

T H E S E S

présentées à la

Faculté des Sciences de l'Université de Grenoble

pour obtenir le grade de Docteur-Ingénieur

par

Wolfgang J. R. Hoefer

Ingénieur diplômé de la
TECHNISCHE HOCHSCHULE DE AACHEN

Deuxième sujet :

LA RESONANCE ANTIFERROMAGNETIQUE - THEORIE ET PRATIQUE -

25 Juin 1968

TABLE DES MATIERES

	Page
INTRODUCTION	1
Chapitre I	
PROPRIETES MAGNETIQUES ET STRUCTURES DES MATERIAUX ANTIFERROMAGNETIQUES.	2
I.1 - Généralités	2
I.2 - Structures antiferromagnétiques	5
Chapitre II	
THEORIE DE LA RESONANCE ANTIFERROMAGNETIQUE	10
II.1 - Dynamique de systèmes antiferromagnétiques simples.	10
II.2 - Oscillations forcées et susceptibilité hyperfréquence.	14
II.3 - Influence des facteurs démagnétisants	16
II.4 - Le champ externe est appliqué à un angle arbitraire avec l'axe cristallin préféré.	17
II.5 - Introduction phénoménologique des pertes.	18
Chapitre III	
METHODES D'OBSERVATION ET DE MESURE DE LA RESONANCE ANTIFERROMAGNETIQUE.	19
III.1 - Spectromètre 24-90 GHz à champs pulsés	21
III.2 - Interprétation des résultats	25
CONCLUSION	29
BIBLIOGRAPHIE	30

INTRODUCTION

La théorie de la résonance antiferromagnétique fut indépendamment développé par KITTEL et NAGAMIYA en 1951. La première observation de ce phénomène, en 1951, est due à POULIS, VAN DEN HANDEL, UBBINK et GORTER, qui trouvèrent une résonance dans CuCl_2 puisque la résonance antiferromagnétique intervient à des fréquences correspondant à des longueurs d'ondes entre quelques centimètres jusqu'à un dixième de millimètre, les techniques de mesure et d'observation suivaient l'évolution des équipements à ces fréquences. En 1957, FONER, en utilisant des ondes millimétriques et de forts champs magnétiques pulsés, détermina le champ interne critique dans MnF_2 et CrO_3 . HELLER, STICKLER et THAXTER observèrent, en 1961, les deux modes de la résonance antiferromagnétique dans Cr_2O_3 à l'aide d'un spectromètre 2 mm. Egalement, en 1961, OHLMANN et TINKHAM étudièrent la résonance antiferromagnétique dans FeF_2 qui intervient à 1580 GHz. Ceci correspond à une longueur d'onde de 190 μ .

Depuis lors, une vaste gamme de matériaux antiferromagnétiques fut découverte et étudiée, et les méthodes de mesure ont considérablement évolué. Dans ce travail, nous voulons d'abord résumer les propriétés magnétiques générales des matériaux antiferromagnétiques et, ensuite, donner un abrégé de la résonance d'un système uniaxial à deux sousréseaux.

Le chapitre suivant contient la description d'un spectromètre à champs pulsés assez perfectionné, mis au point par BATE et MOTOKAWA. Le travail se termine par une considération des résultats des expériences de résonance et de leur interprétation.

I - PROPRIETES MAGNETIQUES ET STRUCTURES

DES MATERIAUX ANTIFERROMAGNETIQUES

I.1 - GENERALITES

Il y a quelques dizaines d'années, on classait le comportement magnétique des matériaux en trois groupes. Selon qu'ils affaiblissaient ou renforçaient un champ magnétique appliqué, ils étaient dia ou paramagnétiques. Le troisième groupe, dit les ferromagnétiques, contenaient tous les matériaux qui, en sus de l'amplification du champ, gardaient une aimantation rémanente, dont l'intensité dépendait de la composition et de la structure de la substance. Il était connu aussi qu'au-dessus d'une température bien précise et propre à chaque matériau, la température de CURIE T_C , cette rémanence disparaissait et que le matériau devenait paramagnétique.

A l'aide des théories du magnétisme développées par CURIE et WEISS, on ne pouvait cependant pas expliquer le fait qu'au-dessous de la température de CURIE la susceptibilité de certains oxydes et cristaux de sels décroissait au lieu de s'accroître en conséquence d'un alignement spontané des dipôles élémentaires, comme dans le cas des ferromagnétiques. NEEL (1) donnait l'explication de ce phénomène en montrant qu'au-dessous de la température de CURIE, il peut y avoir formation de sous-réseaux magnétiques dont les dipôles efficaces sont alignés dans des directions opposées, se compensant ainsi mutuellement. Il a proposé le nom "ANTIFERROMAGNETISME" pour ce comportement. Le phénomène de l'antiferromagnétisme non compensé, à la suite d'une aimantation différente des sous-réseaux, a reçu le nom "FERRIMAGNETISME" d'après les ferrites, dont le comportement est assez ressemblant au ferromagnétisme, sauf qu'au-dessus de la température de CURIE, depuis lors appelée température de NEEL dans le cas de l'antiferromagnétisme et du ferrimagnétisme, la susceptibilité n'obéit pas à la loi de CURIE-WEISS.

Les différents types de magnétisme se distinguent phénoménologiquement par l'allure de la susceptibilité en fonction de la température (voir figure 1).

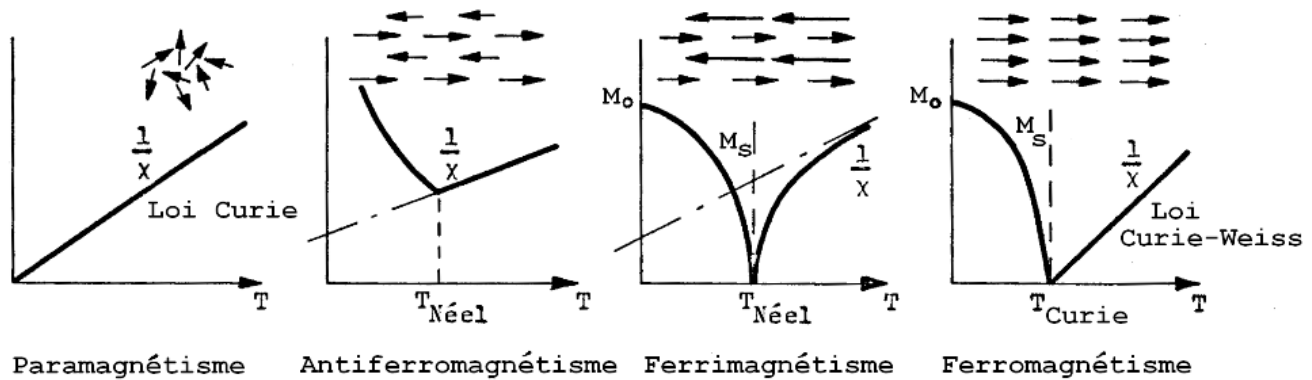


Figure 1 - Valeur réciproque de la susceptibilité et aimantation de saturation en fonction de la température pour différents types de magnétisme.

Les différences résident naturellement dans la structure des matériaux. Le facteur déterminant l'état d'ordre dans un réseau cristallin est l'intégrale d'échange. La mécanique ondulatoire ne décrit plus les atomes à l'aide d'orbites discrètes mais par une série de fonctions propres, dont le carré est proportionnel à la probabilité avec laquelle les électrons se trouvent à un point de l'espace. Si deux ou plusieurs atomes sont très près l'un de l'autre, ces fonctions se superposent, et on peut dire que les électrons extérieurs perdent leur appartenance univoque à un noyau individuel. Ces électrons changent de noyau en oscillant entre ceux-ci avec une fréquence ν à laquelle correspond, suivant les règles de la mécanique quantique, une énergie d'échange $h\nu$. Cette énergie se calcule à l'aide de l'intégrale d'échange I_e .

D'après HEISENBERG on peut distinguer les trois cas suivants:

$\frac{I_e}{kT} \gg 1$ Alignement parallèle des spins : Ferromagnétisme.

$-1 < \frac{I_e}{kT} < 1$ Répartition aléatoire des spins : Paramagnétisme.

$\frac{I_e}{kT} \ll -1$ Alignement antiparallèle des spins :
Antiferromagnétisme, Ferrimagnétisme.

L'intégrale d'échange entre les ions magnétiques dans un matériau antiferromagnétique est alors négatif. Ceci est dû à l'emplacement d'anions non magnétiques entre eux. Ainsi, l'interaction directe entre les cations tendant à aligner leurs moments magnétiques est négligeable vis-à-vis de l'interaction opposée de SURECHANGE par l'intermédiaire des anions dans les interstices.

Les forces d'échange et de suréchange peuvent être représentées par des champs magnétiques dits d'échange H_E . Un autre champ interne, le champ d'anisotropie H_A , tend à diriger les spins, déjà alignés par le champ d'échange, dans certaines directions par rapport aux axes cristallins. De ce fait, la susceptibilité d'un monocristal antiferromagnétique sera différente suivant la direction du champ appliqué. En effet, la susceptibilité, $\chi_{\perp}$ présentée à un champ appliqué perpendiculairement à la direction de l'alignement uniforme, dépend presque uniquement de la force des champs moléculaires et elle est constante au-dessous de la température de NEEL. Par contre, le champ externe étant appliqué dans la direction de l'axe cristallin préféré, la susceptibilité $\chi_{\parallel}$ est nulle au zéro absolu et augmente en fonction de la température jusqu'au point de NEEL, à partir duquel le cristal est magnétiquement isotrope.

