



**HAL**  
open science

# Hélium trois polarisé: ondes de spin et liquéfaction du gaz

Geneviève Tastevin

► **To cite this version:**

Geneviève Tastevin. Hélium trois polarisé: ondes de spin et liquéfaction du gaz. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1987. Français. NNT : . tel-00011862

**HAL Id: tel-00011862**

**<https://theses.hal.science/tel-00011862>**

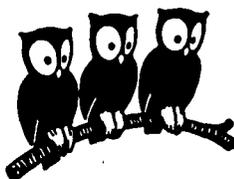
Submitted on 9 Mar 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE PARIS

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE  
DE L'ÉCOLE NORMALE  
SUPÉRIEURE



THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS 6

Spécialité :

PHYSIQUE QUANTIQUE

présentée par

Geneviève TASTEVIN

Sujet de la thèse :

"HELIUM-TROIS POLARISE : ONDES DE SPIN  
ET LIQUEFACTION DU GAZ".

Soutenue le 9 Avril 1987 devant le jury composé de :

M. J. BROSEL	)	Président
M. D.S. BETTS	)	Examineurs
M. S. HAROCHE	)	
M. B. HEBRAL	)	
Mme M. LEDUC	)	

**THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS 6**

**Spécialité:**

**PHYSIQUE QUANTIQUE**

**présentée**

**par Geneviève TASTEVIN**

**pour obtenir le titre de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6**

**Sujet de la thèse :**

**HELIUM TROIS POLARISE : ONDES DE SPIN ET LIQUEFACTION DU GAZ**

**soutenue le 9 Avril 1987**

**devant le jury composé de :**

**J. BROSSEL   Président**  
**D.S. BETTS**  
**S. HAROCHE**  
**B. HEBRAL**  
**M. LEDUC     Directeur de thèse**

**au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'ENS, 24 Rue Lhomond  
F - 75005 PARIS - France.**

## REMERCIEMENTS

*Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure au cours des années 1983-1986. Je remercie M. le Professeur J. BROSSEL et M. Jacques DUPONT-ROC de m'y avoir accueillie et de m'avoir ainsi permis de bénéficier d'un environnement scientifique exceptionnel.*

*Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à Franck LALOE. Il a eu l'initiative de ces recherches et en a suivi le déroulement avec une gentillesse et une disponibilité constantes. Au cours de ces années, j'ai pu apprécier sa très grande culture scientifique et sa profonde compréhension de la physique. J'ai aussi été très sensible à la clairvoyance et à l'enthousiasme avec lesquels il anime et dirige son équipe, à la fois sur les plans scientifique et humain.*

*Michèle LEDUC a guidé mes premiers pas dans la recherche sans jamais ménager ni son temps, ni sa peine. Je la remercie sincèrement pour son dynamisme communicatif et son soutien constant, grâce auxquels j'ai pu mener à bien cette thèse. J'ai partagé avec elle le plaisir de travailler quotidiennement avec Pierre-Jean NACHER, dont les qualités scientifiques, l'optimisme, l'ingéniosité et la patience sont sans limite. Ensemble, ils ont empreint ce travail collectif d'enthousiasme et de bonne humeur.*

*Laurent WIESENFELD a beaucoup participé à la conception et à la mise en route du cryostat à hélium trois. Qu'il soit ici remercié pour son dévouement et son amicale collaboration, décisive pour la réalisation de la deuxième partie de cette thèse.*

*Je veux exprimer également ma reconnaissance aux autres membres du groupe et, en particulier, à J. DUPONT-ROC et M. HIMBERT, qu'une proximité géographique et une communauté d'intérêts scientifiques exposaient à des sollicitations quotidiennes. Ils ont toujours répondu avec gentillesse et compétence. Leurs conseils et idées sont venus s'ajouter à l'aide amicale des chercheurs et enseignants du Département de Physique de l'École. J'associe également à ces remerciements tous les visiteurs étrangers qui ont émaillé ces années d'intéressants et stimulants échanges.*

*L'aboutissement de ce travail doit beaucoup à l'efficacité et la compétence de tous les Ingénieurs et techniciens du Laboratoire. Grâce à eux, les problèmes de verrerie, cryogénie, mécanique et électronique ont toujours pu être résolus.*

*Je remercie également tous ceux qui ont participé à la réalisation matérielle de ce mémoire et, en particulier, Mme Catherine EMO qui a dactylographié le manuscrit avec gentillesse et efficacité.*

*Je tiens à remercier ici M. Jean BROSSEL pour le plaisir qu'il me fait en assumant la présidence de ce Jury. J'ai été sensible à l'attention avec laquelle il a suivi ce travail, auquel il a activement collaboré en assurant la délicate tâche du remplissage des cellules d'expériences.*

*J'exprime ma profonde reconnaissance à S. HAROCHE, B. HEBRAL et D.S. BETTS pour l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de cette thèse en acceptant de participer au Jury de soutenance. Je remercie plus particulièrement Serge HAROCHE qui, depuis deux ans, encadre avec compétence et gentillesse mon apprentissage de l'enseignement, dans le cadre du Magistère Interuniversitaire de Physique : c'est à lui que je dois l'essentiel de l'enrichissement que m'apporte cette expérience.*

## TABLE DES MATIERES

## Présentation du mémoire

INTRODUCTION GENERALE.....	15
PLAN DE L'EXPOSE.....	17

## Première partie

Observation expérimentale d'ondes de spin dans  $^3\text{He}$  gazeux

I - ONDES DE SPIN DANS $^3\text{He}$ .....	19
I-A L'effet de rotation de spins identiques.....	20
I-A-1 Collision entre deux atomes de $^3\text{He}$ de spins parallèles ou antiparallèles.....	21
I-A-2 Collision entre deux atomes de $^3\text{He}$ dont les spins font un angle quelconque : effet de rotation de spins identiques.....	22
I-B Diffusion de l'aimantation transverse.....	23
I-B-1 Equations hydrodynamiques de diffusion.....	24
I-B-2 Ondes de spin.....	26
I-B-3 Génération et détection des ondes de spin.....	28
I-C Couplage de l'aimantation transverse moyenne aux ondes de spin par un champ magnétique statique inhomogène.....	28
I-C-1 Cas des faibles inhomogénéités.....	29
I-C-2 Cas des fortes inhomogénéités.....	32

## II - COUPLAGE ENTRE L'AIMANTATION TRANSVERSE ET LE CIRCUIT DE DETECTION

II-A Origine physique du couplage.....	38
II-B Description théorique du phénomène.....	39
II-B-1 Equations d'évolution du circuit électrique.....	39
II-B-2 Equations d'évolution des spins nucléaires.....	41
II-B-3 Evolution du système total.....	43
II-C Cas du couplage faible.....	43
II-C-1 Linéarisation des équations.....	43
II-C-2 Effets du couplage sur l'évolution de l'aimantation transverse.....	45
II-C-3 Interprétation des résultats obtenus.....	46
II-D Cas d'un couplage quelconque : approximation adabatique.....	47
II-D-1 Séparation des variables lentes et rapides.....	47
II-D-2 Evolution de l'aimantation nucléaire.....	49
II-D-3 Cas du couplage fort. Effet maser.....	51

## III - MONTAGE EXPERIMENTAL

III-A Préparation d'un gaz de $^3\text{He}$ polarisé à basse température.....	56
III-A-1 Pompage optique de $^3\text{He}$ .....	56
III-A-2 Dispositif laser. Performances.....	57
III-A-3 Les doubles cellules.....	57
III-B Cellules et cryostat.....	59
III-B-1 Cellules.....	59
III-B-2 Cryostat.....	62

<b>III-C Champ magnétique statique.....</b>	<b>63</b>
<b>III-C-1 Production d'un champ adapté aux doubles cellules.....</b>	<b>63</b>
<b>III-C-2 Stabilisation temporelle à l'aide d'un cylindre supraconducteur.....</b>	<b>64</b>
<b>III-C-3 Homogénéité du champ dans le cylindre supra- conducteur .....</b>	<b>66</b>
<b>III-D Dispositif RMN.....</b>	<b>67</b>
<b>III-D-1 Bobines inductrices.....</b>	<b>67</b>
<b>III-D-2 Circuit de détection.....</b>	<b>68</b>
<b>III-D-2a) Circuit (L, C) classique.....</b>	<b>69</b>
<b>III-D-2b) Circuit (L, C, L').....</b>	<b>72</b>
<b>III-D-3 Dispositif électronique.....</b>	<b>74</b>
 <b>IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX - DISCUSSION</b>	
<b>IV-A Méthode de mesure.....</b>	<b>75</b>
<b>IV-A-1 Principe des mesures.....</b>	<b>75</b>
<b>IV-A-2 Calibration de l'amplitude du signal détecté.....</b>	<b>77</b>
<b>IV-A-3 Précision globale des mesures.....</b>	<b>79</b>
<b>IV-A-4 Détermination expérimentale du signe de <math>\mu</math>.....</b>	<b>80</b>
<b>IV-B Erreurs systématiques possibles.....</b>	<b>81</b>
<b>IV-B-1 Influence du circuit de détection.....</b>	<b>82</b>
<b>IV-B-2 Influence de la géométrie de la cellule.....</b>	<b>82</b>
<b>IV-B-3 Influence du cylindre supraconducteur.....</b>	<b>84</b>
<b>IV-C Mesures du coefficient <math>\mu</math>.....</b>	<b>86</b>
<b>IV-D Conclusion.....</b>	<b>89</b>

## Deuxième partie

Liquéfaction d'un gaz de  $^3\text{He}$  polarisé par pompage optique

<b>I - METHODE DE PREPARATION DE L'ECHANTILLON LIQUIDE.....</b>	<b>92</b>
<b>I-A Principe.....</b>	<b>92</b>
<b>I-B Contraintes.....</b>	<b>94</b>
<b>I-C Incidences sur la conception du réfrigérateur à <math>^3\text{He}</math></b>	<b>96</b>
I-C-1 Rapidité de réfrigération.....	96
I-C-2 Choix des matériaux.....	97
I-C-3 Dimensions géométriques.....	97
I-C-4 Principe de fonctionnement.....	98
 <b>II - MONTAGE EXPERIMENTAL</b>	
<b>II-A Le système cryogénique.....</b>	<b>98</b>
II-A-1 La partie azote-hélium 4.....	98
II-A-2 Le réfrigérateur à hélium 3.....	99
II-A-2a L'éprouvette en verre.....	99
II-A-2b La boîte à 1,2K.....	100
II-A-2c Le circuit à hélium 3.....	101
II-A-3 Les mesures de température.....	102
II-A-4 Les performances du système.....	103
 <b>II-B Les cellules.....</b>	<b>105</b>

<b>II-C Les dispositifs optique et électronique.....</b>	<b>106</b>
<b>II-C-1 Sources laser.....</b>	<b>106</b>
<b>II-C-2 Mesures optiques à température ambiante.....</b>	<b>107</b>
<b>II-C-2a Détection optique de l'orientation</b>	
<b>nucléaire.....</b>	<b>107</b>
<b>II-C-2b Mesure de pression.....</b>	<b>108</b>
<b>II-C-3 Détection radioélectrique à basse température</b>	<b>110</b>
<b>II-C-3a Champ magnétique statique.....</b>	<b>110</b>
<b>II-C-3b Dispositif RMN.....</b>	<b>110</b>
<b>III - EXPERIENCES</b>	
<b>III-A Procédure expérimentale.....</b>	<b>112</b>
<b>III-B Observations.....</b>	<b>113</b>
<b>III-B-1 Mise en évidence de <math>^3\text{He}\uparrow</math> liquide dans la</b>	
<b>cellule.....</b>	<b>113</b>
<b>III-B-1a Liquéfaction du gaz.....</b>	<b>113</b>
<b>III-B-1b Etude RMN de l'évolution de l'orientation</b>	
<b>nucléaire dans la phase gazeuse.....</b>	<b>115</b>
<b>III-B-2 Etude RMN du liquide polarisé.....</b>	<b>119</b>
<b>III-B-2a Un modèle pour l'évolution temporelle de</b>	
<b>l'aimantation nucléaire dans la phase liquide.....</b>	<b>119</b>
<b>III-B-2b Résultats expérimentaux.....</b>	<b>126</b>
<b><math>\alpha</math>) Signaux RMN.....</b>	<b>126</b>
<b><math>\beta</math>) Spectres en fréquence des signaux RMN.....</b>	<b>127</b>
<b><math>\gamma</math>) Interprétation.....</b>	<b>128</b>
<b>1) Localisation de la phase condensée.....</b>	<b>128</b>
<b>2) Temps de relaxation longitudinale en phase</b>	
<b>liquide.....</b>	<b>130</b>
<b>3) Taux de polarisation du liquide.....</b>	<b>131</b>
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>133</b>

## LISTE DES ILLUSTRATIONS

## Première partie

I-1	Potentiel interatomique de l'hélium trois.....	20
I-2	Paquets d'ondes de deux atomes de $^3\text{He}$ entrant en collision	21
I-3	Illustration de l'effet de rotation de spins identiques lors d'une collision.....	23
I-4	Dépendance en température du coefficient de diffusion de $^3\text{He}$ et du coefficient sans dimension $\mu$ caractéristique de l'effet de rotation de spins identiques.....	25
I-5	Evolution temporelle de l'aimantation transverse pour diverses valeurs de la surtension des ondes de spin.....	27
I-6	Evolution des valeurs propres, solutions de l'équation (I-37), avec le coefficient de couplage (A) introduit par les inhomogénéités de champ magnétique .....	36
I-7	Modélisation du circuit électrique de détection.....	39
I-8	Illustration de l'effet du couplage avec le circuit de détection sur l'évolution temporelle de l'aimantation transverse.....	46
I-9a-b-d.	Double cellule utilisée pour le pompage optique de $^3\text{He}$ (vue d'ensemble et détails).....	57 59 60 61

I-9c	Variation du temps de relaxation longitudinale $T_1$ avec la température dans la partie froide de la cellule.....	61
I-10	Vue d'ensemble du dispositif expérimental.....	62
I-11	Détail : bain de $^4\text{He}$ fixant la température de la partie froide de la cellule .....	62
I-12	Champ magnétique statique : dispositif utilisé et carte du champ produit.....	64
I-13	Ensemble de bobines utilisées pour compenser au premier ordre les inhomogénéités du champ magnétique à l'intérieur du cylindre supraconducteur .....	67
I-14	Bobines utilisées pour la détection RMN de l'aimantation....	68
I-15	Variation du temps de relaxation transversale effectif avec le taux de polarisation du gaz. I-15a : circuit peu amorti ( $Q = 30$ ) I-15b : circuit amorti ( $Q = 4$ ) .....	71
I-16	Représentation schématique du circuit de détection .....	73
I-17	Exemple de signaux RMN de précession de l'aimantation transverse I-17a Amplitudes en phase et en quadrature I-17b Module et phase calculés à partir des amplitudes précédentes .....	75
I-18	Exemple de mesures de la variation de phase $\Delta\varphi = \delta\omega \cdot T_2$ en fonction du taux de polarisation ( $T_2$ : temps de relaxation transversale) .....	76
I-19	Un autre exemple de résultats, dans le cas d'une dérive du champ magnétique au cours de la séquence de mesure .....	77

I-20	Exploitation des résultats pour s'affranchir de cette dérive temporelle .....	77
I-21	Détail de la bobine utilisée pour la calibration des signaux RMN .....	79
I-22	Détail de la partie froide de la double cellule .....	83
I-23	Utilisations des résultats de différentes mesures de $\Delta\omega T_2/M_2$ à température constante pour éliminer les effets systématiques résiduels .....	87
I-24	Variation du coefficient $\mu$ avec la température : comparaison entre résultats expérimentaux et théoriques .....	87
I-25	a) Variation avec la température T de la pente p des droites obtenues en traçant $\Delta\omega T_2/M_2$ en fonction de $T_2$ .....	88
	b) Variation de la densité du gaz à l'intérieur de la partie froide dans la même zone de température .....	88
I-26	a). Taux de remplissage d'une monocouche de $^3\text{He}$ sur la paroi de la cellule en fonction de $\Delta W/kT$ , dans un modèle d'adsorption localisée .....	88
	b) Comparaison avec les variations de la pente p (fig I-25a) en fonction de $1/T$ pour une cellule donnée .....	88

## Deuxième partie

II-1	Variation de la tension de vapeur saturante de $^3\text{He}$ et $^4\text{He}$ avec la température .....	92
II-2	Présentation des doubles cellules utilisées pour la liquéfaction du gaz :	
	I-2a : cellule à deux volumes	
	I-2b : cellule à trois volumes .....	94

II-3	Vue d'ensemble du dispositif expérimental .....	98
II-4	Détail de la partie inférieure du cryostat à $^3\text{He}$ .....	99
II-5	Passage de fils étanche pour la partie hélium trois .....	99
II-6	Détail de la boîte à 1,2K .....	100
II-7	Circuit externe de circulation de l'hélium trois cryogénique	101
II-8	Schéma de la cavité du laser LNA utilisé pour le pompage optique de $^3\text{He}$ .....	106
II-9	Circuit électronique d'asservissement du laser sur la transition $2^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P}$ de l'hélium trois .....	107
II-10	Taux de polarisation obtenu avec le laser LNA dans un gaz de $^3\text{He}$ à 0,3 torr et 300K, en fonction de la puissance incidente sur la cellule .....	107
II-11	Dispositif optique pour la détection de l'orientation et la mesure de pression à température ambiante .....	107
II-12	Champ magnétique statique : dispositif employé et carte de champ obtenue .....	110
II-13	Bobines inductrices pour la détection RMN de l'aimantation..	110
II-14	Schéma du circuit déphaseur actif pour la compensation du signal radioélectrique parasite .....	111
II-15	Comparaison entre les impulsions radiofréquence émises et détectées .....	111

II-16	Dispositif électronique de détection RMN :	
	a) Schéma général	
	b) Courbe de réponse en fréquence .....	111
II-17	Variations comparées de la pression à l'intérieur de la cellule et de la tension de vapeur saturante de $^3\text{He}$ en fonction de la température .....	114
II-18	Observation expérimentale de la variation de pression dans le volume $V_1$ au cours d'un refroidissement et d'un réchauffement .....	114
II-19	Exemple de signaux RMN induits par l'aimantation du gaz	
	II-19a) Evolution temporelle en phase et en quadrature.	
	II-19b) Spectre de Fourier du signal .....	116
II-20	Evolution du signal RMN du gaz au cours d'un cycle condensation → évaporation .....	116
II-21	Modèles simples pour le calcul du champ démagnétisant dans le liquide polarisé : charges ou courants surfaciques équivalents .....	120 122
II-22	Illustration vectorielle de l'équivalence des deux points de vue .....	123
II-23	Axes de coordonnées adoptés pour repérer l'orientation locale de la paroi par rapport au champ extérieur statique .....	124
II-24	Exemple de signaux RMN pour le système polarisé diphasé liquide-gaz .....	126
II-25	Spectres de Fourier des signaux RMN de la phase condensée ..	127
II-26	Relaxation longitudinale de l'aimantation nucléaire au sein du liquide .....	130

HELIUM TROIS POLARISE

ONDES DE SPIN ET LIQUEFACTION DU GAZ

## PRESENTATION DU MEMOIRE

### INTRODUCTION GENERALE

Le travail présenté dans ce mémoire s'inscrit dans le cadre de l'étude des fluides quantiques polarisés. Il s'agit d'une contribution à la mise en évidence dans l'hélium trois d'effets macroscopiques induits par une modification de variables internes atomiques : la polarisation des spins nucléaires.

L'existence de ce type d'effets peut sembler paradoxale : de toutes les variables internes des atomes, ce sont les spins nucléaires qui sont les moins couplés aux autres variables (position et vitesse de l'atome, du partenaire de collision, etc...). En effet, un spin n'est sensible qu'aux interactions de nature magnétique. Si, de surcroît, il est d'origine nucléaire, son moment magnétique est à peu près mille fois plus petit que celui d'un spin électronique. En modifiant l'état d'une variable interne aussi peu couplée à l'extérieur, on pourrait donc s'attendre à n'observer aucune modification importante des propriétés macroscopiques du système qui ne font intervenir que des variables orbitales.

C'est pourtant possible grâce aux effets de statistique quantique, qui introduisent un lien étroit entre spin et variables orbitales des atomes. On sait en effet que, bien qu'il s'agisse de particules identiques, deux atomes peuvent en fait être distingués s'ils sont dans des états orthogonaux de spin nucléaire : ils sont repérables par la direction de leur spin  $I$ . En revanche, s'ils sont dans le même état de spin, ils sont rigoureusement indiscernables. Ils sont alors soumis à des règles strictes de statistique quantique, celle de Fermi en l'occurrence puisque l'atome d'hélium trois possède un spin nucléaire  $I = 1/2$ . Nous allons donner, à titre d'illustration, quelques exemples d'effets quantiques d'indiscernabilité induits

par l'orientation des spins au sein d'une collection d'atomes.

Considérons le cas d'un gaz dilué d'hélium trois. Ce sont les effets à deux corps qui dominent. Le principe d'exclusion de Pauli, qui impose une distance minimale d'approche (ou "trou d'échange") pour toute paire de fermions dans le même état de spin, est susceptible de modifier l'effet des interactions entre atomes au cours des collisions binaires. Son influence est surtout sensible à basse température, lorsque la taille du "trou d'échange" créé dépasse la portée du potentiel interatomique : les propriétés de transport du gaz dépendent alors de l'orientation nucléaire. On peut ainsi prévoir ([1]) par exemple une augmentation du libre parcours moyen, de la conductivité thermique et de la viscosité avec le taux de polarisation du gaz. De tels effets macroscopiques peuvent être mis en évidence par des mesures de température, de temps d'amortissement d'oscillations sonores, etc..., sans que l'orientation des spins soit directement détectée au cours de l'expérience. Il n'y a là, bien sûr, aucune condition nécessaire : il est également possible d'avoir accès à d'intéressants effets collectifs dus à l'existence d'une polarisation nucléaire non nulle, si l'on s'intéresse directement à l'évolution des spins nucléaires. Un exemple important en est la modification des modes de diffusion de l'aimantation nucléaire, et l'existence d'ondes de spin. Nous présentons dans ce mémoire une étude des ondes de spins nucléaires dans l'hélium trois gazeux polarisé.

L'étude du liquide polarisé, plus dense, donne accès à des quantités qui relèvent des effets à N corps. On s'attend à ce que les effets du principe de Pauli soient encore plus marqués dans ce système. L'énergie de liaison des atomes dans le liquide décroît en valeur absolue quand le taux d'orientation nucléaire augmente ([1]), ceci s'accompagne de variations d'entropie dans les deux phases. Bien sûr, l'influence de la statistique quantique sur le comportement macroscopique du système est ici plus complexe et moins bien connue que dans le cas du gaz dilué. Des calculs numériques récents sont néanmoins venus apporter de bonnes estimations des changements d'énergie de liaison ([36]). De plus, on peut calculer l'effet conjugué des variations d'énergie et d'entropie. Il en résulte une modification du diagramme d'équilibre liquide-gaz avec la polarisation nucléaire ([37]) qui s'introduit ici comme une variable thermodynamique

supplémentaire. Dans la deuxième partie de ce mémoire, nous décrivons des expériences de liquéfaction d'un gaz de  $^3\text{He}$  polarisé destinées à l'étude de ce genre d'effets.

Les exemples d'effets quantiques que nous venons de présenter ne sont pas limitatifs. Il en existe d'autres dans l'hélium trois polarisé gazeux ou liquide. Mais surtout, les effets d'indiscernabilité se rencontrent dans d'autres systèmes, tels que l'hydrogène polarisé ou les solutions diluées d'hélium trois polarisé dans l'hélium quatre superfluide. Pour plus de détails sur tous ces fluides quantiques, on pourra consulter par exemple la référence générale [1] (actes du colloque SPOQS-I à Aussois) ou les références que nous avons regroupées à la fin ([30] à [45]).

## PLAN DE L'EXPOSE

La première partie de notre travail concerne l'observation d'ondes de spin dans l'hélium trois polarisé gazeux à basse température. Le premier chapitre (I) est consacré à la description de ce phénomène physique, et à la discussion des moyens possibles pour sa mise en évidence expérimentale. La méthode que nous décrivons dans ce mémoire est "indirecte" : il s'agit de coupler les ondes de spin à l'aimantation nucléaire transversale moyenne et d'observer les modifications induites sur l'évolution temporelle de celle-ci. Ce procédé suppose une bonne compréhension des autres sortes de couplages susceptibles de provoquer des effets similaires. Ceci nous conduit à analyser en détail l'interaction entre l'aimantation transverse et le circuit électrique de détection de l'orientation (chapitre II), qui constitue une source potentielle d'erreur systématique pour les mesures envisagées. Nous décrivons ensuite notre dispositif expérimental (chapitre III), avant de présenter et de discuter les résultats obtenus (chapitre IV).

La seconde partie de notre travail est essentiellement expérimentale : il s'agit de la préparation d'un échantillon liquide d'hélium trois fortement polarisé. La technique employée consiste à orienter nucléairement le gaz puis à le condenser rapidement. Cette expérience s'apparente à celle réalisée par Mc. Adams ([30]), qui comme nous utilisait le pompage

optique du gaz pour polariser un petit échantillon liquide : l'orientation nucléaire créée dans la vapeur était transférée dans l'échantillon liquide par l'échange incessant des atomes entre les deux phases en présence. Mais elle s'en distingue par plusieurs caractéristiques : la liquéfaction rapide du gaz polarisé, l'utilisation d'un laser et d'enduits cryogéniques, décrits plus en détail dans ce mémoire. Les contraintes de notre procédé sont discutées de façon générale au chapitre I. Le réfrigérateur est décrit au chapitre II, avec l'ensemble du dispositif expérimental mis en oeuvre. Enfin, parmi les tout premiers résultats obtenus, nous présentons ceux qui concernent l'étude RMN du système diphasé polarisé (chapitre III).

## Première partie

### OBSERVATION EXPERIMENTALE D'ONDES DE SPIN DANS $^3\text{He}\uparrow$ GAZEUX

#### I - ONDES DE SPIN DANS $^3\text{He}\uparrow$

La diffusion d'aimantation dans un gaz non polarisé est un phénomène bien connu. Compte tenu des conditions aux limites imposées par la géométrie du système, ce processus purement dissipatif donne lieu à une série de modes amortis. Dans un gaz polarisé (tel que  $\text{H}\downarrow$ , ou bien  $^3\text{He}\uparrow$  auquel nous nous intéressons ici) à basse température, les effets d'échange deviennent importants et la situation est différente : les modes de diffusion deviennent oscillants et peuvent être décrits comme des ondes de spin possédant une fréquence et un taux d'amortissement bien défini. Il s'agit là d'un nouveau mode de propagation, puisque dans les gaz dilués on ne rencontre habituellement que celui qui correspond aux ondes sonores. Ce phénomène est une conséquence directe de l'indiscernabilité des particules, et trouve son origine dans l'effet de "rotation de spins identiques".

Dans le premier paragraphe (I-A), nous présentons cet effet : à partir d'un schéma simple, nous montrons comment les collisions binaires entre atomes identiques modifient l'évolution des observables de spin, lorsqu'on tient compte de l'indiscernabilité des atomes. Cette analyse qualitative au niveau microscopique est destinée à faire apparaître plus clairement le contenu physique des équations hydrodynamiques introduites au second paragraphe (I-B). Celles-ci permettent d'obtenir la relation de dispersion des ondes de spin. Nous discutons alors les conditions de leur mise en évidence et présentons les diverses méthodes employées. Nous nous intéresserons plus particulièrement à un moyen "indirect" de créer et de détecter les ondes de spin dans un gaz de  $^3\text{He}\uparrow$  contenu dans une cellule, à l'aide de gradients de champ magnétique. Nous serons conduits

pour cela à étudier en détail dans un troisième paragraphe (I-C) le couplage entre l'aimantation transverse et les ondes de spin qu'introduit un champ magnétique inhomogène.

### I-A. L'EFFET DE ROTATION DE SPINS IDENTIQUES

Nous considérons dans ce paragraphe une collision entre deux atomes d'hélium 3. Nous supposons que les énergies cinétiques des particules sont assez faibles pour que les atomes de  $^3\text{He}$ , particules composites, apparaissent comme indissociables et douées d'un spin total  $I$  d'origine nucléaire et égal à  $1/2$  (ceci est très largement assuré dans les situations expérimentales envisagées ici, où les énergies cinétiques sont thermiques). Nous supposons également qu'aucun hamiltonien n'agit directement sur les spins nucléaires : le couplage avec un champ magnétique extérieur homogène peut être éliminé par passage dans le référentiel de Larmor; de plus, nous ignorons le couplage dipôle-dipôle entre les spins des atomes entrant en collision, dont l'effet est totalement négligeable aux densités gazeuses qui nous intéressent ici (environ  $10^{16}$  atomes/cm<sup>3</sup>). Les atomes interagissent essentiellement par l'intermédiaire du potentiel interatomique d'origine électrostatique, dont l'allure est représentée sur la figure I-1.

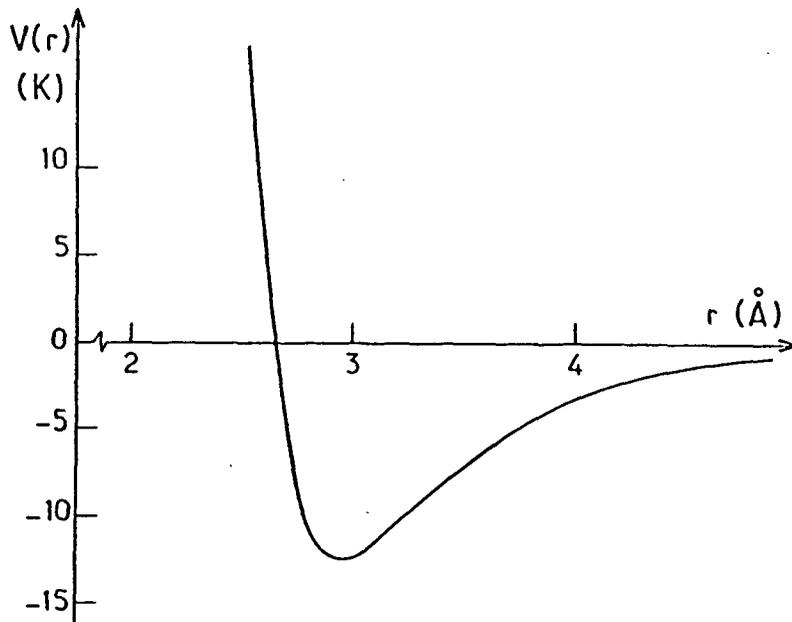


fig. I-1 Potentiel Interatomique de l'hélium trois

**I-A-1) Collision entre deux atomes de  $^3\text{He}$  de spins parallèles ou anti-parallèles:**

Nous avons vu que les atomes d'hélium trois considérés possèdent un spin  $I = 1/2$ . Ce sont des fermions. Une paire d'atomes doit par conséquent être décrite par une fonction d'onde globalement antisymétrique dans la permutation des deux particules. Cette contrainte fondamentale explique pourquoi le résultat de l'interaction de deux atomes est différent selon que ceux-ci ont des spins parallèles ou antiparallèles.

**I-A-1-a) Spins parallèles**

L'état de spin total de la paire est symétrique dans la permutation des deux atomes (état triplet). Ceci implique que la fonction d'onde orbitale soit antisymétrique dans cette même permutation. Cette contrainte n'a aucune conséquence physique lorsque l'on considère deux atomes bien séparés. On peut les décrire par deux paquets d'ondes sans recouvrement (fig I-2a). Il n'en n'est plus de même lorsque, durant une collision, les deux paquets d'ondes se recouvrent : l'antisymétrisation nécessaire de la fonction d'onde des deux projectiles conduit alors à une modulation de la probabilité de présence de la particule relative dans le repère du centre de masse (fig I-2b). La figure d'interférence ainsi obtenue a une périodicité spatiale de l'ordre de  $\lambda_{DB}$  (longueur d'onde de De Broglie) : cette interférence est destructive pour une distance relative des deux particules égale à zéro (principe de Pauli).

**I-A-1-b) Spins antiparallèles:**

Les deux atomes sont dans des états de spin orthogonaux : dans la mesure où l'interaction est indépendante du spin, tous les effets d'interférence disparaissent (figure I-2c). Ce résultat était prévisible : l'interaction ne pouvant retourner les spins, les deux particules interagissantes peuvent en fait être distinguées par leur état de spin.

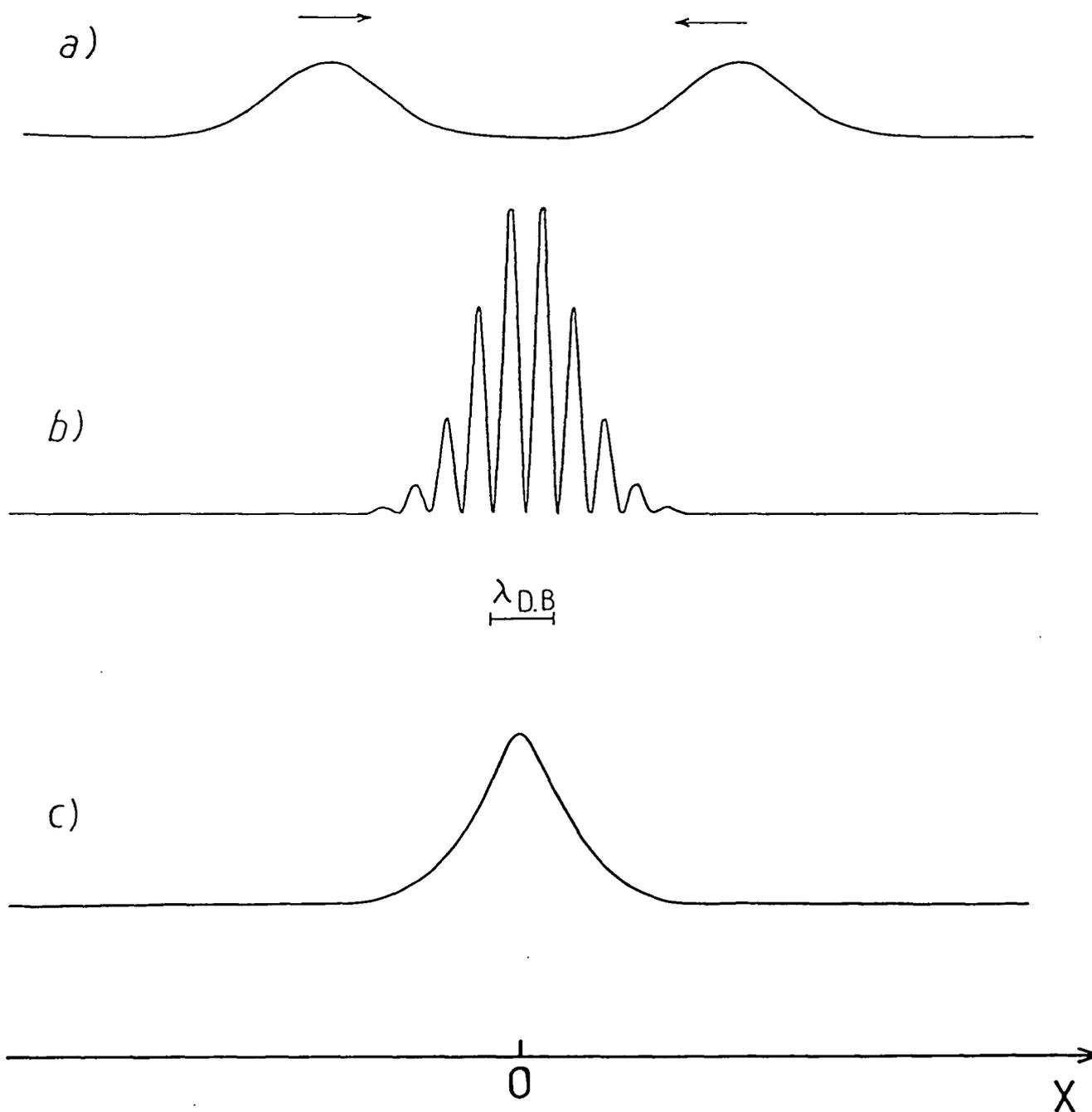


Fig. I-2 : Paquets d'ondes pour deux atomes de  ${}^3\text{He}$  entrant en collision

La figure décrit le cas simple d'un problème à une dimension où l'effet du potentiel interatomique est ignoré. Les courbes représentent la densité de probabilité associée à la "particule relative", de position  $X$ .

a) Paquets d'ondes avant collision

b et c) Paquets d'ondes au moment de la collision:

b) Cas de 2 atomes de spins parallèles

c) Cas de 2 atomes de spins antiparallèles

(  $\lambda_{D.B.}$  est la longueur d'onde de De Broglie des atomes )

**I-A-2) Collision entre deux atomes de  $^3\text{He}$  dont les spins font un angle quelconque : effet de rotation de spins identiques**

Considérons à présent une collision entre deux atomes d'hélium trois dont les spins nucléaires font un angle quelconque entre eux. Il est alors impossible de trouver un référentiel dans lequel les deux atomes soient dans un état pur de spin.

Choisissons pour commencer l'axe de quantification selon la direction d'un des spins avant la collision, par exemple celui de l'atome 1 : les spins des deux atomes sont alors décrits par les kets :

$$\begin{aligned} |1\rangle &= |+\rangle \\ |2\rangle &= \alpha |+\rangle + \beta |-\rangle \end{aligned}$$

Ces états de spin peuvent servir à la construction d'un ket total (variables orbitales et de spin) antisymétrique par échange des deux atomes, qui constitue l'état initial de collision. Cependant, le potentiel d'interaction entre atomes étant supposé purement électrostatique, les variables de spin restent strictement constantes dans la collision : de ce point de vue, il n'y a aucune évolution. Mais, si au lieu de s'intéresser aux spins seuls, on s'intéresse aux spins des atomes diffusés dans une direction donnée, c'est-à-dire aux corrélations entre vitesses et directions des spins après collision, alors apparaissent des effets nouveaux. Pour une certaine direction de diffusion, et du fait des contraintes de symétrie d'échange imposées aux fermions pour le ket total, les composantes triplet ( $\alpha$  sur  $|1,1\rangle$  et  $\beta/\sqrt{2}$  sur  $|1,0\rangle$ ) et singulet ( $\beta/\sqrt{2}$  sur  $|0,0\rangle$ ) subissent des déphasages différents (\*) au cours de la collision. Dans l'espace des spins,

---

(\*) Ces deux composantes ne font pas le même échantillonnage du potentiel interatomique, d'après l'étude du § I-A-1 ; cet effet ne devient important que lorsque la longueur d'onde de De Broglie  $\lambda_{DB}$  devient inférieure ou égale à la portée  $a$  du potentiel interatomique. Pour l'hélium 3,  $a \approx 3\text{Å}$  tandis que  $\lambda_{DB} = h/(2\pi mkT)^{1/2}$  vaut  $3\text{Å}$  à  $T = 10\text{K}$ ,  $10\text{Å}$  à  $1\text{K}$  et  $30\text{Å}$  à  $0,1\text{K}$ .

la différence de phase qui en résulte se traduit par une rotation du spin de l'atome 2. C'est pourquoi ce phénomène a été appelé "effet de rotation de spins identiques".

Bien sûr, la présentation du phénomène qui vient d'être faite a introduit une dissymétrie artificielle entre les rôles joués par les particules 1 et 2. En fait, l'orientation du spin de chacune des particules est modifiée au cours de l'interaction. Le spin total étant une quantité conservée pendant la collision, la rotation qui se produit a lieu autour de la résultante des deux spins. La figure I-3 illustre ce phénomène. Nous avons choisi un axe Oz dirigé selon la résultante des aimantations initiales  $M_1^{(i)}$  et  $M_2^{(i)}$  du couple d'atomes en interaction (figure I-3a). Le spin de chaque atome est décrit par ses composantes longitudinale  $M_z$  (parallèle à Oz) et transversale  $M_\perp$  (perpendiculaire à Oz). Au cours de la collision, les spins atomiques tournent autour de leur résultante (figure I-3b). Après la collision, les composantes longitudinales  $M_{1z}$  et  $M_{2z}$  sont donc inchangées, tandis que les composantes transversales ont évolué : les aimantations finales  $M_1^{(f)}$  et  $M_2^{(f)}$  diffèrent des aimantations initiales  $M_1^{(i)}$  et  $M_2^{(i)}$  (figure I-3c).

On peut dire également que, lors des collisions binaires, les spins des atomes concernés tournent comme ils le feraient sous l'effet d'un champ magnétique : la direction de ce champ magnétique "fictif" est celle de la résultante des aimantations.

## I-B. DIFFUSION DE L'AIMANTATION TRANSVERSE

Considérons à présent une collection d'atomes d'hélium trois enfermés dans une cellule. Si l'orientation y est uniforme, l'effet de rotation de spins identiques ne peut être mis en évidence : le champ magnétique fictif qui lui est associé est parallèle à la direction commune d'orientation ; il n'agit donc pas sur celle-ci (ceci est une conséquence directe de la conservation du spin total lors des collisions). En revanche, l'effet microscopique étudié peut se manifester lorsque la direction de la polarisation varie au sein du milieu : on peut alors trouver, arrivant en un

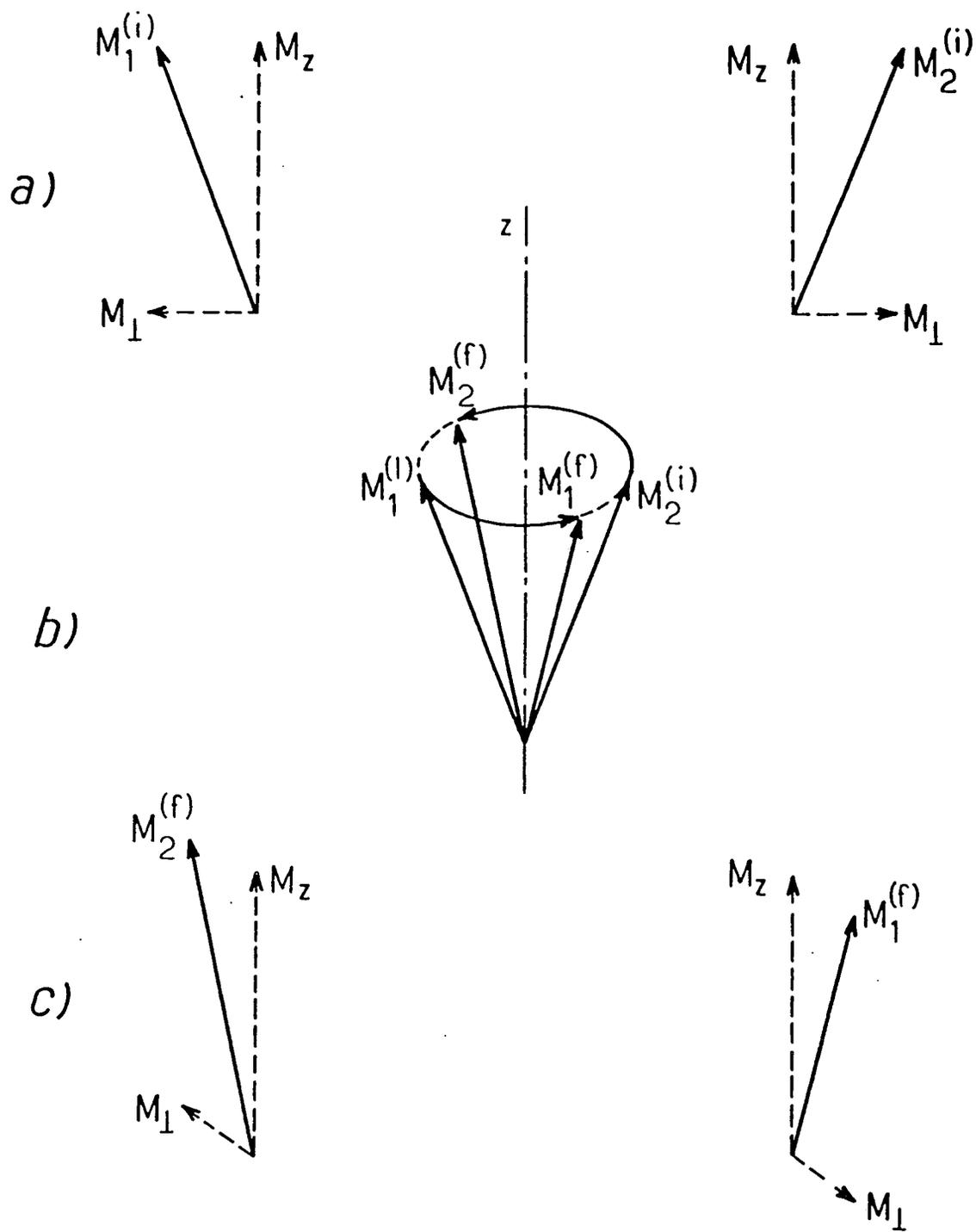


fig.I-3

Illustration de l'effet de rotation de spins identiques lors d'une collision.

point  $r$  donné, des atomes issus de points  $r_1$  et  $r_2$  possédant alors des orientations moyennes de spin différentes. Soit  $\vec{M}$  le vecteur polarisation en un point de la cellule ( $|\vec{M}| \leq 1$ ) (\*), et supposons qu'il soit la somme d'une composante  $M_z$ , sensiblement constante, et d'une petite composante transversale inhomogène  $M_+ = M_x + iM_y$ , nulle en moyenne sur l'échantillon. A chaque collision binaire, les spins tournent autour de leur résultante d'une quantité qui ne dépend que de la vitesse relative des deux atomes et de la nature des interactions. De collision en collision, l'effet de rotation est cumulatif autour de la direction moyenne  $M_z$  : il entraîne une rotation, autour de  $M_z$ , de la composante transversale du courant d'aimantation associé à la diffusion des atomes dans la cellule. Ceci est à l'origine du phénomène macroscopique d'ondes de spin, dont une description précise peut être faite à l'aide des équations hydrodynamiques pour la diffusion de spin que nous introduisons ci-après.

#### I-B-1) Equations hydrodynamiques de diffusion:

Nous allons supposer dans tout ce paragraphe que le champ magnétique statique extérieur est nul sur l'échantillon, ou bien qu'il est homogène, colinéaire à l'aimantation moyenne  $M_z$  et que nous nous sommes placés dans le référentiel tournant à la fréquence de Larmor.

