

Propriétés Magnétiques et Conductibilité Electrique des Composés Ternaires $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$

D. BABOT

Laboratoire d'Etude des Matériaux, Institut National des Sciences Appliquées 20, avenue Albert-Einstein, 69621 Villeurbanne, France

M. WINTENBERGER ET B. LAMBERT-ANDRON

Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, B.P. 85 Centre de Tri, 38041-Grenoble Cedex, France

ET

M. CHEVRETON

Laboratoire d'Etude des Matériaux, Institut National des Sciences Appliquées 20, avenue Albert-Einstein, 69621 Villeurbanne, France

Received February 14, 1973

On étudie la conductibilité électrique, l'aimantation et la structure magnétique des composés $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$ ($x = 0.5; 1; 1.5; 2; 2.5; 3; 3.5$), à structure apparentée au type B8. Pour $x \geq 1$, on observe une aimantation spontanée. Sa valeur σ_s à 4.2 K et la température de Curie T_c augmentent régulièrement en même temps que la teneur x en tellure. Le composé $\text{Cr}_3\text{Se}_{3.5}\text{Te}_{0.5}$ est antiferromagnétique ($T_N = 55$ K). L'étude par diffraction de neutrons de Cr_3SeTe_3 en poudre ne révèle aucun ordre dans les positions relatives des deux sortes d'anions. On observe à 4.2 K la présence simultanée de deux modes, antiferro et ferromagnétique, comme dans Cr_3Te_4 . Les mesures de résistivité électrique en fonction de la température montrent dans tous les cas un caractère métallique. Les courbes $\rho = f(T)$, dans l'intervalle 4.2-300 K, comportent un point anguleux à une température T_R voisine de la température d'ordre magnétique. Ces résultats sont discutés en fonction de la nature des ions. Le caractère ferromagnétique du superéchange à angle droit Cr-anion-Cr croît du sélénium au tellure.

Electrical conductivity, magnetization and magnetic structure of the $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$ compounds ($x = 0.5; 1; 1.5; 2; 2.5; 3; 3.5$) of B8 type structure are studied. For $x \geq 1$, a spontaneous magnetization σ_s is observed. σ_s at 4.2 K and T_c , the Curie temperature, both regularly increase with increasing x parameter. The compound $\text{Cr}_3\text{Se}_{3.5}\text{Te}_{0.5}$ is antiferromagnetic ($T_N = 55$ K). Neutron diffraction shows no relative ordering of the two kinds of anions in powdered Cr_3SeTe_3 on which antiferro- and ferromagnetic modes are simultaneously observed at 4.2 K, as on Cr_3Te_4 . Electrical resistivity measurements show that all compounds exhibit metallic behavior. In the range 4.2-300 K, each curve $\rho = f(T)$ has a sharp point T_R near the magnetic order temperature. The results are discussed in terms of the nature of ions. The ferromagnetic character of Cr-anion-Cr right angle superexchange increases from selenium to tellurium.

Introduction

Les composés ternaires du chrome, avec le sélénium et le tellure (1-3), présentent des structures lacunaires ordonnées tout à fait analogues à celles des composés binaires correspondants (4). Les surstructures observées sont dues d'abord à l'ordre des cations et des lacunes dans un arrangement de type B8.

Dans le cas des binaires, les études magnétiques, à la composition Cr_3X_4 en particulier (5), ont montré la tendance croissante au ferromagnétisme dans l'ordre $X = \text{S, Se, Te}$; les mesures de conductibilité électrique (6) ont révélé des comportements variés et des mécanismes complexes de conduction.

En ce qui concerne les composés ternaires,

l'ordre des anions mis en évidence à certaines compositions comme Cr_3SeTe_3 , ainsi que les propriétés électriques et magnétiques déjà observées (7) nous ont incités à une étude plus détaillée, que nous présentons ici, des composés de formule générale $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$. Des mesures de conductibilité électrique en fonction de la température et des mesures magnétiques sont complétées par des études de diffraction de neutrons.

Préparation

Comme les composés binaires (6), les composés ternaires étudiés ici sont obtenus à partir des éléments très purs (Merck), par synthèse, dans des ampoules de silice transparente vidées d'air et scellées.

