



HAL
open science

Calcul de la température de curie des noyaux de praséodyme dans l'alliage PrTl3

A. Landesman

► **To cite this version:**

A. Landesman. Calcul de la température de curie des noyaux de praséodyme dans l'alliage PrTl3. Journal de Physique, 1971, 32 (8-9), pp.671-677. 10.1051/jphys:01971003208-9067100 . jpa-00207123

HAL Id: jpa-00207123

<https://hal.science/jpa-00207123>

Submitted on 4 Feb 2008

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.

Classification
 Physics Abstracts :
 17.64

CALCUL DE LA TEMPÉRATURE DE CURIE DES NOYAUX DE PRASÉODYME DANS L'ALLIAGE PrTi_3

par A. LANDESMAN

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique, C. E. A., Orme des Merisiers
 BP n° 2, 91, Gif-sur-Yvette

(Reçu le 5 mars 1971)

Résumé. — On calcule la température de Curie des noyaux de praséodyme dans l'alliage PrTi_3 , couplés par des interactions indirectes mettant en jeu les excitations paramagnétiques électroniques collectives. Le résultat est proche de la température de transition observée expérimentalement par Andres et Bucher.

Abstract. — We calculate the Curie temperature of praseodymium nuclei in the intermetallic compound PrTi_3 due to the indirect interactions through the collective paramagnetic electronic excitations. The result is in fair agreement with the temperature at which a transition is observed by Andres and Bucher.

I. Introduction. — L'emploi pour des expériences à basse température des ions de terres rares ayant un nombre pair d'électrons a été suggéré il y a longtemps [1]. La dégénérescence de Kramers étant levée pour ces ions, fréquemment l'état fondamental est un singulet qui est le seul peuplé à basse température. Lorsque le noyau de l'ion a un spin, un calcul de perturbation au second ordre par rapport au couplage hyperfin et à l'interaction Zeeman du spin électronique conduit à un moment magnétique « induit » dont l'intensité peut être intermédiaire entre les moments magnétiques nucléaire et électronique. Cette dernière particularité est caractéristique des ions dont il est question ici. Si leur temps de relaxation spin-réseau est raisonnablement court, ces ions peuvent servir à des expériences de désaimantation adiabatique nucléaire [2], [3], [4] où des températures de 1,5 millidegré ont été atteintes. La température limite que l'on peut ainsi espérer est évidemment d'autant plus basse que les interactions entre spins nucléaires sont plus faibles. Au contraire, lorsque ces dernières sont notables, on peut observer un phénomène d'alignement coopératif des spins nucléaires qu'il peut être intéressant d'étudier pour lui-même, attitude adoptée ici. Ce dernier cas se rencontre pour l'alliage PrTi_3 étudié par Andres et Bucher, auquel on se référera constamment dans ce qui suit. La question se pose alors : quelle est la nature et quelle est l'intensité des interactions entre spins nucléaires ? Pour répondre à cette question il faut d'abord rappeler quelques propriétés du système de spins électroniques.

L'ion Pr^{3+} libre à l'état fondamental est un multiplet $^3\text{H}_4$. Dans le composé PrTi_3 , les ions praséodyme forment un réseau cubique simple [5], les ions

thallium étant les centres des faces des cubes. L'ion praséodyme voit donc un champ octaédrique qui décompose les niveaux du multiplet en un singulet fondamental Γ_1 , un triplet Γ_4 , un doublet Γ_3 , un triplet Γ_5 . La distance Δ entre Γ_1 et Γ_4 étant environ de 40 °K, nous négligerons ici l'influence des états Γ_3 et Γ_5 .

En plus du champ cristallin, les ions praséodyme sont couplés par des interactions d'échange. Nous écrirons V_{ex}^{ij} l'interaction d'échange entre deux ions praséodyme premiers voisins

$$V_{\text{ex}}^{ij} = \mathfrak{J} \mathbf{S}^i \cdot \mathbf{S}^j = -2K \mathbf{J}^i \cdot \mathbf{J}^j, \quad (1)$$

où

$$-2K = \left(\frac{S}{J+1} \right)^2 \mathfrak{J}.$$

Nous négligerons les interactions d'échange entre deux ions qui ne sont pas premiers voisins l'un de l'autre. L'arrangement des spins à basse température dépend évidemment de l'ordre de grandeur relatif du champ cristallin Δ et du couplage d'échange K . Si l'échange est très grand ($K \gg \Delta$) on a, à basse température une phase ordonnée où les spins électroniques auront un arrangement ferromagnétique ou antiferromagnétique suivant le signe de K . Plus précisément on peut montrer qu'une telle phase ordonnée n'est stable que si le paramètre η

$$\eta = 4 c^2 Kz/\Delta, \quad (2)$$

est supérieur à l'unité en valeur absolue [6]. Dans l'équation (2), z est le nombre de premiers voisins dans le réseau d'ions praséodyme ($z = 6$). L'état

fondamental Γ_1 n'est couplé par l'opérateur \mathbf{J}^i qu'au triplet Γ_4 [7]. Nous appelons c l'élément de matrice d'une composante J_z^i du moment cinétique total entre Γ_1 et Γ_4 ($c = \sqrt{20/3}$). Si $|\eta| < 1$, le système reste paramagnétique jusqu'à 0 °K.

