

Magnétisme nucléaire

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

Le cours de cette année a été consacré à l'utilisation des faisceaux de neutrons lents pour l'étude du magnétisme nucléaire et singulièrement de l'ordre magnétique nucléaire.

Le neutron lent présente quatre particularités qui en ont fait dans le passé un outil de choix pour l'étude fine du magnétisme électronique.

a) Ne portant pas de charge électrique il traverse sans encombre de grandes quantités de matière.

b) Sa longueur d'onde, de l'ordre de 10^{-8} cm pour les neutrons thermiques est commensurable avec les distances interatomiques.

c) Son énergie est commensurable avec les énergies d'excitation des mouvements atomiques et moléculaires, ou avec des énergies d'excitation des systèmes magnétiques électroniques. La diffusion inélastique des neutrons fournit des renseignements précieux sur les spectres d'énergie de ces systèmes.

Son moment magnétique interagissant avec les moments magnétiques électroniques des atomes cibles permet au neutron de « reconnaître » l'orientation de ces moments et de mettre en évidence les structures magnétiques ordonnées.

Lorsque l'on passe au magnétisme nucléaire les propriétés a) et b) n'appellent pas de commentaires.

Par contre la propriété c) est de peu d'utilité pour l'étude du magnétisme nucléaire. Le spectre d'énergie d'un système de spins nucléaires en interaction a une largeur qui se mesure en microdegrés, alors que la résolution en énergie des spectres de diffusion inélastique est au mieux d'une dizaine de millidegrés.

Enfin, en ce qui concerne d) la petitesse des moments magnétiques nucléaires décourage toute tentative d'utiliser leur interaction avec le moment magnétique du neutron pour une étude du magnétisme nucléaire.

Il existe heureusement un phénomène qui permet de pallier cette dernière carence : l'existence dans l'amplitude de diffusion *nucléaire* d'un neutron par un noyau, d'un terme dépendant de l'orientation relative du spin du neutron et du spin nucléaire. C'est lui qui permet au *spin* du neutron de « reconnaître » l'orientation d'un spin nucléaire, de la même façon que le moment magnétique du neutron « reconnaît » l'orientation du *moment magnétique* électronique d'un atome cible.

On a introduit le concept de moment pseudomagnétique nucléaire et le concept du champ pseudomagnétique et de précession pseudomagnétique, associés à une cible nucléaire polarisée. Ces concepts se sont révélés féconds.

1. ÉPITOME DE LA THÉORIE DE LA DIFFUSION ÉLASTIQUE DES NEUTRONS LENTS

1.A. Diffusion par un seul noyau de spin nul

Dans le cas d'un faisceau incident représenté par une onde plane $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ la fonction d'onde $\Psi(\mathbf{r})$ du neutron présente à grande distance du noyau diffuseur la forme asymptotique :

$$(1) \quad \Psi(\mathbf{r}) \rightarrow \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - f(\theta) e^{ikr}/r$$

somme d'une onde plane et d'une onde sphérique divergente.

L'amplitude de diffusion $f(\theta)$ où θ est l'angle du vecteur d'onde incident \mathbf{k} avec le vecteur \mathbf{k}' de l'onde diffusée, est donnée par

$$(2) \quad f(\theta) = \frac{M}{2\pi\hbar^2} \int V(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} \Psi(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

La formule (2), où M est la masse du neutron et $V(\mathbf{r})$ son potentiel d'interaction avec le noyau donne l'amplitude de diffusion sous une forme implicite, puisque le second membre contient la fonction d'onde inconnue $\Psi(\mathbf{r})$. Cette formule se simplifie considérablement dans deux cas :

a) *approximation de Born*, applicable quelle que soit la portée du potentiel $V(\mathbf{r})$ supposé faible. On remplace dans (2), $\Psi(\mathbf{r})$ par l'onde incidente $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ d'où :

$$(3) \quad f(\theta) = \frac{M}{2\pi\hbar^2} \int V(\mathbf{r}) e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r}$$

où $\boldsymbol{\kappa} = (\mathbf{k}' - \mathbf{k})$ est le transfert d'impulsion du neutron.

b) *approximation dite de l'onde s*, applicable quelle que soit la force du potentiel si la portée est beaucoup plus petite que la longueur d'onde du

neutron. On peut alors dans (2) remplacer l'exponentielle $\exp[-i(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})]$ par l'unité ce qui conduit l'amplitude de diffusion $f(\theta)$ à une valeur a , indépendante de la direction de diffusion. Tout se passe comme si dans le développement en harmoniques sphériques de l'onde neutronique on s'était limité au terme $l = 0$, d'où l'expression : approximation de l'onde s .

Il est souvent commode, à la suite de Fermi, d'introduire un potentiel fictif :

$$(4) \quad V_f(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{M} a \delta(\mathbf{r})$$

Ce potentiel, très différent du vrai potentiel $V(\mathbf{r})$ et donc *incorrect* redonne, si l'on utilise, *incorrectement*, l'approximation de Born (3), la valeur *correcte* a de l'amplitude de diffusion.

1.B. Diffusion par un noyau de spin $I \neq 0$

La grandeur J du moment cinétique total neutron plus noyau : $\mathbf{J} = \mathbf{I} + \mathbf{s}_N + \mathbf{I}$ est un bon nombre quantique et, dans l'approximation de l'onde s , justifiée pour la diffusion purement nucléaire (mais non pour la diffusion magnétique !), $l = 0$, $\mathbf{J} = \mathbf{s}_N + \mathbf{I}$ et $J_{\pm} = I \pm 1/2$.

Aux deux valeurs de J correspondent deux amplitudes de diffusion nucléaire b_{\pm} . Ce résultat peut être réécrit de façon condensée, sous forme opératoire :

$$(5) \quad a = b_0 + b(\mathbf{I} \cdot \mathbf{s}_N)$$

où les constantes b_0 et b sont reliées à b_{\pm} par :

$$(6) \quad b_0 = \frac{(I+1)b_+ + I b_-}{2I+1}, \quad b = \frac{2(b_+ - b_-)}{2I+1}$$

Bien que, comme on l'a dit, la diffusion nucléaire magnétique soit négligeable il est instructif d'en calculer l'amplitude par la formule de Born (3). Le potentiel $V(\mathbf{r})$ est l'interaction du moment magnétique neutronique $\boldsymbol{\mu}_N$ avec le champ $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ produit par le moment nucléaire $\boldsymbol{\mu}$ et donné par la formule connue :

$$(7) \quad \mathbf{H}(\mathbf{r}) = \text{rot rot}(\boldsymbol{\mu}/r)$$

d'où : $V(\mathbf{r}) = -\boldsymbol{\mu}_N \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r})$ ce qui donne pour l'amplitude magnétique :

$$(8) \quad a_M = \frac{M}{2\pi\hbar^2} \int V(\mathbf{r}) e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} = -\frac{2M}{\hbar^2} [\boldsymbol{\mu}_N \cdot \boldsymbol{\mu} - (\boldsymbol{\mu}_N \cdot \mathbf{e})(\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{e})]$$

avec $\mathbf{e} = \boldsymbol{\kappa}/|\boldsymbol{\kappa}|$.

Pour comparer la diffusion magnétique et la diffusion purement nucléaire, il est commode d'attribuer au noyau, un moment pseudomagnétique μ^* défini par

$$(9) \quad b(\mathbf{I} \cdot \mathbf{s}_N) \equiv -\frac{2M}{\hbar^2} (\boldsymbol{\mu}_N \cdot \boldsymbol{\mu}^*)$$

μ^* est un moment magnétique fictif donnant une amplitude de diffusion égale à l'amplitude nucléaire, au cas où, soit \mathbf{I} , soit \mathbf{s}_N , est normal au plan de diffusion. Il est commode de mesurer μ^* en unités de magnétons de Bohr électroniques μ_B et la longueur de diffusion b en unités de $r_0 = \frac{e^2}{mc^2}$, rayon classique de l'électron. On tire de (9)

$$(10) \quad \mu^*/\mu_B = \frac{bI}{r_0} \frac{1}{|g_N|}$$

où $g_N = -1,91$ est le moment magnétique du neutron, mesuré en magnétons nucléaires. b étant souvent du même ordre que r_0 on voit que μ^*/μ_B peut être de l'ordre de l'unité et donc la diffusion nucléaire dépendant du spin comparable à la diffusion magnétique électronique. Il est intéressant de connaître les valeurs de b c'est-à-dire de μ^* , afin de savoir quelles sont les espèces nucléaires dont le magnétisme peut être avantageusement étudié aux neutrons. Il convient de considérer auparavant le problème de la diffusion d'un neutron par une cible contenant un grand nombre de noyaux.