Toutes ces préparations comportent deux traitements thermiques de deux jours à 1050°C séparés par un broyage. Le second traitement se termine par refroidissement lent ($10^\circ/\text{h}$).

Une telle méthode conduit dans tous les cas à des produits bien cristallisés. L'indexation des diagrammes de Guinier permet de vérifier qu'ils sont tous constitués par une seule phase.

Dans la structure M_3X_4 , commune à tous ces composés, les dimensions de la maille monoclinique I augmentent régulièrement avec la teneur x en tellure (Tableau I).

Etude de la Conductibilité Electrique

Des mesures de résistivité électrique en courant continu ont été effectuées, en fonction de la

TABLEAU I

PARAMÈTRES ET VOLUME DE LA MAILLE MONOCLINIQUE
I DES COMPOSÉS ÉTUDIÉS

Composés	a (Å)	b (Å)	c (Å)	β	V (Å ³)
Cr_3Se_4^a	6.30	3.61	11.73	$91^\circ 59'$	266.2
$\text{Cr}_3\text{Se}_{3.5}\text{Te}_{0.5}$	6.34	3.63	11.80	$91^\circ 10'$	272.0
$\text{Cr}_3\text{Se}_3\text{Te}$	6.41	3.68	11.93	$90^\circ 46'$	281.3
$\text{Cr}_3\text{Se}_{2.5}\text{Te}_{1.5}$	6.50	3.73	11.99	$90^\circ 36'$	290.3
$\text{Cr}_3\text{Se}_2\text{Te}_2^a$	6.53	3.77	12.06	$\approx 90^\circ$	298.1
$\text{Cr}_3\text{Se}_{1.5}\text{Te}_{2.5}$	6.63	3.82	12.18	$90^\circ 23'$	308.3
Cr_3SeTe_3	6.69	3.85	12.19	$90^\circ 31'$	313.4
$\text{Cr}_3\text{Se}_{0.5}\text{Te}_{3.5}$	6.77	3.89	12.27	$90^\circ 49'$	323.3
Cr_3Te_4^a	6.89	3.94	12.35	$91^\circ 11'$	335.1

^a M. Chevreton, thèse, Lyon, 1964.

température, entre l'hélium liquide et l'ambiante, à l'aide d'un appareillage mis au point par l'un de nous (1, 6) et qui utilise la méthode des pointes disposées en carré. Les échantillons étudiés sont des pastilles obtenues à partir de poudres comprimées sous 4000 bars et frittées vers 1050°C sous vide. Les valeurs des résistivités ainsi mesurées aux différentes températures ne sont que des ordres de grandeur, mais leurs variations s'avèrent tout à fait significatives. Nos résultats portent sur les sept composés ternaires $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$ dans lequel $x = 0.5; 1; 1.5; 2; 2.5; 3; 3.5$.

On observe dans tous les cas un caractère métallique. La résistivité ρ est de l'ordre de 10^{-3} Ωcm (Tableau II). Les courbes $\rho = f(T)$ ont des

TABLEAU II

CARACTÉRISTIQUES ÉLECTRIQUES ET MAGNÉTIQUES DE $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x^a$

Composés	ρ ambiante (Ωcm) mesurée	Transition électrique T_R (± 5 K)	Transition magnétique (± 2 K)	σ_s (μB)
Cr_3Se_4	0.2		$T_N = 80$ (5)	
$\text{Cr}_3\text{Se}_{3.5}\text{Te}_{0.5}$	4.3×10^{-3}	≈ 50	$T_N = 55$	
$\text{Cr}_3\text{Se}_3\text{Te}$	2×10^{-3}	75	$T_c = 73$	
$\text{Cr}_3\text{Se}_{2.5}\text{Te}_{1.5}$	2.07×10^{-3}	92	$T_c = 89$	3.3 ± 0.2
$\text{Cr}_3\text{Se}_2\text{Te}_2$	1.8×10^{-3}	140	$T_c = 126$	3.7
$\text{Cr}_3\text{Se}_{1.5}\text{Te}_{2.5}$	3.05×10^{-3}	169	$T_c = 162$	
Cr_3SeTe_3	1.6×10^{-3}	220	$T_c = 214$	4.8
$\text{Cr}_3\text{Se}_{0.5}\text{Te}_{3.5}$	3.6×10^{-3}	268	$T_c = 272$	6
Cr_3Te_4	3×10^{-2}	295	$T_c = 319$ (5)	7

^a Les valeurs des résistivités électriques mesurées sur des poudres frittées sont des ordres de grandeur donnés à titre indicatif.