L'interaction hyperfine du spin électronique avec le spin nucléaire $I = 5/2$ du praséodyme s'écrit :

$$V = A \sum_i \mathbf{I}^i \cdot \mathbf{J}^i, \quad (3)$$

où $A/k_B = -52,5$ mK.

On déduit le champ cristallin Δ de la fréquence ω de résonance magnétique dans un champ H [3] :

$$\omega = \gamma H(1 + Q);$$

γ est le rapport gyromagnétique nucléaire du praséodyme. Le facteur d'augmentation Q est relié au champ cristallin

$$Q = - \left(\frac{2c^2 A}{\Delta} \right) \left(\frac{g_J \beta}{\hbar \gamma} \right); \quad (4)$$

g_J est le facteur de Landé ($g_J = 4/5$) ; β est le magnéton de Bohr. Les valeurs expérimentales [3] sont $Q = 17,5$, $\Delta/k_B = 40$ °K.

L'interaction d'échange K est déterminée par la mesure de la susceptibilité de Van Vleck en champ faible :

$$\chi = \frac{2g_J^2 \beta^2 c^2}{A(1 - \eta)},$$

d'où l'on déduit le paramètre η qui est égal à 0,56. Le système électronique reste donc paramagnétique jusqu'à 0 °K.

On peut écrire un hamiltonien de spin électronique

$$\mathcal{H} = \sum_i V_c^i + \sum_{i < j} V_{ex}^{ij}, \quad (5)$$

où V_c^i représente l'interaction de l'ion i avec le champ cristallin. Dans l'hypothèse où l'on néglige l'influence des états Γ_3 et Γ_5 pratiquement dépeuplés et non couplés à l'état fondamental par le moment cinétique total, on peut écrire symboliquement :

$$V_c^i = A(|\tilde{0}\rangle \langle \tilde{1}| + |\tilde{0}\rangle \langle \tilde{0}| + |-\tilde{1}\rangle \langle -\tilde{1}|), \quad (6)$$

où les vecteurs $|\tilde{0}\rangle$, $|\pm\tilde{1}\rangle$ sous-tendent le sous-espace Γ_4 pour l'ion i [7]. Si l'on tient compte de l'interaction d'échange qui ne commute pas avec le champ cristallin, un état où les ions individuels occupent les niveaux Γ_1 ou Γ_4 n'est plus un état propre de l'hamiltonien (6). Les états propres seront des excitations collectives paramagnétiques que nous allons décrire dans la deuxième partie.

Anticipant sur la suite, on peut alors prévoir des interactions indirectes entre spins nucléaires analogues aux interactions de Suhl-Nakamura dans les substances magnétiques [8] et que nous étudierons dans la troisième partie.

II. Diagonalisation de l'hamiltonien de spin électronique. — Cette partie constitue un rappel largement emprunté à la Réf. [9].

1. CALCUL EN CHAMP MAGNÉTIQUE NUL. — Prenons comme axe des z une direction quelconque du cristal. Les états $|\tilde{0}\rangle$, $|\pm\tilde{1}\rangle$ peuvent s'écrire :

$$\left. \begin{aligned} |\tilde{0}\rangle &= (1/c) J_z^i |\Gamma_1\rangle \\ |\pm\tilde{1}\rangle &= \mp (1/c\sqrt{2}) J_{\pm}^i |\Gamma_1\rangle \end{aligned} \right\}. \quad (7)$$

Si l'on porte les équations (7) dans l'expression (6) on trouve facilement que l'opérateur V_c^i peut s'écrire :

$$V_c^i = A(a_i^\dagger a_i + b_i^\dagger b_i + c_i^\dagger c_i).$$

Les opérateurs a_i, b_i, c_i sont définis comme suit :

$$\left. \begin{aligned} a_i &= (1/c) |\Gamma_1\rangle \langle \Gamma_1| J_z^i \\ b_i &= (1/c\sqrt{2}) |\Gamma_1\rangle \langle \Gamma_1| J_-^i \\ c_i &= (-1/c\sqrt{2}) |\Gamma_1\rangle \langle \Gamma_1| J_+^i \end{aligned} \right\}. \quad (8)$$