1.C. Diffusion par un grand nombre de noyaux

La diffusion par un ensemble de noyaux d'amplitude de diffusion a_i placés aux points \mathbf{r}_i s'écrit :

$$(11) \quad \Psi(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - \frac{e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}}{r} \sum_i a_i e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i}$$

Il en résulte une section efficace différentielle :

$$(12) \quad \frac{d\Omega}{d\sigma} = \sum_{i,j} a_i a_j^* \exp[-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)]$$

Pour une cible macroscopique polarisée éventuellement, nous pouvons remplacer un produit $a_i a_j^*$ par sa moyenne statistique $\langle a_i a_j^* \rangle$. Nous allons spécialiser (12) au cas simple d'une seule espèce nucléaire et d'un réseau cristallin de Bravais. Nous supposons de plus que pour $i \neq j$ $\langle a_i a_j^* \rangle$ ne dépend pas de $(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$, hypothèse restrictive que l'on doit abandonner lors de l'étude de l'ordre nucléaire.

$$\begin{aligned}
 (13) \quad \frac{d\sigma}{d\Omega} &= \sum_i \langle |a_i|^2 \rangle + \sum_{i \neq j} \langle a_i a_j^* \rangle \exp[-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)] \\
 &= \sum_i \{ \langle |a_i|^2 \rangle - \langle a_i a_j^* \rangle_{\neq} \} + \langle a_i a_j^* \rangle_{\neq} \sum_{i,j} e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \\
 &= N [\{ \langle |a_i|^2 \rangle - \langle a_i a_j^* \rangle_{\neq} \} + \langle a_i a_j^* \rangle_{\neq} \sum_i e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i}]
 \end{aligned}$$

Dans (13) $\langle a_i a_j^* \rangle_{\neq}$ signifie que les sites i et j sont différents, et N est le nombre total de noyaux. Si nous remplaçons dans (13) a_i par son expression (5) : $a_i = b_0 + b(\mathbf{I}_i \cdot \mathbf{s}_N)$, supposant que

$$\langle \mathbf{I}_i \mathbf{I}_j \rangle_{\neq} = P^2 I^2, \quad (\mathbf{I}_i \cdot \mathbf{s}_N) = (1/2) IPp$$

où P est la polarisation nucléaire de la cible et p celle du faisceau neutronique, on trouve que (13) est la somme d'une section efficace différentielle incohérente $N(d\sigma/d\Omega)_{inc.}$ et d'une section cohérente $N(d\sigma/d\Omega)_{coh.}$ avec :

$$(14) \quad \left\{ \begin{aligned} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{inc.} &= \frac{b^2}{4} [I(I+1) - pPI - P^2 I^2] \\ \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{coh.} &= (b_0^2 + b_0 b p P I + \frac{b^2}{4} P^2 I^2) \sum e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i} \end{aligned} \right.$$

On sait que si $\boldsymbol{\kappa}$ est égal à un vecteur du réseau réciproque, la somme $\exp(-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i)$ passe par un maximum aigu et l'on observe une réflexion de Bragg. En ce qui concerne la section efficace incohérente on notera qu'elle s'annule pour $pP = 1$ (et donc nécessairement $P^2 = 1$) mais non pour $pP = -1$. Dans ce dernier cas, bien que faisceau et cible soient parfaitement ordonnés, une diffusion incohérente sur un noyau individuel avec renversement (flip-flop) du spin nucléaire et du spin du neutron reste possible. Si la cible n'est pas polarisée, b c'est-à-dire μ^* s'obtient à partir de la section efficace totale, pour des neutrons suffisamment rapides pour interdire toute diffraction de Bragg.

$$(15) \quad \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{tot.} = b_0^2 + \frac{b^2}{4} I(I+1)$$

b_0 est bien connu par les techniques de l'optique neutronique sur lesquelles nous n'avons pas à nous étendre ici. Par contre la détermination de b à partir de (15) présente plusieurs inconvénients : elle comporte une mesure absolue difficile et souvent imprécise d'une section efficace totale ; elle ne donne pas le signe de b ; si b est plus petit que b_0 ce qui est souvent le cas, la mesure de b^2 est très imprécise. Par contre dans la deuxième équation (14), la diffusion cohérente d'un faisceau polarisé sur une cible polarisée fait apparaître un terme linéaire en b , permettant une plus grande précision sur la mesure de b ainsi que la connaissance de son signe. Cette méthode appliquée

dans les expériences de pionnier de Shull à la mesure de b pour les noyaux ^{51}V et ^{59}Co , polarisés statiquement, a été étendue par le laboratoire de Saclay aux noyaux de ^{19}F , polarisés dynamiquement.

Il s'est avéré que $\mu^*(^{19}\text{F})$ était anormalement petit, de l'ordre de $-18 \cdot 10^{-3} \mu_B$ c'est-à-dire 300 fois plus petit que $\mu^*(^1\text{H}) = 5,4 \mu_B$. Ce résultat contraste avec la quasi égalité des *vrais* moments magnétiques nucléaires de ^1H et ^{19}F . Outre la nécessité d'opérer sur des monocristaux la mesure de μ^* à partir du changement de la section cohérente produit par la polarisation du faisceau et de la cible souffre d'une faiblesse supplémentaire : le phénomène d'extinction fait que l'accroissement du flux diffusé n'est pas strictement proportionnel à l'accroissement de la section efficace, l'écart à la proportionnalité étant difficile à estimer. Une autre méthode, la précession pseudomagnétique a pu être mise en œuvre.

2. LA PRÉCESSION PSEUDOMAGNÉTIQUE ET SES APPLICATIONS

2.A. La résonance pseudomagnétique du neutron dans une cible de protons polarisés

La définition du moment pseudomagnétique par l'équation (9) suggère celle d'une pseudo-aimantation $M^* = N_0 \mu^* P$ (N_0 nombre de spins nucléaires par unité de volume) et même d'une pseudo-induction :

$$(16) \quad B^* = H + 4\pi N_0 \mu^* P = H + H^*$$

On sait qu'en magnétisme ordinaire le neutron « voit » non pas le champ magnétique H mais l'induction magnétique $B = H + 4\pi M$. Par un raisonnement heuristique on peut se demander si la fréquence de Larmor du neutron au sein d'une cible nucléaire polarisée n'est pas elle aussi donnée par $\omega_N = -\gamma_N B^*$ et donc déplacée par rapport à sa fréquence dans le vide par

$$(17) \quad \Delta\omega_N = -\gamma_N H^* = -\gamma_N 4\pi N_0 \mu^* P$$

Cette hypothèse se justifie facilement à partir du potentiel effectif de Fermi donné par (4). L'Hamiltonien d'interaction du spin du neutron avec un système de spins nucléaires polarisés situés aux points r_i s'obtient à partir des amplitudes de diffusion de ces spins donnés par (9) :

$$(18) \quad V_F(\mathbf{r}) = \frac{2\pi \hbar^2}{M} \left(-\frac{2M}{\hbar^2} \right) \mu_N \cdot \sum_i \mu_i^* \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) = -\mu_N \cdot H^*(\mathbf{r})$$

$$(19) \quad \text{où } H^*(\mathbf{r}) = 4\pi \sum_i \mu_i^* \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$$

Le champ $\mathbf{H}^*(\mathbf{r})$ peut se décomposer en une partie moyenne \mathbf{H}^* et une partie de valeur nulle $\mathbf{h}^*(\mathbf{r}) = \mathbf{H}^*(\mathbf{r}) - \mathbf{H}^*$

$$(20) \quad \mathbf{H}^* = \frac{1}{V} \int \mathbf{H}^*(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r} = \frac{4\pi}{V} \sum_i \mu_i^* = 4\pi N_o \mu^* P$$

ce qui est bien la valeur prévue par le raisonnement heuristique. Quant au champ $\mathbf{h}^*(\mathbf{r})$ de valeur moyenne nulle, il est « vu » par le neutron en mouvement comme produisant un champ de fréquence de l'ordre v/a , où v est la vitesse du neutron thermique et a la distance interatomique. Ces fréquences de l'ordre de 10^{13} sont sans effet sur le spin du neutron dont la fréquence de Larmor n'excède pas 10^8 .