Enfin, VAN VLECK ⁽²⁾ a montré que la susceptibilité d'un échantillon polycristallin (ou susceptibilité de poudre), dont les cristallites sont orientés d'une façon aléatoire, se calcule comme :

$$(I.1) \quad \chi_p = \frac{2}{3} \chi_{\perp} + \frac{1}{3} \chi_{\parallel}$$

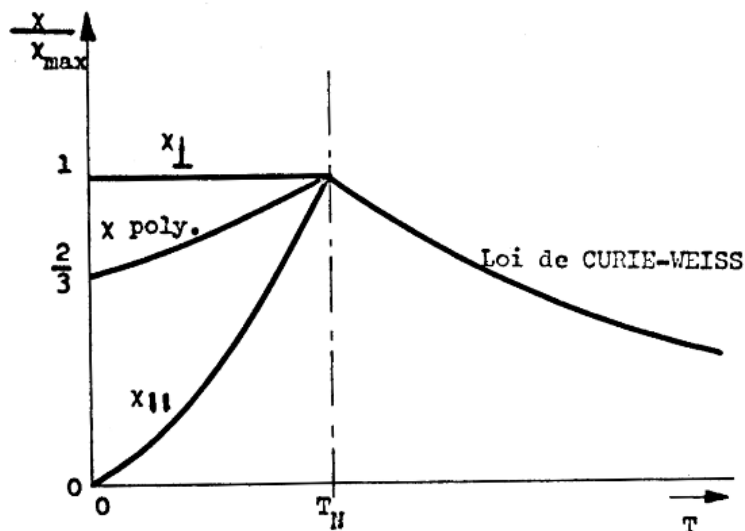


Figure 2 - Susceptibilité d'un matériau antiferromagnétique en fonction de la température.

$\chi_{\perp}$ et $\chi_{\parallel}$: monocristal

χ_p : polycristal ou poudre

I.2 - STRUCTURES ANTIFERROMAGNETIQUES

Parmi le grand nombre de matériaux antiferromagnétiques, nous voulons présenter quelques différents exemples, qui ont attiré particulièrement l'intérêt des chercheurs. Nous voulons nous intéresser avant tout à l'arrangement des dipôles magnétiques dans les réseaux cristallins. Ceux-ci ont été étudiés par diffraction de rayons X et de neutrons, mais également par des expériences de résonance antiferromagnétique.

I.1.1 - Arrangements cubiques

On connaît 16 différentes structures cubiques antiferromagnétiques, dont les schémas sont présentés dans le livre de GOODENOUGH ⁽³⁾. Nous voulons montrer ici l'exemple des oxydes des métaux de transition qui possèdent la configuration du sel de cuisine. L'arrangement des ions est montré figure 3. L'axe magnétique préféré est la diagonale principale de la cellule cubique (111)

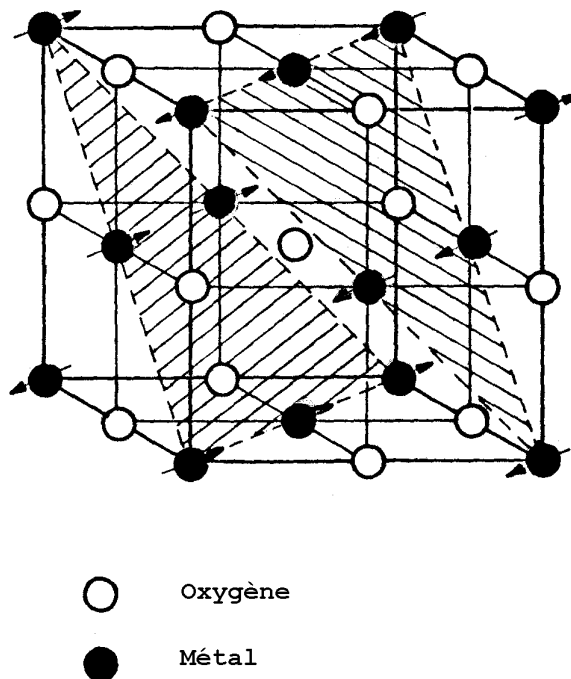


Figure 3 - Structure antiferromagnétique cubique de M_2O .
 On aperçoit l'orientation des deux sous-réseaux opposés.
 Les flèches montrent la direction des spins.
 (D'après LAX et BUTTON ¹⁴⁾)

Matériau	T_{NEEL}
Mn O	116° K
Fe O	198° K
Co O	271° K
Ni O	520° K

Table 1 - Température de NEEL des oxydes antiferromagnétiques des métaux de transition.

I.2.2 - Arrangements orthorhombiques

Comme représentant de ce type, nous montrons le ferrite bicalcique $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$, étudié par BERTAUT et al. ⁽⁵⁾, ⁽⁶⁾. On voit sur la figure 4, représentant une cellule élémentaire, que les sous-réseaux magnétiques Fe_I et Fe_{II} sont antiferromagnétiques chacun en soi-même et l'un par rapport à l'autre. TAKEDA et al. ⁽⁷⁾ qui ont étudié les propriétés magnétiques de cette substance, donnent une température de NEEL de 720° K.

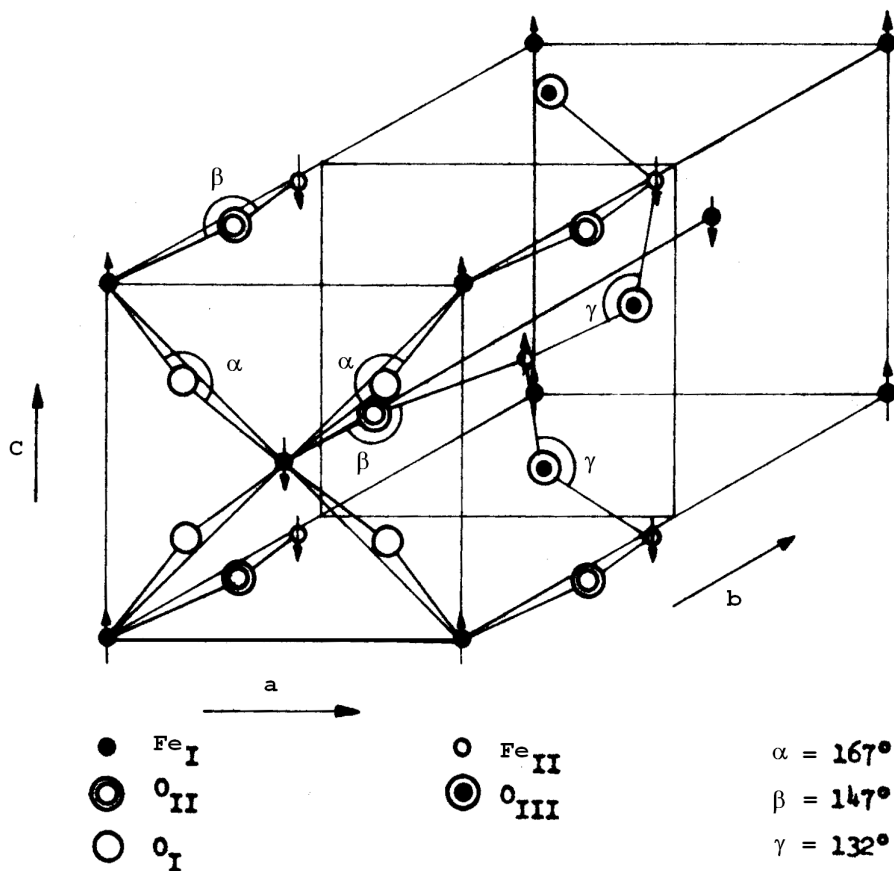


Figure 4 - Structure cristalline et magnétique de $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$ d'après TAKEDA et al. ⁽⁷⁾. Les flèches indiquent la direction des spins.

I.2.3 - Arrangements monocliniques

Les cristaux de chlorure de nickel et de cobalt hydraté sont antiferromagnétiques à très faibles températures. La structure monoclinique de $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ($T_N = 5,34^\circ \text{K}$) est montrée figure 5.a. Chaque cellule élémentaire contient deux ions de Ni^{2+} ; autour de chacun de ces ions se groupent deux ions de Cl^- et quatre molécules de H_2O formant un octaèdre légèrement incliné par rapport au plan ac (figure 5 b). Dans la figure 5 c, la position des différents axes importants dans le plan ac est indiqué. En plus, des axes principaux a et c , on aperçoit les axes a' , a'' et c'' . Au cours des premières études de ce matériau, on avait conclu que les spins étaient orientés suivant la direction a' , mais les expériences de DATE et MOTOKAWA (⁸) (voir aussi page 28) ont montré qu'en réalité l'axe d'aimantation préféré était a'' , faisant un angle de 25° environ avec a' . La direction c'' indique l'axe magnétique le plus difficile (voir aussi la figure 18).

