

Magnétisme nucléaire

M. Anatole ABRAGAM, professeur

Le cours de cette année intitulé : *Interactions Spins Phonons* a porté essentiellement sur les problèmes de relaxation paramagnétique en milieu cristallin. C'est dire qu'on n'a pas abordé le problème des phonons « artificiels » produits par des ondes ultrasoniques et hypersoniques et qu'on s'est limité aux phonons « naturels » résultant de l'excitation thermique du cristal.

Expérimentalement, le problème se présente de la façon suivante : un centre paramagnétique possède deux niveaux entre lesquels on peut produire un transfert résonant de populations qui tend à égaliser ces populations. D'autre part, un mécanisme de relaxation couple les centres paramagnétiques à l'ensemble des autres degrés de liberté du cristal. Dans les conditions expérimentales effectivement réalisées cet ensemble ou « réseau » est constitué presque exclusivement par les excitations élastiques de grande longueur d'onde ou phonons acoustiques. On suppose que les phonons acoustiques sont en équilibre thermique et on étudie l'établissement d'un équilibre thermique entre les phonons et le système de centres paramagnétiques ou « spins ».

I — *Relaxation par le rayonnement électromagnétique*

A titre d'introduction, on a étudié la relaxation des spins par un système qui présente une grande analogie formelle avec le système de phonons, à savoir un bain de photons, c'est-à-dire un rayonnement électromagnétique en équilibre thermique à une température T .

Soient a et b les deux niveaux du spin, $\hbar\omega$ leur différence d'énergie, n_a n_b leurs populations et W_{ab} W_{ba} les probabilités de transition correspondantes dues au couplage spin-photon. On établit aisément les relations suivantes :

$$\frac{d}{dt}(n_a - n_b) = \frac{dn}{dt} = -2 \{W_{ab}n_a + W_{ba}n_b\} = -(W_{ab} + W_{ba}) \{n - (N_a - N_b)\}$$

où N_a N_b sont les populations d'équilibre données par :

$$N_a + N_b = N \quad N_a/N_b = \exp(\hbar\omega/kT), \quad n_o = N_a - N_b = N \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2kT}\right) \quad (2)$$

D'après la théorie du rayonnement d'Einstein, on a :

$$W_{ab} = B \varrho_{em} \quad W_{ba} = B \varrho_{em} + A = B \varrho_{em} \exp(\hbar\omega/kT) \quad (3)$$

où B et A sont respectivement les coefficients d'absorption et d'émission spontanée d'Einstein et la densité d'énergie électromagnétique ϱ_{em} est donnée par la formule classique du rayonnement du corps noir

$$\varrho_{em} = (\hbar\omega^3/\pi^2c^3) [\exp(\hbar\omega/kT) - 1]^{-1}.$$

Il résulte de (1) (3) et (4) que l'équation de relaxation peut se mettre sous la forme

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{1}{T_1} (n - n_o)$$

$$\frac{1}{T_1} = A \coth(\hbar\omega/2kT) = B \left(\frac{\hbar\omega^3}{\pi^2c^3} \right) \coth(\hbar\omega/2kT) . \quad (5)$$

Il reste à évaluer A et B . On peut soit évaluer A par la théorie de l'émission spontanée, ce qui donne : $A = \frac{2}{3} \gamma^2 \hbar\omega^3/c^3$, soit B par la théorie classique de l'absorption d'énergie par un champ électromagnétique, ce qui donne : $B = 2\pi^2\gamma^2/3$. Dans ces formules γ est le facteur gyromagnétique du spin, reliant la fréquence de Larmor ω_o au champ magnétique appliqué H_o par la formule $\omega_o = \gamma H_o$.

Les expériences de résonance se font en général dans la gamme des ondes centimétriques ou millimétriques et aux températures de l'hélium liquide de sorte que la quantité $\coth(\hbar\omega/2kT)$ est d'ordre unité. En prenant pour la longueur d'onde électromagnétique 1 cm on trouve que les temps de relaxation T_1 correspondants sont de l'ordre de 10^{10} s et ne sauraient par conséquent rendre compte des résultats observés. Cette étude n'est toutefois pas sans intérêt car elle fournit immédiatement le cadre pour une étude de la relaxation par couplage spin-phonon.

