# Magnétisme nucléaire

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

# ÉTUDE DE LA MATIÈRE CONDENSÉE PAR LA RÉCESSION DES MUONS

- a) Le muon, caractéristiques, production, polarisation, désintégration.
- b) Précession de Thomas et mouvement relativiste d'un spin dans des champs lentement variables.
- c) Le muon dans les champs magnétiques locaux : champ appliqué transversal, champ appliqué nul, effets du mouvement, rôle des pièges.
  - d) Le muon dans les substances magnétiques.
  - e) Le muonium.
  - f) Le muonium anormal.

Depuis une quizaine d'années l'utilisation du muon pour l'étude de la matière condensée a pris une extension considérable. Les équipes les plus actives, implantées par la force des choses auprès d'accélérateurs produisant des pions, source de muons, sont (dans un ordre quelconque) celles de Zürich, Vancouver, Tokyo, Los Alamos, CERN, Doubna, etc. Il est probable que le désir de valoriser des accélérateurs d'énergie inférieure à 1 GeV, capables de créer en abondance des pions, qui attiraient de moins en moins les physiciens des particules, tournés vers des énergies beaucoup plus élevées et les physiciens nucléaires intéressés de plus en plus par les ions lourds, a joué un rôle moteur dans cette utilisation du muon.

Une politique similaire pour les synchrotrons à électrons existants avait auparavant servi à promouvoir l'utilisation du rayonnement synchrotron comme source abondante de rayons X pour l'étude des structures. Ceci jusqu'au jour où ce nouveau mode d'emploi s'est révélé suffisamment fructueux pour que des machines nouvelles conçues spécialement pour l'utilisation du rayonnement synchrotron par les spécialistes de la matière condensée aient vu le jour. Il

n'est pas certain que le muon en tant que sonde de la matière condensée connaisse semblable fortune, pour la raison suivante. Une sonde quelle qu'elle soit doit posséder deux qualités : être sensible de façon mesurable à son environnement sans quoi elle ne serait pas une sonde, et perturber cet environnement de façon négligeable ou du moins calculable sans ambiguïté. Si le muon, grâce à son moment magnétique, son mode de production et son mode de désintégration répond, comme on le verra, à la première exigence, sa charge, qui lui permet d'être stoppé au sein de la matière, perturbe considérablement son environnement. Tel enthousiaste du muon l'a comparé à un espion silencieux, et tel détracteur, à un éléphant dans un magasin de porcelaine. La vérité est entre les deux. Il est probable que le muon crée plus de problèmes qu'il n'en résout. Est-ce nécessairement un mal ? La réponse n'est pas évidente.

## a) Le muon : caractéristiques, production, polarisation, désintégration

Le muon est un lepton, de spin 1/2 produit par la désintégration d'un pion, créé en préalable par une collision nucléon-nucléon ou photon-nucléon, en muon et neutrino suivant les schémas :

$$\pi^+ \to \mu^+ + \nu_\mu \quad \pi^- \to \mu^+ + \bar{\nu}_\mu \tag{1}$$

Le muon positif que sa charge maintient loin des noyaux, l'empêchant d'être comme le muon négatif capturé dans une orbite atomique profonde, est pratiquement le seul utilisé. Les constantes suivantes sont utiles à se rappeler :

$$m_u/m_\pi \simeq 0.757, \quad m_u/m_e \simeq 207, \quad \tau_\pi \sim \ 10^{-8} \ s$$

Des expériences extraordinairement précises ont montré que les propriétés magnétiques du muon sont exactement celles de l'électron à un facteur d'échelle  $(m_e/m_\mu)$  près. La fréquence de Larmor du muon, environ 207 fois plus petite que celle de l'électron est de l'ordre de 135 Mhz/T.

Le muon se désintègre à son tour en un électron, un neutrino et un antineutrino suivant les schémas :

$$\mu^{+} = e^{+} + \bar{\nu}_{\mu} + \nu_{e} \ et \ \mu^{-} = e^{-} + \nu_{\mu} + \bar{\nu}_{e} \eqno(2)$$

avec un temps de vie  $\tau_u \simeq 2.2 \times 10^{-6} \ s.$ 

L'utilisation du muon comme sonde repose sur la non-conservation de la parité dans les réactions (1) et (2) dues à l'interaction faible. Une façon simple sinon simpliste d'en décrire les effets consiste à dire qu'un lepton ultra-relativiste produit dans une interaction faible a une hélicité (projection du spin sur l'impulsion) égale à -1/2 ou +1/2 suivant qu'il s'agit d'une particule (neutrino, muon et électron négatifs) ou antiparticule (antineutrino, muon et élec-

tron positifs). Pour les neutrinos et antineutrinos dont la masse est nulle, cette règle est absolue. Dans la désintégration d'un pion au repos (Eq. 1), où muon et neutrino ont des impulsions opposées  $\mathbf{p}_{\mu} = -\mathbf{p}_{\nu}$ , le spin du neutrino est antiparallèle à  $\mathbf{p}_{\nu}$ , et donc celui du muon positif est parallèle à  $\mathbf{p}_{\nu}$  c'est-à-dire antiparallèle à  $\mathbf{p}_{\mu}$ . Ceci n'est pas contradictoire avec le fait que le muon positif est une antiparticule car dans la réaction (1) il est créé avec une énergie cinétique non relativiste  $\mathbf{E}_{\text{cin}}(\mu) \ll \mathbf{m}_{\mu}$ .

Au contraire dans un mode de désintégration :

$$\pi^+ = e^+ + \nu_e, \tag{3}$$

le positon est créé avec une énergie de l'ordre de  $m_\pi/2 \gg m_e$ , c'est-à-dire ultrarelativiste. Forcé d'être créé avec une énergie ultrarelativiste et pourtant d'après le raisonnement précédent avec un spin antiparallèle à son impulsion le positon de l'équation (3) est très mal à l'aise, autre façon de dire que le mode de désintégration (3) est très peu probable,  $10^{-4}$  fois moins que le mode (1).

Premier fait donc, le muon positif est créé avec un spin antiparallèle à son impulsion dans le centre de masse de la réaction (1) et il est raisonnable d'admettre qu'il n'est pas dépolarisé pendant le temps très bref qui l'amène au repos au sein de l'échantillon. Ensuite un raisonnement analogue montre qu'il y a une corrélation positive entre le spin du muon et la direction de l'impulsion du positon émis dans la désintégration (2). Considérons à titre d'exemple un positon ultrarelativiste émis dans la réaction (2) avec l'énergie maximale  $(m_u/2) \gg m_e$ , ce qui demande que les impulsions des neutrinos  $\bar{\nu}_u$ et v<sub>e</sub> soient parallèles entre elles et antiparallèles à celles du positon. Ces 2 dernières particules aux hélicités opposées emportent à elles deux un spin nul. Si le positon était émis dans une direction opposée, à celle du spin du muon, son spin devrait être à la fois parallèle au spin du muon pour conserver le spin total dans la réaction (2) et parallèle à sa propre impulsion en tant que antiparticule ultrarelativiste, ce qui est contradictoire. Il n'y a donc pas de positon émis avec l'énergie maximale dans une direction opposée au spin du muon, cas particulier d'une corrélation positive. Le calcul montre que cette corrélation est donnée par une distribution angulaire  $(1 + \cos \theta)$  pour les positions d'énergie maximale et  $\left(1 + \frac{1}{3}\cos\theta\right)$  pour l'ensemble du spectre de positons.