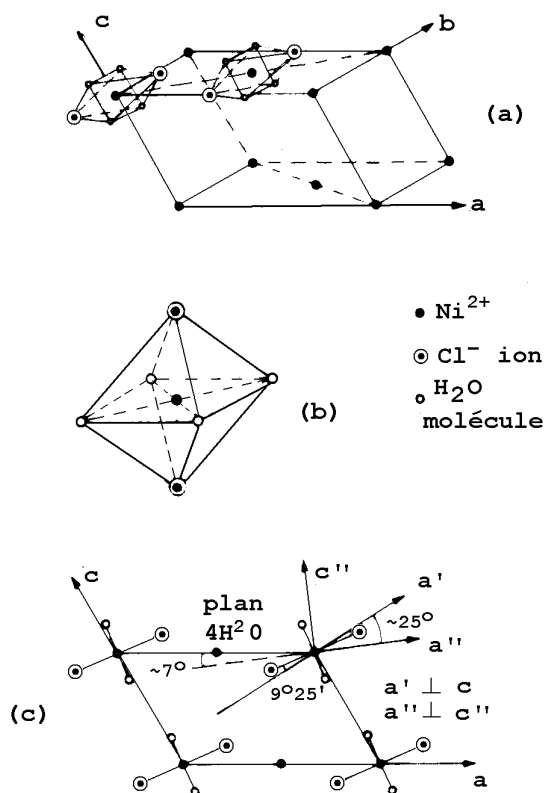


Figure 5 - Structure cristalline de $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$

- Cellule élémentaire monoclinique (deux molécules libres de H_2O ne sont pas dessinés).
- Structure d'un octaèdre;
- Relations angulaires entre les axes dans le plan ac (D'après DATE et MOTOKAWA (⁸)).

I.2.4 - Arrangements hexagonaux

Comme représentants de ce groupe, nous voulons citer les ilménites MeTiO_3 , où $\text{Me} = \text{Ni}, \text{Co}, \text{Fe}, \text{Mu}$. Ces matériaux possèdent un réseau cristallin rhomboédrique, dans lequel les ions métalliques forment un arrangement hexagonal. Théoriquement, les trois différentes structures figure 6a, b et c sont possibles. Par simplicité, les ions de Ti et O sont omises. Les spins sont alignés sur l'axe c sauf pour NiTiO_3 dont les dipôles sont dirigés perpendiculairement à cet axe.

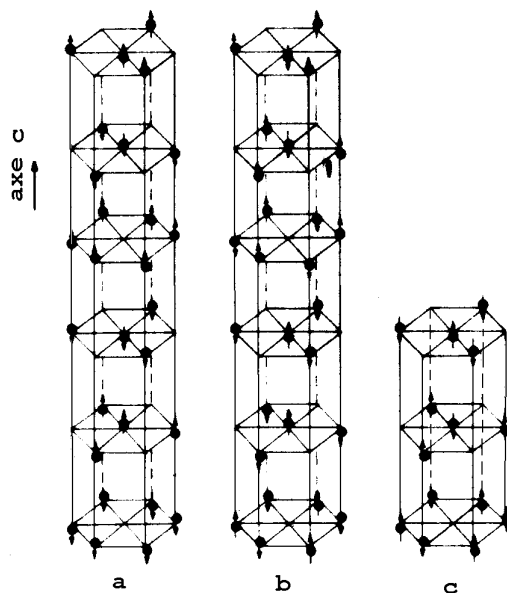


Figure 6 - Trois structures magnétiques possibles pour les ilménites MeTiO_3 (seulement les ions magnétiques Me sont dessinés. Les flèches indiquent la direction des spins). D'après SHIRANE et al. ⁽⁹⁾, ⁽¹⁰⁾; ISHIKAWA Y. et AKIMOTO ⁽¹¹⁾, ⁽¹²⁾.

Matériau	Structure	T_N 8
Ni Ti O ₃	a	23° K
Co Ti O ₃	a	38° K
Fe Ti O ₃	a	56° K
Mu Ti O ₃	c	41° K

Table 2 - Structure (voir figure 6) et température de NEEL des différents ilménites.

I.2.5 - Arrangements hélicoïdaux

Dans certains matériaux, la superposition de multiples interactions peut causer un faible angle entre deux plans d'aimantation voisins. Ceci conduit à une configuration hélicoïdale comme celle représentée schématiquement figure 7 pour un cristal de magnétoplumbite. Le même phénomène se produit dans le matériau Ferroxlana, étudié par JONKER, WIJN et BRAUN (13). Dans une publication plus récente, ELLISTON et TROUP (15) présentent des expériences de résonance antiferromagnétique dans le chrysoberyl du chrome Cr_2BeO_4 orthorhombique, dans lequel ils considèrent également la possibilité d'une structure hélicoïdale des spins.

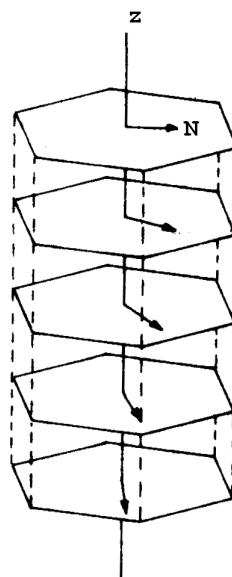


Figure 7 - Configuration hélicoïdale des spins dans un cristal de magnétoplumbite. Les flèches indiquent l'aimantation globale dans les différents plans hexagonaux (D'après ENZ (14)).

II. THEORIE DE LA RESONANCE ANTIFERROMAGNETIQUE

II.1 - DYNAMIQUE DE SYSTEMES ANTIFERROMAGNETIQUES SIMPLES

La résonance antiferromagnétique résulte, comme toute résonance gyromagnétique, du couplage strict entre le moment magnétique et le moment mécanique de spin des électrons. Dans la représentation classique, qui est suffisante pour la plupart des applications, les spins effectuent un mouvement de précession autour d'un champ magnétique continu. La fréquence de précession est proportionnelle à ce champ.

Considérons deux sous-réseaux identiques, comme ceux des oxydes dont la structure est représentée figure 3. Les aimantations des réseaux, $\vec{M}_1$ et $\vec{M}_2$ respectivement, sont dirigées dans des directions opposées, si aucun champ externe n'est appliqué, et elles ont le même module à $T = 0^\circ \text{ K}$. Chacun des réseaux est soumis à deux champs moléculaires, le champ d'échange $\vec{H}_E$ et le champ d'anisotropie $\vec{H}_A$. Les champs d'échange agissant sur $\vec{M}_1$ et $\vec{M}_2$ sont donnés par $\vec{H}_{E1} = -\lambda \vec{M}_2$ et $\vec{H}_{E2} = -\lambda \vec{M}_1$, où λ est la constante du champ d'échange moléculaire.

Le champ d'anisotropie $\vec{H}_A$ détermine essentiellement la direction de l'alignement par rapport aux axes cristallins. Dans le cas simple d'un cristal uniaxial, les champs $\vec{H}_{A1}$ et $\vec{H}_{A2}$ sont dirigés dans la direction d'équilibre de $\vec{M}_1$ et $\vec{M}_2$.

Les susceptibilités $\chi_{||}$ et $\chi_{\perp}$, déjà mentionnées dans le chapitre I.1 sont également de grande importance. La susceptibilité perpendiculaire $\chi_{\perp}$ est reliée à la constante d'échange λ par

$$(II.1) \quad \chi_{\perp} = \frac{1}{\lambda}$$

et ne dépend pas de la température entre 0° K et T_N , pendant que $\chi_{||}$ augmente avec la température.

Sous la condition qu'un champ externe H_{ext} soit appliqué dans la direction z qui coïncide avec la direction magnétique préférée d'un cristal uniaxial (figure 8), les équations du mouvement des deux sous-réseaux sont :

$$(II.2) \quad \frac{d\vec{M}_1}{dt} = \gamma \cdot \vec{M}_1 \times (\vec{H}_{E_1} + \vec{H}_{A_1} + \vec{H}_{\text{ext}})$$

$$\frac{d\vec{M}_2}{dt} = \gamma \cdot \vec{M}_2 \times (\vec{H}_{E_2} + \vec{H}_{A_2} + \vec{H}_{\text{ext}})$$

Habituellement, on décompose le vecteur aimantation en une composante purement alternative dans le plan perpendiculaire à l'axe z et une composante continue dans la direction de z :

$$(II.3) \quad \begin{aligned} \vec{M}_1 &= \vec{m}_1 + \vec{k} \cdot M_{1z} \\ \vec{M}_2 &= \vec{m}_2 - \vec{k} \cdot M_{2z} \end{aligned}$$

$\vec{k}$ est le vecteur unité dans la direction $+z$. Avec les notions précédentes, nous obtenons :

$$\frac{d\vec{m}_1}{dt} + \vec{k} \frac{dM_{1z}}{dt} = \gamma (\vec{m}_1 + \vec{k} M_{1z}) \times (-\lambda \vec{m}_2 + \vec{k} (\lambda M_{2z} + H_{A_1} + H_{\text{ext}})) \quad (II.4)$$

$$\frac{d\vec{m}_2}{dt} - \vec{k} \frac{dM_{2z}}{dt} = \gamma (\vec{m}_2 - \vec{k} M_{2z}) \times (-\lambda \vec{m}_1 - \vec{k} (\lambda M_{1z} + H_{A_2} - H_{\text{ext}}))$$

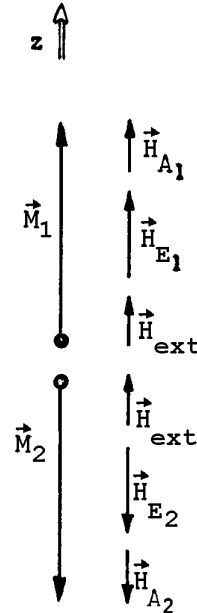


Figure 8 - Aimantations et champs magnétiques dans un matériau antiferromagnétique uniaxial à deux sous-réseaux $T = 0^\circ \text{ K}$.

