

Magnétisme nucléaire

M. Anatole ABRAGAM, membre de l'Institut
(Académie des Sciences), professeur

Le cours de cette année a porté sur l'ordre magnétique nucléaire. Il s'agit là d'une recherche qui depuis quelques temps déjà avait pris une part prépondérante dans les activités du Laboratoire de Résonance Magnétique Nucléaire et l'enseignement correspondant sera poursuivi l'année prochaine.

INTRODUCTION

La température critique T_c pour l'établissement d'un ordre magnétique nucléaire à longue portée est donnée approximativement par $k_B T_c = \gamma_n \hbar H_L$ où H_L est le champ magnétique local, et γ_n le facteur gyromagnétique des noyaux considérés. Les champs locaux H_L sont au plus de l'ordre de quelques gauss et les températures de transition T_c inférieures au microkelvin.

La première tâche est donc la production de telles températures. La méthode la plus directe est la désaimantation adiabatique à partir d'un champ magnétique initial H_0 aussi élevé que possible et d'une température initiale T_0 aussi basse que possible. A l'heure actuelle grâce aux progrès des réfrigérateurs à dilution et des solénoïdes supraconducteurs il est possible d'obtenir des températures initiales de quelques millikelvins dans des champs de l'ordre de dix teslas. La relation approchée : $T_f \approx T_0 H_L/H_0$ permet alors d'envisager des températures finales dans le domaine du microkelvin. En fait des températures, probablement inférieures au dixième de microkelvin, ont récemment été produites à Otaniemi en Finlande dans le cuivre métallique grâce à une désaimantation adiabatique à deux étages avec une température de départ du second étage inférieure au millikelvin. (De façon assez surprenante du reste il ne semble pas qu'une transition de phase vers un état ordonné des spins nucléaires du cuivre se soit produite.) Cette méthode n'est applicable qu'à des échantillons métalliques : dans les autres échantillons le temps de relaxation spin-réseau nucléaire dans les conditions initiales de champ et de température est d'une longueur prohibitive. Une fois le système

de spins nucléaires désaimanté, ses propriétés peuvent être observées à l'aide d'un magnétomètre supraconducteur (Squid).

Les recherches du laboratoire, de loin les premières, et les seules à ce jour (avec l'exception très spéciale de ^3He solide) à avoir conduit à l'observation certaine d'un ordre nucléaire à longue portée ont suivi une voie très différente et ceci pour plusieurs raisons.

Au moment où ces recherches ont débuté vers 1966 ni les réfrigérateurs à dilution, ni les solénoïdes supraconducteurs ni les squids n'étaient disponibles. Le problème était donc d'abord d'obtenir des températures de spins nucléaires requises en partant de températures de réseau bien plus élevées et de champs magnétiques bien plus bas que ceux cités plus haut (typiquement 1 °K, puis 0,3 K et 2,5 teslas). D'autre part la seule technique disponible pour l'observation de l'ordre nucléaire étant alors la RMN il fallait que la désaimantation se terminât (paradoxalement en apparence), en champ élevé. On a expliqué dans la première partie du cours les méthodes expérimentales imaginées et mises en œuvre.

ADRF (Adiabatic Demagnetization in the Rotating Frame)

Le principe de cette opération que nous préférons appeler « désaimantation en champ élevé » est bien connu. Il consiste à appliquer un fort champ de radiofréquence H_1 à une distance : $\Delta H = H_0 - (-\omega/\gamma)$ de la résonance, grande par rapport au champ local, puis à balayer H_0 adiabatiquement jusqu'à résonance, enfin à couper le champ H_1 . On sait qu'à la fin de cette opération l'Hamiltonien dipolaire d'interaction des spins est refroidi dans un rapport $T_f/T_0 \approx H'_L/H_0$ où le champ local H'_L , différent du champ local H_L est celui qui correspond à l'Hamiltonien dipolaire tronqué.

$$(1) \quad \begin{aligned} \mathcal{H}'_D &= \frac{1}{2} \gamma^2 \hbar \sum_{i < j} (1 - 3 \cos^2 \theta_{ij}) \{3I_z^i I_z^j - \mathbf{I}^i \cdot \mathbf{I}^j\} r_{ij}^{-3} \\ &= \sum_{i < j} A_{ij}(\mathbf{n}) \{2I_z^i I_z^j - I_x^i I_x^j - I_y^i I_y^j\} \end{aligned}$$

où l'axe oz portant le vecteur unitaire \mathbf{n} est parallèle au champ appliqué.

Le fait paradoxal en apparence, que l'ordre nucléaire ne soit pas détruit par un champ appliqué H_0 , plus grand par 3 ou 4 ordres de grandeur que le champ local H'_L résulte de ce qu'une fois supprimé le champ de radiofréquence H_1 , l'énergie nucléaire Zeeman Z_n quantifiée en quanta de centaines de megahertz ne peut pas passer dans l'énergie dipolaire \mathcal{H}'_D dont l'étendue du spectre est inférieure à la centaine de kilohertz. On dit quelquefois que Z_n et \mathcal{H}'_D ne sont pas « on speaking terms ».

L'avantage de la désaimantation en champ élevé par rapport à celle en champ nul, est triple :

a) comme on vient de le dire elle permet l'utilisation de la RMN, merveilleux outil pour l'étude du magnétisme nucléaire ;

b) l'Hamiltonien \mathcal{H}'_D donné par (1) dépend explicitement de l'orientation du champ H_0 par rapport aux axes cristallins. A des orientations différentes correspondent des Hamiltoniens différents et, on peut le penser, des structures ordonnées différentes. L'ordre nucléaire en champ élevé est un problème beaucoup plus « riche » que l'ordre en champ nul ;

c) le temps de relaxation dipolaire spin-réseau qui est le temps de vie de l'état désaimanté est dans les isolants, pour des raisons qui apparaîtront dans le prochain paragraphe, beaucoup plus long en champ élevé qu'en champ nul.

Une source de richesse supplémentaire de l'ordre magnétique nucléaire est constituée par la possibilité de doter les spins à volonté d'une température positive ou négative (qui correspondent à des structures ordonnées différentes). Il suffit d'effectuer l'ADRF en partant d'un ΔH positif ou négatif. Il faut cependant remarquer que ce dernier avantage n'est pas particulier à l'ADRF. Avant de pratiquer la désaimantation en champ nul il suffit pour obtenir une température négative des spins de rendre l'aimantation antiparallèle au champ soit par un passage adiabatique complet, soit par un pulse de 180° , soit par polarisation dynamique négative. Bien entendu dans tout ce qui précède il s'agit de température de spin nucléaire (seule capable de prendre des valeurs négatives) et non de la température du réseau qui dans les isolants n'est pas affectée par la désaimantation nucléaire.