II - Relaxation par les phonons, effet Waller

On peut introduire une densité d'énergie élastique ϱ_{el} par une formule analogue à (4)

$$\rho_{el} = \frac{\hbar\omega^3}{2\pi^2} \left(\frac{1}{v_l^3} + \frac{2}{v_t^3} \right) \left[\exp(\hbar\omega/kT) - 1 \right]^{-1} . \quad (6)$$

Dans cette formule on tient compte de l'existence d'un mode de phonons longitudinaux, de vitesse de propagation v_l pour deux modes transversaux se propageant à la vitesse v_t (dans le rayonnement électromagnétique les photons longitudinaux sont absents). Pour de grandes longueurs d'onde il est commode d'introduire une déformation moyenne ε due à la présence des phonons : on montre que sa valeur quadratique moyenne dans un intervalle de fréquence $d\omega$ est reliée à ρ_{el} par :

$$\frac{1}{\varepsilon^2} = \frac{1}{2Mv^2} \rho_{el} d\omega \quad (7)$$

où M est la masse par unité de volume.

Un premier mécanisme de relaxation par les phonons a été proposé par Waller en 1932. Il est basé sur l'interaction magnétique entre les centres paramagnétiques. Le champ interne H_i « vu » par un centre et produit par ses voisins est modulé par les vibrations cristallines et possède une composante fluctuante H_{ei} dont la valeur quadratique moyenne est donnée par :

$$\overline{H_{ei}^2} \simeq 9\varepsilon^2 \overline{H_i^2} \simeq \frac{9}{2Mv^2} \rho_{el} d\omega \overline{H_i^2} . \quad (8)$$

La valeur quadratique moyenne correspondante du champ magnétique fluctuant dans le cas du couplage avec le rayonnement est $8\pi\rho_{em}d\omega$ et une règle de trois donne un taux de relaxation

$$(1/T_1)_{\text{Waller}} / (1/T_1)_{\text{em}} \simeq \frac{\overline{H_i^2}}{Mv^2} \left(\frac{c}{v} \right)^3 \quad (9)$$

où :

$$1/v^3 = (1/3) (1/v_l^3 + 2/v_t^3) .$$

La valeur quadratique moyenne du champ interne $\overline{H_i^2}$ étant proportionnelle à la concentration des centres paramagnétiques il devrait en être de même de la vitesse de relaxation donnée par (9) : l'expérience montre qu'il n'en est rien. De plus en valeur absolue le mécanisme est trop faible, conduisant pour des substances modérément concentrées à des temps de relaxation de l'ordre de 10^3 s c'est-à-dire trop longs par plusieurs ordres de grandeur.

III - Relaxation par modulation du champ cristallin, processus direct

Le véritable mécanisme de relaxation (qui a été proposé indépendamment par Kronig et Van Vleck vers 1935) est la modulation du potentiel cristallin V « vu » par le centre paramagnétique. On peut écrire schématiquement $V = V_0 + \epsilon V_1 + \epsilon^2 V_2 + \dots$ où ϵ est la déformation moyenne due aux phonons. La théorie des perturbations montre que le temps de relaxation est donné par une formule du type :

$$\frac{1}{T_1} \simeq \frac{|(a|V_1|b)|^2}{2\pi\hbar} \frac{3}{Mv^2} \frac{\omega^3}{\coth(\hbar\omega/2kT)} \quad (10)$$

qui pour les longueurs d'onde centimétriques et pour des valeurs raisonnables de $|(a|V_1|b)|$ de l'ordre de 10^{-3} eV, conduit dans l'hélium à des temps de relaxation de l'ordre de 10^{-3} s, ce qui est un ordre de grandeur correct.

L'étude qualitative esquissée ci-dessus porte essentiellement sur ce qu'on appelle l'effet direct c'est-à-dire un processus où *un seul* phonon est absorbé ou émis dans la transition de relaxation. La caractéristique principale de ce processus est sa dépendance par rapport à la température et la fréquence de la forme $\omega^3 \coth(\hbar\omega/2kT)$ qui pour $\hbar\omega/kT \gg 1$ devient simplement ω^3 et pour $\hbar\omega/kT \ll 1$, $\omega^2 kT$. L'indépendance par rapport à la température lorsque $\hbar\omega/kT \gg 1$ s'explique simplement. Le nombre de phonons présents dans l'échantillon est trop faible pour que l'absorption ou l'émission provoquée de phonons puisse apporter une contribution à la relaxation et seule demeure l'émission spontanée, évidemment indépendante de la température, et comme dans le cas du rayonnement électromagnétique proportionnelle au cube de la fréquence.