Dans un gaz classique, le mouvement aléatoire des atomes tend à niveler les inhomogénéités spatiales de l'aimantation  $\vec{M}$ . A chaque composante scalaire  $M_{x_i}$  du vecteur  $\vec{M}$  est associé un courant d'aimantation  $\vec{J}(M_{x_i})$ , tel que (loi de Fick) :

---

(\*) La notation utilisée ici est celle de la référence [2], où  $\vec{M}$  est un vecteur parallèle à  $\vec{I}$  (moment cinétique de spin nucléaire), de module compris entre 0 et 1.

$$\vec{M} = (2/\pi) \vec{I} .$$

Le moment magnétique  $\vec{M}$  lui est directement proportionnel et opposé puisque  $\vec{M} = \gamma \vec{I}$  si  $\gamma$  est le facteur gyromagnétique nucléaire de  $^3\text{He}$  ( $\gamma < 0$ ).

$$\vec{J}(\mathbf{M}_{x_i}) = -D_0 \vec{\nabla} \mathbf{M}_{x_i}(\vec{r}) \quad i = 1, 2, 3 \quad (\text{I-1-a})$$

où  $\left\{ \begin{array}{l} D_0 \text{ est le coefficient de diffusion des atomes} \\ x_1 = x, x_2 = y \text{ et } x_3 = z. \end{array} \right.$

En utilisant les notations de la référence [2], les équations (I-1-a) peuvent aussi s'écrire :

$$J_k(\vec{M}) = -D_0 \frac{\partial}{\partial x_k} \vec{M}(\vec{r}) \quad \text{pour } k = 1, 2, 3 \quad (\text{I-1-b})$$

Dans le cas d'une collection d'atomes indiscernables, l'effet de rotation de spins identiques est à l'origine d'un terme supplémentaire, et l'équation (I-1-b) devient :

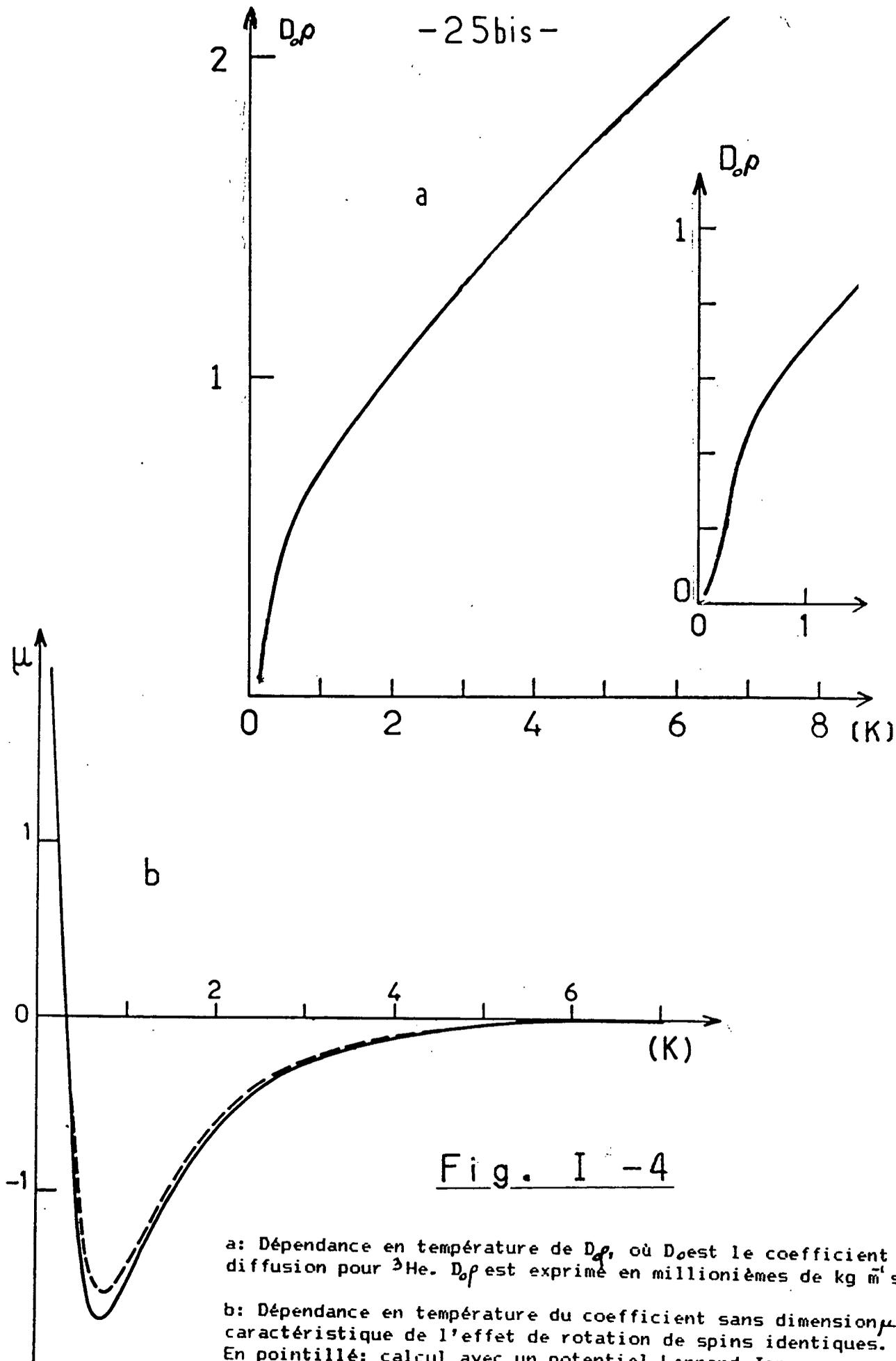
$$J_k(\vec{M}) = -D_0 \frac{\partial}{\partial x_k} \vec{M}(\vec{r}) + \mu \vec{M}(\vec{r}) \times J_k(\vec{M}) \quad (\text{I-2})$$

Ici,  $D_0$  est le coefficient de diffusion classique, et  $\mu$  une quantité sans dimension qui mesure l'importance des effets d'échange.  $D_0$  et  $\mu$  sont calculables ab initio à partir de la donnée du potentiel interatomique [2]. La figure I-4 présente les résultats de leur calcul pour l'hélium 3 gazeux. Le terme  $\mu \vec{M}(\vec{r}) \times J_k(\vec{M})$  traduit la précession des courants autour de l'aimantation : on montre dans la référence [3] que son effet sur l'évolution temporelle de  $J_k(\vec{M})$  est analogue à l'action d'un champ magnétique  $\vec{B}_{\text{eff}} = -\mu \vec{M}(\vec{r}) / \gamma \tau_{\text{IC}}$ , où  $\tau_{\text{IC}}$  est un temps de l'ordre de grandeur du temps intercollision et  $\gamma$  le facteur gyromagnétique du noyau de  $^3\text{He}$ .

D'autre part, l'aimantation  $\vec{M}(\vec{r})$  évolue sous l'effet des courants d'aimantation :

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{M}_{x_i}(\vec{r}) = -\vec{\nabla} \cdot \vec{J}(\mathbf{M}_{x_i}) \quad (\text{I-3})$$

(I-3) est une équation de continuité qui traduit l'hypothèse fondamentale que les collisions ne modifient pas directement les composantes de l'orientation locale  $\vec{M}(\vec{r})$ .



a: Dépendance en température de  $D_0\rho$ , où  $D_0$  est le coefficient de diffusion pour  $^3\text{He}$ .  $D_0\rho$  est exprimé en millionnièmes de  $\text{kg m}^2 \text{s}^{-1}$ .

b: Dépendance en température du coefficient sans dimension  $\mu$  caractéristique de l'effet de rotation de spins identiques.  
 En pointillé: calcul avec un potentiel Lennard-Jones  
 Courbe pleine: emploi d'un potentiel Aziz

Toutes ces courbes sont tirées de la référence [2].

## I-B-2) Ondes de spin

Nous pouvons maintenant décrire l'évolution temporelle de l'aimantation transverse  $M_+(\vec{r}) = M_x + i M_y$ . Pour cela, il suffit d'éliminer les courants  $J_k(\vec{M})$  entre les équations (I-2) et (I-3) :

$$\frac{\partial}{\partial t} M_+ = \frac{D_0}{1 - i\mu M} \Delta M_+ \quad (\text{avec } i^2 = -1) \quad (\text{I-4})$$

Il est commode d'introduire à ce niveau les modes  $\varphi_{n\ell m}$  de diffusion dans la cellule contenant le gaz. Ce sont les solutions de l'équation laplacienne :

$$\Delta \varphi_{n\ell m}(\vec{r}) = - (k_{n\ell})^2 \varphi_{n\ell m}(\vec{r}) \quad (\text{I-5})$$

qui satisfont aux conditions aux limites de nullité de la dérivée normale sur les parois de la cellule (\*). Nous n'envisageons ici que le cas des cellules sphériques, pour lesquelles l'invariance par rotation fait disparaître la dépendance en  $m$ .

Nous pouvons alors décomposer l'aimantation transverse sur les modes de diffusion selon :

$$M_+(\vec{r}, t) = \sqrt{V} \sum_{n, \ell, m} x_{n, \ell, m}^+(t) \varphi_{n, \ell, m}(\vec{r}) \quad (\text{I-6})$$

Le volume  $V$  de l'échantillon a été introduit ici pour des raisons de pure commodité.

L'évolution temporelle de chaque composante se déduit aisément de l'équation (I-4) :

$$\frac{d}{dt} x_{n\ell m}^+ = - \frac{D_0 k_{n\ell}^2}{1 - i\mu M} x_{n\ell m}^+ \quad (\text{I-7})$$

---

(\*) On néglige ici les effets de relaxation sur la paroi; c'est une excellente approximation dans le cadre des expériences sur  $^3\text{He}\uparrow$  gazeux décrites dans cette partie du mémoire (voir § III-B).

Chaque mode évolue par conséquent avec une "fréquence" complexe  $\hat{\omega}_{nl}$  (\*), définie par la relation de dispersion suivante :

$$\hat{\omega}_{nl} = - \frac{D_o k_{nl}^2 \mu M}{1 + \mu^2 M^2} + i \frac{D_o k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2} \quad (I-8)$$

L'évolution du mode fondamental, uniforme et non amorti ( $k_{10} = 0$ ) n'est pas modifiée : on retrouve ici que l'effet de rotation de spins identiques ne peut pas se manifester dans le cas d'une aimantation spatialement homogène. Tous les autres modes, habituellement purement amortis, deviennent oscillants. Ils sont appelés ondes de spins : leur taux d'amortissement  $1/\hat{\tau}_{nl}$  et leur fréquence  $\Delta\hat{\omega}_{nl}$  sont donnés par :

$$\frac{1}{\hat{\tau}_{nl}} = \frac{D_o k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2} \quad \text{et} \quad \Delta\hat{\omega}_{nl} = - \frac{D_o k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2} \mu M \quad (I-9)$$

La figure (I-5) représente l'évolution temporelle, dans le référentiel tournant, de l'aimantation transverse  $M_+$  pour :

$\mu M = 0$  (diffusion de spin "classique", c'est-à-dire limite haute température ( $\mu \rightarrow 0$ ) ou aimantation nulle).

$\mu M = 0,5$  ( $^3\text{He}$  polarisé à 50% à  $T = 1,3\text{K}$ )

$\mu M = 5$  ( $^3\text{He}\uparrow$  à plus basse température ou hydrogène doublement polarisé à 0,5K [2]).

*Remarque* Avec les conditions aux limites imposées, les ondes de spin obtenues ici sont des ondes stationnaires amorties. Bien évidemment dans une configuration géométrique différente, on pourrait rencontrer des ondes progressives (modes propagatifs).

-----  
 (\*) Dans le référentiel du laboratoire, en présence d'un champ magnétique statique uniforme  $\vec{B}_0$  collinéaire à  $\vec{M}$ , la relation de dispersion (I-8) devient évidemment:

$$\hat{\omega}_{nl} = \omega_o - \frac{D_o k_{nl}^2 \mu M}{1 + \mu^2 M^2} + i \frac{D_o k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2} \quad (I-8 \text{ bis})$$

Dans cette expression,  $\omega_o = -\gamma B_o$  est la fréquence de Larmor dans le champ  $B_o$ .

-27 bis -

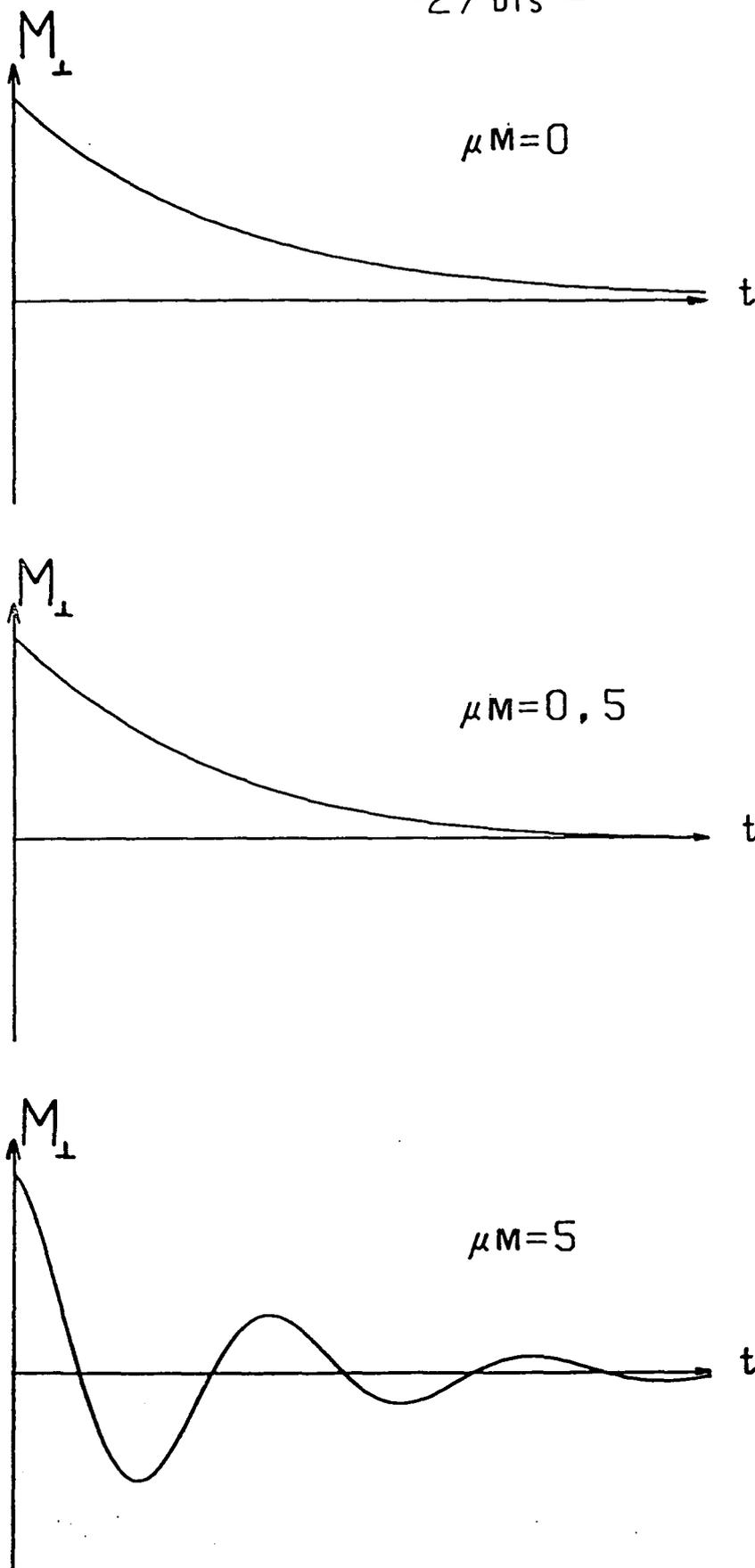


Fig. I-5 Evolution temporelle de l'aimantation transverse  $M_{\perp}$  (dans le référentiel tournant à la fréquence de Larmor) pour diverses valeurs de la surtension  $\mu M$  de l'onde de spin.

## I-B-3) Génération et détection des ondes de spin

Une première méthode de mise en évidence des ondes de spin et de mesure du coefficient  $\mu$  consiste à exciter et détecter directement un mode spatialement inhomogène d'aimantation transverse. Elle a été utilisée, par notre groupe [4] dans  $^3\text{He}\uparrow$  gazeux : le mode choisi a été le mode amorti le plus lent. Nous ne la décrivons pas ici, puisque cela a été fait en détail dans la référence [5]. Rappelons simplement que la surtension des oscillations observées, définie comme le rapport de leur fréquence à leur amortissement, est égale pour un mode  $n\ell$  donné à :

$$\hat{\Delta\omega}_{n\ell} \cdot \hat{\tau}_{n\ell} = -\mu M \quad (\text{I-10})$$

Une deuxième méthode (dite "indirecte"), décrite dans ce mémoire, consiste à utiliser un champ magnétique statique inhomogène  $\vec{B}_0(\vec{r})$  pour créer des inhomogénéités spatiales de l'aimantation transverse au sein de l'échantillon. Elle a été utilisée ici pour  $^3\text{He}\uparrow$  gazeux [6], mais également pour l'étude de l'hydrogène doublement polarisé à Cornell University [7]. Le principe de la méthode est le suivant : à partir d'une aimantation transverse homogène créée à un instant donné, la précession de l'aimantation à une fréquence de Larmor  $\omega_0(\vec{r})$ , qui dépend du point considéré, fait apparaître aux instants ultérieurs une variation spatiale de la composante transverse. Le mode fondamental libre  $X_{100}$  est donc couplé aux autres modes par l'action du champ statique inhomogène; plus généralement, chaque mode est affecté et modifié. Le paragraphe suivant (I-C) est consacré à l'étude de ce couplage entre modes.

### I-C. COUPLAGE DE L'AIMANTATION TRANSVERSE MOYENNE AUX ONDES DE SPIN PAR UN CHAMP MAGNETIQUE STATIQUE INHOMOGENE

En présence d'un champ magnétique statique inhomogène, il apparaît un couplage entre les modes libres de diffusion de l'aimantation transverse. Pour analyser ce phénomène, nous allons distinguer deux cas :

- celui des faibles inhomogénéités du champ (I-C-1), où un développement perturbatif permet de calculer le nouveau mode fondamental (quasi-homogène et amorti), et de calculer son temps de relaxation  $T_2$ , long devant les temps caractéristiques  $\tau_{nl}$  des autres modes  $X_{nlm}$  amortis.

- celui des fortes inhomogénéités du champ magnétique statique (I-C-2), où le couplage entre les divers modes libres est tel que les modes de diffusion sont profondément modifiés. L'amortissement de l'aimantation moyenne peut devenir non exponentiel, et le spectre de fréquences associé à sa précession comporte d'autres composantes qu'un simple déplacement de fréquence.

Le cas des faibles inhomogénéités correspond aux expériences décrites dans ce mémoire, et les calculs présentés au §I-C-1 conduisent à une analyse quantitative des résultats correspondants. Le second cas (fortes inhomogénéités) correspond plutôt aux situations expérimentales de Cornell University, pour l'étude de l'hydrogène doublement polarisé. Des calculs numériques [7] ont été effectués par leur groupe, qui permettent de reproduire l'allure des spectres RMN enregistrés. L'étude développée au § I-C-2 présente un modèle analytique simple pour décrire qualitativement la situation, fort différente du cas perturbatif.

#### I-C-1) Cas des faibles inhomogénéités

Considérons un champ magnétique statique  $\vec{B}(\vec{r})$ , dont la partie homogène  $\vec{B}_0$  est prise parallèle à l'axe Oz. La partie inhomogène du champ est notée  $\delta\vec{B}(\vec{r})$ , de sorte que le champ magnétique s'écrit en un point  $\vec{r}$  quelconque :

$$\vec{B}(\vec{r}) = \vec{B}_0 + \delta\vec{B}(\vec{r}) \quad (\text{I-11})$$

avec par définition :

$$\int_V \vec{B}(\vec{r}) d\vec{r} = V \vec{B}_0 \quad \text{et} \quad \int_V \delta\vec{B}(\vec{r}) d\vec{r} = \vec{0} \quad (\text{I-12})$$

(V désigne ici encore le volume de l'échantillon considéré).

Nous rappelons ici les principaux résultats obtenus dans la référence [8], en conservant les notations qui y sont utilisées. La partie inhomogène du champ  $\delta\vec{B}(\vec{r})$  peut se développer, en tout point de l'espace intérieur à la cellule, sur les modes de diffusion  $\Psi_{nlm}$  (déjà introduits au I-B-2)

$$\delta B_z(\vec{r}) = - \frac{\sqrt{v}}{\gamma} \sum'_{nlm} \beta_{nlm}^z \Psi_{nlm}(\vec{r}) \quad (I-13)$$

$$\delta B_{\pm}(\vec{r}) = \delta B_x(\vec{r}) \pm i \delta B_y(\vec{r}) = - \frac{\sqrt{v}}{\gamma} \sum'_{nlm} \beta_{nlm}^{\pm} \Psi_{nlm}(\vec{r}) \quad (I-14)$$

où  $\Sigma'$  représente la somme sur tous les modes, sauf celui qui correspond à  $n=1$  et  $l = m = 0$  dont la contribution est nulle (I-12). La résolution des équations générales d'évolution couplée (I-2) et (I-3) de l'aimantation et des courants associés peut s'effectuer à l'aide d'une méthode de perturbation : nous supposerons pour cela que les inhomogénéités du champ magnétique sont suffisamment faibles pour que l'on ait : (\*)

$$\left| \beta_{nlm}^{\pm, z} \right| \tau_{nl} \ll 1, \text{ avec } \tau_{nl} = 1/D_0 \kappa_{nl}^2 \quad (I-15)$$

Les calculs sont alors limités au second ordre dans le développement effectué par rapport aux paramètres :

$$\left| \beta_{nlm}^{\pm, z} \right| \tau_{nl} \ll 1$$

Le traitement perturbatif développé dans la référence [8] montre que les inhomogénéités du champ magnétique interviennent au second ordre dans la modification du mode fondamental. En effet, dans le cas d'un champ homogène, la partie homogène  $M_+$  de l'aimantation transverse évolue à la pulsation de Larmor  $\omega_0 = -\gamma B_0$ . En présence d'inhomogénéités,  $\omega = -\gamma \vec{B}(\vec{r})$  varie d'un point à l'autre de la cellule, et il apparaît une

(\*) La condition (I-15) est équivalente, dans les cas simples, à  $|\gamma \delta B| \tau_D \ll 1$  où  $\tau_D = \tau_{11}$  est le temps de diffusion le plus long dans une cellule sphérique [8].

variation spatiale d'aimantation  $\delta\vec{M}$  (la décomposition de  $\delta\vec{M}$  sur les modes propres de diffusion  $\Psi_{nlm}$  permet d'en déterminer la variation temporelle). Les courants d'aimantation engendrés par cette variation spatiale  $\delta\vec{M}$  provoquent alors, par l'intermédiaire des inhomogénéités de champ, une modification  $\delta M_+$  de l'aimantation transverse  $M_+$ . Ainsi,  $\delta\vec{B}(\vec{r})$  intervient deux fois de suite dans le schéma de couplage que nous venons de décrire.

Les calculs de [a] montrent que, dans le cas où  $\omega_0\tau_D \gg 1$ , on peut négliger la contribution des inhomogénéités transversales du champ ( $\delta B_x$  et  $\delta B_y$ ). Pour la précession de la partie homogène de l'aimantation transverse, le couplage avec les ondes de spins se traduit alors par un déplacement de fréquence :

$$\Delta\omega_R = \sum'_{nlm} |\beta_{nlm}^z|^2 \tau_{nl} \mu M_z \quad (\text{I-16})$$

tandis que le taux de relaxation de  $M_+$  s'écrit :

$$\frac{1}{T_2} = \sum'_{nlm} |\beta_{nlm}^z|^2 \tau_{nl} \quad (\text{I-17})$$

Par rapport à la précession de Larmor usuelle, il apparaît une oscillation supplémentaire dont la surtension vaut par conséquent :

$$\Delta\omega_R \cdot T_2 = \mu M_z \quad (\text{I-18})$$

La caractéristique principale du déplacement de fréquence est que  $\Delta\omega_R$  varie linéairement avec  $M_z$  (composante longitudinale de l'aimantation).  $\Delta\omega_R$  s'annule donc dans le cas d'une aimantation purement transversale ( $M_z=0$ ) ; il change de signe si  $M_z$  change de sens par rapport à  $\vec{B}_0$  : c'est là une signature de l'effet quantique très utile expérimentalement (voir § IV).

Pour mesurer le coefficient  $\mu$ , il faut donc mesurer le déplacement de fréquence  $\Delta\omega_R$ , l'orientation  $M_z$  et le temps de relaxation transversale  $T_2$  ; tout ceci se fait aisément par détection RMN (voir IV). La détermination de  $T_2$  permet aussi une mesure des inhomogénéités du champ magnétique  $\vec{B}$ . Tous les résultats présentés dans ce paragraphe ne sont valables, rappelons-le, que pour de faibles variations spatiales de  $\vec{B}$  sur l'échantillon ( $|\delta B_z| \tau_D \ll 1$ ) ; l'égalité (I-17) montre que cette contrainte équivaut à

$T_2 \gg \tau_D$  (condition de "rétrécissement par le mouvement"). Il importe de réaliser cette condition expérimentalement si on veut pouvoir utiliser la relation (I-18).

### I-C-2) Cas des fortes inhomogénéités

Lorsque les inhomogénéités du champ magnétique ne satisfont plus à la condition (I-15), il faut renoncer à l'approche perturbative décrite au I-C-1. Il est hors de notre propos d'essayer de résoudre rigoureusement les équations couplées de départ (I-2) et (I-3) dans le cas général. Nous étudions ici le cas particulier où l'on peut négliger l'influence des variations spatiales de  $B_x$  et  $B_y$  (effet non séculaire si  $\omega_0 \tau_D \gg 1$ ): seules sont prises en compte les inhomogénéités de la composante longitudinale  $B_z$  du champ magnétique : nous supposons également ici que la composante transverse de l'aimantation est petite devant la composante longitudinale  $M_z$  (\*). Nous écrivons donc :

$$\vec{M}(\vec{r}) = \vec{M} + \delta\vec{M}(\vec{r}) \quad \text{avec } \vec{M} // Oz, \quad |M_x(\vec{r})| \text{ et } |M_y(\vec{r})| \ll M_z \quad (\text{I-19})$$

$$B_z(\vec{r}) = B_0 + \delta B_z(\vec{r}) \quad (\text{I-20})$$

ce qui nous permet de définir :

$$\omega_0(\vec{r}) = -\gamma B_z(\vec{r}) = \omega_0 + \delta\omega_0(\vec{r}) \quad \text{avec } \int_V \omega_0(\vec{r}) d\vec{r} = \omega_0 \quad (\text{I-21})$$

Les calculs sont développés au premier ordre en  $\delta M_{x,y}$ , mais ils traitent exactement les termes en  $\delta\omega_0$ .

L'équation d'évolution à résoudre pour l'aimantation est :

$$\frac{\partial}{\partial t} M_i(\vec{r}) = -\gamma [ \vec{B}(\vec{r}) \times \vec{M}(\vec{r}) ] - \vec{\nabla} \cdot \vec{J}(M_i) \quad (\text{I-22})$$

Dans ces conditions, seule la composante transverse possède une partie inhomogène créée par  $\delta\omega_0(\vec{r})$ . Comme précédemment, nous préférons

---

(\*) Comme précédemment, l'axe  $Oz$  choisi est dirigé selon  $\vec{B}_0$ .

travailler sur  $\delta M_+(\vec{r}) = \delta M_x(\vec{r}) + i \delta M_y(\vec{r})$ ; l'équation (I-22) donne pour la partie transverse :

$$\frac{\partial}{\partial t} \delta M_+(\vec{r}) = i(\omega_0 + \delta\omega_0(\vec{r})) \delta M_+(\vec{r}) + \frac{D_0}{1 - i\mu M} \Delta[\delta M_+(\vec{r})] \quad (I-23)$$

Nous pouvons développer  $\delta M_+(\vec{r})$  sur les modes de diffusion non perturbés (comme au paragraphe I-C-1)  $\varphi_{nlm}(\vec{r})$  selon :

$$\delta M_+(\vec{r}) = \sqrt{V} \sum_{nlm} X_{nlm}^+ \varphi_{nlm}(\vec{r}) \quad (I-24)$$

La base choisie étant orthonormée, les coefficients  $X_{nlm}^+$  sont donnés par:

$$X_{nlm}^+ = \frac{1}{\sqrt{V}} \int_V d^3 \vec{r} \varphi_{nlm}^*(\vec{r}) \delta M_+(\vec{r}) \quad (I-25)$$

Ainsi, par exemple, l'aimantation transversale moyenne  $M_+$  est donnée par:

$$M_+ = \frac{1}{V} \int_V d^3 \vec{r} \delta M_+(\vec{r}) = X_{100}^+ \quad (I-26)$$

L'évolution temporelle des coefficients  $X_{nlm}^+$  se déduit immédiatement des équations précédentes :

$$\frac{d}{dt} X_{nlm}^+ = i\omega_0 X_{nlm}^+ + i \sum_{n',l',m'} \langle nlm | \delta\omega_0 | n',l',m' \rangle X_{n',l',m'}^+ - \frac{D_0 k_{nl}^2}{1 - i\mu M} X_{nlm}^+ \quad (I-27)$$

où on a posé :

$$\langle nlm | \delta\omega_0 | n',l',m' \rangle = \frac{1}{V} \int_V d^3 \vec{r} \varphi_{nlm}^*(\vec{r}) \delta\omega_0(\vec{r}) \varphi_{n',l',m'}(\vec{r})$$

Finalement :

$$\frac{d}{dt} X_{nlm}^+ = i\left(\omega_0 - \frac{D_0 k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2} \mu M + i \frac{D_0 k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2}\right) X_{nlm}^+ + i \sum_{n',l',m'} \langle nlm | \delta\omega_0 | n',l',m' \rangle X_{n',l',m'}^+ \quad (I-28)$$

Le premier terme du membre de droite est identique à celui trouvé dans le cas d'un champ magnétique uniforme (§ I-B-2) : on y reconnaît le déplacement de fréquence :

$$\hat{\Delta\omega}_{nl} = - \frac{D_o k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2} \mu M$$

et l'amortissement :

$$\frac{1}{\hat{\tau}_{nl}} = \frac{D_o k_{nl}^2}{1 + \mu^2 M^2}$$

caractéristique des ondes de spin. Le second terme traduit l'effet des inhomogénéités du champ : elles introduisent un couplage entre le mode concerné et tous les autres modes de diffusion d'aimantation transverse dans la cellule.

Pour mener à terme le calcul, nous ferons les hypothèses supplémentaires suivantes :

.  $\delta\omega_o(\vec{r})$  est une fonction impaire. En conséquence, les coefficients  $\langle nlm | \delta\omega_o | n'l'm' \rangle$  sont nuls à chaque fois que  $l + l'$  est pair.

. On peut limiter la sommation aux triplets  $(n, l, m)$  tels que  $n=1$  et  $l = 0$  ou  $1$ . Les autres modes sont peu excités si les inhomogénéités du champ correspondent essentiellement à des variations linéaires de  $\vec{B}$  sur le volume de l'échantillon, et leur temps de variation caractéristique est plus court que  $\tau_{11}$ .

Dans ces conditions, nous calculons seulement les variations temporelles de  $X_{100}^+$ , et  $X_{11m}^+$  avec  $m = 1, 0, -1$ .

Posons :

$$A_{nlm} = \frac{1}{\sqrt{V}} \int_V d^3 \vec{r} \delta\omega_o(\vec{r}) \varphi_{nlm}(\vec{r}) \quad (I-29)$$

$$\omega_{11} = \omega_o + i \frac{D_o k_{11}^2}{1 - i\mu M} \quad (I-30)$$

On a alors :

$$\frac{d}{dt} X_{100}^+ = i\omega_o X_{100}^+ + i \sum_{m'} A_{11m'} X_{11m'}^+ \quad (I-31)$$

$$\frac{d}{dt} X_{11m}^+ = i\omega_{11} X_{11m}^+ + i A_{11m}^* X_{100}^+ \quad (\text{I-32})$$

Nous avons déjà indiqué que  $X_{100}^+ = \langle \delta M_+(\vec{r}) \rangle = M_+$ . Nous définissons à présent :

$$X_+ = \sum_{m=-1,0,1} \frac{A_{11m}}{A} X_{11m}^+, \quad \text{avec } A = \sqrt{\sum_m |A_{11m}|^2} \quad (\text{I-33})$$

Le problème est donc ramené à la résolution de deux équations linéaires couplées :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} M_+ = i\omega_0 M_+ + iAX_+ \\ \frac{d}{dt} X_+ = iAM_+ + i\omega_{11}X_+ \end{cases} \quad (\text{I-34})$$

Si nous posons :  $\omega_{11} = \omega_0 + \delta_1$  et  $\gamma_{11} = 1/\tau_{11} = D_0 k_{11}^2$ , il vient :

$$\delta_1 = \widehat{\Delta\omega}_{11} + \frac{i}{\widehat{\tau}_{11}} = \gamma_{11} \left( \frac{-\mu M + i}{1 + \mu^2 M^2} \right) \quad (\text{I-35})$$

L'équation aux valeurs propres ( $\lambda$ ) associée au système (I-34) est :

$$\lambda^2 - i(\omega_0 + \omega_{11})\lambda - \omega_0 \omega_{11} + A^2 = 0 \quad (\text{I-36})$$

En définissant l'inconnue  $\delta$  par  $\lambda = i(\omega_0 + \delta)$ , (I-36) équivaut à :

$$\delta^2 - \delta_1 \delta - A^2 = 0 \quad (\text{I-37})$$

Il est satisfaisant de vérifier que, dans le cas d'un champ homogène ( $A=0$ ), les solutions de (I-37) sont  $\delta = 0$  et  $\delta = \delta_1$  : on retrouve exactement les résultats du (I-B-2). Nous pouvons remarquer aussi que pour  $A \ll \gamma_{11}$ , une solution approchée de (I-37) est

$$\delta = - \frac{A^2}{\gamma_{11}} \simeq \frac{A^2}{\gamma_{11}} (i + \mu M) \quad (\text{I-38})$$

si  $|\mu M| \ll 1$ .

Ceci correspond au résultat obtenu au (I-C-1) dans le cas des faibles

inhomogénéités : la condition  $A \ll \gamma_{11}$  est en outre bien analogue à la condition  $|\gamma\delta B| \tau_{11} \ll 1$  du dit paragraphe.

Pour discuter le cas général, nous réécrivons l'équation (I-37) sous la forme :

$$\left( \delta - \frac{\delta_1}{2} \right)^2 = A^2 + \frac{\delta_1^2}{4}$$

Si nous posons à présent  $u = \delta - \delta_1/2 = u_R + iu_I$  et  $u^2 = v = v_R + iv_I$ , nous obtenons :

$$v = A^2 - \frac{\gamma_{11}^2}{4} \cdot \frac{1 - \mu^2 M^2 + 2i\mu M}{(1 + \mu^2 M^2)^2} \quad (\text{I-39})$$

ce qui nous conduit à :

$$\left\{ \begin{array}{l} u_R^2 - u_I^2 = A^2 - \frac{\gamma_{11}^2}{4} \cdot \frac{1 - \mu^2 M^2}{(1 + \mu^2 M^2)^2} \approx A^2 - \frac{\gamma_{11}^2}{4} \quad \text{si } |\mu M| \ll 1 \\ u_R u_I = - \frac{\gamma_{11}^2}{4} \frac{\mu M}{(1 + \mu^2 M^2)^2} \approx - \frac{\gamma_{11}^2}{4} \mu M \quad \text{si } |\mu M| \ll 1 \end{array} \right. \quad (\text{I-40})$$

Le produit  $u_R u_I$  est indépendant de  $A$  : pour une valeur de  $\mu M$  donnée et non nulle, les points représentatifs des solutions se déplacent dans le plan  $(u_R, u_I)$  sur les branches d'une hyperbole  $u_R u_I = \text{constante}$  lorsque  $A$  varie de 0 à  $+\infty$ . La figure I-6 illustre les variations des couples  $(v_R, v_I)$  et  $(u_R, u_I)$  avec  $A$ , dans les cas  $\mu M = 0$  et  $\mu M = 0$ . Dans le cas particulier où  $A = \gamma_{11}/2$  (couplage critique), le système (I-40) montre pour  $|\mu M| \ll 1$ , que :

$$|u_R| = |u_I| = \gamma_{11} \sqrt{|\mu M|} / 2$$

Puisque  $\delta_1/2 \approx \gamma_{11} (1 - \mu M)/2$ , le terme dominant qu'on obtient pour le déplacement de fréquence par rapport à  $\omega_0$  varie alors en  $\sqrt{|\mu M|}$ . Ce cas critique semble donc mieux adapté à la détection des effets quantiques que celui des faibles homogénéités ( $A \ll \gamma_{11}$ ), qui ne varie qu'en  $|\mu M|$  (en effet,  $|\mu M| < \sqrt{|\mu M|}$  quand  $|\mu M| \ll 1$ ). La variation observable est plus grande, et de plus elle concerne à la fois le déplacement de fréquence et le taux d'amortissement.

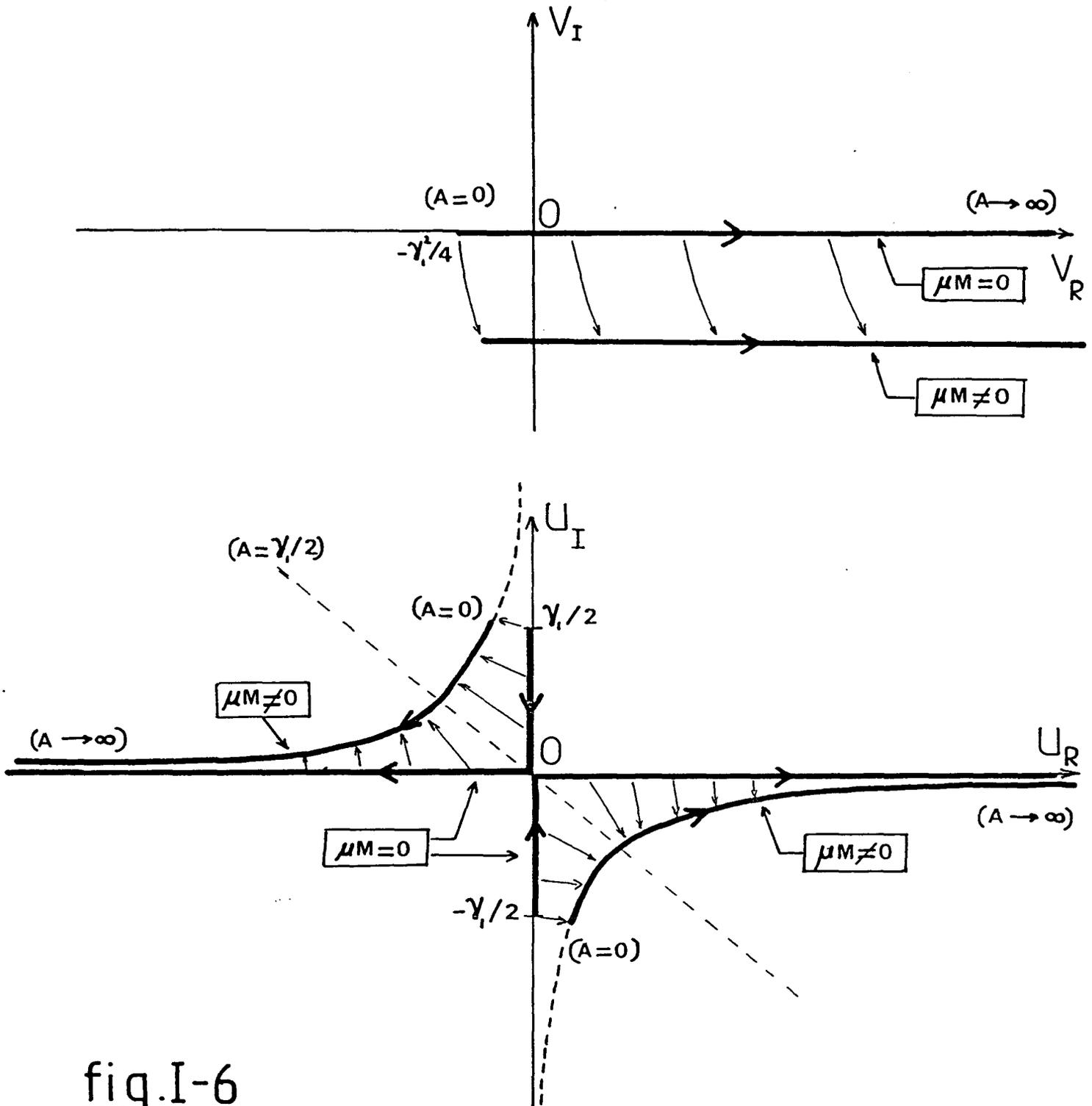


fig.I-6

Evolution du déplacement de fréquence complexe ( $u = \delta - \delta_i/2$ ) en fonction de l'importance du couplage ( $A$ ), selon que  $\mu M = 0$  ou  $\mu M \neq 0$ .

On a représenté le cas où  $\mu M \ll 1$ : le déplacement de fréquence est maximal pour  $A = \gamma_i/2$  ("couplage critique").

$$\begin{cases} v_R = u_R^2 - u_i^2 \approx A^2 - \gamma_i^2/4 \\ v_i/2 = u_R \cdot u_i \approx -\mu M \gamma_i^2/4 \end{cases} \quad (\text{éq. I-40})$$

En présence d'inhomogénéités du champ magnétique statique, les deux modes couplés  $M_+$  et  $X_+$  ne sont plus des modes propres. Si nous appelons  $\delta^{(1)}$  et  $\delta^{(2)}$  les deux solutions de l'équation (I-37),  $U^{(1)}$  et  $U^{(2)}$  les modes correspondants, nous pouvons écrire par exemple, en résolvant le système (I-34) :

$$\left\{ \begin{array}{l} U^{(1)} = (M_+) + \frac{\delta^{(1)}}{A} (X_+) \\ U^{(2)} = (M_+) + \frac{\delta^{(2)}}{A} (X_+) \end{array} \right. \quad (\text{I-41})$$

$M_+$  est dans ces conditions une combinaison linéaire de  $U^{(1)}$  et  $U^{(2)}$ ; son évolution ne peut plus être décrite à l'aide d'une seule fréquence et d'un seul taux d'amortissement.

Le modèle simple présenté dans ce paragraphe a permis de montrer l'effet des variations spatiales du champ magnétique statique lorsqu'on sort de l'approximation des faibles inhomogénéités : le spectre en fréquences de l'évolution de la partie homogène de l'aimantation est sensiblement modifié et enrichi.

## II - COUPLAGE ENTRE L'AIMANTATION TRANSVERSALE ET LE CIRCUIT DE DETECTION

Pour la mise en évidence expérimentale des ondes de spin, nous avons décrit au chapitre I une méthode qui repose sur l'étude de l'évolution temporelle de l'aimantation transversale créée dans l'échantillon de  $^3\text{He}$  gazeux. Concrètement, nous utilisons une technique usuelle de résonance magnétique nucléaire pulsée (RMN) : le signal étudié est la différence de potentiel induite aux bornes du circuit électrique de détection par la précession de l'aimantation transversale dans un champ magnétique statique. Il est connu que le couplage inductif entre les spins et le circuit, qui est à l'origine du signal observé, s'accompagne d'une modification de la précession de l'aimantation transversale. Ceci constitue une source possible d'erreur systématique pour les expériences envisagées. Dans ce chapitre, nous analysons donc quantitativement ce phénomène. Nous examinons d'abord le cas du couplage faible, où il se produit à la fois un déplacement de fréquence et une modification de l'amortissement dans l'évolution de l'aimantation transverse; nous donnons une expression de ces modifications en fonction des différents paramètres caractéristiques du système. Nous étudions ensuite le cas d'un couplage quelconque; une résolution approchée des équations couplées qui décrivent l'évolution du système permet de déterminer l'évolution de l'aimantation. Pour un couplage suffisamment fort, il apparaît l'effet maser, dont nous pouvons obtenir les principales caractéristiques (seuil d'accrochage, niveaux stationnaires d'oscillation et stabilité).

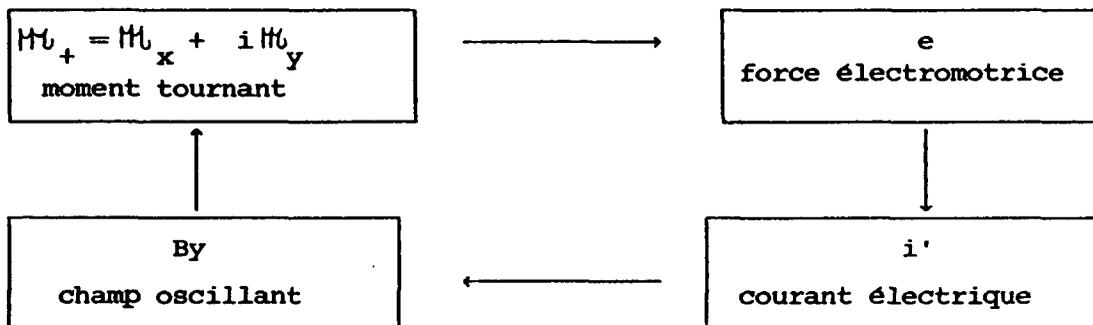
### II-A. ORIGINE PHYSIQUE DU COUPLAGE

Pour étudier l'évolution temporelle de la composante transversale de l'aimantation dans un champ magnétique statique  $\vec{B}_0$ , on place la cellule qui contient les atomes de  $^3\text{He}$  à l'intérieur d'une bobine d'induction, d'axe perpendiculaire à  $\vec{B}_0$ . Cette bobine est reliée à un condensateur : sa capacité est choisie pour que le circuit oscillant formé résonne à une fréquence voisine de la fréquence de Larmor. La précession des spins autour de  $\vec{B}_0$  induit une force électromotrice dans le circuit, et le signal

déecté est la différence de potentiel qui en résulte aux bornes de la bobine réceptrice.

Le courant électrique qui circule alors dans le circuit produit, à son passage dans l'inductance, un champ magnétique dirigé selon son axe. Ce champ alternatif agit sur la composante longitudinale de l'aimantation nucléaire et provoque l'apparition d'une petite composante transversale supplémentaire.

Les différentes étapes de ce processus sont représentés ci-dessous à l'aide d'un schéma de réaction avec bouclage.



Les paragraphes qui suivent sont consacrés à l'étude de ce couplage, et en particulier à ses effets sur la précession de  $M_+$ .

## II-B. DESCRIPTION THEORIQUE DU PHENOMENE

### II-B-1) Equations d'évolution du circuit électrique

La figure I-7-a indique schématiquement la géométrie du système ainsi que le choix d'axes adopté. Dans notre modèle, le circuit de détection est représenté par une inductance pure L, une capacité d'accord C et une résistance R adjointes en parallèle. La résistance R modélise les pertes du circuit réel.