Le début du cours a consisté à présenter les considérations précédentes sous forme quantitative en partant du principe que les spineurs de Dirac décrivant les leptons formés dans les réactions (2) sont des spineurs « gauches ».

$$\psi_{L} = \frac{1 + \gamma_{5}}{2} \psi \text{ où } \gamma_{5} = -i\gamma^{0} \gamma^{1} \gamma^{2} \gamma^{3}$$
(4)

est la matrice qui définit la chiralité du lepton.

b) Précession de Thomas et mouvement relativiste d'un spin dans des champs lentement variables

On a montré qu'un mouvement relativiste de translation de vitesse  $\boldsymbol{\beta}$  et d'accélération  $\dot{\boldsymbol{\beta}}$  (dans un système d'unités où c=1) s'accompagne nécessairement d'une rotation (phénomène découvert par L.H. Thomas en 1926), dont le vecteur  $\boldsymbol{\omega}_T$  est donné par :

$$\mathbf{\omega}_{\mathrm{T}} = \frac{\gamma}{\gamma + 1} \left( \dot{\mathbf{\beta}} \triangle \mathbf{\beta} \right) \text{ avec } \gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$$
 (5)

ou, pour  $\beta \gg 1$ ,  $\omega_{\rm T} \cong (1/2) \ (\dot{\boldsymbol{\beta}} \triangle \boldsymbol{\beta})$ .

La précession de Thomas, en s'ajoutant à la précession de Larmor d'un spin électronique dans le champ magnétique de Lorentz « vu » par l'électron, en mouvement dans le champ électrique central de l'atome, a permis de donner la formule correcte du couplage spin-orbite (telle qu'elle s'obtient par réduction aux grandes composantes de l'équation de Dirac).

$$\mathcal{H}_{SOC} = \zeta (r) \ell . s = \frac{g - 1}{2m^2} \frac{e}{r} \frac{dV}{dr} (\ell . s)$$
 (6)

Dans (6)  $\ell$  est le mouvement orbital, **s** le spin, V (r) le potential central, (-e) la charge de l'électron. Le raisonnement originel de Gondsmit et Uhlenbeck, qui ignorait la précession de Thomas, amenait à écrire  $g \approx 2$ , au lieu de (g-1) dans (6), conduisant à un résultat deux fois trop grand.

La considération de la précession de Thomas a permis d'obtenir l'équation dite BMT (Bargman, Michel, Telegdi, en réalité écrite bien des années plus tôt par Thomas) qui décrit le mouvement d'un spin dans un champ électrique **E** et un champ magnétique **B** lentement variables. Le principe du calcul est très simple. On écrit la précession de Larmor dans le référentiel où la particule est au repos, on transforme par les formules de Lorentz au référentiel du laboratoire et l'on y ajoute la précession de Thomas.

Le résultat est une précession du spin, anisotrope autour des trois vecteurs,  $\mathbf{B}_{/\!\!/}, \ \mathbf{B}_{\perp}, \ (\mathbf{E} \ \triangle \ \boldsymbol{\beta})$  où les symboles  $/\!\!/$  et  $\perp$  se rapportent à la direction du mouvement. On trouve :

$$\boldsymbol{\omega} = \boldsymbol{\omega}_{L} + \boldsymbol{\omega}_{T} = \frac{-\varepsilon}{m} \left\{ \frac{g}{\gamma} \, \mathbf{B}_{\mathbb{Z}} + \left[ g - 2 \, \frac{(\gamma - 1)}{\gamma} \right] \, \mathbf{B}_{\perp} + \left( g - \frac{2 \, \gamma}{\gamma + 1} \right) (\mathbf{E} \, \triangle \, \boldsymbol{\beta}) \right\}$$
(7)

où ε est la valeur algébrique de la charge.

Les limites, non relativistes où (7) se réduit comme il se doit à  $\omega = \frac{-\epsilon}{m} g \ B$  et extrême relativiste s'obtiennent en faisant dans (7),  $\gamma = 1$  et  $\infty$  respectivement.

# c) Le muon dans les champs magnétiques locaux

Le principe de son utilisation pour mesurer les champs magnétiques locaux est le suivant. L'arrêt du muon dans l'échantillon est détecté par un signal CC' où C signifie que le muon est entré dans l'échantillon et C' qu'il n'est pas ressorti. Ce signal constitue le top de départ pour l'observation du positon de désintégration qui se produit t secondes (ou plutôt microsecondes) plus tard. Durant ce temps le spin du muon, et donc aussi le diagramme polaire anisotrope des positons auront précessé d'un angle  $\theta = \omega t$ . Si l'on fait une statistique sur un grand nombre de muons arrivant les uns après les autres (un seul muon à la fois dans l'échantillon), le taux de comptage d'un compteur de positons fixe en fonction du temps sera modulé à la fréquence ω. Une autre technique qui commence à se développer utilise des faisceaux de muons pulsés, la durée d'une bouffée intense étant très inférieure à la vie moyenne τ<sub>u</sub>. Le point essentiel est que le spin du muon possède à l'instant zéro une orientation bien définie dans l'espace, par rapport à laquelle est repéré le diagramme polaire des positons dont la précession est liée à celle du spin du muon.

La technique la plus courante consiste à appliquer un champ magnétique élevé, perpendiculaire à la polarisation initiale du muon. Sous cette forme l'expérience est conceptuellement identique à la précession libre en RMN. La transformée de Fourier de la précession observée en fonction du temps donne une raie de résonance dont le second moment est calculé par la théorie de Van-Vleck. Tout au plus convient-il de remarquer que l'élargissement de la raie de résonance, créé par les moments nucléaires environnants est toujours du type « unlike », ces moments ayant une fréquence de Larmor différente de celle de 135 Mhz/T du muon (et beaucoup plus petite). Il en résulte que la forme de raie se rapproche beaucoup plus d'une gaussienne que dans le cas d'un élargissement « like » d'autant plus que la fréquence de Larmor du muon dans le champ local instantané des spins environnants est beaucoup plus grande que les fréquences de flip-flop entre ces derniers. (Par contraste avec une résonance de γ faible comme celle de l'argent dans Ag F où c'est l'inverse qui a lieu et où la raie est approximativement Lorentzienne).

Par rapport à la RMN le muon pose deux problèmes nouveaux. Le premier est la détermination du site, interstitiel en général, où se loge le muon. C'est ainsi que dans le cuivre métallique de structure CFC la variation de la largeur de raie du méson avec l'orientation du champ magnétique par rapport aux axes cristallins permet de déterminer la nature, octaédrique en l'espèce, du site interstitiel.

Par ailleurs on a observé une variation du second moment avec le champ magnétique appliqué, incompatible avec la théorie de Van Vleck. L'explication réside dans le fait que les noyaux de cuivre dont le spin nucléaire est 3/2,

voisins du muon porteur d'une charge qui produit des gradients de champ électrostatique, n'ont plus un environnement de symetrie cubique. Leurs moments quadrupolaires interagissent avec ces gradients et leurs états propres dépendent des valeurs respectives de l'énergie Zeeman, proportionnelle au champ appliqué  $H_o$  et de l'énergie quadrupolaire. La partie séculaire du champ local qu'ils produisent à l'emplacement du muon dépend donc de  $H_o$ , ce qui explique la variation observée pour la largeur de raie du muon. Cet exemple, il y en a bien d'autres, montre bien que le muon, en modifiant son environnement, *crée* des problèmes mais que ces problèmes sont fort intéressants à résoudre.