Toutes les considérations précédentes supposent implicitement que l'élément de matrice $(a|V_1|b)$ n'est pas nul. Or, c'est précisément ce qui se passe dans le cas très important où le centre paramagnétique a un nombre impair d'électrons et où les deux états a et $b = \bar{a}$ sont dits conjugués de Kramers, c'est-à-dire résultent l'un de l'autre par renversement du sens du temps. Ce cas est considéré plus loin.

Ces considérations qualitatives ont été suivies par une étude quantitative de la relaxation d'un quadruplet Γ_8 . On entend par là un ensemble de quatre niveaux d'un centre paramagnétique placé dans un environnement de symétrie cubique, dégénéré en l'absence de champ magnétique, et dont les fonctions d'onde se transforment les unes dans les autres suivant la représentation Γ_8 du groupe du cubique. Il existe de nombreux exemples d'ions de terres rares dont le fondamental a cette structure dans un environnement cubique et en particulier l'erbium Er^{3+} dans MgO . Les quatre niveaux $\alpha, \alpha', \beta, \beta'$ du

quadruplet Γ_8 sont conjugués de Kramers deux à deux et à l'approximation de l'éq. (10) il n'y a de relaxation qu'entre les couples non conjugués (α, β) (α, β') (α', β) (α', β') . Les équations d'évolution des populations des quatre niveaux conduisent à une variation des différences de population $(\alpha - \alpha')$ ou $(\beta - \beta')$, observées par résonance, qui n'est pas une exponentielle unique mais résulte de la superposition de deux temps de relaxation. Les modes de vibration du réseau cubique qui donnent naissance à cette relaxation sont les modes Γ_3 et Γ_5 du groupe du cube. Le problème peut être analysé complètement et le calcul des temps de relaxation peut être effectué à partir des premiers principes si l'on adopte pour le potentiel cristallin le modèle des charges ponctuelles. On peut également calculer l'anisotropie des temps de relaxation en fonction de l'orientation du champ magnétique par rapport aux axes cristallins.

Cette étude très complète due à Borg, Buisson et Jacolin (1969) a été exposée dans le cours. L'accord avec les résultats expérimentaux dans le cas de E_r^{3+} dans MgO n'est que qualitatif, ce qui n'est pas surprenant, compte tenu des imperfections bien connues du modèle des charges ponctuelles. On a insisté à ce propos sur l'intérêt qu'il y avait à compléter les nombreuses études expérimentales de relaxation existantes sur des cristaux à basse symétrie, par des études sur des cristaux à symétrie élevée (cubique) où le nombre de paramètres indépendants est restreint et où la confrontation entre la théorie et l'expérience peut être poussée beaucoup plus loin.

On a passé ensuite à la relaxation entre niveaux conjugués de Kramers. Cette relaxation est rendue possible par le fait qu'en présence d'un champ magnétique les niveaux a et b entre lesquels se fait la transition ne sont plus strictement conjugués de Kramers par suite d'une contamination par des niveaux excités, contamination dont l'amplitude est d'ordre Z/Δ où Z est le couplage magnétique Zeeman, proportionnel à la fréquence de résonance ω , et Δ la distance du doublet fondamental au niveau excité le plus proche. Il en résulte une réduction des probabilités de relaxation par rapport à celles des transitions non-Kramers de l'ordre de $(Z/\Delta)^2$. Pour des ondes centimétriques où typiquement les temps de relaxation non-Kramers sont de l'ordre de 10^{-3} s, les temps de relaxation Kramers sont de l'ordre de la seconde. La variation avec la fréquence est du type $\omega^5 \coth(\hbar\omega/2kT)$, l'exposant 5 se substituant à l'exposant 3. Là encore des études quantitatives détaillées ont été décrites dans le cours.

La première portait sur le thulium divalent T_m^{2+} dans des matrices cubiques de CaF_2 , BaF_2 et SrF_2 dont l'étude expérimentale a été faite par Anderson et Sabisky (1969). Le niveau fondamental de T_m^{2+} est dans cet environnement un doublet de Kramers Γ_7 et les états excités les plus proches sont un doublet Γ_6 et un quadruplet Γ_8 . Seul ce dernier peut être couplé au fondamental Γ_7 par un hamiltonien Zeeman. Il en résulte la possibilité (en uti-

lisant le théorème de clôture) de décrire la relaxation dans l'état fondamental par un hamiltonien effectif dépendant de deux constantes A_3 et A_5 représentant respectivement le couplage avec les vibrations de symétrie Γ_3 et Γ_5 dont on montre qu'elles correspondent respectivement à des dépendances de $1/T_1$ en fonction de l'orientation du champ magnétique de la forme $a_3(\alpha^4 + \beta^4 + \gamma^4)$ et $a_5(\alpha^2\beta^2 + \alpha^2\gamma^2 + \beta^2\gamma^2)$ où α, β, γ sont les cosinus directeurs du champ par rapport aux axes du cube. La théorie est satisfaisante qualitativement mais comme dans les cas précédents les prédictions quantitatives du modèle de charges ponctuelles sont incorrectes.