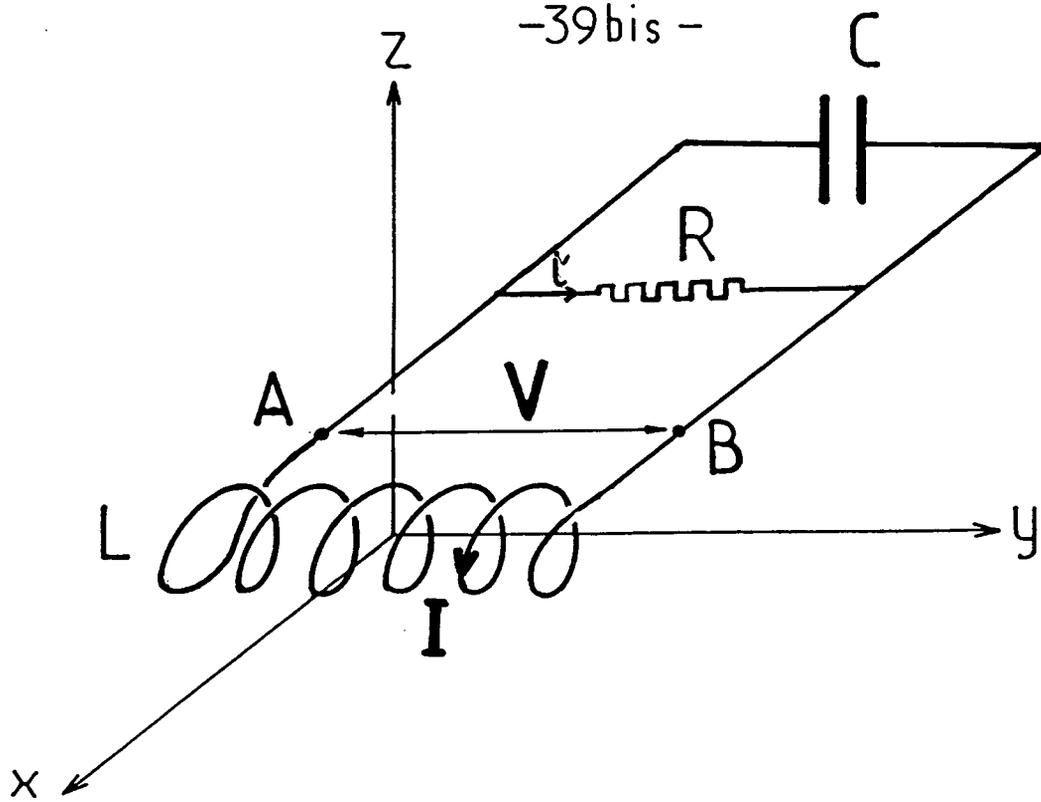


fig.I-7a

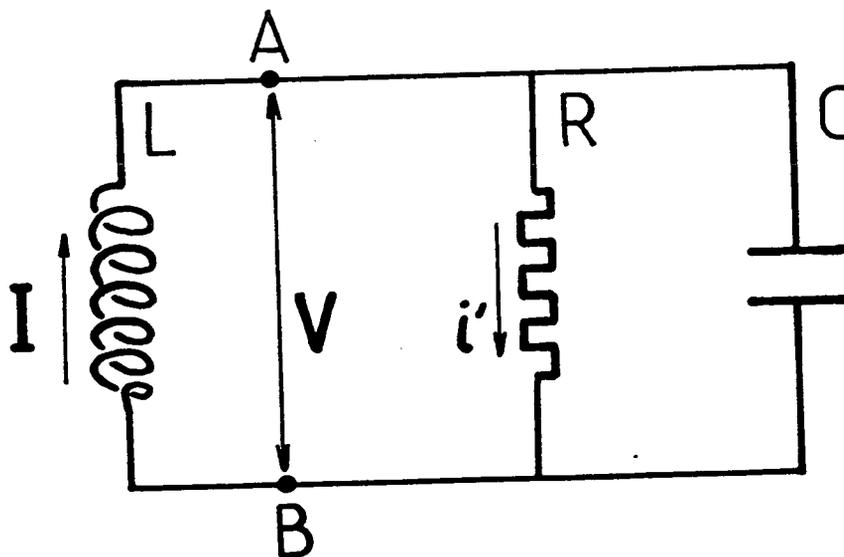


fig.I-7b

Considérons d'abord le circuit électrique en l'absence de la cellule. Avec les notations et les orientations indiquées sur la figure I-7b, l'évolution temporelle du circuit est décrite par les deux équations suivantes:

$$\begin{cases} v = v_A - v_B = -L \frac{dI}{dt} = \frac{Q}{C} \\ \frac{dv}{dt} = \frac{(I-i')}{C} = \frac{1}{C} \left( I - \frac{v}{R} \right) \end{cases} \quad (\text{I-42})$$

Nous pouvons donc écrire :

$$\begin{pmatrix} \frac{dI}{dt} \\ \frac{dv}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -1/L \\ \frac{1}{C} & -\frac{1}{RC} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I \\ v \end{pmatrix} = (\mathcal{A}) \begin{pmatrix} I \\ v \end{pmatrix} \quad (\text{I-43})$$

Les valeurs propres  $\lambda$  de la matrice  $(\mathcal{A})$  sont solutions de :

$$\lambda^2 + \frac{\lambda}{RC} + \frac{1}{LC} = 0 \quad (\text{I-44})$$

Si nous posons:

$$\Omega^2 = \frac{1}{LC}, \quad \Gamma = \frac{1}{2RC} \quad \text{et} \quad Q = \frac{\Omega}{\Gamma} = 2R \sqrt{\frac{C}{L}},$$

(I-45) peut se mettre sous la forme suivante :

$$(\lambda + \Gamma)^2 + \Omega^2 - \Gamma^2 = 0 \quad (\text{I-45})$$

Dans ces conditions, deux cas sont à distinguer :

- circuit peu amorti ( $Q > 1$ ) :

$\lambda = -\Gamma \pm i\Omega \sqrt{1 - 1/Q^2}$ , ce qui correspond à un régime oscillant amorti

- circuit très amorti ( $Q < 1$ )

$\lambda = -\Gamma \pm \Omega \sqrt{1 - Q^2}$ , ces valeurs propres de partie imaginaire nulle décrivent un régime purement amorti, c'est-à-dire sans oscillation.

En présence de la cellule, il faut ajouter la contribution du système de spins : il existe une force électromotrice induite par la variation temporelle du flux magnétique capté par la bobine. Son effet est directement proportionnel à la variation  $dM_y/dt$  de la projection du moment

magnétique des spins sur l'axe de l'inductance. Le système (I-42) doit être remplacé par :

$$\begin{cases} v = -L \frac{dI}{dt} + \beta \frac{dM_y}{dt} \\ \frac{dv}{dt} = \frac{1}{C} \left( I - \frac{v}{R} \right) \end{cases} \quad (\text{I-46})$$

Le coefficient de couplage  $\beta$  introduit ici est proportionnel au nombre de tours de la bobine et dépend de ses caractéristiques géométriques.

### II-B-2) Equations d'évolution des spins nucléaires

Nous supposons ici que l'orientation nucléaire est homogène sur toute l'étendue de la cellule sphérique qui contient les atomes de  $^3\text{He}$ . L'ensemble des spins nucléaires peut alors être décrit par le vecteur aimantation totale  $\vec{M}$ , uniforme et placé au centre de la cellule, dont l'évolution au cours du temps résulte de la composition de 3 contributions :

- la relaxation de l'aimantation : elle s'effectue avec un temps caractéristique :

$$T_2 = 1/\gamma_2 \text{ pour la composante transversale}$$

$$T_1 = 1/\gamma_1 \text{ pour la composante longitudinale}$$

- Le maintien en permanence du pompage, au cours de l'expérience, qui introduit un terme source constant.

- L'action du champ magnétique total  $\vec{B}$ . Il comprend une partie statique  $\vec{B}_0$ , supposée uniforme et qui définit l'axe Oz (fig I-7a), et une partie variable  $\vec{B}_y$ , produite par le courant I qui circule dans l'inductance L. A l'aide de  $\gamma$ , facteur gyromagnétique nucléaire d'un atome d'hélium 3, nous définissons :

$$\omega_0 = -\gamma B_0 \quad \text{et} \quad \omega_1 = -\gamma B_y \quad (\text{I-47})$$

Puisque  $B_y$  est directement proportionnel à I, nous pouvons écrire :

$$\omega_1(t) = -\gamma B_y(t) = \alpha I(t) \quad (\text{I-48})$$

Le second coefficient de couplage  $\alpha$  introduit ici est, comme  $\beta$ , propor-

tionnel au nombre de tours de la bobine réceptrice.

Dans ces conditions, l'équation qui régit l'évolution temporelle de  $\vec{M}$  est :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma (\vec{M} \times \vec{B}) - \gamma_2 (M_x \vec{x} + M_y \vec{y}) + \gamma_1 (M_0 - M_z) \vec{z} \quad (\text{I-49})$$

Elle équivaut aux 3 équations scalaires ci-dessous :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} M_z = -\gamma_1 M_z - \omega_1 M_x + \gamma_1 M_0 \\ \frac{d}{dt} M_x = \omega_1 M_z - \gamma_2 M_x - \omega_0 M_y \\ \frac{d}{dt} M_y = \omega_0 M_x - \gamma_2 M_y \end{array} \right. \quad (\text{I-50})$$

Remarque:

En l'absence de couplage avec le circuit ( $\alpha = 0 = \omega_1$ ),  $M_z$  se découple et le système des deux équations en  $M_x$  et  $M_y$  est linéaire. Les valeurs propres associées sont solutions de l'équation caractéristique:

$$(\lambda + \gamma_2)^2 + \omega_0^2 = 0 \quad (\text{I-51})$$

Elles s'écrivent  $\lambda_{\pm} = -\gamma_2 \pm i\omega_0$  et sont associées aux vecteurs propres  $M_{\pm} = M_x \pm i M_y$ . On retrouve ici la simple précession de l'aimantation transversale à la fréquence de Larmor  $\omega_0$  autour du champ magnétique statique, amortie en  $1/T_2$  par la relaxation nucléaire.

### II-B-3) Evolution du système total

On déduit immédiatement des paragraphes (II-B-1) et (II-B-2) que l'évolution temporelle du système total peut en définitive être décrite par un système de cinq équations différentielles du premier ordre, non-linéaires et couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} M_z = -\gamma_1 M_z - \alpha I M_x + \gamma_1 M_0 \\ \frac{d}{dt} M_x = -\gamma_2 M_x - \omega_0 M_y + \alpha I M_z \\ \frac{d}{dt} M_y = -\gamma_2 M_y + \omega_0 M_x \\ \frac{d}{dt} I = -\frac{\beta \gamma_2}{L} M_y + \frac{\beta \omega_0}{L} M_x - \frac{V}{L} \\ \frac{d}{dt} V = \frac{I}{C} - \frac{V}{RC} \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(I-52a)} \\ \text{(I-52b)} \\ \text{(I-52c)} \\ \text{(I-52d)} \\ \text{(I-52e)} \end{array}$$

Nous ne nous intéressons qu'à l'évolution de  $\vec{M}$ . Nous commençons par déterminer une solution approchée des équations (I-52) dans le cas où le couplage entre  $\vec{M}$  et le circuit électrique est faible (§ II-C), nous étudions ensuite le cas plus général d'un couplage de force quelconque (§ II-D).

### II-C. CAS DU COUPLAGE FAIBLE

#### II-C-1) Linéarisation des équations

Dans cette partie, nous allons étudier le cas où l'aimantation transversale est très petite par rapport à l'aimantation longitudinale, et faiblement couplée au circuit de détection.

Pour cela, nous effectuons un développement linéaire au voisinage de l'état  $M_z = M_0$ ,  $M_x = M_y = 0$ ,  $I = 0$  et  $V = 0$ . Au premier ordre en  $M_x$ ,  $M_y$ ,  $I$  et  $V$ , le système (I-52) se réduit à :

$$\left[ \begin{array}{l} \frac{d\mathcal{M}_z}{dt} \approx -\gamma_1 \mathcal{M}_z + \gamma_1 \mathcal{M}_0 \\ \frac{d\mathcal{M}_x}{dt} \approx -\gamma_2 \mathcal{M}_x - \omega_0 \mathcal{M}_y + \alpha \mathcal{M}_0 \\ \frac{d\mathcal{M}_y}{dt} = -\gamma_2 \mathcal{M}_y + \omega_0 \mathcal{M}_x \\ \frac{dI}{dt} = \frac{\beta\omega_0}{L} \mathcal{M}_x - \frac{\beta\gamma_2}{L} \mathcal{M}_y - \frac{V}{L} \\ \frac{dV}{dt} = \frac{I}{C} - \frac{V}{RC} \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(I-53a)} \\ \text{(I-53b)} \\ \text{(I-53c)} \\ \text{(I-53d)} \\ \text{(I-53e)} \end{array}$$

Nous constatons immédiatement que  $\mathcal{M}_z$  se découple des autres variables. Les quatre autres équations forment un système linéaire. La matrice 4x4 qui lui est associée s'écrit :

$$(\mathcal{A}') = \begin{pmatrix} \mathcal{M}_x & \mathcal{M}_y & I & V \\ -\gamma_2 & -\omega_0 & \alpha & 0 \\ \omega_0 & -\gamma_2 & 0 & 0 \\ \frac{\beta\omega_0}{L} & -\frac{\beta\gamma_2}{L} & 0 & -1/L \\ 0 & 0 & 1/C & -\frac{1}{RC} \end{pmatrix}$$

L'équation aux valeurs propres pour la matrice  $(\mathcal{A}')$  s'en déduit aisément. Elle peut se mettre sous la forme suivante :

$$\{ (\lambda + \gamma_2)^2 + \omega_0^2 \} \{ (\lambda + \Gamma)^2 + \Omega^2 - \Gamma^2 \} - \frac{\alpha\beta}{L} \omega_0 \mathcal{M}_0 \lambda (\lambda + 2\Gamma) = 0 \quad \text{(I-54)}$$

Nous avons fait apparaître le produit de deux facteurs où l'on reconnaît les déterminants caractéristiques de chacun des deux sous-systèmes. En l'absence de couplage (i.e. pour  $\alpha = 0 = \beta$ ), nous retrouvons bien leurs valeurs propres respectives (solutions de (I-51) et (I-45) comme solutions de l'équation (I-54).

## II-C-2) Effets du couplage sur l'évolution de $\mathcal{M}_+$

L'évolution de la petite composante transversale  $\mathcal{M}_+$  représentée par  $\mathcal{M}_x$  et  $\mathcal{M}_y$  (avec  $\mathcal{M}_+ = \mathcal{M}_x + i \mathcal{M}_y$ ) est, dans l'approximation d'un couplage faible, associée à une valeur propre :

$$\lambda = -\gamma_2 + i\omega_0 + \epsilon$$

où  $\epsilon$  décrit l'écart du 1er ordre à la valeur propre en l'absence de toute réaction du circuit. L'équation (I-54) s'écrit au premier ordre en  $\epsilon$  et  $\alpha\beta$ :

$$0 = \epsilon \cdot 2i \left\{ (\Gamma - \gamma_2 + i\omega_0)^2 + \Omega^2 - \Gamma^2 \right\} - \frac{\alpha\beta \mathcal{M}_0}{L} (i\omega_0 - \gamma_2)(2\Gamma - \gamma_2 + i\omega_0)$$

(I-55)

Nous en déduisons l'expression suivante pour l'écart  $\epsilon$  :

$$\epsilon \approx \frac{\alpha\beta \mathcal{M}_0}{2L} \frac{(2\Gamma - \gamma_2 + i\omega_0)(i\omega_0 - \gamma_2)}{-2\omega_0(\Gamma - \gamma_2) + i\left\{ \Omega^2 - \Gamma^2 + (\Gamma - \gamma_2)^2 - \omega_0^2 \right\}}$$

(I-56)

Le couplage avec le circuit électrique produit donc deux effets simultanés sur l'évolution de la composante transversale  $\mathcal{M}_+$  :

- un déplacement en fréquence ("frequency-pulling")

$$\delta\omega = \text{Im}(\epsilon) = -\frac{\alpha\beta}{2L} \mathcal{M}_0 \frac{(\omega_0^2 + \Gamma^2 + (\Gamma - \gamma_2)^2 - \Omega^2/2)^2 + 4(\Gamma - \gamma_2)^2(\Omega^2/2 - \Gamma^2) - \Omega^4/4}{(\Omega^2 - \Gamma^2 - (\Gamma - \gamma_2)^2 - \omega_0^2)^2 + 4(\Gamma - \gamma_2)^2(\Omega^2 - \Gamma^2)}$$

(I-57)

- une variation du taux d'amortissement ("radiation-damping")

$$-\frac{1}{\tau} = \text{Re}(\epsilon) = \frac{\alpha\beta}{2L} \mathcal{M}_0 \frac{2(\Gamma - \gamma_2)\Omega^2\omega_0}{(\Omega^2 - \Gamma^2 - (\Gamma - \gamma_2)^2 - \omega_0^2)^2 + 4(\Gamma - \gamma_2)^2(\Omega^2 - \Gamma^2)}$$

(I-58)

Ces expressions se simplifient un peu lorsque la fréquence de résonance propre du circuit est égale à la fréquence de Larmor :

$$\delta\omega_{(\Omega=\omega_0)} = - \frac{\alpha\beta}{2L} \mathcal{M}_0 \frac{\omega_0^2 (\Gamma^2 + 3(\Gamma-\gamma_2)^2) + [\Gamma^2 - (\Gamma-\gamma_2)^2]}{[\Gamma^2 + (\Gamma-\gamma_2)^2]^2 + 4(\Gamma-\gamma_2)^2(\omega_0^2 - \Gamma^2)} \quad (\text{I-59})$$

$$-\frac{1}{\tau} (\Omega = \omega_0) = \frac{\alpha\beta}{2L} \mathcal{M}_0 \frac{2(\Gamma - \gamma_2) \omega_0^3}{[\Gamma^2 + (\Gamma - \gamma_2)^2]^2 + 4(\Gamma - \gamma_2)^2 (\omega_0^2 - \Gamma^2)}$$

Si, de plus, le circuit électrique a un temps de réponse caractéristique  $\Delta t = 1/\Gamma$  court devant  $T_2$  (soit  $\Gamma \gg \gamma_2$ ), nous obtenons simplement :

$$\delta\omega = - \frac{\alpha\beta}{2L} \mathcal{M}_0 \quad \text{et} \quad -\frac{1}{\tau} = \frac{\alpha\beta}{2L} \cdot \frac{Q}{2} \mathcal{M}_0 \quad (\text{I-60})$$

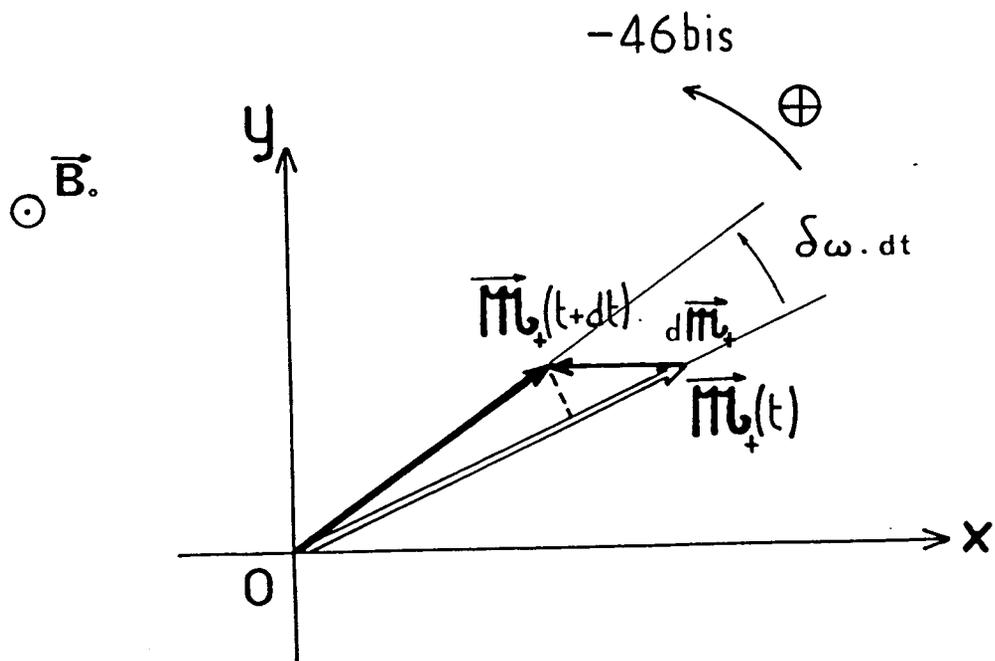
Nous pouvons remarquer dans ce cas limite, si le circuit est peu amorti ( $Q \gg 1$ ), que la variation du taux d'amortissement est plus importante que le déplacement de fréquence, puisqu'ils sont dans un rapport  $Q/2$ .

### II-C-3) Interprétation des résultats obtenus

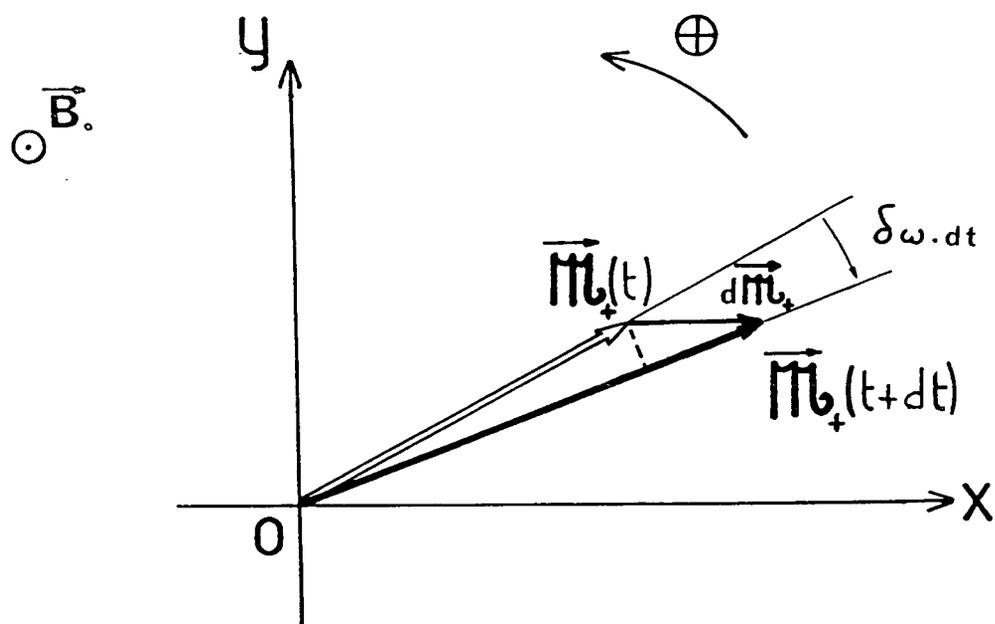
Dans les calculs développés ci-dessus, nous avons traité la réaction du circuit électrique sur les spins à l'ordre un. Il est donc naturel d'obtenir à la fin un effet proportionnel aux coefficients de couplage.

La propriété la plus remarquable des résultats finals est la présence de l'aimantation longitudinale ( $\mathcal{M}_z \approx \mathcal{M}_0$ ) en facteur, pour les corrections à  $\omega_0$  et  $\gamma_2$  : l'effet du couplage est impair en  $\mathcal{M}_0$ , c'est-à-dire qu'il dépend de l'orientation de l'aimantation longitudinale par rapport au champ magnétique statique  $\vec{B}_0$ . On peut facilement comprendre l'origine de cette dépendance à l'aide des deux schémas tracés sur la figure I-8. Nous y avons représenté la variation élémentaire d'aimantation transversale,  $d\mathcal{M}_+$  qui résulte de l'action du champ induit  $B_y(t)$  sur  $\mathcal{M}_0$ : on a :

$$d\vec{\mathcal{M}}_+ = -\gamma\vec{B}_y \times \vec{\mathcal{M}}_0 \, dt = |\gamma| B_y \mathcal{M}_0 \vec{x} dt. \text{ Le sens de } B_y \text{ par rapport à } \mathcal{M}_y$$



Avance de phase ( $\delta\omega > 0$ ) et diminution du module ( $-1/T_2 < 0$ )



Retard de phase ( $\delta\omega < 0$ ) et augmentation du module ( $-1/T_2 > 0$ )

fig. I-8

Illustration de l'effet du couplage avec le circuit de détection sur l'évolution temporelle de l'aimantation transverse.

dépend de la relation de phase entre  $dM_y/dt$  et  $B_y$  qui est introduite par le circuit. Pour un sens donné, il est bien clair que  $d\vec{M}_+ \cdot \vec{x}$  change de signe si  $M_0$  change de signe. Pour une des deux orientations de  $M_0$ , il se produit une avance de phase ( $\delta\omega > 0$ ) et une diminution de  $|M_+|$  (c'est-à-dire  $-1/\tau < 0$ ). Pour l'autre, il y a un retard de phase ( $\delta\omega < 0$ ) et une augmentation du module de l'aimantation transverse ( $-1/\tau > 0$ ). A cause du couplage il se crée, au cours de la précession de  $M_+$ , de l'aimantation transverse à partir de la composante longitudinale: cet apport peut être destructif ou constructif selon l'orientation de  $M_z$ .

Lorsque l'apport est constructif, et que ce processus de réalimentation à partir de  $M_z$  (\*) est assez efficace pour compenser la relaxation transversale des spins, il s'établit un régime d'oscillation permanente: c'est l'effet maser. Le seuil correspond à  $1/\tau = -1/T_2$  où  $1/\tau$  est donné par (I-58) si la condition de couplage faible est réalisée. Pour décrire l'oscillation au-delà de son accrochage, il faut conserver les termes non linéaires. C'est précisément ce qui est fait au paragraphe suivant.

## II-D CAS D'UN COUPLAGE QUELCONQUE : APPROXIMATION ADIABATIQUE

### II-D-1) Séparation des variables lentes et rapides

Dans ce chapitre, nous étudions l'évolution du système dans le cas où le couplage entre les spins et le circuit électrique est trop fort pour qu'un traitement au premier ordre soit justifiable. Une approche différente de celle qui a été présentée au (II-C) est suggérée par la comparaison des temps de réponse des deux sous-systèmes. Pour le circuit électrique, la constante de temps caractéristique d'évolution est donnée par  $\tau^{-1} = Q/\Omega$  où  $\Omega$  représente la fréquence propre de résonance du circuit (R, L, C) et Q son facteur de qualité. Pour les spins nucléaires, le temps de relaxation est

---

(\*) Rappelons ici que nous avons supposé l'existence d'une production extérieure constante d'aimantation longitudinale.

essentiellement déterminé par les inhomogénéités du champ statique au niveau de la cellule (son expression est alors celle indiquée au § I-C-1, relation (I-17)). Dans nos conditions expérimentales (présentées au chapitre III), plusieurs ordres de grandeur séparent ces deux constantes de temps, et nous pouvons écrire :

$$\Gamma \gg \gamma_2 \text{ et } \gamma_1 \quad (\text{I-61})$$

Nous pouvons donc nous attendre à ce que le circuit électrique "suive" de manière quasi-instantanée et adiabatique l'évolution temporelle de l'aimantation transversale nucléaire; le problème se ramène ainsi à la résolution d'équations ne faisant intervenir que les composantes de l'aimantation nucléaire.

Pour ce faire, nous commençons par éliminer  $V$  entre les équations (I-46). Nous obtenons une équation de couplage du second ordre en le courant  $I$ , ou encore  $B_y$  puisque ce champ oscillant lui est directement proportionnel ( $B_y = -\alpha I/\gamma$ ). Elle s'écrit :

$$\frac{d^2}{dt^2} B_y + 2\Gamma \frac{d}{dt} B_y + \Omega^2 B_y = A_1 \frac{d^2}{dt^2} \mathcal{M}_y + A_2 \frac{d}{dt} \mathcal{M}_y \quad (\text{I-62})$$

$A_1$  et  $A_2$  sont deux constantes liées aux coefficients de couplage et aux paramètres du système. Dans le cadre de notre modèle, nous avons :

$$A_1 = -\alpha\beta/\gamma L \quad \text{et} \quad A_2 = A_1/RC = 2\Gamma A_1 \quad (\text{I-63})$$

Il est plus commode à ce niveau de travailler avec des quantités complexes. Pour cela, nous écrivons :

$$\mathcal{M}_y = \text{Im} (\mathcal{M}_+) \text{ avec } \mathcal{M}_+(t) = \mathcal{M}_x(t) + i \mathcal{M}_y(t) \quad (\text{I-64})$$

De même, nous posons  $B_y(t) = \text{Im}(B(t))$ . En désignant par  $B_\omega$  (respectivement  $\mathcal{M}_\omega$ ) la composante de Fourier de  $B(t)$  (resp  $\mathcal{M}_+(t)$ ) à la pulsation  $\omega$ , l'équation (I-62) conduit à :

$$B_\omega = K(\omega) \mathcal{M}_\omega \quad \text{avec} \quad K(\omega) = A_1 \frac{-\omega^2 + 2i\Gamma\omega}{\Omega^2 - \omega^2 + 2i\omega\Gamma} \quad (\text{I-65})$$

où nous avons pris par définition :

$$B_{\omega} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} B(t) e^{-i\omega t} dt \quad (\text{I-66})$$

$$\mathcal{M}_{\omega} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{M}_{+}(t) e^{-i\omega t} dt$$

Le coefficient  $K(\omega)$  s'écrit encore, de manière équivalente :

$$K(\omega) = A_1 \left\{ 1 - \frac{\Omega^2}{\Omega^2 - \omega^2 + 2i\omega\Gamma} \right\} \quad (\text{I-67})$$

Pour un circuit amorti ( $Q > 1$ ), on peut définir  $\Omega_L = \sqrt{\Omega^2 - \Gamma^2} = \Omega(1 - 1/Q^2)^{1/2}$ , ce qui permet de réécrire (I-67) sous la forme suivante:

$$K(\omega) = A_1 \left[ 1 + \frac{\Omega^2}{2\Omega_L} \left( \frac{1}{\omega - i\Gamma - \Omega_L} - \frac{1}{\omega - i\Gamma + \Omega_L} \right) \right] \quad (\text{I-68})$$

Cette expression fait apparaître les quantités  $f_{\pm}(\omega) = (\omega - i\Gamma \pm \Omega_L)^{-1}$ , dont le module au carré est une lorentzienne centrée en  $\pm\Omega_L$ , de largeur à mi-hauteur  $2\Gamma$ . Dans la mesure où le spectre de  $\mathcal{M}_{+}(t)$  s'étend sur une plage de fréquences de largeur très petite devant  $\Gamma$ , nous pouvons y approximer  $K(\omega)$  par  $K$ , valeur prise à la fréquence centrale du spectre de  $\mathcal{M}_{+}(t)$ . Alors (I-65) devient :

$$B_{\omega} \approx K \mathcal{M}_{\omega} \quad (\text{I-69})$$

où  $K$  ne dépend plus explicitement de la pulsation  $\omega$ . Ceci conduit à :

$$B(t) = K \mathcal{M}_{+}(t) \quad (\text{I-70})$$

Nous obtenons effectivement une réponse du circuit qui reproduit fidèlement les variations temporelles de l'aimantation transverse.

## II-D-2) Evolution de l'aimantation nucléaire

Les équations d'évolution de  $\mathcal{M}_z$  et  $\mathcal{M}_{+}$  s'obtiennent directement à partir de (I-52) :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \mathbb{M}_z = \gamma_1 (\mathbb{M}_0 - \mathbb{M}_z) + \gamma_B^y \mathbb{M}_x \\ \frac{d}{dt} \mathbb{M}_+ = (-\gamma_2 + i\omega_0) \mathbb{M}_+ - \gamma_B^y \mathbb{M}_z \end{cases} \quad (\text{I-71})$$

Nous rappelons que  $\begin{cases} B_y = \text{Im}(B) = (B - B^*)/2i \\ \mathbb{M}_x = \text{Re}(\mathbb{M}_+) = (\mathbb{M}_+ + \mathbb{M}_+^*)/2 \end{cases}$

En introduisant les parties réelle ( $K_R$ ) et imaginaire ( $K_I$ ) du coefficient  $K$ , (I-71) peut se réécrire sous la forme :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \mathbb{M}_z = \gamma_1 (\mathbb{M}_0 - \mathbb{M}_z) + \frac{\gamma}{2} (K_I |\mathbb{M}_+|^2 + \text{Im}(K \mathbb{M}_+^2)) \\ \frac{d}{dt} \mathbb{M}_+ = (-\gamma_2 + i\omega_0) \mathbb{M}_+ - \gamma \mathbb{M}_z \text{Im}(K \mathbb{M}_+) \end{cases} \quad (\text{I-72})$$

Si maintenant  $\mathbb{M}_r$  désigne le module de l'aimantation transverse, et  $\varphi$  sa phase, nous écrivons :

$$\begin{cases} \mathbb{M}_+(t) = \mathbb{M}_r(t) e^{i\varphi(t)} \\ (\mathbb{M}_+)^* \frac{d}{dt} \mathbb{M}_+ = \left\{ \frac{d}{dt} \mathbb{M}_r + i \left( \frac{d\varphi}{dt} \right) \mathbb{M}_r \right\} \mathbb{M}_r \end{cases}$$

ce qui conduit (pour  $\mathbb{M}_r \neq 0$  (\*)) aux deux équations réelles :

$$\begin{cases} \frac{1}{\mathbb{M}_r} \frac{d \mathbb{M}_r}{dt} = -\gamma_2 - \frac{\gamma K_I}{2} \mathbb{M}_z - \frac{\gamma}{2} \frac{\mathbb{M}_z}{\mathbb{M}_r^2} \text{Im}(K \mathbb{M}_+^2) \\ \frac{d}{dt} \varphi = \omega_0 + \frac{\gamma K_R}{2} \mathbb{M}_z - \frac{\gamma \mathbb{M}_z}{2 \mathbb{M}_r^2} \text{Re}(K \mathbb{M}_+^2) \end{cases}$$

(\*) Une solution triviale des équations d'évolution est  $\mathbb{M}_+ = 0$  et  $\mathbb{M}_z = 0$ , ce qui correspond à une aimantation longitudinale pure (équilibre de pompage maximal).

En négligeant les termes "non séculaires" qui oscillent rapidement (c'est-à-dire ici au double de la fréquence moyenne des spins), l'évolution de l'aimantation est finalement décrite par les trois équations différentielles non linéaires couplées ci-dessous :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} M_z = \gamma_1 (M_0 - M_z) + \frac{\gamma K_I}{2} M_r^2 \\ \frac{1}{M_r} \frac{d}{dt} M_r = -\gamma_2 - \frac{\gamma K_I}{2} M_z \\ \frac{d}{dt} \varphi = \omega_0 + \frac{\gamma K_R}{2} M_z \end{array} \right. \quad (\text{I-73})$$

Ce système d'équations permet de décrire quantitativement les effets de la réaction du circuit lorsque les constantes de temps de ce dernier sont courtes devant celles du système de spins.

Remarque:

Dans le cas du couplage faible (où  $M_z(t) \approx M_0$ , et  $\omega = \dot{\varphi} = \text{cste}$  avec  $\omega - \omega_0 \ll \omega_0$ ,  $\omega$ ), nous pouvons vérifier que les équations (I-73) conduisent à un déplacement de fréquence et à un taux d'amortissement identiques à ceux obtenus au paragraphe II-C (en effectuant le passage à la limite  $\Gamma \gg \gamma_2$  dans les expressions I-57 et 58).

II-D-3) Cas du couplage fort. Effet maser

II-D-3a) Condition de seuil

A partir de la condition initiale  $M_z(t=0) = M_0$  et  $M_r(t=0) = M_r^0$  quelconque, il y a "accrochage" si  $dM_r/dt \geq 0$ , c'est-à-dire si:

$$-\gamma K_I M_0 \geq 2\gamma_2 \quad (\text{I-74})$$

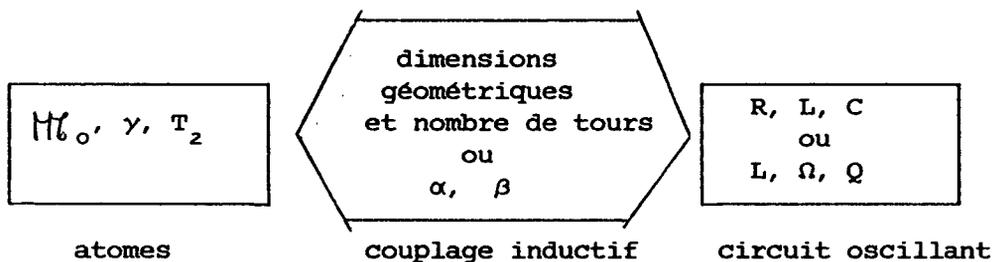
Dans le cas d'un circuit (R, L, C) résonnant au voisinage de la fréquence moyenne de précession des spins, on a :

$$K \approx - \frac{\alpha\beta}{\gamma L} \left( 1 + i \frac{Q}{2} \right)$$

et la condition de seuil devient simplement :

$$\frac{\alpha\beta}{2L} M_0 T_2 Q \geq 1 \quad (\text{I-75})$$

Physiquement, la condition de seuil traduit le fait que la réaction du circuit compense la relaxation spontanée de l'aimantation transverse (\*). Il est naturel d'y voir figurer explicitement les grandeurs et paramètres mis en jeu par le mécanisme de couplage, comme l'illustre le schéma ci-dessous:



#### II-D-3b) Niveaux stationnaires d'oscillation

Le système d'équations (I-73) admet une solution stationnaire non triviale déterminée par  $d M_z/dt = d M_r/dt = 0$  à tout instant. Elle correspond à :

$$M_z = - \frac{2\gamma_2}{\gamma K_I} = M_0 \text{ seuil} \quad \text{et} \quad M_r^2 = - \frac{2\gamma_1}{\gamma K_I} \left( M_0 + \frac{2\gamma_2}{\gamma K_I} \right) \quad (\text{I-76})$$

La fréquence d'oscillation est alors donnée par :

$$\omega = d\varphi/dt = \omega_0 - \gamma_2 K_R/K_I \quad (\text{I-77})$$

---

(\*) On peut d'ailleurs aussi obtenir la condition de seuil à l'aide d'un raisonnement énergétique, en écrivant que la puissance délivrée par les spins est supérieure ou égale à la puissance dissipée dans le circuit (c'est la démarche adoptée dans la référence [10], où est étudié le cas du couplage faible).

qui devient, dans le cas d'un circuit accordé :  $\omega \approx \omega_0 - 2\gamma_2/Q$ .

Le niveau et la fréquence d'oscillation dépendent étroitement des caractéristiques géométriques du circuit de détection utilisé et de sa surtension.

Supposons à présent que le système soit initialement dans l'état d'équilibre  $\mathcal{M}_z = \mathcal{M}_0$  et  $\mathcal{M}_r = 0$ . Si la condition de seuil est réalisée, l'oscillation maser peut être amorcée par la création d'une petite aimantation transversale: démarrage "spontané" à la suite d'une fluctuation du champ magnétique statique, ou "provoqué" par application d'une impulsion de champ radiofréquence résonnant. Une intégration numérique des équations montre que le régime stationnaire est atteint après une période transitoire d'autant plus courte qu'on s'est placé loin au-dessus du seuil. Pour étudier la stabilité du régime d'oscillation stationnaire, nous pouvons effectuer un développement linéaire autour de la solution considérée. La variation temporelle de la phase  $\varphi(t)$  se déduisant aisément à partir de  $\mathcal{M}_z(t)$ , nous nous attachons seulement à l'étude des deux premières équations du système (I-73). En utilisant des variables sans dimension définies par :

$$m_z = \mathcal{M}_z / \mathcal{M}_0 \text{ seuil} \quad , \quad m_r = \mathcal{M}_r / \mathcal{M}_0 \text{ seuil} \quad \text{et} \quad \tau = \gamma_2 t$$

nous obtenons après avoir posé  $m_0 = \mathcal{M}_0 / \mathcal{M}_0 \text{ seuil}$  :

$$\begin{cases} \frac{dm_z}{d\tau} = \frac{\gamma_1}{\gamma_2} (m_0 - m_z) - m_r^2 \\ \frac{dm_r}{d\tau} = -m_r + m_z m_r \end{cases} \quad (\text{I-78})$$

La solution stationnaire correspond à :

$$m_z = 1 \quad \text{et} \quad m_r^2 = \gamma_1 / \gamma_2 (m_0 - 1) \equiv (m_r^\infty)^2$$

ce qui conduit à définir de nouvelles variables :

$$\mu_z = m_z - 1 \quad \text{et} \quad \mu_r = m_r - \sqrt{\frac{\gamma_1}{\gamma_2} (m_0 - 1)} = m_r - m_r^\infty$$

solutions des équations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\mu_z}{d\tau} = -\frac{\gamma_1}{\gamma_2} \mu_z - 2m_r^\infty \mu_r - \mu_r^2 \\ \frac{d\mu_r}{d\tau} = \mu_z (m_r^\infty + \mu_r) \end{array} \right. \quad (\text{I-79})$$

Si nous nous limitons au premier ordre en  $\mu_r$  et  $\mu_z$ , il vient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\mu_z}{d\tau} \approx -\frac{\gamma_1}{\gamma_2} \mu_z - 2m_r^\infty \mu_r \\ \frac{d\mu_r}{d\tau} \approx m_r^\infty \mu_z \end{array} \right.$$

Nous en déduisons que  $\mu_z$  vérifie :

$$\frac{d^2}{d\tau^2} \mu_z + \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \frac{d}{d\tau} \mu_z + 2 \frac{\gamma_1}{\gamma_2} (m_o - 1) \mu_z = 0 \quad (\text{I-80})$$

L'équation caractéristique correspondante est :

$$p^2 + \frac{\gamma_1}{\gamma_2} p + 2 \frac{\gamma_1}{\gamma_2} (m_o - 1) = 0 \quad (\text{I-81})$$

Son discriminant vaut  $\Delta = \gamma_1/\gamma_2 (\gamma_1/\gamma_2 - 8 (m_o - 1))$ , ce qui nous conduit à distinguer deux cas :

1)  $(\gamma_1/\gamma_2) < 8 (m_o - 1)$  :  $\Delta$  est alors négatif, et les racines de l'équation (I-81) sont :

$$p_{\pm} = -\frac{\gamma_1}{2\gamma_2} \pm i \frac{\sqrt{-\Delta}}{2}$$

dont la partie réelle est toujours négative.

2)  $(\gamma_1/\gamma_2) > 8(m_0 - 1)$  les deux racines sont réelles et négatives:

$$p_{\pm} = -\frac{\gamma_1}{2\gamma_2} \left[ 1 \pm \left( 1 - \frac{8(m_0 - 1)}{\gamma_1/\gamma_2} \right)^{1/2} \right]$$

Ainsi, dans tous les cas les solutions de l'équation (I-80) sont de la forme  $\mu = \mu^0 e^{pt}$  avec  $\text{Re}(p) < 0$ ; cela signifie qu'une déviation faible par rapport à la solution stationnaire  $m_z = 1$  et  $m_r^2 = (m_r^0)^2$  est exponentiellement amortie avec une constante de temps caractéristique égale à  $1/\text{Re}(p)$ . Nous pouvons en conclure que la solution stationnaire des équations (I-78) considérée est stable dans le cadre de cette approche linéaire.

### III - MONTAGE EXPERIMENTAL

Nous décrivons dans ce chapitre le montage expérimental qui nous a permis de mettre en évidence l'existence d'ondes de spin dans  $^3\text{He}$  gazeux. Au moment où nous avons débuté cette étude, l'étape décisive que constituait la mise au point d'une technique efficace de préparation d'échantillon gazeux de  $^3\text{He}$  fortement polarisé à basse température venait d'être franchie. Ceci correspond en grande partie au travail de thèse de P.J. Nacher [5] : étude détaillée du processus d'orientation par pompage optique laser (cinétique de pompage, influence des conditions expérimentales), et développement de la technique des doubles cellules scellées permettant le transfert de polarisation nucléaire à basse température. Aussi, nous renvoyons à la référence [5] pour une discussion du principe et de la mise en oeuvre de cette méthode de préparation. Et nous nous limitons dans le premier paragraphe à une description rapide de la technique employée, qui permet d'aborder plus aisément la représentation des diverses parties du montage expérimental (cellules, cryostat et bobines de champ magnétique statique).

#### III - A. PREPARATION D'UN GAZ DE $^3\text{He}$ POLARISE A BASSE TEMPERATURE

##### III-A-1) Pompage optique de $^3\text{He}$

Dans l'ensemble de nos expériences, la polarisation nucléaire des atomes de  $^3\text{He}$  est obtenue par pompage optique "indirect" via le niveau métastable  $2^3\text{S}_1$ , selon la méthode mise au point par F.D. Colegrove, L.D. Schearer et G.K. Walters [11]. Les principales étapes de cette méthode sont les suivantes. Dans la cellule qui contient les atomes de  $^3\text{He}$ , on entretient une décharge faible qui peuple divers états excités, dont le niveau métastable  $2^3\text{S}_1$ . La cellule est éclairée par la raie à  $1,08\mu$  qui correspond à la transition entre le niveau  $2^3\text{S}_1$  et le niveau  $2^3\text{P}$ . Le faisceau de pompage est dirigé parallèlement au champ magnétique de quelques Gauss

dans lequel est placée la cellule, et la lumière est polarisée circulairement. On crée ainsi une orientation électronique dans les niveaux  $2^3S$  et  $2^3P$ . Par couplage hyperfin, il en résulte une orientation nucléaire, qui est transférée au niveau fondamental ( $1^1S_0$ ) lors des collisions d'échange de métastabilité.

### III-A-2) Dispositif laser - Performances

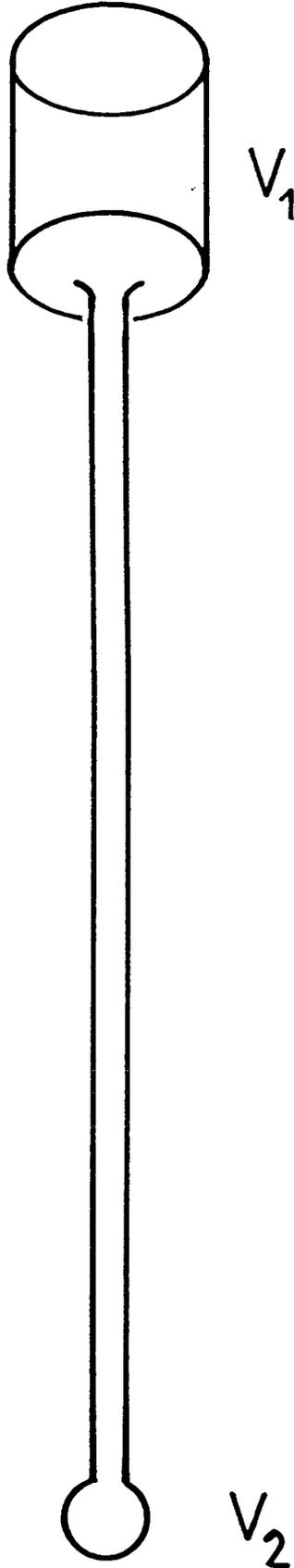
Le faisceau à  $1,08\mu$  est produit par un laser à centres colorés ( $F_2^{+*}$  dans NaF) [12a] mis au point à l'ENS [12b]. Il est accordable entre  $1,0\mu$  et  $1,2\mu$ , et fournit une puissance de quelques centaines de milliwatts. Il est pompé par un laser à colorant (HITC), qui délivre couramment 1 Watt à  $\lambda = 890\text{nm}$ , lui-même excité par un laser de puissance à krypton ionisé (4.5 à 6W sur les raies rouges). Il permet d'atteindre jusqu'à 60 à 70% de polarisation nucléaire de  $^3\text{He}$  à température ambiante pour une puissance laser de 400mW à  $1,08\mu$ . Par contre, il est difficile de dépasser quelques pour cent autour de 1K. En effet, l'efficacité du cycle de pompage est fortement réduite à basse température, où les sections efficaces d'échange de métastabilité sont beaucoup plus faibles [13]. La technique des doubles cellules présentée au paragraphe suivant permet d'obtenir néanmoins des taux de polarisation élevés aux températures cryogéniques.