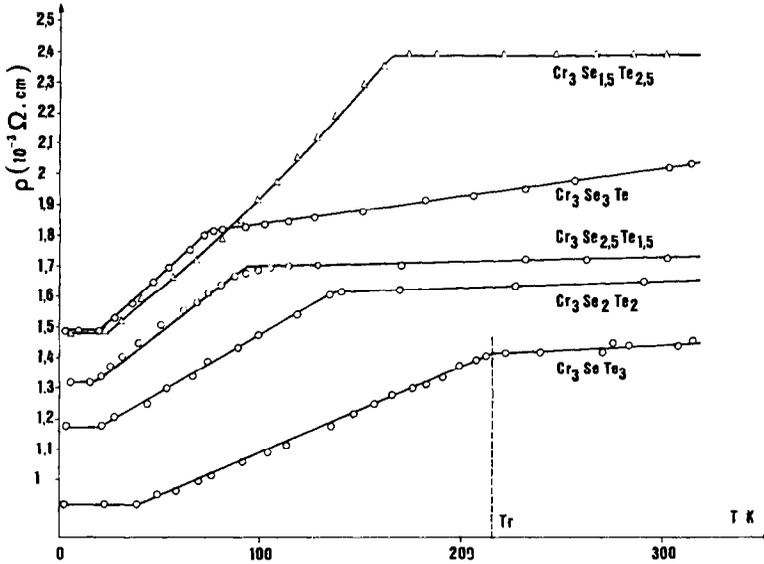


FIG. 1. Variation de la résistivité en fonction de la température pour différents composés $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$.

allures très voisines (Fig. 1). Elles débutent toutes par un palier aux très basses températures. Au-dessous de 30 K environ seule subsiste ainsi la résistivité résiduelle. Ensuite ρ augmente avec T de façon quasi linéaire et présente une anomalie à une certaine température T_R à laquelle on remarque une diminution très nette de la pente. De telles ruptures de pente sont fréquemment observées pour des composés qui présentent, à la température correspondante, une transition mag-

nétique ordre-désordre. L'anomalie au point de transition est liée à l'apparition de phénomènes d'interaction entre les spins des électrons de conduction et les spins des électrons localisés sur les ions magnétiques (8-10).

Sur la Fig. 2, on a porté la température T_R pour les différents teneurs x en tellure. On observe, dans un grand intervalle de composition, une variation régulière, sensiblement linéaire, de T_R en fonction de x . On a porté également le point

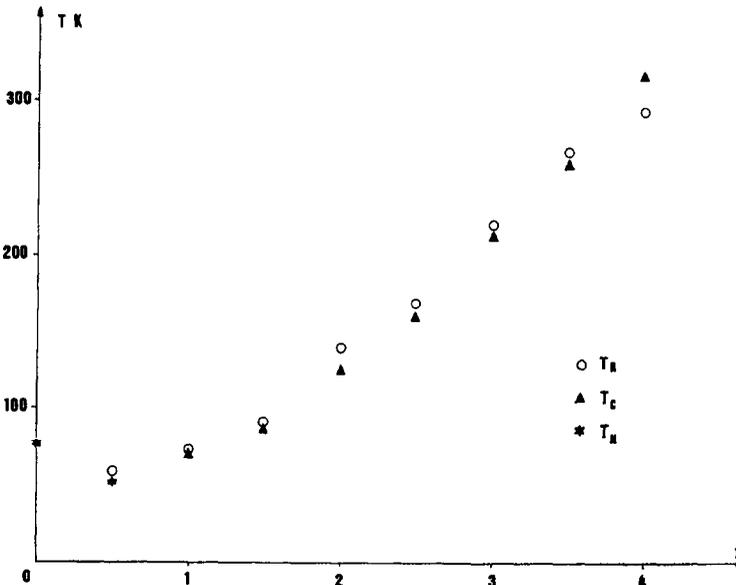


FIG. 2. Points de transition électrique (T_R) et magnétique (T_C et T_N) pour les différents composés $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$.