Ces trois opérateurs commutent entre eux. On a évidemment

$$[a_i, b_j] = 0, \quad [a_i, b_j^\dagger] = 0, \quad \text{etc...}$$

On fait le calcul à très basse température, telle que seul le niveau Γ_1 est peuplé ; il est alors légitime de tronquer l'opérateur \mathbf{J}^i en ignorant les éléments de matrice de \mathbf{J}^i entre Γ_4 et Γ_3 ou Γ_5 , ce qui revient à écrire :

$$\left. \begin{aligned} J_z^i &\simeq c \{ |\Gamma_1\rangle \langle \tilde{0}| + |\tilde{0}\rangle \langle \Gamma_1| \} + \\ &\quad + \frac{1}{2} \{ |\tilde{1}\rangle \langle \tilde{1}| - |-\tilde{1}\rangle \langle -\tilde{1}| \} \\ J_+^i &\simeq c\sqrt{2} \{ |\Gamma_1\rangle \langle -\tilde{1}| - |\tilde{1}\rangle \langle \Gamma_1| \} + \\ &\quad + \frac{1}{\sqrt{2}} \{ |\tilde{1}\rangle \langle \tilde{0}| + |\tilde{0}\rangle \langle -\tilde{1}| \} \end{aligned} \right\}. \quad (9)$$

En portant les expressions approchées (9) dans les équations (8), on obtient :

$$\left. \begin{aligned} a_i &= |\Gamma_1\rangle \langle \tilde{0}|, \quad b_i = -|\Gamma_1\rangle \langle \tilde{1}|, \\ c_i &= -|\Gamma_1\rangle \langle -\tilde{1}|. \end{aligned} \right\}. \quad (10)$$

Maintenant l'interprétation physique des opérateurs a_i, b_i, c_i qui excitent des ions individuels de l'état Γ_1 dans l'un des trois états Γ_4 est très simple. Les règles de commutation de ces opérateurs à très basse température sont également très simples. Désignons par p_g et p_0 la population des niveaux Γ_1 et $|\tilde{0}\rangle$; la valeur moyenne du commutateur $[a_i, a_i^\dagger]$ est égale à

$$p_g - p_0 \simeq p_g \simeq 1.$$

Si on considère dans ce qui suit que les opérateurs a_i, b_i, c_i sont des opérateurs de bosons, on fera une approximation analogue à l'approximation des ondes

de spin pour un ferromagnétique, qui sera justifiée à basse température.

L'opérateur J^i s'exprime en fonction des opérateurs a_i, b_i, c_i :

$$\left. \begin{aligned} J_z^i &= c(a_i^\dagger + a_i) + \frac{1}{2}(b_i^\dagger b_i - c_i^\dagger c_i) \\ J_+^i &= c\sqrt{2}(b_i^\dagger - c_i) - \frac{1}{\sqrt{2}}(a_i b_i^\dagger + a_i^\dagger c_i) \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Pour exprimer de même l'hamiltonien d'échange V_{ex}^{ij} on portera les expressions (11) dans l'équation (1) en ne gardant que les termes contenant deux opérateurs de bosons au plus :

$$V_{\text{ex}}^{ij} = -2c^2 K[(a_i^\dagger + a_i)(a_j^\dagger + a_j) + (b_i^\dagger - c_i)(b_j - c_j^\dagger) + (b_i - c_i^\dagger)(b_j^\dagger - c_j)] \quad (12)$$

L'hamiltonien (5) se sépare maintenant en deux parties \mathcal{H}_a et \mathcal{H}_{bc} qui commutent

$$\mathcal{H}_a = \Delta \sum_i a_i^\dagger a_i - 2c^2 K \sum'_{i<j} (a_i^\dagger + a_i)(a_j^\dagger + a_j) \quad (13)$$

$$\mathcal{H}_{bc} = \Delta \sum_i (b_i^\dagger b_i + c_i^\dagger c_i) - 2c^2 K \times \sum'_{i<j} [(b_i^\dagger - c_i)(b_j - c_j^\dagger) + (b_i - c_i^\dagger)(b_j^\dagger - c_j)] \quad (14)$$

En posant

$$a_j^\dagger = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{k}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j) a_{\mathbf{k}}^\dagger \quad (15)$$

où le vecteur \mathbf{r}_j repère le site j du cristal et

$$\gamma^{\mathbf{k}} = z^{-1} \sum_j \exp[i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}] \quad \text{avec} \quad \mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j;$$

l'hamiltonien (13) s'écrit

$$\mathcal{H}_a = \text{Cte} + \Delta \sum_{\mathbf{k}} \left[\left(1 - \frac{1}{2} \eta \gamma^{\mathbf{k}}\right) a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{\mathbf{k}} - \frac{1}{4} \eta \gamma^{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{-\mathbf{k}}^\dagger + a_{\mathbf{k}} a_{-\mathbf{k}}) \right]$$

dont la diagonalisation est aisée moyennant la transformation canonique :

$$\alpha_{\mathbf{k}}^\dagger = a_{\mathbf{k}}^\dagger \text{ch } \theta_{\mathbf{k}} - a_{-\mathbf{k}} \text{sh } \theta_{\mathbf{k}} \quad (16)$$

On trouve que le paramètre $\theta_{\mathbf{k}}$ est défini par l'équation

$$\text{th } 2\theta_{\mathbf{k}} = \frac{\eta \gamma^{\mathbf{k}}}{2 - \eta \gamma^{\mathbf{k}}}$$

qui admet une solution quel que soit \mathbf{k} puisque $\eta < 1$, ce qui confirme le critère de paramagnétisme donné dans la première partie. La relation de dispersion de l'hamiltonien \mathcal{H}_a est :

$$\hbar\omega_{\mathbf{k}} = \frac{\Delta}{\text{ch } 2\theta_{\mathbf{k}} + \text{sh } 2\theta_{\mathbf{k}}} = \Delta(1 - \eta \gamma^{\mathbf{k}})^{1/2} \quad (17)$$

et définit une branche d'excitations que nous appelons α .