### III-A-3) Les doubles cellules

La méthode mise au point pour préparer un gaz de  $^3\text{He}$  fortement polarisé à basse température utilise une cellule scellée à deux volumes. Dans le premier (noté  $V_1$ ), qui reste à température ambiante, les atomes de  $^3\text{He}$  sont soumis au pompage optique. Ils diffusent à travers un tube de verre vers le second volume (noté  $V_2$ ) qui est maintenu à la température souhaitée et où s'effectuent les mesures.

Les performances de ce procédé sont fondamentalement limitées par la relaxation de l'orientation nucléaire dans la cellule. Les phénomènes dominants à ce niveau [5] sont :

- 1) La relaxation en volume causée par l'inhomogénéité du champ



Vue d'ensemble d'une double cellule  
utilisée pour le pompage  
optique de  $^3\text{He}$ .

fig.I-9

magnétique statique ([8], [15]). Elle doit être réduite par l'emploi d'un champ magnétique suffisamment homogène sur toute l'étendue de la cellule, y compris le long du tube d'échange entre  $V_1$  et  $V_2$ . Le paragraphe III-C est consacré à la description du dispositif conçu pour satisfaire cette condition.

2) La relaxation sur la paroi dans la région froide de la cellule. L'emploi d'un enduit d'hydrogène moléculaire solidifié sur les parois internes [14] permet de réduire considérablement l'effet de la paroi froide, à condition de contrôler soigneusement la carte des températures sur la cellule, comme nous le verrons au paragraphe III-B.

L'évolution de l'aimantation dans  $V_1$  et  $V_2$  résulte de l'effet conjugué des contraintes imposées localement (pompage ou relaxation) : à l'équilibre, la fraction du taux d'orientation (obtenu dans  $V_1$ ) transférée dans  $V_2$  est d'autant plus faible que le temps de relaxation dans  $V_2$  est court [16]. D'autre part, le temps nécessaire à la construction de l'orientation dans  $V_2$  dépend aussi, en l'absence de toute relaxation, de la rapidité avec laquelle s'effectue l'échange d'atomes entre  $V_1$  et  $V_2$ . On peut montrer [5] que le temps caractéristique  $T_0$  pour qu'un atome issu de  $V_2$  arrive par diffusion dans  $V_1$  est donné à 4.2K par :

$$T_0 \approx 0.83 p \frac{v_2 \ell_2}{d^2} \quad (p \text{ en torr, longueurs en cm})$$

où  $\ell_2$  est la longueur de la partie froide du tuyau (impédance dominante) et  $d$  son diamètre intérieur. Ainsi, à une pression de 1 torr, si  $V_2 = 10\text{cm}^3$ ,  $\ell_2 = 10\text{cm}$  et  $d = 0,3\text{cm}$ ,  $T_0$  est de l'ordre de 15 minutes. Il nous faut donc une heure (plusieurs fois  $T_0$ ) pour atteindre un taux d'orientation stationnaire dans  $V_2$ . Celui-ci est égal au taux d'orientation dans  $V_1$  si la condition  $T_0 < T_1$  est remplie, ce qui est expérimentalement le cas à  $T \geq 3\text{K}$ .

L'efficacité du transfert de polarisation peut être directement mesurée : la polarisation obtenue dans  $V_1$  est déterminée optiquement (\*) tandis que celle atteinte dans  $V_2$  est mesurée radioélectriquement (dispositif RMN décrit au § IV). Lorsque l'enduit d'hydrogène est "réussi", le taux d'orientation dans  $V_2$  est très proche de celui de  $V_1$ .

Nous pouvons ainsi disposer de polarisation de 50% au plus, avec des densités de l'ordre de  $10^{18}$  atomes/cm<sup>3</sup>. Ceci constitue un autre avantage des doubles cellules. En effet, la pression dans la cellule est conditionnée par l'efficacité du pompage optique (optimale vers 0.3 torr à 300K). La densité du gaz froid polarisé est bien plus élevée dans une double cellule que dans une cellule pompée directement à basse température.

### III-B. CELLULES ET CRYOSTAT

#### III-B-1) Cellules

La figure I-9a présente une vue d'ensemble d'une double cellule utilisée pour le pompage optique de <sup>3</sup>He. Le volume  $V_1$  est un cylindre vertical de 5cm de diamètre et 11cm de hauteur. Le volume  $V_2$  est une boule de 1,5 à 2cm de diamètre. Cette dimension correspond à un bon compromis entre la réduction du diamètre, nécessaire pour réduire la relaxation en volume (plus le volume exploré par les atomes est grand, plus les inhomogénéités du champ subies sont a priori importantes), et son augmentation afin de limiter l'importance des effets de la paroi relaxante à basse température (le rapport surface/volume varie en  $1/R$  si R

---

(\*) De manière maintenant classique [17][18], cette mesure s'effectue par détection de la polarisation circulaire de la raie  $3^1D-2^1D$  à  $\lambda=6678\text{\AA}$ . L'état  $3^1D$ , peuplé par la décharge à partir du fondamental, possède en effet une orientation nucléaire. Celle-ci fait apparaître par couplage hyperfin de l'orientation électronique dans ce même état. Le dispositif expérimental a déjà fait l'objet de plusieurs descriptions détaillées [5, 15]. Cette méthode de détection conduit à des mesures bien calibrées à toute pression.

fig.I-9a

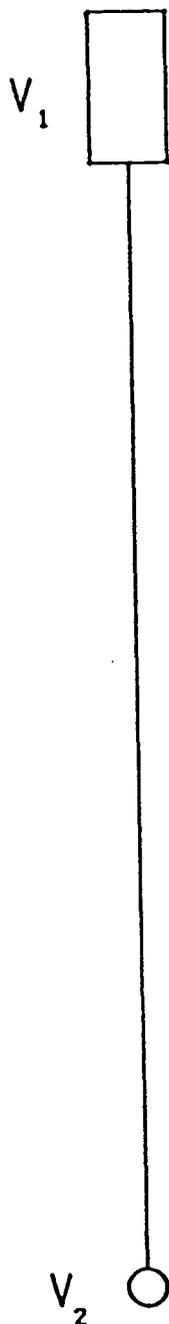
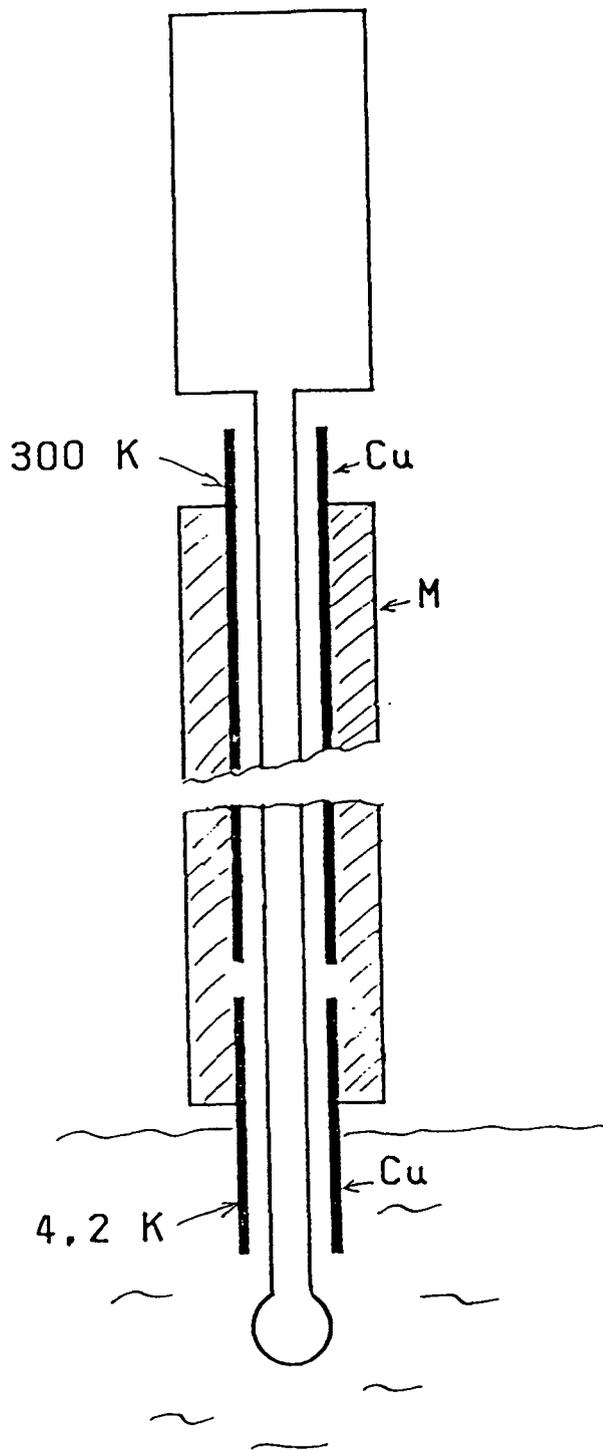


fig.I-9b



Vue d'ensemble d'une double cellule utilisée pour le pompage optique de  $^3\text{He}$ .

Le volume  $V_1$ , siège du pompage, est à température ordinaire, et les atomes orientés diffusent jusqu'au volume  $V_2$ , placé à basse température.

En b, on a schématisé le dispositif fixant la variation de température le long du tube joignant  $V_1$  à  $V_2$ : un tuyau de cuivre (Cu) interrompu sur quelques mm et isolé par de la mousse (M) force la plus grande partie du tube à être plus chaud que 100 K, ou plus froid que 10 K.

désigne le rayon de la cellule). Le tube de verre qui les relie a un diamètre intérieur de 3mm et une longueur d'environ 80cm. L'ensemble de la cellule est constituée de Pyrex, matériau choisi pour son faible magnétisme et son bon état de surface, et de nombreuses précautions sont prises au moment du soufflage, nettoyage et remplissage de la cellule [5, 3].

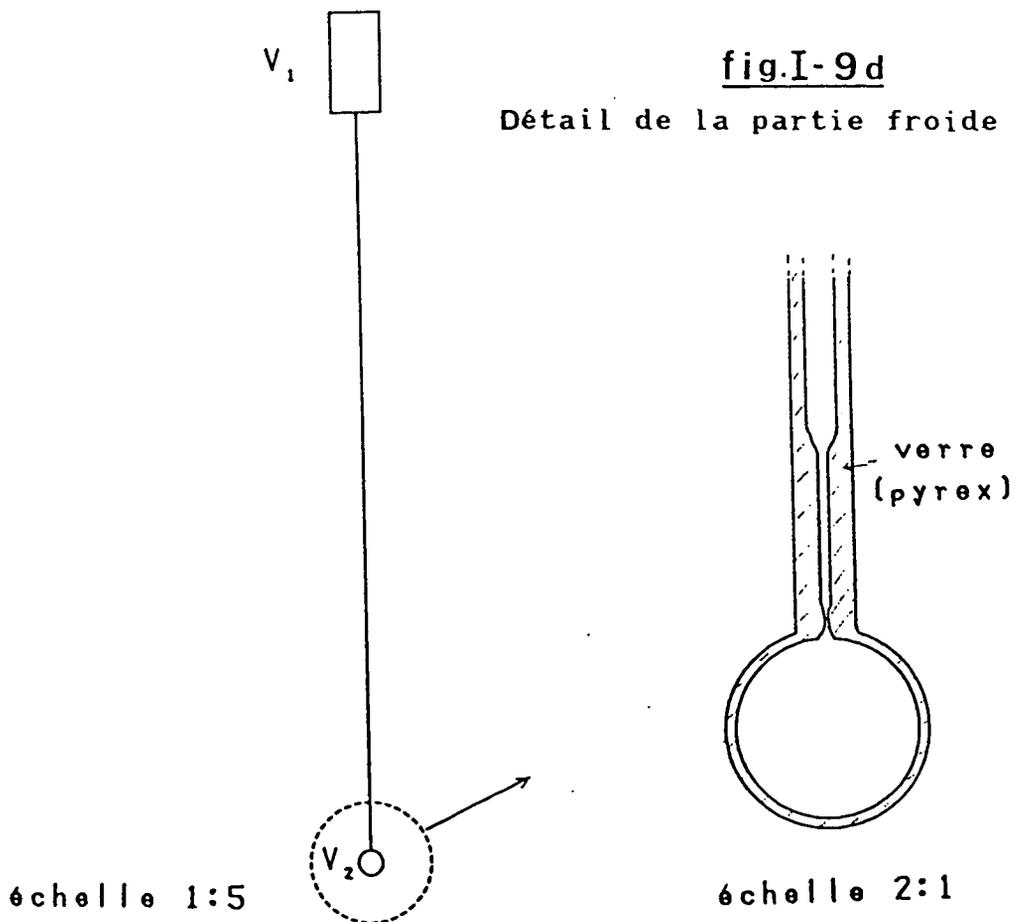
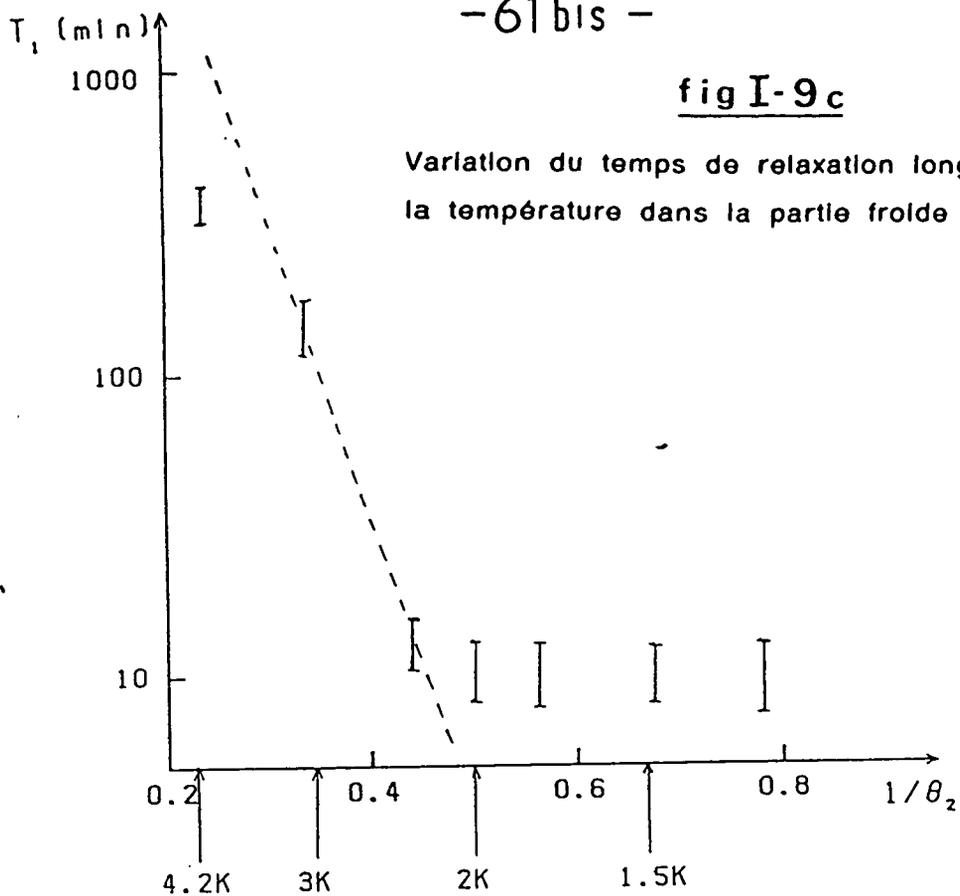
La quantité de  $^3\text{He}$  introduite dans la cellule est choisie de manière que la pression du gaz soit voisine de 0.3 torr lorsque le volume  $V_2$  est placé à quelques degrés Kelvin. On y ajoute l'hydrogène moléculaire destiné à former l'enduit cryogénique, puis la cellule est scellée.

A l'équilibre thermodynamique, l'essentiel de l'hydrogène est condensé sous forme solide au point le plus froid ; l'attraction de Van der Waals par la paroi permet néanmoins la formation d'une ou plusieurs monocouches moléculaires dans les régions à moins basse température [3]. Ainsi, si  $V_2$  est à 4.2K toute la partie située en dessous de 10K est recouverte d'au moins une couche de  $\text{H}_2$ . Tout le problème consiste donc à restreindre l'étendue des zones de température intermédiaire (entre 10 et 20K), où la paroi est assez froide pour que le verre soit très relaxant mais trop chaude pour que l'enduit y soit présent. Pour cela, nous utilisons les protections thermiques représentées sur la figure I-9b : un premier tube de cuivre entoure le tuyau de verre qui relie  $V_1$  à  $V_2$  sur 6/7 de sa longueur. Son extrémité supérieure est en contact thermique avec le flasque supérieur du cryostat (300K). Un deuxième tube de cuivre, placé à 7mm environ de la fin du premier, couvre le reste du tuyau jusqu'au ras du volume  $V_2$  ; il est ainsi toujours partiellement immergé dans le bain de  $^4\text{He}$  liquide, qui recouvre entièrement  $V_2$ . Le point le plus haut atteint par le bain se situe à un centimètre environ de l'extrémité inférieure du premier tube de cuivre. Une mousse plastique fournit une isolation thermique sommaire de l'ensemble, suffisante pour permettre à la section froide d'être partout en dessous de 5 à 6K et à la section chaude au dessus de 100K. De plus, les variations du niveau de  $^4\text{He}$  dans le cryostat n'ont dans ces conditions guère d'influence sur la carte des températures dans la cellule : la pression n'y est pas modifiée, et l'enduit est en quelque sorte définitivement figé (sa mobilité est très faible en dessous de 5K).

La procédure de refroidissement joue un rôle déterminant dans la formation de l'enduit cryogénique. Une méthode fiable pour obtenir un bon enduit consiste à interrompre la descente en température vers 8 ou 10K, pendant une dizaine de minutes. A cette température, l'hydrogène a alors diffusé en quantité suffisante de  $V_1$  à la partie inférieure de la cellule. On refroidit ensuite celle-ci rapidement et de façon homogène: Il faut en effet éviter de créer des parties froides où le verre est nu (donc très relaxant), car en dessous de 5K elles ne sont ensuite recouvertes que très lentement par l'hydrogène. La figure I-9c représente la variation de  $T_1$  dans  $V_2$  en fonction de la température pour une cellule donnée.

Signalons enfin que la présence de  $H_2$  est destructive pour les atomes métastables (collisions ionisantes pour les molécules) : le pompage optique n'est possible que si la pression partielle en hydrogène est inférieure à quelques  $10^{-5}$  torr, c'est-à-dire que la température du point le plus froid de la cellule ne peut guère dépasser 5K. Cependant, il est toujours possible d'orienter les atomes dans  $V_1$  en maintenant  $V_2$  en dessous de 5K, d'interrompre la décharge puis d'élever la température dans  $V_2$  : le temps de relaxation des atomes fondamentaux reste assez long pour permettre des mesures. Mais il faut ensuite refaire un enduit d'hydrogène.

Pour la plupart des cellules utilisées, le tube de verre qui relie  $V_1$  à  $V_2$  s'achève par une courte section de capillaire (longueur 2cm, diamètre 1mm) suivie d'une constriction (figure I-9d). La constriction réduit sensiblement la probabilité pour un atome contenu dans  $V_2$  de pénétrer dans le tuyau situé au-dessus: les atomes sont ainsi bien confinés dans  $V_1$ , et les modes de diffusion dans la sphère  $V_2$  sont peu perturbés par rapport à ceux d'une cellule véritablement fermée. La nécessité d'introduire la section de capillaire apparaîtra au paragraphe IV-B. Son inconvénient majeur est qu'elle allonge le temps caractéristique de diffusion des atomes entre  $V_1$  et  $V_2$ . Ceci ralentit à la fois la diffusion de l'hydrogène lors de la formation de l'enduit, et la construction de l'aimantation dans  $V_2$ . Avec ce type de cellule, si  $V_2$  est maintenu à moins de 5K, nous pouvons procéder à des



séries d'expériences consécutives. La polarisation M est totalement détruite en fin de mesure. Au bout d'une heure environ, l'orientation nucléaire reconstruite atteint 40%. Nous pouvons alors faire une nouvelle expérience sur cet échantillon polarisé.

### III-B-2) Cryostat

Pour préserver l'homogénéité du champ magnétique, les matériaux devant se trouver au voisinage de la cellule ont été choisis pour leur amagnétisme (plastiques, laiton, cuivre ou dural). La structure générale du cryostat est représentée sur la figure I-10. Afin de pouvoir commodément varier la température de la cellule, celle-ci est placée dans un bain d'hélium 4 indépendant, qu'une microvanne à pointeau permet d'alimenter en liquide par siphonnage du bain d'hélium 4 extérieur servant de réserve (figure I-11). L'isolation thermique est assurée par le vide qui règne entre la double paroi de verre. Les pertes thermiques sur le bain central sont très faibles, et son niveau peut rester sensiblement constant pendant plusieurs heures, temps suffisant pour procéder à une expérience. Par pompage sur le bain intérieur, la température peut être maintenue à toute température comprise entre 4,2K et 1,25K environ. La température minimale accessible est limitée avec ce dispositif par la fuite, en pratique inévitable, de la microvanne à pointeau. D'autre part, l'isolation thermique entre les deux parties du cryostat est suffisante pour que, vanne fermée, le maintien d'un chauffage dans la partie centrale ne provoque pas de pertes importantes sur le bain principal. Nous pouvons ainsi stabiliser à volonté la température entre 4,2K et 10K si nécessaire, notamment lors de la procédure de formation de l'enduit d'hydrogène moléculaire à l'intérieur de la cellule.

La température est mesurée dans la partie centrale à l'aide de résistances au carbone Allen-Bradley, disposées en divers points autour de la cellule. Dans chaque partie, le niveau de  $^4\text{He}$  liquide est mesuré en permanence grâce à une capacité constituée de deux minces tubes de cuivre concentriques [19], telle qu'une variation de niveau de 1cm entraîne une variation de 0,1pF (à cause de la différence entre les constantes diélectriques de l'hélium 4 liquide et gazeux). Cette mesure est particulièrement importante dans le bain central, pour s'assurer que celui-ci ne

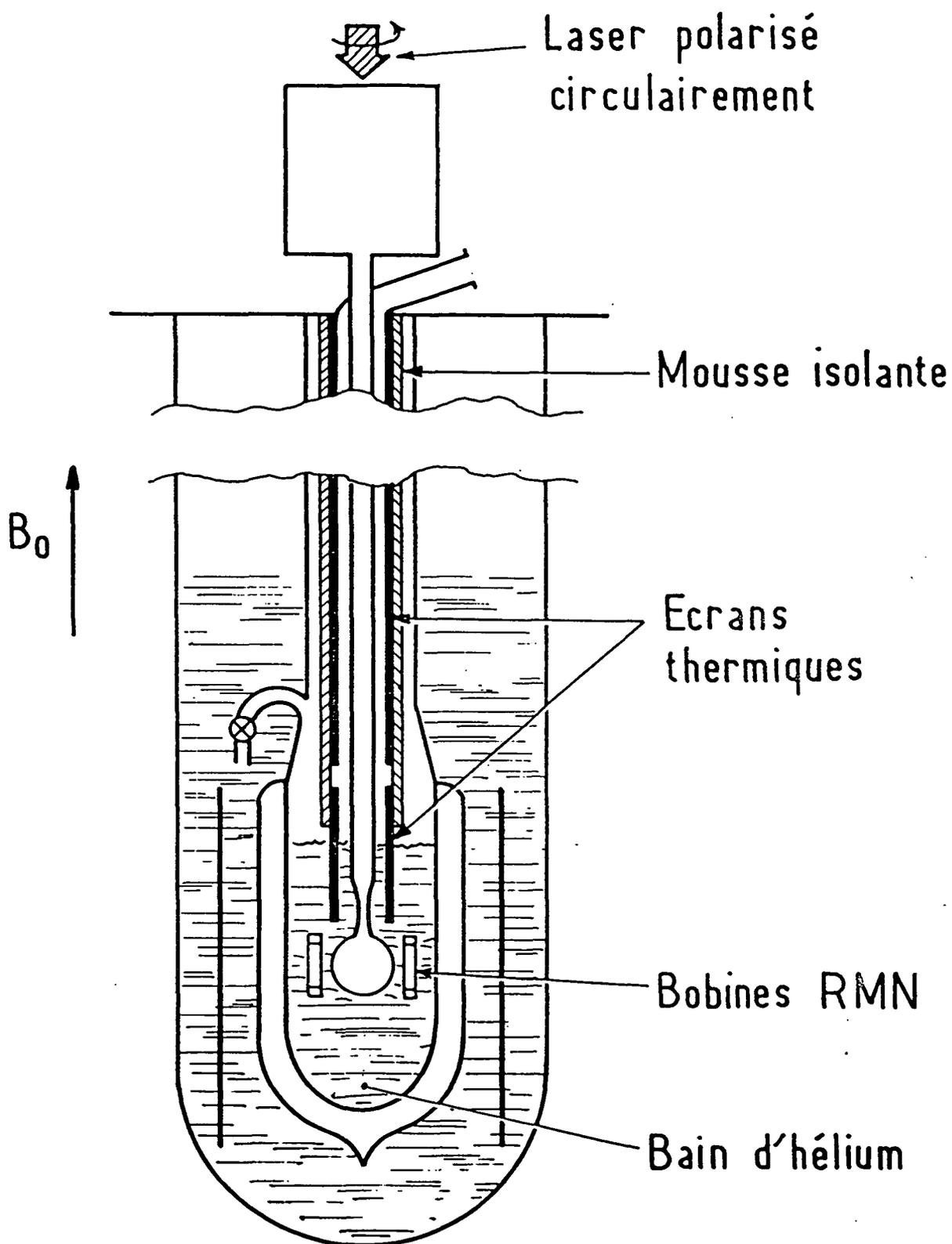
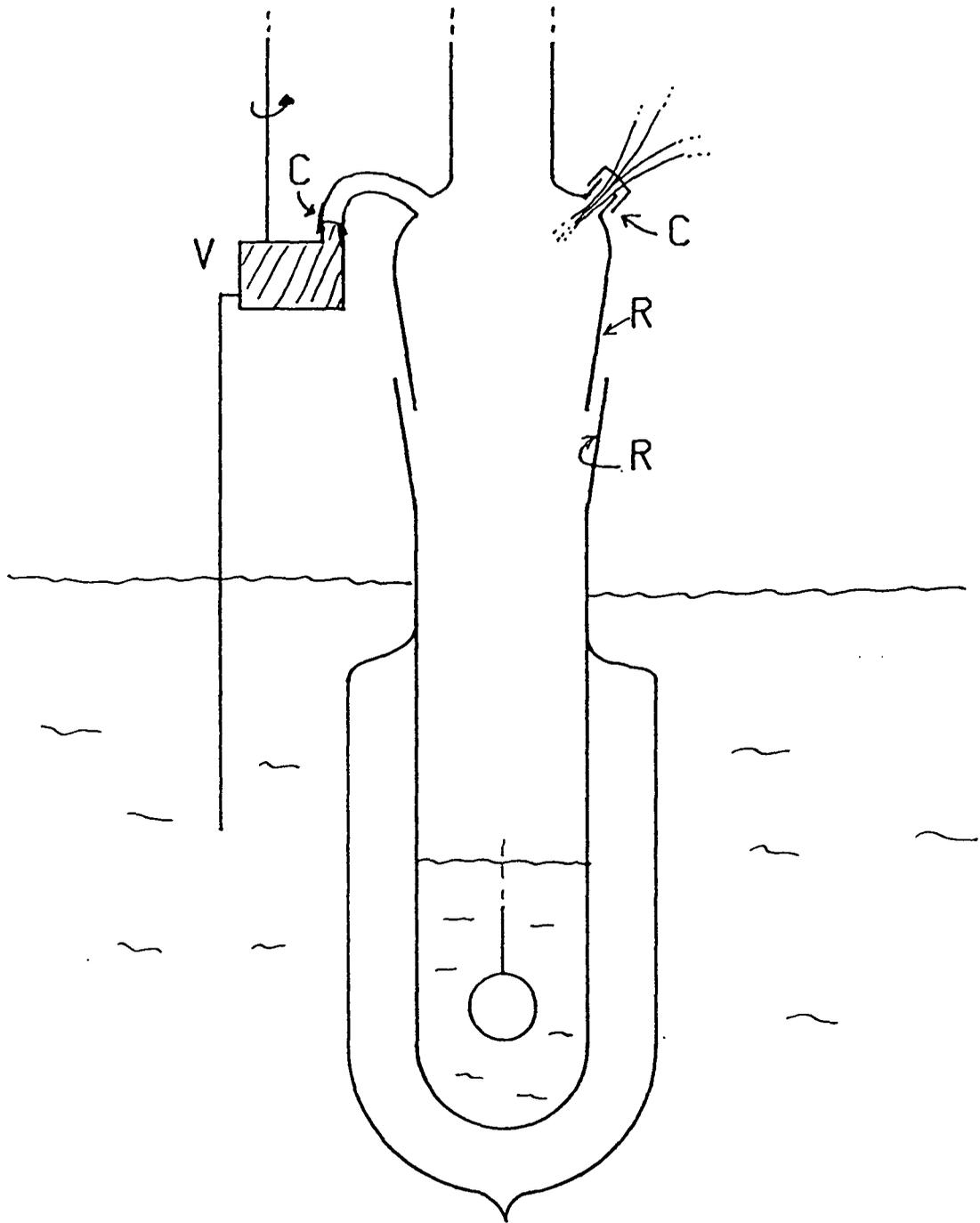


Fig. I-10

Vue schématique du dispositif expérimental de mise en évidence des ondes de spin.



**Fig. I-11** Détail: bain de  $^4\text{He}$  fixant la température de la partie froide de la cellule.

V: microvanne de remplissage du bain (corps en cuivre, pointe en Arcap API)

C: collages cuivre-pyrex étanches (le cuivre est aminci à quelques dixièmes de millimètres d'épaisseur, la colle est un caoutchouc silicone: Tecsil, fabriqué par Plastigem)

R: cônes en verre rodé, la tenue mécanique et l'étanchéité sont assurées par un gel de glycérine et savon (voir ref. [27]). Les proportions du mélange et la nature du savon conditionnent l'étanchéité du collage: de bons résultats sont obtenus avec de la savonnette "Ivory" (U.S.A., réputée "pure" à 99.44%), à raison de 6g pour 30g. Du savon chimiquement pur donne en fait de mauvais résultats.

recouvre pas la partie de tuyau censée demeurer à 100K. Dans le bain extérieur, elle sert à contrôler l'abaissement du bain provoqué par les pertes thermiques ou la quantité siphonnée via la microvanne. Si le volume du cryostat est suffisant pour permettre plusieurs remplissages du contre-cryostat, il est nécessaire de compléter son niveau toutes les deux ou trois heures pour maintenir à l'état supraconducteur le cylindre de plomb, stabilisant le champ expérimental (voir § suivant). L'ensemble du montage expérimental peut donc en principe demeurer indéfiniment opérationnel.

### III-C. CHAMP MAGNETIQUE STATIQUE

#### III-C-1) Production d'un champ adapté aux doubles cellules:

Les doubles cellules discutées au paragraphe III-B ont des volumes  $V_1$  et  $V_2$  distants de 80cm. Outre l'homogénéité de  $B_0$  sur l'axe défini par le tuyau de jonction, ce type de cellules impose de fortes contraintes sur l'importance des variations spatiales du champ dans les régions occupées par  $V_1$  et  $V_2$ . Dans  $V_1$  (cylindre de 11cm de hauteur et 5cm de diamètre), la relaxation nucléaire du niveau fondamental qu'elles induisent doit rester faible devant celle due à la décharge pour permettre un pompage optique efficace. Dans  $V_2$  (sphère de diamètre 1 à 3cm), il s'agit à la fois de minimiser la relaxation longitudinale et de permettre une détection RMN commode grâce à des temps de relaxation transversale assez longs. L'environnement magnétique du laboratoire provoque des inhomogénéités inférieures ou égales au milligauss par centimètre. On peut montrer [20] que la relaxation longitudinale due aux gradients de champ s'effectue sur un temps caractéristique donné par:

$$T_{1m} = \frac{1 + [\gamma B_0 \tau_d]^2}{\gamma^2 (\delta B_0)^2 \tau_d}$$

où  $\tau_d$  est le temps de diffusion d'un atome dans le volume considéré,  $B_0$  le champ magnétique moyen et  $\delta B_0$  la mesure de ses variations sur la cellule. Dans  $V_1$ , le temps de diffusion à température ambiante est de l'ordre de la milliseconde avec nos conditions expérimentales:  $T_{1m}$  ne dépasserait pas quelques secondes en champ nul, alors qu'il atteint quelques heures si

l'inhomogénéité relative est de l'ordre de  $10^{-4}$ . C'est pourquoi nous avons choisi de travailler dans un champ  $B_0$  d'au moins quelques Gauss. Pour produire le champ magnétique statique, nous utilisons un ensemble de trois bobines circulaires. Leur grand diamètre permet d'obtenir une faible variation radiale du champ au voisinage de l'axe; il préserve également la nécessaire accessibilité des parties importantes du montage expérimental. La disposition et les courants ont été déterminés numériquement (voir l'appendice III de la référence [5]) pour obtenir l'inhomogénéité relative suffisante. La configuration retenue pour les trois bobines de 67cm dont nous disposons (comportant un nombre de tours identique) correspond à un écartement de 62cm entre celles-ci, et un courant réduit d'un facteur 0,6 dans la bobine centrale (sa régulation est assurée par un shunt actif autoalimenté). La figure I-12 représente l'ensemble utilisé et la carte de champ calculée au niveau de l'axe du système.

### III-C-2) Stabilisation temporelle à l'aide d'un cylindre supraconducteur

Comme nous le verrons au paragraphe suivant, la méthode employée pour détecter les ondes de spin impose de mesurer la fréquence de précession de l'aimantation transverse avec une précision meilleure que un radian par seconde. Le champ magnétique statique doit dans ces conditions être stable à moins du dixième de milligauss près pendant les quelques dizaines de secondes que dure une mesure. Si cette condition peut être remplie pour le champ créé par les bobines décrites ci-dessus, le champ créé par l'environnement du laboratoire (masses magnétiques, etc...) fluctue au niveau de l'échantillon: cela est dû à la contribution supplémentaire des courants électriques du voisinage, et du champ terrestre perturbé par les masses magnétiques déplacées à proximité de l'expérience. En des temps caractéristiques de l'ordre de la seconde, les fluctuations que nous avons pu enregistrer correspondent à quelques milligauss pendant la journée, et quelques dixièmes de milligauss pendant la nuit.

Pour maintenir sur  $V_2$  un champ magnétique bien plus stable que le champ extérieur, un cylindre supraconducteur en plomb est placé autour de la partie froide de la cellule (fig I-10). Le cylindre a la propriété de

fig. I-12a Ensemble de bobines circulaires fournissant un champ homogène sur une cellule double.

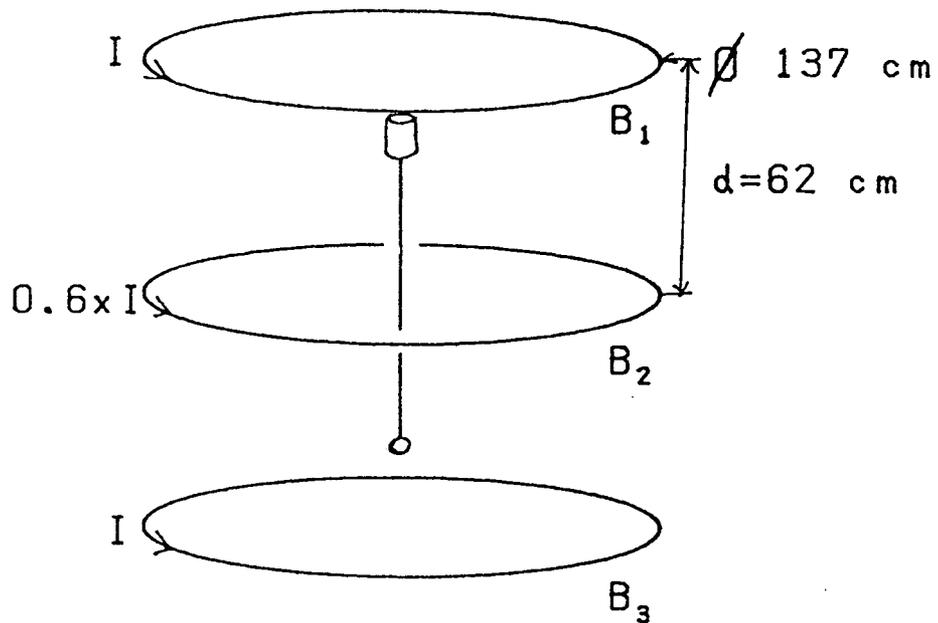
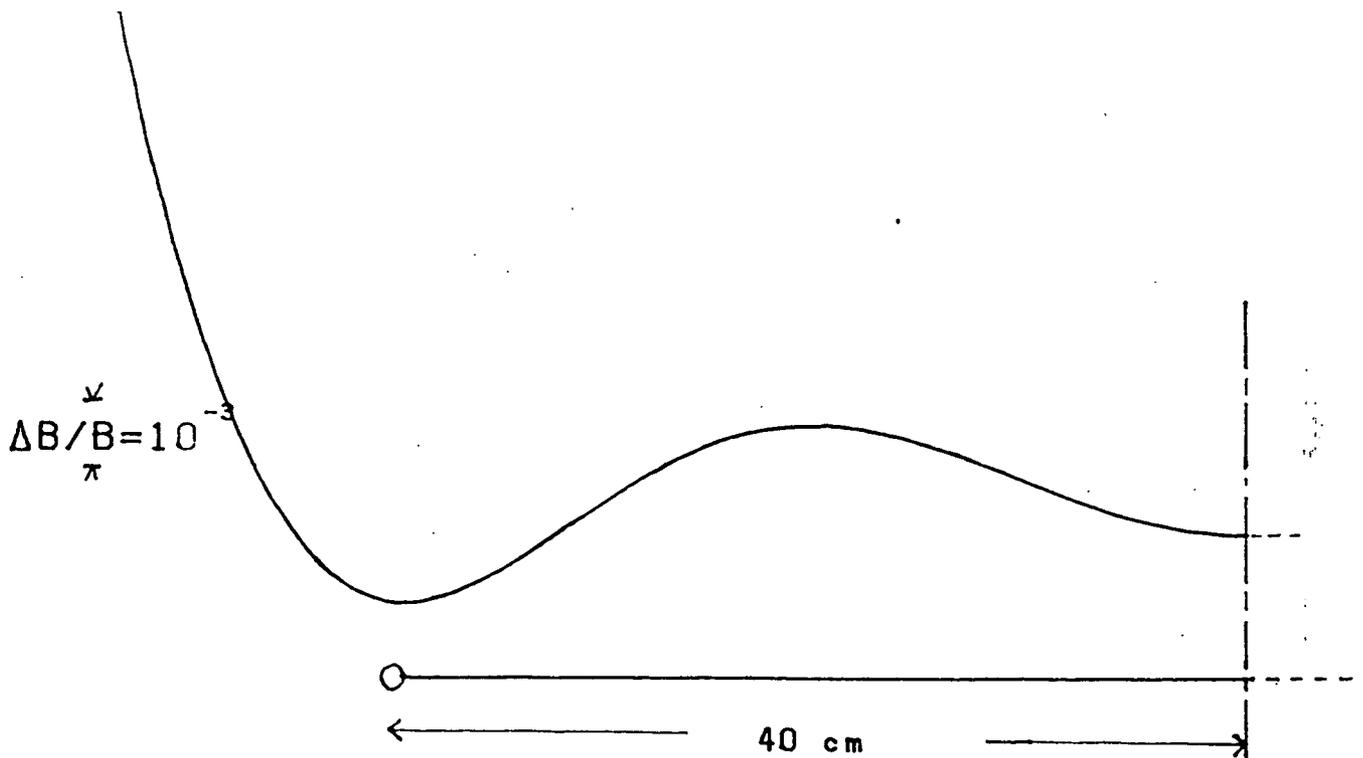


fig. I-12b

Carte de champ calculée pour l'ensemble de bobines ci-dessus (elle est symétrique et on n'a représenté que la moitié inférieure).



garder un flux constant à travers chaque section de son volume égal au flux du champ extérieur appliqué lors de son refroidissement en-dessous de la température de transition, située vers 7K. Il est possible de calculer numériquement la carte du champ magnétique à l'intérieur du cylindre supraconducteur [21], et de déterminer en particulier l'effet d'une modification du champ appliqué sur la valeur du champ magnétique au centre: pour un cylindre de longueur  $2l$  et de diamètre  $2a$ , le facteur de réduction  $R$  (rapport entre les variations au centre et à l'extérieur du cylindre) est donné d'après [22] par :

$$R = 1,13 \exp(-3,84 l/a)$$

Nous avons réalisé (\*) et essayé des cylindres de diamètre intérieur  $2a = 9,4\text{cm}$  et de longueurs diverses; les facteurs de réduction  $R$  ont été expérimentalement trouvés de l'ordre de :

longueur	R expérimental	R théorique
$2l = 21 \text{ cm}$	$R \approx 3 \cdot 10^{-4}$	$R_{th} = 2,14 \cdot 10^{-4}$
$2l = 27 \text{ cm}$	$R \approx 3 \cdot 10^{-5}$	$R_{th} = 1,84 \cdot 10^{-5}$
$2l = 34\text{cm}$	$R < 10^{-5}$	$R_{th} = 1,06 \cdot 10^{-6}$

Deux circonstances nous ont sans doute permis d'obtenir des facteurs de réduction  $R$  proches du facteur théorique (qui est calculé en supposant que le flux reste constant tout au long du cylindre, c'est-à-dire qu'aucune ligne de champ ne peut traverser sa surface) :

- la qualité de sa réalisation : il faut éviter les défauts macroscopiques que des lignes de champ magnétique pourraient traverser ("pinning").

- un refroidissement uniforme dans un champ dirigé selon son axe: peu de lignes de champ pénètrent alors dans le plomb initialement, qui

---

(\*) Nous ne décrivons pas ici le procédé de fabrication adopté. Toutes les étapes de la réalisation sont décrites dans l'appendice III de la référence [5].

sont à exclure lors de la transition supraconductrice (effet Meissner). Nous avons constaté expérimentalement qu'il suffit pour cela de compenser grossièrement les composantes horizontales du champ magnétique terrestre au niveau du cylindre pendant son refroidissement. Pour chaque composante horizontale, nous avons utilisé une paire de bobines carrées (de 95cm de côté) comprenant 20 tours de fil chacune; elles sont parcourues en sens opposés par un courant électrique de l'ordre de 0,3 Ampère.

Pour toutes les expériences décrites dans cette partie du mémoire, nous avons utilisé un cylindre (\*) de longueur  $2l = 34\text{cm}$ . La stabilité temporelle du champ régnant sur la partie froide de la cellule était couramment de l'ordre de la dizaine de  $\mu\text{G}$  au plus (du  $\mu\text{G}$  pendant la nuit) pendant le temps d'une mesure. Sachant qu'un  $\mu\text{G}$  correspond à une pulsation de 3mrd/s pour la précession de l'aimantation transverse, le but recherché (stabilisation à mieux que le rd/s) est effectivement atteint.

### III-C-3) Homogénéité du champ statique dans le cylindre supraconducteur

Plus le temps de relaxation  $T_2$  de l'aimantation transverse est long dans le volume  $V_2$  de la cellule, meilleure est la précision atteinte a priori dans la mesure de la fréquence de précession, puisque la durée du signal reçu est accrue (voir § IV-A). D'un autre côté, les déplacements de fréquence attendus dus aux ondes de spin sont d'autant plus importants que  $T_2$  est court. Il est donc commode dans nos expériences de pouvoir contrôler la valeur de  $T_2$ . Or le temps de relaxation transversale est déterminé ici par les variations spatiales du champ sur le volume  $V_2$  avec, comme nous l'avons déjà vu (§ I-C-1),

$$(1/T_2) \approx (\gamma \cdot \delta B_z)^2 \tau_{11}$$

---

(\*) Signalons que deux cylindres coaxiaux mis bout à bout, mais sans continuité électrique du plomb, donnent des résultats presque aussi bons que ceux obtenus avec un seul cylindre de même longueur totale.

où  $\tau_{11}$  est le temps de diffusion du mode le plus lent, et  $\delta B_z$  mesure l'inhomogénéité de la composante longitudinale du champ sur  $V_2$ . Avec le cylindre supraconducteur décrit au paragraphe précédent, l'homogénéité de  $B_0$  sur  $V_2$  est limitée pour deux raisons : à cause de sa taille finie, le champ n'est pas rigoureusement homogène à l'intérieur. D'autre part, même en supposant le cylindre réel géométriquement parfait, son centrage sur le volume  $V_2$  de la cellule est délicat. Les variations de  $B_z$  observées sont de l'ordre de 0,5mG/cm. Nous avons donc réalisé un ensemble de bobines situées au voisinage de la cellule (à l'intérieur du bain central, et donc aussi du cylindre d'après la fig I-10), destinées à créer de purs gradients (valeur moyenne du champ nulle sur  $V_2$ ) de champ longitudinal par rapport aux trois directions d'espace. L'ajustement des courants électriques qui y circulent permet de compenser, au moins au premier ordre, les inhomogénéités existantes du champ statique  $B_0$  (voir figure I-13). Nous pouvons ainsi réduire d'un facteur de l'ordre de 10 l'inhomogénéité relative du champ magnétique. Les temps de relaxation transversale  $T_2$  obtenus dépassent couramment la dizaine de secondes à 3 ou 4K.

### III-D. DISPOSITIF RMN

Pour créer et détecter une aimantation transversale dans le volume  $V_2$  de la cellule, nous utilisons une technique de résonance magnétique nucléaire (RMN) pulsée. Le dispositif à bobines croisées utilisé est classique (fig. I-14) : pour répondre aux impératifs propres à nos expériences, nous avons apporté un soin particulier à la réalisation du circuit de détection, en particulier dans le but de contrôler les effets du couplage entre l'aimantation transverse et le circuit électrique que nous avons analysé au chapitre II.