POLARISATION NUCLEAIRE DYNAMIQUE

Le principe de cette méthode est bien connu et a fait l'objet d'un cours dans le passé. On en a donné cette année une présentation nouvelle qui l'apparente au premier étage d'une désaimantation adiabatique à deux étages. On introduit dans l'échantillon des impuretés paramagnétiques à une faible concentration, de l'ordre de 10^{-4} . Ces impuretés qui ont un court temps de relaxation se mettent rapidement à la température du réseau qui est typiquement une fraction de kelvin (ce sont elles qui en champ nul provoquent la relaxation rapide des spins nucléaires). Si l'on effectue sur les spins *électroniques* une ADRF leur Hamiltonien dipolaire \mathcal{H}'_D^e atteint une température T_D^e de l'ordre de $T_0 (H_L^e/H_0)$ où H_L^e , le champ électronique local qui correspond à \mathcal{H}'_D^e a une valeur de l'ordre d'une vingtaine de gauss. T_D^e est ainsi de l'ordre de quelques millikelvins. Comme le facteur gyromagnétique

γ_e est supérieur de trois ordres de grandeur à γ_n , $\gamma_e H'_L$ et $\gamma_n H_0$ sont comparables avec comme conséquence que \mathcal{H}'_D et Z_n sont « on speaking terms » et atteignent rapidement une température commune. Toutefois comme la capacité calorifique de Z_n , est, compte tenu de la faible concentration des impuretés beaucoup plus grande que celle de \mathcal{H}'_D cette température commune est beaucoup plus élevée que T_D^e . Cependant, grâce à la brièveté du temps de relaxation des spins électroniques on peut répéter leur ADRF un grand nombre de fois jusqu'à ce que Z_n atteigne lui aussi la température $T_D^e \approx T_0 (H'_L/H_0)$. On peut alors remarquer que cette suite d'ADRF électroniques peut être remplacée par une irradiation continue de la raie électronique sur un flanc de la résonance. Le signe de la température T_D^e est déterminé par le flanc choisi et on retrouve ainsi la procédure classique de la polarisation dynamique.

La seconde étape qui est l'ADRF nucléaire est inchangée et conduit à une température finale des spins nucléaires de l'ordre de

$$(2) \quad T_f \simeq T_D^e H'_L/H_0 = T_0 H'_L H'_L/H_0^2$$

qui tombe dans le domaine du microkelvin.

OBSERVATION PAR RMN DE L'ORDRE MAGNÉTIQUE NUCLÉAIRE

On a démontré un certain nombre de théorèmes reliant soit le signal Zeeman, soit le signal d'ADRF à des propriétés thermodynamiques du système de spins nucléaires, essentiellement l'entropie, l'énergie dipolaire et la température.

a) On a montré que la polarisation des spins avant désaimantation, liée par une formule classique à leur entropie était rigoureusement proportionnelle à l'aire du signal d'absorption Zeeman.

b) On a montré que dans le cas d'une seule espèce de spins I, le premier moment du signal d'absorption après ADRF était proportionnel à la valeur moyenne $\langle \mathcal{H}'_{II} \rangle$ de l'énergie dipolaire. Dans le cas de deux espèces de spins I et S, le signal d'absorption ADRF des spins I est proportionnel (avec le même coefficient de proportionnalité à $\{ \langle \mathcal{H}'_{II} \rangle + 1/3 \langle \mathcal{H}'_{IS} \rangle \}$).

c) On a établi une relation qui relie l'intégrale de l'absorption $\langle I_y(\Delta) \rangle$ pondérée par $\coth \left(\frac{\beta \Delta}{2} \right)$ où β est la température inverse des spins

nucléaires désaimantés, à la valeur quadratique moyenne des composantes transversales du spin nucléaire total. Moyennant certaines hypothèses simplificatrices sur ces dernières on peut en déduire la température de spin.

d) Enfin on a relié au moyen des relations de Kramers-Kronig la susceptibilité transversale (dans le référentiel tournant) χ_{\perp} au signal d'absorption.

Grâce à ces relations rigoureuses on peut extraire des mesures précises du signal d'absorption un ensemble de valeurs pour certaines grandeurs thermodynamiques du système de spins dans l'état désaimanté, ordonné ou paramagnétique.

RECHERCHES DE STRUCTURES ORDONNÉES

On a exposé les principes de la recherche de structures nucléaires ordonnées sur l'exemple d'un réseau cubique simple de spins 1/2 qui décrit exactement la situation dans une substance étudiée au laboratoire depuis de nombreuses années, la fluorine CaF_2 . Les noyaux de ^{19}F ont un grand moment magnétique et un spin 1/2 alors que seul un isotope rare de calcium ^{43}Ca (abondance isotopique 0,3 %) a un spin différent de zéro, soit 7/2. La méthode utilisée est celle du champ moyen où chaque spin s'oriente dans le champ moyen de ses voisins.

Ceci revient à remplacer une valeur moyenne telle que $\langle I_{\alpha}^i I_{\beta}^j \rangle$ par $\langle I_{\alpha}^i \rangle \langle I_{\beta}^j \rangle$. La valeur moyenne $\langle \mathcal{H}'_D \rangle$ de l'Hamiltonien (1) peut alors s'écrire :

$$(2) \quad \begin{aligned} \langle \mathcal{H}'_D \rangle &= \frac{1}{2} \sum_i \omega^i \cdot \langle \mathbf{I}^i \rangle \\ \omega_z^i &= 2 \sum_j A_{ij} \langle I_z^j \rangle \\ \omega_{x,y}^i &= - \sum_j A_{ij} \langle I_{x,y}^j \rangle \end{aligned}$$

L'étape suivante consiste à supposer que chaque spin est en équilibre thermique dans le champ moyen de ses voisins c'est-à-dire que :

$$(3) \quad \langle \mathbf{I}^i \rangle = - \frac{1}{2} \frac{\boldsymbol{\omega}^i}{|\boldsymbol{\omega}^i|} \tanh \frac{\beta |\boldsymbol{\omega}^i|}{2}$$

La méthode d'approximation due à Villain consiste à rechercher une solution du système d'équations (3) au voisinage de la température de transition β_c^{-1} lorsque les polarisations et les champs locaux sont très faibles et la tangente hyperbolique peut être remplacée par son argument donnant

$$(4) \quad \langle \mathbf{I}^i \rangle = -\frac{\beta_c}{4} \omega^i$$

$$\omega^i = \lambda \langle \mathbf{I}^i \rangle$$

$$\lambda = -4/\beta_c$$

où ω^i est donné par la deuxième équation (2). Le système (4) est résolu au moyen d'une transformation de Fourier

$$(5) \quad \begin{aligned} \mathbf{I}(\mathbf{k}) &= N^{-1/2} \sum_i \langle \mathbf{I}^i \rangle \exp \{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}^i\} \\ A(\mathbf{k}, \mathbf{n}) &= \sum_i A_{ij}(\mathbf{n}) \exp \{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}^i - \mathbf{r}^j)\} \end{aligned}$$

Les équations (4) deviennent :

$$(6) \quad \begin{aligned} [-A(\mathbf{k}, \mathbf{n}) - \lambda] I_{x,y}(\mathbf{k}) &= 0 \\ [2A(\mathbf{k}, \mathbf{n}) - \lambda] I_z(\mathbf{k}) &= 0 \end{aligned}$$

Il y a deux types de structures : les structures dites longitudinales pour lesquelles

$$(7) \quad \begin{aligned} I_x(\mathbf{k}) = I_y(\mathbf{k}) &= 0 \\ \lambda &= 2A(\mathbf{k}, \mathbf{n}) \end{aligned}$$

et les structures transversales, avec :

$$(8) \quad I_z(\mathbf{k}) = 0 \quad \lambda = -A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$$

On s'est limité dans le cours à l'étude de structures longitudinales (7), seules observées jusqu'à présent. Cette procédure n'est acceptable que si l'on peut montrer que dans tous les cas étudiés les structures longitudinales sont plus stables que les structures transversales. On vérifie qu'il en est bien ainsi. A entropie constante, ce qui est le cas pour une désaimantation adiabatique, la structure stable immédiatement au-dessous de la température de Curie est celle qui minimise l'énergie $\langle \mathcal{H}'_D \rangle$ pour une température positive et qui la maximise pour une température négative.

