

Magnétisme nucléaire

M. Anatole ABRAGAM, professeur

Le cours de cette année a été consacré aux méthodes indirectes de détection de la résonance magnétique. C'est là un sujet extrêmement vaste et touffu où l'on s'est efforcé de dégager des principes et des méthodes plutôt que de s'attacher à une description détaillée des techniques.

On a commencé par rappeler les définitions et les différentes caractéristiques d'une résonance. La définition classique d'une résonance est la suivante :

Lorsqu'un système physique possède une fréquence propre ω_0 , c'est-à-dire lorsque convenablement excité puis abandonné à lui-même il est capable d'un mouvement périodique à cette fréquence, sa réaction ou, comme on dit, sa réponse à une perturbation périodique externe de fréquence ω est particulièrement intense lorsque ω est voisin de ω_0 . La définition quantique d'une résonance est celle d'un système possédant au moins deux niveaux d'énergie dont la largeur est faible par rapport à la distance $\Delta E = \hbar\omega_0$ et où une perturbation de fréquence ω n'induit de façon appréciable des transitions entre les deux niveaux que si $\omega \approx \omega_0$.

Les différentes caractéristiques d'une résonance sont :

I) Le Hamiltonien non-perturbé \mathcal{H}_0 représentant l'ensemble des états d'énergie entre lesquels se produit la perturbation résonante.

II) La perturbation résonante de fréquence ω que l'on décrit par un Hamiltonien \mathcal{H}_1 .

III) La « préparation » du système résonant dans un état statistique qui le rende propre à l'observation de la résonance (inégalité des populations des différents niveaux d'énergie par relaxation, polarisation dynamique, etc.).

IV) Elargissement des niveaux d'énergie par couplage de systèmes identiques les uns avec les autres ; couplage du système étudié avec d'autres systèmes qui rendent la détection indirecte possible, etc.

V) La détection de la résonance.

Il s'agit là d'un cadre général que les matières traitées dans le cours n'ont pas rempli complètement et dont par ailleurs elles ont parfois débordé.

Ce cadre est détaillé dans ce qui suit par une série d'exemples.

I. EXEMPLES DE HAMILTONIENS NON-PERTURBÉS

a) L'énergie Zeeman d'un moment magnétique nucléaire ou électronique dans un champ magnétique appliqué.

b) L'énergie électrostatique d'une distribution de charge électronique ou nucléaire dans un champ électrique inhomogène (effet Stark). Pour les charges nucléaires le seul effet observé jusqu'ici est une énergie quadrupolaire pour $I > 1/2$. Pour les charges électroniques on a pu observer des effets multipolaires d'ordre supérieur à 2. C'est ainsi, par exemple, que le niveau $S = 5/2$ du manganèse divalent est dédoublé dans un champ cristallin cubique.

b') = b) + a) Combinaison d'une interaction électrostatique et d'une interaction Zeeman. Il faut insister sur l'importance du théorème de Kramers favorable à l'observation des résonances de spins demi-entiers : pour un tel spin il reste toujours dans un champ électrostatique une dégénérescence qu'un champ magnétique peut lever amenant la fréquence de résonance dans le domaine voulu.

c) Interaction de deux moments magnétiques.

c₁) Structure hyperfine d'un atome, par exemple la raie de 1 420 Mhz de l'atome d'hydrogène.

c₂) Structure du muonium $\mu^+ e^-$, du positronium : $e^+ e^-$. Dans ce dernier cas à l'interaction purement magnétique électron-positron s'ajoute une interaction d'échange.

c') Structure hyperfine et énergie Zeeman combinés.

d) Interactions d'échange entre paires de spins électroniques dans un cristal magnétiquement dilué (expérience de J. Owen).

e) Niveaux de rotation et de vibration de molécules - Niveaux de vibration d'ions d'hélium positifs ou négatifs piégés au voisinage d'une surface d'hélium liquide (expériences de Williams et Poitrenaud).

f) Le Lamb-shift. La résonance se produit entre les deux niveaux $2s_{1/2}$ et $2p_{1/2}$ de l'atome d'hydrogène dont seul le premier est déplacé par le couplage de l'atome avec les fluctuations du vide du champ électromagnétique.

g) La différence d'énergie entre les mésons K neutres, K_L et K_S , de même nature que le Lamb-shift, la perturbation électromagnétique étant remplacée par celle des interactions faibles responsables de la radioactivité β .

h) Les transitions optiques entre les niveaux électroniques d'un atome.

i) Les transitions résonantes Mössbauer entre niveaux nucléaires.

j) Energie Zeeman d'un spin unique dans le champ *moyen* produit par d'autres spins, exemple : spin nucléaire dans un ferromagnétique ; spin du neutron dans le champ pseudo-magnétique qui règne dans une cible polarisée.

k) Shifts divers : Knight shift, shift paramagnétique, couplages indirects entre spins nucléaires, déplacement de niveaux atomiques par irradiation (expérience d'atomes habillés ou « lamp shift » de Cohen-Tannoudji).

l) Modes collectifs : résonance ferromagnétique, antiferromagnétique, ondes de spin des électrons de conduction, plasmons.

II. EXEMPLES DE PERTURBATIONS RÉSONANTES

a) Champ électromagnétique radio (ou optique depuis l'existence des lasers).