En supposant que $\vec{m}_1$ et $\vec{m}_2$ sont de la forme $\vec{m} \exp j\omega t$ et que l'angle de précession reste faible (théorie linéaire), ces expressions se réduisent :

$$\frac{j \omega \vec{m}_1}{\gamma} = (\vec{m}_1 \times \vec{k}) (\lambda M_{2z} + H_{A1} + H_{\text{ext}}) + (\vec{m}_2 \times \vec{k}) \cdot \lambda M_{1z}$$

$$\frac{j \omega \vec{m}_2}{\gamma} = -(\vec{m}_2 \times \vec{k}) (\lambda M_{1z} + H_{A2} - H_{\text{ext}}) - (\vec{m}_1 \times \vec{k}) \cdot \lambda M_{2z}$$
(II.5)

Ces expressions sont en réalité quatre équations avec les quatre inconnues m_{1x} , m_{1y} , m_{2x} , et m_{2y} . En posant la déterminante de ces équations égale à zéro, on obtient la condition pour les fréquences de résonance.

$$(\lambda M_{2z} + H_{A1} + H_{\text{ext}} \pm \frac{\omega}{\gamma}) (\lambda M_{1z} + H_{A2} - H_{\text{ext}} \mp \frac{\omega}{\gamma}) - \lambda^2 M_{1z} M_{2z} = 0 \quad (\text{II.6})$$

A 0° K, où les champs internes sont identiques pour les deux sous-réseaux, nous pouvons écrire en cas de faibles angles de précession :

$$M_{1z} = M_{2z} = M ; \quad \lambda M = H_E ; \quad H_{A1} = H_{A2} = H_A$$

et les fréquences de résonance sont données par :

$$\omega_1 = \gamma \left((2H_E H_A + H_A^2)^{1/2} \pm H_{\text{ext}} \right) \quad (\text{II.7})$$

Dans bien des cas, H_A est beaucoup plus faible que H_E , ce qui permet d'écrire :

$$\omega_1 \approx \gamma \left((2H_E H_A)^{1/2} \pm H_{\text{ext}} \right) \quad (\text{II.8})$$

Les équations originales de mouvement sont valables seulement dans les cas où le champ externe H_{ext} est plus faible que la valeur de la racine, que nous voulons appeler le champ critique H_c :

$$H_{\text{ext}} < (2H_E H_A + H_A^2)^{1/2} = H_c \quad (\text{II.9})$$

Si le champ extérieur dépasse cette valeur, les spins s'alignent brusquement dans une direction perpendiculaire à celui-ci, parce que leur énergie potentielle est plus faible dans cette position. Ce phénomène est appelé "spin-flop", et il est évident que, dans ce cas, le calcul présenté ci-dessus n'est plus valable.

Les fréquences de résonance antiferromagnétique, exprimées plus simplement par

$$(II.10) \quad \omega^{\pm} = \gamma(H_c \pm H_{ext}),$$

semblent être celles d'un matériau ferromagnétique polarisé par un champ H_c , seulement l'addition d'un deuxième champ H_{ext} provoque une division en deux fréquences, symétriques à la fréquence pour un champ externe zéro, l'une correspondant à la somme, l'autre à la différence des deux champs. La figure 9 montre les deux fréquences propres en fonction du champ appliqué. En même temps, le sens de rotation des spins est indiqué.

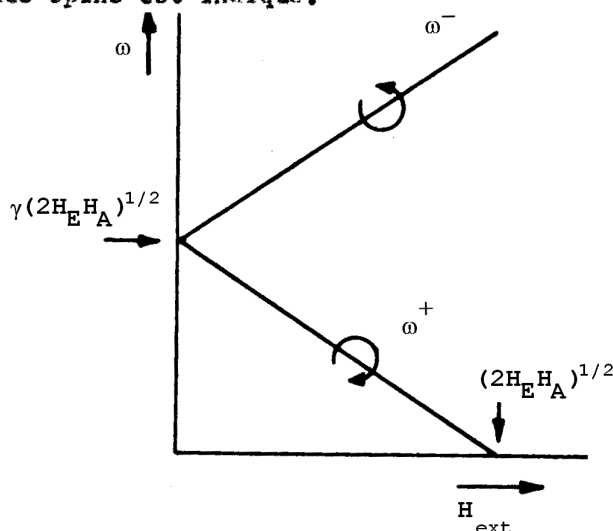


Figure 9 - Fréquences de résonance antiferromagnétique en fonction du champs appliqué (D'après HELLER, STICKLER and THAXTER⁽¹⁶⁾)

Pour les températures supérieures à 0° K jusqu'à la température de NEEL, les fréquences propres d'un matériau antiferromagnétique sont données par l'expression :

$$(II.11) \quad \omega_{\pm} = \gamma \left((2H_E H_A + (\alpha \cdot H_{ext}/2)^2)^{1/2} \pm H_{ext} \left(1 - \frac{\alpha}{2}\right) \right)$$

où α est le rapport des deux susceptibilités

$$(II.12) \quad \alpha = \frac{\chi_{11}}{\chi_{\perp}}$$

et χ_{11} contient l'influence de la température comme déjà dit.

II.2 - OSCILLATIONS FORCÉES ET SUSCEPTIBILITE HYPERFREQUENCE

Si un champ hyperfréquence $h e^{j\omega t}$ est appliqué perpendiculairement à l'axe z , il faut l'additionner aux champs effectifs agissant sur les deux sous-réseaux. Avec les substitutions

$$\begin{aligned} m_1^{\pm} &= m_{1x} \pm j m_{1y} \\ (II.13) \quad m_2^{\pm} &= m_{2x} \pm j m_{2y} \\ h^{\pm} &= h_x \pm j h_y \end{aligned}$$

les équations de mouvement deviennent :

$$\begin{aligned} (H_E + H_A + H_{ext} \pm \frac{\omega}{\gamma}) m_1^{\pm} + \lambda M_1 m_2^{\pm} &= M_1 h^{\pm} \\ (II.14) \quad \lambda M_2 m_1^{\pm} + (H_E + H_A - H_{ext} \pm \frac{\omega}{\gamma}) m_2^{\pm} &= M_2 h^{\pm} \end{aligned}$$

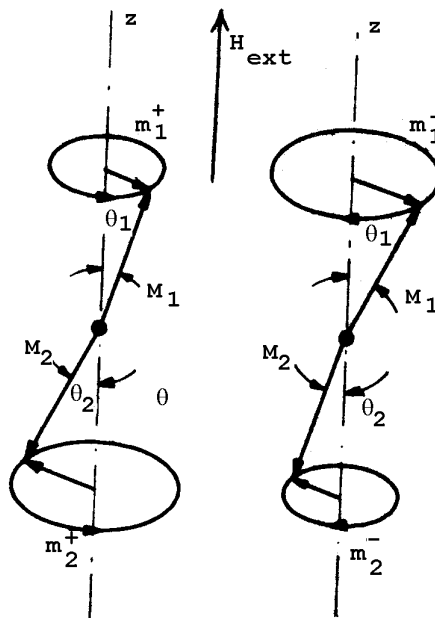
Les solutions, pour une température près du zéro absolu, sont :

$$\begin{aligned} m_1^{\pm} &= \frac{H_A - (H_{ext} \pm \frac{\omega}{\gamma})}{H_C^2 - (H_{ext} \pm \frac{\omega}{\gamma})^2} M_0 h^{\pm} \\ (II.15) \quad m_2^{\pm} &= \frac{H_A + (H_{ext} \pm \frac{\omega}{\gamma})}{H_C^2 - (H_{ext} \pm \frac{\omega}{\gamma})^2} M_0 h^{\pm} \end{aligned}$$

Puisque $m_1^{\pm}$ et $m_2^{\pm}$ sont proportionnels à $h^{\pm}$, il est évident que $m_1^{\pm}$ et $m_2^{\pm}$ possèdent une polarisation elliptique et tournent dans le même sens que $h^{\pm}$. A la résonance, le rapport entre les deux aimantations alternatives est :

$$(II.16) \quad \frac{m_1^{\pm}}{m_2^{\pm}} = - \frac{H_C \mp H_A}{H_C \pm H_A}$$

Du fait que H_A est toujours plus petit que H_C , $m_1^{\pm}$ et $m_2^{\pm}$ sont pratiquement dirigés dans des sens opposés. La figure 10 montre schématiquement la configuration des aimantations des deux sous-réseaux pour les fréquences de résonance.



$$\omega^+ = \gamma \sqrt{2H_E H_A - H_{\text{ext}}^2} ; \quad \omega^- = \gamma (\sqrt{2H_E H_A} + H_{\text{ext}})$$

Figure 10 - Modes de précession d'un cristal antiferromagnétique uniaxial. (D'après HELLER, STICKLER and THAXTER (16)).