Au voisinage de la température de transition on a pour l'entropie et l'énergie :

$$(9) \quad \begin{aligned} S &\simeq N \text{Lg } 2 - \frac{1}{2} \sum_i \mathfrak{f}_i^2 \\ E &= \frac{1}{2} \sum_i \omega^i \cdot \langle \mathbf{I}^i \rangle = \frac{\lambda}{8} \sum_i \mathfrak{f}_i^2 \\ E &= \frac{\lambda}{4} (N \text{Lg } 2 - S) \end{aligned}$$

Il ressort de (9) que les structures stables au voisinage de la transition sont celles qui pour $T < 0$ maximisent λ , c'est-à-dire celles qui pour les structures longitudinales d'après (7) maximisent $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$. Elles le minimisent pour $T > 0$. On remarquera que puisque $\lambda = 4/\beta_c = -4k_\beta T_c/\hbar$ les structures stables sont celles qui correspondent aux températures critiques les plus élevées en valeur absolue.

La recherche des structures stables passe donc par le calcul pour chaque orientation \mathbf{n} de $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$ défini par (5). $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$ comme du reste $A_{ij}(\mathbf{n})$ se transforme par rotation de \mathbf{n} comme un harmonique sphérique d'ordre 2 et dépend donc des 5 composantes d'un tenseur symétrique à trace nulle $S_{\alpha\beta}(\mathbf{k})$. Ces composantes ont été tabulées par Cohen et Keffer à l'intérieur de la zone de Brillouin pour les 3 réseaux cubiques et on en déduit les valeurs de $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$.

Ce calcul appelle une remarque importante. On voit sur l'équation (5) que compte tenu de la longue portée de l'interaction dipolaire magnétique, $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$, dépend en réalité de la position du spin j pour lequel la sommation (5) est effectuée, ainsi que de la forme de l'échantillon dès que la longueur d'onde i/k devient comparable aux dimensions R de ce dernier. Dans le cas limite où $k = 0$ et suivant un résultat classique, $A(0, \mathbf{n})$ ne dépend pas de la position du spin si l'échantillon a la forme d'un ellipsoïde. Dans le cas intermédiaire où $ka \ll 1 \ll kR$ l'expression de $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$ devient particulièrement simple et pour un réseau cubique simple s'écrit :

$$(10) \quad A(\mathbf{k}, \mathbf{n}) = \frac{4\pi}{3} \frac{\gamma^2 \hbar}{2a^3} (3 \cos^2 \theta_{\mathbf{k}} - 1)$$

où $\theta_{\mathbf{k}}$ est l'angle entre les vecteurs \mathbf{k} et \mathbf{n} .

LES STRUCTURES ANTIFERROMAGNÉTIQUES

Les structures antiferromagnétiques, pour lesquelles la longueur du vecteur d'onde \mathbf{k} est comparable à l'inverse $1/a$ du pas du réseau, ne posent évidemment pas de problème pour la définition de $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$. Pour deux directions privilégiées du vecteur \mathbf{n} parallèle à un axe quaternaire ou à un axe binaire du cube on trouve par la méthode décrite dans le paragraphe précédent les structures stables suivantes :

$$\begin{aligned} \text{I)} \quad & \mathbf{n}_I // [001] \quad T < 0 \\ & \mathbf{k}_I = \left(0, 0, \frac{\pi}{a} \right) \\ & A(\mathbf{k}_I, \mathbf{n}_I) = 9,687 \frac{\gamma^2 \hbar}{2a^3} \\ & T_c^I = -6,13 \times 10^{-7} \text{ K pour Ca F}_2 \end{aligned}$$

Les plans antiferromagnétiques successifs sont les plans (001) perpendiculaires au champ magnétique appliqué.

$$\begin{aligned} \text{II)} \quad & \mathbf{n}_{\text{II}} // [001] \quad T > 0 \\ & \mathbf{k}_{\text{II}} = \left(\frac{\pi}{a}, \frac{\pi}{a}, 0 \right) \\ & A(\mathbf{k}_{\text{II}}, \mathbf{n}_{\text{II}}) = -5,352 \frac{\gamma^2 \hbar}{2a^3} \\ & T_c^{\text{II}} = 3,4 \times 10^{-7} \text{ K in Ca F}_2 \end{aligned}$$

Les plans antiferromagnétiques successifs sont parallèles au champ appliqué et perpendiculaires à un axe binaire.

$$\begin{aligned} \text{III)} \quad & \mathbf{n}_{\text{III}} // [110] \quad T > 0 \\ & \mathbf{k}_{\text{III}} = \left(0, 0, \frac{\pi}{a} \right) \\ & A(\mathbf{k}_{\text{III}}, \mathbf{n}_{\text{III}}) = -4,843 \frac{\gamma^2 \hbar}{2a^3} \\ & T_c = 3,6 \times 10^{-7} \text{ in Ca F}_2 \end{aligned}$$

Les plans antiferromagnétiques successifs sont perpendiculaires à un axe quaternaire.

En pratique, seule la structure I) a été étudiée expérimentalement.

Autour de chacune des orientations ci-dessus il existe pour des orientations voisines du champ magnétique une zone de stabilité où la structure est inchangée. Les valeurs approchées des températures critiques données ci-dessus n'ont pas grande signification physique, non seulement à cause de leur caractère approché mais aussi parce que le paramètre conservé (approximativement) dans la désaimantation est l'entropie reliée à la polarisation initiale. C'est donc la polarisation de départ critique P_c au-dessus de laquelle l'état final est ordonné que l'on souhaite pouvoir estimer. Cela peut se faire dans l'état actuel de la théorie par une méthode bâtarde qui combine la théorie de la température de spin dans l'état paramagnétique et la théorie du champ moléculaire. La première nous prédit que la température inverse initiale β_i est relié à β_f par :

$$(11) \quad \beta_f / \beta_i \simeq H_o / H'_L \simeq \gamma_n H_o / \gamma_n H'_L = \omega_o / D_L$$

ou encore, comme pour un spin 1/2 la polarisation initiale $|P_i| = \left| \frac{\beta_i \omega_o}{2} \right|$

on a :

$$|P_i| = \left| \frac{\beta_f D_L}{2} \right|$$

Si l'on a $\beta_f = \beta_c$ et comme d'après (7) $\lambda = 2 A(\mathbf{k}_0, \mathbf{n})$, et d'après (4) $\lambda = -4/\beta_c$ on trouve :

$$(12) \quad |P_c| = |D_L/A(\mathbf{k}_0, \mathbf{n})|$$

La formule (12) détermine les polarisations critiques pour les trois structures décrites plus haut. On trouve :

$$\begin{aligned} |P_{cI}| &= 0,326 \\ |P_{cII}| &= 0,59 \\ |P_{cIII}| &= 0,405 \end{aligned}$$

On remarquera que $\tanh\left(\frac{\beta|\omega^i|}{2}\right) / |\omega^i|$ est une fonction paire de $|\omega^i|$ et

donc pour une structure antiferromagnétique, indépendante de l'indice i . Il en résulte que l'équation (3), si elle est satisfaisante au voisinage de β_c lorsque $|\omega^i|$ et $|\mathbf{I}^i|$ sont petits, pourra l'être encore pour des valeurs différentes de β . La structure est alors stable à toute température et non pas seulement au voisinage de la transition. Nous appelons une telle structure « permanente ».

