delta_i \vec{M} \times [\vec{M} \times (\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{m})] \\ \vec{R}_e &= -\delta_e \vec{M} \times [\vec{M} \times (\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{M})] \end{aligned} \right\}$$

b) HASEGAWA (1959) a utilisé les équations suivantes:

$$\left. \begin{aligned} \vec{R}_i &= -\delta_{ie} \vec{M} + \delta_{ei} \vec{m} \\ \vec{R}_e &= -\delta_{ei} \vec{m} + \delta_{ie} \vec{M} - \delta_{eL} [\vec{m} - \alpha(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{M})] \end{aligned} \right\}$$

Ces termes satisfont à la condition (ii) et il est très facile de les compléter de façon à satisfaire à la condition (i). Cependant le calcul explicite de Giovannini (COTTET et al. 1968) montre que la condition (iii) n'est pas remplie.

c) PETER et al. (1967) ont utilisé les formes:

$$\left. \begin{aligned} \vec{R}_i &= -\delta_i [\vec{M} - \beta(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{m})] \\ \vec{R}_e &= -\delta_e [\vec{m} - \alpha(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{M})] \end{aligned} \right\}$$

Ces équations ne satisfont pas aux conditions (i) et (ii); en particulier l'effet d'étranglement ne peut pas être prédit.

En effectuant une synthèse entre les auteurs précédents, Giovannini a montré que l'on peut prendre:

$$\left. \begin{aligned} \vec{R}_i &= -(\delta_{ie} + \delta_{iL}) [\vec{M} - \beta(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{m})] + \delta_{ei} [\vec{m} - \alpha(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{M})] \\ \vec{R}_e &= -(\delta_{ei} + \delta_{eL}) [\vec{m} - \alpha(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{M})] + \delta_{ie} [\vec{M} - \beta(\vec{f} + \lambda_{ie} \vec{m})] \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Ces relations sont aussi une forme linéaire de termes d'amortissement du type Landau et Lifshitz comme sous point a). L'équivalence est obtenue avec l'approximation des petits angles ($|\vec{M}| = M_z$ et $|\vec{m}| = m_z$). Toujours d'après le calcul de Giovannini (COTTET et al. 1968), la condition (iii) n'est satisfaite que si et seulement si:

$$\boxed{\alpha \delta_{ei} = \beta \delta_{ie}} \quad (12)$$

Dans le cadre de notre modèle, cette relation est une forme exacte de la loi de bilan détaillé; HASEGAWA (1959) l'avait donnée sous la forme:

$$m_z \delta_{ei} = M_z \delta_{ie} \quad (13)$$

Cette équation satisfaisait à ses équations de mouvement prises à la limite statique. Si l'on néglige le couplage ions-électrons ($|\lambda_{ie}| \ll \alpha$ et $|\lambda_{ie}| \ll \beta \ll 1$), alors selon (5) et (6) les formes (12) et (13) sont équivalentes. Mais en présence de l'échange λ_{ie}

il peut arriver à basse température que m_z soit négatif, alors que M_z reste positif, de sorte que la relation (13) conduit à un résultat absurde et doit être rejetée. Enfin si $\lambda_{ee} = \lambda_{ii} = 0$, la relation (12) devient:

$$\alpha^0 \delta_{ei} (\lambda_{ee} = \lambda_{ii} = 0) = \beta^0 \delta_{ie} (\lambda_{ie} = \lambda_{ii} = 0) \quad (14)$$

Dans ce cas particulier la loi de bilan détaillé a été démontrée par le calcul direct des quantités δ définies ci-dessus (HASEGAWA, 1959; OVERHAUSER, 1953).

Enfin il apparaît de façon évidente que la condition (iv) est satisfaite, de sorte que nous pouvons nous attendre à ce que la susceptibilité dynamique tende vers la susceptibilité statique si la fréquence tend vers zéro.