Il est possible d'admettre pour ce champ à la fois une phase et une intensité bien définies en dépit de la relation d'incertitude $\Delta n \cdot \Delta \varphi \sim 1$ à cause de la valeur astronomique du nombre n de photons par mode dans le rayonnement.

b) Pour les fréquences optiques en l'absence de laser le champ électromagnétique est non cohérent mais des effets cohérents sont observables sur l'atome irradié (expériences et théorie de Cohen-Tannoudji : interférence entre les amplitudes σ et π d'un *seul* photon).

c) Champ électromagnétique ayant la fréquence des rayons γ dans les expériences Mössbauer.

d) Les résonances paramétriques : elles sont obtenues en imposant une variation périodique résonante à un paramètre, normalement constant, de l'échantillon étudié :

1) Perturbation ultrasonique.

2) Résonance nucléaire dans les ferromagnétiques, dans les domaines ou dans les parois de Bloch.

3) Résonances pseudomagnétiques du neutron (expériences de Abragam, Mériel, Glättli et leurs collaborateurs).

4) Transition résonante entre K_L et K_S induite par la précession forcée de la polarisation nucléaire dans une expérience de régénération sur cible polarisée (expérience hypothétique proposée par Abragam).

5) Excitation d'une résonance nucléaire par des ondes hélicon (expérience de Sapoval).

6) Saturation rotatoire d'une résonance nucléaire par un Knight shift d'électrons de conduction excités par une lumière modulée à la fréquence de résonance (expérience de Weissbuch).

7) Modulation d'un faisceau de particules produisant des noyaux dans un état excité (Stroboscopie nucléaire).

II'. ACCORD DE LA RÉSONANCE

a) Changement de fréquence de l'oscillateur.

b) Changement du champ magnétique appliqué.

c) Changement de la polarisation nucléaire dans l'expérience de résonance pseudo-magnétique.

d) Effet Doppler dans l'expérience hypothétique sur les mésons K et surtout dans les expériences Mössbauer.

III. PRÉPARATION DU SYSTÈME

Il s'agit essentiellement (sinon exclusivement) de rendre l'opérateur statistique (matrice densité) ρ différent de l'opérateur unité (on reviendra sur les propriétés utiles de ρ).

Les méthodes utilisées sont les suivantes :

a) Relaxation thermique qui conduit à une matrice densité

$$\rho \approx \exp \{ - \beta \mathcal{H}_0 \}$$

b) Diverses polarisations dynamiques :

1) Effet Overhauser.

2) Effet solide.

3) Pompage optique.

c) Corrélations angulaires, distributions angulaires consécutives à une réaction nucléaire.

d) Préparation d'un système de spins dans différents états statistiques par pulses, passages rapides, saturation, etc.

e) Exemples de situations où un système possédant une matrice densité unité peut néanmoins donner lieu à une résonance observable :

1) Les expériences de jets atomiques de Rabi où les molécules sortant du four ne sont pas polarisées.

2) Les expériences de Hahn et Hartman sur les couplages entre deux systèmes de spins A et B. La résonance des spins B peut être observée même si ces spins ne sont pas polarisés.

3) Expériences de découplage de multiplets en haute résolution dans les liquides. Dans les solides, rétrécissement de la résonance des spins A, obtenu par un fort champ de radiofréquence appliqué à des spins B.

Si un système A peut donner lieu à une résonance observable bien que sa matrice densité soit égale à l'unité, c'est parce que la résonance modifie la fonction de corrélation à un paramètre la caractérisant, et que ce paramètre couple le système à un autre système B qui, lui, a une matrice densité différente de l'unité. Les exemples précédents peuvent être analysés en ces termes.

IV. EXEMPLES D'INTERACTIONS MODIFIANT LA FORME OU LA LARGEUR DE LA RÉSONANCE

a) Les mécanismes de polarisation sont eux-mêmes des causes d'élargissement : Largeur ($1/T_1$) causée par la relaxation thermique, ($1/T_p$) par le pompage optique.

b) Les interactions spin-spin dipolaires magnétiques, indirectes, d'échange.

c) Déplacements divers de la fréquence de résonance : Knight shift, Day shift, Lorentz shift (dû au champ de Lorentz dans un échantillon fortement polarisé), Lamp shift, etc.

V. LES MÉTHODES DE DÉTECTION

A - Les méthodes radioélectriques

a) *Détection cohérente* à la fréquence de résonance où l'on mesure les composantes M_x et M_y de l'aimantation.

La susceptibilité de radiofréquence est amplifiée par rapport à la susceptibilité statique d'après la relation : $\chi_{rf} \approx \chi_0 (\omega/\Delta\omega)$. Les avantages par

rapport aux méthodes statiques sont la sensibilité mais aussi la sélectivité permettant de mesurer séparément les contributions à l'aimantation totale de chaque espèce de spins.

b) *Détection à la fréquence zéro.*

On mesure le changement d'aimantation *statique* causé par la saturation de la résonance. Le développement récent de magnétomètres sensibles (squin, magnétomètre de Cohen-Tannoudji) redonne de l'intérêt à ces méthodes.

c) *Détection radio sur une fréquence différente de la fréquence de résonance.*

1) Détection transitoire : quand le système a plus de deux niveaux le passage sur la résonance correspondant à une paire de niveaux affecte la résonance observable sur une autre paire (exemple endor dans Si^{29}).