LES SUSCEPTIBILITÉS MAGNÉTIQUES

Les méthodes d'étude classiques de l'antiferromagnétisme sont les mesures des susceptibilités transversale et longitudinale χ_{\perp} et $\chi_{//}$, c'est-à-dire la réponse du système de spins à un petit champ appliqué, soit orthogonal, soit parallèle à l'aimantation des sous-réseaux. Puisqu'en champ élevé toute aimantation transversale des spins nucléaires précesse nécessairement à leur fréquence de Larmor ω_0 , le champ H_1 qui induit cette aimantation transversale est naturellement un champ de radiofréquence ω_0 .

La susceptibilité transversale peut être mesurée soit par la hauteur à la résonance du signal de passage rapide, soit extraite comme on l'a dit par la formule de Kramers-Kronig du signal d'absorption. Dans ce dernier cas, si l'on a calibré l'appareillage au préalable en mesurant l'aire d'un signal Zeeman de polarisation connue la mesure de χ_{\perp} est absolue. Le comportement de χ_{\perp} avec la température dans l'état antiferromagnétique est bien connu : il est facile de montrer que χ_{\perp} est à peu près indépendant de la

température : sous l'action de H_1 les aimantations $\pm M_o(T)$ des 2 sous-réseaux s'inclinent d'un petit angle, $\alpha(T)$ inversement proportionnel aux champs moléculaires et donc à $M_o(T)$. L'aimantation M_{\perp} qui en résulte proportionnelle à $\alpha(T) M_o(T)$ est donc indépendante de la température. Ceci est bien vérifié par l'expérience et la courbe de M_{\perp} en fonction de $1/T$ ou, en fonction de grandeurs plus accessibles à l'expérience, comme $\langle \mathcal{H}'_D(T) \rangle$ ou $\langle S_o - S(T) \rangle$, qui croissent avec $1/T$, est une droite parallèle à l'axe des abscisses.

Pour la susceptibilité longitudinale $\chi_{//}$, la théorie comme le principe de la mesure sont plus complexes. Ils ont été donnés dans le cours et ne sont pas repris dans ce résumé. Le point essentiel est que $\chi_{//}$ contrairement à χ_{\perp} tend vers zéro avec la température absolue. Cela est intuitivement évident : à température nulle, les aimantations des deux sous-réseaux sont saturées et ne sont pas modifiées par la petite variation du champ total qui résulte de l'addition au champ moléculaire d'un petit champ qui lui est parallèle (ou antiparallèle). En fonction de $1/T$ (ou $\langle \mathcal{H}'_D \rangle$, ou $S_o - S$) $\chi_{//}$ croît donc dans l'état paramagnétique, passe par un maximum, du reste très plat, dans l'état antiferromagnétique, puis décroît et tend vers zéro. L'existence d'un tel maximum dans le comportement de $\chi_{//}$ a été effectivement observé dans $Ca F_2$.

SONDE MAGNÉTIQUE ET SUSCEPTIBILITÉ NON LOCALE

En antiferromagnétisme électronique il est parfois possible de mesurer l'aimantation des sous-réseaux en observant la RMN d'un spin nucléaire. Si le champ moléculaire résultant produit par les deux sous-réseaux électroniques à l'emplacement du spin nucléaire n'est pas nul, il en résulte un déplacement de sa RMN qui permet d'étudier en valeur relative et parfois en valeur absolue l'aimantation des sous-réseaux. S'il existe pour les spins nucléaires 2 sites, non équivalents par rapport aux sous-réseaux, leur résonance se dédouble dans l'état antiferromagnétique électronique. Le spin nucléaire se comporte comme une sonde magnétique dont le moment est trop petit pour perturber de façon appréciable son environnement magnétique. On a pensé à faire jouer ce rôle de sonde dans $Ca F_2$ aux spins de ^{43}Ca , ceux de ^{19}F jouant le rôle des spins électroniques. Aucune des 2 conditions assignées aux sondes n'est vérifiée :

a) par raison de symétrie le champ moyen de ^{19}F est nul à l'emplacement des ^{43}Ca ;

b) la perturbation qu'un spin de ^{43}Ca exerce sur le système des fluors désaimantés n'est pas négligeable.

Paradoxalement c'est cette seconde circonstance qui permet de tirer des informations sur la susceptibilité non-uniforme $\chi_{//}(\mathbf{r})$ du système des spins de ^{19}F , de la RMN de ^{43}Ca . Un moment magnétique de ^{43}Ca dans un état quantique $S_z = m$ produit autour de lui un champ magnétique, inhomogène à l'échelle atomique, proportionnel à m . Ce champ inhomogène polarise le système des fluors environnants qui acquiert de ce fait une aimantation $\mathbf{M}(\mathbf{r})$, inhomogène mais également proportionnelle à m . Cette aimantation à son tour produit à l'emplacement du spin de ^{43}Ca dans l'état $S_z = m$, qui lui a donné naissance, un champ local qui déplace la résonance de ce spin d'une quantité proportionnelle à m . Un déplacement égal et de signe contraire est subi par un spin de ^{43}Ca dans l'état $S_z = -m$. Si la polarisation $\langle S_z \rangle$ de ^{43}Ca est nulle, ces deux états ont des poids statistiques égaux. Les signaux de résonance auxquels ils donnent naissance, sont de signes opposés, absorption ou émission, et comme ils sont déplacés en sens inverse, ils ne se compensent pas, et le signal de RMN de ^{43}Ca , qui n'est pas nul, a une forme antisymétrique, résultat classique pour un signal dipolaire. Un calcul théorique simple montre que l'énergie d'interaction entre spins de ^{43}Ca et de ^{19}F est reliée très directement à la susceptibilité non-uniforme du système des spins de ^{19}F . Nous avons dit plus haut que le premier moment de la RMN de ^{43}Ca était proportionnel à :

$$M_1(^{43}\text{Ca}) \propto (\langle \mathcal{H}'_{SS} \rangle + 1/3 \langle \mathcal{H}'_{IS} \rangle)$$

Comme les spins S sont très dilués, le premier terme $\langle \mathcal{H}'_{SS} \rangle$ est négligeable et la mesure de M_1 donne une mesure de la susceptibilité non-uniforme $\chi_{//}(\mathbf{r})$ de ^{19}F . Le calcul montre que cette susceptibilité passe au voisinage de la température de transition par un maximum nettement plus aigu que celui de la susceptibilité uniforme $\chi_{//}$ ce qui est effectivement observé. Toutefois, l'information obtenue à partir de la RMN de ^{43}Ca est particulièrement intéressante dans le cas d'une structure ferromagnétique de CaF_2 , que nous traitons maintenant.