On peut interpréter les deux modes de précession comme oscillations propres d'un système de deux résonateurs couplés et désaccordés, puisque les sous-réseaux, à cause du champ externe, sont exposés à différents champs magnétiques. Le sous-réseau, dont la fréquence propre est la plus près de la fréquence excitante, oscille avec le plus grand angle de précession.

Si le champ externe est zéro, l'oscillation propre peut se produire indifféremment dans les deux sens, c'est-à-dire elle est dégénérée. En cas de champ externe, cette dégénérescence est levée, et le sens de rotation est déterminé par le sous-réseau oscillant avec le plus grand angle de précession.

Pour chacune des configurations, on peut définir une susceptibilité :

$$(II.17) \quad \chi^\pm = \frac{m_1^\pm + m_2^\pm}{h^\pm} = \frac{2H_A M}{H_c^2 - (H_{\text{ext}} \pm \frac{\omega}{\gamma})^2}$$

Le tenseur de susceptibilité antiferromagnétique est comparable à celui d'un ferrite et donné par :

$$(II.18) \quad \chi = \begin{bmatrix} \chi & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \chi & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$\text{avec} \quad \chi = (\chi^+ + \chi^-)/2$$

$$(II.19) \quad \kappa = (\chi^+ - \chi^-)/2$$

II.3 - INFLUENCE DES FACTEURS DEMAGNETISANTS

On peut généraliser les expressions pour la résonance antiferromagnétique en introduisant les facteurs démagnétisants dans les équations de mouvement de l'aimantation. Toujours sous la condition que $T = 0^\circ \text{ K}$ et $M_1 = M_2$, on obtient pour les fréquences de résonance :

$$(II.20) \quad \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{\text{ext}}^2 + H_A^2 + H_A H_E (2 + (N_x + N_y) x_{\perp})$$

$$\pm \left\{ 4 H_{\text{ext}}^2 H_A^2 + 4 H_{\text{ext}}^2 H_A H_E (2 + (N_x + N_y) x_{\perp}) + H_A^2 H_E^2 (N_x - N_y)^2 x_{\perp}^2 \right\}^{1/2}$$

Si aucun champ n'est appliqué, cette expression se simplifie :

$$(II.21) \quad \omega^{\pm} = \pm \gamma (2 H_A H_E (1 + N_x x_{\perp}))^{1/2}$$

$$\omega^{\pm} = \pm \gamma (2 H_A H_E (1 + N_y x_{\perp}))^{1/2}$$

Ceci veut dire que, pour $N_x \neq N_y$, on obtient deux paires de fréquences de résonance, si l'on rend compte des facteurs démagnétisants. En pratique, on ne peut séparer les deux paires que dans des matériaux à très faible température de NEEL ($T_N \neq 1^\circ \text{ K}$) et l'effet consiste normalement en un faible élargissement des raies originales.

De toute façon, les échantillons ayant habituellement une forme cylindrique ou sphérique ($N_x = N_y = N_t$), les deux expressions (II.21) deviennent identiques, et nous pouvons simplifier l'équation (II.20) afin d'obtenir l'expression générale pour les fréquences de résonance d'un échantillon de révolution :

$$(II.22) \quad \left(\frac{\omega^\pm}{\gamma} \right)^2 = H_{\text{ext}}^2 + H_A^2 + 2H_A H_E (1 + N_t \chi_\perp) \pm 2H_{\text{ext}} \times (H_A^2 + 2H_A H_E (1 + N_t \chi_\perp))^{1/2}$$

II.4 - LE CHAMP EXTERNE EST APPLIQUE A UN ANGLE ARBITRAIRE AVEC L'AXE CRISTALLIN PREFERE.

Nous ne voulons considérer ici que le cas où les champs externe et d'anisotropie sont très petits par rapport aux champs d'échange et critique.

$$H_{\text{ext}} \ll (2H_A H_E)^{1/2} \quad \text{et} \quad H_A \ll H_E$$

Si θ est l'angle entre l'axe cristallin préféré et le champ appliqué, on obtient :

$$(II.23) \quad \left(\frac{\omega^\pm}{\gamma} \right)^2 = 2H_A H_E + \frac{1}{2} H_{\text{ext}}^2 (1 + (1 + \alpha) \cos^2 \theta) \pm \frac{1}{2} H_{\text{ext}} (8H_A H_E (2 - \alpha) \cos^2 \theta + H_{\text{ext}}^2 (\sin^4 \theta + \cos^2 \theta (2 - \alpha)(2 \sin^2 \theta + \alpha \cos^2 \theta)))^{1/2}$$

Dans cette équation, l'influence de la température est incluse dans le coefficient $\alpha = \chi_{11} / \chi_\perp$.

Considérons encore un cas particulièrement intéressant, où $\theta=90^\circ$.

Dans ce cas, les fréquences de résonance sont :

$$(II.24) \quad \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = 2H_E H_A + H_A^2 + \frac{1}{2} H_{ext}^2 \pm \frac{H_E + H_A}{2H_E} H_{ext}^2$$

Ceci se simplifie pour $H_A \ll H_E$

$$(II.25) \quad \omega^\pm \approx \pm \gamma (2H_E H_A + H_{ext}^2)^{1/2} \approx \pm \gamma (2H_E H_A)^{1/2} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{H_{ext}^2}{2H_E H_A}\right)$$

et

$$(II.26) \quad \omega^\pm \approx \pm \gamma (2H_E H_A)^{1/2}$$

On obtient alors deux différentes oscillations propres dégénérées. Le premier de ces modes peut être excité avec un champ hyperfréquence perpendiculaire à H_{ext} , pendant que le deuxième mode demande une excitation dans la direction de H_{ext} . Il correspond d'ailleurs au mode normal avec un champ externe zéro (voir équation II.8).

II.5 - INTRODUCTION PHENOMENOLOGIQUE DES PERTES

En analogie à la résonance ferromagnétique, on introduit les pertes en ajoutant, dans les équations du mouvement de l'aimantation de chaque sous-réseau, un terme de la forme

$$(II.27) \quad \frac{\sigma}{|M_{1,2}|} \vec{M}_{1,2} \times \frac{d\vec{M}_{1,2}}{dt}$$

σ : constante phénoménologique d'atténuation

Pour 0° K et $H_A \ll H_E$, ceci revient à remplacer le champ d'anisotropie H_A dans toutes les équations précédentes par $H_A (1 + j \frac{\Delta H}{H})$ où ΔH est la largeur de raie. ΔH et la constante σ sont reliées par

$$(II.28) \quad \sigma = \frac{\Delta H}{\omega} (H_A / 2H_E)^{1/2}$$

Les susceptibilités sont maintenant complexes :

$$(II.29) \quad \chi^{\pm} = \chi'^{\pm} - j\chi''^{\pm}$$

et explicitement, nous avons :

$$(II.30) \quad \chi'^{\pm} = \frac{H_c^2 - (H_{\text{ext}} \pm \frac{\omega}{\gamma})^2}{(H_c^2 - (H_{\text{ext}} \pm \frac{\omega}{\gamma})^2)^2 + H_c^2 (\Delta H)^2}$$

$$\chi''^{\pm} = 2H_A M \frac{\Delta H}{H_c} \frac{(H_{\text{ext}} \pm \frac{\omega}{\gamma})^2}{(M_c^2 - (H \pm \frac{\omega}{\gamma})^2)^2 + H_c^2 (\Delta H)^2}$$

On peut illustrer l'influence des pertes en disant que les vecteurs aimantation des deux sous-réseaux, en précession libre, s'alignent sur la direction z avec un certain temps de relaxation $T = 1/\sigma\omega$ en décrivant non plus des cercles, mais des spirales convergentes vers l'axe z.

III - METHODES D'OBSERVATION ET DE MESURE DE LA RESONANCE ANTIFERROMAGNETIQUE

La vaste gamme des matériaux antiferromagnétiques pose des problèmes très différents suivant la température de NEEL des substances à étudier. Rappelons que T_N peut prendre des valeurs de quelques degrés à 700° K environ, ce qui indique des champs d'échange H_E de l'ordre de 10^4 oe. à 10^7 oe. d'après la relation

$$(III.1) \quad \mu_B H_E = k \cdot T_N$$

où le moment magnétique est exprimé par le magnéton de BOHR μ_B , k étant la constante de BOLTZMANN.

Puisque, dans la plupart de ces matériaux, le champ d'anisotropie s'est trouvé être de l'ordre de 10^3 à 10^4 Oe, on peut déduire, à l'aide de la formule approximative (équation II.8), la gamme de fréquence dans laquelle on peut s'attendre à des résonances anti-ferromagnétiques. Cette gamme s'étend environ de

$$10 \text{ GHz} < f_{\text{crit}} < 1 \text{ 500 GHz}$$

correspondant à $3 \text{ cm} > \lambda_{\text{crit}} > 200 \mu$

Comme nous l'avons vu dans le chapitre II.1, on peut obtenir deux fréquences propres du matériau en appliquant un champ externe. Ceci permet de ramener la fréquence inférieure dans une gamme plus basse, facilitant l'observation et la mesure. En revanche, la génération d'un champ magnétique très intense est exigée.

Ainsi se présentent trois problèmes différents :

- 1°) Constitution d'un montage pour très hautes fréquences.
- 2°) Refroidissement de l'échantillon à quelques degrés absolus.
- 3°) Génération de champs magnétiques très forts.