Pour les petits vecteurs d'onde la relation de dispersion (17) s'écrit :

$$\hbar\omega_{\mathbf{k}} = \Delta \sqrt{1 - \eta} + \Delta \eta a^2 k^2 / (12 \sqrt{1 - \eta}) + \dots$$

a étant la distance entre premiers voisins.

Pour diagonaliser l'hamiltonien \mathcal{H}_{bc} on passe également dans l'espace des vecteurs d'onde :

$$\left. \begin{aligned} b_j^\dagger &= N^{-1/2} \sum_{\mathbf{k}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j) b_{\mathbf{k}}^\dagger \\ c_j^\dagger &= N^{-1/2} \sum_{\mathbf{k}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j) c_{-\mathbf{k}}^\dagger \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

l'hamiltonien (14) devient

$$\mathcal{H}_{bc} = \text{Cte} + \Delta \sum_{\mathbf{k}} \left[\left(1 - \frac{1}{2} \eta \gamma^{\mathbf{k}}\right) (b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} + c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}}) + \frac{1}{2} (b_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}}^\dagger + b_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}}) \right]$$

dont la diagonalisation s'effectue à l'aide d'une transformation canonique

$$\left. \begin{aligned} \beta_{\mathbf{k}}^\dagger &= b_{\mathbf{k}}^\dagger \text{ch } \theta_{\mathbf{k}}' + c_{\mathbf{k}} \text{sh } \theta_{\mathbf{k}}' \\ \gamma_{\mathbf{k}}^\dagger &= c_{\mathbf{k}}^\dagger \text{ch } \theta_{\mathbf{k}}' + b_{\mathbf{k}} \text{sh } \theta_{\mathbf{k}}' \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

On vérifie aisément que $\theta_{\mathbf{k}}' = \theta_{\mathbf{k}}$ et que les valeurs propres de \mathcal{H}_{bc} redonnent, deux fois, la branche d'excitations paramagnétiques (17). Cela n'est pas surprenant car, en champ nul, la diagonalisation de l'hamiltonien (5) est un problème à symétrie cubique.

2. CALCUL EN PRÉSENCE D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE. —

La direction Oz sera maintenant le long du champ magnétique H et l'interaction Zeeman électronique s'écrira :

$$\mathcal{H}_{Ze} = \sum_i \mathcal{H}_{Ze}^i = \sum_i g_J \beta H J_z^i.$$

La diagonalisation de l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = \sum_i (V_c^i + \mathcal{H}_{Ze}^i) + \sum'_{i<j} V_{\text{ex}}^{ij} \quad (20)$$

est un problème trop compliqué pour qu'il soit utile de l'aborder ici. Nous examinerons seulement deux cas extrêmes.

a. *Champ magnétique faible.* — Nous traitons le terme $\sum_i \mathcal{H}_{Ze}^i$ au premier ordre. Compte tenu de la première équation (11) l'hamiltonien Zeeman électronique s'écrit

$$\mathcal{H}_{Ze} = N^{1/2} c g_J \beta H (a_0^\dagger + a_0) + \frac{1}{2} g_J \beta H \sum_j (b_j^\dagger b_j - c_j^\dagger c_j)$$

ou, en fonction des opérateurs $\alpha_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}}, \gamma_{\mathbf{k}}$

$$\mathcal{H}_{Ze} = N^{1/2} c g_J \beta H (\text{ch } \theta_0 - \text{sh } \theta_0)^{-1} (\alpha_0 + \alpha_0^\dagger) + \frac{1}{2} g_J \beta H \sum_{\mathbf{k}} (\beta_{\mathbf{k}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}}^\dagger \gamma_{\mathbf{k}}). \quad (21)$$

L'effet au premier ordre de l'hamiltonien (21) sur les trois branches d'excitations introduites au paragraphe précédent est évident : la branche α n'est pas modifiée, les branches β et γ subissent une translation en énergie égale respectivement à $1/2 g_J \beta H$ et $-1/2 g_J \beta H$. Cette approximation suppose $H \ll \Delta/(g_J \beta)$.

b. *Champ magnétique intense.* — Dans ce cas ($g_J \beta H \simeq \Delta$), on peut avoir une idée de ce qui se passe en diagonalisant d'abord l'hamiltonien

$$\mathcal{H}^i = V_c^i + \mathcal{H}_{Ze}^i \quad (22)$$

et en traitant ensuite l'échange comme une perturbation. Si l'on néglige toujours l'influence des états Γ_3 et Γ_5 , ce qui revient à utiliser l'approximation (6) pour le champ cristallin, il est très facile de diagonaliser l'hamiltonien (22) dont le tableau I donne les états propres et les vecteurs propres : $|\pm \tilde{1}\rangle$ et deux combinaisons $|G\rangle$ et $|0\rangle$ des vecteurs $|\Gamma_1\rangle$ et $|\tilde{0}\rangle$. Si la température est basse par rapport à Δ/k_B et $g_J \beta H/k_B$, on se limitera aux deux états $|G\rangle$ et $|\tilde{1}\rangle$ les plus bas en énergie de \mathcal{H}^i .