FERROMAGNÉTISME A DOMAINES DANS CaF_2

Un ordre ferromagnétique à longue distance est associé à un vecteur d'ordre $\mathbf{k} = 0$. Pour un échantillon sphérique il se trouve que l'on a $\mathbf{A}(0, \mathbf{n}) = 0$ alors que pour toute direction \mathbf{n} du champ on peut trouver des vecteurs \mathbf{k} et \mathbf{k}' tels que $\mathbf{A}(\mathbf{k}, \mathbf{n}) > 0$, $\mathbf{A}(\mathbf{k}', \mathbf{n}) < 0$. Il en résulte qu'un état ferromagnétique monodomaine, c'est-à-dire associé à un vecteur $\mathbf{k} = 0$ n'est pas observable dans un échantillon sphérique. Au contraire, une structure à domaines de dimensions très inférieures à \mathbf{R} et très supérieures à a n'est pas à exclure. Elle s'écrit comme une superposition de modes \mathbf{k}

avec $ka \ll 1 \ll kR$. La valeur de $A(\mathbf{k}, \mathbf{n})$ est donnée alors par (10). Pour $\mathbf{k} // \mathbf{n}$ cette valeur est d'après (10) :

$$A_0 = (8 \pi / 3) (\gamma^2 \hbar / 2a^3)$$

Il se trouve que lorsque \mathbf{n} a la direction $\mathbf{n}_0 // [111]$, pour tout \mathbf{k} $|A(\mathbf{k}, \mathbf{n}_0)| \leq A_0$. On peut donc espérer construire à température négative une structure ferromagnétique avec des domaines plans perpendiculaires au champ magnétique appliqué le long d'un axe ternaire. On peut par une superposition de modes \mathbf{k} , réaliser approximativement une structure où l'aimantation a dans chaque domaine une aimantation uniforme $\pm M$ et a donc, comme pour les antiferromagnétiques, un caractère « permanent ».

La vérification expérimentale de la réalité d'une telle structure aurait été malaisée en l'absence de la sonde ^{43}Ca . On se convainc aisément que le signal ADRF de ^{19}F dans cette structure que nous appelons « ferrosandwich » est très semblable à celui d'une structure antiferromagnétique et que χ_{\perp} a le même comportement en fonction de la température. Par contre le signal Zeeman de ^{43}Ca y est très différent. Suivant que le spin de ^{43}Ca se trouve dans un domaine d'aimantation $+M$ ou $-M$, il voit de la part des fluors un champ moléculaire différent d'où l'observation de deux raies de ^{43}Ca .

L'étude du spectre de ^{43}Ca a permis d'éclaircir un très grand nombre de points : mesurer par l'écart des 2 raies de ^{43}Ca la valeur de l'aimantation des ^{19}F dans les domaines et vérifier le comportement des domaines en fonction de la composante longitudinale du champ effectif. On a montré que, conformément à la théorie, lorsque ce champ augmente ce n'est pas l'aimantation des sous-réseaux mais leurs tailles respectives qui varient et que le passage au paramagnétisme se fait pas disparition d'un des deux types de domaines.

On a également pu mettre en évidence un phénomène remarquable, la reproductibilité des domaines. Lors d'une séquence, désaimantation D_1 , réaimantation R , seconde désaimantation D_2 , les domaines après D_2 occupent approximativement les mêmes positions qu'après D_1 . Ce phénomène, qui a pu être mis en évidence en donnant après D_1 (et avant R) des polarisations différentes aux 2 raies de ^{43}Ca , n'a pas reçu d'explication satisfaisante.

Par ailleurs, la taille L des domaines semble bien inférieure à la valeur attendue : $L \approx (Ra)^{1/2}$. Un ordre de grandeur de L a été fourni par la mesure du temps d'uniformisation de la polarisation inhomogène de ^{43}Ca par diffusion de spin.

ORDRE NUCLÉAIRE ET NEUTRONS

Ce sujet n'a été qu'effleuré et sera repris l'année prochaine.

On sait le rôle que la diffraction de neutrons a joué dans l'étude des aspects microscopiques du magnétisme électronique. D'une façon simple on peut dire que le neutron peut « reconnaître » l'orientation d'un spin électronique grâce à son interaction magnétique avec ce spin. Dans le cas des spins nucléaires l'interaction magnétique est très faible mais il existe un autre moyen de « reconnaissance » : le couplage d'origine purement *nucléaire* entre le spin du neutron et celui du noyau. Il est commode de mesurer la force de ce couplage en attribuant au noyau un moment magnétique fictif dit pseudomagnétique, en général beaucoup plus grand que son vrai moment magnétique.

Malheureusement le moment pseudomagnétique de ^{19}F est anormalement petit, trop petit pour envisager de façon réaliste une étude aux neutrons de l'ordre nucléaire dans la Ca F_2 . Une autre substance, l'hydrure de lithium, répond beaucoup mieux aux exigences du neutron. Les résultats correspondants seront passés en revue l'an prochain.

A. A.

SÉMINAIRES

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

D. JEROME (Orsay), *Evolution récente du problème des conducteurs organiques.*

C. COHEN-TANNOUDJI (E.N.S.), *Nouvelle méthode pour compenser l'élargissement Doppler.*

I. SOLOMON (Polytechnique), *Un nouvel alliage semi-conducteur : le silicium amorphe hydrogéné.*

B. BLEANEY (Oxford), *New results on enhanced nuclear magnetism.*

E.R. ANDREW (Université de Nottingham), *NMR Imaging.*

D. GOURIER (E.N.S. de Chimie de Paris et Ecole Polytechnique), *Effet tunnel et mouvement par sauts des ions NH_4^+ dans le superconducteur ionique β -aluminat d'ammonium.*

J.F. JACQUINOT (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), *Recherche de l'ordre magnétique nucléaire dans le cuivre métallique au laboratoire d'Otaniemi, Finlande.*

J. SZEFTTEL (Faculté des Sciences d'Orsay), *Etude de la structure locale de chalcogénures vitreux par mesure du gradient de champ électrique.*

F.I.B. WILLIAMS (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), *Solides électroniques à deux dimensions.*

M. ROGER (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), *Ordre magnétique et échange à 4 spins dans l'hélium 3 solide.*

PUBLICATIONS

A. ABRAGAM (avec G.L. BACCHELLA, V. BOUFFARD, M. GOLDMAN, P. MERIEL, M. PINOT, Y. ROINEL, P. ROUBEAU), *Première observation d'une structure antiferromagnétique nucléaire par diffraction neutronique (C.R. Acad. Sci. Paris, t. 286, 5 juin 1978).*

A. ABRAGAM (avec Y. ROINEL, V. BOUFFARD, G.L. BACCHELLA, M. PINOT, P. MERIEL, P. ROUBEAU, O. AVENEL et M. GOLDMAN), *First Study of Nuclear Antiferromagnetism by Neutron Diffraction (Phys. Rev. Letters, 41, 22, p. 1572, 1978).*

A. ABRAGAM, *Polarized Targets in High Energy Physics and Elsewhere (A paraître dans Proceedings of III International Symposium on high energy physics with polarized beams and targets).*

A. ABRAGAM (avec V. BOUFFARD, M. GOLDMAN et Y. ROINEL), *Nuclear Magnetic Ordering (Journal de Physique, Colloque C6, supplément au n° 8, tome 39, août 1978, p. C6-1436).*

MISSIONS ET CONFÉRENCES

Conférence internationale sur les Basses Températures LT.15 (Grenoble, 23-29 août 1978).

Assemblée générale de l'Union Internationale de Physique Pure et Appliquée (Stockholm, 15-23 septembre 1978).

Conférence prononcée à l'Institut Niels Bohr de Copenhague (Copenhague, 25 septembre 1978).