Le déplacement de fréquence (17) a été observé dans une cible de protons polarisés dans LMN (nitrate double de lanthane et de magnésium). Le champ pseudomagnétique (20) peut s'écrire $\mathbf{H}^* = \alpha \mathbf{P}$ et la constante α atteint 2.5 Teslas dans LMN, une valeur considérable qui s'explique par la grande valeur de μ^* (^1H). Le principe de l'expérience est extrêmement simple : un faisceau de neutrons polarisés traverse une cible de protons polarisés suivie par un analyseur de polarisation, puis, un compteur. Un champ de radiofréquence d'amplitude H_1 et fréquence ω perpendiculaire à $(\mathbf{H} + \mathbf{H}^*)$ permet de renverser le spin du neutron lorsque la condition de résonance $\omega = -\gamma_N (\mathbf{H} + \mathbf{H}^*)$ est remplie, ce qui est détecté par une variation du taux de comptage. En pratique le temps de vol $\tau = 1 \mu\text{s}$ du neutron à travers la cible utilisée, exigeait des amplitudes H_1 prohibitives, supérieures à 100 gauss tournants. Cette difficulté a pu être levée de façon élégante comme suit : un champ de radiofréquence d'amplitude $H_1 \sim 1$ gauss est appliqué au voisinage de la fréquence de Larmor du *proton* $\omega = -\gamma_p (H_o + h)$ où H_o est le champ appliqué et h , écart à la résonance est de l'ordre de 100 gauss, avec donc : $H_1 \ll h \ll H_o$. Dans ces conditions l'aimantation nucléaire M des protons, et donc aussi leur pseudoaimantation M^* , précessent autour du champ appliqué en faisant avec celui-ci un angle $\theta = H_1/h \lesssim 1/100$. La pseudoaimantation M^* et le champ pseudomagnétique $\mathbf{H}^* = 4\pi M^*$ acquièrent une composante tournante qui pour ce dernier est de l'ordre de

$$(21) \quad H_1^* \simeq 4\pi M^* \theta \simeq \alpha P \theta \simeq 2,5 P (H_1/h) \text{ Teslas}$$

qui pour $P = 0,5$, $H_1 = 1$, $h = 100$ atteint la valeur $H_1^* = 125$ gauss. Utilisant un langage anthropomorphique on peut dire que le spin du neutron ne « sait » pas que le champ tournant H_1^* est pseudomagnétique et non magnétique et se laissera tout aussi bien renverser par lui si la condition de résonance $\omega = -\gamma_N (H_o + \alpha P)$ est remplie. *A priori* il n'en est rien puisque la fréquence est à très peu de chose près celle du proton $\omega = -\gamma_p H_o$. Cependant il est possible d'ajuster le champ appliqué H_o et la polarisation \mathbf{P} de façon à rendre ces 2 fréquences égales. Il suffit de prendre

$$(22) \quad H_0 = \alpha P \left(\frac{\gamma_0}{\gamma_N} - 1 \right)^{-1} \simeq -\frac{2}{5} \alpha P$$

Pour $P = 0,5$, $\alpha = 2,5$ T ceci donne $H_0 = 0,5$ T et exige P négatif, ce qui est aisément réalisé par polarisation dynamique.

Cette expérience a permis de démontrer de façon frappante l'existence physique du champ nucléaire pseudomagnétique puisque non seulement la composante longitudinale a produit un déplacement considérable de la fréquence de Larmor du spin du neutron mais encore sa composante tournante a pu induire une transition résonnante de ce spin, exemple rarissime d'un effet cohérent macroscopique de forces nucléaires.

2.B. Mesures systématiques de μ^* par précession pseudomagnétique

L'expérience précédente, rendue possible à la fois par la très grande valeur de μ^* (^1H) = $5,4 \mu_B$ et la grande valeur $P = 0,5$ de la polarisation nucléaire est difficilement extrapolable à d'autres espèces nucléaires. La mesure systématique des μ^* a été rendue possible par un aménagement de l'expérience précédente inspirée de la méthode bien connue de la résonance à deux bobines de Ramsey. Dans cette nouvelle méthode le neutron polarisé traverse successivement deux bobines de même radiofréquence ω , égale à la fréquence de Larmor du neutron dans un champ constant H_0 , en l'absence de la cible polarisée, qui peut être placée entre les 2 bobines. Lors du passage du neutron à travers les 2 bobines le neutron subit 2 nutations successives et émerge avec une certaine polarisation longitudinale P mesurée par un analyseur. Pour fixer les idées si la polarisation initiale du neutron est P_0 , les nutations de spin induites par chacune des 2 bobines sont de 90° et les champs des 2 bobines sont en phase, on voit facilement en se plaçant dans le référentiel tournant ω que la polarisation finale est $P = -P_0$. Si l'on introduit alors entre les 2 bobines une cible polarisée (ou plus précisément si l'on polarise les noyaux de la cible, placée en permanence entre les bobines) on constate un changement de la polarisation P . Il est dû au fait qu'entre les 2 bobines le spin du neutron précesse d'un angle $\psi = -\gamma_N H^* \tau = -\gamma_N H^* L/v$ où L est l'épaisseur de l'échantillon. Avec les mêmes hypothèses que précédemment la polarisation finale $P' = -P_0 \cos \psi$, correspond à un changement

$$(23) \quad \Delta P = P' - P = P_0 (1 - \cos \psi)$$

Si ψ est petit, l'effet est quadratique, inconvénient facile à pallier en établissant entre les 2 bobines une différence de phase prééglée φ qui conduit à :

$$(24) \quad \begin{cases} \Delta P = -P_0 \{ \cos \varphi - \cos (\psi + \varphi) \} & \text{ou pour } \varphi = \frac{\pi}{2} \\ \Delta P = -P_0 \sin \psi & \text{linéaire en } \psi \end{cases}$$

Les avantages par rapport à la résonance pseudomagnétique décrite plus haut sont évidents : des angles ψ d'une fraction de radian peuvent être mesurés facilement permettant d'accéder à des μ^* d'une fraction de μ_B avec des polarisations de l'ordre de 1 %. Par contraste dans l'expérience précédente avec $H^* = 1,25$ T et $\tau = 1$ μ s l'angle de précession du neutron dans la cible de protons polarisés à 50 % était de l'ordre de 200 radians.

Un second avantage de cette méthode est que les champs de radiofréquence qui provoquent la nutation des neutrons ne sont plus produits dans l'échantillon polarisé et donc froid, avec toutes les limitations que cela comporte mais dans le vide. Les μ^* d'une bonne trentaine d'espèces nucléaires de ${}^6\text{Li}$ à ${}^{209}\text{Bi}$ ont été mesurés en grandeur et en *signe* par précession pseudomagnétique. Pour la polarisation des cibles on a essentiellement utilisé 2 méthodes : polarisation statique par équilibre thermique des spins nucléaires avec un réseau froid et polarisation dynamique par un champ d'hyperfréquence. Les avantages et les inconvénients de chaque méthode ont passés en revue ci-dessous.

En polarisation statique la nécessité de descendre à des températures de l'ordre de 20 mK pour obtenir des précessions observables élimine les échantillons non métalliques pour lesquels les temps de relaxation T_1 sont prohibitivement longs. L'avantage de la méthode statique est que, une fois le problème cryogénique résolu, les échantillons peuvent être passés les uns après les autres sans créer à chaque fois un nouveau problème. Les désavantages principaux sont des polarisations relativement faibles et l'impossibilité de faire pénétrer dans les échantillons métalliques des champs de radiofréquence. La première caractéristique exige des échantillons relativement épais ce qui élimine les noyaux à forte absorption ; la seconde en interdisant la saturation sélective d'une espèce nucléaire au cas où la cible en contient plusieurs, ne permet d'obtenir qu'une moyenne pondérée des μ^* de ces espèces, proportionnelle à $\sum_{\alpha} c_{\alpha} \mu_{\alpha}^* P_{\alpha}$ où les c_{α} , μ_{α}^* et P_{α} sont les concentrations, moments pseudomagnétiques et polarisations respectives des diverses espèces nucléaires.