Par un raisonnement analogue à celui qu'on a fait en l'absence de champ magnétique on écrira :

$$\mathcal{H}_i = \Delta_H c_i^\dagger c_i \quad (23)$$

où l'opérateur de boson c_i est maintenant défini par

$$c_i = - |G\rangle \langle -\tilde{1}| \\ J_z^i \simeq -c \sin 2\varphi c_i^\dagger c_i - \frac{1}{2} c_i c_i^\dagger \\ J_+^i \simeq -d \sqrt{2} c_i^\dagger,$$

où $d = c \cos \varphi - \frac{1}{2} \sin \varphi$.

Comme on ne garde dans V_{ex}^{ij} que les termes contenant deux opérateurs de bosons c_i au plus, on obtient :

$$V_{ex}^{ij} \simeq -2Kd^2 (c_i^\dagger c_j + c_i c_j^\dagger). \quad (24)$$

Si l'on porte les expressions (23) et (24) dans l'hamiltonien (20) après être passé dans l'espace des vecteurs d'onde à l'aide de la transformation (18), on obtient :

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}} (\Delta_H - 2zd^2 K\gamma^{\mathbf{k}}) c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}}.$$

On trouve une branche d'excitations qui ressemble à celle d'un ferromagnétique en présence d'un champ magnétique ; les deux autres branches sont beaucoup plus hautes en énergie.

TABLEAU I

Vecteurs propres et valeurs propres d'un ion individuel en présence d'un champ magnétique intense

$\text{tg } 2\varphi = \frac{2 c g_J \beta H}{\Delta}$	$\Delta_H = \Delta - \frac{1}{2} g_J \beta H - E_G$
Vecteurs propres	Valeurs propres
—	—
$ G\rangle = \cos \varphi \Gamma_1\rangle - \sin \varphi \tilde{0}\rangle$	$E_G = -\frac{\Delta}{2} \text{tg } \varphi \text{tg } 2\varphi$
$ \tilde{1}\rangle$	$E_G + \Delta_H$
$ 0\rangle = \cos \varphi \tilde{0}\rangle + \sin \varphi \Gamma_1\rangle$	$E_0 = \frac{\Delta}{2} \text{cotg } \varphi \text{tg } 2\varphi$
$ \tilde{1}\rangle$	$\Delta + \frac{1}{2} g_J \beta H$

III. **Calcul des interactions indirectes entre spins nucléaires.** — Nous introduisons maintenant l'interaction hyperfine (3) pour laquelle nous faisons un calcul de perturbation. Nous considérons uniquement le cas des champs magnétiques faibles ou nuls.

Soit $|\alpha\mathbf{k}\rangle, |\beta\mathbf{k}\rangle, |\gamma\mathbf{k}\rangle$ un état du système où une excitation de vecteur d'onde k est présente, appartenant à la branche α, β ou γ .

Au premier ordre le calcul de perturbation conduit

au facteur d'augmentation Q de l'équation (4) (voir Réf. [6]). Au deuxième ordre il conduit à une variation E_2 de l'énergie du système :

$$E_2 = - \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{|\langle \Gamma_1 | V | \alpha\mathbf{k} \rangle|^2}{\hbar\omega_{\mathbf{k}}} + \frac{|\langle \Gamma_1 | V | \beta\mathbf{k} \rangle|^2}{\hbar\omega_{\mathbf{k}} + \frac{1}{2} g_J \beta H} + \frac{|\langle \Gamma_1 | V | \gamma\mathbf{k} \rangle|^2}{\hbar\omega_{\mathbf{k}} - \frac{1}{2} g_J \beta H} \right\}. \quad (25)$$

Pour des champs magnétiques faibles E_2 s'écrit :

$$E_2 = E_2^0 + \frac{1}{2} g_J \beta H F$$

où E_2^0 est l'interaction indirecte en champ nul :

$$E_2^0 = - \sum_{\mathbf{k}} \frac{|\langle \Gamma_1 | V | \alpha \mathbf{k} \rangle|^2 + |\langle \Gamma_1 | V | \beta \mathbf{k} \rangle|^2 + |\langle \Gamma_1 | V | \gamma \mathbf{k} \rangle|^2}{\hbar \omega_{\mathbf{k}}} \quad (26)$$

et F est un opérateur agissant sur les spins nucléaires \mathbf{I}^i :