Conférence internationale sur les Cibles et Faisceaux Polarisés (Argonne, 23-28 octobre 1978).

Conférences prononcées sur invitation aux Universités de : Rutgers, Harvard, Berkeley, Los Angeles, Chicago, Oxford, ainsi qu'à Bell-Telephone Laboratories (10 octobre - 5 novembre 1978).

Participation au Jury du Prix Francqui (Bruxelles, 21 avril 1979).

RAPPORT D'ACTIVITÉS DU LABORATOIRE

Le Laboratoire de Magnétisme Nucléaire dirigé par M. Anatole ABRAGAM constitue au Commissariat à l'Energie Atomique un groupe du Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique. Il comporte dix-sept chercheurs dont quatre boursiers de thèse et deux visiteurs étrangers, un ingénieur chimiste et huit techniciens.

Les travaux du Laboratoire au cours de l'année 1978-1979 sont résumés ci-dessous.

a) Etude par diffraction de neutrons de l'ordre magnétique nucléaire dans l'hydrure de lithium

Cette expérience, entreprise depuis plusieurs années en collaboration avec le Groupe des Basses Températures et le Groupe de Diffraction Neutronique du Service, a connu son premier succès spectaculaire au printemps 1978, par l'observation d'une raie de diffraction de surstructure correspondant à une phase antiferromagnétique de l'hydrure de lithium, confirmant ainsi de façon directe l'existence de l'ordre à longue distance prévu par la théorie. Le travail de cette année a consisté en une étude des propriétés de cette première phase antiferromagnétique, ainsi qu'en la détection de trois autres phases ordonnées dans cette même substance : deux phases antiferromagnétiques et une phase ferromagnétique, toutes conformes aux prédictions théoriques.

La production des basses températures nucléaires nécessaires à l'apparition des phases ordonnées (inférieurs au μ K) est réalisée en deux étapes : polarisation dynamique en présence de centres F au moyen d'une irradiation hyperfréquence, suivie d'une désaimantation adiabatique nucléaire en champ élevé au moyen d'irradiations de radiofréquence. Le champ extérieur de 6,5 Teslas est produit par un aimant supraconducteur, et la température de l'échantillon, d'environ 50 mK est produite par un réfrigérateur à dilution.

Pour la détection des neutrons diffractés, outre un compteur habituel enregistrant l'ensemble de l'intensité diffractée, on a mis en œuvre un prototype

de compteur bi-dimensionnel de type nouveau, réalisé par le laboratoire LETI de Grenoble, qui permet une résolution fine de la distribution angulaire du faisceau diffracté. Cette connaissance, liée à celle de la variation du comptage avec l'angle de rotation de l'échantillon (« rocking curve »), donne un accès direct à la taille et à la forme des domaines ordonnés.

Dans la première phase observée : phase antiferromagnétique à température de spin négative lorsque le champ extérieur est le long d'un axe quaternaire du cristal, la réflexion de surstructure est la réflexion 110. On a étudié la variation de la polarisation des sous-réseaux de protons en fonction de diverses grandeurs physiques : entropie, énergie et température, étude dont le dépouillement est en cours. La polarisation maximum de sous-réseaux observée est de l'ordre de 80 %. Les domaines sont sous forme de plaquettes perpendiculaires au champ, dont l'épaisseur est de 40 à 50 Å et la largeur de 150 à 200 Å. Les deux autres phases antiferromagnétiques ont été détectées à température de spin positive. Lorsque le champ est le long d'un axe quaternaire, la réflexion de surstructure est 110 ; lorsque le champ est le long d'un axe binaire, la réflexion de surstructure est 100.

La phase ferromagnétique est produite à température négative lorsque le champ est parallèle à un axe binaire. Elle est détectée sur la réflexion 200 par l'apparition d'une tache de diffraction très allongée, superposée à la tache étroite de diffraction cristalline, et provoquée par la petitesse des domaines ferromagnétiques. Ceux-ci sont des plaquettes perpendiculaires au champ dont les dimensions approximatives (et préliminaires) sont : $20 \times 160 \times 160$ Å.

Les études de diffraction de neutrons sont provisoirement interrompues par l'arrêt du réacteur EL.3 et ne reprendront qu'à la mise en marche du nouveau réacteur actuellement en construction. Des études purement magnétiques seront poursuivies dans l'intervalle.

(ROINEL, BOUFFARD, MERIEL, BACCHELLA, PINOT, ROUBEAU, AVENEL, GOLDMAN, ABRAGAM.)

b) *Pseudo magnétisme nucléaire*

Le moment pseudomagnétique nucléaire μ^* , proportionnel à la partie dépendant du spin de l'amplitude de diffusion neutron-noyau est mesuré en observant la rotation du spin de neutrons traversant une cible nucléaire polarisée. Après la détermination des moments μ^* de nombreux noyaux dans les métaux, effectuée au cours des années précédentes, l'activité s'est déplacée vers la mesure de moments μ^* d'espèces nucléaires contenues dans des solides isolants. Les temps de relaxation nucléaire à basse température y étant prohibitivement longs, la polarisation nucléaire doit être produite de façon dynamique, par la méthode de l'effet solide. La polarisation dynamique pose

pour chaque échantillon des problèmes nouveaux qu'il a fallu résoudre. Les centres paramagnétiques nécessaires à l'effet solide ont été, pour la plupart, créés par irradiation aux rayons γ de ^{60}Co à la température de l'azote liquide, sauf pour CaO où l'on a utilisé une irradiation aux neutrons à température ambiante. On a utilisé soit des poudres ($\text{Ca } ^{17}\text{O}$, $\text{Ba } ^{13}\text{CO}_3$ et $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$), soit des monocristaux (KBr , KI et KCl). Les temps de polarisation ont imposé une polarisation limite pratique de $\pm 10\%$ pour ^{13}C , ^{17}O , ^{35}Cl et ^{37}Cl , et de $\pm 2\%$ pour ^{31}P , ^{79}Br et ^{81}Br .

On a mesuré les moments μ^* des noyaux ^{13}C , ^{17}O , ^{35}Cl , ^{79}Br et ^{81}Br , et l'on a pu que donner des limites supérieures de μ^* pour ^{31}P et ^{37}Cl .

Les moments pseudomagnétiques de ^{13}C ($\mu^* = -0,11 \mu_{\text{B}}$) et ^{17}O ($\mu^* = +0,05 \mu_{\text{B}}$) présentent un intérêt particulier : ils ont donné lieu à des calculs théoriques basés sur des modèles de fonctions d'onde, et le bon accord constaté entre les valeurs théoriques et expérimentales constitue une importante confirmation de la validité de ces modèles.

(GLÄTTLI, COUSTHAM.)

c) *Etude de l'ordre orientationnel dans les solides moléculaires H_2 , D_2 , N_2*

Dans l'hydrogène, le deutérium et l'azote solides, on observe en abaissant la température des transitions du premier ordre entre une phase désordonnée caractérisée par une libre rotation des molécules situées aux nœuds du réseau cristallin, et une phase ordonnée où les molécules possèdent une orientation moyenne déterminée. L'interaction responsable de ces transitions est l'interaction quadrupolaire intermoléculaire. L'intérêt de ces systèmes est que la structure ordonnée est frustrée : il est impossible de réaliser une configuration tridimensionnelle compacte où l'énergie de couplage entre deux quadrupoles soit minimum. La frustration joue un rôle essentiel dans de nombreux cas de systèmes ordonnés : systèmes réguliers et surtout systèmes dilués aléatoirement comme les alliages métalliques.