#### III-D-1) Bobines inductrices

Le dispositif inducteur comporte deux bobines de 10 tours chacune, connectées en série, dont la géométrie résulte d'un compromis entre deux exigences. Tout d'abord le champ radiofréquence (RF) créé au niveau du

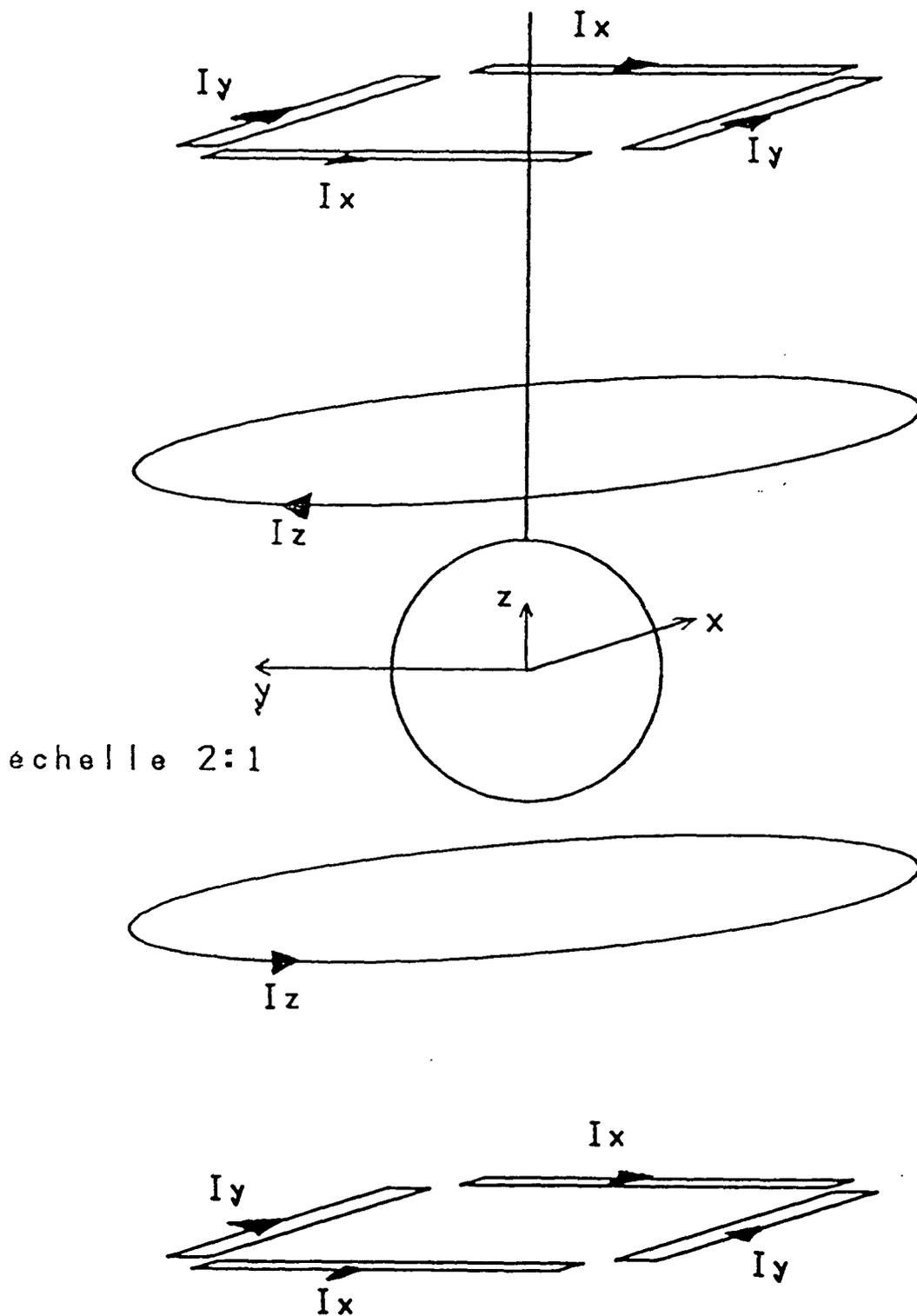


Fig. I-13

Ensemble de bobines utilisées pour compenser au premier ordre les inhomogénéités du champ magnétique à l'intérieur du cylindre supraconducteur.

Chaque groupe de bobines, parcouru par un courant  $I_x$ ,  $I_y$ , ou  $I_z$  crée un champ nul au centre de la cellule, et dont la composante verticale ne dépend (linéairement au premier ordre) que de  $x$ ,  $y$  ou  $z$  respectivement. Chaque courant permet donc de compenser indépendamment une composante de  $\text{grad}(B_z)$ , grandeur qui détermine le temps de relaxation transverse  $T_2$  de l'aimantation.

volume  $V_2$  doit être le plus homogène possible, afin que l'angle  $\alpha$  de basculement des spins provoqué par l'impulsion RF soit uniforme. Ceci permet de préparer une aimantation transversale homogène ( $\alpha \leq \pi/2$ ), ou de retourner l'aimantation totale par rapport au champ  $B_0$  ( $\alpha = \pi$ ) sans perte d'aimantation. D'autre part, les bobines doivent être logées à l'intérieur du cylindre supraconducteur de 9,4cm de diamètre, assez loin de celui-ci pour que sa présence ne perturbe pas trop la carte de champ RF dans  $V_2$ . Nous avons employé des bobines carrées de 4cm de côté et distantes de 3cm; le champ créé n'est en pratique suffisamment homogène que sur une sphère de 1 à 2cm de diamètre : ceci a déterminé la taille choisie pour le volume  $V_2$ . Pour une sphère de 1,5cm de diamètre, la perte par retournement de l'aimantation lors d'une impulsion RF telle que  $\alpha = \pi$  n'est que de quelques pour cent.

### III-D-2) Circuit de détection

Les bobines détectrices sont placées à angle droit des enroulements inducteurs (figure I-14). Leur orthogonalité peut être ajustée finement une fois en position, de façon à minimiser le signal parasite capté par les bobines de détection lors d'une impulsion RF. Enfin, un dispositif électronique simple permet d'injecter dans le circuit de détection un signal électrique de compensation égal et opposé au signal parasite résiduel, qui se trouve ainsi pratiquement annulé pendant toute la durée de l'impulsion RF.

Les bobines de détection sont connectées en série. Elles ont un diamètre d'environ 22mm, et sont disposées le plus près possible de la cellule afin de capter un signal de précession des spins d'amplitude maximale. Un moyen commode de disposer de signaux électroniques assez grands pour que le bruit de l'étage d'entrée du préamplificateur qui les reçoit ne soit pas trop gênant, consiste à utiliser un circuit de détection résonnant : un condensateur placé en parallèle avec les bobines de détection permet l'accord à la fréquence  $\omega_0$  des spins; si  $e$  désigne la f. e. m. induite par la précession des spins, et  $Q$  la surtension du circuit (L,C) résonnant, la tension aux bornes du circuit accordé est alors égale à  $S = Q e$ . Nous décrivons ci-dessous, au § 2a, les résultats obtenus avec

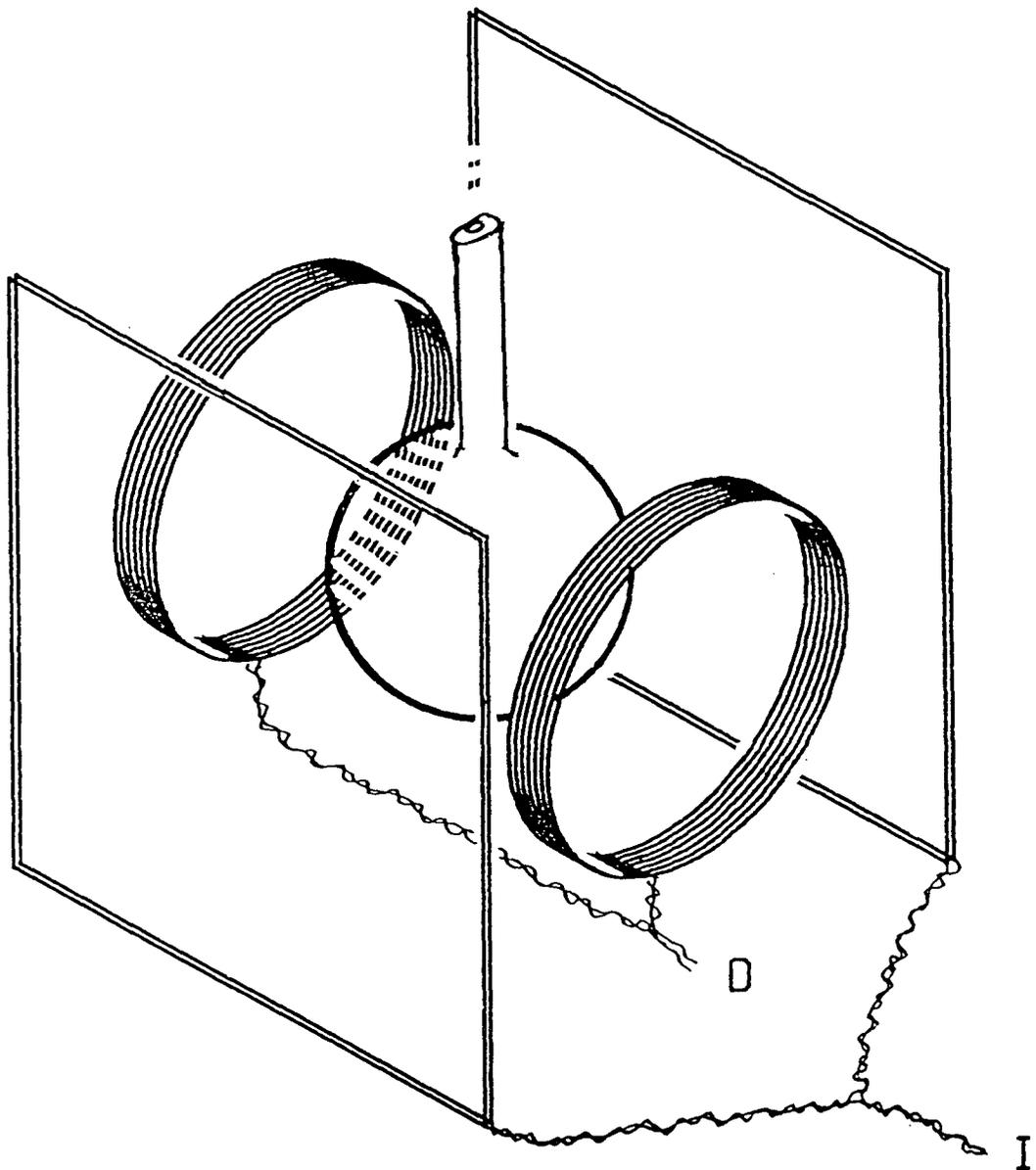


Fig. I-14

**Bobines utilisées pour la détection RMN de l'aimantation.**

Une paire de bobines carrées (I) crée sur la cellule un champ transitoire à la fréquence de résonance des spins nucléaires et fait basculer l'aimantation.

Le champ rayonné par la précession de la composante transverse de l'aimantation induit dans les bobines de détection (D) un signal proportionnel à l'aimantation initiale, décroissant avec une constante de temps  $T_2$

ce type de circuit de détection. Cela nous permettra de fixer des ordres de grandeur pour les quantités introduites au chapitre précédent, lors de l'étude du couplage entre l'aimantation transverse et le circuit électrique. Nous exposons ensuite, au § 2b, les solutions adoptées pour réduire considérablement les effets du couplage qui sont gênants pour la détection des ondes de spin.

### III-D-2-a. Circuit (L,C) classique

Pour la détection RMN, nous utilisons deux bobines connectées en série et disposées de part et d'autre du volume  $V_2$ . Soit  $n$  le nombre de tours de chaque bobine,  $r$  son rayon et  $2l$  la distance qui sépare les deux enroulements; nous pouvons déterminer les ordres de grandeur des coefficients de couplage introduits au chapitre II (en valeur absolue, les signes dépendant de l'orientation par rapport à l'axe Oz).

#### (1) Coefficient de couplage $\alpha$

Ce coefficient relie le champ magnétique  $B_y$ , induit selon l'axe des bobines, au courant  $I$  qui y circule :

$$B_y = - \frac{\alpha}{\gamma} I$$

où  $\gamma$  désigne toujours le facteur gyromagnétique nucléaire de l'atome de  $^3\text{He}$ . Pour deux bobines en position de Helmholtz, l'ordre de grandeur du champ magnétique au centre est :

$$B_y \text{ (Gauss)} \simeq n \frac{I(\text{A})}{r(\text{cm})}$$

Nous en déduisons que le coefficient  $\alpha$  est donné par :

$$\alpha \simeq - n \frac{\gamma}{r(\text{cm})}$$

#### (2) Coefficient de couplage $\beta$

La force électromotrice introduite par la précession de spins nucléaires autour du champ  $B_0$  s'écrit :

$$e = - \frac{d\phi}{dt} = \beta \frac{d}{dt} \psi_y$$

où  $\Phi$  désigne le flux magnétique capté par les bobines réceptrices. Pour le calculer, nous pouvons supposer l'aimantation parfaitement uniforme dans le volume  $V_2$ : il suffit alors de déterminer, en tout point de la surface d'une spire, le champ magnétique induit par le moment magnétique total des atomes placé au centre de la sphère, puis d'intégrer pour avoir l'expression du flux capté par la spire. On aboutit ainsi à la formule suivante :

$$|\beta| = n \mu_0 \frac{r^2}{(r^2 + \ell^2)^{3/2}}$$

Le tableau ci-dessous indique les valeurs numériques obtenues pour des bobines comportant  $n = 20$  tours chacune, avec des dimensions caractéristiques  $r, \ell$  de l'ordre du centimètre: le circuit électrique est accordé sur la fréquence des spins (12kHz pour un champ de 4 Gauss) à l'aide d'une capacité  $C$ .

$ \alpha $ (SI)	$ \beta $ (SI)	$C$	inductance $L$	surtension $Q$	$ \alpha\beta/4L $
$\sim 4 \cdot 10^5$	$\sim 2 \cdot 10^{-3}$	$2\mu\text{F}$	$90\mu\text{H}$	30	$2 \cdot 10^6$

En ce qui concerne les atomes de  $^3\text{He}$  contenus dans  $V_2$ , leur moment magnétique total est égal à :

$$\mathcal{M}_0 = (g_n \mu_n / 2) N M$$

où  $\mu_n$  est le magnéton nucléaire et  $g_n$  le facteur de Landé pour le noyau d'hélium trois (le facteur  $1/2$  vient de la valeur du spin nucléaire  $I=1/2$ ) ;  $N$  désigne le nombre total d'atomes contenus dans  $V_2$  et  $M$  le taux de polarisation nucléaire ( $-1 \leq M \leq +1$ ). En exprimant la densité atomique  $n_0$  en fonction de la pression équivalente en torr à 300K (1 torr à 300K correspond à  $3,25 \cdot 10^{16}$  at/cm<sup>3</sup>), on a pour la valeur de  $\mathcal{M}_0$  en MKS :

$$\mathcal{M}_0 = -3,48 \cdot 10^{-10} \cdot V_2(\text{cm}^3) \cdot n_0(\text{torr à 300K}) \cdot M$$

Dans nos conditions expérimentales,  $V_2 = 0,8\text{cm}^3$  et  $n_0 = 1,3 \cdot 10^{18}$  at/cm<sup>3</sup> à 4,2K, soit 37 torr à 300K, on a :

$$|\mathcal{M}_0|_{(MKS)} \simeq 10^{-8} |M| \quad \text{à la température } T \simeq 4,2K$$

Si nous utilisons l'ensemble de ces valeurs expérimentales pour estimer les effets de réaction du circuit sur les spins, nous obtenons pour le déplacement en fréquence et la variation du taux d'amortissement :

$$\delta\omega = \frac{\alpha\beta}{4L} \times 2 |\mathcal{M}_0| \simeq M \times 40 \text{ mrd/s}$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\alpha\beta}{4L} \times Q |\mathcal{M}_0| = kM \simeq M \times 0,6s^{-1}$$

La figure I-15 présente un exemple de résultats obtenus à 4,2K pour le temps de relaxation transversale. On voit que la constante de temps effective  $T'_2$  mesurée varie selon une loi du type :

$$\frac{1}{T'_2} = \frac{1}{T_2} + kM$$

$T'_2$  tend, pour  $|M|$  très petit, vers le temps de relaxation propre  $T_2$ , fixé par l'inhomogénéité du champ.  $T_2$  est ici de l'ordre de 2,9 secondes et le coefficient  $k$  de proportionnalité à  $M$  est en accord avec le résultat du calcul précédent ( $k \simeq 0,6s^{-1}$ ).

L'accord théorie/expérience est également satisfaisant en ce qui concerne le seuil maser, puisque celui-ci est franchi pour  $T_2 \simeq 10s$  (éq. I-75) lorsque la polarisation nucléaire atteint 10%. A notre connaissance, il s'agit là de la première observation d'un fonctionnement à basse température du maser à  $^3He$  en phase gazeuse (\*). Lorsque le régime maser est établi, on recueille aux bornes du circuit de détection un signal permanent, d'amplitude stationnaire au cours du temps. Ceci permet de déterminer avec précision la fréquence de précession de l'aimantation

---

(\*) Le premier maser Zeeman nucléaire à  $^3He$  en phase gazeuse a été réalisé dans les années 60 [10]; il fonctionnait à température ambiante, avec des densités atomiques plus faibles, mais avec un circuit électrique de surtension plus élevée ( $Q \simeq 200$ ) et mieux couplé géométriquement.

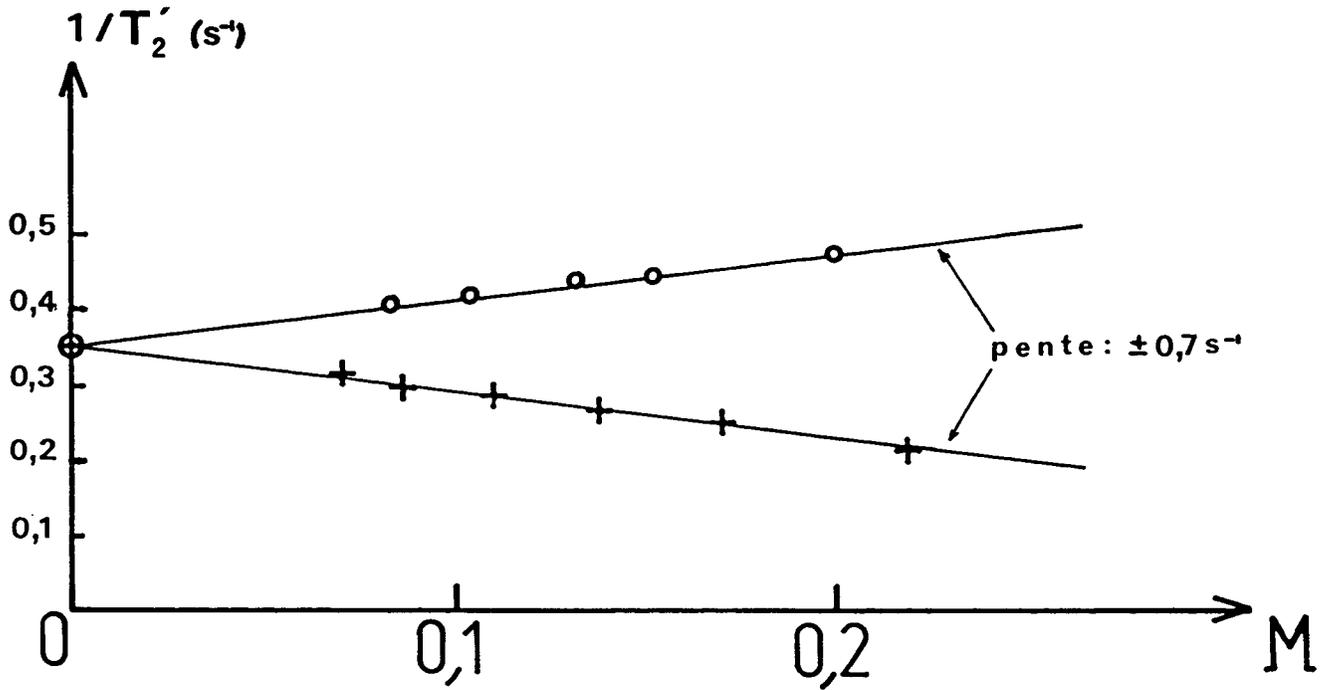


fig.I-15a : circuit peu amorti ( $Q = 30$ )

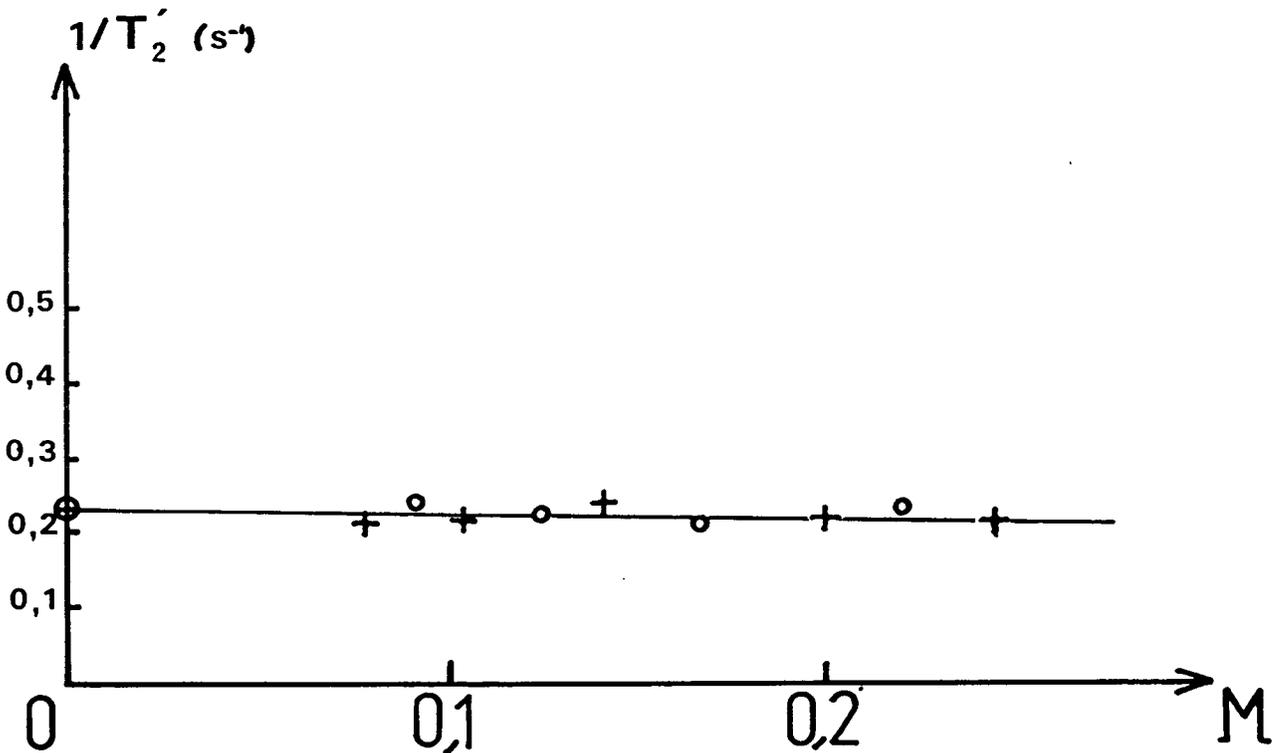


fig.I-15b : circuit amorti ( $Q = 4$ )

fig.I-15: Variation du temps de relaxation transversale effectif  $T_2'$  avec le taux de polarisation du gaz  $M$ .

transversale, puisqu'il est possible d'enregistrer le signal des spins aussi longtemps que souhaité. Des applications peuvent alors être envisagées, en magnétométrie par exemple. En effet, nous avons vu que la fréquence de précession peut s'écrire :

$$\omega = -\gamma B_0 + \gamma_2 K_R/K_I$$

La présence du déplacement de fréquence  $\gamma_2 K_R/K_I$  constitue a priori un obstacle à l'utilisation du maser pour effectuer une mesure absolue de champ magnétique. Ce déplacement dépend des caractéristiques du circuit et des coefficients de couplage: il peut être délicat de les connaître avec précision. En revanche, ce déplacement de fréquence n'intervient pas lorsqu'on veut mesurer des variations du champ  $B_0$ , pour lesquelles le maser à  $^3\text{He}$  constitue alors un moyen d'étude de grande sensibilité. Par exemple, en déplaçant la sonde, il est possible de détecter des variations spatiales du champ et de reconstituer point par point la carte de champ magnétique dans une région donnée de l'espace. On peut également utiliser le maser à  $^3\text{He}$  pour suivre les variations temporelles du champ. C'est un outil commode pour mesurer par exemple l'efficacité des blindages supraconducteurs, couramment utilisés dans les expériences qui requièrent une bonne stabilité du champ magnétique. On peut ainsi tester la validité des modèles théoriques développés pour leur description et leur étude. Une autre application pratique consiste à utiliser le signal de dérive en phase de l'oscillation maser, par rapport à une référence de fréquence arbitrairement choisie, pour commander un dispositif électronique d'asservissement du champ magnétique  $B_0$ .

### III-D-2-b. Circuit (L,C,L')

Nous avons vu que le couplage entre le circuit électrique de détection et l'aimantation transversale produit des entraînements de fréquence, même en dessous du seuil maser. Ces déplacements, proportionnels à la composante longitudinale  $M_z$ , constituent des effets parasites susceptibles d'entacher d'erreur la mesure du coefficient quantique  $\mu$ . Nous nous sommes efforcés de les rendre nettement inférieurs à la variation de fréquence induite par le couplage avec les ondes de spin auquel nous nous intéressons.

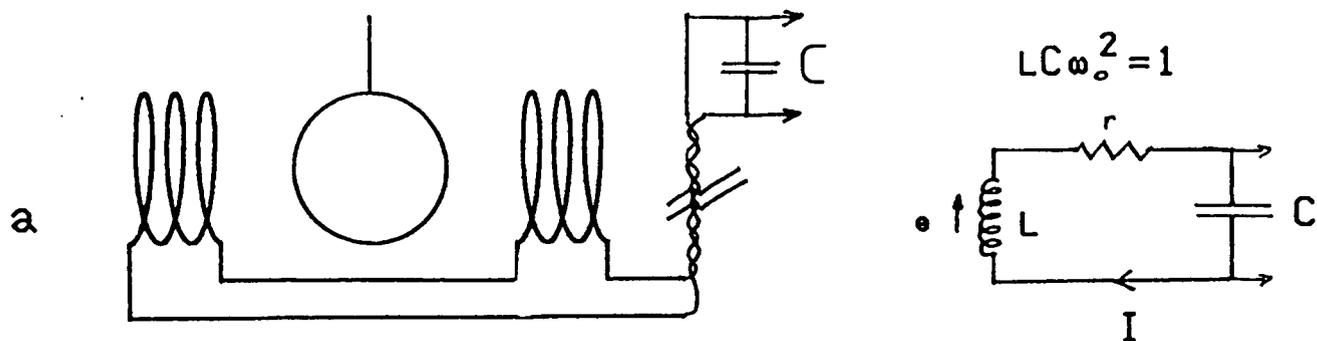
Pour un circuit (L,C) classique, l'étude du chapitre II montre qu'à géométrie fixée (i.e.  $\alpha$  et  $\beta$  donnés), les effets du couplage sont réduits si le facteur de qualité Q du circuit diminue. Pour ce faire, nous pouvons simplement mettre une résistance en parallèle sur la capacité d'accord C, ce qui augmente l'amortissement du circuit, dans la pratique, quelques kilo-ohms en parallèle sur une capacité de  $2\mu\text{F}$  réduisent la surtension Q de 30 à 4 (fig. I-15b). L'inconvénient d'un tel procédé est qu'en contre-partie, le rapport signal/bruit est dégradé puisque la tension détectée aux bornes du circuit est proportionnelle à Q. Toutefois, cette tension est également directement proportionnelle au nombre de spires n, puisqu'elle vaut :

$$S = Q_e \propto Q_n M \omega$$

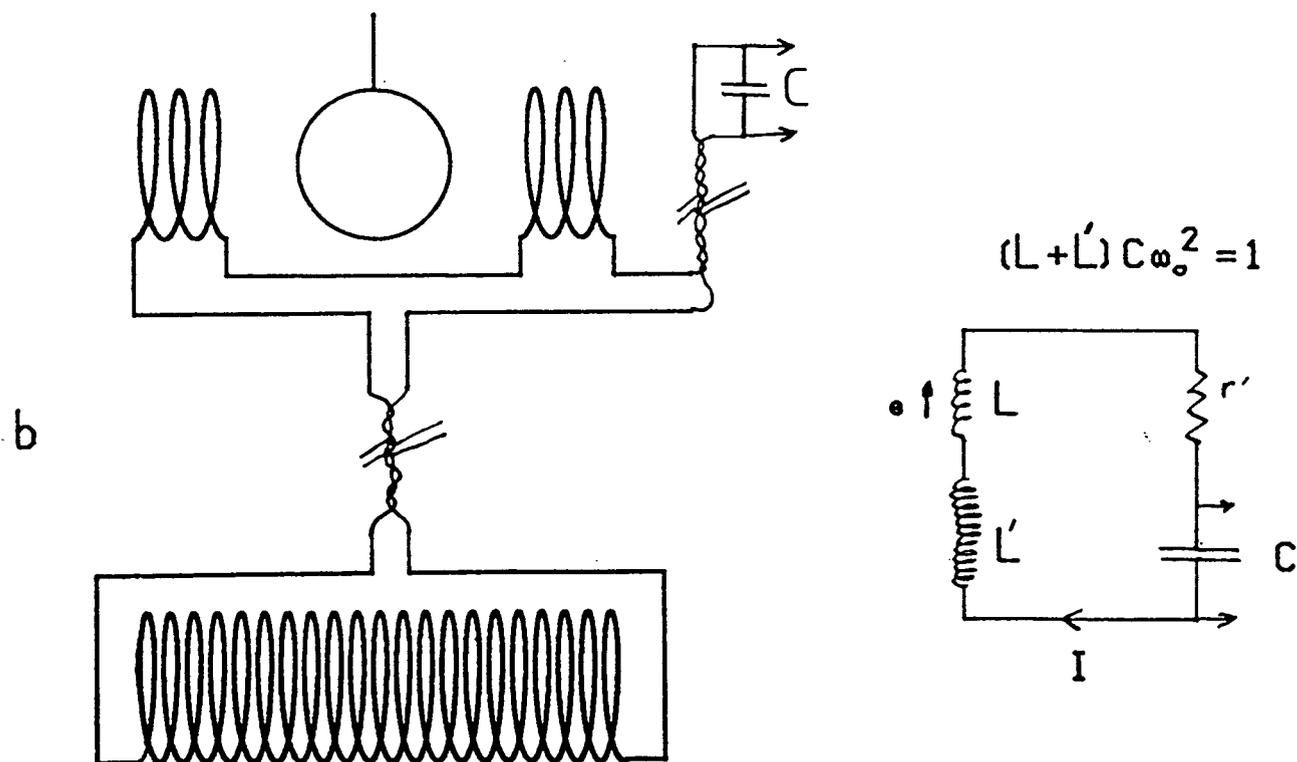
Nous pouvons donc choisir d'utiliser un circuit très amorti avec un nombre de tours n assez élevé pour compenser la diminution de Q, et maintenir le signal à un niveau satisfaisant. A priori, la réaction du circuit ne fait pas directement intervenir n: dans la mesure où l'inductance L varie en  $n^2$ , le préfacteur ( $\alpha\beta/L$ ), commun aux expressions (I-59), est indépendant du nombre de tours. Expérimentalement, nous avons constaté que la réaction du circuit ne reste indépendante du nombre de tours des bobines que pour  $n \leq 100$ . Au delà, elle croît rapidement avec n. Ceci s'explique par le fait que la capacité répartie dans les bobines de détection (capacité entre spires) devient alors importante. Son existence est à l'origine de courants supplémentaires circulant dans les enroulements, dont l'effet (difficilement calculable) est d'induire un champ alternatif  $B_y$ , agissant sur les spins, supérieur à celui calculé au chapitre II. La modélisation en éléments discrets (L,C,r) n'est plus valable.

Pour réduire la capacité répartie, nous avons utilisé des bobines réceptrices à faible nombre de tours ( $n=40$ ), bobinées à spires et couches non jointives. Pour accorder le circuit, nous avons mis en série une capacité de faible valeur (C) et une inductance (L') de forte valeur (fig. I-16). Cette dernière n'est pas couplée aux spins: pour obtenir une bonne surtension, nous l'avons placée à basse température, loin de la cellule, mais à l'intérieur du cylindre supraconducteur, pour éviter le bruit de rayonnement. Cette configuration (L,C,L') présente l'avantage que le courant qui circule dans le circuit réagit peu sur les spins, à cause de la faible valeur de n. D'autre part, la tension détectée est prélevée aux bornes

Fig. I-16



Branchement le plus simple du circuit de détection: les bobines receptrices, connectées en série, sont accordées par une capacité annexe. A cause des capacités réparties, un tel montage n'est pas équivalent au schéma électrique représenté



Le circuit a est modifié par l'adjonction en série d'une inductance de forte valeur (la capacité annexe est donc choisie plus faible). Les capacités réparties sont rendues plus faibles par la réalisation de bobinages à spires et couches non jointives. Les caractéristiques électriques du montage sont alors voisines de celles du schéma représenté.

d'une capacité de faible valeur, ce qui réalise à la fois une élévation d'impédance et une augmentation du signal reçu. Le tableau suivant indique les caractéristiques du circuit (L,C,L') retenu, que nous pouvons comparer à celles du circuit (L,C) décrit au § 2a et rappelés ci-dessous.

	n	$\alpha\beta(\$I)$	C	$\mathcal{L} = L+L'$	Q	$\frac{\alpha\beta}{4\psi}$
circuit (L,C,L')	40	$32 \cdot 10^2$	8nF	22mH	40	$3,6 \cdot 10^4$
circuit (L,C)	20	$8 \cdot 10^2$	2μF	90μH	30	$2 \cdot 10^6$

La réaction du circuit (proportionnelle à  $\alpha\beta/L$ ) est réduite de deux ordres de grandeur. Expérimentalement, nous n'avons pas pu déceler de variation du temps de relaxation transversale avec le taux de polarisation nucléaire. Compte tenu de la précision de dépouillement sur  $T_2$  (quelques pour cent), nous pouvons affirmer que pour  $M = 30\%$ , l'amortissement supplémentaire est nécessairement inférieur à  $10^{-2}s^{-1}$ ; le déplacement de pulsation correspondant, qui est Q fois plus petit, ne dépasse pas 2,5 mrd/s. Cette valeur est satisfaisante, puisque nous savons que les déplacements de pulsation dus au couplage avec les ondes de spin sont de l'ordre de la centaine de mrd/s à 2K, avec  $T_2 = 1$  sec et  $M = 0,30$  (voir § I-C-1).

### III-D-3) Dispositif électronique

La procédure expérimentale employée pour exciter et détecter une aimantation transversale est la suivante : nous envoyons sur les bobines inductrices une impulsion de radiofréquence à une fréquence voisine de 12kHz, correspondant à la résonance magnétique nucléaire de  $^3\text{He}$  dans le champ  $B_0$  de l'ordre de 4 Gauss. La durée de cette impulsion est très brève devant le temps de diffusion  $\tau_D$  des atomes dans  $V_2$ , et son intensité est choisie pour que l'angle de basculement  $\alpha$  soit assez faible (typiquement  $B_1 \approx 0,15\text{mG}$  et  $\Delta t = 5\text{ms}$  pour  $\alpha \approx \pi/20$ ). Le signal de précession recueilli aux bornes des bobines de détection est de l'ordre de  $1\mu\text{V}$  initialement; il décroît exponentiellement avec une constante de temps  $T_2$ , de l'ordre de quelques secondes dans nos expériences. Il est envoyé dans un amplificateur à détection synchrone où il est comparé à un signal de référence, réglé à une fréquence  $\omega'$  très proche de la fréquence de Larmor  $\omega_0$ . L'amplitude en phase et en quadrature sont stockées de façon digitale, et un traitement numérique ultérieur permet d'en extraire la dépendance

temporelle du module de l'aimantation transverse, ainsi que de son déphasage par rapport au signal de référence (fig. I-17). Si la relaxation correspond à une décroissance exponentielle avec une constante de temps unique, il est alors aisé d'en tirer l'amplitude initiale du signal et le temps de relaxation transversale  $T_2$  (avec une précision relative de l'ordre de 3%), ainsi que l'écart entre la fréquence  $\omega$  des spins et celle  $\omega'$  de la référence : la résolution atteinte pour la détermination de la pulsation de précession est de l'ordre de la centaine de microradians par seconde.

#### IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX - DISCUSSION

##### IV-1) Méthode de mesure

Les expériences décrites ici correspondent à la méthode indirecte de mise en évidence des ondes de spin décrite au chapitre I, qui utilise un champ statique faiblement inhomogène. Nous avons vu que cela impose que les variations spatiales de  $B_0$  soient réduites de manière à ce que le temps de relaxation transversale  $T_2$  soit long devant le temps de diffusion  $\tau_D$  dans le volume d'étude  $V_2$ . Dans nos conditions expérimentales,  $\tau_D$  est de l'ordre de la centaine de millisecondes. Les inhomogénéités de  $B_0$  sont contrôlées au niveau de  $V_2$  à l'aide du dispositif décrit au paragraphe III-C-3, de manière à ce que  $T_2$  dépasse la seconde. En pratique, il peut être ajusté continûment jusqu'à 10 secondes environ; au-delà nous sommes gênés par l'approche au seuil d'oscillation maser (voir chap. III).

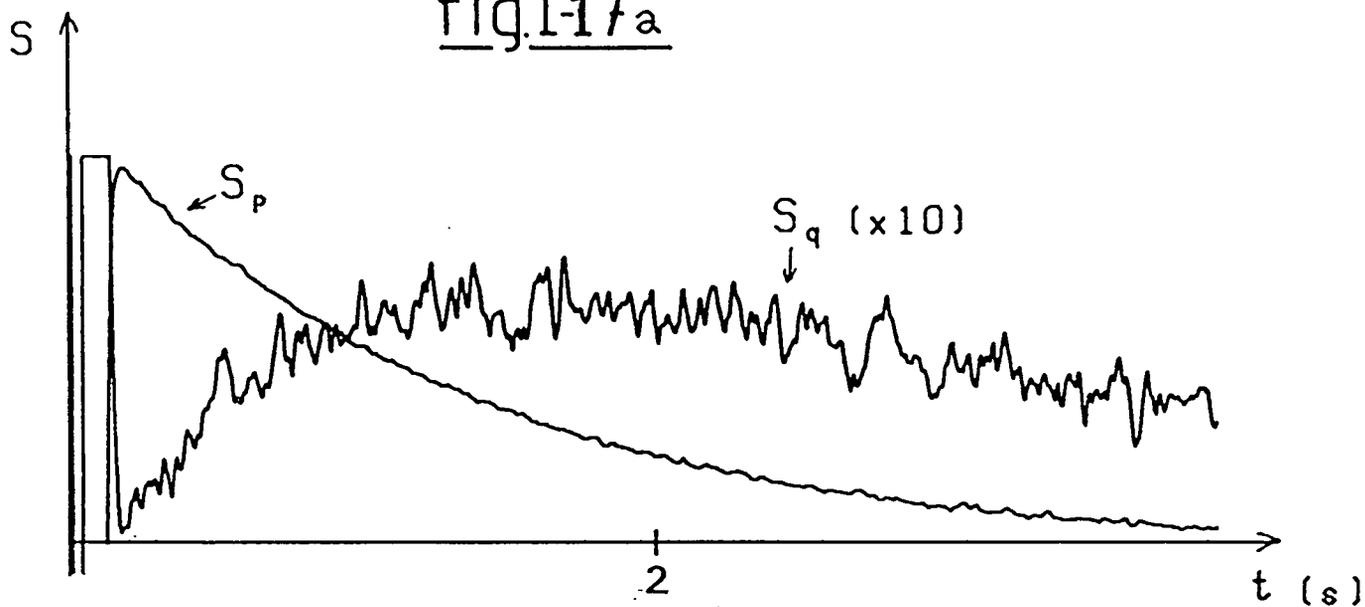
Pour une carte de champ donnée, nous observons le signal de précession d'une aimantation transversale, créée à partir de l'orientation longitudinale. Nous mesurons la variation de phase  $\Delta\varphi$  accumulée pendant la durée  $T_2$ ; cette variation vaut :

$$\Delta\varphi = (\omega - \omega') T_2$$

où  $\omega'$  désigne la fréquence de référence et  $\omega$  celle du signal des spins nucléaires.

Si  $\omega'$  est choisie égale à la fréquence de Larmor  $\omega_0$ , en l'absence de toute erreur systématique, nous pouvons écrire :

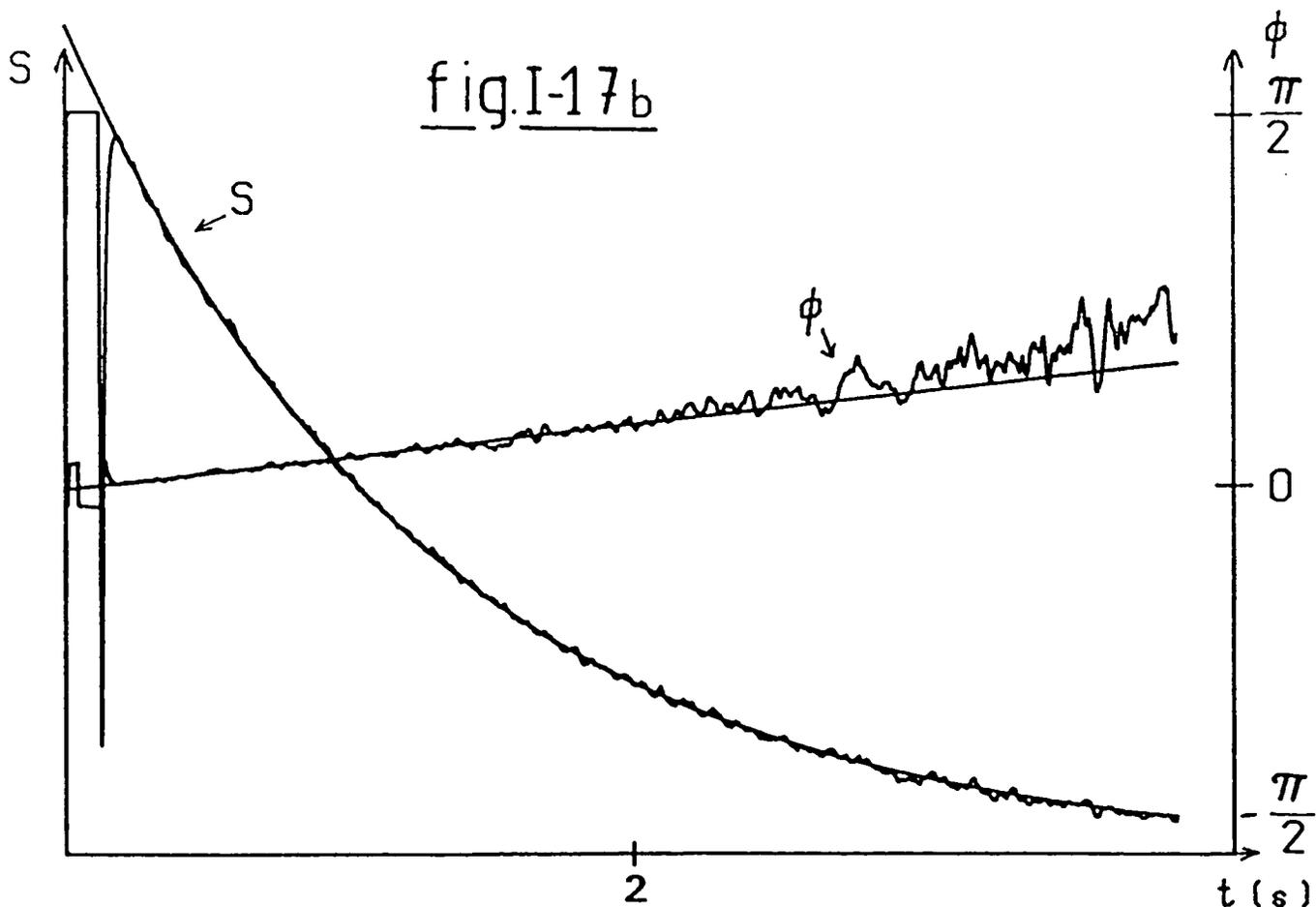
fig.I-17a



Exemple de signaux RMN de précession de l'aimantation transverse:

I-17a Amplitudes en phase et en quadrature ( $S_{p,q}$ )

I-17b Module et phase calculés à partir des amplitudes précédentes ( $S, \phi$ )



$$\Delta\varphi = \delta\omega \cdot T_2 = \mu M$$

puisque  $\delta\omega = \omega - \omega_0$  est alors exactement égal au déplacement de fréquence dû au couplage avec les ondes de spins (paragraphe I-C-1, équ. (I-18)).