Le second exemple traité était l'étude déjà ancienne de la relaxation du phosphore dans le silicium par Feher et Wilson (1961) dont on a renouvelé la présentation par l'introduction comme dans le cas de T_m^{2+} d'un hamiltonien effectif de relaxation.

Là encore l'accord avec la théorie, qualitativement admissible, est quantitativement insuffisant. Ce désaccord est plus significatif que dans le cas de T_m^{2+} car les constantes de couplage spin-phonons, au lieu d'être extraites d'un modèle, ont été mesurées dans des expériences auxiliaires par des contraintes anisotropes. Il serait intéressant de reprendre les mesures déjà anciennes à des fréquences beaucoup plus élevées.

IV - Goulot d'étranglement des phonons

Pour compléter l'étude de l'effet direct on a considéré le problème important du « goulot d'étranglement » des phonons (phonon bottleneck).

Comme l'a remarqué Van Vleck il y a plus de trente ans seule une petite bande de phonons autour de la fréquence de résonance participe à la relaxation par effet direct. C'est ce qu'en termes imagés Van Vleck appelle les phonons « ayant un langage commun avec les spins » (on speaking terms with the spins). Il se trouve qu'aux températures de l'hélium liquide la capacité calorifique C_{ph} de cette classe de phonons est inférieure à celle C_{spin} des spins, de plusieurs ordres de grandeur. Dans ces conditions les phonons ne peuvent jouer leur rôle de thermostat vis-à-vis des spins que s'ils sont eux-mêmes en excellent contact thermique avec le bain d'hélium où baigne l'échantillon. On peut introduire un coefficient σ qui est défini comme le rapport entre le flux d'énergie des spins vers les phonons « on speaking terms » et le flux d'énergie de ces derniers vers le bain. On peut écrire :

$$\sigma \sim (C_{spin}/T_1) / (C_{ph}/\tau_{ph})$$

où τ_{ph} est le temps de vie des phonons dans le cristal. Un ordre de grandeur plausible pour τ_{ph} est l/v où l est la dimension linéaire du cristal et v la vitesse de propagation des phonons, ce qui conduit pour τ_{ph} à des valeurs de l'ordre de 10^{-6} s. Si $\sigma \ll 1$, les phonons jouent effectivement leur rôle

de thermostat et après une perturbation résonante des populations de spin leur retour à l'équilibre se fait avec la constante de temps T_1 . Si au contraire $\sigma \gg 1$ le retour à l'équilibre se fait en deux étapes. Ce sont les phonons qui prennent très rapidement la température des spins (chauffés par saturation) puis l'ensemble spin-phonons relaxe vers la température du bain avec une constante de temps :

$$T'_1 = \tau_{ph} \frac{C_{spin} + C_{ph}}{C_{ph}} \simeq \tau_{ph} \frac{C_{spin}}{C_{ph}} \approx T_1 \sigma .$$

Le temps de relaxation apparent T'_1 peut alors être plus long que T_1 de plusieurs ordres de grandeur et exhiber en particulier une dépendance avec la concentration et la température très différente de celle de T_1 . Les équations couplées (non linéaires) que l'on peut écrire pour l'évolution des populations des spins et des phonons confirment ces prédictions qualitatives, bien vérifiées par l'expérience.

Un cas particulier remarquable est celui de l'avalanche de phonons qui se produit lorsqu'au lieu de réduire ou d'annuler la polarisation de spins par saturation, on la renverse par une impulsion de 180° ou un passage adiabatique rapide. Dans ce cas les spins sont à une température négative et il n'est naturellement pas possible pour les phonons de se trouver dans un tel état. On assiste alors à un phénomène d'avalanche où le système de spins se décharge très rapidement de l'état très excité où il se trouve en émettant des phonons à un rythme très rapide. Le phénomène est en tout point analogue à celui d'une émission laser, les phonons jouant le rôle de photons.