Le principal inconvénient de la polarisation dynamique est que chaque espèce nucléaire pose un nouveau problème. Un composé convenable contenant ces noyaux doit être trouvé, associé à un type convenable d'impuretés paramagnétiques introduites dans l'échantillon chimiquement ou par irradiation. Chaque fois il est à peu près impossible de prédire à l'avance l'ordre de grandeur de la polarisation obtenue. Par contre, une fois ces problèmes résolus, les avantages sont impressionnants. Les polarisations peuvent excéder par deux ordres de grandeur celles obtenues statiquement et l'intervalle des précessions encore doublé en passant aux polarisations négatives. Ceci permet d'utiliser des cibles relativement minces contenant des noyaux fortement

absorbants. Surtout, la possibilité d'une saturation sélective permet de mesurer dans un même échantillon le μ^* de plusieurs espèces nucléaires, en particulier de plusieurs isotopes sans recourir à une séparation isotopique coûteuse.

Parmi les résultats, sans doute prévisibles, mais non confirmés précédemment des mesures systématiques de μ^* on peut citer le fait que les μ^* de 2 isotopes différant par 2 neutrons peuvent être très différents, alors que leurs *vrais* moments magnétiques et plus généralement la plupart de leurs propriétés électromagnétiques nucléaires diffèrent peu. Outre les valeurs des μ^* ces mesures présentent des retombées en magnétisme nucléaire. En effet la précession pseudomagnétique permet de mesurer la valeur absolue des polarisations nucléaires et de suivre leur variation dans le temps, c'est-à-dire leur relaxation, même dans le cas où pour diverses raisons la résonance magnétique de ces noyaux n'est pas observable. C'est ainsi que dans l'éthylsulphate d'holmium polarisé statiquement on a pu mettre en évidence deux mécanismes nouveaux de relaxation nucléaire, celui de ^{165}Ho pour une orientation du champ appliqué parallèle à l'axe c du cristal, et celui des protons lorsque le champ est perpendiculaire à c. Bien que la polarisation soit statique et la RMN des espèces nucléaires non observable, la relaxation des protons peut être séparée de celle de ^{165}Ho à cause de leurs échelles de temps très différentes. On a pu montrer que dans le premier cas la relaxation de ^{165}Ho procède par effet direct, absorption ou émission d'un phonon dont la fréquence égale la séparation de 2 niveaux hyperfins dans l'ion Ho^{3+} , un effet jamais observé jusque là. Quant à la relaxation des protons, lorsque le champ est normal à l'axe c elle se fait par contact thermique entre l'énergie Zeeman des protons et l'énergie d'interaction spin-spin des spins *nucléaires* de ^{165}Ho . Ces derniers jouent ainsi en quelque sorte le rôle de spins électroniques en miniature.

Avant de clore cette discussion il convient de rappeler que la précession pseudomagnétique a été prédite théoriquement dès 1964 par Baryshevsky et Potgoretzki en utilisant une approche tout à fait différente. On sait que pour un neutron se propageant dans un milieu matériel on peut définir un indice de réfraction par la relation :

$$(25) \quad n = 1 - 2 \pi N_0 \langle a \rangle / k^2$$

où $\langle a \rangle$ est l'amplitude de diffusion moyenne « vue » par le neutron. Dans le cas d'une cible polarisée on peut définir 2 amplitudes de diffusion

$$\langle a \rangle_{\uparrow} = b_0 + \frac{1}{2} b_{\text{PI}}, \quad \langle a \rangle_{\downarrow} = b_0 - \frac{1}{2} b_{\text{PI}}$$

pour les deux signes de polarisation du neutron. Il leur correspond d'après (25) deux indices de réfraction n_{\downarrow} et n_{\uparrow} et donc 2 vitesses de phase v_{\downarrow} et v_{\uparrow} différant par : $\hbar k (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) / M$. Il est facile de voir qu'à cette différence

de vitesse de propagation correspond une précession du spin du neutron de fréquence :

$$(26) \quad \omega = -\frac{\hbar k^2}{M} (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) = \frac{2\pi}{M} N_0 bPI \hbar$$

En écrivant cette fréquence sous la forme $\omega = -\gamma_N H^*$ et en utilisant la formule (9) qui définit μ^* , on retrouve bien la formule du champ pseudo-magnétique $H^* = 4\pi N_0 \mu^* P$.

3. DIFFRACTION DE NEUTRONS ET CORRELATIONS SPATIALES ENTRE LES SPINS NUCLÉAIRES

On a discuté les contributions que l'étude de la forme d'un pic de Bragg peut apporter à l'information sur l'ordre magnétique nucléaire. On part de la formule (13) qui donne la partie de la section efficace cohérente, dépendant du spin

$$(27) \quad \sum_{\mathbf{i}, \mathbf{j}} \langle a_i a_j^* \rangle e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} = \frac{b^2}{4} \sum \langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)}$$

On remarquera que contrairement à (13) on n'a pas dans (27) sorti $\langle a_i a_j^* \rangle$ de la somme car contrairement au cas paramagnétique, $\langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle$ dépend de $(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$.

Considérons d'abord le cas d'un antiferromagnétique idéal. Nous avons dans ce cas : $\langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle = \pm P^2 I^2$ avec le signe — pour des spins appartenant à des sous-réseaux antiferromagnétiques opposés. Ceci peut se récrire :

$$(28) \quad \langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle = P^2 I^2 \exp [-i \boldsymbol{\tau}_a \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)]$$

où $\boldsymbol{\tau}_a$ est un vecteur moitié d'un vecteur du réseau réciproque, c'est-à-dire tel que pour tout vecteur \mathbf{l} du réseau cristallin : $\boldsymbol{\tau}_a \cdot \mathbf{l} = n\pi$ (et non $2n\pi$ comme pour un vecteur $\boldsymbol{\tau}$ du réseau réciproque). On peut alors récrire (27) :

$$(29) \quad \begin{aligned} & \frac{b^2}{4} P^2 I^2 \sum_{i \neq j} \exp [-i (\boldsymbol{\kappa} - \boldsymbol{\tau}_a) \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)] \\ & = -N \frac{b^2}{4} P^2 I^2 + N \frac{b^2}{4} P^2 I^2 \sum_i e^{-i(\boldsymbol{\kappa} - \boldsymbol{\tau}_a) \cdot \mathbf{r}_i} \end{aligned}$$

Contrairement à un pic de Bragg cristallin un pic de Bragg antiferromagnétique se produit pour : $\boldsymbol{\kappa} = \mathbf{k}' - \mathbf{k} = \boldsymbol{\tau}_a + \boldsymbol{\tau}$.

Nous avons considéré jusqu'ici un antiferromagnétique parfait. S'il existe dans l'ordre antiferromagnétique à longue portée des défauts la relation (28)

ne sera plus valable si $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$ est très grand. Il est raisonnable d'admettre qu'à grande distance la corrélation $\langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle$ s'annule ce qui peut s'écrire :

$$(30) \quad \langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle e^{-i\boldsymbol{\tau}_a \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} = P^2 I^2 \varphi(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$$

où la fonction de corrélation $\varphi(\mathbf{r})$ est lentement variable, avec $\varphi(\mathbf{r}) = \varphi(-\mathbf{r})$. $\varphi(\mathbf{r})$ est voisine de l'unité lorsque $r = |\mathbf{r}|$ est de l'ordre de quelques distances atomiques et tend vers zéro lorsque r est grand. $\varphi(0)$ n'a pas de sens avec notre définition (30). Nous ferons la convention $\varphi(0) = 1$.

On peut considérer aussi un état ferromagnétique à domaines dont l'aimantation macroscopique est nulle. On a alors par analogie avec (30) :

$$(31) \quad \langle \mathbf{I}_i \cdot \mathbf{I}_j \rangle = P^2 I^2 \varphi(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$$

Sur l'observation du pic de Bragg nous ferons les hypothèses simplificatrices suivantes. Le réseau cristallin est parfait et le faisceau incident de vecteur d'onde \mathbf{k} monochromatique est parfaitement collimaté. Si l'ordre magnétique était parfait les neutrons diffractés tous de même vecteur d'onde \mathbf{k}'_0 tomberaient tous au même point d'un plan P perpendiculaire au vecteur \mathbf{k}'_0 . Du fait de l'imperfection de cet ordre que traduit la fonction de corrélation $\varphi(\mathbf{r})$ les points d'impact des neutrons diffractés forment sur l'écran P une tache de dimensions finies dont l'intensité en chaque point peut être mesurée grâce à un dispositif expérimental connu sous le nom de compteur bidimensionnel. A l'intérieur du cristal nous choisissons 3 axes oxyz avec ox le long du vecteur \mathbf{k}'_0 , correspondant à la diffraction par un réseau magnétique idéal, oz perpendiculaire au plan de diffusion \mathbf{k} , \mathbf{k}'_0 , oy étant le troisième axe d'un trièdre trirectangle. Dans le plan P nous définissons 2 axes OY et OZ, parallèles respectivement à oy et oz, par rapport auxquels sont repérés les points d'impact des neutrons.