L'hydrogène et le deutérium solides sont des composés idéaux pour étudier l'influence de la frustration sur les systèmes concentrés et dilués, à cause de l'existence d'espèces moléculaires $J = 0$, dénuées de moment quadrupolaire, et qui constituent un diluant parfait dont on peut varier la concentration : les interactions dans H_2 et D_2 sont connues, et la résonance magnétique permet une mesure directe des paramètres d'ordre.

Les études effectuées les années précédentes sur H_2 solide ont révélé l'existence de deux domaines. Pour des concentrations X de l'espèce $J = 1$ supérieures à une valeur critique $X_C \simeq 59\%$, on observe un ordre à longue portée avec un paramètre d'ordre bien déterminé. Pour $X < X_C$, la forme des

signaux de RMN révèle que si les orientations moléculaires sont bien gelées en dessous de la transition ; il existe cependant une large distribution des paramètres d'ordre. Le gel des orientations moléculaires est confirmé par les études de relaxation nucléaire. Cette phase est interprétée comme étant un verre quadrupolaire.

Ces études ont été étendues à D_2 solide dans une gamme de concentration X de l'espèce quadrupolaire allant de 42 à 75 %. L'analyse des formes de raie de RMN du deutérium permet de retrouver les phénomènes observés avec H_2 : ordre orientationnel à longue portée pour $X > X_C \simeq 55\%$ et verre quadrupolaire caractérisé pour $X < X_C$. Le diagramme de phase $T_C = f(X)$ a été déterminé pour $0,42 \leq X \leq 0,75$ et trouvé analogue à celui de H_2 . L'extension des mesures à $X < 42\%$ est rendue difficile par des problèmes de signal sur bruit. Un montage utilisant des amplificateurs cryogéniques et des méthodes d'impulsions est en cours de réalisation afin de dépasser cette limite.

L'hydrogène et le deutérium solides présentent des effets quantiques importants, et il est intéressant de savoir s'il apparaît un verre quadrupolaire dans un système de quadrupoles classiques. C'est pourquoi on a entrepris l'étude des mélanges azote-argon. La molécule d'azote possède un moment quadrupolaire et doit s'ordonner, tandis que l'argon sert de diluant. L'ordre orientationnel de $^{14}N_2$ pur a été mis en évidence par l'apparition d'une résonance quadrupolaire de fréquence proportionnelle au paramètre d'ordre. Malheureusement cette résonance s'élargit énormément en présence d'argon. C'est pourquoi les mélanges seront réalisés avec l'isotope ^{15}N . L'apparition de l'ordre se manifestera par la structure dipolaire de la raie de résonance magnétique des molécules $^{15}N_2$. L'appareillage nécessaire à ces expériences est en cours de réalisation.

(SULLIVAN, DEVORET, ESTEVE.)

d) *Etude expérimentale de l'hélium trois solide à basse température*

Alors qu'un Hamiltonien de Heisenberg d'échange à deux spins rend remarquablement compte des propriétés de 3He solide à haute température, les études effectuées ces dernières années dans divers laboratoires ont révélé sa totale incapacité à décrire les phénomènes de transitions magnétiques ainsi que les effets thermodynamiques prétransitionnels. L'étude de 3He solide à très basse température et dans une large gamme de champs magnétiques a de ce fait connu un important regain d'intérêt, et l'expérience présente y est consacrée.

On a réalisé un réfrigérateur à dilution descendant jusqu'à quelques millikelvins dans un champ pouvant atteindre 10 T. Les essais de fonctionnement

du réfrigérateur touchent à leur terme et sont satisfaisants. La première expérience entreprise consiste à observer l'influence du champ magnétique soit sur la pression d'équilibre solide-liquide à température constante, soit sur la pression du solide à température et volume molaire constants. Les valeurs de H/T seront de deux à trois fois supérieures à la limite du domaine exploré jusque là.

Les éléments essentiels à la réalisation de l'expérience sont d'une part une jauge de pression capacitive sensible à quelques dixièmes de millibar qui a été réalisée et testée, et d'autre part un thermomètre insensible ou peu sensible au champ magnétique. Le thermomètre dont l'utilisation est prévue est un thermomètre capacitif à verre de $SrTiO_3$. Pour $T > 1 K$, ce thermomètre est connu pour être indépendant du champ. Dans une série d'expériences on a mesuré la capacité en fonction de la température en champ nul, en utilisant comme thermomètres « primaires » la mesure du temps de relaxation T_1 du platine et la mesure de la pression sur la courbe de fusion de He. On a étudié la reproductibilité de ce thermomètre et les petites corrections à appliquer en présence de ce champ.

Une cellule de pression en résine Stycast est en cours de fabrication en vue des expériences prévues. Elle est équipée d'une bobine de résonance afin d'effectuer des mesures de temps de relaxation T_1 , à H élevé et T faible, dans un domaine où ces temps sont mal connus et mal compris, et où leur connaissance est nécessaire en vue d'expériences de désaimantation adiabatique du solide fortement polarisé.

(BERNIER, SMITH, ARCHIE.)

e) *Etude théorique de l'hélium trois solide*

L'étude théorique de modèles d'Hamiltonien de l'hélium 3 solide et de leur confrontation aux données expérimentales existantes a notablement progressé et a été approfondie.

On sait qu'à basse température, 3He solide dans la phase cubique centrée possède à la fois des propriétés généralement liées aux systèmes antiferromagnétiques (sa température de Curie-Weiss est négative) et des propriétés de type ferromagnétique (augmentation de la susceptibilité par rapport à la loi de Curie-Weiss ; terme positif en T^{-3} dans la chaleur spécifique), ce qui est incompatible avec un Hamiltonien d'échange à deux spins. On retrouve cette incompatibilité dans le diagramme de phase champ-température : en champ faible, transition du premier ordre vers une phase de faible susceptibilité, et en champ élevé transition du deuxième ordre vers une phase de forte susceptibilité.

Le modèle utilisé comporte un terme d'échange à quatre spins et un terme d'échange à trois spins, dont les grandeurs sont ajustées de façon à rendre compte au mieux des résultats expérimentaux. Dans la phase cubique centrée, \mathcal{H}_4 est beaucoup plus grand que \mathcal{H}_3 .

Les calculs effectués les années précédentes étaient limités à l'approximation du champ moléculaire. Ils ont néanmoins permis d'obtenir par un choix des paramètres un accord qualitatif global satisfaisant avec un certain nombre de faits expérimentaux. On a entrepris cette année d'améliorer cette approximation par une méthode de développement de l'énergie libre par rapport au champ moléculaire. Cette méthode, suggérée par Boccara, permet de rendre partiellement compte des corrélations à courte distance entre spins. La correction du second ordre apporte déjà une amélioration notable des propriétés des deux phases prédites : antiferromagnétique à quatre sous-réseaux en champ faible et antiferromagnétique à deux sous-réseaux de type « spin-flop » en champ élevé. Compte tenu de l'importance des fluctuations, dont l'origine réside dans l'existence d'un point bicritique en champ nul, il semble qu'un résultat vraiment satisfaisant nécessite l'inclusion des corrections d'ordre 3 et 4, dont le calcul est envisagé.