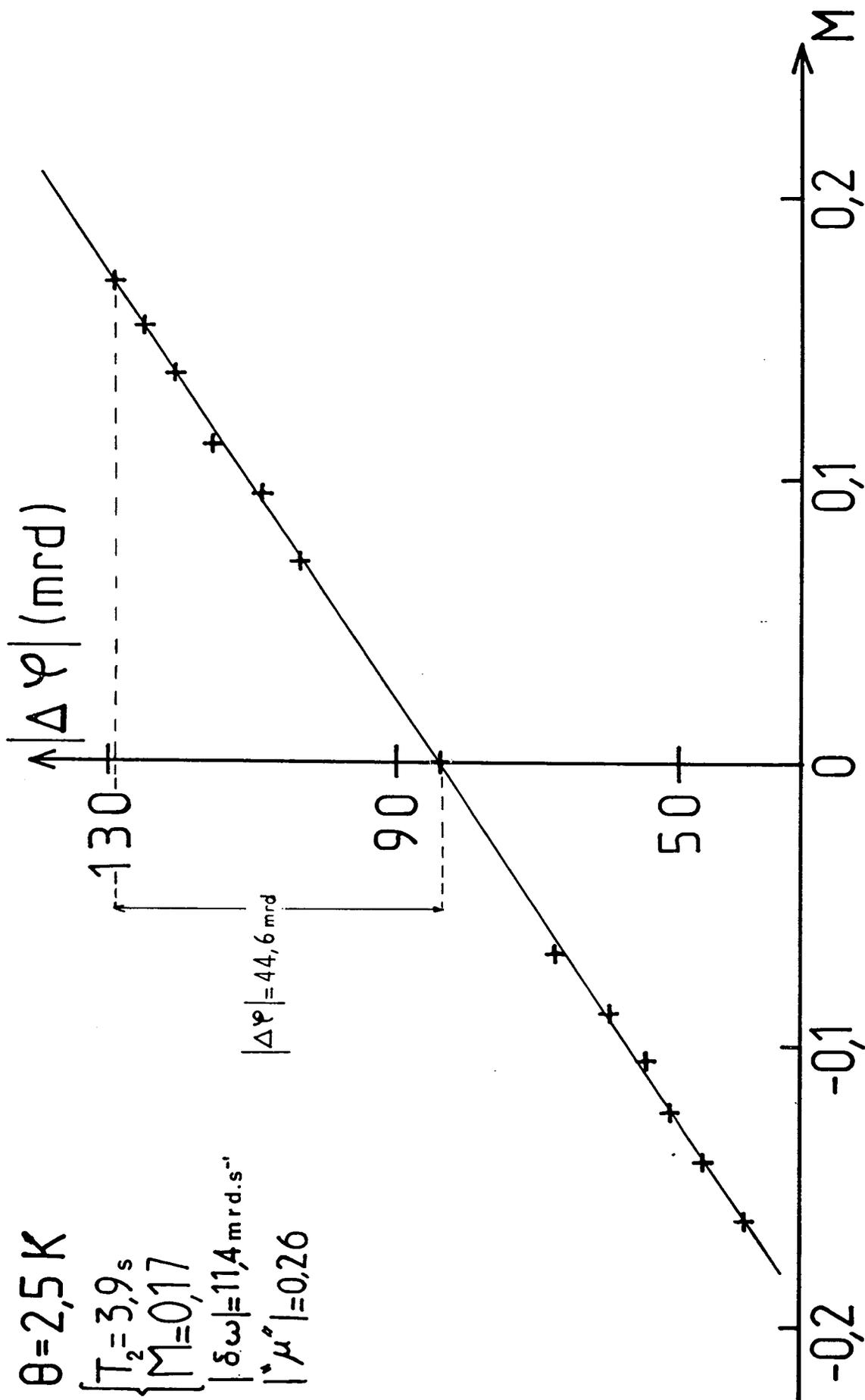
Cependant le réglage de  $\omega'$  n'est, en pratique, qu'approximatif. Il est beaucoup plus précis de fixer  $\omega'$  à une valeur arbitraire, voisine de  $\omega_0$ , et de mesurer  $\omega - \omega'$  en faisant varier  $M$ . Une séquence complète de mesures consiste alors en une alternance d'impulsions  $\pi/20$ , (pour mesurer  $(\omega - \omega')$  et  $T_2$ ) et d'impulsions  $\pi$  (pour retourner l'aimantation, c'est-à-dire changer le signe de  $M$ ). Au cours de ces opérations,  $M$  est progressivement réduite: son amplitude décroît sous l'effet conjugué de la relaxation nucléaire et des pertes provoquées par chaque impulsion de radiofréquence. Chaque renversement provoque la destruction de quelques pour cent de l'aimantation (voir § III-D-1). Les mesures sont, elles, assez peu destructives: l'angle de basculement  $\alpha$  a été choisi égal à  $\pi/20$  de manière à obtenir un bon rapport signal/bruit tout en créant une composante transverse  $M_{\perp}$  faible par rapport à la composante longitudinale  $M_z$ . Ainsi, si  $M^0$  est la valeur de l'aimantation avant l'impulsion, on a après celle-ci :

$$M_{\perp} = M^0 \sin (\pi/20) \simeq 0,16 M^0$$

$$M_z = M^0 \cos (\pi/20) \simeq 0,99 M^0$$

Habituellement, après dix alternances,  $M$  est environ divisé par 5. Nous obtenons alors une mesure de  $\Delta\varphi$  en fonction de  $M$  pour une vingtaine de valeurs, positives et négatives. Un exemple des résultats obtenus est présenté sur la figure I-18. Pour chaque séquence, on trace la droite passant au mieux par l'ensemble des points expérimentaux: sa pente donne a priori directement le coefficient  $\mu$ .

L'ordre de grandeur des déplacements de fréquence enregistrés est assez faible. Par exemple, à  $T = 2K$  où le coefficient  $\mu$  vaut 0,5, la variation de phase escomptée est égale à 0,2 radian pour une polarisation égale à 40%: si  $T_2$  vaut 5 secondes, ceci correspond à un déplacement de fréquence :



Exemple de mesures de la variation de phase  $\Delta\varphi = \delta\omega \cdot T_2$   
en fonction du taux de polarisation ( $T_2$  : temps de  
relaxation transversale).

fig.I-18

$$\delta\nu = \delta\omega/2\pi \approx 6 \text{ mHz}$$

Les fluctuations du champ magnétique sur l'échantillon, bien que réduites par le cylindre supraconducteur, entraînent une dispersion sensible des points expérimentaux. L'alignement imparfait des points sur la figure I-18 est caractéristique des variations de champ statique pendant la nuit, où la stabilité est nettement meilleure. Ces variations sont dix fois plus grandes au cours de la journée et gênent considérablement les mesures (fig. I-19). Il est néanmoins possible d'éliminer en partie l'effet de ces variations pour les séquences de courte durée : on peut en effet dépouiller les résultats en supposant la dérive constante au cours de l'expérience. La soustraction du déplacement de fréquence parasite entre deux mesures successives permet de rétablir un alignement convenable (fig. I-20) des points expérimentaux, et la précision atteinte sur la pente de la droite  $\Delta\varphi = f(M)$  s'en trouve accrue. Les quelques résultats obtenus par ce procédé sont en bon accord avec ceux qui sont obtenus directement pendant les périodes nocturnes les plus calmes (lorsque toute activité est suspendue dans le laboratoire, et en gare RER du Luxembourg).

Pour déterminer  $T_2$ , on peut utiliser l'ensemble des données fournies par les mesures d'une même séquence et en faire la moyenne. Mais la précision est bien meilleure si nous basculons en fin de séquence toute l'aimantation longitudinale restante, à l'aide d'une impulsion  $\pi/2$  : le rapport signal/bruit est considérablement augmenté par rapport aux mesures effectuées avec  $\alpha = \pi/20$ . De plus, cela permet de supprimer tout effet systématique dépendant de  $M_z$  et susceptible d'affecter la mesure de  $T_2$ , puisque toute l'aimantation est alors transverse. Nous obtenons en même temps la valeur du déphasage résiduel  $\Delta\varphi$  à aimantation longitudinale nulle, qui fournit un point expérimental de la courbe  $\Delta\varphi = f(M)$  bien plus précis que les derniers points de la séquence, où le signal/bruit est moins bon.

#### IV-A-2) Calibration de l'amplitude du signal détecté

La méthode de mesure décrite au paragraphe précédent permet de déterminer la valeur du coefficient  $\mu$ , à condition de connaître la valeur de l'aimantation longitudinale juste après chaque impulsion de radiofréquence

$\theta = 2,5K$   
 $T_2 = 6s$   
 $M = 0,15$

-77bis-

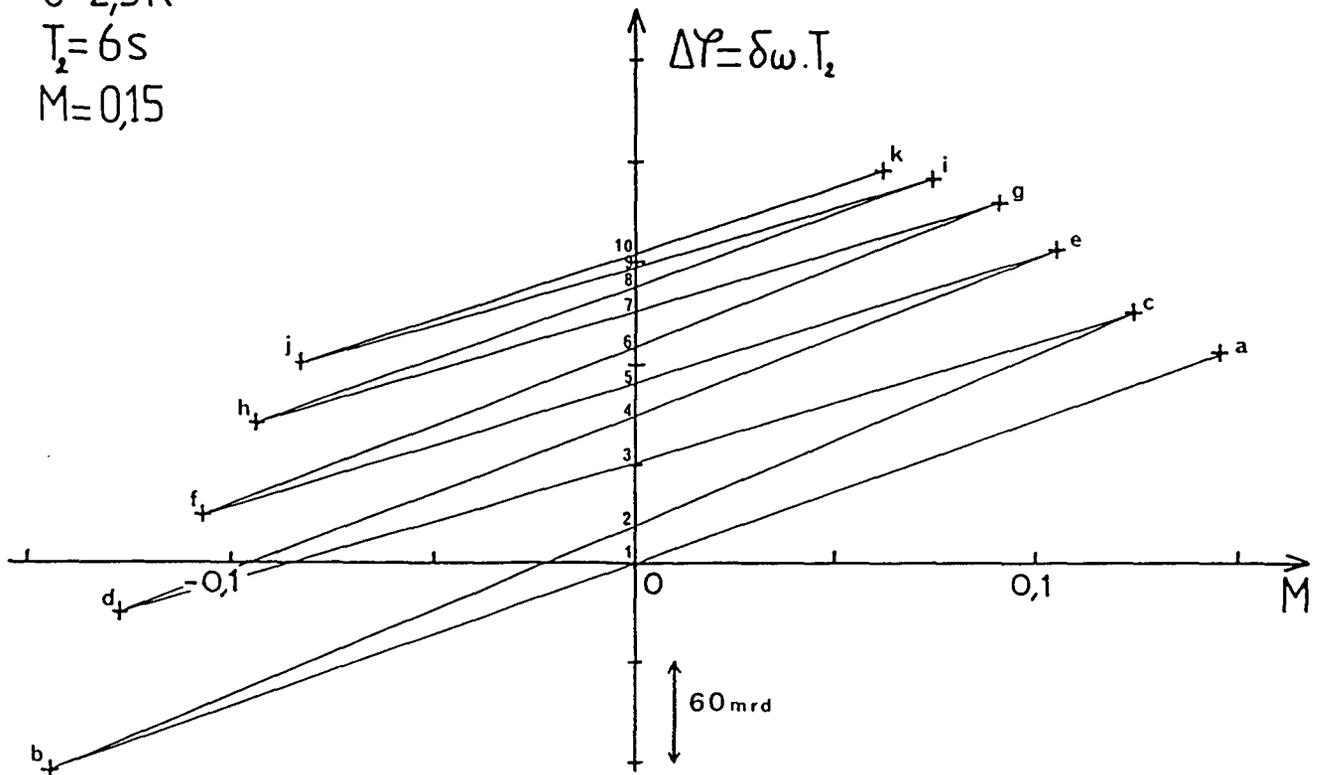


fig I-19:

Un autre exemple de résultats, dans le cas d'une dérive du champ magnétique au cours de la séquence de mesure.

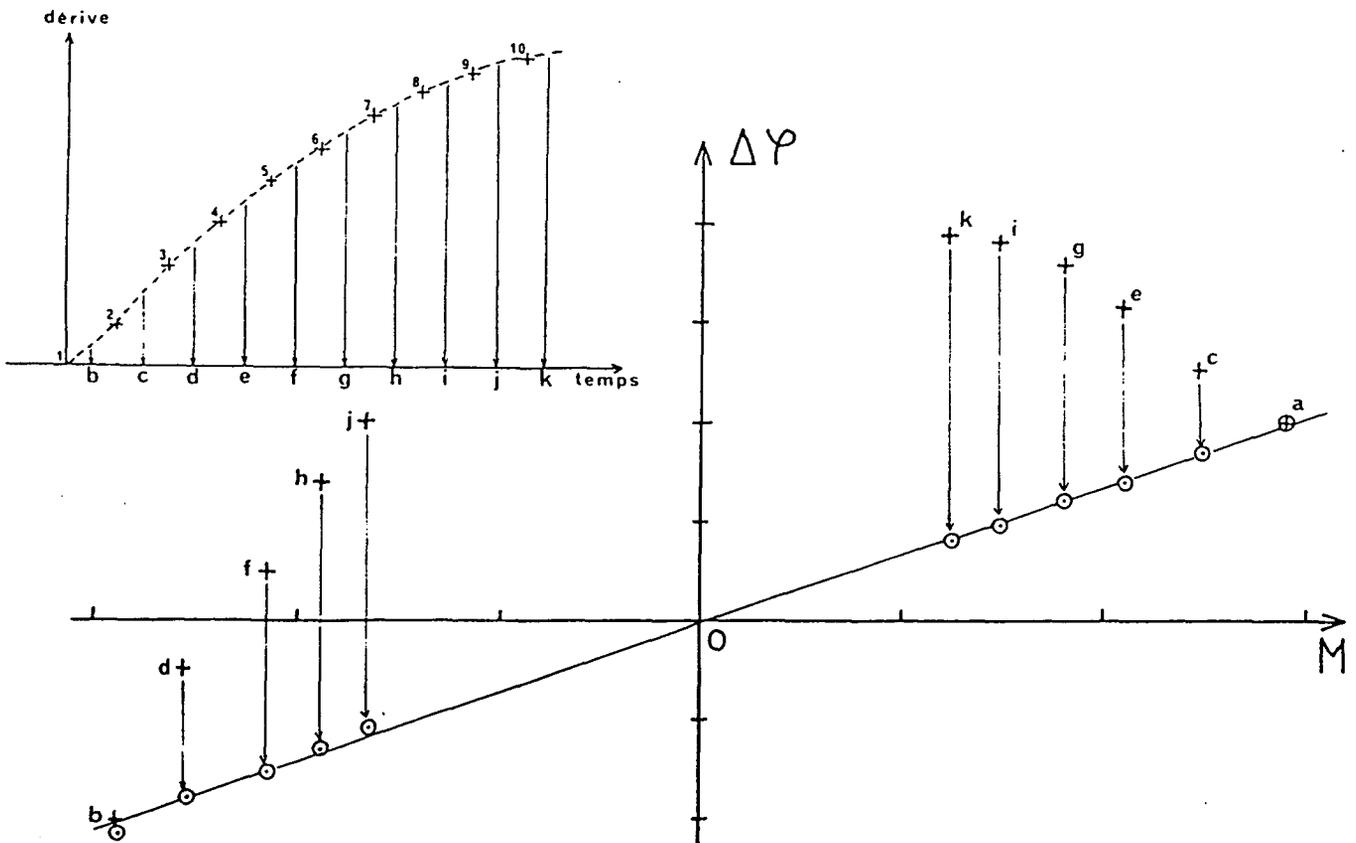


fig I-20: Exploitation des résultats pour s'affranchir de cette dérive temporelle.

appliquée. Pour cela, il faut être capable de relier l'amplitude du signal électrique détecté à la valeur absolue de l'aimantation  $M$ . La calibration des signaux RMN n'est pas un problème trivial, et malgré le soin que nous y avons apporté, l'imprécision sur la valeur de  $M$  reste la source d'erreur principale pour la détermination de  $\mu$ .

Une méthode directe de calibration du signal RMN consiste à calculer le signal induit par la précession de l'aimantation transversale aux bornes du circuit de détection, dont les caractéristiques géométriques, le nombre de tours ( $n$ ) et la surtension ( $Q$ ) sont supposés connus. Pour une cellule sphérique (de rayon  $R$ ), située à égale distance ( $\ell$ ) de deux bobines (de rayon  $r$ ), l'expression du signal  $S$  détecté à laquelle on aboutit est :

$$S = n \omega Q \mu_0 \eta (g_n \mu_n / 2) N M_{\perp}$$

où  $g_n$  est le facteur de Landé de  $^3\text{He}$ ,  $\mu_n$  le magnéton nucléaire,  $N$  le nombre total d'atomes présents dans le volume  $V_2$  et  $M_{\perp} = M_z \tan \pi/20$  avec  $|M_z| \leq 1$ . Le facteur géométrique de remplissage  $\eta$  introduit ici est égal à  $\beta/n\mu_0$ ,  $\beta$  étant le coefficient de couplage introduit au paragraphe III-D-2. On a donc :

$$\eta = \frac{r^2}{(r^2 + \ell^2)^{3/2}} = \frac{1}{r} \cdot \frac{1}{(1 + \ell^2/r^2)^{3/2}}$$

Pour les bobines utilisées, qui sont telles que  $r = 1,3\text{cm}$  et  $\ell = 0,9\text{cm}$ , on trouve :  $\eta = 0,43\text{cm}^{-1}$ . Cette méthode de calibration présente l'inconvénient de nécessiter une mesure précise du coefficient de surtension  $Q$  du circuit. Or celui-ci peut varier en cours d'expérience; les caractéristiques électriques du circuit dépendent légèrement de la température, et plus sensiblement du nombre de cycles thermiques subis depuis sa réalisation.

C'est pourquoi nous avons préféré, en règle générale, employer une méthode de calibration moins directe mais plus précise. Elle consiste à comparer le signal  $S$  des spins au signal  $S'$  induit dans le même circuit par

une petite spire indépendante, placée au centre d'une des bobines de détection (fig. I-21) et parcourue par quelques  $\mu\text{A}$ . Soient  $n'$  le nombre de tours de la petite bobine,  $r'$  son rayon et  $i$  le courant qui y circule; l'expression du signal  $S$  est :

$$S' = n \omega Q \eta' \mu_0 M' \quad (\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ SI})$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \eta' = \frac{1}{2r} \left( 1 + \frac{1}{(1 + 4l^2/r^2)^{3/2}} \right) \\ M' = n'(\pi r'^2) i \end{array} \right.$$

Avec la géométrie précédente, le facteur de remplissage  $\eta'$  associé à cette petite bobine vaut  $0,60\text{cm}^{-1}$ . La calibration peut être effectuée à toute température, et vérifiée à chaque instant.

Les résultats des deux méthodes sont en bon accord, la seconde est à la fois plus précise et plus fiable : elle permet de s'affranchir de la mesure de  $Q$ , et de la calibration absolue de la sensibilité de chaque appareil de la chaîne de détection.

Tout le problème se ramène alors à la détermination du nombre d'atomes contenu dans le volume  $V_2$ . Ce nombre dépend du volume interne de la cellule, difficile à mesurer précisément, et de la densité atomique, qui varie avec la carte des températures sur toute l'étendue de la double cellule. En effet, c'est la pression, et donc le nombre total d'atomes contenus dans l'ensemble de la cellule, qui sont fixés lors de son remplissage. Dans ces conditions, on peut estimer à  $\pm 5\%$  l'incertitude relative sur la valeur de l'alimentation nucléaire du gaz, alors que la résolution de la mesure radioélectrique est évidemment bien meilleure.

#### IV-A-3) Précision globale des mesures

En fin de compte, l'incertitude sur la détermination de  $\mu$  a plusieurs origines; nous les résumons ici dans le but d'en comparer l'importance.

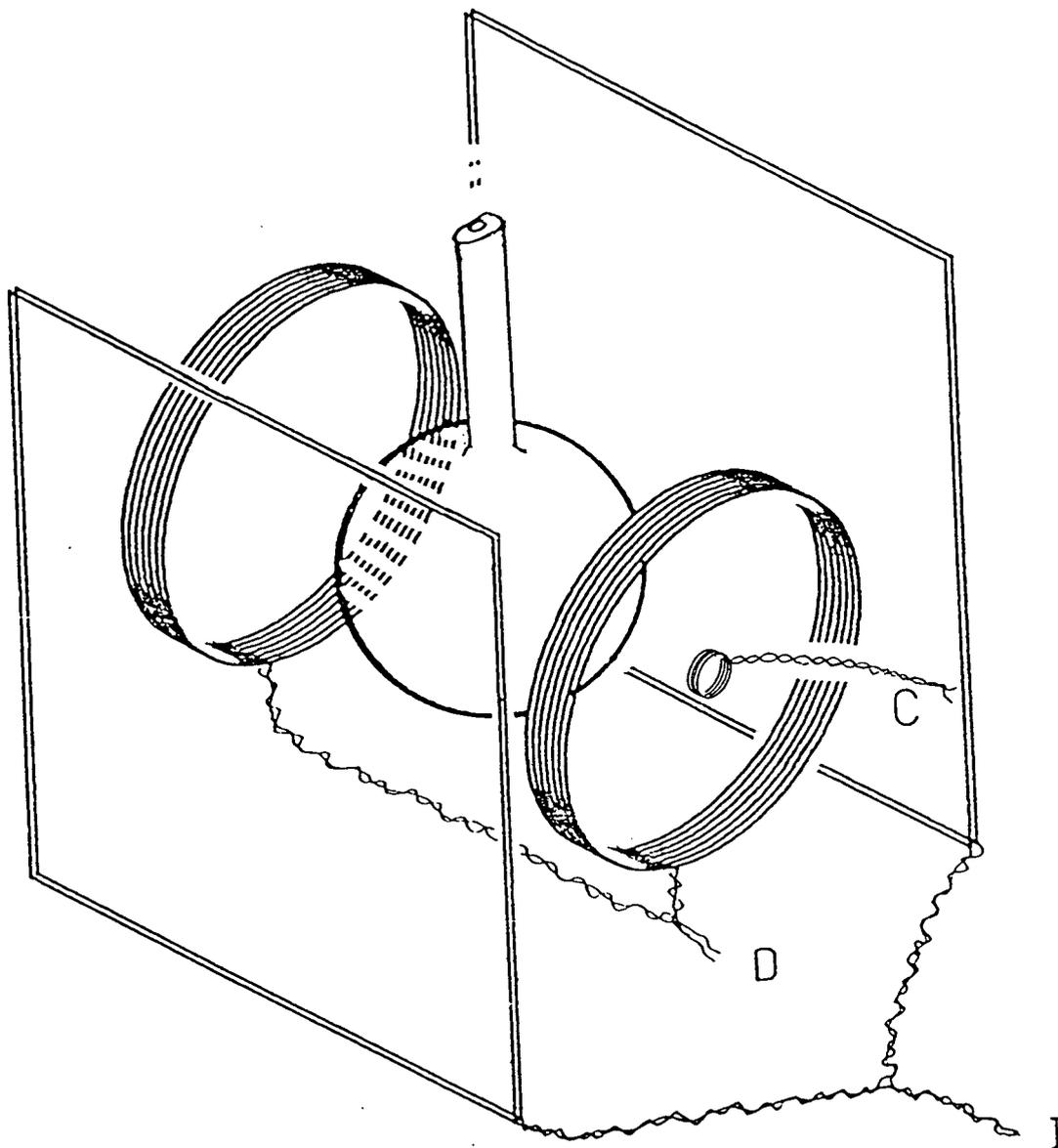


Fig. I-21 : Détail de la bobine utilisée pour la calibration des signaux RMN.

La petite bobine de calibration (C) est placée dans le plan d'une des bobines de détection (D), au centre de celle-ci.

• L'incertitude  $\Delta\mu_{B_0}$ , correspondant aux fluctuations temporelles du champ  $B_0$ , peut être estimée, dans les meilleurs cas (la nuit en particulier), de l'ordre de

$$\Delta\mu_{B_0} = \pm 0,01$$

Cette incertitude, résultant directement de l'instabilité de  $\omega_0$ , sera a priori proportionnelle à  $T_2/M$ .

• Même en l'absence de fluctuations du champ magnétique, la précision de la détermination de  $\omega - \omega'$  est limitée par le rapport signal/bruit de chaque mesure de la fréquence de précession. L'incertitude  $\Delta\mu_{S/B}$  qui en résulte est, dans le cas de la mesure présentée sur la figure I-18, au pire de l'ordre de:

$$\Delta\mu_{S/B} = \pm 0,01\mu$$

L'origine essentielle du bruit provient du système de détection: l'incertitude  $\Delta\mu_{S/B}$  est donc d'autant plus faible que le taux d'orientation initial est élevé, et que la densité d'atomes de  $^3\text{He}$  est grande (c'est-à-dire à basse température).

• Enfin, la détermination de  $\mu$  suppose la connaissance absolue de  $M$ . Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent (IV-A-2), malgré la précision de la mesure relative des diverses aimantations, la valeur absolue de  $M$  n'est pas déterminée à mieux que  $\pm 5\%$ . L'incertitude relative  $\Delta\mu_M/\mu$  qui en résulte est égale, <sup>à  $\pm 5\%$</sup>   $\frac{1}{C\theta}$  qui conduit à:

$$\Delta\mu_M = \pm 0,05\mu$$

C'est cette dernière cause qui limite la précision de nos déterminations du coefficient  $\mu$  (sauf aux plus hautes températures où celui-ci est faible). Avant de présenter les résultats obtenus et les barres d'erreurs correspondantes, nous discuterons la nature des erreurs systématiques possibles dans nos expériences au paragraphe IV-2.

#### IV-A-4) Détermination expérimentale du signe de $\mu$

Il est possible, dans nos expériences, de déterminer le signe du coefficient  $\mu$  sans ambiguïté. L'effet quantique mesuré est en effet impair en  $M$ , puisque l'on a  $\Delta\omega T_2 = \mu M$ : il suffit donc de déterminer à la fois le signe du déplacement de fréquence  $\Delta\omega = \omega - \omega'$  et celui de l'aimantation  $M$ .

Pour connaître le signe de  $\Delta\omega$ , nous avons simplement relevé le signe de la variation de phase enregistrée pour un signal oscillant à une fréquence  $\omega''$  connue, légèrement inférieure puis supérieure à la fréquence  $\omega'$  de référence. Ceci se fait aisément à l'aide d'un synthétiseur et de la petite bobine de calibration.

La détermination du signe de  $M$  est un peu plus délicate. Rappelons d'abord que la définition employée ici (identique à celle de la référence [3]) est :

$$\vec{M} = 2\vec{I}/\hbar$$

$\vec{M}$  est ainsi un vecteur parallèle à  $\vec{I}$  (moment cinétique de spin nucléaire), de module compris entre 0 et 1. Le signe de la projection de  $\vec{M}$  sur l'axe Oz (orienté selon le champ magnétique  $\vec{B}_0$ ) dépend de l'orientation de  $\vec{M}$  par rapport à  $\vec{B}_0$ . Une première méthode consiste à repérer les axes lent et rapide de la lame quart d'onde utilisée pour le pompage optique afin de savoir si la lumière envoyée sur les atomes est polarisée circulairement  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ . Nous avons préféré mettre à profit la possibilité d'observation de l'effet maser que nous offre notre dispositif expérimental. En effet, l'orientation qui permet le déclenchement de l'oscillation maser est telle que l'énergie du système  $E = -\vec{\mu}_0 \cdot \vec{B}_0$  soit positive. Dans cette expression,  $\vec{\mu}_0$  désigne le moment magnétique des atomes; il est opposé à  $\vec{I}$  (et donc aussi à  $\vec{M}$ ) puisque  $\vec{\mu}_0 = \gamma\vec{I}$  et que le facteur gyromagnétique  $\gamma$  de  $^3\text{He}$  est négatif. En tournant la lame  $\lambda/4$  de manière à observer l'effet maser, nous savons que le pompage optique des atomes les oriente de manière à ce que  $\mu_{0z}$  soit négatif, c'est-à-dire que l'on ait  $M_z > 0$ ; dans la cellule, l'orientation nucléaire après pompage est alors  $M = +|M|$ ; elle devient  $M = -|M|$  à la suite d'un nombre impair d'impulsions  $\pi$  de retournement.

#### IV-B. ERREURS SYSTEMATIQUES POSSIBLES

Plusieurs effets systématiques sont susceptibles d'entacher d'erreur

les résultats obtenus grâce à la méthode de mesure décrite au paragraphe précédent. Plutôt que de présenter l'ensemble des calculs détaillés, nous nous proposons ici de discuter l'origine physique des différents phénomènes et d'évaluer leur importance relative. Pour cela, nous utiliserons des modèles simples qui permettent de déterminer l'ordre de grandeur caractéristique de chaque effet.

Les phénomènes parasites gênants pour nos expériences sont, d'une manière générale, tous ceux qui sont susceptibles de perturber le signal de précession libre des spins nucléaires. Néanmoins, compte tenu de la nature très particulière de la méthode de mesure employée, il ne reste a priori qu'à prendre en compte, parmi eux, ceux qui induisent des déplacements de fréquence proportionnels à l'aimantation du gaz. Nous les présentons ci-après, regroupés par origine matérielle : bobines de détection, forme géométrique de la cellule et cylindre supraconducteur.

#### IV-B-1) Influence du circuit de détection

L'effet du couplage entre l'aimantation transversale et le circuit électrique de détection a fait l'objet d'une étude détaillée, au chapitre II. Nous avons également déjà indiqué (§ III-D) comment le dispositif expérimental a été modifié pour réduire la perturbation induite sur le signal de précession des spins. Les éventuels déplacements de fréquence résiduels sont nettement inférieurs à l'incertitude expérimentale sur la mesure de la fréquence de précession.

#### IV-B-2) Influence de la géométrie de la cellule

La géométrie des cellules que nous utilisons peut intervenir de deux manières : par l'existence du tube de verre qui permet le transfert de polarisation entre  $V_1$  et  $V_2$ , et par la forme même du volume  $V_2$ .

Le tube de verre comporte une partie froide, située au-dessus du volume  $V_2$ . Supposons que le temps d'échange entre le tuyau et  $V_2$  soit plus court que la durée d'une mesure (quelques fois le temps de relaxation transversale  $T_2$ ) : au cours d'une expérience, les atomes initialement

contenus dans  $V_2$  peuvent explorer une partie du tuyau situé juste au-dessus de ce volume. Dans cette région, où les atomes sont polarisés et où la température est sensiblement la même que dans  $V_2$ , l'effet de rotation de spins identiques se manifeste aussi. Pendant leur séjour dans le tuyau, les atomes peuvent accumuler un déphasage supplémentaire  $\delta\nu'$  avant de revenir dans  $V_2$ .  $\delta\nu'$  est a priori très différent du déphasage qu'ils auraient subi dans  $V_2$ , puisque dans cette partie du tube les modes de diffusion et la carte de champ ne sont pas les mêmes. Cet effet est particulièrement important lorsque  $T_2$  est long; c'est pour l'éliminer que la forte constriction du tube s'est révélée nécessaire au ras de  $V_2$  (fig. I-22a) : grâce à elle, les atomes sont efficacement confinés dans  $V_2$  et les modes de diffusion correspondent à une géométrie bien définie.

La présence du tuyau présente un autre inconvénient : il renferme, dans la partie froide située au-dessus de la constriction, une forte densité d'atomes polarisés. Ceux-ci induisent au niveau de  $V_2$  un champ magnétique supplémentaire  $\delta B$  qui agit sur la précession de l'aimantation transversale. L'amplitude de ce champ varie linéairement avec  $M$ , et sa direction est parallèle à l'axe  $Oz$  en première approximation. Pour obtenir un ordre de grandeur du déplacement de fréquence associé, nous pouvons calculer la contribution du petit nombre d'atomes contenus dans un petit volume  $v$  (supposé sphérique) situé à une hauteur  $h$  du centre de la cellule (fig. I-22a). Etant donné que le champ  $\delta B$  est harmonique (ses sources sont situées hors de  $V_2$ ), sa valeur moyenne sur la sphère  $V_2$  est égale à sa valeur au centre, qui vaut:

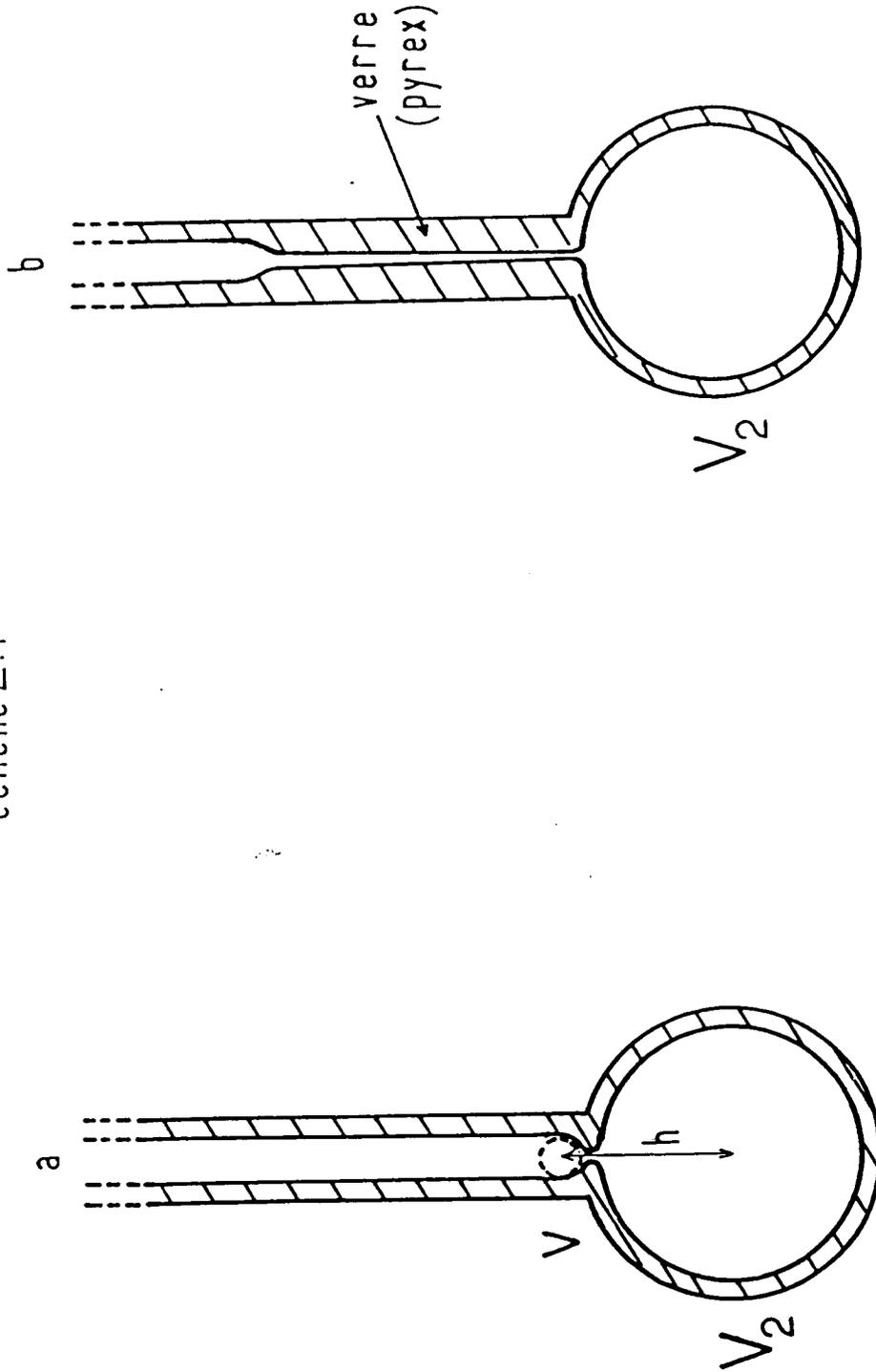
$$\delta B = \frac{\mu_0}{4\pi} \cdot \frac{2 \mathcal{M}_v}{h^3}$$

avec  $\mathcal{M}_v = d v M \cdot (g_\mu \mu_n / 2)$  ;  $d$  désigne ici la densité d'atomes dans le tuyau. Pour une sphère de 3mm de diamètre et une densité équivalant à 45 torr à 300K, on a:

$$\mathcal{M}_v \approx 2 \cdot 10^{-10} \times M \text{ (SI)}$$

A une distance  $h \approx 10\text{mm}$ , on a :

échelle 2:1



Détail de la partie froide de la cellule (volume  $V_2$ )

- a : cellule comportant une constriction à l'extrémité du tube qui relie  $V_1$  à  $V_2$ .
- b : cellule comportant une section de capillaire, étiré à son extrémité pour former une constriction.

Fig. I-22

$$\delta B = M \times 0,4 \mu G$$

Le déplacement de fréquence associé, linéaire en l'orientation  $M$ , correspond pour  $T_2 = 10s$  à une modification  $\Delta$  de la pente de la droite  $\delta \nu = f(M)$  de l'ordre de:

$$\Delta = \frac{|\gamma \delta B| T_2}{M} \approx 0,08$$

Sachant qu'à la température considérée ( $T = 2K$ ), le coefficient  $\mu$  à mesurer vaut environ 0,7 en valeur absolue, on voit que l'écart relatif introduit par l'effet du tuyau excède 10%. La solution adoptée pour s'en affranchir consiste à remplacer à ce niveau le tube de 3mm de diamètre par une section de capillaire (sur une longueur  $\ell = 2cm$ ), de diamètre 1mm étiré à son extrémité pour former la constriction (fig. I-22b). Le nombre d'atomes orientés au voisinage de  $V_2$  est ainsi considérablement réduit, et l'effet gênant diminué de plus d'un ordre de grandeur.

Enfin, les imperfections géométriques du volume  $V_2$  lui-même peuvent induire un déplacement de fréquence parasite proportionnel à  $M$ . Dans le cas d'une sphère parfaite, le champ magnétique créé par les moments magnétiques des atomes contenus dans  $V_2$  n'intervient pas dans l'évolution temporelle de  $\vec{M}$  (voir l'analyse du III-B-2a dans la deuxième partie). En revanche, si  $V_2$  est un volume asphérique, le champ des atomes sur eux mêmes peut n'être ni nul ni parallèle à  $\vec{M}$ . Le déplacement de fréquence, proportionnel à  $M$ , qui en résulte est difficile à calculer: il dépend de la forme exacte de  $V_2$ , qui varie a priori d'une cellule à l'autre. Mais on voit mal comment cet effet serait plus important que celui du tuyau estimé précédemment, dans la mesure où on peut vérifier que les dimensions extrêmes de  $V_2$  s'écartent au plus de quelques pour cent de son diamètre moyen.

#### IV-B-3) Influence du cylindre supraconducteur

Le cylindre supraconducteur, utilisé pour stabiliser le champ statique

$B_0$ , constitue une autre source d'effet parasite. En effet, la création d'une orientation nucléaire dans  $V_2$  s'accompagne de l'apparition d'un champ  $B'_z$ , produit par les atomes eux-mêmes à l'extérieur de  $V_2$ . Pour compenser la variation correspondante de flux au travers de la section droite du cylindre, des courants électriques apparaissent à sa surface: ils créent un champ magnétique égal et opposé à  $B'_z$ . Lorsqu'une partie de l'aimantation est basculée, le champ créé par le cylindre peut agir sur la composante transversale de l'aimantation. Le calcul du déplacement de fréquence (proportionnel à  $M$ ) qui en résulte peut être mené à l'aide de l'"image magnétique" de la cellule dans le cylindre supraconducteur, mais le résultat n'est pas aussi immédiat que dans le cas d'un plan infini supraconducteur. Pour obtenir un ordre de grandeur de l'effet, on peut aussi simplement raisonner comme suit. Soit  $\Phi$  le flux du champ  $B'_z$  des atomes à travers une section droite du cylindre passant par le centre de  $V_2$ . Le flux de  $B$  étant conservatif,  $\Phi$  est aussi égal (en valeur absolue) au flux à travers le reste du plan, qui s'étend du cylindre à l'infini. Nous obtenons donc:

$$\Phi = \int_R^{\infty} \frac{\mu_0}{4\pi} \cdot \frac{2 M_G}{r^3} \cdot 2\pi r \, dr = \frac{\mu_0 M_G}{R}$$

si  $R$  est le rayon du cylindre et  $M_G$  le moment magnétique des atomes. Le champ moyen ramené au centre de la cellule est de l'ordre de :

$$\overline{\Delta B} \approx \frac{\Phi}{\pi R^2} = \frac{\mu_0 M_G}{\pi R^3}$$

Avec  $R = 4,7 \text{ cm}$  et  $M_G \approx 1,2 \cdot 10^{-8} \text{ M (SI)}$ , le déplacement de fréquence associé vaut environ :

$$\overline{\Delta \omega} = M \times 1,4 \text{ mrd/s}$$

Pour  $T_2 = 5$  secondes, la correction à  $\mu$  est de l'ordre de  $7 \cdot 10^{-3}$ , soit 1% de valeur relative à  $T = 2 \text{ K}$ . Un calcul numérique de l'effet, qui tient compte de la modification des lignes de champ par le cylindre et de sa taille finie conduit à une valeur légèrement différente, mais du même ordre de grandeur.

Finalement, les diverses sources d'erreurs systématiques envisagées

sont à l'origine d'effets d'importance variable. Ceux qui dominaient ont été réduits (réaction du circuit, effets du tuyau) : les autres sont difficiles à éliminer (asphéricité, influence du supraconducteur). En règle générale, leur effet s'accroît à basse température, où la densité est plus élevée. Il devient alors presque égal à la précision globale des mesures effectuées, de l'ordre de  $\pm 5\%$ . Nous verrons au paragraphe suivant comment nous pouvons utiliser les résultats expérimentaux pour obtenir des valeurs de  $\mu$  avec une barre d'erreur qui est peu sensible à l'accumulation des erreurs systématiques précédemment citées.

#### IV-C. MESURES DU COEFFICIENT $\mu$

L'analyse du paragraphe précédent a permis de recenser un certain nombre de sources d'erreurs systématiques, qui n'ont pas toutes pu être éliminées. Il est important de noter qu'aucun de ces effets ne dépend directement de la carte de champ magnétique au niveau de la cellule, autrement dit du temps de relaxation transversale  $T_2$ . Il nous paraît difficile de concevoir un processus susceptible d'induire des déplacements de fréquence à la fois proportionnels à  $M$  et inversement proportionnels à  $T_2$ , simulant ainsi exactement l'effet quantique recherché. Nous pouvons par conséquent éliminer tous les effets parasites résiduels en effectuant des mesures pour différentes valeurs de  $T_2$ . Si nous notons  $a$  le facteur de proportionnalité entre la variation totale de pulsation due aux effets parasites et l'aimantation longitudinale  $M_z$ , la variation de pulsation effectivement mesurée s'écrit :

$$\Delta\omega = \frac{\mu M_z}{T_2} + a M_z$$

Dans ces conditions, la quantité  $\delta\varphi = \Delta\omega T_2/M_z$  vaut :

$$\delta\varphi = \mu + a T_2$$

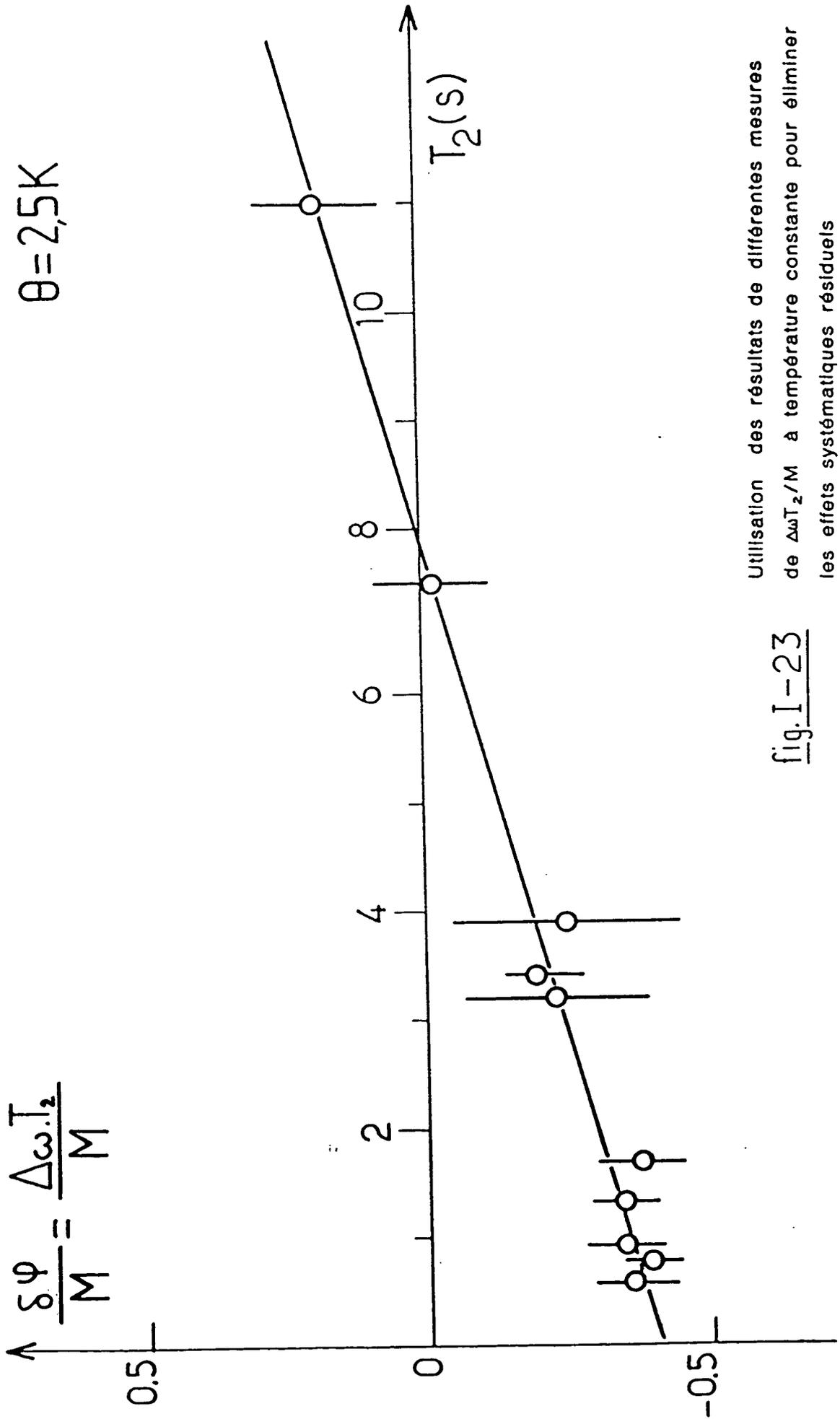
Si nous rassemblons les résultats des mesures faites à une même température pour porter  $\delta\varphi$  en fonction de  $T_2$ , nous devons obtenir une droite. Par extrapolation à  $T_2 = 0$ , celle-ci donnera la valeur exacte du coefficient  $\mu$  à cette température.

La figure I-23 donne un exemple de résultats obtenus à  $T = 2,5\text{K}$ . Elle montre que  $\delta\varphi$  est effectivement une fonction affine de  $T_2$ . Pour une précision de mesure donnée, la valeur de  $\mu$  est d'autant mieux déterminée que le nombre de points utilisés est grand, et que la gamme de variation de  $T_2$  est importante. Nous avons couramment fait varier  $T_2$  entre quelques fractions de secondes et la dizaine de secondes. Au-delà, les variations de pulsation à détecter sont trop faibles par rapport à celles engendrées par les fluctuations de  $B_0$ .

Pour une cellule donnée, la reproductibilité de chaque courbe  $\delta\varphi(T_2)$  à température fixée s'est révélée excellente au cours du temps. En revanche, des cellules différentes conduisent à des droites distinctes pour une même température. Si les pentes obtenues sont d'un ordre de grandeur comparable en valeur absolue, leur signe et leur valeur exacte sont différents. Nous attribuons ceci à l'influence de la forme géométrique des cellules employées, qui malgré les efforts déployés est très difficilement reproductible et contrôlable au moment de la fabrication. Néanmoins, à une température donnée, la valeur de l'extrapolation à  $T_2 = 0$  est la même pour toutes les cellules étudiées. L'écart entre les diverses valeurs obtenues pour le coefficient  $\mu$  est en effet inférieur à la barre d'erreur expérimentale absolue (qui est liée, rappelons-le, à la difficulté de calibration précise de l'aimantation).

L'ensemble des résultats finals a été rassemblé sur la figure I-24 qui représente la variation de  $\mu$  avec la température  $T$ . L'accord entre les points expérimentaux et la courbe théorique est très satisfaisant. Chacun d'eux s'est révélé être d'une bonne reproductibilité, même lorsque les mesures ont été refaites à plusieurs mois d'intervalle.