Compte tenu de (30) la section efficace est pour un réseau antiferromagnétique proportionnelle à :

$$(32) \quad \sum_i \varphi(\mathbf{r}_i) \exp[-i(\mathbf{k}' - \mathbf{k} - \boldsymbol{\tau}_a) \cdot \mathbf{r}_i]$$

Si $\varphi(\mathbf{r}_i)$ était pris égal à l'unité (32) présenterait un maximum en fonction δ pour $\mathbf{k}' = \mathbf{k}'_0 = \mathbf{k} + \boldsymbol{\tau}_a$. Du fait de l'existence de $\varphi(\mathbf{r}_i)$, le faisceau diffracté s'élargit comme on a dit plus haut, et l'on peut avoir des vecteurs d'onde diffractés $\mathbf{k}' = \mathbf{k}'_0 + \delta \mathbf{k}'$ avec :

$$(33) \quad \delta k'_y = k Y/D, \delta k'_z = k Z/D, \delta k'_x = 0$$

Dans (33) D est la distance du cristal à l'écran P. La condition $\delta k'_x = 0$ exprime au premier ordre que $|\mathbf{k}'| = |\mathbf{k}'_0|$ c'est-à-dire que la diffusion est élastique.

La section efficace (32) est proportionnelle à l'intensité $I(Y,Z)$ recueillie en chaque point de l'écran P :

$$(34) \quad I(Y,Z) \propto \sum_i \varphi(\mathbf{r}_i) \exp[-i(\mathbf{k}' - \mathbf{k} - \boldsymbol{\tau}_a) \cdot \mathbf{r}_i] \\ = \sum_i \varphi(\mathbf{r}_i) \exp(-i \delta \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}_i)$$

que nous approximations par une intégrale :

$$(35) \quad I(Y,Z) \propto N_o \int \varphi(\mathbf{r}) \exp(-i \delta \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

Introduisant la transformée de Fourier de $\varphi(\mathbf{r})$:

$$(36) \quad A(\mathbf{q}) = \frac{(2\pi)^3}{V} \int \varphi(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

on obtient :

$$(37) \quad I(Y,Z) \propto N_o V (2\pi)^3 A \left(0, \frac{k Y}{D}, \frac{k Z}{D} \right)$$

On voit que le compteur bidimensionnel donne une carte de la transformée de Fourier de la fonction de corrélation $\varphi(\mathbf{r})$ dans un plan perpendiculaire au vecteur diffracté \mathbf{k}'_o .

Pour obtenir des renseignements complémentaires sur $\varphi(\mathbf{r})$ on fait tourner le cristal d'un angle ε autour de l'axe oz. L'intensité en chaque point Y,Z dépend de ε et peut s'écrire $I(Y,Z,\varepsilon)$. On trouve :

$$(38) \quad I(Y,Z,\varepsilon) \propto A \left(\varepsilon \tau_a \cos \theta, \frac{k Y}{D} - \varepsilon \tau_a \sin \theta, \frac{k Z}{D} \right)$$

où θ est l'angle de Bragg.

Si l'on ne dispose pas de compteur bidimensionnel cela veut dire que (38) doit être intégré sur Y et Z. On trouve alors :

$$(39) \quad I(\varepsilon) \propto \int \varphi(x,0,0) e^{-ix \varepsilon \tau_a \cos \theta} dx$$

L'intensité $I(\varepsilon)$ observée en fonction de l'angle ε , qui est ce que l'on appelle la « rocking curve », est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation, le long du vecteur diffusé et avec un nombre d'onde $\varepsilon \tau_a \cos \theta$.

Nous n'avons rien dit jusqu'ici sur la nature des irrégularités magnétiques qui conduisent à une fonction de corrélation $\varphi(\mathbf{r})$ de portée finie. Dans le cas de l'antiferromagnétisme on suppose qu'à un certain moment à un plan d'un sous-réseau A, succède immédiatement un autre plan du même sous-réseau A puis que l'ordre antiferromagnétique reprend avec une succession régulière

des plans A et B jusqu'à ce qu'une nouvelle faute se présente. La région entre deux fautes s'appelle un domaine et c'est donc la dimension finie des domaines qui donne lieu à une portée finie pour la fonction de corrélation $\varphi(\mathbf{r})$. Cette dernière se présente comme la fonction de corrélation d'une fonction aléatoire prenant alternativement les valeurs + 1 et - 1 sur des étendues aléatoires l_1, l_2, \dots, l_n , avec $l_i \gg a$, qui sont les dimensions des domaines. Le modèle est le même pour le ferromagnétisme à aimantation macroscopique nulle, l'aimantation des domaines ferromagnétiques remplaçant simplement l'aimantation alternée (staggered) des antiferromagnétiques. Il existe une relation mathématique entre la fonction de corrélation $\varphi(\mathbf{r})$ et la fonction de distribution $P(l)$ des dimensions l des domaines. Si $\Phi(z)$ et $\mathcal{P}(z)$ sont les transformées de Laplace de φ et P on montre que :

$$(40) \quad \mathcal{P}(z) = \frac{2 - z l_0 [1 - z \Phi(z)]}{2 + z l_0 [1 - z \Phi(z)]}$$

où $l_0 = \int l P(l) dl$ est la dimension moyenne des domaines. En particulier si l'on prend pour la fonction de corrélation une exponentielle

$$\varphi(\mathbf{r}) = \exp\left(-\frac{2r}{l_0}\right) \text{ c'est-à-dire d'après (39) une « rocking curve » qui}$$

est une Lorentzienne on trouve d'après (40) pour la loi de distribution $P(l)$ la forme exponentielle :

$$(41) \quad P(l) = \frac{1}{l_0} \exp(-l/l_0)$$

L'expérience montre que les rocking curve obtenues pour des pics de Bragg antiferromagnétiques sont beaucoup plus larges que les pics cristallins. Ceci montre que l'élargissement dû à la dimension finie des domaines antiferromagnétiques est beaucoup plus important que toutes les autres causes d'élargissement et justifie *a posteriori* nos hypothèses simplificatrices de cristal parfait et de faisceaux monochromatiques parfaitement collimatés. Avec le compteur bidimensionnel on a pu observer à température de spin négative des taches ferromagnétiques allongées dans la direction parallèle au champ appliqué ce qui, d'après les propriétés des transformées de Fourier montre que les domaines ferromagnétiques se présentent comme des galettes perpendiculaires au champ appliqué. La taille des domaines ainsi observés dans LiH semble ne pas excéder 150 Å dans leur plus grande dimension et pourrait être liée à la distribution des impuretés paramagnétiques.

SÉMINAIRES

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

D. ESTEVE (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), *L'ordre orientationnel dans un système frustré : Etude par RMN de l'azote solide.*

P. IMBERT (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), *Etude comparative des spectres Mösbauer d'émission et d'absorption dans le système ZnS : F_e²⁺. Propriétés vibroniques, Mesures de relaxation électronique.*

S. HAROCHE (Ecole Normale Supérieure), *Atomes géants en interaction avec le rayonnement.*

M. ROSSO (Ecole Polytechnique), *Propriété magnétique des semi-conducteurs dopés près de la transition métal-isolant.*

S. LIBERMAN (Laboratoire Aimé Cotton), *Spectrométrie à haute résolution d'atomes instables.*

T.O. NIINIKOSKI (C.E.R.N.), *Muon spin rotation in physics of condensed matter.*

M. EMINYAN et G. LAMPEL (Ecole Polytechnique), *Photoémission polarisée de spin dans les semi-conducteurs et détection optique de la polarisation des électrons dans le vide.*

F. LALOE (Ecole Normale Supérieure), *Les fluides quantiques orientés : H et ³He.*

R. FREEMAN (Université d'Oxford), *NMR in two frequency dimensions.*

H. ALLOUL (Faculté des Sciences d'Orsay), *Anisotropie macroscopique des verres de spin : susceptibilité transverse et RMN.*

PUBLICATIONS

A. ABRAGAM (avec G.L. BACHELLA, M. FOURMOND, H. GLATTLI, A. MALINOVSKI, P. MÉRIEL, M. PINOT and P. ROUBEAU), *Experimental values of spin dependent nuclear scattering lengths of slow neutrons (J. Physique, 40, 629, 1979).*

A. ABRAGAM (avec M. GOLDMAN et P. MÉRIEL), *L'ordre magnétique nucléaire (Journal La Recherche, 1979).*

A. ABRAGAM (Discours prononcé le 7 janvier 1980 à l'Académie des Sciences), *Quelques réflexions sur la recherche fondamentale (C.R. Acad. Sci., 1980).*

A. ABRAGAM, *Dipolar nuclear antiferromagnetism and ferromagnetism* (Présenté à : 1980 Annual Conference of the Condensed Matter Division de l'European Physical Society en avril 1980 à Anvers, Belgique).