T_R relatif à Cr_3Te_4 ($x=4$). La résistivité de ce composé binaire a déjà été étudiée entre l'hélium liquide et 600°C (6, 11): la courbe $\rho=f(T)$ présente une rupture de pente au voisinage du point de Curie ($T_c=319$ K). La même propriété va se retrouver dans les composés ternaires étudiés ici.

Mesures Magnétiques

Les aimantations sont mesurées par la méthode d'extraction axiale.

1. Détermination des températures d'ordre magnétique

Les composés les plus riches en tellure ($x \geq 1$) présentent une aimantation spontanée. Les points de Curie (Tableau II) ont été déterminés à $\pm 2^\circ$ près par l'étude de l'aimantation rémanente en fonction de la température. Lorsque x diminue, les températures de transition décroissent régulièrement jusqu'à $x=0.5$ environ et coïncident assez bien avec les points anguleux observés sur les courbes de résistivité (Fig. 2). La température de transition est minimale pour la valeur de x correspondant à la disparition de l'aimantation spontanée.

Le composé $\text{Cr}_3\text{Se}_{3.5}\text{Te}_{0.5}$ est antiferromagnétique; sa température de Néel T_N est voisine de 55 K. Au-dessous de T_N , l'aimantation n'est pas une fonction linéaire du champ; il y a apparition d'une configuration oblique liée à

l'anisotropie (spin flopping). Des propriétés analogues avaient été observées pour Cr_3Se_4 (5).

2. Etude de l'aimantation ($x \geq 1$)

L'aimantation σ a été étudiée dans des champs atteignant 80 kOe, pour $x=3.5; 3; 2; 1.5$. Dans tous les cas, σ augmente avec le champ H jusqu'aux valeurs les plus élevées de H .

Pour $\text{Cr}_3\text{Se}_{0.5}\text{Te}_{3.5}$, les isothermes peuvent s'interpréter si l'on admet une loi d'aimantation de la forme $\sigma = \sigma_s + \chi H$ pour $T > 140$ K, et de la forme $\sigma = \sigma_s - (a/H^2)$ aux très basses températures et dans des champs supérieurs à 50 kOe, l'allure des courbes à champ plus faible suggérant une forte anisotropie. Dans le domaine des températures intermédiaires, aux environs de 120 K, les deux termes doivent intervenir simultanément et une détermination précise de σ_s est difficile. Ces courbes sont données à titre d'exemple dans la Fig. 3. On obtient des résultats analogues pour Cr_3SeTe_3 . Les propriétés magnétiques de ces deux composés ($x=3.5$ et $x=3$) sont tout à fait comparables à celles de Cr_3Te_4 (5).

Avec $\text{Cr}_3\text{Se}_2\text{Te}_2$, l'isotherme d'aimantation tracée pour $T=4.2$ K correspond encore à une loi en $\sigma = \sigma_s - (a/H^2)$. Pour $\text{Cr}_3\text{Se}_{2.5}\text{Te}_{1.5}$ il semble y avoir, à la même température, superposition d'un terme en χH et d'un terme en $-(a/H^2)$, et la détermination de σ_s est moins précise.

Les valeurs σ_s de l'aimantation à 4.2 K sont rassemblées dans le Tableau I. La valeur théorique