On a décrit dans le cours un certain nombre d'expériences où le phénomène de photon bottleneck a été mis en évidence.

V - Les effets Raman et Orbach

Outre la relaxation par le processus direct, on a passé en revue deux autres modes de relaxation, l'effet Raman et l'effet Orbach où participent plus d'un phonon.

Dans l'effet Raman la relaxation se fait par la combinaison de l'absorption et de l'émission de deux phonons de fréquence dont l'une est arbitraire ω' et ω'' mais où la conservation de l'énergie impose $|\omega' - \omega''| = \omega$. Bien que processus d'ordre plus élevé que l'effet direct, l'effet Raman peut être compétitif avec ce dernier, sauf aux très basses températures, car tous les phonons du spectre peuvent participer à la relaxation et non plus seulement la bande étroite des phonons « on speaking terms » comme dans l'effet direct. On distingue essentiellement deux effets Raman :

Celui dit du premier ordre qui résulte du terme $\varepsilon^2 V_2$ dans le développement du potentiel cristallin V en puissances de la déformation ε . C'est un processus du second ordre pour les phonons mais du premier ordre pour les spins. On montre qu'il est indépendant de la fréquence de résonance ω et que sa variation avec la température est en T^7 pour les transitions qui ne sont pas de Kramers. Pour ces dernières la dépendance est de la forme $\omega^2 T^7$ à cause de la nécessité, comme pour l'effet direct, d'introduire dans le doublet fondamental une contamination d'états excités pour lever l'interdiction de Kramers.

L'effet Raman dit du second ordre dépend du terme εV_1 dans le développement du potentiel cristallin. Ce terme intervient deux fois dans une théorie des perturbations du second ordre : une fois entre l'état a et un état intermédiaire excité c dont la distance Δ à l'état initial a est grande par rapport à la fréquence moyenne des phonons, et une seconde fois entre cet état intermédiaire et l'état final b . Pour des transitions qui ne sont pas de Kramers cet effet a la même dépendance thermique en T^7 que le Raman du premier ordre, est du même ordre de grandeur et, en fait, ne peut pas être séparé expérimentalement. Au contraire, pour les transitions qui ne sont pas de Kramers, l'effet varie en T^9 et est indépendant de la fréquence. Son rapport à l'effet Raman du premier ordre est $(kT/\hbar\omega)^2$ et il est prépondérant au-dessus de quelques degrés.

Lorsque le fondamental a a une multiplicité plus grande que deux, comme par exemple le quadruplet Γ_8 , on assiste à ce que l'on a appelé l'effet Blume-Orbach. Calculant la relaxation Raman entre deux états disons α et α' de Γ_8 , on peut prendre comme état intermédiaire un autre état β du multiplet, dont la distance $\Delta = \beta - \alpha$ à l'état initial α est petite et non grande comme dans le cas normal, par rapport à la fréquence moyenne des phonons. On montre qu'il en résulte une dépendance de la température qui n'est ni en T^7 ni en T^9 mais en T^5 .

L'effet Orbach peut être considéré comme un cas particulier de l'effet Raman, celui où la distance Δ de l'état excité au fondamental est égale à l'énergie du phonon absorbé dans la première étape du processus, ce qui exige que Δ soit inférieure à l'énergie de Debye $k\theta$. C'est la situation bien connue en théorie des perturbations du deuxième ordre où l'énergie est conservée dans l'état intermédiaire. Dans ce cas le dénominateur d'énergie s'annule : cette difficulté apparente est résolue en donnant à l'état intermédiaire un temps de vie et une largeur finie, c'est-à-dire une énergie com-

$$\text{plexe } E - \frac{i\Gamma}{2}.$$

On peut aussi plus simplement considérer la relaxation Orbach comme une succession de deux phénomènes réels : l'absorption d'un phonon de

fréquence Δ/\hbar qui porte le centre paramagnétique de l'état fondamental a à l'état excité c dont l'énergie $E_c = E_a + \Delta$, puis l'émission d'un phonon

de fréquence $\frac{\Delta'}{\hbar} = \frac{E_c - E_b}{\hbar}$ où b est l'état final. La première étape est de

beaucoup la plus longue car elle exige l'absorption d'un phonon d'énergie élevée Δ dont le nombre dans le cristal est proportionnel à $[\exp(\Delta/kT) - 1]^{-1} \approx \exp(-\Delta/kT)$. Au contraire, la deuxième étape ne dure que le temps d'une émission spontanée. Ce second temps proportionnel à Δ^{-3} peut être extrêmement bref. Il en résulte pour le temps de relaxation total une dépendance exponentielle caractéristique proportionnelle à $\exp(\Delta/kT)$.