On dispose aujourd'hui d'équipements microondes qui vont jusqu'à 300 GHz environ, correspondant à une longueur d'onde d'un millimètre. Mais à cette fréquence, la source et la détection ainsi que la petitesse des éléments posent des problèmes sérieux; il est préférable de ramener la fréquence carrément dans la bande V ou E, conviant la gamme de 50 à 90 GHz, en appliquant un fort champ magnétique à l'échantillon. Une méthode très efficace est de travailler avec des champs pulsés. Cette technique, développée par FONER (17), consiste à décharger une forte batterie de condensateurs au travers d'une self entourant la cavité ou le guide qui contient l'échantillon. Le refroidissement de l'ensemble dans un cryostat favorise cette technique en diminuant considérablement la résistance de la self. Nous allons présenter un tel montage décrit par DATE et MOTOKAWA (8) en 1967.

Dans les cas où la fréquence critique d'un échantillon tombe dans une gamme plus basse (faible T_f), on se sert des spectromètres habituels, ou on place l'échantillon directement dans un guide passant dans une vase de DEVAR comme l'ont fait ELLISTON et TROUP (15), HELLER et al. (16) ou JOHNSON et NETHERCOT (23).

Dans ces cas-là, on peut également appliquer des champs magnétiques produits dans des électroaimants classiques. On obtient la courbe de réponse de l'échantillon en modulant le champ continu autour du champ de résonance.

Pour l'observation de la résonance dans des matériaux à très grande température de NEEL, des spectromètres quasi-optiques sont nécessaires. Un tel appareil fut décrit par OHLMANN et TINKHAM (18) en 1961.

III.1 - SPECTROMETRE 24-90 GHz A CHAMPS PULSES

La technique de spectrométrie par champs magnétiques pulsés a été modernisée par DATE et MOTOKAWA (⁸) en 1967 en vue d'étudier le chlorure de cobalt, du nickel et du fer. Nous voulons décrire brièvement leur montage.

L'échantillon monocristallin se trouve dans une cavité en transmission, constituée par un morceau de guide court-circuité à longueur variable. La figure 11 montre la position des différents éléments dans le cryostat. La self entourant la cavité et la cavité elle-même sont entièrement plongées dans l'hélium liquide. Le changement des pertes et de la fréquence de résonance de la cavité, dû au remplissage par l'hélium, est négligeable.

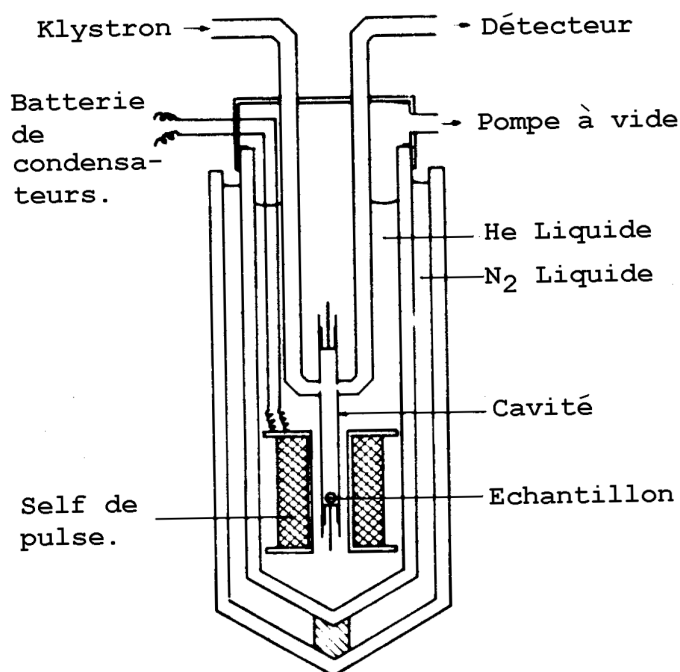


Figure 11 - Coupe du cryostat contenant la cavité avec l'échantillon et la self de pulse.

La self produit un champ dirigé suivant l'axe de la cavité. Le support de l'échantillon, représenté séparément figure 12, peut tourner de façon que l'axe magnétique préféré du cristal peut prendre un angle arbitraire avec la direction du champ magnétique. Ceci permet de déterminer justement la position de cet axe par des expériences de résonance. Si la cavité résonne dans le mode fondamental, le champ hyperfréquence est perpendiculaire au champ pulsé à l'endroit de l'échantillon, comme nous l'avons prévu dans le chapitre II.2.

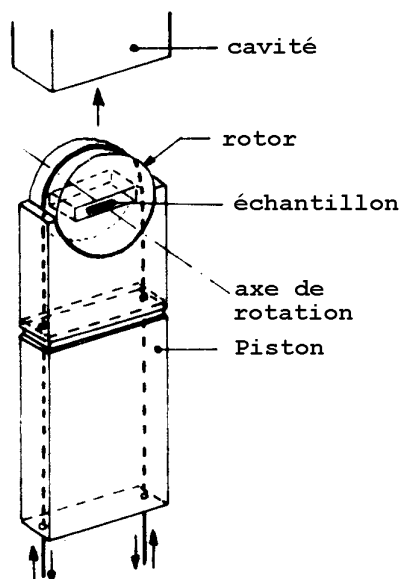


Figure 12 - Support rotatif de l'échantillon

Le schéma global du spectromètre est présenté figure 13. La batterie de condensateurs se décharge au travers d'un sendaitron (le sendaitron est une sorte d'ignitron, développé à l'Université de TOHUKU), la self et une résistance de $2\text{ m}\Omega$. A l'aide du bouton de déclenchement, on fait basculer le multi-vibrateur monostable qui fournit alors deux impulsions décalées, dont l'intervalle est réglable entre $1\text{ }\mu\text{s}$ et 100 ms .

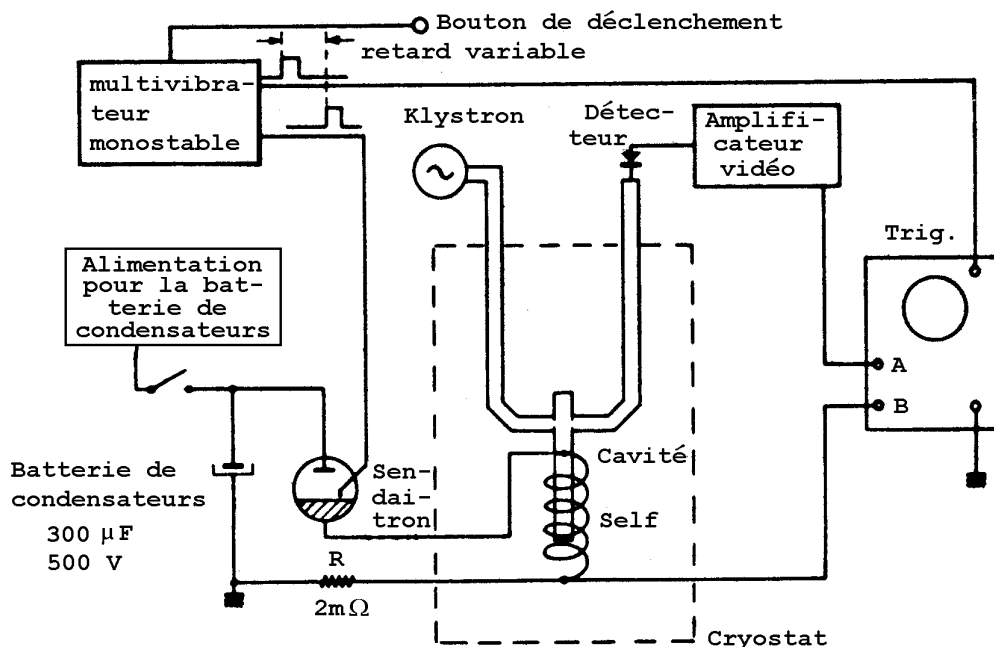


Figure 13 - Schéma global du spectromètre à champs pulsés.

Ce délai permet d'observer l'établissement du champ dès le début : la première impulsion déclenche le spot de l'oscilloscope, la deuxième allume le sendaitron et met en route le déchargement du condensateur. (Puisque le sendaitron possède une résistance très grande dans le sens du blocage, des oscillations d'énergie entre self et capacité ne sont pas à craindre, et on peut utiliser des condensateurs électrolytiques, moins chers et moins encombrants).

L'oscilloscope trace simultanément la courbe de transmission de la cavité et l'intensité correspondante du champ magnétique qui est proportionnelle au courant dans R. Une marque d'étalonnage du champ magnétique est obtenue à l'aide d'un échantillon de DPPH également inséré dans la cavité de mesure.

Un dessin typique des deux traces est représenté figure 14. On aperçoit deux courbes de résonance dans la trace supérieure; celle à gauche correspond au mode normal pour $H_{\text{ext}} < H_c$, pendant que le deuxième mode à droite représente une oscillation qui se produit après le "spin-flop" (voir chapitre II.1).