Comme on l'a dit, l'amortissement du signal de précession (ou l'élargissement de sa transformée de Fourier) a une forme gaussienne au cas où les champs locaux ne fluctuent pas dans le temps (approximation du réseau rigide). La fluctuation éventuelle peut avoir deux origines : soit la relaxation rapide des spins environnants, soit un mouvement de diffusion rapide du muon. Comme en RMN ce problème peut être traité, et l'a été dans le cours, de deux façons. La fréquence de Larmor du muon étant une fonction aléatoire  $\omega$  (t), il faut

calculer la moyenne 
$$\langle exp - i \int_{0}^{t} \omega(t') dt' \rangle = G(t).$$

Dans une première méthode on suppose que  $\omega$  (t) est une fonction gaussienne avec une fonction de corrélation :  $\langle \omega (t) \omega (t-\tau) \rangle = \langle \omega^2 \rangle h$  ( $\tau$ ) avec  $\omega$  h (o) = 1. On trouve alors :

G (t) = exp - 
$$\{\Delta^2 \int_0^t (t - \tau) h(\tau) d\tau\}$$
 où  $\Delta^2 = \langle \omega^2 \rangle$  (8)

ou, si l'on choisit pour h ( $\tau$ ) la forme exp ( $-\nu\tau$ ) :

G (t) = 
$$\exp - (\Delta^2/v^2) \{ \exp - (vt) + vt - 1 \}$$
 (8')

 $\nu$  est la fréquence aléatoire de l'interruption du déroulement de la fréquence  $\omega$  (t) ou encore l'inverse de son temps de corrélation. Lorsque  $\nu^2 \gg \Delta^2$ , (8') prend la forme asymptotique bien connue :

$$G(t) = \exp - (\Delta^2/\nu) t$$
 (8")

Dans la deuxième méthode on suppose que la précession est interrompue brutalement avec une fréquence moyenne d'interruption v, approximation qui convient bien à une diffusion par sauts du muon à travers le champ local. On montre aisément que la fonction G (t) en présence du mouvement est reliée à la fonction statique g (t) par l'équation intégrale :

$$G(t) = g(t) e^{-vt} + v \int_{0}^{t} g(t') e^{-vt'} G(t - t') dt'$$
 (9)

L'équation (9) se résout par la transformation de Laplace. En posant :

$$f(s) = \int_{0}^{\infty} g(t) e^{-st} dt$$
  $F(s) = \int_{0}^{\infty} G(t) e^{-st} dt$ 

on trouve:

$$F(s) = f(s) [1 + vf(s)]^{-1}$$
(10)

dont l'inversion permet de calculer, numériquement en général, G (t). Les fonctions G (t) données par (8) et par l'inversion de (10), sont très voisines quoique non identiques et leur différence peut en général être négligée.

La grande faiblesse de la méthode du champ transversal est son incapacité à détecter les mouvements lents, c'est-à-dire ceux pour lesquels  $\langle \omega^2 \rangle / v^2 \rangle 1$  et pour lesquels G (t) et g (t) sont indiscernables.

On sait qu'en RMN on peut étendre le domaine des temps de corrélation longs en étudiant la relaxation dipolaire. Pour pallier la même difficulté dans le cas du muon on étudie avantageusement depuis quelques années la dépolarisation du muon en champ nul (technique inapplicable en RMN). On montre facilement que pour un champ de direction quelconque en l'absence de mouvement, la polarisation du muon, mesurée le long de sa direction initiale est donnée par :

$$g(t) = \langle \cos^2 \theta \rangle + \langle \sin^2 \theta \cos \omega t \rangle \tag{11}$$

où  $\theta$  est l'angle de la polarisation initiale avec le champ total, appliqué plus local, et  $\omega$  la fréquence de Larmor dans ce même champ. Dans un champ appliqué transversal et grand par rapport au champ local,  $\theta = \pi/2$  et (11) se réduit à g (t) =  $\cos \omega$ . Dans un champ appliqué nul,  $\theta$  est une variable aléatoire et l'on a en général :

$$g(t) = 1/3 + (2/3) \cos \omega t$$
 (12)

Contrairement à ce qui se passe dans un champ transversal le champ local n'est pas limité à sa composante séculaire parallèle au champ appliqué et la valeur moyenne de  $\langle \cos \omega t \rangle$  n'est pas  $\exp{-\frac{\langle \omega^2 \rangle t^2}{2}}$  mais :

 $\left(1 - \frac{\langle \omega^2 \rangle t^2}{2}\right) \exp{-\frac{\langle \omega^2 \rangle t^2}{2}}$  et l'on trouve pour la polarisation du muon en réseau rigide :

$$g_o(t) = (1/3) + (2/3) \left(1 - \frac{\Delta_o^2 t^2}{2}\right) \exp{-\frac{\Delta_o^2 t^2}{2}}$$
 (13)

La fonction  $g_o(t)$  donnée par (13) diffère de la fonction d'atténuation  $g(t) = \exp{-(\Delta^2 t^2/2)}$  relative à la précession dans un champ transversal, non

seulement par sa forme mais aussi par une valeur différente de  $\langle \omega^2 \rangle = \Delta_0^2 \neq \Delta^2$ . En effet dans le cas du champ transversal seule la composante séculaire du champ local doit être prise en compte. Il résulte d'un calcul très simple que  $\Delta_0^2 = (5/2) \Delta^2$ . La fonction  $g_0$  (t) a une forme caractéristique non monotone. Elle passe par un minimum très petit puis tend asymptotiquement vers 1/3.

L'effet du mouvement sur la dépolarisation  $g_o$  (t) donnée par (13) se calcule comme dans le cas du champ transversal par les formules (9) et (10). On montre que la fonction  $G_o$  (t) ainsi obtenue a, pour les mouvements lents c'est-à-dire  $\nu \ll \Delta_o$  et pour les temps élevés la forme asymptotique  $G_o$  (t)  $\rightarrow \left(\frac{1}{3}\right) \exp\left(-2\nu t/3\right)$  ce qui se conçoit intuitivement ; une fois la valeur limite (1/3) de (13) atteinte, deux collisions sur trois en moyenne sont dépolarisantes. Le point essentiel est la possibilité de distinguer entre un réseau rigide où la valeur limite de  $g_o$  (t) est 1/3 et des mouvements très lents où  $G_o$  (t) décroît au dessous de (1/3) et tend vers zéro.

Tous les résultats précédents ont été également présentés dans le formalisme de Kubo et Toyabe. Dans ce formalisme puissant on écrit une équation de Boltzmann pour la fonction de distribution  $P\left(\mathbf{M},\,\mathbf{H},\,\mathbf{t}\right)$  où l'aimantation  $\mathbf{M}$  (entendez la polarisation du muon) et le champ local  $\mathbf{H}$  sont des variables aléatoires. La solution de cette équation donne  $\langle \mathbf{M}\,(\mathbf{t})\rangle = \int P\left(\mathbf{M},\,\mathbf{H},\,\mathbf{t}\right)\,\mathbf{M}\,d\mathbf{M}\,d\mathbf{H}$  c'est-à-dire l'évolution de la polarisation du muon en fonction du temps. Ce formalisme, proposé par ces auteurs il y a une vingtaine d'années et qui traitait essentiellement le cas d'un champ appliqué nul ou comparable au champ local n'avait eu, avant l'étude de la dipolarisation du muon en champ nul, qu'un intérêt académique.

Un phénomène remarquable dans le comportement du muon au sein des métaux est la variation non monotone de la vitesse de la dépolarisation avec la température. Un raisonnement naïf conduirait à penser que la vitesse de diffusion des muons devrait croître et donc la vitesse de dépolarisation décroître continûment avec la température, en contradiction avec l'expérience. Pour expliquer cette contradiction on invoque l'existence d'impuretés sur lesquelles vient se piéger le muon. Pour expliquer l'existence de deux pics de dépolarisation à des températures T, et T' > T, séparés par un creux de dépolarisation, on postule deux types d'impuretés c'est-à-dire de pièges. A basse température, la dépolarisation est causée par des pièges relativement nombreux mais relativement peu profonds dont le muon s'échappe quand la température augmente d'où le creux de dépolarisation. La vitesse de diffusion augmentant encore, les muons sont capturés par une deuxième espèce de pièges moins nombreux mais plus profonds. L'étude de la dépolarisation en champ nul permet de décider sans ambiguïté si à une température donnée le muon est piégé définitivement dans une trappe on s'en échappe éventuellement. En introduisant pour chaque type de piège une probabilité de capture v et une probabilité

d'évasion  $\lambda$  on a pu écrire des équations intégrales pour la dépendance en fonction du temps de la dépolarisation muonique et extraire des résultats observés sur des échantillons de niobium des valeurs de  $\lambda$  et  $\mu$ . L'hypothèse des impuretés jouant le rôle de pièges est confirmée par l'étude de matériaux ultra-purs ou la dépolarisation est beaucoup plus faible et dépend beaucoup moins de la température.