A. ABRAGAM (avec V. BOUFFARD, Y. ROINEL and P. ROUBEAU), *A new Polarized target material : ${}^6\text{Li D}$* (à paraître).

A. ABRAGAM (avec V. BOUFFARD, Y. ROINEL et P. ROUBEAU), *Un nouveau matériau pour cibles polarisées : ${}^6\text{Li D}$* (C.R. Acad. Sc. Paris, t. 290, série B-203, 10 mars 1980).

MISSIONS ET CONFÉRENCES

Conférence sur *Nuclear magnetic ordering* et contacts scientifiques (Genève, C.E.R.N., 8-10 janvier 1979).

Conférence sur *Magnetic resonance* à la Conférence Gordon Wolfeboro (Etats-Unis, 18-22 juin 1979).

International Conference on Magnetism 1979 (Munich, 3-7 septembre 1979).

Union Internationale de Physique Pure et Appliquée (réunion du Comité exécutif, Varna, Bulgarie, 24-29 septembre 1979).

Journées d'Informations sur les Applications Industrielles Nucléaires (Pierrelatte, 18-19 octobre 1979).

Enseignement donné en tant que titulaire de la chaire Lorentz 1980 à l'Université de Leyde (24 leçons).

Conférences aux Universités de Eindhoven, Delft et Amsterdam ainsi qu'au Laboratoire Philipps à Eindhoven.

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-huit chercheurs dont quatre boursiers de thèse et un visiteur étranger, un ingénieur chimiste et sept techniciens.

Deux activités importantes du Laboratoire, utilisant les neutrons, ont été interrompues par l'arrêt du réacteur EL.3 de Saclay, et ne pourront reprendre qu'à la mise en marche prévue pour l'automne 1980. Ces activités sont d'une

part l'étude par diffraction de neutrons de l'ordre magnétique nucléaire dans l'hydruure de lithium, et d'autre part la mesure de la partie dépendante du spin de l'amplitude de diffusion des neutrons par les différentes espèces nucléaires, par observation de la précession pseudomagnétique du spin du neutron à la traversée d'une cible nucléaire polarisée.

Les travaux réalisés au cours de l'année 1979-1980 sont résumés ci-dessous.

a) *Etude du diagramme champ-entropie d'une phase nucléaire ordonnée du fluorure de calcium*

La désaimantation adiabatique nucléaire en champ élevé consiste à effectuer une lente variation du champ extérieur en présence d'une irradiation de radiofréquence saturante. Au cours de ce processus, qui se produit à entropie constante, l'état du système est à tout moment caractérisé par une température de spin par rapport à un Hamiltonien effectif qui se compose de la partie des interactions dipolaires qui est invariante par rotation autour du champ extérieur, et de l'interaction Zeeman avec un champ effectif dont la composante longitudinale est la différence entre le champ de résonance à la fréquence d'irradiation et le champ appliqué.

Lorsqu'elle est précédée d'une forte polarisation dynamique nucléaire, cette désaimantation adiabatique conduit à un ordre magnétique nucléaire.

Dans le fluorure de calcium avec le champ extérieur parallèle à un axe cristallin A_4 , la désaimantation adiabatique des spins de fluor produit un état ordonné antiferromagnétique de ces derniers.

Au cours des années précédentes, de nombreuses études ont été effectuées sur cet état antiferromagnétique dans un champ effectif nul.

La théorie prévoit qu'à faible entropie, la transition à l'état antiferromagnétique au cours de la désaimantation est du premier ordre : il existe un intervalle de champs effectifs où coexistent des domaines antiferromagnétiques et des domaines paramagnétiques. La mise en évidence de ces domaines s'effectue par l'observation du signal de résonance de l'isotope rare ^{43}Ca , doué de spin (alors que l'isotope abondant ^{40}Ca en est dépourvu). Les spins de ^{43}Ca situés dans différents domaines sont soumis à des champs dipolaires différents : le signal de résonance se décompose en deux raies dont les intensités relatives sont égales aux volumes relatifs des deux types de domaines. On peut par extrapolation déterminer les champs critiques correspondant à l'apparition des domaines antiferromagnétiques, et à la disparition des domaines paramagnétiques.

Les difficultés inhérentes à l'expérience : faiblesse du signal de résonance du ^{43}Ca et brièveté du temps de relaxation spin-réseau dipolaire, ont nécessité

la mise en place d'une électronique et d'une logique informatique complexes. Les résultats obtenus sont en accord qualitatif raisonnable avec les prévisions d'une théorie approchée.

Cette expérience se poursuivra par l'étude du diagramme champ-entropie dans des conditions où l'ordre magnétique des spins de fluor est ferromagnétique à domaines.

(JACQUINOT, URBINA.)

b) *Etude de l'hydrure de lithium*

L'hydrure de lithium est la première substance sur laquelle on a observé par diffraction de neutrons les états nucléaires ordonnés produits par désaimantation adiabatique en champ élevé. Cette étude a été possible grâce à la valeur élevée de la partie dépendant du spin de l'amplitude de diffusion neutron-proton.

Les études entreprises cette année ont porté sur plusieurs points.

On a entrepris la mise en œuvre d'une nouvelle méthode de mesure de l'énergie dipolaire nucléaire, basée sur l'observation de la variation du signal de résonance ${}^7\text{Li}$ au cours d'une succession de saturations nucléaires contrôlées. Cette méthode n'est praticable que si l'expérience se déroule en un temps beaucoup plus court que le temps de relaxation spin-réseau. Cet impératif a conduit à élaborer un nouveau système d'acquisition en ligne des données, beaucoup plus rapide que celui utilisé jusque là. Les premières mesures de l'énergie dipolaire ont commencé.

On a entrepris une étude systématique de la relaxation dipolaire spin-réseau en fonction de la température du réseau. La relaxation est non exponentielle, d'une façon qui dépend de l'échantillon, ce qui laisse supposer une inhomogénéité au sein de l'échantillon de la concentration des impuretés paramagnétiques responsables de cette relaxation. D'autre part, lorsqu'on abaisse la température, jusqu'à environ 50 mK, la relaxation se ralentit beaucoup plus lentement que prévu par la théorie si les impuretés relaxantes ont un $g = 2$. Aucun de ces points n'est compris actuellement. Les études se poursuivent.

En troisième lieu, on a entrepris une modification du système de production des centres paramagnétiques utilisés pour la polarisation dynamique de LiH. Ces centres sont produits par irradiation des échantillons au moyen d'électrons de quelques MeV, à une température voisine de celle de l'azote liquide. Dans la technique utilisée jusqu'à présent, les échantillons sont légèrement au-dessus d'un bain d'argon liquide. L'efficacité pour la polarisation dynamique des centres produits dépend de façon très sensible de la température des

échantillons au cours de l'irradiation. Cette température est actuellement mal contrôlée et seule une faible proportion des échantillons produits est utilisable. On se propose de refroidir les échantillons par un flux gazeux d'hélium froid, méthode dont on espère qu'elle permettra un contrôle bien meilleur de la température.

(ROINEL, BOUFFARD.)

c) *Polarisation dynamique de ${}^6\text{Li D}$*

L'obtention de cibles de neutrons polarisés présente un grand intérêt pour la physique des hautes énergies. Les cibles utilisées jusqu'à présent sont constituées de substances organiques deutérées, ou les neutrons polarisés sont ceux des deutons. Elles présentent plusieurs inconvénients : la polarisation maximum du deutérium est limitée à environ 40 %, à cause de la largeur de la raie de résonance électronique des centres polarisants, et les substances organiques contiennent de nombreux neutrons non polarisables : ceux des noyaux de ${}^{12}\text{C}$ et ${}^{16}\text{O}$. A ces deux points de vue, ${}^6\text{Li D}$ leur est très supérieur. En premier lieu, ${}^6\text{Li}$ peut être considéré comme la superposition d'une particule α , dont les neutrons ne sont pas polarisables, et d'un deuton : dans ${}^6\text{Li D}$, la proportion des neutrons polarisables est donc 1/2 ; elle est égale à celle des protons polarisables. En second lieu, et sur la base de l'expérience acquise avec ${}^7\text{LiH}$, la largeur de la raie électronique des centres polarisants est due aux interactions hyperfines avec les noyaux voisins, donc proportionnelle aux moments magnétiques de ces derniers. Elle ne devrait donc pas apporter de sévère limitation à la polarisation dynamique nucléaire.