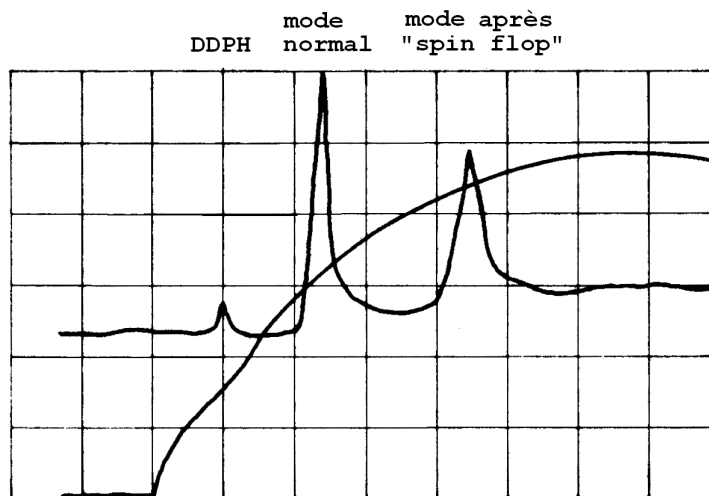


Figure 14 - Traces typiques de résonance antiferromagnétique.

- Trace supérieure : courbe de transmission de la cavité.
- Trace inférieure : champs magnétique dans la self.

$f = 50 \text{ GHz}$

abscisse : 1 carreau $\approx 200 \mu\text{s}$

Les auteurs précisent les dates suivantes du montage :

- Self : $L = 322,6 \mu\text{H}$; $R_{300^\circ\text{K}} = 1,403 \Omega$; $R_{4,2^\circ\text{K}} = 0,087 \Omega$
Diamètre intérieur : 8 mm ; longueur : 30 mm
60 x 5 tours avec du fil de cuivre de 0,5 mm de diamètre.
- Montage : Condensateurs : $C = 3\,000 \mu\text{F}$; $V = 500 \text{ V}$
Courant max : 2000 A ; champ max : 110 kOe.
Uniformité du champ : $5 \cdot 10^{-3}/\text{cm}$;
Durée d'une impulsion : 4 ms.
Gamme de fréquence : $f = 24 \text{ à } 90 \text{ GHz}$.
Sensibilité du spectromètre : $N_{\min} \neq 10^{16}$ spins.

La bande passante que doit avoir l'amplificateur vidéo dépend de la largeur de raie du mode et de la vitesse avec laquelle le champ magnétique augmente. Les auteurs ont calculé une bande passante de $f = 5 \text{ MHz}$ qui est nécessaire pour tracer correctement une raie de 10 Oe de largeur, si le champ est généré par le dispositif décrit ci-dessus.

Dans une publication plus récente, MOTOKAWA et DATE (19) on ajouté trois petites selfs à l'intérieur de la bobine principale (voir figure 15).

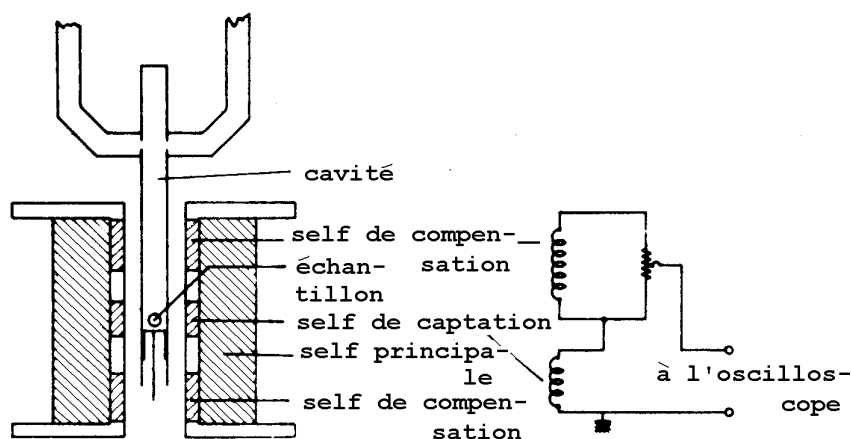


Figure 15 - Selfs auxiliaires pour la détection du "spin-flop".

Une self de captation entoure l'endroit où se place l'échantillon, et les deux parties d'une self de compensation, bobinées dans le sens inverse, sont mises en série avec elle.

Ceci permet d'observer directement la variation de l'aimantation au champ critique H_c (spin-flop) en sus de la résonance antiferromagnétique.

Ce spectromètre permet de faire une multitude de mesures, non seulement sur la résonance anti-ferromagnétique, mais aussi sur la résonance ferro, ferri et paramagnétique.

III.2 - INTERPRETATION DES RESULTATS

Parmi les dates obtenues au cours des expériences de résonance antiferromagnétique, trois fonctions sont d'un intérêt particulier :

- a) La fréquence de résonance pour un champ externe zéro en fonction de la température.

b) La ou les fréquences de résonance en fonction du champ magnétique externe à une température constante (très inférieure à la température de NEEL).

c) Le champ de résonance externe en fonction de son angle avec l'axe magnétique préféré de l'échantillon, la fréquence et la température étant constantes.

Ad. a) Puisque la fréquence de résonance des spins dans les champs moléculaires seuls est proportionnelle à ceux-ci, (ces champs étant reliés par une constante λ aux vecteurs aimantation), la fréquence de résonance suit, pour des températures inférieures à T_N , la fonction caractéristique de BRILLOUIN. HELLER ⁽²⁰⁾ a obtenu des résultats expérimentaux sur les ilménites qui coïncident extrêmement bien avec la courbe théorique, comme le montre la figure 16.

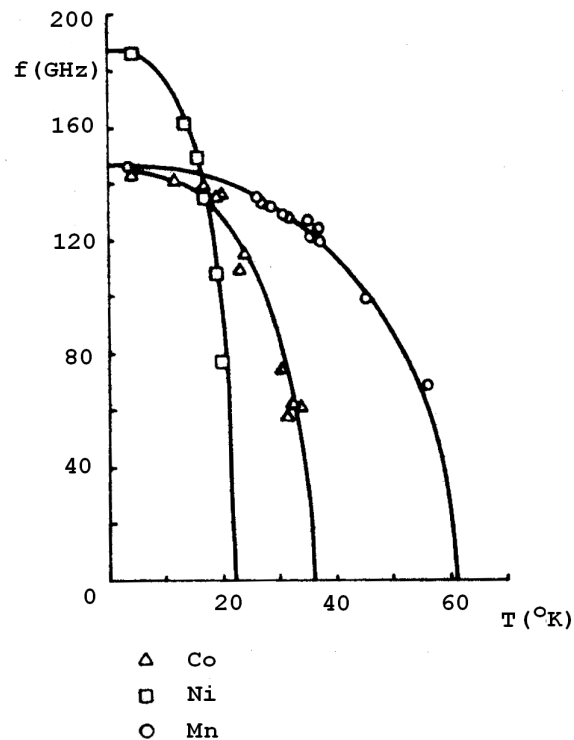


Figure 16 - Fréquence de résonance antiferromagnétique des ilménites en fonction de la température. $H_{ext} = 0$. Les traces continues représentent des fonctions de Brillouin avec
 $S = 1$ pour Ni
 $S = 5/2$ pour Mn
 $S = 3/2$ pour Co
d'après HELLER ⁽²⁰⁾

Une raison pour ce bon accord est le champ d'anisotropie relativement faible par rapport au champ d'échange. Des résultats pareils ont été trouvés pour NiO par KONDON (²¹), pour MnF₂ par FONER (¹⁷) et JOHNSON et NETHERCOT (²²), (²³). Par contre, pour Cr₂O₃, FONER (¹⁷) a obtenu une courbe $f_{\text{res}} = f(T)$ qui diverge considérablement de la courbe de BRIOULLIN. On estime que ceci est dû à une contribution de l'effet du champ cristallin à l'anisotropie. De toute façon, les courbes de la fréquence de résonance, en fonction de la température, permettent de déterminer la température de NEEL, à laquelle le champ H_E est complètement contrarié par l'agitation thermique. Par conséquent, la fréquence de résonance est nulle à cette température

Compte tenu de l'identité des énergies thermique et magnétostatique à la température de NEEL, on peut calculer le champ d'échange à partir de T_N suivant la formule (III.1).

Ad b) Cette fonction est le tracé expérimental de la figure 9. Elle permet de déterminer le champ critique H_c d'où se calcule le champ d'anisotropie H_A à l'aide de la formule (II.9), le champ H_E étant connu de la mesure a. D'autre part, la connaissance de la fréquence de résonance par $H_{\text{ext}} = 0$ nous permet de calculer le rapport gyromagnétique $\gamma = \omega_{\text{res}}|_{H_{\text{ext}}=0} / H_c$ et, à partir de ceci, le facteur de LANDE $g = 2\gamma/\gamma_0$, où γ_0 est le rapport gyromagnétique de l'électron libre. Nous représentons comme exemple une courbe publiée par HELLER, STICKLER et THAXTER (¹⁶) sur un monocristal de Cr₂O₃ (voir figure 17).