Résolution des équations de résonance

On pose:

$$\left. \begin{aligned} \vec{H}_0 &= \vec{f} + \lambda_{ie} \vec{m} \\ \vec{h}_0 &= \vec{f} + \lambda_{ie} \vec{M} \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

Le système (10), avec les termes de relaxation (11), s'écrit:

$$\left. \begin{aligned} \dot{\vec{M}} &= -g_i \mu_B (\vec{M} \times \vec{H}_0) - (\delta_{ie} + \delta_{iL}) (\vec{M} - \beta \vec{H}_0) + \delta_{ei} (\vec{m} - \alpha \vec{h}_0) \\ \dot{\vec{m}} &= -g_e \mu_B (\vec{m} \times \vec{h}_0) - (\delta_{ei} + \delta_{eL}) (\vec{m} - \alpha \vec{h}_0) + \delta_{ei} (\vec{M} - \beta \vec{H}_0) \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

On pose

$$f_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (f_x \pm i f_y), \quad M_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (M_x \pm i M_y) \text{ et } m_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (m_x \pm i m_y).$$

Ces quantités sont proportionnelles à $\exp(+i\omega t)$ et sont supposées beaucoup plus petites que f_z , M_z et respectivement m_z ; selon cette approximation usuelle, M_z et m_z restent aussi constantes. En se rappelant que si $\vec{p} \times \vec{q} = \vec{r}$, alors $r_+ = i(q_+ p_z - p_+ q_z)$ etc, et l'équation pour les ions donne:

$$\begin{aligned} \omega M_+ &= -g_i \mu_B (H_{0+} M_z - M_+ H_{0z}) + i(\delta_{ie} + \delta_{iB})(M_+ - \beta H_{0+}) - \\ &\quad - i\delta_{ei}(m_+ - \alpha h_{0+}) \\ &= M_+ [-g_i \mu_B H_{0z} - i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) + \omega] = \\ &= [-g_i \mu_B M_z - i\beta(\delta_{ie} + \delta_{iL})] H_{0+} - i\delta_{ei}(m_+ - \alpha h_{0+}) \end{aligned}$$

On développe H_{0+} et h_{0+} et l'on groupe les termes en M_+ et m_+ :

$$\begin{aligned} &M_+ [-g_i \mu_B H_{0z} - i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) - i\lambda_{ie} \alpha \delta_{ei} + \omega] + \\ &+ m_+ [g_i \mu_B \lambda_{ie} M_z + i\lambda_{ie} \beta (\delta_{ie} + \delta_{iL}) + i\delta_{ei}] = \\ &= f_+ [-g_i \mu_B M_z - i\beta(\delta_{ie} + \delta_{iL}) + i\alpha \delta_{ei}] \end{aligned}$$

On pose :

$$\left. \begin{aligned}
 \omega_i &= g_i \mu_B f_z & b &= g_e \mu_B \lambda_{ie} M_z \\
 \omega_e &= g_e \mu_B f_z & a &= g_i \mu_B \lambda_{ie} m_z \\
 \varepsilon_i &= \omega_i + a + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) + i\lambda_{ie} \alpha \delta_{ei} \\
 \varepsilon_e &= \omega_e + b + i(\delta_{ei} + \delta_{eL}) + i\lambda_{ie} \beta \delta_{ie} \\
 \zeta_i &= (g_i/g_e) b + i\lambda_{ie} \beta (\delta_{ie} + \delta_{iL}) + i\delta_{ei} \\
 \zeta_e &= (g_e/g_i) a + i\lambda_{ie} \alpha (\delta_{ei} + \delta_{eL}) + i\delta_{ie} \\
 \eta_i &= \frac{1}{\lambda_{ie}} [(g_i/g_e) b + i\lambda_{ie} \beta (\delta_{ie} + \delta_{iL}) - i\lambda_{ie} \alpha \delta_{ei}] \\
 \eta_e &= \frac{1}{\lambda_{ie}} [(g_e/g_i) a + i\lambda_{ie} \alpha (\delta_{ei} + \delta_{eL}) - i\lambda_{ie} \beta \delta_{ie}]
 \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