## d) Le muon dans les substances magnétiques

On a passé brièvement en revue l'étude des substances magnétiques par la précession des muons dans les champs magnétiques internes. Dans un férromagnétique par exemple, il convient tout d'abord de séparer le champ interne en ses composantes: champ hyperfin H<sub>f</sub> et champ dipolaire H<sub>d</sub> et ce dernier en ses trois composantes : H'<sub>d</sub>, champ dipolaire intérieur à la sphère de Lorentz, H<sub>L</sub>, champ de Lorentz, H<sub>D</sub>, champ démagnétisant. Le calcul de la première de ces trois composantes H'<sub>d</sub> nécessite la connaissance de la position du muon. A titre d'exemple dans le cas du cobalt hexagonal il existe deux sites interstitiels, octaédrique et tétraédrique. La variation de l'énergie d'anisotropie magnétique avec la température dans le cobalt hexagonal conduit entre 500 et 600 °K à une rotation de l'aimantation d'une position parallèle à l'axe c à une position perpendiculaire. La variation en grandeur, du champ interne en fonction de cette rotation de l'aimantation, très différente pour les deux sites, a permis d'identifier le site du muon comme octaédrique. On peut alors calculer entièrement le champ dipolaire et en le retranchant du champ interne total, observé par précession du muon, déterminer le champ hyperfin. On a alors le plaisir de chercher à calculer à partir des premiers principes ce champ hyperfin qui naturellement n'a rien à voir avec celui qui existait en ce site avant l'arrivée du muon et de la comparer à la valeur expérimentale. Autre exemple des vertus problémogènes du muon.

Pour rendre justice au muon il faut tout de même citer un exemple où il a permis de résoudre un problème existant, sur lequel la RMN s'était cassé les dents, l'étude des fluctuations du champ interne dans une autre substance magnétique MnSi. Cette substance est un hélimagnétique, presque ferromagnétique car le pas de son hélice dépasse 150 Å, avec une température critique  $T_{\rm c}$  de 29,5 K. La théorie prédit une dépendance du temps de relaxation  $T_1$ 

par rapport à la température de la forme : 
$$T_1 \propto \left(1 - \frac{T_c}{T}\right)$$
, devenant extrê-

mement court à l'approche de la température critique. Ni la RMN du noyau de manganèse ni celle de silicium n'ont donné de résultats au dessous de 200 °K. Par contre la relaxation du muon dans un champ longitudinal de 700 gauss a pu être étudiée de part et d'autre de la température critique, vérifiant

au-dessus de T<sub>c</sub> la loi donnée ci-dessus. Un point important est la grande longueur d'onde des fluctuations responsables de la relaxation du muon qui rend la vérification de la théorie indépendante du site où s'implante le muon.

Enfin les verres de spin, cette vache sacrée de la physique du solide contemporaine, ont eux aussi bénéficié des attentions du muon. On sait que la distribution du champ local produit par des impuretés magnétiques dans une matrice diamagnétique a une forme approximativement Lorentzienne. Lorsqu'on se pose le problème de mesurer les fluctuations de ce champ local on se heurte à une difficulté théorique qui est l'insensibilité au mouvement d'une forme Lorentzienne. Une forme Lorentzienne de la raie correspond à une atténuation exponentielle g (t) =  $e^{-vt}$  de la précession du muon dont la transformée de Laplace est  $f(s) = (s + v)^{-1}$  et l'on vérifie aisément sur la formule (10) qui donne la transformée de Laplace F (s) de l'atténuation en présence de mouvement que F (s) = f (s). La solution consiste à représenter la Lorentzienne comme une superposition de gaussiennes, à remplacer chaque gaussienne par sa modification en présence de mouvement comme on l'a vu plus haut puis à resuperposer les formes modifiées ainsi obtenues. Cette procédure a été appliquée à l'analyse de fluctuations dans deux verres de spin CuMn et AuFe. L'interprétation est plus simple dans le cas de AuFe où les moments nucléaires de l'or sont extrêmement petits et apportent une contribution négligeable à l'élargissement. La dépolarisation du muon en champ nul dans ces matériaux a permis de mesurer le temps de corrélation dans AuFe sur plus de 4 décades entre 4 °K où il est supérieur à 10-6 sec et 12 °K où il est inférieur à  $10^{-10}$ . (La température de gel T<sub>e</sub> est de l'ordre de 8 °K.)

## e) Le muonium

Dans tout ce qui précède on a supposé implicitement que le muon restait libre et que sa charge positive ne captait pas un électron pour former un atome hydrogénoïde. Il en est bien ainsi dans les métaux où les électrons de conduction forment écran à une telle capture, mais dans les isolants, cet atome, dénommé muonium, se forme. La fin du cours a été consacrée à l'étude du muonium. Le muonium est un des systèmes les plus simples de l'électrodynamique quantique, les effets hadroniques en sont absents et l'une de ses propriétés fondamentales, la structure hyperfine, peut être calculée avec une précision extraordinaire, bien supérieure à celle de la structure hyperfine de l'hydrogène, et se trouve en complet accord avec les valeurs expérimentales. La valeur de l'intervalle hyperfin, supérieure à celle de l'hydrogène, par un facteur égal à  $\gamma$  (muon)/ $\gamma$  (proton) = 3,18 (à part une correction de masse réduite de l'ordre de  $(m_e/m_\mu) \simeq 5 \times 10^{-3}$ ) est approximativement : a  $\simeq 1$  420 Mhz  $\times 3,18 \simeq 4$  500 Mhz.

On a écrit de façon compacte les équations classiques de Breit-Rabi pour les niveaux et les états propres du muonium. L'Hamiltonien du muonium libre dans un champ magnétique s'écrit avec des notations évidentes :

$$\mathcal{H} = \mathbf{aS} \cdot \mathbf{s} + \Omega \mathbf{S}_{z} + \omega \mathbf{s}_{z} \tag{14}$$

où  $\Omega$  et  $\omega$  sont respectivement les fréquences de Larmor de l'électron et du muon.