Des exemples de relaxation Orbach ont été passés en revue. Le cas du phosphore dans le silicium est particulièrement intéressant. Le niveau fondamental est un singulet orbital et donc un doublet de spin. Le niveau excité responsable de l'effet Orbach est un triplet orbital, c'est-à-dire un sextuplet en présence de spin que le couplage spin-orbite décompose en un doublet et un quadruplet où variables de spin et d'orbite sont mélangées. Un calcul détaillé basé sur la première description de l'effet Orbach, comme un cas particulier de l'effet Raman, montre que le temps de relaxation s'allonge lorsque le produit $\lambda\tau$ de la constante de couplage spin-orbite par le temps de vie de l'état excité, diminue. Ce résultat a une interprétation physique simple : lors de l'absorption d'un phonon le passage de l'état fondamental a à un état excité se fait sans réorientation de spin et ce n'est que dans l'état excité sous l'effet du couplage spin-orbite que le spin peut précesser et changer d'orientation. Si le produit $\lambda\tau$ est trop petit l'angle de précession et le changement d'orientation du spin sont négligeables. Le système ne peut retomber par émission spontanée qu'à l'état initial a et non à l'état de spin opposé b. Il n'y a donc pas de relaxation. On a souligné l'analogie profonde de ce phénomène avec la perte d'efficacité dans le pompage optique observée dans les atomes de cadmium et de zinc.

TRAVAUX DE LABORATOIRE

M. Anatole ABRAGAM, directeur de la Physique au Commissariat à l'Energie atomique, dirige plus particulièrement l'activité scientifique du Groupe de Résonance magnétique. Ce groupe, qui fait partie du Service de Physique du Solide et de Résonance magnétique, comprend dix-sept chercheurs, dont trois boursiers de thèse et quatre physiciens étrangers. Il bénéficie en propre de l'appui de sept techniciens ainsi que d'une aide technique générale au Service.

Les activités du laboratoire au cours de l'année 1969-1970 sont résumées ci-dessous.

a) *Polarisation dynamique des noyaux*

L'utilisation de systèmes cryogéniques à hélium 3 a permis d'obtenir, dans du glycol contenant des ions de chrome, des polarisations de protons de 70 à 80 % en routine. Deux cibles ont été préparées à l'usage des physiciens des hautes énergies du CERN et utilisées à des expériences de diffusion K^+p , pp , π^-p et K^-p . Une cible de grandes dimensions est actuellement en cours de réalisation avec le concours du Département des Particules élémentaires (Saclay) en vue d'expériences auprès de l'accélérateur de Serpoukhov (U.R.S.S.) (Ezratty, Glättli, Roubeau).

D'autre part des études de polarisation ont été poursuivies dans des champs plus intenses (50 kOe, produits par un aimant supraconducteur) et en utilisant des longueurs d'onde d'irradiation plus faibles (2 mm). Les premiers résultats sont encourageants (Odehnal, Bouffard).

b) *Etude de hélium 3 solide*

L'étude de la relaxation nucléaire dans l'hélium 3 solide contenant des impuretés d'hélium 4 a permis d'établir la cohérence d'un modèle de mouvement des impuretés, qui sautent d'un site cristallin à un site voisin par effet tunnel. Cette propriété nouvelle a été prévue théoriquement, et la résonance nucléaire constitue pour le moment la seule voie d'étude expérimentale de ce phénomène (Bernier, Landesman).

c) *Etude du coefficient de diffusion dans les liquides*

Un montage a été réalisé qui permet de mesurer des coefficients de diffusion dans les liquides. Afin d'étudier ceux-ci au voisinage d'un point critique de démixion, une stabilisation de température permet de contrôler celle-ci à quelques millidegrés près dans une gamme de températures allant de 0°C à 40°C (Deville, Landesman).

d) *Relaxation électronique en champ faible*

Un spectromètre à résonance électronique oscillant à la fréquence de 300 MHz a été construit. Il permet l'étude de la relaxation électronique en champ faible (100 à 1 000 Oe) et à basse température (0,3° à 4,2°K). L'utilisation de faibles champs devrait permettre de mettre en évidence des mécanismes de relaxation habituellement masqués en champ élevé. Des résultats ont été obtenus sur le neodyme dans le nitrate double de lanthane et de magnésium (Poitrenaud, Williams).