La symétrie des expressions permet d'écrire aussi l'équation des électrons en changeant partout l'indice e par i , α par β , a par b , m_+ par M_+ et vice-versa :

$$\left. \begin{aligned}
 M_+ (\omega - \varepsilon_i) + m_+ \zeta_i &= -f_+ \eta_i \\
 m_+ (\omega - \varepsilon_e) + M_+ \zeta_e &= -f_+ \eta_e
 \end{aligned} \right\}$$

On a ainsi un système de deux équations à deux inconnues M_+ et m_+ , et l'on peut calculer la susceptibilité transverse totale, c'est-à-dire la réponse du système de ions paramagnétiques en présence des électrons de conduction :

$$\chi_+ = \frac{M_+ + m_+}{f_+} = \frac{\eta_i (\varepsilon_e + \zeta_e - \omega) + \eta_e (\varepsilon_i + \zeta_i - \omega)}{(\varepsilon_i - \omega)(\varepsilon_e - \omega) - \zeta_i \zeta_e} \quad (18)$$

Remarques :

- (i) On contrôle aisément que l'on retrouve la susceptibilité χ_+ donnée par PETER et al. (1967) en faisant $\delta_{ie} = \delta_{ei} = 0$.
- (ii) On contrôle encore que l'identité suivante est bien satisfaite : $\chi_+ (\omega=0) \equiv \chi_z$, c'est à dire que l'on retrouve la susceptibilité statique donnée en (7). Le calcul est purement algébrique, mais un peu long ; c'est pourquoi il est donné dans l'appendice A. Le point intéressant est que la cohérence du modèle n'est pas mise en défaut. En effet considérons un système isotrope ; nous appliquons un champ selon Oz, mais sans saturer le système. Puis nous appliquons un champ transverse fixe. Le fait que le système réponde avec une susceptibilité χ_+ égale à la susceptibilité χ_z exprime que l'isotropie du système paramagnétique est conservée. On s'attend à ce que cela ne soit plus vrai lorsqu'on s'approche de la transition ferromagnétique où apparaissent des effets de saturation.

3. PÔLES DE χ_+ ET CAS LIMITES

Les parties réelles et imaginaires des pôles nous donnent une indication sur la position et la largeur des raies, d'où l'intérêt de résoudre l'équation séculaire; celle-ci est du second degré en ω ; nous avons donc deux pôles qui correspondent aux deux modes du système:

$$\begin{aligned}
 (\varepsilon_i - \omega)(\varepsilon_e - \omega) - \zeta_i \zeta_e &= 0 \\
 \omega^2 - (\varepsilon_i + \varepsilon_e) \omega + \varepsilon_i \varepsilon_e - \zeta_i \zeta_e &= 0 \\
 \omega_{1,2} &= \frac{1}{2} (\varepsilon_i + \varepsilon_e) \pm \frac{1}{2} \sqrt{(\varepsilon_i - \varepsilon_e)^2 + 4\zeta_i \zeta_e}
 \end{aligned}
 \tag{19}$$

CAS PARTICULIER: *Systèmes ioniques et électroniques avec même facteur g_0*

C'est une approximation utile pour les ions S qui ont un facteur g_0 très voisin de 2, et par conséquent de la résonance des électrons libres.

$$\left. \begin{aligned}
 \text{On pose } \omega_0 &= g_0 \mu_B f_z, \quad b = g_0 \mu_B \lambda_{ie} M_z, \quad a = g_0 \mu_B \lambda_{ie} m_z \\
 \text{et } E_i &= a + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) + i\lambda_{ie} \alpha \delta_{ei} \\
 E_e &= b + i(\delta_{ei} + \delta_{eL}) + i\lambda_{ie} \beta \delta_{ie}
 \end{aligned} \right\}
 \tag{20}$$

$$\omega_{1,2} = \omega_0 + \frac{1}{2} (E_i + E_e) \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_i - E_e)^2 + 4(E_i - i\delta_{iL} + i\lambda_{ie} \alpha \delta_{eL}) \cdot (E_e - i\delta_{eL} + i\lambda_{ie} \beta \delta_{iL})}
 \tag{21}$$

Pour les calculs numériques, cette dernière forme se prête bien à l'emploi de grandeurs réduites en divisant tout par ω_0 .