2) Détection en régime permanent (cw) quand on laisse agir la relaxation. Exemples : détection de la résonance électronique par effet Overhauser (expérience de pionnier de Slichter et Carver), l'expérience cruciale de Pound pour démontrer l'existence de la relaxation quadrupolaire, double irradiation dans CdF_2 (Roinel), etc., etc.

3) Systèmes de deux espèces de spins A et B en contact thermique.

Exemples : les expériences de Abragam et Proctor sur LiF, celles de Hahn et Hartman et de Redfield dans le référentiel tournant ; celles de Azarkin, Wenkebach et surtout Cox et Bouffard basées sur le couplage entre l'énergie spin-spin électronique et l'énergie Zeeman nucléaire.

4) Détection basée sur l'existence d'un Day shift : expériences de Ryter sur Li^7 , Na^{23} , Si^{29} , de Lambert sur N^{14} , de Roinel sur F^{19} Cd^{111} et Cd^{113} .

5) Détection basée sur l'existence d'un Knight-shift (expérience de Weissbuch déjà citée, et de Roinel où la saturation modulée de la résonance électronique produit une modulation du Knight shift équivalente à une modulation de champ).

B - Les méthodes optiques

a) La résonance peut être observée dans l'état fondamental ou dans l'état excité, sur la lumière absorbée ou la lumière de fluorescence, en continu ou avec modulation.

b) La résonance d'une espèce atomique peut être observée sur une autre espèce grâce à des transferts de populations par des collisions d'échange.

c) La polarisation statique peut s'observer par dichroïsme circulaire (Margerie, Geschwind, Anderson-Sabisky).

C - Les méthodes radioactives

Elles sont essentiellement basées sur un changement induit par un champ de radiofréquence dans l'anisotropie, du rayonnement émis par un ensemble de noyaux radioactifs polarisés par une méthode donnée : polarisation, statique, dynamique, corrélations angulaires, réactions nucléaires. La stroboscopie nucléaire occupe une place à part : son principe sera décrit plus loin.

L'avantage principal de la détection par le rayonnement nucléaire et à un degré moindre de la détection optique est sa grande sensibilité.

D - La détection par la matière

a) Les jets atomiques et moléculaires de toute nature.

b) L'effet d'une saturation de résonance sur la résistivité, la magnéto-résistance, l'effet Hall anormal (expériences de Solomon).

c) La résonance du positronium qui, changeant la proportion relative de désintégration en 2 ou en 3γ , ne comporte pas de direction privilégiée dans l'espace.

La liste qui précède, nullement limitative, montre l'extraordinaire variété des méthodes de détection indirecte. Dans la suite du cours on a discuté des expériences correspondant à chaque type de méthode énuméré ci-dessus. Ces discussions ne sont pas résumées ici. Une source d'informations précieuse est constituée par les comptes rendus des Congrès d'Asilomar en 1967 et Réhovoth en 1970 auxquels il est recommandé de se reporter pour les descriptions en question.

LES PROPRIÉTÉS DE LA MATRICE DENSITÉ

Une autre partie du cours a consisté dans la discussion des propriétés de la matrice densité sous une forme particulièrement adaptée à la description des anisotropies de rayonnement et fortement inspirée par les idées de Fano. Un rappel de ces propriétés est donné ci-dessous.

1) Par définition de l'opérateur matrice densité décrivant les propriétés statistiques du système, la valeur moyenne $\langle Q \rangle$ d'une observable quelconque Q est donnée par :

$$\langle Q \rangle = Tr \{ \rho Q \}$$

2) Si l'opérateur Q n'a que des valeurs propres positives, $\langle Q \rangle > 0$ et tous les éléments diagonaux ρ_{ii} sont positifs.

3) Pour que $\langle Q \rangle$ soit réel pour tout opérateur hermitique Q il faut et il suffit que ρ soit hermitique.

$$4) Tr \{ \rho^2 \} = \sum_i \rho_{ii}^2 \leq (\sum_i \rho_{ii})^2 = 1$$

5) La variation de ρ en fonction du temps est donnée par :

$$\rho^{(t)} = e^{-iHt} \rho(0) e^{iHt} \text{ résultant de la condition :}$$

$$Tr \{ \rho(t) Q \} = Tr \{ \rho(0) Q(t) \} \text{ et de } Q(t) = e^{iHt} Q e^{-iHt}$$

La variation de ρ est contragrédiente de celle des opérateurs en représentation de Heisenberg.

6) Le nombre de paramètres indépendants définissant ρ est $N^2 - 1$ où N est le nombre de degrés de libertés (3 pour un spin 1/2). Par contraste dans un état pur ce nombre est $2N - 2$ (2 pour un spin 1/2). Pour un spin 1/2 la forme la plus générale de la matrice densité est :

$$(1) \quad \rho = \frac{1}{2} \{ I + \mathbf{P} \cdot \boldsymbol{\sigma} \}$$

où \mathbf{P} est un vecteur de longueur inférieure à l'unité. $|\mathbf{P}| = 1$ correspond à un cas pur.