$$\left. \begin{aligned} V_{\mathbf{k}}^{\alpha} &= AcN^{-1/2} (\text{ch } \theta_{\mathbf{k}} + \text{sh } \theta_{\mathbf{k}}) \alpha_{\mathbf{k}}^{\dagger} \sum_i I_z^i \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i) + \text{h. c.} \\ V_{\mathbf{k}}^{\beta} &= Ac(2N)^{-1/2} (\text{ch } \theta_{\mathbf{k}} + \text{sh } \theta_{\mathbf{k}}) \beta_{\mathbf{k}}^{\dagger} \sum_i I_+^i \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i) + \text{h. c.} \\ V_{\mathbf{k}}^{\gamma} &= -Ac(2N)^{-1/2} (\text{ch } \theta_{\mathbf{k}} + \text{sh } \theta_{\mathbf{k}}) \gamma_{\mathbf{k}}^{\dagger} \sum_i I_+^i \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i) + \text{h. c.} \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

Nous calculons maintenant les éléments de matrice intervenant dans les équations (26) et (27). Compte tenu de la relation (17) nous obtenons :

$$\begin{aligned} (\text{ch } \theta_{\mathbf{k}} + \text{sh } \theta_{\mathbf{k}})^2 &= \Delta / (\hbar \omega_{\mathbf{k}}) \\ \left. \begin{aligned} |\langle \Gamma_1 | V | \alpha \mathbf{k} \rangle|^2 &= \frac{c^2 A^2 \Delta}{N \hbar \omega_{\mathbf{k}}} \left\{ \sum_i I_z^i{}^2 + \sum_{i \neq j} I_z^i I_z^j \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}) \right\} \\ |\langle \Gamma_1 | V | \beta \mathbf{k} \rangle|^2 &= \frac{c^2 A^2 \Delta}{2 N \hbar \omega_{\mathbf{k}}} \left\{ \sum_i I_+^i I_-^i + \sum_{i \neq j} I_+^i I_-^j \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}) \right\} \\ |\langle \Gamma_1 | V | \gamma \mathbf{k} \rangle|^2 &= \frac{c^2 A^2 \Delta}{2 N \hbar \omega_{\mathbf{k}}} \left\{ \sum_i I_-^i I_+^i + \sum_{i \neq j} I_-^i I_+^j \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}) \right\} \end{aligned} \right\} \quad (29) \end{aligned}$$

2) Il est évident si l'on porte les équations (29) dans l'expression (26) que l'interaction indirecte ne comprend pas d'interaction quadrupolaire induite par suite de la symétrie cubique du cristal PrTi_3 . Il n'en serait plus de même avec une symétrie cristalline moindre.

Nous écrivons l'interaction indirecte en champ nul, évidemment ferromagnétique et scalaire puisque le système, paramagnétique, n'a pas de direction privilégiée

$$E_2^0 = -2 \sum_{i < j} J^{ij} \mathbf{I}^i \cdot \mathbf{I}^j \quad (30)$$

$$\begin{aligned} J^{ij} &= \frac{c^2 A^2 \Delta}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij})}{\hbar^2 \omega_{\mathbf{k}}^2} = \\ &= + \frac{c^2 A^2}{N \Delta} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij})}{1 - \eta \gamma^{\mathbf{k}}} \quad (31) \end{aligned}$$

Il faut noter que par suite de l'intervalle interdit $\Delta \sqrt{1 - \eta}$ que présente la relation de dispersion, l'approximation consistant à remplacer dans l'équation (31) la fréquence $\omega_{\mathbf{k}}$ par son développement pour

$$F = \sum_{\mathbf{k}} \frac{|\langle \Gamma_1 | V | \beta \mathbf{k} \rangle|^2 - |\langle \Gamma_1 | V | \gamma \mathbf{k} \rangle|^2}{(\hbar \omega_{\mathbf{k}})^2} \quad (27)$$

1) L'état fondamental Γ_1 est couplé aux trois branches α , β et γ par l'intermédiaire des opérateurs J_z^i , J_+^i et J_-^i respectivement, ce qui conduit à décomposer l'hamiltonien de structure hyperfine :

$$V \simeq \sum_{\mathbf{k}} (V_{\mathbf{k}}^{\alpha} + V_{\mathbf{k}}^{\beta} + V_{\mathbf{k}}^{\gamma})$$

Pour ce faire on ne garde que les termes à un opérateur de boson dans les équations (11) puis, compte tenu des relations (15), (16), (18) et (19) on établit après un peu d'algèbre les expressions suivantes :

les grandes longueurs d'onde n'est pas justifiée. Une telle approximation sous-estime la contribution des vecteurs \mathbf{k} en bord de zone par rapport à celle des petits vecteurs \mathbf{k} . Nous calculons numériquement l'interaction J^{ij} plus loin.