Posant  $(\Omega - \omega)/a = x$ , (14) peut se réécrire :

$$\mathcal{H} = \frac{a}{4} \left\{ 4S.s + 2x \left( S_z - S_z \right) + 2x \left( S_z + S_z \right) \right\} + \omega \left( S_z + S_z \right)$$
 (14')

Sur les 4 niveaux de muonium, les deux pour lesquels  $S_z = s_z$  ont des états propres et des énergies donnés par :

$$|1\rangle = |+, +\rangle \qquad |3\rangle = |-, -\rangle \qquad E_{1,3} = \frac{a}{4} (1 \pm 2x) \pm \omega \qquad (15)$$

Les deux autres états,  $|2\rangle$  et  $|4\rangle$ , combinaisons linéaires des états  $|+,-\rangle$  et  $|-,+\rangle$  sont les états propres de l'Hamiltonien réduit :

$$\mathcal{H}' = \frac{a}{4} \left\{ -1 + 2\sqrt{1} + x^2 \left( \sigma_1 \sin \varphi + \sigma_3 \cos \varphi \right) \right\}$$
 (16)

où:

$$\sin \varphi = (1 + x^2)^{-1/2} \cos \varphi = -x (1 + x^2)^{-1/2}$$
 (16')

et les états de base sur lesquels opèrent les matrices de Pauli  $\sigma$ , sont  $|\alpha\rangle$  =  $|-, +\rangle$  et  $|\beta\rangle$  =  $|+, -\rangle$  où le premier signe est celui de  $S_z$ . On lit sur (16) :

$$|2\rangle = \cos\frac{\varphi}{2}|-, +\rangle + \sin\frac{\varphi}{2}|+, -\rangle$$
  $|4\rangle = -\sin\frac{\varphi}{2}|-, +\rangle + \cos\frac{\varphi}{2}|+, -\rangle$ 

$$E_{2,4} = \frac{a}{4} \left( -1 \pm 2\sqrt{1} + x^2 \right) \tag{17}$$

La première manifestation de la formation du muonium est une réduction de la polarisation du muon. Si l'on choisit l'axe oz comme direction du champ magnétique la polarisation du muon en fonction du temps est donnée par  $\text{Tr}\left(\varrho\left(t\right)\sigma_{z}\right)$  ou  $\text{Tr}\left(\varrho\left(t\right)\sigma_{x}\right)$  suivant que ce champ est appliqué parallèlement ou perpendiculairement à la direction de la polarisation initiale du muon. La forme initiale  $\varrho(o)$  de la matrice densité est alors respectivement  $\frac{1}{2}\left(1+\sigma_{z}\right)$  et  $\frac{1}{2}\left(1+\sigma_{x}\right)$  d'où l'on déduit aisément l'expression de la polarisation :

$$P_{z,x} = \frac{1}{4} \sum_{i} (i |\sigma_{z,x}| 1)^2 + \frac{1}{2} \sum_{i \le j} (i |\sigma_{z,x}| j)^2 \cos(\omega_{ij}t)$$
 (18)

où les états propres  $|i\rangle$  et les fréquences propres  $\omega_{ij} = E_i - E_j$  sont donnés par (15) et (17).

Pour un champ longitudinal (18) se réduit à :

$$P_{o}(t) = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{x^{2}}{1 + x^{2}} + \frac{1}{1 + x^{2}} \cos(\omega_{24}t) \right\}$$
 (19)

Dans (19) le terme dépendant du temps varie trop vite pour pouvoir être observé en général et seule la valeur moyenne  $\bar{P}_o$  est mesurée. On voit qu'elle est égale à 1/2, en champ nul et n'atteint l'unité que pour  $x \gg 1$  c'est-à-dire pour des fréquences de Larmor électroniques beaucoup plus grandes que la fréquence hyperfine. C'est ce comportement qui a été à l'origine de la découverte du muonium. La variation de  $\bar{P}_o$  en fonction de  $x = (\Omega - \omega)/a$  fournit une mesure approximative de a. Une mesure plus précise de a est fournie par des mesures de  $P_x$  (t) dans des champs moyens. On montre aisément à partir de (15) et (17) :

$$a = \{ [\omega_{12} + \omega_{23} - 2\omega]^2 - (\omega_{23} - \omega_{12})^2 \} / 2 (\omega_{23} - \omega_{12})$$
 (20)

Les champs sont choisis suffisamment faibles pour que la mesure de  $\omega_{12},$   $\omega_{23} \ll a$  n'excède pas les possibilités de l'électronique mais suffisamment forts pour que la différence  $(\omega_{23}-\omega_{12})$  soit mesurable. Récemment l'électronique a été suffisamment perfectionnée pour suivre la variation en champ nul de la polarisation  $P_o=\frac{1}{2} \ (1+\cos at)$  en fonction du temps, et en déduire une mesure très précise de a.

## f) Le muonium anisotrope ou anormal

Dans certains semi-conducteurs comme le silicium, le germanium, le diamant on observe deux types de muonium. Le premier est ce que l'on appelle le muonium normal. Sa structure hyperfine est de la forme a s.S et son facteur gyromagnétique est isotrope. La valeur de a est du même ordre de grandeur que dans le vide quoique appréciablement différente. Cet ordre de grandeur correspond à une extension de la fonction d'onde de l'électron du muonium et à une énergie de liaison, comparables à celles du muonium libre. Le muonium normal est ce que l'on appelle dans le langage des semi-conducteurs une impureté profonde. Il existe dans ces mêmes semi-conducteurs une autre variété de muonium dite muonium anormal. Sa structure hyperfine est fortement anisotrope de la forme :

$$\mathcal{H} = \mathbf{A}_{\perp} (\mathbf{s}_{\mathbf{x}} \mathbf{S}_{\mathbf{x}} + \mathbf{s}_{\mathbf{y}} \mathbf{S}_{\mathbf{y}}) + \mathbf{A}_{\mathscr{I}} \mathbf{s}_{\mathbf{z}} \mathbf{S}_{\mathbf{z}}$$

$$= \mathbf{A}_{\perp} \mathbf{s} \cdot \mathbf{S} + (\mathbf{A}_{\mathscr{I}} - \mathbf{A}_{\perp}) \mathbf{s}_{\mathbf{z}} \mathbf{S}_{\mathbf{z}}$$
(21)

où l'axe OZ est un axe [111] du cristal. En valeur absolue  $A_{\perp}$  et  $A_{\parallel}$  sont plus petits que a par un ordre de grandeur. Le muonium anormal est dans le semi-conducteur une impureté peu profonde (shallow). En présence d'un champ magnétique il ne possède des fréquences de précession discrètes que dans un monocristal. Cependant, fait remarquable, si le facteur gyromagnétique lui est isotrope (ce qui est le cas dans le silicium et le diamant), il existe une valeur « magique » du champ appliqué pour lequel la fréquence de l'une des transitions est indépendante de la direction du champ appliqué et peut être observée dans une poudre. Comme on l'a montré dans le cours, la valeur du champ magique est donnée au premier ordre en  $(A/\Omega)$  par la condition :  $\omega = -M$   $(A_{\perp} + A_{\perp})$ 

 $\frac{-M(A_{\parallel} + A_{\perp})}{2}$  où  $\omega$  est la fréquence de Larmor du muon et M la valeur + 1/2 de S ( $\omega$  étant négatif le signe de M est celui de (A + A)/2

leur  $\pm$  1/2 de S<sub>z</sub> ( $\omega$  étant négatif, le signe de M est celui de  $(A_{/\!/} + A_{\perp})/2$ . La valeur de la fréquence magique de précession est M  $(A_{/\!/} - A_{\perp})/2$ . Une raie étroite du muonium anormal a été effectivement observée dans le champ magique sur de la poudre de diamant. Il convient de remarquer qu'une telle transition est inobservable en RPE. En effet elle y correspond à un flip nucléaire en champ élevé, transition qui n'est observable en RPE que par la méthode ENDOR inapplicable à une poudre en présence de structure hyperfine anisotrope. Il faut voir là la raison pour laquelle on ne s'était pas avisé bien plus tôt de l'existence d'un champ magique.

La méthode du champ magique présuppose une isotropie parfaite du facteur gyromagnétique g. Si celle-ci est tant soit peu violée, il apparaît une variation de la fréquence magique avec l'orientation du champ. Cette variation permet même de déterminer avec précision une très petite anisotropie g. On a montré par un calcul de perturbation au second ordre que la variation de la fréquence magique avec l'angle  $\theta$  du champ magnétique par rapport à un axe [111] est donnée par :  $[(g_{/\!\!/}-g_{\perp})/16g_{\perp}]$   $(1-\cos4\theta)$ . C'est ainsi que des expériences sur des monocristaux de silicium et de germanium ont montré que  $\Delta g/g$  est inférieur à  $10^{-3}$  dans le silicium et égal à 0,003 dans le germanium.