Dans une expérience de faisabilité, effectuée avec une poudre frittée de ${}^6\text{Li D}$, on a obtenu des polarisations de ${}^6\text{Li}$ et de D de l'ordre de 70 %.

Les centres paramagnétiques sont, comme pour ${}^7\text{Li}$, produits par irradiation électronique à la température de l'argon liquide. La polarisation s'effectue dans un champ d'environ 6 Teslas, et l'échantillon est refroidi dans un réfrigérateur à dilution. Les temps de polarisation sont très longs, de plusieurs dizaines d'heures.

A la lumière de cette expérience, plusieurs laboratoires ont manifesté leur intérêt à construire des cibles de ${}^6\text{Li D}$ de grandes dimensions.

(ABRAGAM, ROINEL, BOUFFARD.)

d) *Etude du méthane solide à basse température*

Entre 0 et 20 K, le méthane solide se trouve dans une phase d'ordre orientationnel partiel. En dessous de 1 K, les molécules désordonnées sont

dans leur état fondamental, de symétrie A et de spin nucléaire total $I = 2$; en effet, leur premier état excité, de symétrie T et de spin total $I = 1$, se trouve à 12 K et les transitions $T \leftrightarrow A$ sont rapides. Les molécules ordonnées, par contre, possèdent trois niveaux proches : un niveau fondamental A ($I = 2$), un niveau T ($I = 1$) à environ 2 K et un niveau E ($I = 0$) à environ 3 K.

Dans le méthane pur, ces trois niveaux restent peuplés même aux très basses températures car les transitions entre niveaux, nécessairement accompagnées d'une conversion de spin, sont très lentes. Ces transitions sont accélérées en présence d'un champ magnétique inhomogène, car l'interaction Zeeman des différents protons avec ce champ produit un léger mélange des différents états de spin. En pratique seul le champ dipolaire d'impuretés paramagnétique est suffisamment inhomogène pour produire un mélange non négligeable et accélérer de façon notable la conversion. Le couplage dipolaire électron-méthane possède des termes « flip-flop » entre états propres non perturbés du spin électronique et du méthane. Il en résulte qu'en fonction d'un champ magnétique extérieur la vitesse de conversion présente un pic aigu lorsque la séparation Zeeman électronique est égale à la distance entre deux états du méthane. Ce phénomène de conversion résonnante a été mis à profit les années précédentes pour mesurer la séparation d'énergie des états A et T.

La propriété la plus marquante qui distingue un état T d'un état A est le couplage de son moment magnétique nucléaire avec le réseau : la relaxation spin-réseau des molécules T est beaucoup plus rapide que celle des molécules A. Il en résulte que le temps de relaxation global des protons dans un mélange fournit une mesure sensible de la concentration de l'espèce T.

Les études de cette année entre 1 K et 80 mK ont porté sur plusieurs points.

On a montré que le temps de relaxation T_1^T de l'espèce T dépend explicitement de la température du réseau et de la concentration de l'espèce. Une molécule T relaxe d'autant plus vite qu'il existe d'autres molécules T dans son voisinage. D'autre part la variation de T_1^T avec la température est d'autant plus importante que la concentration de T est faible.

La méthode de conversion résonnante $A \leftrightarrow T$ a montré que la séparation entre états A et T augmente quand la concentration de l'espèce T diminue, en accord avec la prédiction d'une théorie de champ moléculaire.

Une élaboration de la méthode de conversion résonnante a permis de mesurer la séparation des niveaux E et T, de la façon suivante. Après une longue attente au champ de conversion résonnante $A \leftrightarrow T$, la concentration de l'espèce T devient très faible et le T_1 des protons très lent. Si on se place

alors au champ de conversion résonnante $E \leftrightarrow T$, la concentration de l'espèce T augmente aux dépens de celle de l'espèce E (inobservable par résonance magnétique car $I = 0$), et le T_1 des protons se raccourcit.

Enfin, au bout de deux jours de conversion résonnante $A \leftrightarrow T$, à 0,1 K, le temps de relaxation T_1 des protons atteint plusieurs heures, ce qui ouvre la perspective d'une polarisation dynamique des protons pour la production de cibles polarisées. La fraction des protons polarisables de CH_4 , égale à 0,4, est très supérieure à celle des cibles organiques habituelles.

(M^{lle} BOUCHET, GLÄTTLI.)

e) *Ordre orientationnel dans les solides moléculaires H_2 , D_2 et N_2*

Dans l'hydrogène, le deutérium et l'azote solides, les centres de gravité des molécules sont fixés sur les nœuds d'un réseau cristallin. A basse température on observe une transition du premier ordre entre une phase désordonnée où les molécules tournent librement et une phase ordonnée où les molécules possèdent une orientation moyenne déterminée. L'interaction responsable de ces transitions est l'interaction quadrupolaire intermoléculaire.

L'hydrogène et le deutérium moléculaires existent sous deux espèces dont une seule est douée de moment quadrupolaire : l'espèce excitée de $J = 1$ (orthohydrogène et paradeutérium) tandis que l'espèce fondamentale de $J = 0$ a une symétrie sphérique (parahydrogène et orthodeutérium). L'hydrogène et le deutérium forment des solides quantiques, ce qui les distingue de l'azote solide qui est presque un solide classique.

L'intérêt de ces systèmes est que ce sont des systèmes frustrés : il est impossible de réaliser une configuration ordonnée tridimensionnelle compacte des quadrupôles où l'énergie joue un rôle important dans de nombreux systèmes de matière condensée. Le but de ces expériences est d'étudier un cas propre où l'origine de la frustration est connue et où, grâce aux techniques de la résonance magnétique, on peut suivre directement l'évolution des paramètres d'ordre, ce qui n'est pas toujours le cas dans d'autres systèmes frustrés.

L'une des conséquences frappantes de la frustration est la perte de l'ordre à longue distance lorsqu'une partie des quadrupôles est remplacée par des molécules à symétrie sphérique. Cette disparition d'ordre à longue distance se produit pour des concentrations des quadrupôles inférieures à environ 50-60 %. En dessous, on observe l'apparition d'une nouvelle phase à ordre purement local, interprétée comme étant un verre quadrupolaire.

Dans H_2 et D_2 solides, la dilution s'opère naturellement par conversion des espèces $J = 1$ en espèces $J = 0$. Cette conversion est suffisamment lente

pour que l'on puisse effectuer des mesures à chaque concentration. Dans N_2 , la dilution peut être obtenue par cristallisation d'un mélange azote-argon.

Au cours des années précédentes on a étudié le diagramme de phase de H_2 solide pour $20\% \leq x (J = 1) \leq 90\%$, et de D_2 solide pour $42\% \leq x \leq 75\%$, et trouvé pour ces deux systèmes les mêmes phases d'ordre à longue distance et de verre quadrupolaire.

Dans D_2 pour $x < 42\%$, le signal de résonance nucléaire était trop faible par rapport au bruit pour en étudier la forme en détail. C'est par des mesures de temps de relaxation spin-réseau que l'on a pu établir l'existence d'une transition de phase, pour $x = 33\%$. Un appareillage d'impulsions a été construit pour compléter l'étude du diagramme de phase de D_2 , soit par des mesures de temps de relaxation spin-réseau, soit par des études d'échos solides quadrupolaires.

Dans N_2 solide, la structure orientationnelle frustrée qui s'établit en dessous de 36 K est analogue à celles de H_2 et D_2 solides. Cette transition a déjà été étudiée en observant le signal de résonance quadrupolaire de ^{14}N . Cette technique n'est cependant possible que dans un cristal d'azote pur, car l'introduction d'argon élargit la raie quadrupolaire au point de la rendre inobservable. Pour obvier cette difficulté et étudier l'apparition éventuelle d'une phase verre quadrupolaire à faible concentration, l'approche utilisée au laboratoire consiste à utiliser l'isotope ^{15}N pur, et observer la structure dipolaire de son signal de résonance en dessous de la transition. Cette observation est compliquée par l'existence d'un déplacement chimique anisotrope.