Dans un champ magnétique \mathbf{H} le mouvement du vecteur \mathbf{P} correspondant à un moment magnétique $\boldsymbol{\mu} = \frac{\gamma \hbar}{2} \boldsymbol{\sigma}$ est donné par l'équation classique :

$$\frac{\delta \mathbf{P}}{\delta t} = \gamma \mathbf{P} \wedge \mathbf{H}$$

Détection de particules

A côté de l'opérateur densité on peut introduire un opérateur ou une observable \mathcal{E} dont on mesure la valeur moyenne. Supposons par exemple que l'on détecte l'orientation du spin 1/2 d'une particule le long d'une

direction \mathbf{n} et que les indications du compteur soient e_M pour une orientation $+ 1/2$ et e_m pour une orientation $- 1/2$. Pour un compteur parfait $e_M = 1$, $e_m = - 1$. L'opérateur ξ peut s'écrire

$$(2) \quad \xi = \frac{I}{2} \{ (e_M + e_m) + (e_M - e_m) \mathbf{n} \cdot \sigma \}$$

L'orientation moyenne mesurée le long de \mathbf{n} pour un système de spin de polarisation \mathbf{P} décrit par (1) sera :

$$\langle \xi \rangle = Tr \{ \xi \rho \} = \frac{I}{2} \{ (e_M + e_m) + (e_M - e_m) \mathbf{n} \cdot \mathbf{P} \}$$

Un photon se propageant le long d'une direction donnée est aussi un système à 2 degrés de libertés (polarisation circulaire droite et gauche, ou polarisation rectiligne le long de deux axes orthogonaux) A_1 et A_2 .

On pourra encore décrire l'état de polarisation de la lumière par une matrice densité de la forme (1) avec $|\mathbf{P}| \leq 1$. $P_z = \pm 1$ correspond à une polarisation rectiligne le long de A_1 ou A_2 , $P_y = \pm 1$ à une polarisation circulaire droite ou gauche, $P_x = \pm 1$ à une polarisation rectiligne le long d'axes A'_1 et A'_2 résultant de A_1, A_2 par une rotation de $\pi/4$.

Autre exemple : la matrice densité décrivant la polarisation des deux γ provenant de la désintégration de l'état singulet du positronium est donnée par :

$$\rho = \frac{I}{4} \{ I - \sigma^1 \cdot \sigma^2 \}$$

DÉVELOPPEMENT DE L'OPÉRATEUR STATISTIQUE EN OPÉRATEURS ORTHOGONAUX ET APPLICATIONS

Il est commode de développer ρ comme une superposition linéaire de N^2 -opérateurs V_i sous la forme

$$(3) \quad \rho = \sum_i \rho_i^* V_i. \text{ Si l'on choisit des } V_i \text{ qui obéissent à la condition}$$

$Tr \{ V_i V_k^+ \} = \delta_{ik}$ on a :

$$\rho_i^* = Tr \{ \rho V_i^+ \} \quad \rho_0 = N^{-1/2}$$

Dans tous les problèmes où interviennent les distributions angulaires de rayonnement nucléaire il est extrêmement commode de choisir pour les V_i les opérateurs tensoriels irréductibles \mathcal{E}_μ^λ définis par

$$(4) \quad \langle I m | \mathcal{E}_\mu^\lambda | I m' \rangle \propto \langle I, m | \lambda, \mu; I, m' \rangle$$

Le premier membre représente un élément de matrice de \mathcal{E}_μ^λ entre deux états $I_z = m$, et $I_z = m'$ (I étant le spin du niveau nucléaire considéré) et le 2° membre est un coefficient de Clebsch - Gordan. On peut alors écrire :

$$(5) \quad \varrho = \sum_{\lambda, \mu} \varrho_\mu^{\lambda*} \mathcal{E}_\mu^\lambda$$

où les ϱ_μ^λ se transforment comme des harmoniques sphériques. Si pour une grandeur mesurable \mathcal{E} (par exemple le taux de comptage d'un rayonnement dans une direction donnée) on utilise un développement similaire :

$$(6) \quad \mathcal{E} = \sum_{\lambda, \mu} \mathcal{E}_\mu^\lambda \mathcal{E}_\mu^{\lambda*}$$

on obtient :

$$(6') \quad \langle \mathcal{E} \rangle = \sum_{\lambda, \mu} \mathcal{E}_\mu^\lambda \varrho_\mu^{\lambda*}$$

C'est à partir de ce formalisme que l'on a repris toute la théorie de l'anisotropie du rayonnement émis par un ensemble de noyaux orientés, des corrélations angulaires perturbées, de l'effet d'une transition résonante sur l'un ou l'autre de ces phénomènes. La théorie d'Abragam et Pound de corrélations angulaires perturbées a pu être reformulée d'une façon particulièrement compacte grâce à l'utilisation systématique de la matrice densité et des opérateurs tensoriels, formalisme qui à l'époque où la théorie fut élaborée (1952) risquait encore d'effaroucher la plupart des expérimentateurs. Une grande simplification résulte du fait que fréquemment l'équation d'évolution d'un coefficient $\varrho_\mu^{\lambda*}$ ne dépend que de coefficients $\varrho_{\mu'}^{\lambda'}$ avec $\lambda' = \lambda$ ce qui en réduit considérablement la complexité.