e) *Etude du fluorure de cadmium semiconducteur*

Le fluorure de cadmium cristallisé avec une faible proportion d'ions trivalents (Y^{3+}) et réduit sous atmosphère de cadmium métallique est semiconducteur. Un certain nombre de résultats ont été obtenus en ce qui concerne la résonance électronique, la relaxation nucléaire et l'effet Overhauser. Un modèle physique a été élaboré et de nouvelles expériences sont en préparation afin de le confirmer (Roinel).

f) *Relaxation nucléaire en présence d'irradiation de radiofréquence*

Une étude théorique et expérimentale a été effectuée sur la relaxation spin-réseau d'un système nucléaire soumis à une irradiation de radiofréquence, en fonction de la fréquence d'irradiation. L'analyse a permis d'étendre l'étude de la relaxation au cas où le temps de corrélation du couplage spin-réseau est comparable ou supérieur au temps de relaxation spin-spin nucléaire. Les résultats expérimentaux confirment l'ensemble des prévisions théoriques (Jacquinot, Goldman).

g) *Mobilité et excitations métastables dans l'hélium solide*

Un appareil a été construit qui permet simultanément la solidification de l'hélium et son irradiation par les électrons secondaires produits par le bombardement aux rayons X d'une cible noyée dans le solide. Il est possible d'observer avec cet appareil les courants ioniques et l'absorption optique éventuelle des états métastables (qui correspondraient à la transition $1s2s^3S_1 \rightarrow 1s3p^3P$).

Les mesures de mobilité sont faites par une méthode de temps de vol par modulation des rayons X. Elles devraient permettre d'élucider la nature des ions négatifs et positifs dans He solide. Les états triplets, non encore observés, pourraient se comporter soit comme des excitations localisées (probablement He - He*), soit comme des excitons de type s assez différents des excitons de type p observés dans les autres gaz rares solides (Williams).

h) *Résonance nucléaire dans les supraconducteurs*

On a poursuivi l'étude de la distribution de champ magnétique dans les réseaux de vortex des supraconducteurs de type II près du champ critique H_{c_2} . Une analyse détaillée de la théorie microscopique a permis d'améliorer l'accord avec les résultats expérimentaux déjà connus. Des résultats nouveaux ont été obtenus sur des fils d'alliages Pb - Tl. Des études sont en cours d'une part pour préparer des échantillons très purs de niobium et

d'alliage Nb-Ta, et d'autre part pour mettre en évidence le mouvement des vortex en présence d'un champ électrique.

i) *Antiferromagnétisme nucléaire*

Après la mise en évidence de l'antiferromagnétisme nucléaire dans CaF_2 au moyen de la variation de la susceptibilité transversale du système, le développement expérimental se développe sur deux plans. D'une part, on recherche des polarisations dynamiques plus élevées, par le remplacement des ions U^{3+} par des ions Tm^{2+} pour effectuer l'« effet solide », par l'utilisation d'une source d'hyperfréquences de 2 mm au lieu de 4 mm et par l'amélioration du dispositif cryogénique à hélium 3. D'autre part, on cherche à déterminer la susceptibilité nucléaire longitudinale dans l'état antiferromagnétique par la mesure du champ magnétique créé par l'échantillon dans son voisinage.

Du point de vue théorique on a utilisé une extension de l'approximation du champ de Weiss qui permet de rendre compte des valeurs expérimentales du champ de transition paramagnétique-antiferromagnétique, et on a développé plusieurs méthodes de découplage des fonctions de Green dans l'approximation des Phases Aléatoires (Chapellier, Vu Hoang Chau, Goldman).

MISSIONS ET CONFÉRENCES

Gordon Research Conference, New Hampton, Etats-Unis, 7-14 juin 1969.

Conférence internationale sur la Résonance. Présentation par le Professeur d'un rapport sur l'antiferromagnétisme nucléaire, Kazan, U.R.S.S., 24-29 juin 1969.

Conférences scientifiques à la Fondation « John van Geuns », Amsterdam, Pays-Bas, 1^{er} octobre - 1^{er} novembre 1969.

XV^e Conférence annuelle sur le magnétisme et les matériaux magnétiques, Philadelphie, Etats-Unis, 15-23 novembre 1969.