Dans la dernière leçon on a traité le problème de la transition muonium normal-anormal dans le diamant par des études en champ nul.

Trois fréquences sont observables en champ nul pour l'anormal :

$$v_1 = (A_{\perp} + A_{\parallel})/2, \quad v_2 = (A_{\perp} - A_{\parallel})/2, \quad v_3 = A_{\perp}$$

Dans le diamant où  $|A_{\perp}| > (A_{\parallel})$  et  $(A_{\perp}/A_{\parallel}) < 0$  on a  $|v_1| < |v_2| < |v_3|$ . On constate expérimentalement que l'intensité de ces raies croît avec la température et que celle de  $v_2$  croît beaucoup plus vite que les autres entre 300 °K et 600 °K. L'explication de ce phénomène remarquable est basée sur l'hypothèse qu'un état précurseur inobservable, soit muon libre, soit muonium normal précède la création d'une fraction appréciable f de muoniums anormaux et que la vitesse de conversion  $\lambda$  du précurseur à l'anormal varie suivant une loi

d'Arrhénius. Un calcul simple montre que les intensités relatives des trois raies  $v_i$  varient au cours de ce passage comme  $\{1+[(v_i-v_{oi})/\lambda]^2\}^{-1}$  où  $v_{oi}$  est la fréquence du précurseur qui devient  $v_i$  dans le passage précurseur-anormal. Si le précurseur était le muon libre, dont la fréquence  $v_{oi}$  est nulle en champ nul, c'est l'intensité de la fréquence la plus petite  $v_1$  qui devrait croître le plus vite avec la température, ce qui est contredit par l'expérience. Si le précurseur est un muonium normal les fréquences  $v_{01}$ ,  $v_{02}$ ,  $v_{03}$  donnant naissance à  $v_1$ ,  $v_2$ ,  $v_3$  sont respectivement a, o, a où, a, fréquence hyperfine du muonium normal est d'un ordre de grandeur supérieure à  $|A_{\perp}|$  et  $|A_{\parallel}|$ . C'est donc dans ce modèle la raie  $v_2$  qui devrait croître le plus vite avec la température, en accord avec l'expérience, montrant que le précurseur est bien le muonium normal et non le muon libre.

Le cours n'avait pas la prétention d'épuiser le vaste sujet du muon dans la matière condensée. C'est ainsi que la chimie du muonium n'a pas été abordée.

A. A.

#### **PUBLICATIONS**

HERMANN, Réflexions d'un Physicien (1983).

#### MISSIONS ET CONFÉRENCES

- 4 Conférences à l'Université de Harvard en tant que Morris Loeb Lecturer du 1er au 15 octobre 1983.
  - 3 conférences à l'Université de Berkeley du 16 au 30 octobre 1983.

#### DISTINCTIONS

Prix ISMAR (International Society of Magnetic Resonance). Election comme Membre Etranger de la Royal Society.

#### 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 du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

Il comporte quatorze chercheurs dont deux boursiers de thèse et un visiteur étranger, un ingénieur chimiste et huit techniciens.

Les activités du laboratoire au cours de l'année 1983-1984 sont résumées ci-dessous.

## a) Ordre magnétique pseudonucléaire dans Tm Po4

Dans le champ cristallin tétragonal de Tm Po<sub>4</sub>, l'ion Tm<sup>3+</sup> est un ion de Van Vleck : son état électronique fondamental est un singulet orbital non magnétique avec un état excité à faible distance énergétique. Ces deux états se mélangent partiellement sous l'effet du couplage Zeeman électronique ou du couplage hyperfin avec le noyau de <sup>169</sup>Tm. Le premier effet donne naissance au magnétisme de Van Vleck, le second à un magnétisme dit pseudonucléaire, beaucoup plus important que le magnétisme proprement nucléaire. Le moment pseudomagnétique du thulium est fortement anisotrope ; environ 25 fois plus important perpendiculairement à l'axe c que parallèlement à cet axe.

La production d'un ordre magnétique pseudonucléaire en champ élevé se fait de façon analogue à celle utilisée depuis de nombreuses années pour la production d'ordre magnétique nucléaire :

- Polarisation dynamique par irradiation hyperfréquence au voisinage de la fréquence de Larmor de spins électroniques à faible concentration, qui a pour effet d'abaisser l'entropie des spins nucléaires.
- Désaimantation adiabatique en champ élevé qui transforme l'ordre Zeeman en ordre dipolaire tronqué (c'est-à-dire ne concernant que la partie séculaire des interactions dipolaires, celles qui commutent avec l'Hamiltonien Zeeman).

Du fait de la grande anisotropie du magnétisme pseudonucléaire, lorsque le champ extérieur est parallèle à l'axe c, ces interactions sont essentiellement transverses, de la forme  $(I_x I'_x + I_y I'_y)$ . L'ordre magnétique produit en champ élevé sera également transverse : les moments pseudonucléaires, orientés perpendiculairement au champ extérieur, tourneront en phase autour de lui à la fréquence de Larmor.

En utilisant pour la polarisation dynamique les ions Yb présents dans l'échantillon, à 3,3 T et à la température d'un cryostat à dilution, on obtient au bout de 20 mn une polarisation nucléaire limite d'environ 60 %.

La théorie prévoit, à température de spin positive, la production d'une structure hélicoïdale transverse, de vecteur d'onde petit et parallèle au champ extérieur.

L'existence d'un état ordonné après désaimantation a été déterminé par la forme caractéristique du signal de résonance du Thulium et l'existence d'un plateau de la susceptibilité transversale en fonction de l'entropie.

La mise en évidence du caractère transversal a été basée sur une méthode déjà utilisée pour l'étude de l'hélimagnétisme transverse de <sup>19</sup>F dans CaF<sub>2</sub>: étude de la vitesse de polarisation de <sup>31</sup>P par mélange thermique entre <sup>31</sup>P et <sup>169</sup>Tm, lorsqu'on pratique une irradiation de radiofréquence à diverses distances de la fréquence de Larmor de <sup>31</sup>P. L'existence d'un maximum de vitesse de polarisation pour une valeur non nulle de l'écart à la résonance est caractéristique de l'action sur les moments pseudomagnétiques de thulium d'un champ moyen transversal tournant à leur fréquence de Larmor, le long desquels ils sont polarisés.

L'ensemble des résultats est en accord qualitatif avec la théorie.

(V. BOUFFARD, C. FERMON, J.F. JACQUINOT, Y. ROINEL, A. ABRAGAM.)

## b) Relaxation spin-réseau et mélange thermique dans Tm Po<sub>4</sub>

La polarisation dynamique des espèces nucléaires, en augmentant considérablement le rapport signal-sur-bruit de leur raie de résonance, rend possible l'étude à basse température de la relaxation spin-réseau Zeeman. Cette étude a été faite pour le champ parallèle ou perpendiculaire à l'axe c.

## 1) H perpendiculaire à l'axe c

Dans cette direction, la résonance de <sup>31</sup>P est extrêmement difficile à observer, pour plusieurs raisons : longueur du temps de relaxation, faible efficacité de la polarisation dynamique, et élargissement de la raie de résonance par le champ de Van Vleck inhomogène.

La relaxation spin-réseau des moments pseudomagnétiques de Tm a été effectuée dans un intervalle de champs compris entre 0,05 T et 1,6 T, et un intervalle de températures compris entre 0,1 K et 2,5 K. Pour T > 2 K, la relaxation est due à l'effet Orbach entre l'état fondamental et le premier état excité de  $Tm^{3+}$ . Pour 0,25 K  $\leq$  T  $\leq$  2 K, elle est due au couplage avec des impuretés paramagnétiques fixes (Yb³+ et Er³+). Pour T < 0,25 K le temps de relaxation Zeeman varie beaucoup plus lentement avec la température. Cet effet, observé pour la première fois sur une relaxation Zeeman, est à rapprocher d'un comportement analogue observé dans de nombreux cristaux sur la relaxation dipolaire. Quant au couplage thermique entre énergies Zeeman de Tm et de  $^{31}P$ , il est inobservable.