CAS LIMITES: a) *Couplage nul*: $\lambda_{ie} = 0$

On évite des difficultés en admettant que δ_{ie} et $\delta_{ei} \rightarrow 0$

$$\begin{aligned}
 \omega_1 &= \omega_i + i\delta_{iL} \text{ décrit la résonance des ions seuls} \\
 \omega_2 &= \omega_e + i\delta_{eL} \quad \gg \quad \gg \quad \text{électrons} \quad \gg
 \end{aligned}$$

L'interaction λ_{ie} mélange donc les modes des ions et des électrons. Si le couplage est faible, le pôle ω_1 peut être attribué à la résonance des ions perturbée par les électrons de conduction et vice-versa.

b) *Relaxation rapide des électrons de conduction* : $\delta_{eL} = \infty$

Cette situation se présente au moins dans les métaux où la résonance des électrons de conduction n'est pas observée; il n'y a qu'une raie décrite par ω_1 . L'équation séculaire peut s'écrire:

$$\omega_1 = \varepsilon_i - \frac{\zeta_i \zeta_e}{\varepsilon_e - \omega_1}$$

$$\lim_{\delta_{eL} \rightarrow \infty} \omega_1 = \varepsilon_i - \lambda_{ie} \alpha \zeta_i =$$

$$\begin{aligned} &= \omega_i + a + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) - \lambda_{ie} \alpha \left[\frac{g_i}{g_e} b + i \lambda_{ie} \beta (\delta_{ie} + \delta_{iL}) \right] = \\ &= \omega_i \left(1 + \lambda_{ie} \alpha \frac{1 + \lambda_{ie} \beta}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} \right) + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) - \\ &\quad - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta \left[\omega_i \left(1 + \lambda_{ie} \alpha \frac{1 + \lambda_{ie} \beta}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} \right) + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) \right] = \\ &= \left[\omega_i \left(1 + \lambda_{ie} \alpha \frac{1 + \lambda_{ie} \beta}{1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta} \right) + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) \right] (1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta) = \\ &= \omega_i (1 + \lambda_{ie} \alpha) + i(\delta_{ie} + \delta_{iL}) (1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta) \end{aligned}$$

$Re \omega_1 = (1 + \lambda_{ie} \alpha) \omega_i$	$=$ position de la raie de résonance des ions	(22)
$Im \omega_1 = (1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta) (\delta_{ie} + \delta_{iL})$	$=$ largeur » » » » » » »	

Si l'on écrit que la position de la raie est donnée par $(g_i + \Delta g_i) \mu_B f_z$:

$\frac{\Delta g_i}{g_i} = \lambda_{ie} \alpha =$ déplacement relatif	(23)
----------------------------------------------------------------------	------

On retrouve le résultat bien connu du déplacement de raie proportionnel à une constante de couplage et à la susceptibilité statique des électrons de conduction. En comparant avec le résultat (8) de l'introduction, on trouve:

$$\lambda_{ie} = \frac{1}{n_0 g_e g_i \mu_B^2} J \left\{ \begin{array}{l} J = \text{paramètre d'échange} \\ n_0 = \text{nombre de sites réticulaires par unité de volume} \end{array} \right\} \quad (24)$$

On illustre bien la situation physique en calculant directement les limites (22) à partir des équations de Bloch (16). L'équation relative aux électrons se réduit à $\vec{m} = \alpha \vec{h}_0$ si $\delta_{eL} \rightarrow \infty$, et l'équation relatif aux ions donne:

$$\begin{aligned}\dot{\vec{M}} &= -g_i\mu_B \left[\vec{M} \times (\vec{f} + \lambda_{ie}\alpha\vec{f} + \lambda_{ie}^2\alpha\vec{M}) \right] - \\ &\quad - (\delta_{ie} + \delta_{iL}) \left[\vec{M} - \beta(\vec{f} + \lambda_{ie}\alpha\vec{f} + \lambda_{ie}^2\alpha\vec{M}) \right] \\ \dot{\vec{M}} &= -g_i\mu_B(1 + \lambda_{ie}\alpha) (\vec{M} \times \vec{f}) - (\delta_{ie} + \delta_{iL}) (1 - \lambda_{ie}^2\alpha\beta) \left(\vec{M} - \frac{M_z}{f_z} \vec{f} \right)\end{aligned}$$