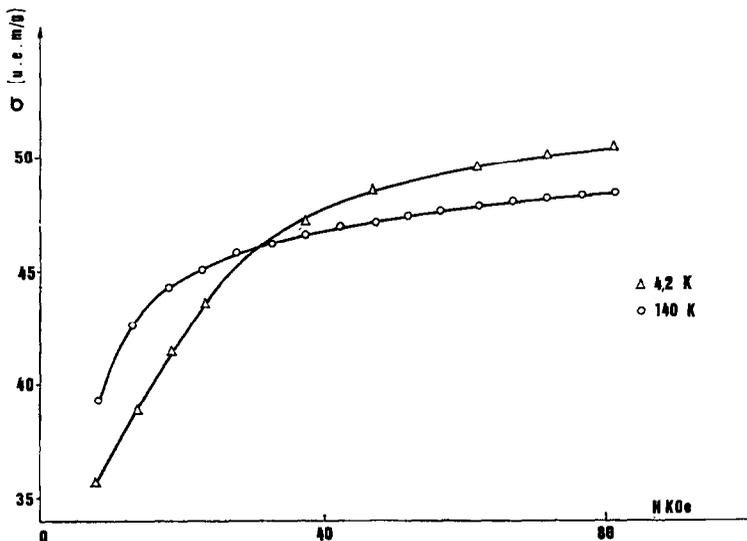


FIG. 3. Isothermes d'aimantation de $\text{Cr}_3\text{Se}_{0.5}\text{Te}_{3.5}$.

de σ_s à 0 K, pour des spins parallèles et un modèle purement ionique, est de $10 \mu_B$. On constate que σ_s décroît régulièrement lorsque x diminue; le ferromagnétisme est disparu totalement pour $x = 1$ et $x = 0.5$.

Etude par Diffraction Neutronique de Cr₃SeTe₃

L'étude par diffraction X d'un monocristal de Cr₃SeTe₃ a mis en évidence un ordre relatif des anions Se et Te (7). Si l'on désigne par a' et c' les paramètres de la pseudo-maille B8, la maille vraie, monoclinique à bases centrées, a pour paramètres: $a (\approx 2a'\sqrt{3}) = 13.38 \text{ \AA}$; $b (\approx 2a') = 7.68 \text{ \AA}$; $c (\approx 2c') = 12.19 \text{ \AA}$; $\beta = 90^\circ 31'$. L'ordre des anions détermine ainsi une maille doublée selon a et b par rapport aux composés binaires correspondants du type Cr₃□X₄ ($a \approx a'\sqrt{3}$; $b \approx a'$; $c \approx 2c'$).

L'étude décrite ici, par diffraction neutronique, porte sur des poudres de même composition Cr₃SeTe₃. Sur ces échantillons polycristallins, aucune raie caractéristique de l'ordre des anions n'a pu être mise en évidence par diffraction X en chambre de Guinier.

1. Température ambiante

Avec le diagramme de diffraction neutronique d'un échantillon polycristallin, au-dessus de la température d'ordre magnétique, on trouve la structure lacunaire ordonnée de type Cr₃□X₄, mais aucune raie de surstructure ne manifeste un ordre relatif du sélénium et du tellure, ce qui confirme les résultats obtenus par diffraction X sur les mêmes poudres.

Les intensités nucléaires calculées avec les paramètres de position de Cr₃Te₄ (5) sont en excellent accord avec les intensités observées ici; le facteur de confiance est $R = 0.05$.

2. Basses températures

Le diagramme obtenu à la température de l'hélium liquide comporte deux systèmes de raies magnétiques. D'une part, les intensités de certaines raies nucléaires ont augmenté, indiquant un ordre ferromagnétique, d'autre part de nouvelles raies, caractéristiques d'un mode antiferromagnétique, apparaissent. La présence simultanée de ces deux modes magnétiques a déjà été observée dans Cr₃Te₄ (5).

a. Mode ferromagnétique. Les calculs d'intensités magnétiques conduisent aux valeurs suivantes des composantes ferromagnétiques:

$$S_F \text{Cr}_I \approx 1.2; S_F \text{Cr}_{II} \approx 0.58.$$

TABLEAU III

INTENSITÉS MAGNÉTIQUES DE
Cr₃SeTe₃, (a) POUR LE MODE
FERROMAGNÉTIQUE, (b) POUR
LE MODE ANTIFERROMAGNÉTIQUE^a

hkl	I_{obs}	Δ	I_{cal}
(a)			
0 0 2	6	20	12
1 0 $\bar{1}$	45	30	64
1 0 1			
0 1 1	118	50	110
1 0 $\bar{3}$	0	30	0
1 0 3	35	20	32
1 1 0	390	50	404
2 0 0			
0 0 4	55	50	30
(b)			
			I_{cal} (mode C)
1 0 $\bar{1}$	27	5	≈ 0
1 0 3	225	15	225
1 0 $\bar{3}$	157	30	148
3 0 $\bar{3}$	205	40	199

^a Dans le mode antiferromagnétique, les indices hkl sont rapportés à la maille magnétique ($a_M = 2a \approx 2a'\sqrt{3}$; $b_M = b \approx a'$; $c_M = 2c \approx 4c'$).