## 2) H parallèle à l'axe c

Dans cette direction, où les deux résonances, celle de Tm et celle de <sup>31</sup>P sont observables avec un bon rapport signal sur bruit, on observe un mélange thermique entre énergies Zeeman analogue à celui étudié il y a quelques années dans LiF et LiH: lorsqu'on sature une des espèces de spins, les températures de spin Zeeman des deux espèces évoluent l'une vers l'autre avant d'évoluer ensemble vers celle du réseau. Mais contrairement aux cas étudiés précédemment, où la vitesse de mélange était beaucoup plus grande que la vitesse de relaxation, on observe dans Tm Po<sub>4</sub>, selon le champ extérieur, que la vitesse de mélange est comparable ou nettement inférieure à la vitesse de relaxation du Thulium.

(V. BOUFFARD, C. FERMON, J.F. JACQUINOT, Y. ROINEL, A. ABRAGAM.)

## c) Etude de l'ordre magnétique nucléaire par diffraction de neutrons dans LiH

Par désaimantation adiabatique en champ élevé des spins de <sup>1</sup>H et <sup>7</sup>Li, on produit dans LiH une série d'états magnétiques ordonnés dont la structure dépend de l'orientation du champ extérieur par rapport aux axes cristallins et du signe de la température de spin. Quatre de ces structures ont été mises en évidence il y a quelques années, par des expériences de diffraction de neutrons auprès du réacteur EL3 de Saclay.

Ces études recommencent actuellement au moyen du réacteur Orphée. Le programme entrepris est l'étude du diagramme de phase champ-entropie de deux états antiferromagnétiques. Ce diagramme comporte trois zones : zone paramagnétique, zone antiferromagnétique et zone mixte où coexistent des domaines para et antiferromagnétique. A chaque entropie, la zone mixte est délimitée par deux champs critiques :  $Hc_1$  où apparaissent les domaines antiferromagnétiques et  $Hc_2 < Hc_1$  où disparaissent les domaines paramagnétiques.

La diffraction de neutrons se prête à deux types d'expériences :

- Observation au cours d'une désaimantation-réaimantation adiabatique de l'intensité de la raie de diffraction antiferromagnétique, donnant accès au volume relatif des domaines antiferromagnétiques.
- Observations au cours d'une désaimantation-réaimantation adiabatique de la distribution angulaire des neutrons diffractés au voisinage d'une réflexion cristalline, donnant accès au volume relatif et à la forme des domaines paramagnétiques. Pour ces expériences, un type nouveau de détecteur bidimensionnel a été mis au point et est désormais opérationnel.

D'après des résultats préliminaires, il semble que la détermination de Hc<sub>1</sub> soit assez précise, mais que celle de Hc<sub>2</sub> présente des difficultés.

(Y. ROINEL, V. BOUFFARD.)

### d) Etude du méthane solide

Le méthane solide présente une structure ordonnée dite antiferrorotationnelle dont les états de plus basse énergie, A, F et E possèdent des écarts d'énergie dus à l'effet tunnel, de l'ordre du Kelvin. Ces états seraient dégénérés dans un champ cristallin de symétrie cubique. La théorie prévoit cependant une faible distorsion tétragonale de ce champ cristallin qui devrait conduire à une faible levée de la dégénérescence de l'état F.

La méthode utilisée pour mesurer la décomposition énergétique de l'état F est la « spectroscopie de tunnelling », consistant à rechercher une diminution du temps de relaxation  $T_1$  des protons aux champs où leur séparation Zeeman est égal à une séparation entre niveaux tunnel. Cette étude effectuée l'an dernier sur du méthane converti (à faible concentration de l'espèce F) a été reprise cette année sur du méthane non converti. On observe une décroissance monotone de  $T_1$  jusqu'à environ 1 Tesla, puis un plateau jusqu'à 5 Teslas. Ce comportement ne peut s'expliquer par un mécanisme simple, n'invoquant que des transitions de probabilités bien déterminées entre des sous-niveaux F d'un seul type.

On a également poursuivi l'étude des mélanges solides méthane-Krypton dans une gamme étendue de concentrations C (Kr) allant de 11 à 40 %. La variation avec la température de la susceptibilité magnétique des protons permet de mesurer la séparation  $\Delta_{AF}$  des niveaux tunnel. On la trouve égale à 5,4 K, indépendante de la concentration C (Kr). La largeur de raie des protons, corrigée de l'influence triviale de la dilution du méthane, varie peu avec c (Kr). Ces comportements contrastent avec ceux d'autres propriétés observées sur les mêmes échantillons. Le temps de conversion  $\tau_{AF}$  entre espèces A et F, égal à plusieurs jours dans CH<sub>4</sub> pur, présente un plateau de 2 à 3 h pour C (Kr) compris entre 15 et 25 %, et décroît à 3 mn pour C (Kr) = 29 %. Quant au temps de relaxation T<sub>1</sub> des protons, il s'allonge énormément avec la concentration de Krypton. De 20 s à 0,4 K pour C (Kr) = 11, %, valeur égale à celle du méthane pur, il passe à 10<sup>3</sup> s pour C (Kr) > 23 %. Ces résultats semblent indiquer que la transition ordre orientationnel-désordre (on peut être ordre à longue distance - verre) est floue et se manifeste à des concentrations C (Kr) différentes selon le phénomène étudié.

## (B. BOUCHET, P. CALVANI, H. GLÄTTLI.)

## e) Pseudomagnétisme nucléaire

La précession pseudomagnétique a été utilisée pour mesurer le moment pseudomagnétique  $\mu^*$  de <sup>169</sup>Tm. Ce noyau a été polarisé dans un monocristal de Tm Po<sub>4</sub> au moyen d'impuretés paramagnétiques de Er³+ dans un champ

de 0,9 T. La faible précision de la mesure de la polarisation nucléaire n'a permis d'obtenir qu'une valeur approchée :

$$\mu^* (^{169}\text{Tm}) \simeq + 0.19 \pm 0.06 \mu_B$$

Cette étude a été entreprise pour évaluer la faisabilité d'une étude par diffraction de neutrons de l'ordre pseudonucléaire hélicoïdal transverse dans  $Tm\ Po_4$ . La faible valeur trouvée pour  $\mu^*$  élimine la possibilité d'une telle étude.

On a d'autre part confirmé le signe positif de  $\mu^*$  (27Al) en mesurant et la précession pseudomagnétique des neutrons, et le signe du rapport gyromagnétique de <sup>27</sup>Al. Cette confirmation a été imposée par un désaccord avec le calul théorique de  $\mu^*$  compte tenu des niveaux nucléaires connus de <sup>27</sup>Al : la valeur absolue du  $\mu^*$  théorique est comparable à la valeur expérimentale, mais son signe est négatif. Ceci amène à soupçonner une connaissance incomplète du spectre de ce noyau.

(J. COUSTHAM, H. GLÄTTLI.)