On voit que le terme $\lambda_{ie}\alpha\vec{M}$, relatif à la polarisation des électrons induite par les ions, ne donne aucune contribution au déplacement de raie, au contraire du terme $\lambda_{ie}\alpha\vec{f}$, relatif à la polarisation induite par le champ extérieur.

A haute température, c'est-à-dire bien au-dessus de la limite ferromagnétique avec $(1 - \lambda_{ie}^2\alpha\beta) \cong 1$, et si $\delta_{iL} = 0$, la largeur de raie est donnée selon (22) par δ_{ie} . Si de plus $\lambda_{ii} = \lambda_{ee} = 0$, nous avons les mêmes hypothèses que dans le calcul de Korringa, et nous pouvons identifier δ_{ie} avec l'élargissement de Korringa (ABRAGAM, 1961, p. 364).

c) *Systèmes ioniques et électroniques isolés du réseau* : $\delta_{iL} = \delta_{eL} = 0$
(extrême « Bottleneck »)

Cas particulier $g_i = g_e = g_0$

Il s'agit d'un cas extrême de l'effet d'étranglement de la relaxation discuté plus loin. On obtient de (21):

$$\begin{aligned}\omega_{1,2} &= \omega_0 + \frac{1}{2}(E_i + E_e) \pm \frac{1}{2}(E_i + E_e) \\ \omega_1 &= \omega_0 + a + b + i(1 + \lambda_{ie}\alpha)\delta_{ei} + i(1 + \lambda_{ie}\beta)\delta_{ie} \\ \omega_2 &= \omega_0\end{aligned}\quad \left. \vphantom{\begin{aligned}\omega_{1,2} \\ \omega_1 \\ \omega_2\end{aligned}} \right\} \quad (25)$$

Les pôles ne peuvent plus être attribués séparément aux ions et aux électrons. On obtient en particulier une résonance sans déplacement ni élargissement décrite par le pôle ω_2 . On peut s'étonner de ce que le pôle ω_1 contienne une partie imaginaire, ce qui correspondrait à première vue à une absorption d'énergie contraire à l'hypothèse, puisque $\delta_{iL} = \delta_{eL} = 0$. En fait le calcul montre que ω_1 est aussi un zéro du numérateur, de sorte que dans l'expression de χ_+ le terme $(\omega - \omega_1)$ apparaissant en haut et en bas peut se simplifier et le dénominateur se réduit à $(\omega - \omega_2)$. On obtient donc une seule résonance sans absorption d'énergie. En effet selon (18) le numérateur est de la forme:

$$\eta_i(\varepsilon_e + \zeta_e - \omega) + \eta_e(\varepsilon_i + \zeta_i - \omega)$$

Avec $g_i = g_e = g_0$ et selon (17):

$$\varepsilon_e + \zeta_e = \omega_0 + b + i(1 + \lambda_{ie}\alpha)\delta_{ei} + a + i(1 + \lambda_{ie}\beta)\delta_{ie} = \omega_1$$

$$\text{et } \varepsilon_i + \zeta_i = \omega_0 + a + i(1 + \lambda_{ie}\beta)\delta_{ie} + b + i(1 + \lambda_{ie}\alpha)\delta_{ei} = \omega_1,$$

donc le numérateur s'annule bien pour $\omega = \omega_1$.

d) *Etranglement de la relaxation* : $\delta_{iL} = 0$, $\delta_{eL} \ll \delta_{ie}$ (« *Bottleneck effect* »)