(On désigne par Cr_I et Cr_{II} les chromes situés respectivement dans les plans (00 l) lacunaires et dans les plans "pleins").

La direction du spin est définie par son angle θ avec la rangée [101] et par l'angle $(\pi/2) - \psi$ de la projection du spin dans le plan (101) avec l'axe **b**. On trouve: $\theta \approx 90^\circ$; $\psi = 0$. Une telle direction correspond à l'intersection des plans (010) et (101). Les intensités magnétiques calculées et observées pour ces valeurs sont réunies dans le Tableau III.

Le moment magnétique observable pour le mode ferromagnétique doit être: $M = 2(1.2 + 2 \times 0.58) = 4.72 \mu_B$. Cette valeur est en excellent accord avec celle obtenue par mesures magnétiques.

b. Mode antiferromagnétique. Les nouvelles raies observées sont indicées dans une maille doublée selon **a** et **c** ($a \approx 2a'\sqrt{3}$; $b \approx a'$; $c \approx 4c'$). Il y a deux vecteurs de propagation possibles (5): $\mathbf{k}_1[\frac{1}{2}0\frac{1}{2}]$ et $\mathbf{k}_2[\frac{1}{2}0\frac{1}{2}]$. Les règles d'extinction sont

différentes pour \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 . Comme dans les composés binaires Cr_3X_4 , la mesure précise des positions de certaines raies permet de les indiquer sans ambiguïté et l'on doit finalement choisir le vecteur \mathbf{k}_2 . Les indices des raies observées, rapportées à la maille magnétique (103, 105, 303), indiquent un mode *C* dans les notations de la référence (5). La raie 101, favorisée par un très grand facteur de Lorentz, apparaît faiblement et l'on doit admettre ainsi une très faible composante participant au mode *D*.

Les intensités magnétiques sont réunies dans le Tableau III(b). Les composantes antiferromagnétiques ont pour valeurs :

$$S_{\text{AF}}, C_{\text{rI}} \approx 0.8; S_{\text{AF}}, C_{\text{rII}} \approx 0.92.$$

Les intensités de toutes les raies ($h0l$) étant maximales, on a pu définir la direction des spins suivant l'axe \mathbf{b} .

Comme il a été noté dans la Réf. (5), la coexistence d'un mode ferromagnétique associé au vecteur de propagation \mathbf{k} [000] et d'un mode antiferromagnétique associé au vecteur de propagation $\mathbf{k}[\frac{1}{2}0\frac{1}{2}]$ implique la présence d'un terme d'ordre 4 dans l'hamiltonien (12, 13).

Discussion

Sans préjuger des valeurs exactes des distances cation-cation et des angles cation-anion-cation qui conditionnent la nature des interactions magnétiques, nous pouvons déjà retenir la grande importance du rôle des anions dans les propriétés électriques et magnétiques des composés ternaires étudiés. A mesure que diminue la teneur en tellure, à partir de Cr_3Te_4 , on met en évidence une augmentation de la composante antiferromagnétique qui avait été décelée, mais très faible dans Cr_3Te_4 (5). Cette augmentation est déjà très sensible avec Cr_3SeTe_3 étudié aux neutrons. Dans les mesures d'aimantation on constate également une diminution régulière de la saturation σ_s à 4.2 K lorsqu'augmente la teneur en sélénium (Tableau III).

Huang et Orbach (14) ont confirmé que le caractère ferromagnétique du superéchange à angle droit Cr-anion-Cr croît dans l'ordre O, S, Se comme l'avaient déjà mis en évidence Bertaut et col. (5) dans les composés Cr_3X_4 . Nous vérifions que ce caractère ferromagnétique croît aussi du sélénium au tellure. L'augmentation du volume de l'anion diminue les interactions directes cation-cation, principale cause des interactions négatives observées.