Stroboscopie nucléaire

Il s'agit de mesurer la fréquence de Larmor d'un noyau radioactif dans un état excité, formé par une réaction nucléaire à partir d'un faisceau exci- sa simplicité et de sa beauté.

Cette méthode nouvelle a été discutée avec quelques détails à cause de

tateur pulsé. La direction du faisceau excitateur (supposé non polarisé pour simplifier) est pour les spins des noyaux formés une direction d'orientation privilégiée. (Si on la prend comme axe oz tous les Q_{μ}^{λ} s'annulent si $\mu \neq 0$.)

Le diagramme angulaire du rayonnement émis par les noyaux ainsi formés a la même symétrie immédiatement après l'impulsion excitatrice supposée très brève. Si la cible est placée dans un champ magnétique appliqué H_0 les moments magnétiques nucléaires précessent dans ce champ avec une fréquence de Larmor $\omega_0 = \gamma H_0$ et le diagramme angulaire précesse avec la même fréquence.

Si l'impulsion excitatrice est répétée avec une fréquence $\omega \neq \omega_0$ et si $\omega \gg 1/\tau$ (où τ est le temps de vie du niveau radioactif) il est à peu près évident que la distribution angulaire deviendra rapidement isotrope. Si au contraire $\omega = \omega_0$ les spins des états nucléaires créés par les impulsions successives précessent tous en phase et l'anisotropie est préservée. C'est une méthode résonante d'un nouveau type où aucun champ de radio-fréquence n'apparaît.

TRAVAUX DU LABORATOIRE

M. Anatole ABRAGAM dirige au Commissariat à l'Energie atomique l'activité scientifique du Groupe de Résonance magnétique du Service de Physique du Solide et de Résonance magnétique. Ce groupe comporte actuellement seize chercheurs, dont quatre boursiers de thèse, trois collaborateurs étrangers et un ingénieur chimiste. Il dispose du support technique de huit techniciens.

Les travaux du laboratoire au cours de l'année 1972-1973 sont résumés ci-dessous.

a) *Etude des structures de vortex dans les supraconducteurs de type II*

L'étude de la structure et du mouvement de vortex dans les supraconducteurs de type II par résonance magnétique se poursuit parallèlement à celle qui est menée au moyen de la diffraction de neutrons. Elle s'accompagne d'une étude théorique intéressant les résultats obtenus par ces deux techniques.

La distribution du champ magnétique dans les vortex est très différente selon que le supraconducteur est pur ou impur. La distribution du champ dans les supraconducteurs impurs se conforme assez bien à la théorie d'Abrikosov. Les supraconducteurs purs ont un comportement très différent, dont l'origine est la suivante. Les électrons du métal ayant un libre parcours moyen

très grand sont diffractés par le réseau de vortex ; ceci modifie les courants supraconducteurs au point de rendre l'amplitude de variation du champ magnétique très supérieure à celle de l'aimantation. Les calculs théoriques, effectués dans la limite des champs magnétiques proches de H_{c2} et en négligeant l'anisotropie du métal rendent assez bien compte des résultats observés dans le niobium. Un développement de la théorie est en cours, qui couvre tous les domaines de champ magnétique et qui tient compte de l'anisotropie. Les résultats préliminaires de diffraction de neutrons semblent indiquer que l'anisotropie cristalline fixe l'orientation du réseau de vortex par rapport au réseau atomique. L'étude expérimentale des alliages plomb-thallium et du niobium doit permettre de préciser les mécanismes de cette orientation ainsi que de l'anisotropie du champ de transition H_{c2} .

Un montage expérimental est en outre en cours de réalisation, dont le but est d'étudier le mouvement des réseaux de vortex sous l'influence d'un champ électrique dans un monocristal de niobium.

(Delrieu.)

b) *Etude du fluorure de cadmium semi-conducteur*

Le fluorure de cadmium dopé avec des impuretés trivalentes et réduit à haute température sous vapeur de cadmium métallique devient semi-conducteur. Les impuretés utilisées dans l'étude présente sont des ions Y^{3+} . Les mesures effectuées les années précédentes avaient montré que le couplage électron-noyau était principalement de type scalaire, d'après le signe de l'effet Overhauser, et que chaque électron effectuait des sauts entre les sites de nombreuses impuretés avec un temps de corrélation très court, ce qui se manifeste par l'existence d'un déplacement de Knight des noyaux d'autant plus grand que le noyau est plus proche d'une impureté, et d'un déplacement de fréquence électronique sous l'effet du champ nucléaire (« D-shift ») qui dépend aussi de la distance impureté-noyau.

Des expériences de triple irradiation effectuées cette année, jointes aux mesures précédentes et aux mesures de relaxation spin-réseau, ont permis d'établir que la relaxation spin-réseau des quatre espèces de spins : électrons, ^{19}F , ^{111}Cd et ^{113}Cd était due aux couplages (essentiellement scalaires) électron-fluor et électron-cadmium et devait se décrire par un système d'équations couplées. On a montré en outre que, tandis que tous les spins de fluor semblent influencer la relaxation électronique, seuls les spins de cadmium proches des impuretés contribuent à cette relaxation. Une conséquence de ces couplages est que la valeur expérimentale du temps de relaxation d'une espèce de spins dépend de la polarisation des autres espèces de spins.