Des expériences préliminaires sur N_2 solide pur ont permis non seulement de retrouver la phase ordonnée en dessous de $T_c = 36$ K, mais également de détecter une phase d'ordre orientationnel très partiel entre 36 K et 45 K. Cette phase a été mise en évidence par l'observation d'un écho solide après une séquence de deux impulsions $\pi/2, \theta$. Le fait que cet écho soit maximum pour $\theta = \pi/2$ démontre sans conteste qu'il s'agit d'un écho quadrupolaire, caractéristique de l'existence d'un ordre orientationnel des molécules de N_2 .

(SULLIVAN, DEVORET, ESTÈVE.)

f) *Etude expérimentale de l'hélium trois solide*

Cette étude a pour but de préciser la nature de l'Hamiltonien de spin de l'hélium trois solide, dont de nombreuses expériences ont montré que ce n'est pas un Hamiltonien de Heisenberg comme le laissaient supposer les propriétés de 3He solide à haute température.

Les expériences entreprises au laboratoire correspondent à des champs

allant jusqu'à 8 Teslas et des températures allant jusqu'à 10 mK, produites par un réfrigérateur à dilution.

On a d'abord entrepris une étude de courbe pression-température à l'équilibre liquide-solide sous champ magnétique élevé, en la comparant à la même courbe en champ nul. Quelques résultats expérimentaux publiés semblent indiquer que la variation de cette courbe avec le champ est en désaccord avec les prédictions tirées d'un Hamiltonien de Heisenberg. La détermination de la courbe pression-température se heurte encore à certaines difficultés expérimentales.

On a ensuite entrepris une étude de la variation du temps de relaxation nucléaire spin-réseau en fonction du champ qui, à champ élevé, présente un comportement différent de celui observé en bas champ.

La connaissance de ces temps de relaxation est de plus nécessaire pour une étude qui est envisagée : le refroidissement par désaimantation adiabatique d'hélium trois polarisé par relaxation spin-réseau en champ élevé. Une expérience préliminaire de désaimantation a été effectuée sur du solide en équilibre avec le liquide, après une demi-journée de relaxation à 8 Teslas. Un refroidissement du solide a été observé au moyen d'un thermomètre capacitif à Sr Ti O_3 , insensible au champ magnétique. Ce refroidissement du mélange liquide-solide s'accompagne d'une variation de pression ayant une double origine : la diminution du champ et la diminution de la température.

(BERNIER.)

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

Un certain nombre de faits expérimentaux, publiés au cours des dernières années, ont révélé dans la phase cubique centrée de ^3He solide à basse température des propriétés incompatibles avec un Hamiltonien d'échange à deux spins :

— température de Curie-Weiss négative, propriété de caractère antiferromagnétique,

— augmentation prétransitionnelle de la susceptibilité, terme en T^{-3} dans la chaleur spécifique, qui sont de caractère ferromagnétique,

— en champ faible, transition du 1^{er} ordre vers une phase de faible susceptibilité,

— en champ élevé, transition du 2^e ordre vers une phase de forte aimantation.

La tentative d'interprétation développée au laboratoire est basée sur l'utilisation d'échanges cycliques à plusieurs spins. Du point de vue fondamental, de tels échanges sont la conséquence naturelle des corrélations géométriques de cœurs durs des atomes d'hélium.

Une étude de résonance magnétique publiée récemment apporte une forte présomption sur la nature de la phase ordonnée en champ faible : une phase antiferromagnétique formée d'une succession de deux plans d'aimantation parallèle suivie de deux plans d'aimantation opposée aux deux premiers, etc.

Le modèle d'échange à spins multiples permet d'expliquer l'existence de cette phase si on invoque à la fois des échanges à 4 spins coplanaires et des échanges à trois spins. Lorsque les paramètres de ces deux échanges sont ajustés aux valeurs de la température de Curie-Weiss et de la température de transition en champ nul l'Hamiltonien obtenu rend raisonnablement compte de l'ensemble de faits expérimentaux connus.

Pour la phase en champ faible ($H \leq 0,4 \text{ T}$) :

— susceptibilité dans la phase ordonnée et fréquence de la résonance antiferromagnétique,

— variation avec la température de la susceptibilité prétransitionnelle,

— variation avec la température de la chaleur spécifique prétransitionnelle,

— faible variation de la pression d'équilibre solide-liquide en fonction du champ,

— vitesse des ondes de spin dans la phase ordonnée.

Pour la phase en champ élevé ($H \geq 0,4 \text{ T}$), dont on prévoit que c'est une phase spin-flop :

— variation de la température critique avec le champ,

— variation linéaire de la pression d'équilibre solide-liquide en fonction du champ,

— forte aimantation de la phase ordonnée, variant peu avec le champ.

Un tel ensemble d'accords théorie-expérience établit la réalité de l'échange à spins multiples et rend très plausible la forme quantitative de l'Hamiltonien proposé.

La plupart des prévisions ont été faites dans l'approximation du champ de Weiss. Un développement systématique des calculs d'onde de spins est actuellement en cours.

(DELRIEU, ROGER.)

PUBLICATIONS DES TRAVAILLEURS DU LABORATOIRE

Y. ROINEL, G.L. BACCHELLA, O. AVENEL, V. BOUFFARD, M. PINOT, P. ROUBEAU, P. MERIEL et M. GOLDMAN, *Neutron diffraction study of nuclear magnetic ordered phases and domains in lithium hydride* (*J. Physique-Lettres*, 41, L-123, 1980).

Y. ROINEL, V. BOUFFARD, G.L. BACCHELLA et M. PINOT, *The cold world of nuclear magnetism* (*New Scientist*, 86, 31, 1980).

M. GOLDMAN, *Neutron diffraction study of nuclear magnetic ordering* (*J. Magn. and Magnetic Materials*, 14, 105, 1979).

M. GOLDMAN, *Use of neutron diffraction for the study of domains in nuclear magnetic ordering* (*J. Physique*, à paraître).

C. URBINA et J.F. JACQUINOT, *Low field behaviour of Tm^{2+} in $Ca F_2$ at ultra low spin temperature* (*Physica*, 529B, 1, 1980).

N.S. SULLIVAN, M. DEVORET et D. ESTEVE, *L'hydrogène solide : un verre pas comme les autres* (*La Recherche*, 111, 587, 1980).

N.S. SULLIVAN, *Quadrupolar glass phases in solid hydrogen and solid deuterium* (*Bull. Am. Phys. Soc.*, 25, 323, 1980).

M. DEVORET, *The colouring problem on a randomly occupied lattice : the existence of a critical concentration for long range order* (*J. of Physics C*, 13, 2257, 1980).

J.M. DELRIEU, M. ROGER et J.H. HETHERINGTON, *Exchange and magnetic order in hcp 3He and adsorbed 3He with triangular lattice* (*J. Low Temp. Physics*, à paraître).

J.M. DELRIEU, M. ROGER et J.H. HETHERINGTON, *Physical origin of multiple three and four spin (or atoms) exchange in quantum solids with some consequences* (Colloque S.P.O.Q.S./C.N.R.S. Aussois, *J. Physique*, à paraître).

M. ROGER, J.M. DELRIEU et J.H. HETHERINGTON, *The new experimental results on magnetic order in bcc solid 3He are well explained by planar four spin exchange* (Colloque S.P.O.Q.S./C.N.R.S. Aussois, *J. Physique*, à paraître).

M. ROGER, J.M. DELRIEU et J.H. HETHERINGTON, *Most experimental magnetic properties of solid bcc 3He are described by a two parameter model* (*J. Physique Lettres*, 41, L-139, 1980).

M. ROGER, J.M. DELRIEU et J.H. HETHERINGTON, *The four spin exchange model and 3He magnetism* (*Phys. Rev. Letters*, à paraître).

W.N. HARDY, M. MORROW, R. JOCHEEMSEN, B.W. STATT, P.R. KUBIK, R.M. MARSOLAIS, A.J. BERLINSKY et A. LANDESMAN, *Magnetic resonance study of gaseous atomic hydrogen confined at 1 K and zero magnetic field* (*Phys. Rev. Letters*, à paraître).

W.J. MULLIN et A. LANDESMAN, *Theory of motional inhibition of interlayer quantum tunnelling in thin ^3He films* (*J. Low Temp. Phys.*, 38, 571, 1980).