Exposé au C.E.R.N. sur les travaux de laboratoire de Magnétisme nucléaire, Genève, Suisse, 4 décembre 1969.

PUBLICATIONS

A. ABRAGAM, *The Jahn Teller effect in paramagnetic resonance (Comments on Solid State Phys., 11, p. 69, 1969).*

A. ABRAGAM (en collaboration avec M. GOLDMAN), *Un phénomène nouveau : l'antiferromagnétisme nucléaire* (*Atomes*, n° 270, novembre 1969).

A. ABRAGAM (en collaboration avec M. CHAPPELLIER, M. GOLDMAN, VU HOANG CHAU), *Production and observation of a nuclear antiferromagnetic state* (*J. Appl. Phys.*, à paraître).

A. ABRAGAM (en collaboration avec H. GLÄTTLI, M. ODEHNAL, J. EZRATTY, A. MALINOVSKI), *Polarisation dynamique des protons dans le glycol éthylique* (*Physics Lett.*, 29 A, p. 250, 1969).

Traité

A. ABRAGAM (en collaboration avec B. BLEANEY), *Electron Paramagnetic Resonance of Transitions Ions* (Clarendon Press, Oxford, 1970).

PUBLICATIONS DES TRAVAILLEURS DU LABORATOIRE

M. BERNIER, *Influence of ^4He impurities on nuclear spin relaxation in solid ^3He* (*J. Low Temp. Phys.*, à paraître).

J.-M. DELRIEU, *Local magnetic field measurement in the vortex structure of a type II superconductor and comparison with theoretical predictions* (*Solid St. Com.*, 8, p. 61, 1970).

A. LANDESMAN, *Helium solide : propriétés générales et résonance magnétique dans l'hélium 3* (*J. Phys.*, à paraître).

Y. ROINEL, J.-M. WINTER, *Relaxation nucléaire par impuretés paramagnétiques en présence de self-diffusion* (*J. Phys.*, à paraître).

A. MASAÏKE, M. EISENKREMER, H. GLÄTTLI, *a ^3He cryostat for dynamic at 0.5°K* (*Physics Lett.*, 30 A, p. 63, 1969).

A. MASAÏKE, M. EISENKREMER, H. GLÄTTLI, *a ^3He cryostat for dynamic proton polarization* (*Rev. Sc. Instr.*, à paraître).

P. ROUBEAU, J. EZRATTY, H. GLÄTTLI, J. VERMEULEN, M. BORGHINI, *Organic Polarized Proton Targets using a continuous-flow ^3He cryostat* (*Nucl. Instr. Meth.*, 82, p. 323, 1970).

M.B. WALKER, F.I.B. WILLIAMS, *Magnetic field dependence of relaxation rates of non-Kramers doublets* (*Can. J. Physics*, 48, p. 355, 1970).

SÉMINAIRES

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

I.J. LOWE (Université de Pittsburgh) : *Relaxation magnétique nucléaire dans le référentiel tournant en présence de centres paramagnétiques.*

D. JEROME (Faculté des Sciences d'Orsay) : *Transition métal-isolant dans l'ytterbium.*

M^m H. LAUNOIS (Faculté des Sciences d'Orsay) : *Etude des fluctuations de spin localisées dans des alliages Al-Mn.*

P. IMBERT (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay) : *Quelques applications de l'effet Mössbauer à des problèmes de magnétisme.*

P. LALLEMAND (Ecole Normale Supérieure) : *Etude de la diffusion Brillouin dans les gaz.*

R. PARSONS (Ecole Polytechnique) : *Band to band optical pumping in solids and polarized luminescence.*

VU HOANG CHAU (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay) : *Aspects théoriques de l'Antiferromagnétisme nucléaire.*

M. CHAPPELLIER (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay) : *Aspects expérimentaux de l'Antiferromagnétisme nucléaire.*

J.-F. JACQUINOT (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay) : *Relaxation nucléaire spin-réseau dans les solides soumis à une irradiation de radiofréquence.*

R. BIDAUX (Centre d'Etudes nucléaires de Saclay) : *Etude du magnétisme électronique dipolaire dans les grenats de terres rares.*

C. COHEN-TANNOUDJI (Ecole Normale Supérieure) : *Diverses résonances observées en pompage optique transversal.*

DISTINCTION

Le Professeur a été promu au grade d'Officier dans l'Ordre de la Légion d'Honneur.