(Roinel.)

c) *Etude des impuretés d'hélium 4 dans l'hélium 3 solide*

Lorsqu'on étudie la relaxation spin-réseau de l'hélium 3 solide en fonction de la température on peut distinguer quatre domaines, que l'on explore successivement en abaissant la température :

I - Relaxation directe de l'aimantation par mouvement des lacunes.

II - Relaxation croisée énergie Zeeman - énergie d'échange indépendante de la température.

III - Relaxation échange-réseau, qui est une fonction linéaire de la concentration en ^4He et qui varie très rapidement avec la température (la théorie prévoit une variation en T^9).

IV - Relaxation dépendant peu de la température.

On a étudié le domaine IV, dont le mécanisme physique est actuellement incompris, en présence d'impuretés de ^4He . Expérimentalement la vitesse de relaxation dans cette région varie sensiblement comme le cube de la concentration en ^4He . Il n'existe pour le moment aucune interprétation satisfaisante de ces résultats.

(Bernier - Deville.)

d) *Résonance magnétique dans l'hélium trois solide pur*

Deux types d'études sont effectuées en ce moment. Une première étude, menée dans un champ de quelques kOe, se propose la mesure des temps de relaxation T_1 et T_2 dans le domaine de températures où la relaxation est assurée par le mouvement des lacunes, domaine pour lequel n'existent que très peu de résultats publiés. Ces mesures seront confrontées aux prédictions théoriques sur l'énergie de formation et de fréquence tunnel des lacunes, ainsi qu'aux résultats obtenus par des techniques autres que la résonance magnétique : chaleur spécifique, diffraction des rayons X, conductibilité thermique, diffusion inélastique de la lumière. L'appareillage réalisé permet de préparer les échantillons à pression constante. Ces échantillons semblent être monocristallins.

(Deville, Landesman.)

Une seconde étude porte sur la relaxation Zeeman de l'hélium trois solide à très haut champ (25 kOe) en fonction de la température, domaine qui n'avait jamais été étudié. Tandis que la relaxation devient très lente au-dessous de 1°K dans les échantillons massifs (le temps T_1 dépasse une heure), l'existence de nombreuses parois, résultant de la solidification de l'hélium dans une poudre fine ou un solide poreux, se manifeste par l'observation d'un temps T_1 de quelques secondes et indépendant de la température. Cette étude n'est encore qu'à un stade préliminaire.

(Sullivan, Chapellier.)

e) *Mélange thermique entre énergies Zeeman dans le fluorure de lithium en présence de centres F*

Les interactions spin-spin entre les centres F, créés par irradiation électronique à une concentration de l'ordre de 10^{-4} dans LiF, constituent un réservoir thermique qui est couplé aux réservoirs Zeeman des deux espèces nucléaires, ^{19}F et ^7Li . Ce réservoir spin-spin sert d'intermédiaire pour le mélange thermique entre les deux énergies Zeeman nucléaires. La vitesse de ce mélange thermique étant expérimentalement beaucoup plus grande que celle de la relaxation spin réseau, il peut être étudié à l'état « pur » sans avoir à faire intervenir les mécanismes souvent imparfaitement connus du couplage spin-réseau. Les résultats ont montré que, conformément à la théorie, la vitesse de mélange thermique est proportionnelle à $(1-P^2)/H^2$, où H est le champ magnétique et P la polarisation électronique d'équilibre thermique des centres F.

(Cox, Bouffard, Goldman.)

f) *Ordre magnétique nucléaire*

Des résultats nouveaux sur l'antiferromagnétisme nucléaire ont été obtenus sur le fluorure de calcium et le fluorure de lithium.

Les études de l'antiferromagnétisme dans le CaF_2 ont porté sur la phase observée dans le référentiel tournant à température négative lorsque le champ appliqué est parallèle à un axe quaternaire du cristal. Une nouvelle méthode de mesure de la susceptibilité parallèle a été mise au point ; la valeur de cette susceptibilité est déduite de la mesure du signal d'absorption nucléaire suivant une petite variation soudaine du champ appliqué en présence d'une irradiation de radiofréquence. On a étudié la variation des susceptibilités perpendiculaire et parallèle en fonction de l'énergie dipolaire en champ effectif nul. Les résultats sont en accord semi-quantitatif avec un développement au troisième ordre en température de spin inverse aux basses énergies et avec l'approximation du champ de Weiss et l'approximation des phases aléatoires aux énergies élevées. On a également étudié l'évolution de l'énergie dipolaire sous l'influence de la relaxation spin-réseau. Cette évolution n'est plus exponentielle aux fortes énergies. Les résultats expérimentaux sont en accord avec une théorie approchée de la relaxation spin-réseau dans l'état antiferromagnétique.

(Jacquinot.)