## f) Etude du mouvement Brownien de rotation de sphères en suspension

L'étude du mouvement Brownien de rotation de particules solides sphériques en suspension dans un liquide ne peut se faire par une observation directe des particules. La méthode employée utilise le fait que la rotation des sphères solides module aléatoirement les interactions dipolaires séculaires entre spins nucléaires du solide, et contribue à la relaxation spin-réseau du réservoir dipolaire séculaire. La théorie prédit une vitesse de relaxation égale à :

$$T_{1D}^{-1} = 6 D$$

où D est le coefficient de diffusion de rotation, de la forme :

$$D = (3kT/4\pi\eta a^3) (1 - k_R \phi)$$

T est la température,  $\eta$  la viscosité du fluide, a le rayon des billes,  $\varphi$  le volume relatif du solide et  $k_R$  le coefficient d'interaction hydrodynamique entre billes.

Les expériences ont été effectuées sur des suspensions dans l'eau ou l'eau lourde de sphères de polystyrène de diamètres très homogènes, variant selon les échantillons de 0,1 à 0,3  $\mu$  et mesurés avec précision par microscopie électronique. La gamme de température explorée allait de 2 à 25 °C, ce qui correspond à une variation de la viscosité de l'eau d'environ un facteur 2. Le volume relatif des sphères était d'environ 8 %.

On a vérifié de façon quantitative la variation théorique du temps de relaxation dipolaire avec la température, la viscosité et le rayon des sphères.

En ce qui concerne les interactions hydrodynamiques, on a longtemps admis pour  $k_R$  la valeur 5/2. Ce n'est que tout récemment qu'une théorie plus

élaborée a conduit à la valeur plus faible  $k_R = 5/16$ . Les résultats expérimentaux sont en bien meilleur accord avec cette valeur qu'avec la précédente.

(D. ESTÈVE, C. URBINA, M. GOLDMAN, H. RAYNAUD.)

## g) Etude de l'Hélium 3 solide

L'hélium 3 solide est le seul solide où existent des interactions d'échange entre spins nucléaires, variant fortement avec le volume molaire.

On a effectué une étude critique de la relaxation Zeeman nucléaire à basse température (T < 0.8 K) dans la phase cubique centrée, au vu des résultats expérimentaux obtenus au laboratoire et ailleurs.

A ces températures, où la relaxation Zeeman directe par le mouvement des lacunes est négligeable, cette relaxation est dominée par le mélange thermique entre réservoirs Zeeman et d'échange. Entre 0,8 K et 0,2 K, le réservoir d'échange est en équilibre avec le réseau et la vitesse de relaxation Zeeman a une valeur constante égale à la vitesse de mélange thermique Zeemanéchange. Au dessous de 0,2 K les réservoirs Zeeman et échange sont à l'équilibre thermique et la vitesse de relaxation Zeeman est égale à la vitesse de relaxation échange-réseau pondérée par un facteur trivial de capacités calorifiques. C'est sur cette zone qu'a porté l'analyse. La vitesse de relaxation Zeeman décroît d'un facteur 10 entre 0,2 et 0,1 K, puis atteint une valeur quasi-indépendante de la température. On a élaboré un modèle nouveau cohérent rendant compte des résultats à tous les volumes molaires, invoquant tour à tour, lorsque la température décroît, les mécanismes suivants de relaxation de l'échange : interaction de l'échange avec les ondes de lacunes, processus à un phonon et, dans le quasi-plateau à T < 0,1 K, intervention de l'échange entre <sup>3</sup>He et des impuretés de 4He et relaxation de celui-ci sur les lignes de dislocation cristallines.

On a enfin entrepris l'élaboration d'une expérience destinée à mettre en évidence de façon directe l'existence d'échanges à trois et quatre spins dans <sup>3</sup>He solide. De tels échanges sont très plausibles du point de vue théorique ; de plus ils rendent remarquablement compte des propriétés des transitions magnétiques de <sup>3</sup>He vers 1 mK.

L'expérience en cours de réalisation consistera à mesurer la pression du solide à l'équilibre thermique en fonction du champ magnétique, et à y déceler la contribution de l'échange. Les termes d'échange à 2 et 3 spins apportent à la pression une contribution proportionnelle au carré de la polarisation nucléaire, tandis que les termes d'échange à 4 spins y apportent une contribution proportionnelle à la puissance 4 de cette polarisation. C'est l'existence de cette dernière qui prouverait de façon incontestable la présence d'échange à 4 spins.

(M. Bernier.)

#### PUBLICATIONS DES TRAVAILLEURS DU LABORATOIRE

- M. GOLDMAN et J.F. COURTIEU, Résonance Magnétique (dans Encyclopaedia Universalis, Edition 1984, à paraître).
- M. GOLDMAN, Interference effects in the nuclear relaxation in a pair of spins 1/2 (J. Magn. Res., à paraître).
- L. QUIROGA, J. VIRLET et M. GOLDMAN, Multipulse « Spin-Locking » effect on a dipolar ordered state (J. Magn. Res., 54, 161, 1983).
- D. ESTÈVE, C. URBINA, M. GOLDMAN, H. FRISBY, H. RAYNAUD et L. STRZELECKI, Direct observation of Rotational Brownian Notion of Spheres by NMR (Phys. Rev. Lett., 52, 1180, 1984).
- H. GLÄTTLI et M. GOLDMAN, Nuclear Magnetism, chapitre 21 de Neutron Scattering (Ed. D.L. Price et S. Sköld, série Methods in Experimental Physics, Academic Press, New York, à paraître).
- EL ALAMI ARIBA et H. GLÄTTLI, Spin-lattice Relaxation in partially converted CH<sub>4</sub> above 0.4 K (J. Physique, 44, 1351, 1983).
- P. CALVANI et H. GLÄTTLI, NMR studies of a disordered system of octupoles: The CH<sub>4</sub>-Kr alloy (Solid State Comm., 50, 169, 1984).
- H. GLÄTTLI et J. COUSTHAM, Spin-dependent Scattering and Absorption of Thermal Neutrons on Dynamically Polarized Nuclei (J. Physique, 44, 957, 1983).
- H. GLÄTTLI et P. MERIEL, The Problem of <sup>27</sup>Al Neutron Spin-dependent Scattering Lengths (Nucl. Phys. A, à paraître).
- B. BOUCHET, Etude par RMN du méthane solide en phase II, Thèse de Doctorat d'Etat, Orsay (1984).
- M.E.R. BERNIER, Low temperature spin-lattice relaxation in bcc <sup>3</sup>He (J. Low Temp. Phys., 56, 205, 1984).
- M. DEVORET, J. MARTINIS, D. ESTÈVE et J. CLARKE, Resonant activation from the zero voltage state of a current-biased Josephson junction (Phys. Rev. Lett., à paraître).
- R. MIRACKY, M. DEVORET et J. CLARKE, Deterministic 1/f noise in chaotic current-biased Josephson junctions (Phys. Rev. B, à paraître).

#### **SÉMINAIRES**

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

- H.J. DROUHIN (Ecole Polytechnique), Analyse en énergie et polarisation de spin des électrons émis par une cathode de As Ga en affinité négative.
- J.P. KORB (Centre de Mécanique Ondulatoire Appliquée), Théorie de la relaxation de spin par diffusion de translation dans les systèmes bidimensionnels.
- Y. ROINEL (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), Résonance, relaxation et polarisation dynamique dans Tm Po<sub>4</sub>.
- J.F. JACQUINOT (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), Ordre magnétique pseudo-nucléaire tournant dans Tm Po<sub>4</sub>.
- H. GLATTLI (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), Etude par RMN d'un système désordonné d'octupoles : mélange solide méthane-krypton.
- G. DEVILLE (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), Etude expérimentale du son transverse dans un solide d'électrons à deux dimensions.
- D. ESTÈVE (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), Mouvement Brownien de rotation de sphères en suspension : mise en évidence par RMN.
- J.M. RAIMOND (Ecole Normale Supérieure), Les atomes de Rydberg : la physique atomique à une échelle inhabituelle.
- D. BEYSENS (Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay), Développements récents dans la physique des transitions de phase fluide-fluide.