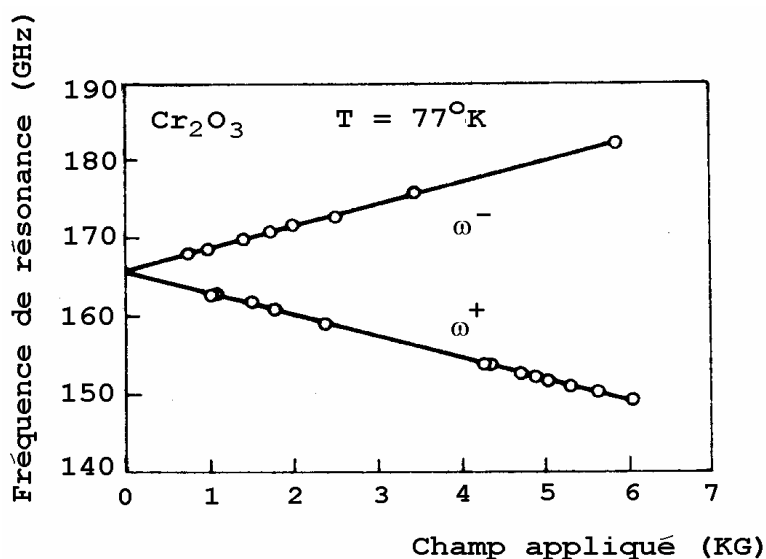


Figure 17 - Fréquences de résonance en fonction du champ appliqué par un monocristal Cr₂O₃. (D'après HELLER, STICKLER et THAXTER (¹⁶)).

Addendum : Plusieurs auteurs ont montré que l'on peut tirer les informations décrites ci-dessus à partir d'échantillons en forme de poudre (HELLER, STICKLER et WOLD (24), STICKLER et HELLER (25), HELLER et al. (26)) et ont donné une méthode d'analyse des courbes obtenues (DE MEO et HELLER (27)). La résonance ne se présente plus sous une forme de profil de Gauss, mais comme une rampe d'absorption (absorption edge). L'avantage de cette méthode réside dans la plus grande pureté de l'échantillon et la facilité de sa fabrication.

Ad c) Cette fonction est particulièrement intéressante du point de vue structure magnétique et ne peut naturellement être obtenue qu'avec des échantillons monocristallins. Notre exemple de DATE et MOTOKAWA (8) qui se rapporte au cristal présenté figure 5 montre la détermination de la direction magnétique préférée du réseau. La courbe a été relevée à l'aide du spectromètre décrit dans le chapitre II.1.

D'autres résultats du même genre et leur analyse sont présentés dans les références (19), (28), (29) et (30).

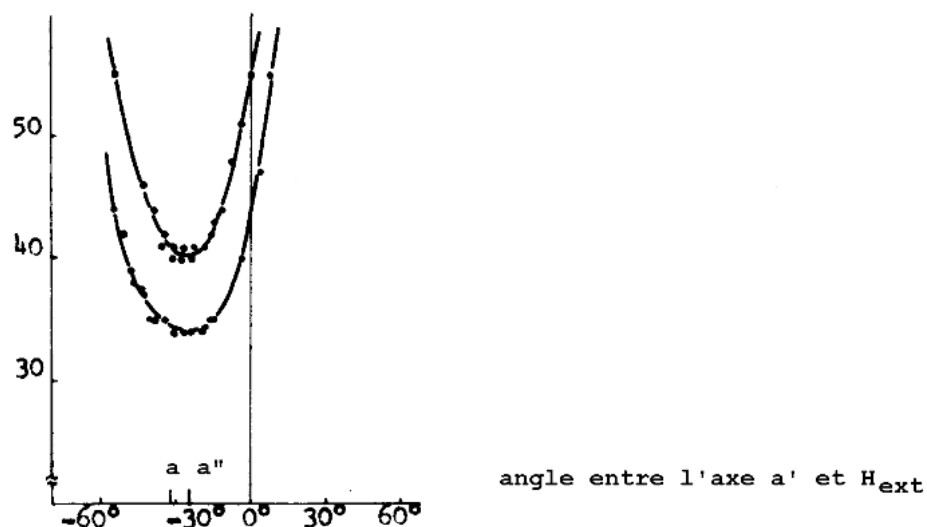


Figure 18 - Dépendance angulaire des points de résonance dans un plan ac (voir figure 5) ; $f = 35$ GHz, $T = 1,5^\circ\text{K}$ (D'après DATE et MOTOKAWA (8)).

IV - C O N C L U S I O N

Bien que nous n'ayons pu donner ici qu'un résumé très bref et schématique, il apparaît pourtant l'importance de la résonance antiferromagnétique pour la physique du solide. Les expériences permettent de déterminer les champs moléculaires régnant à l'intérieur des réseaux ainsi que leur structure magnétique en rapport avec des études de diffraction de neutrons et de rayons X.

Enfin, nous voulons mentionner l'application pratique des matériaux antiferromagnétiques dans la technique des ondes millimétriques et submillimétriques. Les éléments usuels contenant des ferrites sont limités à cause du champ magnétique très fort, exigé pour ces hautes fréquences. Ici, les champs internes élevés des antiferromagnétiques présentent une solution. Ensemble avec des récepteurs à faible bruit, comme les MASERS, des éléments non réciproques réfrigérés, isolateurs, circulateurs, déphaseurs et modulateurs antiferromagnétiques seront extrêmement intéressants. Il est même possible, en substituant d'autres matériaux antiferromagnétiques, de "tailler" le champ interne correspondant à la gamme de fréquence voulue. Ainsi, l'étude et la fabrication de nouveaux matériaux offrent un domaine de recherche intéressant.

B I B L I O G R A P H I E

-
- (1) NEEL L.
Ann. Phys. 3, 137, (1948)
- (2) VAN VLECK J.H.
J. Chem. Phys. 9, 85, (1941)
- (3) GOODENOUGH J.B.
Magnetism and the Chemical Bond
John Wiley & Sons, (1963), P. 92.
- (4) LAX B. Ph. D. and BUTTON K. J.
Microwave ferrites and ferrimagnetics
Mc Graw Hill Book Company INC. (1962)
- (5) BERTAUT E.F. - BLUM P. - MAGNANO G.
C.R. Acad. Sc. 244, 2944, (1957)
- (6) BERTAUT E.F. - BLUM P. - SAGNIERES A.
Acta Cryst. 12, 149, (1959)
- (7) TAKEDA T. - YAMAGUCHI Y. - TOMIYOSHI S. et al.
J. Phys. Soc. Japan, 24, n° 3, 446, (1968).
- (8) DATE M. - MOTOKAWA M.
J. Phys. Soc. Japan, 22, n° 1, 165, (1967).
- (9) SHIRANE G - PICKART S.J. - ISHIKAWA Y.
J. Phys. Soc. Japan, 14, n° 10, 1352, (1959)
- (10) SHIRANE G. - PICKART S.J. - NATHANS R. - ISHIKAWA Y.
J. Phys. Chem. Solids, 10, 35, (1959).
- (11) ISHIKAWA Y. - AKIMOTO S.
J. Phys. Soc. Japan, 13, n° 10, 1110, (1958).
- (12) ISHIKAWA Y. - AKIMOTO S.
J. Phys. Soc. Japan, 13, n° 11, 1298, (1958).
- (13) JONKER G.H. - WIJN H.P.J. - BRAUN P.B.
Philips Tech. Review, 18, 145, (1956).
- (14) ENZ U.
J. Appl. Phys., 32, 22 S, (1961).

- (15) ELLISTON P.R. - TROUP G.J.
Proc. Phys. Soc., 92, 1040, (1967).
- (16) HELLER G.S. - STICKLER J.J. - THAXTER J.B.
J. Appl. Phys. Suppl. 32, n° 3, 3075, (1961).
- (17) FONER S.
J. Phys. radium, 20, 336, (1949).
- (18) OHLMANN R.C. - TINKHAM M.
Phys. Rev. 123, 425, (1961).
- (19) MOTOKAWA M. - DATE M.
J. Phys. Soc. Japan, 23, n° 6, 1216, (1967).
- (20) HELLER G.S.
Proceedings of the International Conference on Magnetism
Nottingham - Sept. 1964 - p. 443.
- (21) KONDON N.
J. Phys. Soc. Japan, 15, n° 11, 1970, (1960).
- (22) JOHNSON F.M. - NETHERCOT A.H.
Phys. Rev., 104, 847, (1956)
- (23) JOHNSON F.M. - NETHERCOT A.H.
Phys. Rev. 114, n° 3, 705, (1951)
- (24) HELLER G.S. - STICKLER J.J. - WOLD A.
Proc. of the XII th. Colloque Ampère.
Eindhoven, the NETHERLANDS, p. 466 (1962).
- (25) STICKLER J.J. - HELLER G.S.
J. Appl. Phys. Suppl. 33, n° 3, 1302, (1962).
- (26) HELLER G.S. - STICKLER J.J. - KERN S. - WOLD A.
J. Appl. Phys. 34, n° 4 (part. 2), 1033, (1963)
- (27) DE MEO E.A. - HELLER G.S.
J. Appl. Phys. 37, n° 3, 1130, (1966).
- (28) DATE M.
Phys. Rev., 104, n° 3, 623, (1956).
- (29) DATE M.
J. Phys. Soc. Japan, 16, n° 7, 1337, (1961).

(30) GERRITSEN H.J. - OKKES R. - BÖLGER B. - GORTER C.J.
Physica 21, 629, (1955).

(31) KITTEL C.
Phys. Rev. 82, 565, (1951).

(32) NAGAMIYA T.
Progr. Theoret. Phys., 6, 342, (1951).

+++++