L'obtention de fortes polarisations dynamiques nucléaires de ^7Li et de ^{19}F dans le fluorure de lithium, par effet solide dans un champ de 50 kOe et avec une irradiation d'hyperfréquence de 2 mm, a permis d'aborder l'étude de l'antiferromagnétisme nucléaire dans ce composé. L'étude des signaux de passage rapide à température négative de ^7Li et ^{19}F , dans une plaquette

de LiF dont l'axe [100] était parallèle au champ extérieur, a révélé que les susceptibilités perpendiculaires de ces deux espèces de spins présentaient un plateau en-dessous d'une certaine entropie. La théorie prévoit l'existence de tels plateaux caractéristiques de la phase antiferromagnétique qu'elle prédit. Les résultats expérimentaux concernant cette transition sont encore préliminaires.

(Cox, Bouffard.)

g) *Résonance électrique des centres chargés dans l'hélium quatre liquide*

On a continué cette année l'étude de la résonance électrique des centres chargés créés par excitation électronique dans l'hélium quatre superfluide. Les électrons ionisants proviennent de la désintégration d'une source de tritium immergée dans l'hélium liquide. Les centres positifs sont des ions He_2^+ solvatés (modèle de la « boule de neige ») et les centres négatifs sont des électrons localisés dans une cavité sphérique vide d'hélium (modèle de la bulle). Les centres sont séparés par un champ électrique. L'espèce ionique qui, sous l'effet de ce champ, s'approche de la surface est piégée à faible distance de celle-ci sous l'effet du potentiel de surface répulsif. La fréquence de résonance d'un centre dans son puits de potentiel permet de déterminer sa masse effective. Seule la résonance du centre positif avait été observée l'an dernier. On a depuis observé celle de centres négatifs et déterminé leur masse effective. On a étudié la variation de la fréquence de résonance avec le champ électrique, entre 100 et 300 MHz, et vérifié qu'elle est conforme à ce que prédit l'approximation de la masse effective. On a en outre étudié la largeur des raies de résonance électrique, qui est en principe reliée à la mobilité des centres, mesurée par ailleurs. Tandis que pour les centres positifs la largeur expérimentale de la résonance est comparable à la largeur calculée, celle des centres négatifs est sensiblement plus grande. Il n'existe à présent aucune explication de ce désaccord. L'investigation de ce point est en cours.

(Poitrenaud, Williams.)

h) *Etude de la mobilité des ions dans l'hélium solide*

La mobilité des centres chargés dans l'hélium solide est mesurée à partir de leur temps de transit entre deux électrodes sous l'effet d'un champ électrique. Les ions sont créés par excitation du solide par les électrons secondaires émis par une électrode soumise à une impulsion de rayons X. Les échantillons doivent être préparés sous forme monocristalline pour qu'un courant ionique soit mesurable. On a mesuré en fonction de la température et du volume molaire la mobilité des centres positifs dans l'hélium trois et l'hélium quatre, ainsi que celle des centres négatifs dans l'hélium trois. Les centres négatifs existent probablement sous forme de bulles, comme dans

le liquide. La structure des centres positifs est encore mal connue. Le coefficient de diffusion, déduit de la valeur de la mobilité, suit une loi d'Arrhénius : $D = D_0 \exp(-\theta/T)$. Il est apparu que, dans un intervalle de cinq décades, le facteur préexponentiel D_0 était à peu près une fonction exponentielle du rapport entre température d'activation θ et température de Debye θ_D :

$$D_0 = A \exp(\alpha\theta/\theta_D)$$

Le coefficient α est le même pour les trois espèces d'ions étudiées. Il n'existe pour le moment aucune explication physique de ce fait.

Des expériences sont aussi en cours pour élucider les mécanismes de piégeage des ions négatifs, probablement sur les surfaces de dislocations.

(Marty, Williams.)

i) *Pseudomagnétisme nucléaire*

Cette étude se poursuit en collaboration avec le Groupe de Diffraction de neutrons du Service de Physique du Solide et de Résonance magnétique (Mériel, Bachella, Pinot). Les études réalisées l'an dernier avaient abouti à la mise en évidence du phénomène nouveau de pseudo-magnétisme nucléaire, dont le principe est le suivant. L'amplitude de diffusion cohérente vers l'avant d'un neutron sur un noyau présente un terme dépendant du spin, qui provient des interactions fortes neutron-noyau :

$$a = a_0 + a_n \mathbf{I} \cdot \mathbf{S}$$

On montre qu'en traversant une cible polarisée la fréquence de précession du neutron est modifiée d'une quantité proportionnelle à la concentration des noyaux, à leur polarisation et au coefficient a_n . Cette précession est la même que celle que créerait un champ $H^* = \alpha P$ appelé champ pseudomagnétique. On peut aussi, par analogie avec le cas magnétique, définir un moment pseudomagnétique μ^* proportionnel à a_n .

L'expérience réalisée l'an dernier avait consisté à faire traverser une cible riche en protons de polarisation telle que les fréquences de résonance des neutrons et des protons soient égales. On montrait alors qu'on pouvait provoquer une transition résonante du spin du neutron grâce au champ pseudomagnétique tournant d'une petite composante transversale de la polarisation des protons. Cette expérience n'était possible qu'à cause de la grande valeur du moment pseudomagnétique μ^* du proton.