Du point de vue fondamental, l'existence d'échanges cycliques à plusieurs spins est une conséquence naturelle des corrélations géométriques de cœurs durs. Un calcul microscopique approché prévoit que dans la phase cubique centrée, le terme prépondérant est l'échange à 4 spins, tandis que dans la phase hexagonale compacte existant à $P > 100$ atm, c'est le terme d'échange à 3 spins qui doit être prépondérant. Dans cette phase cristalline, la phase magnétique ordonnée devrait être ferromagnétique. La vérification éventuelle de ce fait, qui expérimentalement semble encore un peu lointaine, constituerait une preuve de la validité de cette théorie.

(DELRIEU, ROGER.)

f) *Etude de la production d'hélium trois liquide polarisé*

Ce travail a été effectué à Copenhague au cours d'une mission de longue durée par un physicien du laboratoire en collaboration avec les Universités de Copenhague et de Grenoble. Il visait à observer si, selon les idées de Castaing et Nozière, la fusion rapide du solide polarisé conservait son aimantation et permettait donc de produire un liquide dont la polarisation nucléaire serait très supérieure à sa valeur d'équilibre thermique.

L'expérience a été réalisée dans un champ de 3 Teslas. Le solide était formé par compression Pomerantchuk avec une température initiale de 17 mK. On a observé que le solide se polarisait au cours de sa lente formation, que l'aimantation globale restait inchangée au cours de la liquéfaction par

décompression soudaine, et que le temps de relaxation nucléaire du liquide était de plusieurs minutes, variable en fonction du champ et de la pression.

Cette expérience démontre la possibilité de produire un liquide de Fermi très polarisé, c'est-à-dire très fortement hors d'équilibre. Elle ouvre la perspective d'une étude d'un système entièrement nouveau, dont les propriétés devraient être très inhabituelles.

(CHAPELLIER.)

g) Contribution à la recherche de l'ordre magnétique nucléaire dans le cuivre métallique

Au cours d'une mission de longue durée à l'Université de Technologie d'Helsinki, un physicien du laboratoire a collaboré à une expérience visant à produire et étudier l'ordre magnétique nucléaire en champ nul dans le cuivre.

Le principe du refroidissement est analogue à celui utilisé dans notre laboratoire : polarisation nucléaire en champ élevé suivie d'une désaimantation adiabatique. La démarche expérimentale s'en différencie sur deux points. Premièrement, la polarisation en champ élevé est produite par « force brutale », c'est-à-dire refroidissement de tout l'échantillon vers 1 mK. Cette procédure est possible dans les métaux dont les temps de relaxation nucléaire restent finis à basse température. L'échantillon est couplé thermiquement à une grosse masse de cuivre. Cette dernière est d'abord refroidie par un réfrigérateur à dilution, puis désaimantée adiabatiquement. Le second point est que la deuxième désaimantation adiabatique, celle de l'échantillon, est effectuée dans le référentiel du laboratoire et non dans le référentiel tournant.

L'aimantation nucléaire est mesurée par résonance. En champ nul ou faible, le détecteur de la résonance est un interféromètre quantique supraconducteur (SQUID). En présence d'interactions dipolaires et RKKY, la structure prévue est antiferromagnétique, avec $T_c \sim 0,2 \mu\text{K}$. Des mesures d'énergie et d'entropie ont permis d'obtenir la courbe entropie-température. A la température minimum obtenue de $5 \cdot 10^{-2} \mu\text{K}$ (environ 0,2 T_c théorique), l'entropie n'a diminué que de moitié par rapport à sa valeur maximum. La non-production d'un ordre magnétique, contrairement aux prédictions, n'est pas comprise à l'heure actuelle.

(JACQUINOT.)

PUBLICATIONS DES TRAVAILLEURS DU LABORATOIRE

Y. ROINEL, V. BOUFFARD et P. ROUBEAU, *Nuclear antiferromagnetism in lithium hybride (J. Physique, 39, 1097, 1978).*

V. BOUFFARD, C. PASQUETTE et Y. ROINEL, *Boucle à Argon pour irradiation à 90 K* (*Rev. Phys. Appliquée*, 13, 304, 1978).

P. ROUBEAU, Y. ROINEL, V. BOUFFARD et O. AVENEL, *A ^3He dilution refrigerator for neutron diffraction study of nuclear antiferromagnetic order* (*J. Physique*, 39, C6-1146, 1978).

J.F. JACQUINOT, O.V. LOUNASMAA et C. URBINA, *Dynamic Polarization : The role of nuclei inside the diffusion barrier* (*Physica*, B 95, 76, 1978).

G.J. ENHOLM, J.P. EKSTRÖM, J.F. JACQUINOT, M.T. LOPONEN, O.V. LOUNASMAA et J.K. SOINI, *Evidence for nuclear antiferromagnetism in copper* (à paraître).

N.S. SULLIVAN, M. DEVORET, B.P. COWAN et C. URBINA, *Evidence for quadrupole glass phases in solid hydrogen at reduced ortho concentrations* (*Phys. Rev.*, B 17, 5016, 1978).

H.R. WAMPACH et N.S. SULLIVAN, *A low dissipation tunable RF preamplifier for low temperature NMR applications* (*Rev. Sci. Instr.*, 49, 1622, 1978).

N.S. SULLIVAN et M. DEVORET, *Nuclear spin-lattice relaxation as evidence for a low temperature phase transition in solid $n\text{-D}_2$* (*J. Physique*, 39, C6-92, 1978).

M. DEVORET, N.S. SULLIVAN et P. DESCHAMP, *A simple thermal conductivity cell using an ultra thin film printed circuit for measurements of compositions of binary gas mixtures* (*Rev. Sci. Instr.*, à paraître).

G. DEVILLE, M. BERNIER et J. DELRIEU, *NMR multiple echoes observed in solid ^3He* (*Phys. Rev.*, B 19, 1, 1979).

M. ROGER, *Four-spin exchange explains some experimental magnetic properties of b.c.c. ^3He* (*J. Physique*, 39, C6-128, 1978).

J.M. DELRIEU et M. ROGER, *Physical origin of a large four-spin exchange in solid b.c.c. ^3He* (*J. Physique*, 39, C6-123, 1978).

E.D. ADAMS, J.M. DELRIEU et A. LANDESMAN, *Thermodynamic study of magnetically ordered solid ^3He* (*J. Physique Lett.*, 39L, 190, 1978).

G. DEVILLE, J.M. DELRIEU et M. BERNIER, *Self-diffusion in solid ^3He at very low temperature* (*J. Physique Lett.*, 39 L, 453, 1978).

M. CHAPPELLIER, *Heat transfer between Ce salts dilute ^3He below 50 mK* (*J. Physique*, 39, C6-273, 1978).

M. CHAPPELLIER, M. CHIBA et M. ROTTER, *Heat transfer between sapphire ($Al_2O_3 : Fe^{3+}$) and dilute 3He at very low temperature (J. Physique, 39, C6-271, 1978).*

H. GODFRIN, G. FROSSATI, D. THOULOZE, M. CHAPPELLIER et W.G. CLARK, *NMR measurements on liquid 3He confined in alumina and platinum powders and grafoil (J. Physique, 39, C6-287).*

M. CHAPPELLIER, G. FROSSATI et F.B. RASMUSSEN, *Spin polarization of liquid 3He by rapid melting of polarized solid (Phys. Rev. Lett., 42, 904, 1979).*