La figure I-24 ne présente les résultats obtenus que pour des températures  $T$  supérieures à  $2\text{K}$ , alors que notre dispositif expérimental permet d'effectuer des mesures jusqu'à  $1,25\text{K}$  environ. Nous avons en effet observé qu'en-dessous de  $2\text{K}$  les pentes des droites  $\delta\varphi = f(T_2)$  augmentent sensiblement et deviennent relativement irreproductibles d'un cycle thermique à l'autre; de plus l'importance des pentes des droites obtenues conduit à une barre d'erreur très grande pour l'extrapolation à  $T_2 = 0$ . La figure



Utilisation des résultats de différentes mesures de  $\Delta\omega T_2/M$  à température constante pour éliminer les effets systématiques résiduels

fig. I-23

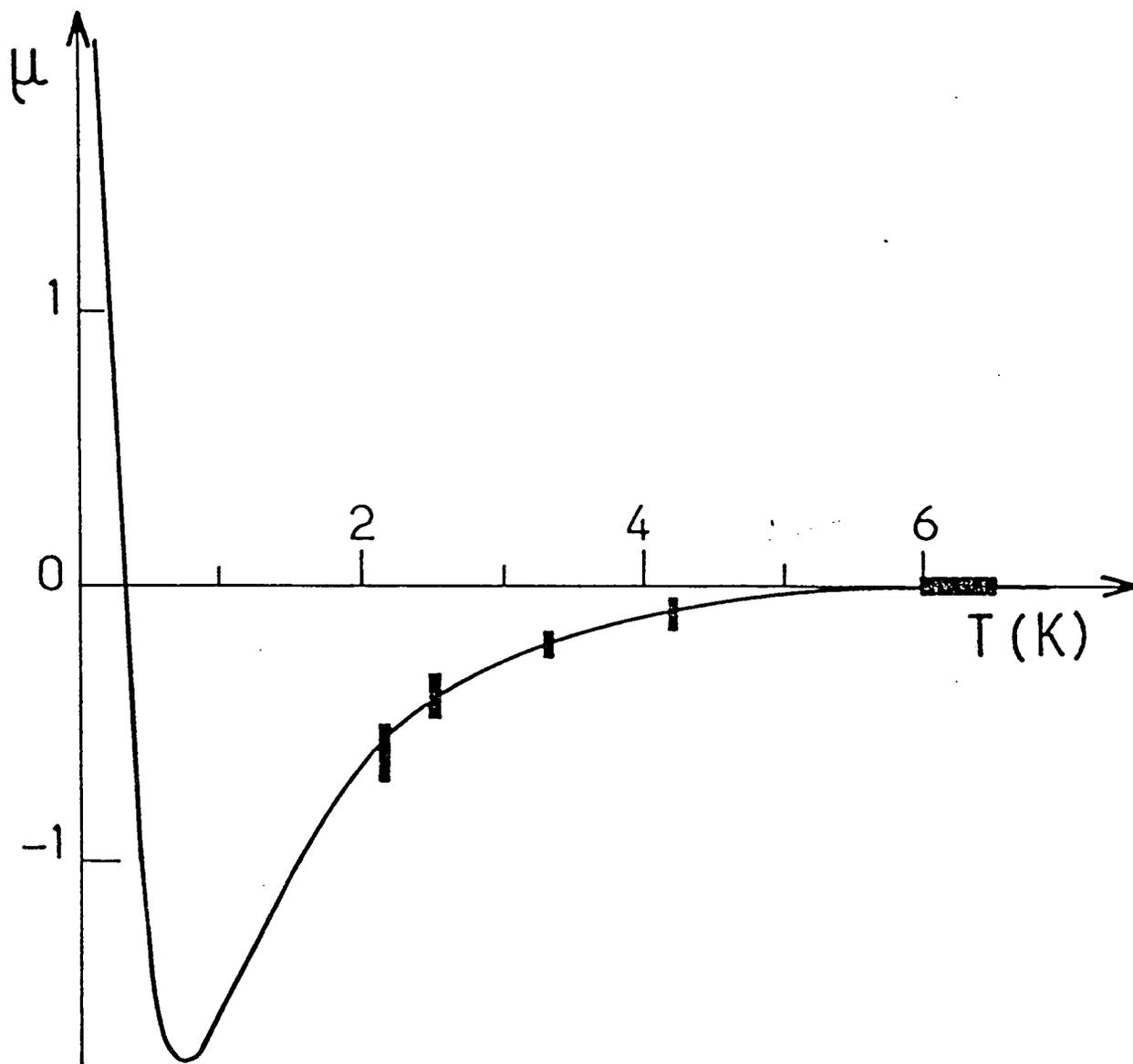


Fig.I-24

Variation du coefficient  $\mu$   
avec la température (T)

— calcul théorique [2]

■ résultats expérimentaux

I-25a illustre ceci : il s'agit des résultats d'une série d'expériences effectuées avec une même cellule à des températures variées. Dans d'autres expériences, les pentes des droites  $\delta\psi = f(T_2)$  atteignent  $-550\text{s}^{-1}$ . à  $T = 1,5\text{K}$ , et en dessous de  $1,4\text{K}$  les points expérimentaux forment des courbes d'allure parabolique.

Nous n'avons pas de modèle simple et convaincant susceptible d'expliquer ce comportement anormal à basse température. Il est toutefois remarquable qu'il se manifeste dans la même zone de température que celui qui affecte les résultats des mesures de  $\mu$  obtenus par une méthode de détection directe des ondes de spin ([5]). Dans les deux cas, il s'agit de déplacements de fréquence, proportionnels à l'aimantation nucléaire, dont l'amplitude varie fortement avec la température. Or cette variation ne peut s'expliquer par la seule augmentation de la densité de  $^3\text{He}$  dans le volume  $V_2$  (figure I-25b). En revanche, on sait qu'à basse température le temps de séjour des atomes sur la paroi de la cellule devient important, et qu'il se forme alors à la surface de l'enduit d'hydrogène moléculaire une phase adsorbée ([3]) dont la densité augmente rapidement (fig. I-26a). Nous avons reporté sur la figure I-26b les résultats correspondant à la figure I-25a, en traçant cette fois-ci le logarithme de la pente des droites en fonction de  $1/T$ . La similitude avec les courbes de I-26a est nette. Nos points expérimentaux correspondraient à une énergie d'adsorption de  $^3\text{He}$  sur  $\text{H}_2$  égale à  $10\text{K}$ , en accord acceptable avec les résultats de la référence [3] qui donne  $\Delta W = 12 \pm 3\text{K}$ . Dans ces conditions, l'explication du phénomène serait la formation d'une monocouche de  $^3\text{He}$  quasi complète vers  $1,3\text{K}$ .

On peut imaginer divers mécanismes permettant à une telle monocouche polarisée de modifier la fréquence de précession des spins dans leur ensemble, soit par un champ créé en volume au voisinage de la surface, soit par des effets importants à l'intérieur même de la phase adsorbée (dont les atomes s'échangent constamment avec ceux du gaz).

L'explication des phénomènes observés n'est néanmoins pas triviale si on suppose la monocouche complète. En effet, une assemblée de spins uniformément répartis sur une surface sphérique, et de même polarisation que le gaz, crée un champ magnétique nul sur tout le volume de

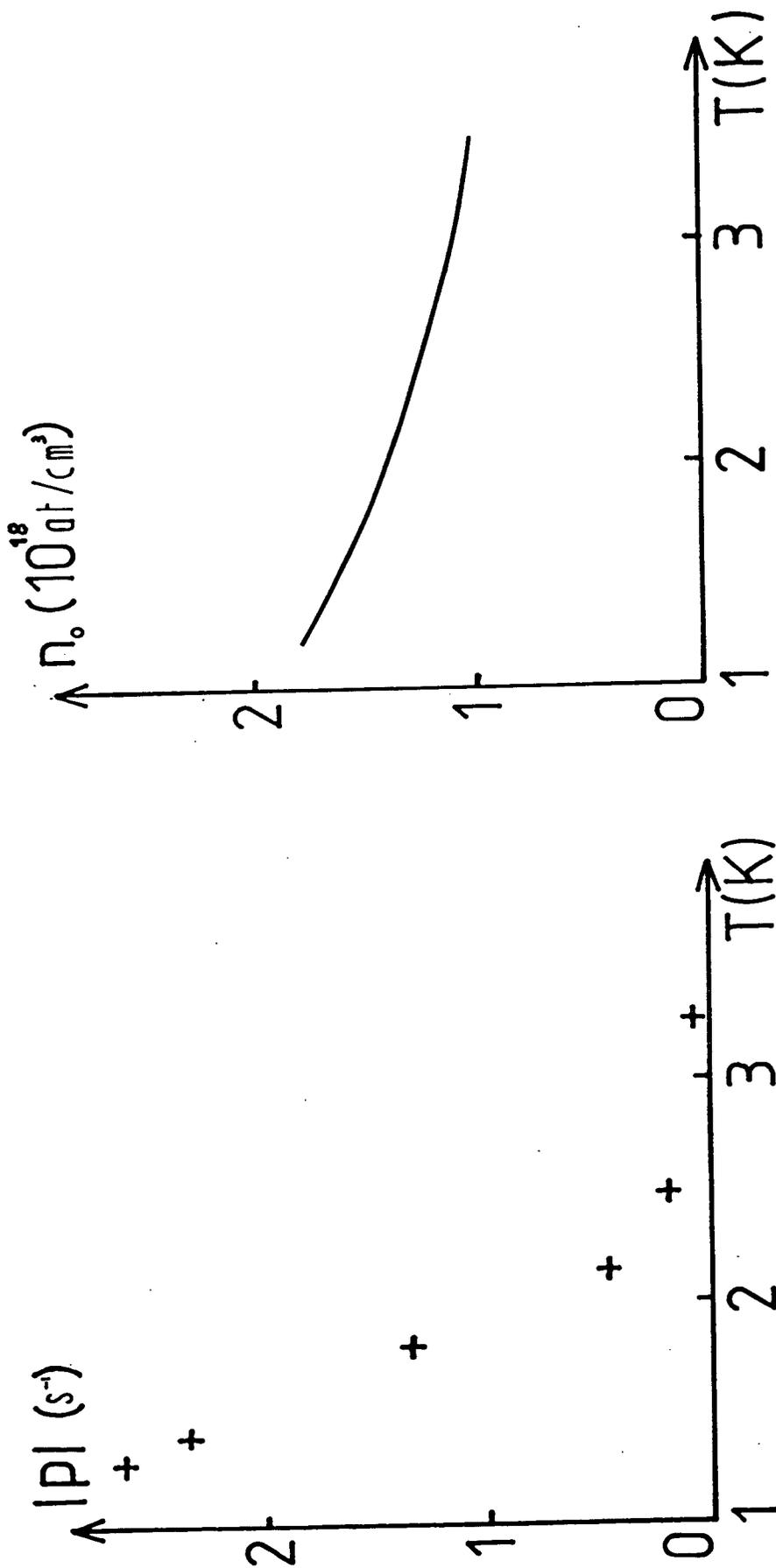
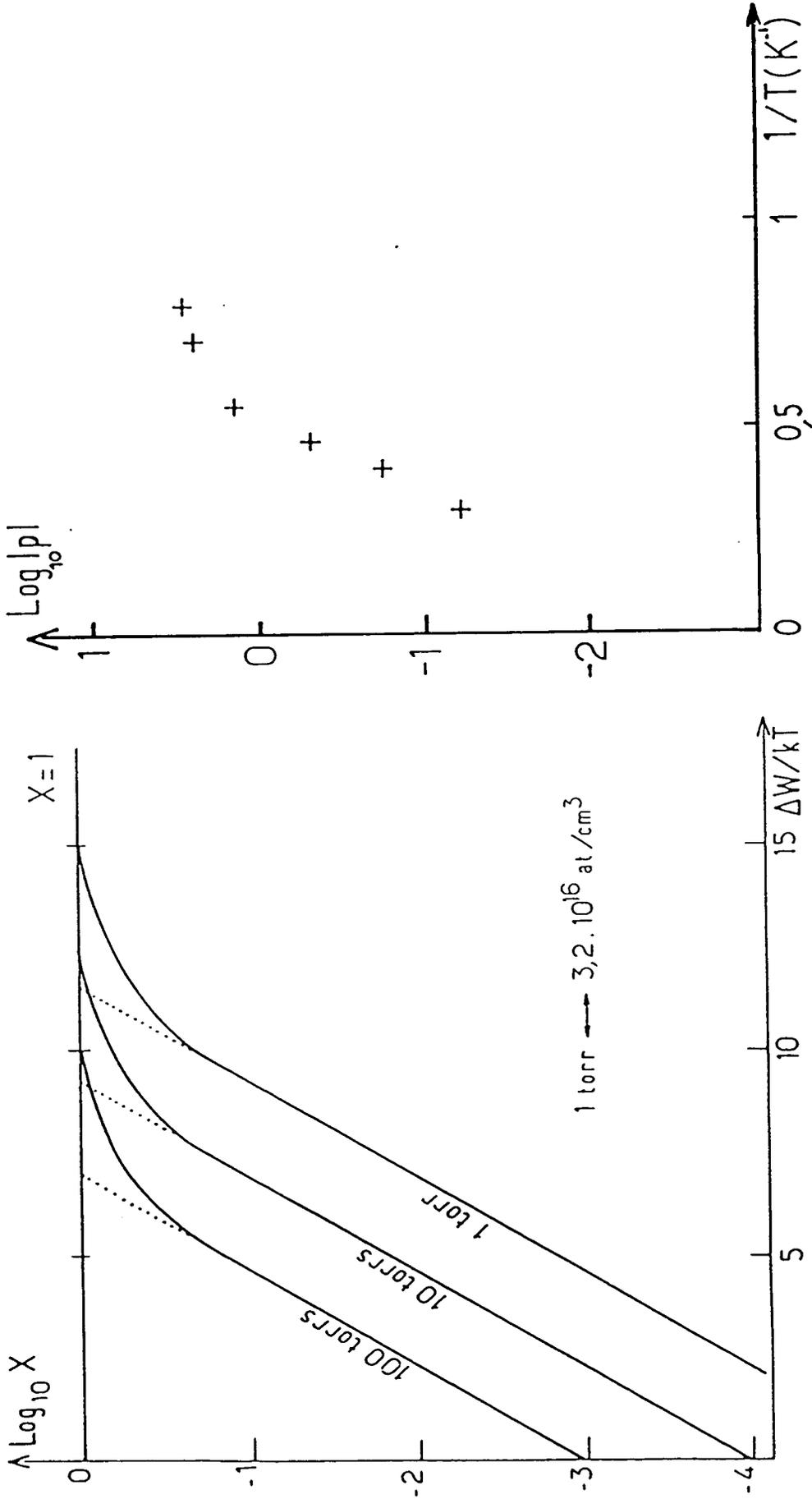


Fig. I-25

- a) Variation avec la température  $T$  de la pente  $p$  des droites obtenues en traçant  $\Delta\omega T_2/M_2$  en fonction de  $T_2$ .
- b) Variation de la densité du gaz à l'intérieur de la partie froide dans la même zone de température.



a) Taux de remplissage  $X$  d'une monocouche de  $^3\text{He}$  sur la paroi de la cellule en fonction de  $\Delta W/kT$ , dans un modèle d'adsorption localisée [3].

b) Comparaison avec les variations de la pente  $p$  (fig I-25a) en fonction de  $1/T$  pour une cellule donnée.

Fig.I-26

l'échantillon (à l'exception du voisinage immédiat de la paroi): il n'y a donc pas d'effet direct sur la fréquence de précession en volume. Au voisinage de la paroi ou sur la paroi elle-même, la situation est différente. Ainsi, le champ créé sur un spin adsorbé par le reste des atomes présents sur la paroi n'est pas nécessairement parallèle à l'aimantation: il peut donc agir directement sur celle-ci. Mais la valeur moyenne sur l'ensemble de la surface sphérique du déplacement de fréquence induit est nulle. Or, dans nos expériences, les atomes heurtent suffisamment les parois pour que s'effectue une moyenne spatiale de l'effet local de la paroi. En effet, la comparaison du temps de relaxation  $T_2$  (jusqu'à 20 secondes) au temps de diffusion dans la cellule ( $\tau_D \sim 100\text{ms}$ ) montre que chaque atome contribuant au signal observé a le temps d'explorer une grande partie de la cellule avant de perdre son orientation.

Il est cependant possible, aussi, que la phase adsorbée ne soit pas uniforme: le raisonnement précédent ne serait alors plus valable. Mais il est en tout état de cause difficile de prédire quantitativement l'effet de la présence d'une phase adsorbée en l'absence d'informations précises sur la structure de celle-ci et sur son couplage avec les atomes du gaz. Nous pensons que l'importance des processus de type "paroi" est a priori d'autant plus grande que la phase adsorbée est plus dense, ce qui leur donnerait cette signature en température caractéristique, bien différente de tous les effets volumiques non quantiques étudiés au paragraphe IV-B. Nous tenons à souligner qu'il s'agit là de spéculations, puisque nous sommes incapables d'expliquer les divergences observées à  $T \leq 1,3\text{K}$  et l'apparition de courbes  $\delta\varphi = f(T_2)$  paraboliques.

#### IV-D. CONCLUSION

En définitive, la méthode de détection indirecte que nous avons utilisée a permis de mettre clairement en évidence l'existence d'ondes de spin dans  $^3\text{He}$  gazeux, et de mesurer le coefficient  $\mu$  au-dessus de 2K. Les valeurs obtenues pour  $\mu$  sont en bon accord avec les valeurs théoriques, et avec celles trouvées par la méthode directe ([5]). Des améliorations peuvent sans doute être apportées en ce qui concerne la

mesure de l'aimantation : meilleure détermination du rayon interne de la cellule, mesure précise de la pression et de la carte des températures sur la double cellule. Mais le problème majeur est l'extension des mesures de  $\mu$  à des températures plus basses. Il serait intéressant en particulier d'obtenir des résultats précis vers 0,9K où la théorie prévoit que la valeur de  $\mu$  dépend de manière importante de la forme du potentiel interatomique choisie pour les calculs numériques. Avec la technique employée, une meilleure connaissance des propriétés de la phase adsorbée sur la paroi semble nécessaire pour progresser dans cette direction. Une autre solution consisterait à ajouter dans la cellule de l'hélium 4. Les atomes de  $^4\text{He}$ , plus liés à l'enduit d'hydrogène, tendent à s'adsorber préférentiellement à  $^3\text{He}$ , qui se trouve en quelque sorte expulsé de la paroi. Des résultats encourageants ont été obtenus au-dessus de 1,2K ([5]). Un montage cryogénique plus performant ouvrirait la possibilité de poursuivre l'étude en dessous de 1K, où il se forme un film superfluide de  $^4\text{He}$  sur la paroi, sans que la pression de vapeur saturante du gaz ne perturbe notablement le transport d'aimantation dans  $^3\text{He}$  gazeux. Toutefois, les atomes de  $^3\text{He}$  sont susceptibles d'entrer en solution dans un tel film, ou de s'adsorber à sa surface ([23]); le problème est donc ouvert de savoir dans quelle mesure une telle dissolution ou adsorption serait susceptible de perturber une mesure d'ondes de spin.

**DEUXIEME PARTIE**

**Liquéfaction d'un gaz de  $^3\text{He}$  polarisé par pompage optique**

## INTRODUCTION

La seconde partie de notre travail concerne l'étude de l'hélium 3 polarisé à des températures inférieures à 1K. Elle utilise un dispositif expérimental différent, notamment en ce qui concerne la partie cryogénique. En effet, le pompage au-dessus d'un bain de  $^4\text{He}$  liquide ne permet pas de dépasser 0,9K: au-delà, il faut utiliser l'hélium trois comme fluide cryogénique : à cause de sa différence de tension de vapeur saturante avec  $^4\text{He}$  (fig.II-1), il permet d'atteindre 0,3K environ.

Le réfrigérateur à  $^3\text{He}$  que nous avons employé nous a permis d'étendre la technique du pompage optique laser dans des doubles cellules pour produire des échantillons polarisés jusqu'à 0,4K. Cela donne accès à un vaste domaine de recherches expérimentales sur  $^3\text{He}$ , celui des systèmes denses hors et à l'équilibre. Nous décrivons ici les premières expériences effectuées, qui montrent qu'il nous est possible par exemple d'étudier le système biphasé liquide/vapeur de l'hélium trois polarisé.

## I - METHODE DE PREPARATION DE L'ECHANTILLON LIQUIDE

### I-A. PRINCIPE

Pour préparer de l'hélium trois liquide polarisé, on peut songer à procéder au pompage optique laser de la vapeur en équilibre juste au-dessus du liquide : l'orientation nucléaire serait transférée à l'échantillon liquide par l'échange incessant des atomes entre les phases condensée et gazeuse. Mais la tension de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  ne correspond à des densités convenables pour le pompage optique ( $10^{16}$  à  $10^{18}$  at/cm<sup>3</sup>) qu'entre 0,37K et 0,25K. Outre les problèmes cryogéniques que pose la dissipation d'énergie par la décharge HF qui crée les métastables [14, Lefèvre-Seguin et al (1985)], ce procédé se heurte dans cette gamme de

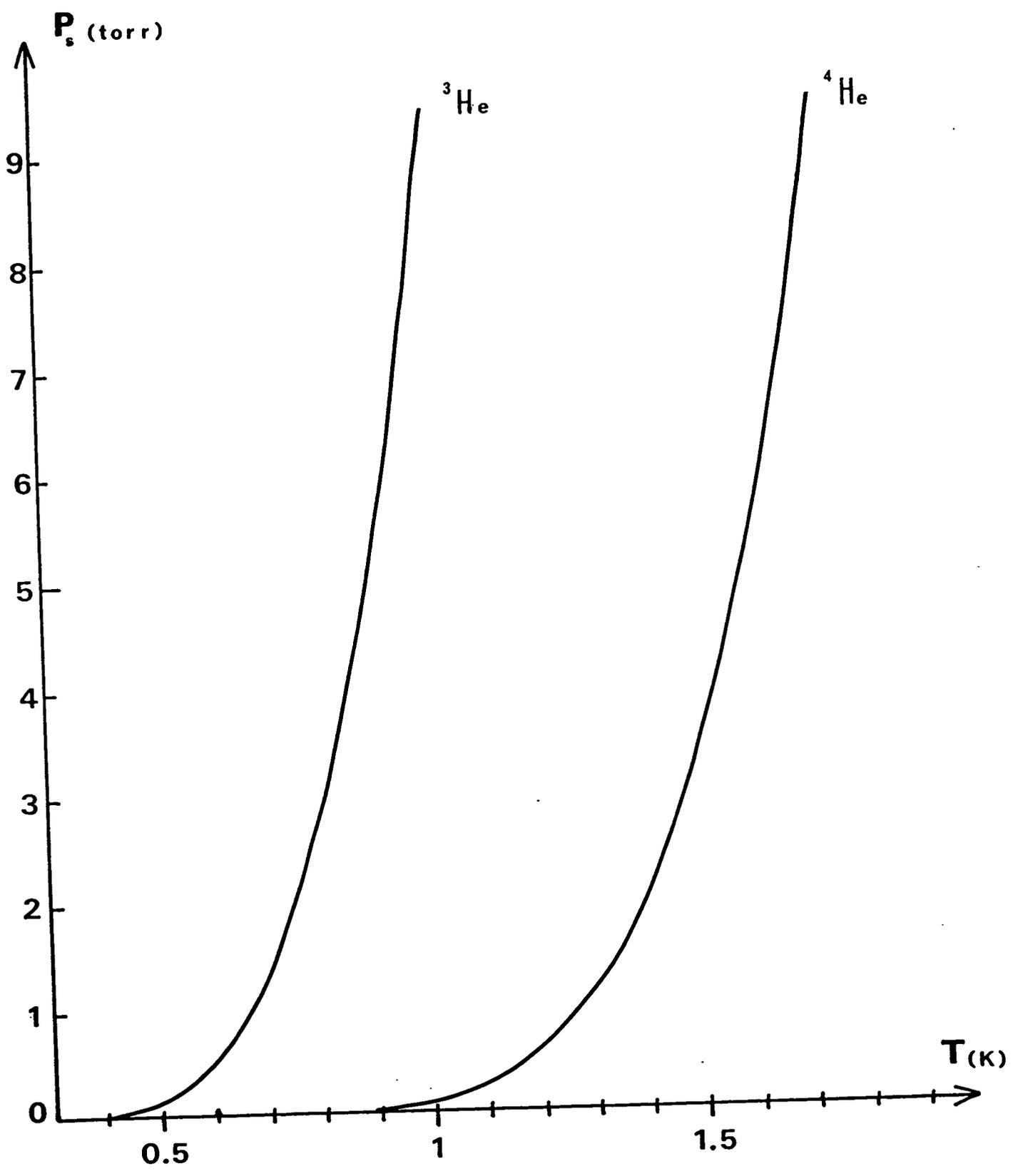


fig. II-1

Variation de la tension de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  avec la température.

température à deux obstacles majeurs qui limitent le taux de polarisation accessible en régime permanent :

- la faible efficacité du cycle de pompage optique de l'hélium trois [13].

- la relaxation nucléaire rapide, tant dans le gaz (relaxation paroi :  $T_1 \simeq 10^3$ s à 0,5 K sur les enduits de  $H_2$  solide ou films de  $^4He$ ), que dans le liquide (relaxation sur la paroi, et aussi en volume par couplage dipôle/dipôle :  $T_{1dd} \simeq 350$ s à 0,5K [24]).

On peut également envisager de polariser le liquide par échange diffusif avec du gaz orienté optiquement à température ambiante dans une double cellule [23]. L'efficacité du pompage optique est alors accrue : elle est maximale si la pression dans la double cellule est voisine de 0,3 torr, c'est-à-dire si au point le plus froid le gaz est en équilibre avec le liquide autour de 0,55K. Cette fois-ci, les limites sont les pertes de polarisation lors de la diffusion dans le tuyau de communication (transfert inefficace si le temps de relaxation dans la partie froide est court devant le temps d'échange entre les deux parties extrêmes de la cellule, voir première partie), et le fort déséquilibre entre les nombres d'atomes concernés. En effet, le gaz soumis au pompage à 300K et 0,3 torr a une densité égale à  $10^{16}$  at/cm<sup>3</sup>, alors que dans la partie à 0,55K, la densité de la vapeur est voisine de  $5,2 \cdot 10^{18}$  at/cm<sup>3</sup> et celle du liquide  $1,7 \cdot 10^{22}$  at/cm<sup>3</sup>. De toutes façons, quelle que soit l'efficacité des transferts entre les différentes parties de la cellule et entre liquide et gaz, comme les sources laser actuellement disponibles fournissent environ  $2 \cdot 10^{18}$  photons/s pour la transition à 1,08  $\mu$ m de  $^3He$ , il est impossible de polariser plus de quelques fractions de mm<sup>3</sup> de liquide en régime permanent, compte tenu de son  $T_1$ .

On choisira donc plutôt de polariser  $^3He$  sous forme gazeuse avec une double cellule, dans des conditions optimales de transfert d'orientation par diffusion des atomes entre les parties chaude et froide, puis de le refroidir rapidement pour obtenir la condensation du liquide.

## I-B. Contraintes

Pour un nombre total d'atomes d'hélium trois donné, la quantité de liquide condensée dans la cellule est d'autant plus importante que le nombre d'atomes restant en phase gazeuse est faible : on a a priori intérêt à travailler à la température la plus basse possible. Le temps mis pour atteindre la température finale choisie doit être court à la fois :

- devant le temps de relaxation du gaz, au cours du refroidissement qui précède l'instant de liquéfaction.

- devant le temps de relaxation nucléaire dans le liquide ensuite.

Il s'agit donc d'atteindre des températures de l'ordre de 0,3 à 0,5K en quelques dizaines de secondes, ce qui est d'autant plus aisé que la température initiale du bain cryogénique est basse. La contrainte essentielle imposée par l'utilisation du réfrigérateur à  $^3\text{He}$  réside dans la préparation du bain d'hélium trois, qui impose sa température à la partie la plus froide de la cellule.

Avec les doubles cellules utilisées jusque-là (fig. II-2a), nous pouvons trouver un compromis en préparant le liquide cryogénique entre 2 et 1,5K. Nous sommes alors à la limite où  $T_0 \approx T_1$  pour la construction de l'aimantation, et le dispositif utilisé (voir § II-A) permet d'atteindre 0,45K en un peu moins d'une minute.

Pour améliorer les performances de notre technique de préparation de liquide polarisé, nous avons conçu des cellules de forme différente. Elles comportent deux boules successives à la partie inférieure (voir figure II-2b). Seul le second volume,  $V_2$ , trempe dans le bain cryogénique. L'autre,  $V'_1$ , est à une température proche de 4,2K. Enfin le volume  $V_1$  où s'effectue le pompage optique des atomes reste constamment à température ambiante ( $\approx 300\text{K}$ ). Le tube qui relie  $V'_1$  à  $V_1$  est maintenu à une température d'environ 200K; il est long de 50cm et permet à un atome issu de  $V'_1$  de diffuser vers  $V_1$  en quelques minutes seulement.  $V'_1$  est une boule de 3cm de rayon, dans laquelle le temps de relaxation longitudinale  $T_1$  dû à la paroi vaut plusieurs heures. D'autre part, le tube qui relie  $V'_1$  à  $V_2$  est long de 25cm et sa température est maintenue entre 1,5 et 2K. Le temps de relaxation dans le tube lui-même, et les temps d'échange d'atomes de  $V'_1$  à  $V_2$ , puis de  $V_2$  à  $V'_1$  (plus d'1/2 heure), sont dans ces

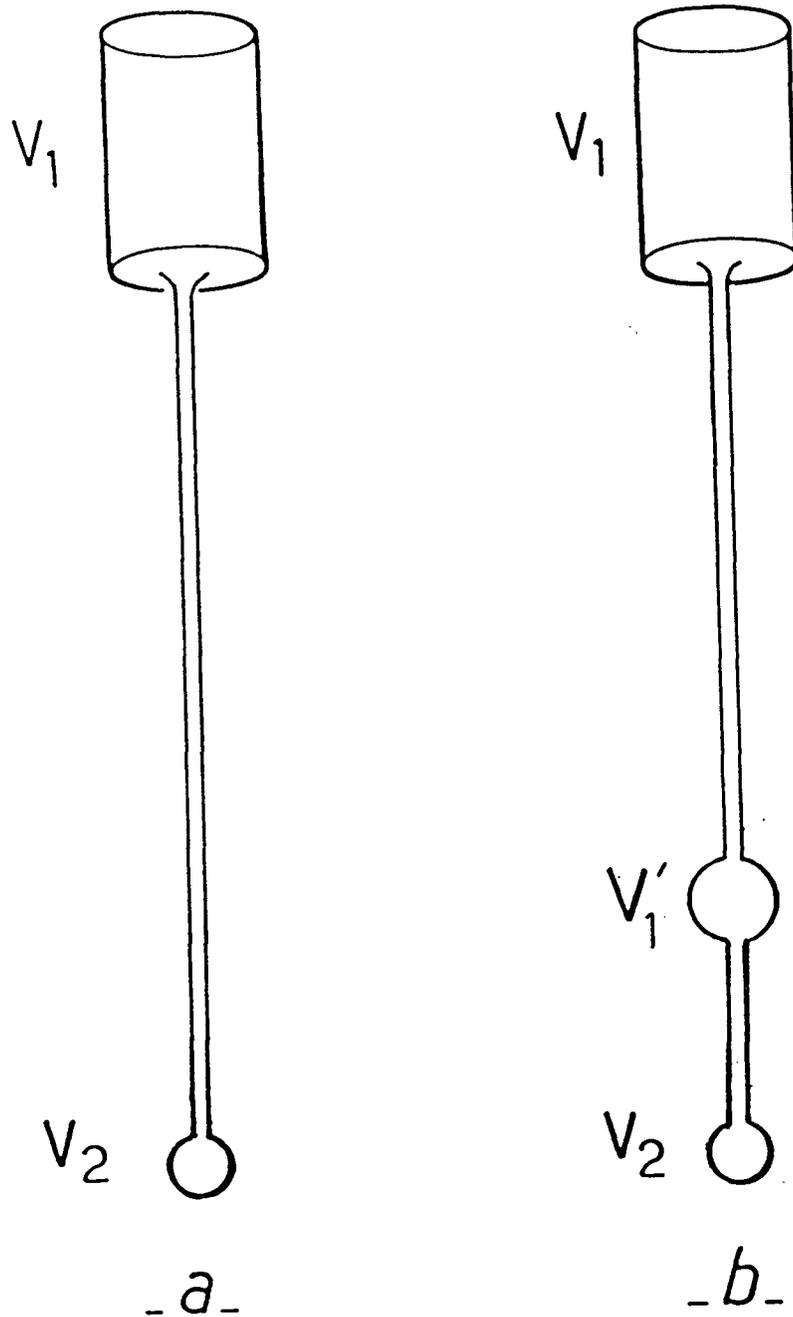


fig. II-2

Présentation des doubles cellules utilisées pour la  
liquéfaction du gaz :

2a : cellule à deux volumes

2b : cellule à trois volumes

conditions suffisamment longs pour que la construction de l'orientation nucléaire dans  $V'_1$  ne soit pas gênée par la présence de  $V_2$ .

On peut ainsi préparer le liquide cryogénique à  $T < 1,5\text{K}$  autour de  $V_2$ , tout en constituant une "réserve" de gaz dense fortement polarisé dans  $V'_1$ . Il suffit ensuite de pomper sur le bain de  $^3\text{He}$  pour refroidir rapidement  $V_2$ . Après les mesures, on réchauffe  $V_2$  pour évaporer le liquide condensé dans la cellule et on prépare un nouvel échantillon.

Le tableau ci-dessous permet de fixer les ordres de grandeur des nombres d'atomes contenus dans les différents volumes durant la construction de l'orientation nucléaire, et de comparer les quantités condensées pour les deux types de cellules employés.

	Nombre total d'atomes	Volumes (cm <sup>3</sup> )	Nombre d'atomes en phase gazeuse dans chaque gros volume			Fraction condensée
			2 K	0,6 K	0,45 K	
Cellule de type a	$1,7 \cdot 10^{19}$	$V_1 : 200$ $V_2 : 4$	$1,5 \cdot 10^{18}$ $10^{19}$	$0,3 \cdot 10^{18}$ $1,5 \cdot 10^{19}$	$10^{17}$ $4 \cdot 10^{18}$	33%
Cellule de type b	$1,4 \cdot 10^{19}$	$V_1 : 200$ $V'_1 : 11$ $V_2 : 0,4$	$2,3 \cdot 10^{18}$ $9 \cdot 10^{18}$ $6,6 \cdot 10^{17}$	$2 \cdot 10^{18}$ $8,2 \cdot 10^{18}$ $2 \cdot 10^{18}$	$4,4 \cdot 10^{17}$ $1,3 \cdot 10^{18}$ $6 \cdot 10^{17}$	90%

Remarque:

Les nombres d'atomes sont calculés en tenant compte du volume du tuyau de communication, et de la carte de températures sur toute l'étendue de celui-ci.

Si nous comparons les résultats obtenus pour les deux types de cellule, nous voyons qu'elles contiennent sensiblement le même nombre total d'atomes. Mais la proportion d'atomes condensés est différente : 1/3 pour la cellule de type a, 9/10 pour la cellule de type b. La densité de  $^3\text{He}$  liquide étant égale à  $1,7 \cdot 10^{19}$  atomes/ $\text{mm}^3$  à  $T = 0,45\text{K}$ , nous pouvons estimer le volume de la goutte macroscopique formée :

0,33  $\text{mm}^3$  pour la cellule de type a

0,75  $\text{mm}^3$  pour la cellule de type b.

### I-C. INCIDENCES SUR LA CONCEPTION DU REFRIGERATEUR A $^3\text{He}$

#### I-C-1) Rapidité de réfrigération

Nous avons vu au paragraphe I-B que les temps de relaxation de l'orientation nucléaire à basse température exigent de pouvoir passer de 1,5K à 0,4K en quelques dizaines de secondes. Il faut donc une forte puissance, mais aussi une faible inertie thermique du bain; en conséquence, le volume de liquide cryogénique employé sera réduit à la quantité juste nécessaire pour recouvrir  $V_2$  (quelques  $\text{cm}^3$  environ).

### I-C-2) Choix des matériaux

L'utilisation de doubles cellules impose de travailler en présence d'un champ magnétique bien homogène sur toute l'étendue de celles-ci, afin de limiter la relaxation nucléaire (voir § III de la première partie). Le cryostat doit être aussi amagnétique que possible : tout matériau magnétique est à exclure à proximité immédiate des spins.

D'autre part, l'utilisation de cellules de verre scellées demande que l'ensemble du dispositif soit démontable. La technique de collage verre/verre étanche à basse température ayant déjà été employée avec succès sur le précédent montage, le réfrigérateur à  $^3\text{He}$  comportera donc une partie en verre, et nécessairement un raccord verre/métal ensuite. L'accessibilité au câblage électrique interne (RMN, mesures de température) sera assurée par une soudure à l'étain métal/métal, aisément défaite en cas de besoin.

### I-C-3) Dimensions géométriques

La partie en verre du réfrigérateur à  $^3\text{He}$  (appelée "éprouvette" dans la suite du texte) est réalisée aussi petite que possible. Ceci permet tout à la fois :

- 1) de faire entrer l'ensemble dans le cryostat à  $^4\text{He}$  déjà existant.
- 2) de réduire la quantité de fluide cryogénique nécessaire.
- 3) de minimiser les pertes par conduction à travers les parois de verre (voir II-A-4).

Le diamètre intérieur minimal de l'éprouvette est déterminé quant à lui par la taille de la cellule (volume  $V_2$ ) et de l'équipage qui l'entoure, destiné à l'étude RMN de l'échantillon polarisé.

### I-C-4) Principe de fonctionnement

La condensation du liquide cryogénique ne se fait pas par circulation du gaz dans un bain à  $^4\text{He}$  pompé. En effet, nous avons renoncé à cette méthode usuelle pour plusieurs raisons :

- pour refroidir de l'hélium 4 de 4,2K à 1,5K, il faut abaisser la pression par pompage: or cette opération utilise environ 50% de la quantité initiale de  $^4\text{He}$ . Cela réduit considérablement l'autonomie du dispositif.
- en dessous de 2,17K l'hélium 4 devient superfluide, accroissant ainsi les risques de fuites: en particulier, le collage verre/verre est rendu particulièrement vulnérable par les contraintes qui résultent des dilatations thermiques différentes des divers matériaux utilisés.
- enfin, cela nous permet de pouvoir disposer d'un volume intermédiaire  $V'_1$  à la température  $T = 4.2\text{K}$ .

Le réfrigérateur à  $^3\text{He}$  utilisé, décrit au paragraphe suivant, utilise un bain de  $^4\text{He}$  à 4,2K et une "boîte à 1,2K", qui constitue le point froid où se produit la condensation du liquide cryogénique ([25],[26]).

## II - MONTAGE EXPERIMENTAL

### II-A. LE SYSTEME CRYOGENIQUE

#### II-A-1) La partie azote-hélium 4

Les cryostats à azote et hélium 4 ressemblent beaucoup à ceux décrits dans la première partie de ce mémoire au III-B. La figure II-3 en représente l'allure générale et les dimensions caractéristiques. Les pertes thermiques de l'ensemble du montage sont de l'ordre de 100mW. A l'intérieur du cryostat à hélium 4, le niveau du liquide cryogénique est mesuré à l'aide d'une capacité, constituée de plusieurs tubes concentriques [19] en inox. La différence entre les constantes diélectriques de  $^4\text{He}$  liquide et gazeux est telle que la capacité varie de 1,155 à 1,210nF pour une

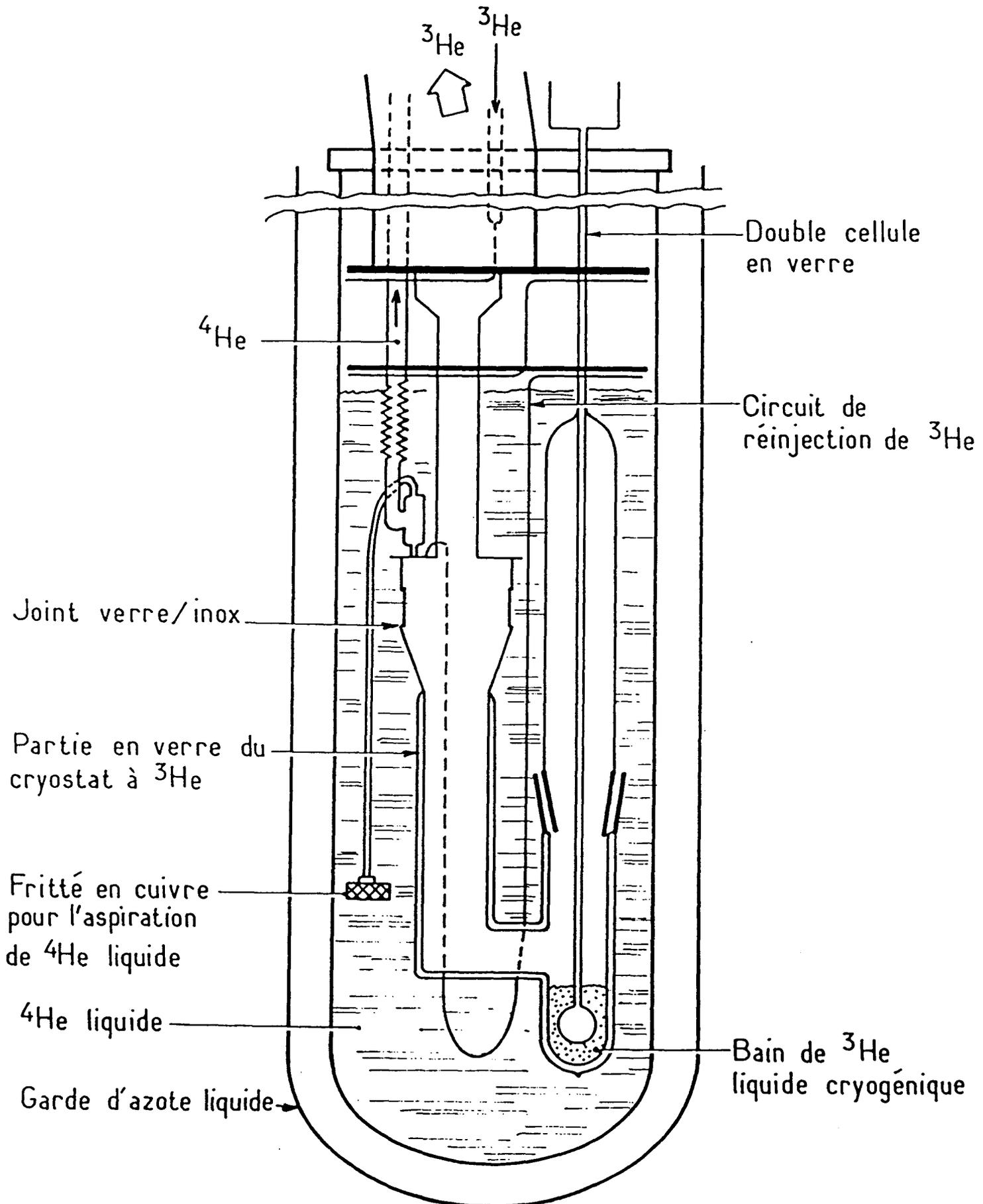


fig. II-3: vue d'ensemble du dispositif expérimental

variation de niveau d'environ 35cm à 4,2K.

### II-A-2) Le réfrigérateur à hélium-3

Le réfrigérateur à hélium-3 a été construit en tenant compte de toutes les exigences, spécifiques aux expériences envisagées, décrites au § I-C. Nous avons aussi souhaité pouvoir le faire fonctionner aussi bien de façon cyclique que continue, le cas échéant. La figure II-4 représente, à l'échelle, la partie basse température du réfrigérateur. Le principe de fonctionnement est simple : l'hélium trois gazeux introduit dans le système par la ligne de pompage se condense au niveau d'un point froid (boîte à 1,2K, paragraphe 2-b ci-dessous) et s'accumule par ruissellement au fond de l'éprouvette en verre (§2-a). Lorsque le niveau de liquide est jugé suffisant, un pompage sur le bain d' $^3\text{He}$  permet d'atteindre la température souhaitée. Le circuit de réinjection (§ 2-c) de  $^3\text{He}$  rend possible un fonctionnement continu à toute température intermédiaire entre la température de liquéfaction et la température limite du réfrigérateur.

#### II-A-2a) L'éprouvette en verre

L'éprouvette est représentée sur la figure II-4. Elle est approximativement en forme de Y. Une branche est destinée à recevoir la cellule. Un rodage cône permet la fixation de la cellule par un collage rodage/rodage avec un mélange glycérine-savon ([27]) parfaitement étanche à froid. La cellule d'étude se situe au fond de l'éprouvette, qui recueille le liquide cryogénique (fig.II-3). Hormis le rodage, l'ensemble de l'éprouvette est constitué d'une double paroi en pyrex, dans laquelle quelques grains de zéolithe ont été introduits au moment du scellement définitif. Ceci assure l'isolation thermique nécessaire de la partie la plus froide du réfrigérateur par rapport au bain extérieur à 4,2K. Pour pouvoir se raccorder au système de pompage de  $^3\text{He}$ , l'éprouvette se termine par un joint verre/inox sur la seconde branche du Y. Cet inox est brasé sur un tube de cuivre, qui est soudé à l'étain sur une pièce de cuivre. La pièce de cuivre porte l'ensemble des tuyaux de pompage et de circulation des gaz, ainsi que les passages de fils. Chaque passage de fils est réalisé en coulant un peu d'époxy (Stycast 2850 FT) dans un petit cylindre de cuivre, autour des fils de cuivre (fig.II-5).

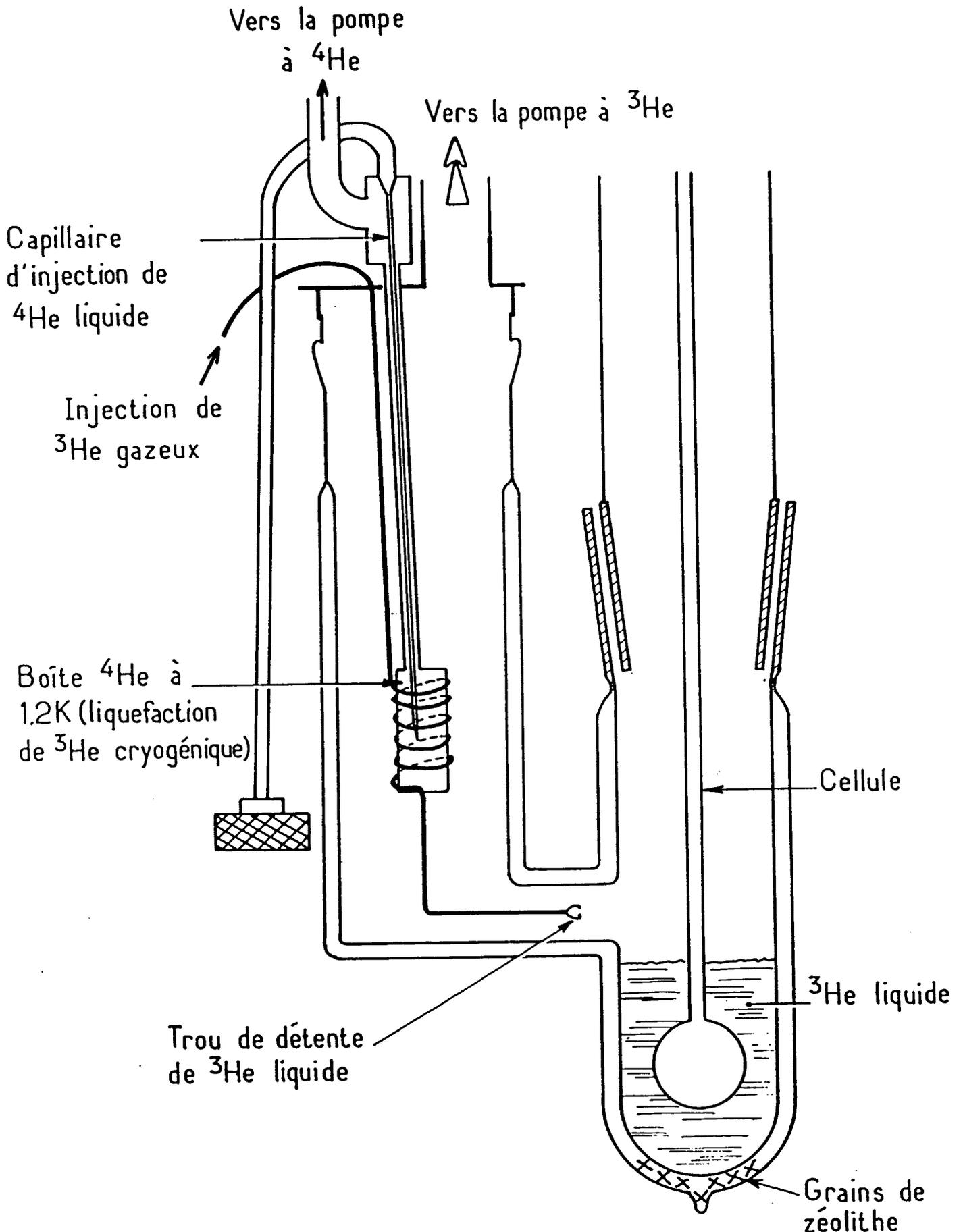


fig. II-4

Détail de la partie inférieure du cryostat à  $^3\text{He}$ .