3) L'opérateur F proportionnel aux interactions indirectes en champ non nul s'obtient en portant les relations (29) dans l'équation (27) :

$$F = \sum_{\mathbf{k}} \frac{c^2 A^2 \Delta}{N (\hbar \omega_{\mathbf{k}})^3} \sum_i I_z^i + \sum_{i < j} F^{ij} \quad (32)$$

Le premier terme du membre de droite de l'équation (32) est une contribution d'ordre supérieur au moment magnétique induit correspondant à une correction Q' venant s'ajouter au facteur d'augmentation Q donné par l'équation (4) :

$$Q' = - \frac{Q}{4} \sum_{\mathbf{k}} \frac{A \Delta^2}{N (\hbar \omega_{\mathbf{k}})^3} \quad (33)$$

On se convainc aisément que cette correction Q' est effectivement négligeable par rapport à Q . Le second terme du membre de droite de (32) s'écrit :

$$F^{ij} = 2(\mathbf{I}^i \times \mathbf{I}^j)_z \sum_{\mathbf{k}} \frac{c^2 A^2 \Delta}{N(\hbar\omega_{\mathbf{k}})^3} \sin \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}$$

et s'annule grâce à la somme sur \mathbf{k} , nulle par raison de symétrie.

L'interaction indirecte (31) est donc insensible au champ magnétique au premier ordre, ce qui est un résultat intéressant.

4. CALCUL DE L'INTERACTION INDIRECTE ENTRE PREMIERS VOISINS. — Soit J l'interaction indirecte J^{ij} entre premiers voisins. Comme J^{ij} a la même valeur J pour tous les noyaux j premiers voisins de i , on peut écrire :

$$J = + \frac{c^2 A^2}{N\Delta} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{1 - \eta\gamma^{\mathbf{k}}} \sum_j \frac{1}{z} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}) = + \frac{c^2 A^2}{\Delta} j,$$

où l'interaction réduite sans dimensions j s'écrit

$$j = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\gamma^{\mathbf{k}}}{1 - \eta\gamma^{\mathbf{k}}} = \left(\frac{a}{2\pi}\right)^3 \iiint \frac{\gamma^{\mathbf{k}}}{1 - \eta\gamma^{\mathbf{k}}} d_3\mathbf{k}. \quad (34)$$

L'intégrale triple (34) pourrait se calculer sur machine. Une autre méthode consiste à la développer en série de puissances de η :

$$j = \sum_n \eta^n B_n \quad (35)$$

les coefficients B_n étant définis par :

$$B_n = \frac{a^3}{8\pi^3} \iiint (\gamma^{\mathbf{k}})^{n+1} d_3\mathbf{k}.$$

Les noyaux de praséodyme formant un réseau cubique simple

$$\gamma^{\mathbf{k}} = \frac{1}{3}(\cos ak_x + \cos ak_y + \cos ak_z)$$

d'où l'expression suivante pour les coefficients B_n :

$$B_n = (2\pi)^{-3} 3^{-(n+1)} \iiint_{-\pi}^{+\pi} (\cos x + \cos y + \cos z)^{n+1} dx dy dz. \quad (36)$$

On vérifie facilement que les coefficients B pairs sont nuls et on calcule en Appendice les premiers coefficients impairs. Si l'on prend $\eta = 0,56$ et si l'on somme la série (35) jusqu'au terme en η^9 compris on trouve $j = 0,11$, d'où, compte tenu des valeurs déjà citées de A et Δ ,

$$J/k_B = + 4,97 \times 10^{-5} \text{ }^\circ\text{K}.$$

On peut montrer [4] que cette interaction J est sensiblement supérieure aux interactions indirectes de Ruderman Kittel dues aux électrons de conduction. On peut aussi comparer J à l'interaction dipolaire D entre noyaux de praséodyme premiers voisins

$$D = \hbar^2 \gamma^2 (1 + Q)^2 a^{-3}.$$

Compte tenu du coefficient d'augmentation et de la valeur $a = 4,74 \text{ \AA}$ [5] il vient

$$\frac{D}{k_B} = \frac{J}{41 k_B} = 1,2 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{K},$$

ce qui montre bien l'importance de l'interaction indirecte J .

IV. Conclusion. — Nous nous limitons aux interactions J entre premiers voisins.

1. Le problème de l'alignement nucléaire est alors celui d'un hamiltonien de Heisenberg ferromagnétique couplant des spins $5/2$, situés aux nœuds d'un réseau cubique simple. Ce problème a été traité par la méthode des approximants de Padé [10].

La température de Curie est donnée par la relation (Réf. [10], Tableau 6).

$$I(I+1)J = 0,35163 k_B T_c$$

qui donne

$$T_c = 1,2 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{K}$$

si l'on utilise la valeur de J trouvée précédemment. Cette valeur se compare raisonnablement avec la température de transition observée dans la référence [4], comprise entre 1 et 1,4 millidegré Kelvin.