Le comportement électrique et magnétique des composés étudiés peut s'interpréter à partir des résultats déjà obtenus sur Cr_3S_4 (5, 6, 15). L'empiètement des orbitales t_{2g} est assez important dans Cr_3S_4 pour donner à ce composé un caractère antiferromagnétique. Cependant, l'élargissement des niveaux t_{2g} n'est pas suffisant pour expliquer la conduction métallique observée (6, 16). Dans les composés ternaires $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$, comme les distances Cr-Cr sont plus grandes que dans Cr_3S_4 , on ne peut espérer un élargissement supérieur de t_{2g} par interaction directe.

Des mécanismes complexes apparaissent lorsque croît la polarisation de l'anion, dans la suite S, Se, Te, comme on l'a déjà observé avec les composés binaires (6). Dans les composés $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$, il est probable que la présence du tellure s'accompagne d'interactions, entre bandes étroites et bandes larges, analogues à celles déjà envisagées pour Cr_3Te_4 (6, 17).

Conclusion

La bonne coïncidence entre les anomalies de conductibilité et les températures de transition magnétique permet d'admettre que l'on peut tirer des informations au moins qualitatives à partir de la variation thermique de la conductibilité mesurée sur des produits polycristallins. Dans un domaine de composition situé environ entre $x=1$ et $x=4$, on dispose avec les composés $\text{Cr}_3\text{Se}_{4-x}\text{Te}_x$ de produits magnétiques dont la température de Curie peut être fixée a priori entre 75 K environ et 319 K par le choix de la teneur x en tellure.

L'étude de monocristaux de taille suffisante devrait permettre en particulier d'atteindre les valeurs absolues des résistivités totales et de leurs composantes.

Acknowledgments

Nous remercions le Dr. E. F. Bertaut pour ses conseils et ses encouragements ainsi que MM. Picoche et Barlet du Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal pour leur aide dans les mesures magnétiques.

Références

1. D. BABOT, thèse de 3e cycle, Lyon, 1969.
2. D. BABOT ET M. CHEVRETON, Commun. Assem. Annu. Soc. Chim. Fr., Toulouse, 27-29 mai 1969; *Bull. Soc. Chim. Fr.* n8b, 41 (1969).
3. D. BABOT ET M. CHEVRETON, Commun. Int. Conf. Solid Compounds Transition Elements, 3rd, Oslo, 16-20 juin 1969.

4. M. CHEVRETON, *Bull. Soc. Fr. Mineral. Cristallogr.* **90**, 592 (1967).
5. E. F. BERTAUT, G. ROULT, R. ALEONARD, R. PAUTHENET, M. CHEVRETON ET R. JANSEN, *J. Phys. (Paris)* **25**, 582 (1964).
6. D. BABOT ET M. CHEVRETON, *J. Solid State Chem.* **8**, 166 (1973).
7. D. BABOT, M. CHEVRETON ET S. BRUNIE, Commun. Assem. Annu. Soc. Chim. Fr., Rouen, 19-21 mai 1970; *Bull. Soc. Chim. Fr.* **n7b**, 52 (1970).
8. A. J. DEKKER, *J. Appl. Phys.* **36**, 906 (1965).
9. W. ALBERS ET C. HAAS, *Phys. Lett.* **8**, 300 (1964).
10. P. G. DE GENNES ET J. FRIEDEL, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 71 (1958).
11. M. CHEVRETON, M. MURAT, ET E. F. BERTAUT, in "Colloque CNRS n° 157, Orsay 1965," p. 49. CNRS, Paris (1967).
12. B. LAMBERT-ANDRON, thèse, Grenoble, 1969.
13. E. F. BERTAUT, *Acta Crystallogr., Sect. A* **24**, 217 (1968).
14. N. L. HUANG ET R. ORBACH, *J. Appl. Phys.* **39**, 426 (1968).
15. C. F. VAN BRUGGEN ET F. JELLINEK, in "Colloque CNRS n° 157, Orsay 1965," p. 31. CNRS, Paris (1967).
16. J. B. GOODENOUGH, in "Colloque CNRS n° 157, Orsay 1965," p. 263. CNRS, Paris (1967).
17. W. ALBERS, G. VAN ALLER, ET C. HAAS, in "Colloque CNRS n° 157, Orsay 1965," p. 19. CNRS, Paris (1967).