Les développements de cette année ont consisté à réaliser un appareillage permettant de déterminer de petites valeurs de champ pseudomagnétique, créées par des noyaux de petit moment pseudomagnétique, en mesurant l'angle de précession d'un neutron au passage d'une cible polarisée. Le

principe de l'expérience est analogue à celui des expériences de jets atomiques de Ramsey. Des mesures effectuées sur des protons et des noyaux de vanadium, de moment μ^* connu, ont permis de vérifier la bonne marche de l'ensemble expérimental. Des valeurs préliminaires de moments μ^* ont été obtenues pour les noyaux de ${}^7\text{Li}$ et ${}^{23}\text{Na}$. L'appareillage électronique est en cours d'amélioration.

(Glättli, Abragam.)

MISSIONS ET CONFÉRENCES

15 juin 1972 - Conférence à la Société française de Physique et à l'Institut Max von Laue-Paul Langevin *sur le Pseudomagnétisme*, Grenoble.

2-6 octobre 1972 - Conférence organisée par la Société européenne de Physique sur le même sujet, Wiesbaden.

28 mai - 2 juin 1973 - Conférence pour le Centenaire de la Société française de Physique : *La Physique pour quoi faire ?*, Vittel.

PUBLICATIONS

A. ABRAGAM (en collaboration avec G.-L. BACHELLA, H. GLÄTTLI, P. MERIEL, J. PIESVAUX, M. PINOT et P. ROUBEAU), *Polarized neutrons and nuclei : nuclear pseudomagnetism* (Congrès Ampère, Turku, Finlande, août 1972).

A. ABRAGAM, *Polarized neutrons and nuclei ; nuclear pseudomagnetism* (Conférence de Wiesbaden de l'EPS - Trends in Physics, octobre 1972).

A. ABRAGAM (en collaboration avec M. CHAPPELLIER, J.-P. JACQUINOT et M. GOLDMAN), *Absorption lineshape of highly polarized nuclear spin systems* (*J. Magn. Res.*, à paraître).

PUBLICATIONS DES TRAVAILLEURS DU LABORATOIRE

J.-M. DELRIEU, *A new effect of a.c. fields and d.c. currents in type II superconductors* (*Solid State Comm.*, 11, p. 1557, 1972).

J.-M. DELRIEU, *A very simple explanation of the effects of a.c. fields on the critical currents in type II superconductors* (*Solid State Comm.*, à paraître, 1973).

J.-M. DELRIEU, *N.M.R. measurements of the speed of vortices in flux flow in type II superconductors* (*J. Phys. C*, à paraître, 1973).

M. BERNIER, *NMR study of solid ^3He - ^4He mixtures rich in ^3He* (*Proc. 13th Intern. Conf. on Low Temp. Phys. Boulder, 1972*, à paraître).

A. LANDESMAN, *L'échange dans l'hélium trois solide* (*Ann. de Physique*, à paraître).

S. F. J. COX, V. BOUFFARD et M. GOLDMAN, *The coupling of two nuclear Zeeman reservoirs by the electronic spin-spin reservoir* (*J. Phys. C*, 6, L 100, 1973).

J. POITRENAUD et F. I. F. WILLIAMS, *Precise measurement of effective mass of positive and negative charge carriers in liquid Helium II* (*Phys. Rev. Lett.*, 29, p. 1230, 1972).

D. MARTY et F. I. B. WILLIAMS, *Mobility of ions in solid helium* (*J. Physique*, à paraître).

M. GOLDMAN, *Nuclear magnetic ordering* (*Pure and Appl. Chem.*, 32, p. 137, 1972).

J. F. JACQUINOT et M. GOLDMAN, *Nuclear spin-lattice relaxation in the rotating frame* (*Phys. Rev.*, à paraître).

SÉMINAIRES

Les principaux exposés du séminaire tenu à 11 heures, le vendredi, ont été :

C. WEISSBUCH (Ecole Polytechnique), *Développements récents du pompage optique dans les semi-conducteurs : recombinaison dépendant du spin et résonance nucléaire* ;

N. SULLIVAN (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay), *Nuclear spin-lattice relaxation of solid hydrogen at low temperature* ;

J. POITRENAUD (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay), *Mesure par résonance électrique de la masse effective des centres chargés dans l'hélium superfluide* ;

D. LEPINE (Ecole Polytechnique), *Phénomènes de recombinaison dépendant du spin* ;

S. COX (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay), *Mélange thermique entre interactions Zeeman nucléaires par l'intermédiaire du réservoir spin-spin électronique* ;

J.-M. DELRIEU (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay), *Etude per résonance magnétique des supraconducteurs de type II* ;

R. KAHN (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay), *Etude par diffraction de neutrons des supraconducteurs de type II* ;

P. MONOD (Faculté des Sciences d'Orsay), *Couplage de la résonance électronique de spin entre deux métaux* ;

J.-N. CHAZALVIEL (Ecole Polytechnique), *Effet Hall dépendant du spin dans InSb* ;

A. LEVELUT (Faculté des Sciences de Paris), *Echos de bosons dans les solides* ;

Y. MERLE D'AUBIGNÉ (Faculté des Sciences de Grenoble), *Etude magnéto-optique des centres F dans CaO*.

DISTINCTION

Le Professeur a été promu au grade de Commandeur dans l'Ordre national du Mérite.