2. Un autre moyen d'avoir des informations sur l'intensité de J consisterait à étudier la largeur de la raie de résonance magnétique rétrécie par échange [11]. C'est là une différence avec les interactions de Suhl Nakamura qui, étant anisotropes, sont un facteur d'élargissement. On trouve dans l'article de Van Vleck [12] les expressions des second et quatrième moments de la raie pour un réseau cubique simple. En supposant gaussienne la fonction de corrélation pour la modulation du champ dipolaire, on aboutit à une largeur de raie adiabatique d'environ 0,13 gauss s'élargissant lorsque le champ devient inférieur à environ 700 G. Une étude éventuelle de la largeur de raie en fonction du champ magnétique [13] permettrait en principe de préciser la forme de la fonction de corrélation et, par voie de conséquence, de confirmer la valeur théorique de J . Cette confirmation serait d'autant plus intéressante que J est insensible au champ magnétique au premier ordre.

Appendice. — Nous calculons le coefficient B_n défini par l'équation (36). En développant le trinôme de l'intégrand, le coefficient B_n s'écrit

$$B_n = 3^{-(n+1)} \sum_{\substack{n_1, n_2, n_3 \\ (n_1 + n_2 + n_3 = n+1)}} \frac{(n+1)!}{n_1! n_2! n_3!} I_{n_1} I_{n_2} I_{n_3} \quad (\text{A.1})$$

où I_n est l'intégrale suivante :

$$I_n = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} \cos^n x dx.$$

Il est évident que les intégrales I_n de rang impair sont nulles. Les intégrales de rang pair se calculent aisément :

$$I_{2n} = \frac{1}{2\pi} 2^{-2n} \int_{-\pi}^{+\pi} (e^{ix} + e^{-ix})^{2n} dx$$

$$I_{2n} = 2^{-2n} C_{2n}^n = \frac{1}{2^{2n}} \frac{(2n)!}{(n!)^2} \quad (\text{A.2}) \quad \text{on obtient}$$

$$B_{2q+1} = 3^{-(2q+2)} \sum_{\substack{p_1, p_2, p_3 \\ (p_1+p_2+p_3=q+1)}} \frac{(2q+2)!}{(2p_1)!(2p_2)!(2p_3)!} I_{2p_1} I_{2p_2} I_{2p_3}$$

$$B_{2q+1} = \frac{(2q+2)!}{6^{2q+2}} \sum_{\substack{p_1, p_2, p_3 \\ (p_1+p_2+p_3=q+1)}} [p_1! p_2! p_3!]^{-2} \quad (\text{A.3})$$

L'expression (A.3) permet de calculer la suite des coefficients $b_q = 6^{2q+1} B_{2q+1}$: $b_0 = 1$, $b_1 = 15$, $b_2 = 310$, $b_3 = 7455$, $b_4 = 195426$, etc...

Notes

1° Le raisonnement du paragraphe IV-2 néglige les interactions entre les noyaux Pr et Tl et suppose le cristal parfait.

2° Un article de revue récent de COOPER (B. R.) et VOGT (O.), *J. Physique* 1971, **32**, C1-958 complète la référence [6].

3° Le Docteur Andres a aimablement attiré notre attention sur un calcul du Professeur Tzuyoshi Murao, à paraître. Ce calcul de champ moléculaire établit que

la valeur « critique » du paramètre η pour avoir un arrangement magnétique des ions est quelque peu inférieure à l'unité si l'on tient compte dès le départ de l'interaction hyperfine.

4° Une branche d'excitations analogues aux excitations [17] a été observée par diffusion inélastique des neutrons dans le praséodyme métallique hexagonal par RAINFORD (B. D.) et HOUMANN (J. G.), *Phys. Rev. Letters*, 1971, **26**, 1254.

Bibliographie

- [1] AL'TSHULER (S. A.), *ZhETF Pis'ma*, 1966, **3**, 177 (*Trad.*, 1966, **3**, 112).
- [2] STEYERT (W. A.), DAYBELL (M. D.), MALEY (M. P.) et PRATT Jr (W. P.), *B. A. P. S.*, 1969, **14**, 248.
- [3] ANDRES (K.) et BUCHER (E.), *Phys. Rev. Letters*, 1970, **24**, 1181.
- [4] ANDRES (K.), Proceedings of Twelfth Conference on Low Temperature Physics, Kyoto, 1970.
- [5] ELLIOTT (R. P.), « Constitution of binary alloys, First supplement », p. 747, Mc Graw Hill, New York.
- [6] COOPER (B. R.), *J. Appl. Phys.*, 1969, **40**, 1344.
- [7] ABRAGAM (A.) et BLEANEY (B.), « Electron paramagnetic resonance of transition ions », Clarendon Press, Oxford, 1970.
- [8] SUHL (H.), *J. Physique*, 1959, **20**, 333.
- [9] GROVER (B.), *Phys. Rev.*, 1965, **140A**, 1944.
- [10] GAMMEL (J.), MARSHALL (W.) et MORGAN (L.), *Proc. Roy. Soc.*, 1963, **275A**, 257.
- [11] ANDERSON (P. W.) et WEISS (P. R.), *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 269.
- [12] VAN VLECK (J. H.), *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1168.
- [13] RICHARDSON (R. C.), LANDESMAN (A.), HUNT (E.) et MEYER (H.), *Phys. Rev.*, 1966, **146**, 244.