La condition de relaxation rapide des électrons ($\delta_{eL} = \infty$) n'est pas remplie dans un grand nombre de métaux, particulièrement ceux dans lesquels la résonance des électrons de conduction a pu être observée: Li, Na, K, Rb, Cu, Ag, Be et Al. L'effet d'étranglement a été discuté par HASEGAWA (1959) et mis en évidence de façon frappante par la résonance du Mn^{++} dans le Cu et l'Ag (GOSSARD et al. 1967 et 1968). Hasegawa avait obtenu un élargissement donné par $\frac{T_{ei}}{T_{eL} + T_{ei}} \cdot \frac{1}{T_{ie}}$ où les T sont ici les temps de relaxation inverses à nos δ . Nous pouvons donc écrire:

$$\text{largeur de raie} = \frac{\delta_{eL}}{\delta_{ei} + \delta_{eL}} \delta_{ie} \cong \frac{\delta_{eL}}{\delta_{ei}} \delta_{ie} = \frac{\alpha}{\beta} \delta_{eL} \quad (26)$$

En effet dans un système pas trop dilué $\alpha \ll \beta$ et si d'après l'hypothèse $\delta_{eL} \ll \delta_{ie}$

$$\delta_{eL} \ll \delta_{ie}, \quad \text{on a aussi} \quad \delta_{eL} \ll \delta_{ei} = \frac{\beta}{\alpha} \delta_{ie} \quad (12)$$

L'étranglement de la relaxation a pour effet de diminuer la largeur de raie par rapport à la valeur δ_{ie} que l'on obtient dans le cas de la relaxation rapide des électrons. Nous avons à vérifier si cet effet subsiste dans nos équations, qui sont modifiées par rapport à celles de Hasegawa. Nous limitons la discussion au cas $g_i = g_e$ et nous obtenons de (21):

$$\begin{aligned} \omega_{1,2} &= \omega_0 + \frac{1}{2} (E_i + E_e) \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_i - E_e)^2 + 4(E_i + i\lambda_{ie}\alpha\delta_{eL})(E_e - i\delta_{eL})} = \\ &= \omega_0 + \frac{1}{2} (E_i + E_e) \pm \frac{1}{2} (E_i + E_e) \sqrt{1 - 4i \frac{E_i - \lambda_{ie}\alpha E_e}{(E_i + E_e)^2} \delta_{eL} + 0(\delta_{eL}^2)} \end{aligned}$$

Rappel (20):

$$\begin{aligned} E_i &= a + i(1 + \lambda_{ie}\beta) \delta_{ie} \\ E_e &= b + i(1 + \lambda_{ie}\alpha) \delta_{ei} + i\delta_{eL} \end{aligned}$$

D'après l'hypothèse de départ on a aussi $\delta_{eL} \ll |E_i|$ et $|E_e|$, d'où

$$\omega_2 = \omega_0 + i \frac{E_i - \lambda_{ie}\alpha E_e}{E_i + E_e} \delta_{eL} \quad (27)$$

Le comportement du déplacement et de l'élargissement devrait être étudié numériquement; toutefois on peut faire l'approximation que les parties imaginaires des termes E_i et E_e sont très petites devant les parties réelles, d'où:

$$\omega_2 \cong \omega_0 + i \frac{m_z - \lambda_{ie}\alpha M_z}{m_z + M_z} \delta_{eL}$$

Mais d'après (2) $m_z = \alpha (f_z + \lambda_{ie} M_z)$, d'où:

$$\omega_2 \cong \omega_0 + i \frac{\alpha}{\chi_z} \delta_{eL} \tag{28}$$

On obtient donc un élargissement donné par $\frac{\alpha}{\chi_z} \delta_{eL}$ au lieu de $\frac{\alpha}{\beta} \delta_{eL}$ calculé par Hasegawa (26). Toutefois à haute température dans un système pas trop dilué les quantités χ_z et β sont voisines et se comportent essentiellement comme $1/T$. La différence est cependant marquée au voisinage de la limite ferromagnétique où $\lambda_{ie}^2 \alpha \beta \rightarrow 1$.

Nous tenons à insister sur le fait que lorsque δ_{eL} est très petit, on obtient avec les approximations ci-dessus un élargissement et pas de déplacement, et ceci même pour un couplage fort; en effet nous n'avons fait aucune hypothèse restrictive sur les grandeurs de $\lambda_{ie} \alpha$ et $\lambda_{ie} \beta$. Cette situation pourrait être celle des expériences CuMn avec addition d'impuretés agissant sur le taux δ_{eL} (GOSSARD et al. 1967).

e) *Limite ferromagnétique* : $(1 - \lambda_{ie}^2 \alpha \beta) = 0$

Remarquons que notre modèle n'est pas réaliste, puisqu'à cette limite selon (5) et (6) m_z et M_z tendent vers l'infini. Pour tenir compte de la situation physique réelle, il faut admettre que ces grandeurs se saturent et tendent vers des valeurs limites très grandes; en négligeant les termes de relaxation, on trouve alors (PETER et al. 1967):

$$\begin{aligned} \omega_1 &= a + b + \frac{b}{a + b} \omega_e + \frac{a}{a + b} \omega_1 \\ \omega_2 &= \frac{a}{a + b} \omega_e + \frac{b}{a + b} \omega_i \end{aligned} \tag{29}$$

Là encore si $g_e = g_i$, le numérateur s'annule pour $\omega = \omega_1$ et l'on obtient une résonance sans déplacement.

f) *Effets dynamiques*

Ils seront discutés sur la base d'un calcul numérique dans le chapitre suivant. Ils ne se prêtent pas à une mise en évidence par un calcul de limite, car ils se rapportent à un cas intermédiaire entre δ_{eL} très petit (« bottleneck effect ») et δ_{eL} très grand (relaxation rapide).

RÉFÉRENCES

- ABRAGAM, A. « Principes du magnétisme nucléaire », *Presses Universitaires de France*, Paris (1961).
- COTTET, H., P. DONZÉ, J. DUPRAZ, B. GIOVANNINI, and M. PETER. *Z. angew. Physik* 24, 249 (1968).
- GIOVANNINI, B. *Phys. Letters* 26A, 80 (1967).
- *Helv. Phys. Acta* 41, 151 (1968).
- M. PETER, and S. KOIDÉ. *Phys. Rev.* 149, 251 (1966).
- GOSSARD, A. C., A. J. HEEGER, and J. H. WERNICK. *J. Appl. Phys.* 38, 1251 (1967).
- T. Y. KOMETANI, and J. H. WERNICK. *J. Appl. Phys.* 39, 849 (1968).
- HASEGAWA, H. *Progr. Theor. Phys.* (Kyoto) 21, 483 (1959).
- KITTEL, C. and A. H. MITCHELL. *Phys. Rev.* 101, 1611 (1956).
- LANDAU, L. D. and E. M. LIFSHITZ. *Phys. Z. Soviet Union* 8, 153 (1935), voir aussi p. 101 de « Collected Papers of L. D. Landau ». edited by D. ter Haar, Pergamon Press (1965).
- OVERHAUSER, A. W. *Phys. Rev.* 89, 689 (1953).
- OWEN, J., M. E. BROWNE, V. ARP, and A. F. KIP. *J. Phys. Chem. Solids* 2, 85 (1957).
- PETER, M., J. DUPRAZ, and H. COTTET. *Helv. Phys. Acta* 40, 301 (1967).
- D. SHALTIEL, J. H. WERNICK, H. J. WILLIAMS, J. B. MOCK, and R. C. SHERWOOD. *Phys. Rev.* 126, 1395 (1962).
- SHALTIEL, D., J. H. WERNICK, H. J. WILLIAMS, and M. PETER. *Phys. Rev.* 135, A1346 (1964).
- VONSOVSKII, S. V. (editor). « Ferromagnetic Resonance ». *Pergamon Press*, Oxford (1966).
- WANGSNESS, R. K. *Phys. Rev.* 91, 1085 (1953).
- WANGSNESS, R. K. *Phys. Rev.* 111, 813 (1958).