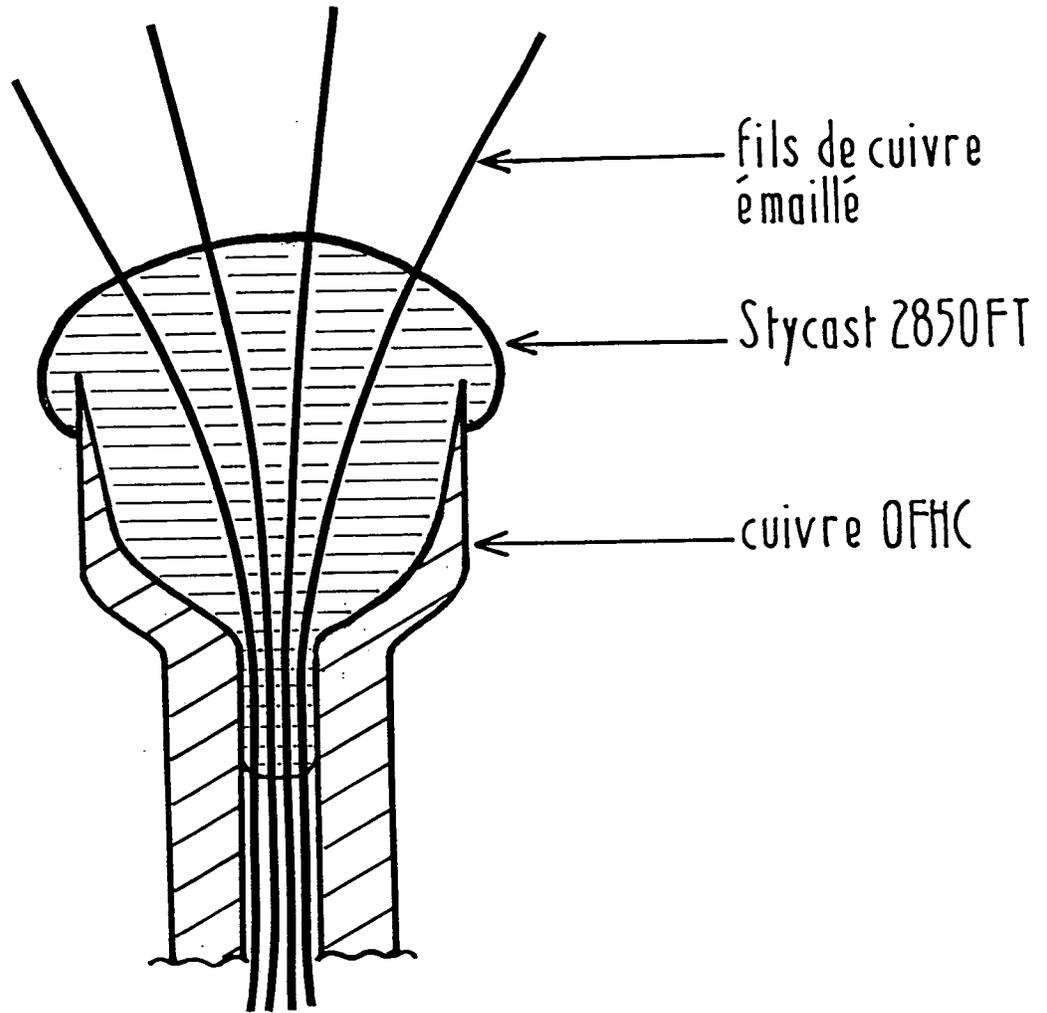


Fig. II-5

Passage de fils étanche  
pour le cryostat à hélium trois

### II-A-2b) La boîte à 1,2K

La boîte à 1,2K est placée à mi-hauteur de la deuxième branche, à l'opposé de la cellule. C'est un cylindre de cuivre (diamètre extérieur  $\sim 8$ mm, intérieur  $\sim 6$ mm, hauteur  $\sim 15$ mm). Il se remplit par pompage (pompe 25 m<sup>3</sup>/h Alcatel) : l'hélium 4 liquide est aspiré dans le bain extérieur par un tuyau en cuivre; un fritté de cuivre est fixé à l'extrémité de ce plongeur pour filtrer d'éventuelles impuretés. L'hélium pompé à partir du bain à 4,2K est introduit dans la boîte grâce à un tube capillaire en Arcap AP1 (alliage en cupronickel) coaxial au tuyau de pompage (fig.II-4). L'extrémité du capillaire est écrasée pour obtenir une impédance de détente optimale. Un compromis doit être choisi : un fort débit donne une grande puissance frigorifique, mais aussi une pression limite élevée, donc une température limite plus haute. Le débit d'hélium 4 est maximal lorsque l'hélium 4 qui circule est superfluide au niveau du point de détente. La température de la boîte est mesurée grâce à une résistance Allen/Bradley en bon contact thermique avec celle-ci. Un chauffage y est également fixé: il permet de mesurer la puissance maximale que la boîte peut absorber. Au-delà de cette valeur, la détente ne se fait plus en superfluide : le débit est considérablement réduit, et la boîte se réchauffe brutalement ( $T \simeq 3,5$ K à 4K). Nous utilisons un capillaire écrasé dont le débit mesuré à température ambiante vaut 1,2cm<sup>3</sup> d'air par minute pour une différence de pression  $\Delta p = 500$ mb. A froid, la puissance frigorifique correspondante est égale à 45mW (la puissance frigorifique est proportionnelle au débit).

Les pertes thermiques au niveau de la boîte sont essentiellement dues aux mouvements de convection qui apparaissent dans le gaz de <sup>3</sup>He, à cause du gradient horizontal de température entre les parois de l'éprouvette et la boîte froide. Pour nous en affranchir, nous avons glissé autour de la boîte (fig.II-6) un cylindre en inox (\*), à double paroi, dont l'intérieur contient des grains de zéolithe pour réduire la pression résiduelle à basse température. L'extrémité supérieure du cylindre est fermée par un couvercle en nylon. L'ensemble permet de réduire sensiblement la convection, sans trop accroître l'impédance de la colonne vis-à-vis du pompage de <sup>3</sup>He.

---

(\*) Un cylindre de nylon de plusieurs millimètres d'épaisseur a été également essayé, mais les résultats ont été un peu moins bons.

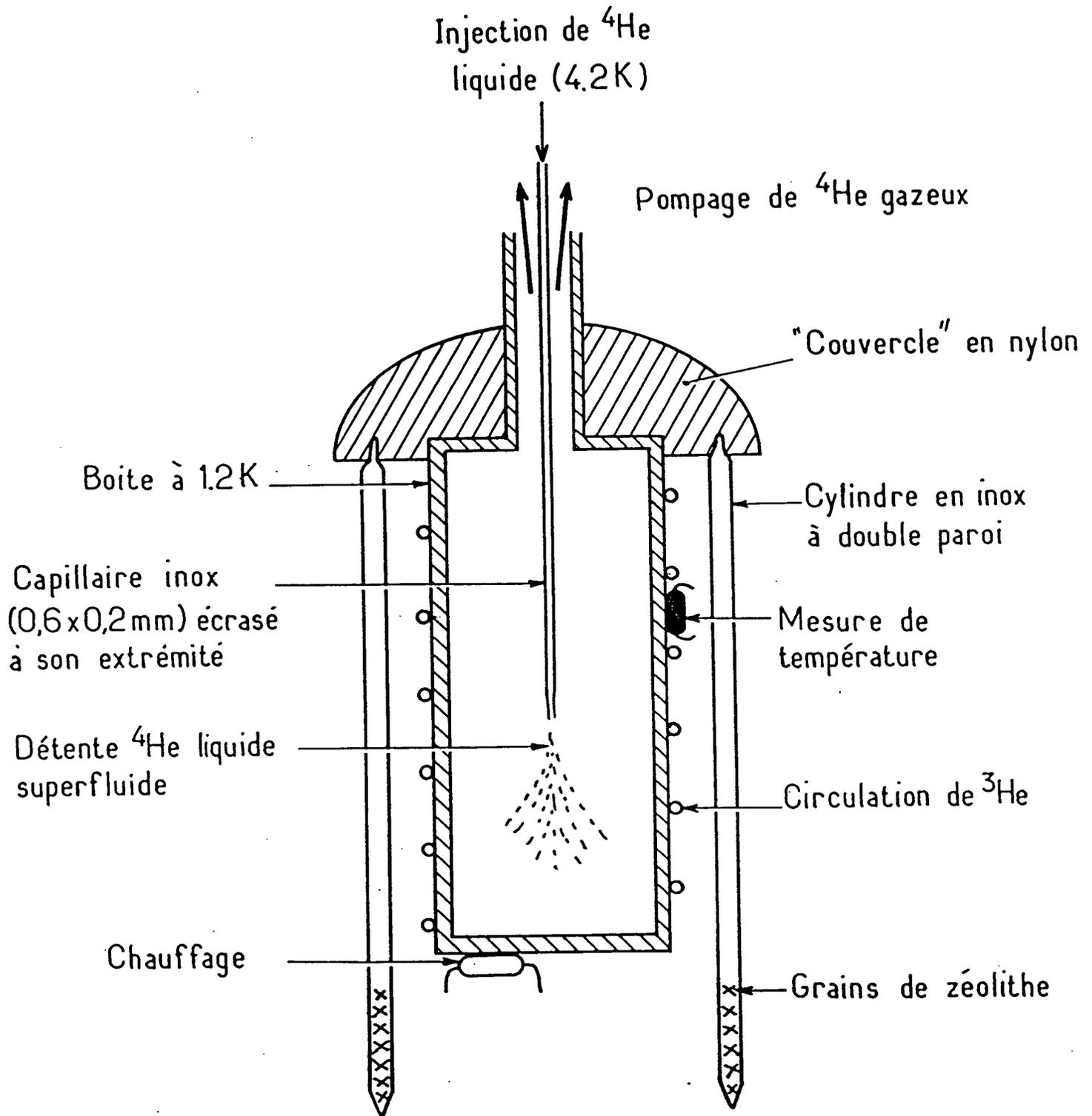


fig. II-6:

Détail de la boîte à 1,2K

Ainsi, nous avons pu atteindre une température limite de fonctionnement égale à 1.45K en régime stationnaire, avec une pression de 45 torr de  $^3\text{He}$  dans la colonne de pompage, contre 1,2K sous vide.

La seule contrainte majeure imposée par ce système est le maintien du tuyau extérieur d'aspiration de  $^4\text{He}$  à la température de l'hélium liquide. En effet, si la partie supérieure se réchauffe, l'hélium y devient gazeux et le débit chute brutalement au niveau du capillaire de détente. Pour cela, nous avons accroché à l'écran thermique inférieur (fig.II-3) plusieurs plaques de cuivre, qui descendent jusqu'à l'extrémité du tuyau d'aspiration. Dans ces conditions, la boîte fonctionne jusqu'à ce que le niveau de  $^4\text{He}$  atteigne le raccord verre-métal.

#### II-A-2c) Le circuit à hélium 3

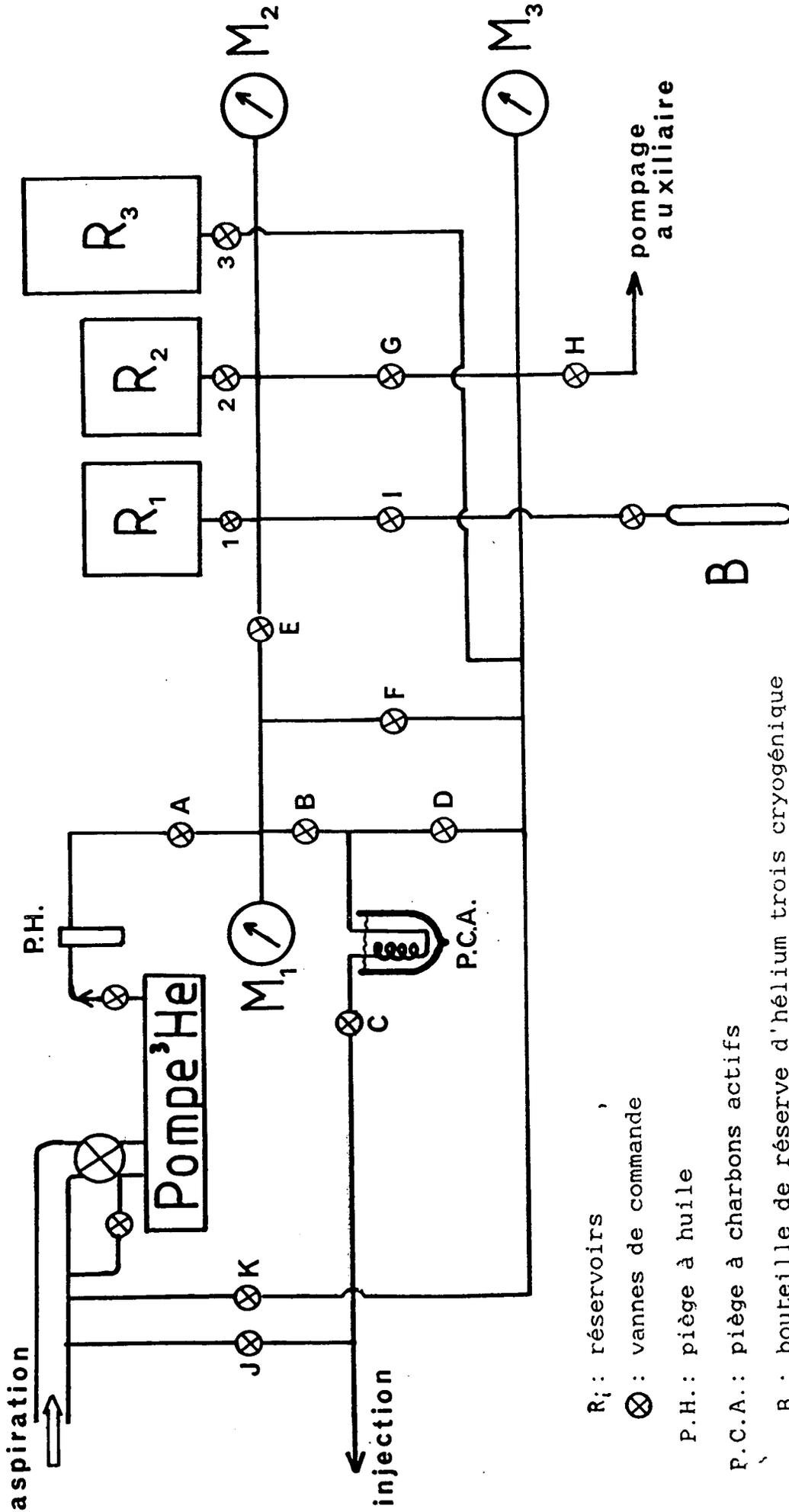
Le circuit d'hélium 3 utilisé est un système fermé. La partie extérieure au cryostat comporte essentiellement une pompe Alcatel  $63 \text{ cm}^3/\text{h}$  (\*), trois réservoirs de gaz (20ℓ, 20ℓ et 30ℓ) et un système de vannes et de tuyaux représentés sur la figure II-7. A l'intérieur du cryostat, le pompage s'effectue au travers d'un tube de 60mm de diamètre en arcap AP4 (alliage cupronickel) (\*\*\*) jusqu'au premier écran thermique. Ce matériau devient ferromagnétique vers 15K ( $\mu_r \approx 10$ ).

---

(\*) Pompe primaire Alcatel,  $63 \text{ m}^3/\text{h}$  à deux étages (modèle 2063), qui a été rendue en usine étanche à l'hélium 3 en trois opérations élémentaires : mise en place d'un double joint au niveau du passage d'arbre, remplacement du joint en liège par un joint en caoutchouc sur le corps de pompe, et obturation du lest d'air.

---

(\*\*) La différence de dilatation entre l'Arcap AP4 (pompage de  $^3\text{He}$ ) et de l'inox (pompage de  $^4\text{He}$  dans la boîte à 1,2K) a nécessité l'insertion d'un petit tube souple, de type "BOA", en bronze-beryllium pour réduire les contraintes au niveau de la traversée du support de l'éprouvette (fig.II-3).



$R_i$ : réservoirs

$\otimes$ : vannes de commande

P.H.: piège à huile

P.C.A.: piège à charbons actifs

B : bouteille de réserve d'hélium trois cryogénique

$M_i$ : manomètres à lame acier

Fig. II-7 : Circuit externe de circulation de l'hélium trois cryogénique.

Nous avons donc fixé à l'écran de cuivre une résistance de chauffage ( $R = 20\Omega$ ) : elle permet de maintenir celui-ci à une température supérieure à 20K. L'arcap est ainsi toujours au-dessus de sa température de Curie, où il possède un très bon amagnétisme. Tout le reste du circuit est fait d'acier inox (réf. 10/18 ou NS22S) et de cuivre.

Le circuit de réinjection est constitué par un long tube de cuivre : ses points d'ancrage thermique successifs sont dans l'ordre : le premier écran de cuivre, le second écran, le bain à 4.2K et enfin la boîte à 1.2K. Il se termine par un trou de détente de  $5,2\mu$  de diamètre. La taille de ce dernier résulte d'un compromis empirique entre le débit nécessaire pour compenser l'évaporation du bain de  $^3\text{He}$ , et la température limite atteinte en régime continu.

### II-A-3) Les mesures de température

- La température du bain de  $^3\text{He}$  est déterminée à partir de la mesure de la tension de vapeur saturante. Un tube, dont l'extrémité est placée au-dessus du bain, remonte à température ambiante : là, la pression est mesurée à l'aide d'un manomètre Barocel (MKS, qui fonctionne entre 0 et 100 torr avec une précision égale à 0,5% de la lecture effectuée). Le tube comprend successivement :

- une section de tube PVC (diamètre intérieur  $\phi_{\text{int}} = 1,4\text{mm}$ ) entre le bain et la boîte à 1.2K.
- une section en inox ( $\phi_{\text{int}} = 1,6\text{mm}$ ) de longueur 28cm, entre la boîte à 1.2K et le milieu des deux écrans thermiques ( $T \approx 30\text{K}$ )
- une section en Arcap (AP1,  $\phi_{\text{int}} = 4\text{mm}$ ) qui va jusqu'à la région à température ambiante.

Dans ces conditions, toutes les indications données par le manomètre doivent être corrigées en tenant compte de l'effet thermomoléculaire ([28]).

- Une résistance Allen-Bradley ( $R = 22\Omega$ ) a été placée au fond de l'éprouvette à  $^3\text{He}$ . Elle donne des indications fiables de température jusqu'à 1K environ, et permet de réchauffer un peu la cellule si nécessaire (en envoyant quelques mW de puissance)

- Au-dessous de 2K, la température du bain de  $^3\text{He}$  est mesurée à l'aide d'une résistance germanium à 4 fils (Lake Shore Cryotronics GR-200A). Elle est située au voisinage immédiat de la cellule d'étude. Son étalonnage a été réalisé à partir de la courbe  $P = f(T)$  de liquéfaction de l'hélium 3 sur toute l'étendue du domaine de températures accessible avec ce montage, selon une formule du type :

$$R = A.(T)^{-B} \cdot \exp (C/T)$$

- Enfin, des résistances Allen-Bradley ( $R = 100\Omega$ ) sont disposées à différentes hauteurs dans le bain de  $^4\text{He}$ : elles permettent de contrôler à chaque instant la température aux différents points "stratégiques" du cryostat: tube arcap, partie supérieure du tuyau d'aspiration de la boîte à 1,2K, etc...

#### II-A-4) Performances du système

##### Pertes thermiques

Les pertes perceptibles au niveau du bain de  $^3\text{He}$  sont séparables en deux catégories:

(1) Les pertes "intrinsèques" au montage, qui sont de l'ordre du milliwatt sur un bain à 0.5K. Plusieurs phénomènes y contribuent :

- \* les pertes par rayonnement (limitées par la présence du bain de  $^4\text{He}$ ).
- \* les pertes par conduction, depuis la simple paroi à 4,2K de la cellule, à travers le gaz  $^3\text{He}$  résiduel (100mtorr à 0,47K).
- \* les pertes ramenées par tous les fils électriques nécessaires aux mesures de température et à la détection RMN. Nous avons essayé de les réduire au maximum : les fils d'arrivée sont en cuivre de 0,2mm de diamètre depuis le bain de  $^4\text{He}$  dans lequel ils

trempent, jusqu'à la boîte à 1,2K où ils sont ancrés thermiquement. Pour chacun d'eux, une portion de 10cm de fil supraconducteur (niobium-titane dans une matrice en cupronickel, diamètre 5/100mm) assure la jonction avec le reste du fil qui plonge dans le bain de  $^3\text{He}$  (fil de cuivre de 0,1mm de diamètre). Ainsi, la majeure partie de l'impédance thermique se situe dans la zone de température intermédiaire, entre la boîte à 1,2K et le coude qui surplombe le fond de l'éprouvette.

Aucun de ces trois processus n'induit de pertes thermiques au niveau du bain de  $^3\text{He}$  dont l'ordre de grandeur dépasse les dizaines de microwatts. Ce n'est pas le cas, en revanche, pour :

\* les pertes par conduction le long des parois de l'éprouvette, surtout à partir de la partie simple paroi (à 4,2K) de l'éprouvette. Compte tenu des dimensions géométriques (diamètre  $\approx 30\text{mm}$ , hauteur  $h \approx 80\text{mm}$ , épaisseur  $e \approx 2 \times 1\text{mm}$ ) de la conductivité thermique du pyrex et de la différence de température (pour un bain à 0,5K par exemple), l'ordre de grandeur de cet effet correspond bien à la valeur trouvée expérimentalement (1mW).

(2) Les pertes "extrinsèques", telles que la puissance dissipée par le faisceau laser qui permet le pompage optique des atomes dans la cellule du haut. Le tube de communication entre les volumes  $V_1$  et  $V_2$  de la cellule joue le rôle d'un guide de lumière. Si cet effet n'est guère perceptible avec un faisceau de 30mW à  $1,08\mu$ , il est très net pour un faisceau de 300mW: il double les pertes observées.

#### Inertie thermique

Avec notre boîte à 1,2K, il faut à peu près quinze minutes pour liquéfier la quantité de liquide cryogénique nécessaire au remplissage du fond de l'éprouvette de verre. La température du bain se situe alors aux environs de 1,5K: elle peut être maintenue à ce niveau aussi longtemps que la boîte à  $^4\text{He}$  fonctionne. En pompant sur ce bain à l'aide de la pompe  $60\text{m}^3/\text{h}$ , toutes les températures comprises entre 1,5K et la température limite du réfrigérateur sont atteintes en quelques dizaines de secondes tout au plus.

### Température limite

La température minimale accessible avec ce réfrigérateur à  $^3\text{He}$  est égale à 0,42K (pression limite en  $^3\text{He}$  : 45mtorr). Elle est atteinte en "single shot", c'est-à-dire sans mettre en route le circuit de réinjection de  $^3\text{He}$ . Celui-ci permet un fonctionnement en continu à des températures supérieures à la température limite: le point stationnaire de fonctionnement est ajusté par contrôle du débit de l'injection (réglage de la pression du gaz dans le circuit d'injection) et/ou du débit de la pompe  $^3\text{He}$  (laminage par la vanne de commande).

## II - B. CELLULES

Les cellules utilisées pour l'étude de  $^3\text{He}\uparrow$  liquide sont celles représentées sur la figure II-2. Elles sont en pyrex, et ont subi les procédures usuelles de fabrication, nettoyage et remplissage (III-B de la première partie). La quantité d'hydrogène moléculaire introduit dans chaque cellule est calculée pour assurer un bon enduit cryogénique (au moins 10 couches [3,5]) sur toute la partie froide de la cellule, qui comporte ici la (les) sphère(s) et la portion froide du tuyau de communication. La quantité de  $^3\text{He}$  est choisie pour que la pression dans la cellule soit de l'ordre de 0,3 torr (valeur optimale pour le pompage optique) lorsque la cellule d'étude est à 1.5K, et que la liquéfaction s'y produise vers 0.6K.

Comme cela a été dit dans la première partie (paragraphe III-B), un soin particulier doit être apporté au contrôle de la carte des températures, sur toute l'étendue de la cellule, afin d'obtenir un enduit d'hydrogène efficace. Le tuyau qui permet la diffusion des atomes entre le volume  $V_1$  (à 300K) et  $V'_1$  (à 4.2K) est entouré d'un tube de cuivre dont la partie supérieure est ancrée thermiquement au couvercle du cryostat (température ambiante) et d'une mousse isolante. La température de cette partie de la cellule est ainsi comprise entre 300K et 150K) et le transfert de polarisation s'y effectue sans perte appréciable. La première sphère est à 4.2K environ, à cause de la proximité de la simple paroi immergée dans l'hélium 4 liquide. Le tuyau qui la relie à  $V_2$  est recouvert d'une couche de laque-argent qui s'interrompt à quelques centimètres de la surface libre du

bain de  $^3\text{He}$ . A l'équilibre, au-dessus d'un bain à 1,5K, la température du tube se stabilise autour de 2K. Cette séparation nette entre partie chaude (au-dessus du bain de  $^4\text{He}$ ) et partie froide (à l'intérieur du cryostat à hélium 3) permet une utilisation souple et indépendante du réfrigérateur à  $^3\text{He}$ . En effet, tant que la partie inférieure de la cellule reste en-dessous de 4.2K, la mobilité de  $\text{H}_2$  est très faible: l'enduit est en quelque sorte "figé" une fois pour toutes, après sa formation. Un nombre apparemment illimité de cycles (préparation du gaz polarisé,  $V_2$  étant à  $T \leq 1,5\text{K}$  → descente en dessous de 0,5K pour les mesures → ré-évaporation pour préparer un nouvel échantillon) peut être effectué sans dommage pour l'enduit cryogénique.

## II - C. DISPOSITIFS OPTIQUE ET ELECTRONIQUE

### II-C-1) Sources laser

Pour toutes les expériences concernant l'étude de  $^3\text{He}$  liquide, nous avons utilisé des sources laser différentes de celles employées pour l'observation des ondes de spin, et décrites dans la première partie de ce mémoire (§ III-A-2). Il s'agit de cristaux de LNA au néodyme, pompés par un laser continu de puissance à gaz ionisé (krypton  $\text{Kr}^+$  ou Argon  $\text{Ar}^+$ ). La référence [29] décrit en détail ces lasers accordables et leurs performances: nous n'en donnons ici qu'une description succincte.

La cavité laser est représentée schématiquement sur la figure II-8 dans le cas du pompage par laser  $\text{Ar}^+$ . La courbe de fluorescence du LNA comporte un pic principal à 1054nm, et une bande secondaire à 1084nm. Pour le pompage optique de l'hélium, la longueur d'onde requise est égale à  $\lambda_0 = 1083\text{nm}$ . Un filtre de Lyot (lame de quartz de 7mm d'épaisseur) permet d'accorder grossièrement le laser autour de  $\lambda_0$ : un réglage fin s'effectue ensuite à l'aide d'un étalon Pérot-Fabry à air E. E est constitué de deux prismes en verre traités ( $R = 50\%$ ), séparés par 2 ou 3mm, et placés à angle de Brewster par rapport au faisceau laser. Un des deux prismes est monté sur une cale en céramique piezo-électrique: la fréquence du laser peut ainsi être balayée en faisant varier la haute tension appliquée à la cale piezo. Pour l'asservir sur une des composantes fines et

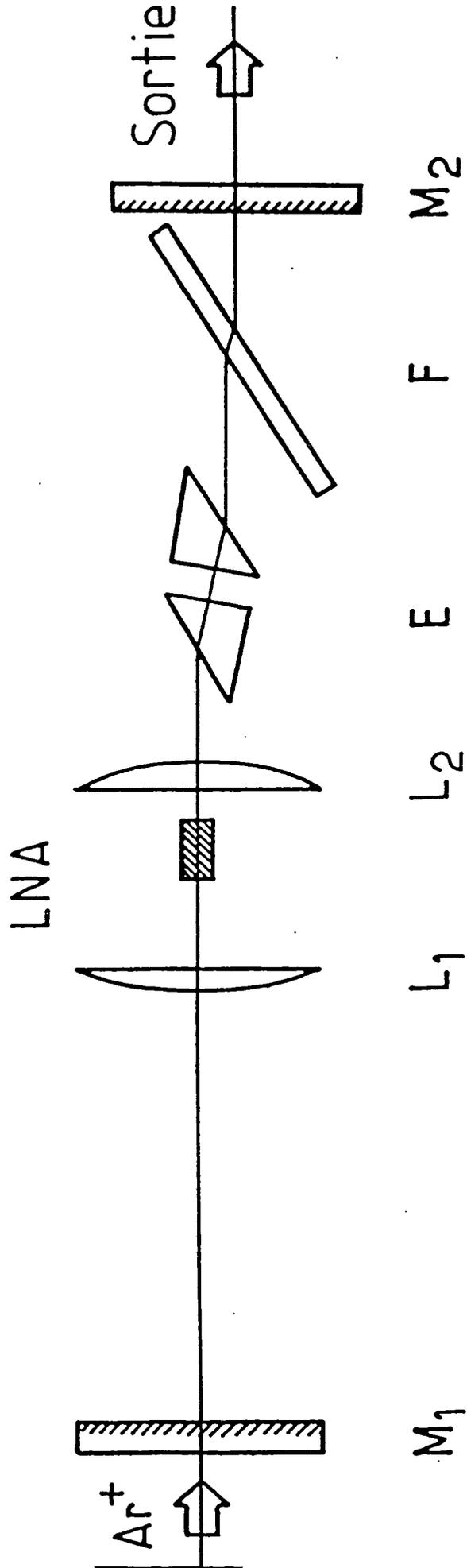


fig. II-8 :  
Schéma de la cavité du laser LNA utilisé pour le pompage optique de  $^3\text{He}$  (voir texte p.106).

hyperfines de la transition atomique  $2^3S \rightarrow 2^3P$  [13], on utilise le signal de fluorescence induit par une fraction du faisceau dans une cellule remplie de  $^3\text{He}$ , et une modulation de la haute tension à quelques kilohertz. La figure II-9 indique la structure de la boucle d'asservissement employée. Une fois asservie sur une composante atomique donnée, la fréquence du laser reste stable pendant des heures; sa puissance est également constante.

Un cryostat de LNA pompé par un faisceau de 6W sur la raie 541nm de l'argon peut délivrer plus de 300mW à  $1,083\mu$ . La figure II-10 montre les taux de polarisation obtenus avec ce laser dans une cellule cylindrique de  $100\text{cm}^3$  remplie à 0,3torr de  $^3\text{He}$ , pour des puissances laser variant de 0 à 300mW: la polarisation peut y atteindre 60% environ.

Nous avons également utilisé comme source à  $1,083\mu$  un cristal de LNA pompé par un laser continu  $\text{Kr}^+$  fournissant 1,3W sur la raie à 752nm. La cavité correspondante a une structure analogue à celle représentée sur la figure II-8. Le filtre de Lyot est cette fois une lame de 1mm d'épaisseur: les prismes de l'étalon PF à air sont traités à  $R=60\%$  pour l'un, et  $R=80\%$  pour l'autre. La puissance disponible à  $1,083\mu\text{m}$  est de l'ordre de 70mW, ce qui permet de créer des taux de polarisation d'environ 40% à 0,3 torr et à 300K dans la partie supérieure d'une double cellule.

## II-C-2) Mesures optiques à température ambiante

### II-C-2a) Détection optique de l'orientation nucléaire

Dans  $V_1$ , la polarisation nucléaire est mesurée optiquement. Le principe de cette mesure a déjà été décrit dans la première partie de ce mémoire. Le dispositif expérimental est représenté sur la figure II-11, où on reconnaît tous les éléments précédemment utilisés. La seule différence est que la détection ne se fait pas selon l'axe du faisceau de pompage. Pour des raisons pratiques de commodité d'accès au montage et d'encombrement, nous détectons la lumière de fluorescence émise dans une direction inclinée de  $\theta = 30^\circ$  par rapport au champ magnétique statique. Cela introduit seulement le facteur  $\cos \theta$  dans la calibration du taux de polarisation nucléaire en fonction de l'amplitude du signal détecté.

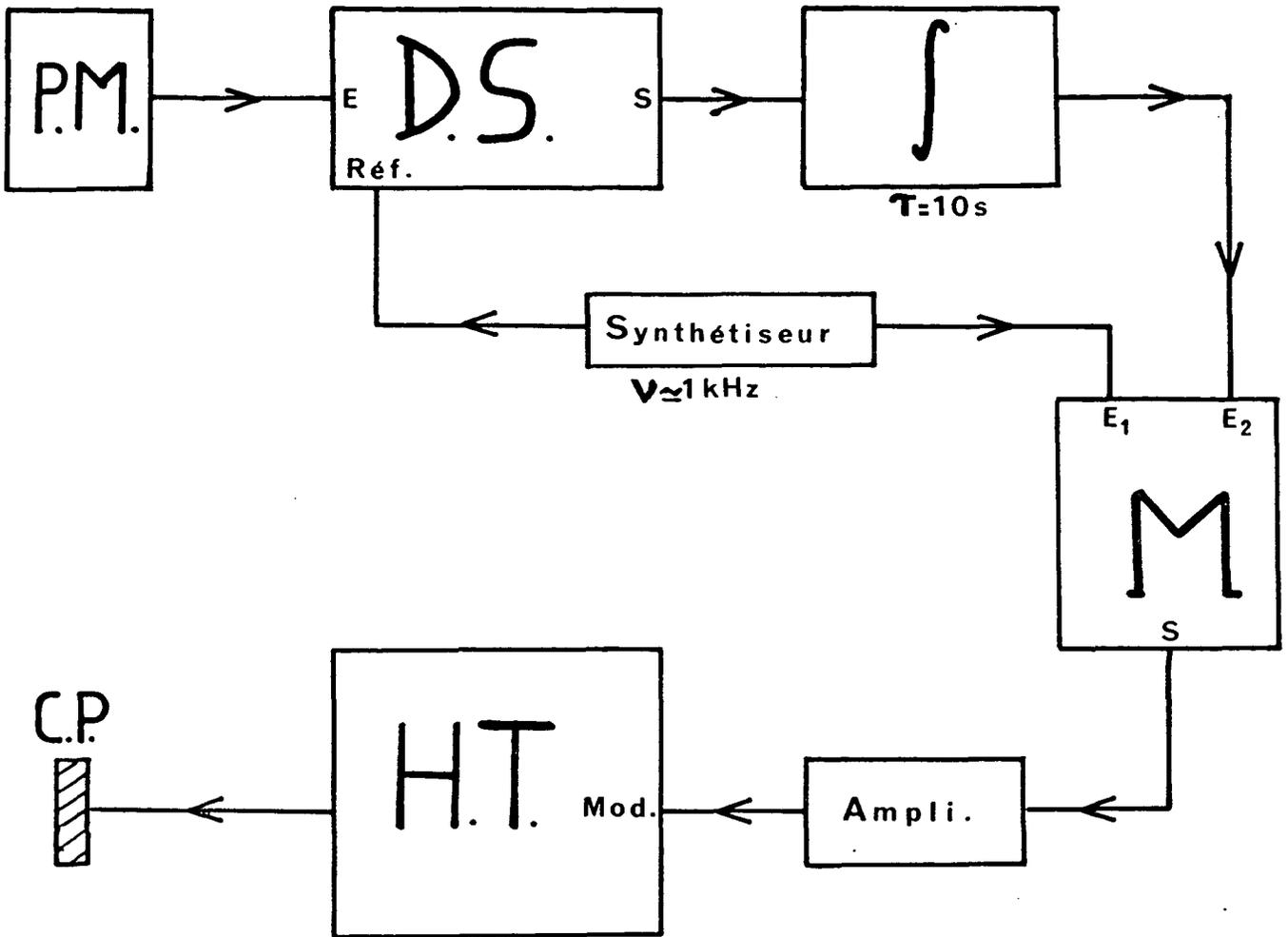


fig. II-9: Circuit électronique d'asservissement du laser sur la transition  $2^3S \rightarrow 2^3P$  de l'hélium trois.

P.M.: photomultiplicateur

D.S.: détection synchrone

∫ : intégrateur

M : mélangeur

H.T.: haute tension

C.P.: cale piezo-électrique

Le photomultiplicateur détecte le signal de fluorescence d'atomes de  $^3\text{He}$  contenus dans une cellule annexe. La fréquence du laser est contrôlée par l'étalon à air dont l'un des deux prismes est monté sur la cale piezo-électrique (voir texte).

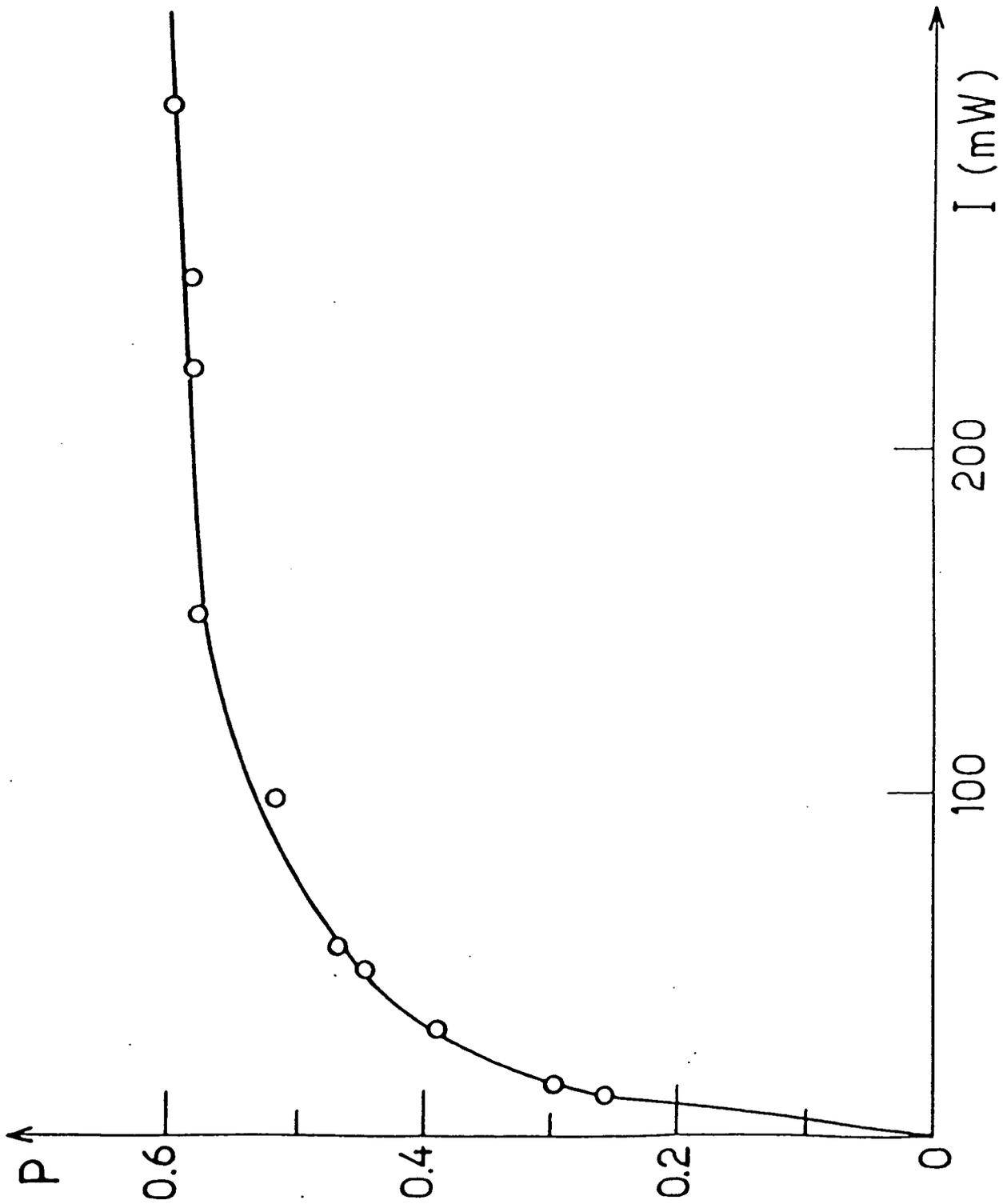


fig. II-10: Taux de polarisation obtenu avec le laser LNA dans un gaz de  $^3\text{He}$  à 0,3 torr et 300K, en fonction de la puissance incidente sur la cellule.

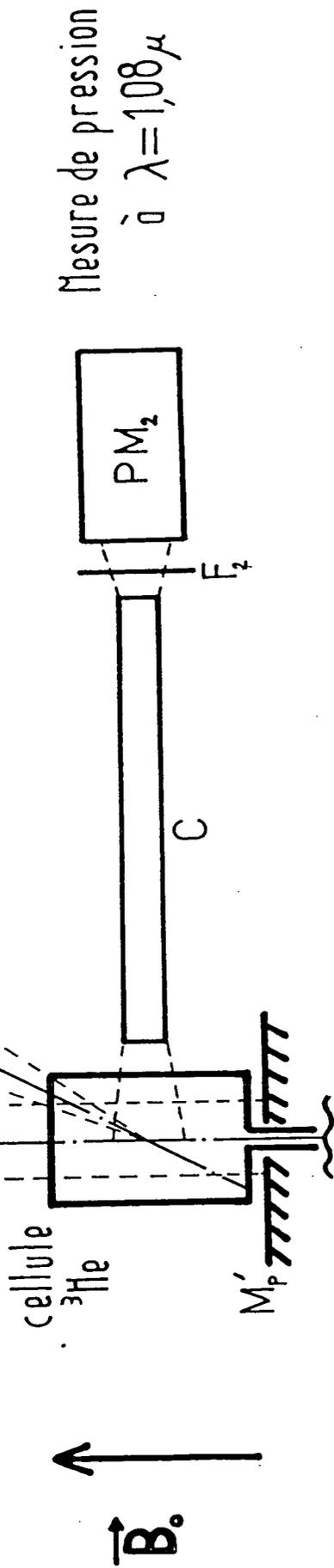
Détection optique à  $\lambda = 0,668 \mu$   
de l'orientation nucléaire M

DS : amplificateur à détection synchrone  
(référence de fréquence donnée par  
 $Q_1$ , lame quart d'onde tournante)

- M: miroir de renvoi
- L: lentille
- F: filtre interférentiel
- P: polariseur linéaire
- Q: lame quart d'onde
- C: canne de lumière
- PM: photomultiplicateur

$\lambda = 108 \mu$

Faisceau de pompage



Mesure de pression  
à  $\lambda = 108 \mu$

fig. II-11

Dispositif optique pour la détection de l'orientation et la mesure de pression à température ambiante.

II-C-2b) *Mesure de pression*

Pour mesurer la pression de  $^3\text{He}$  dans le volume  $V_1$ , nous utilisons une technique de fluorescence post-décharge qui permet de déterminer le temps de vie des métastables. Celui-ci est directement relié à la pression du gaz, comme nous allons le voir.

A l'aide d'un photomultiplicateur, nous détectons la fluorescence induite à  $1,08\mu$  par le faisceau laser de pompage (figure II-11). L'intensité de la lumière émise donne accès à la population de l'état métastable  $2^3\text{S}$ . Celle-ci commence à décroître dès que la décharge radiofréquence qui sert à peupler l'état  $2^3\text{S}$  est éteinte. La durée de vie des atomes métastables est alors déterminée (dans le domaine de pression exploré) par le phénomène de diffusion vers la paroi, où il produit une désexcitation immédiate de l'atome. Dans ces conditions, le comportement aux temps longs du signal de fluorescence détecté correspond à une décroissance exponentielle "pure", dont la constante de temps est celle du mode de diffusion dans la cellule le plus lent.

Les modes de diffusion considérés ici sont les solutions de l'équation de diffusion usuelle qui satisfont à la condition aux limites de densité nulle de métastables sur les bords de la cellule (désexcitation des atomes au contact de la paroi). Pour une cellule cylindrique de rayon  $R$  et de longueur  $2L$ , le temps de diffusion le plus long  $\tau_D$  est donné par :

$$\tau_D^{-1} = D((\pi/2L)^2 + (X_1/R)^2) = D(X_1^2/R^2) (1 + (\pi R/2LX_1)^2)$$

où  $X_1$  désigne le premier zéro de la fonction de Bessel cylindrique d'ordre zéro, et  $D$  le coefficient de diffusion de l'atome métastable. Numériquement, cela s'écrit :

$$\frac{1}{\tau_D} = 5,78 \cdot \frac{D}{R^2} \left\{ 1 + \left( 0,65 \cdot \frac{R}{L} \right)^2 \right\}$$

Le coefficient  $D$  de diffusion a fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales. D'après les résultats expérimentaux présentés dans la référence [30], nous savons que  $D = 554 \pm 30 \text{ cm}^2/\text{s}$  pour une densité correspondant à une pression de 1 torr à 300K. Pour une cellule de 5cm de diamètre et 11cm de hauteur, le temps de diffusion pour 1 torr à 300K est de l'ordre de 1,6ms.

Le temps de diffusion  $\tau_D$  varie en  $1/D$ . A température constante, il est donc proportionnel à la pression du gaz. Cette méthode de mesure de la pression est simple à mettre en oeuvre avec notre dispositif expérimental. Pour obtenir des résultats avec un bon rapport signal/bruit, nous procédons à chaque fois à plusieurs enregistrements successifs du signal. La décharge est interrompue périodiquement, à une fréquence de quelques hertz. Nous accumulons les données correspondant à 20 ou 50 coups et la valeur de  $\tau_D$  est extraite de la valeur moyenne obtenue.

La précision atteinte avec cette méthode optique de mesure de pression est d'abord limitée par l'incertitude expérimentale sur les dimensions géométriques internes de la cellule (qui ne sont pas connues à mieux que 5% environ). Elle dépend également de la qualité du dépouillement numérique des données effectuées. Il faut en particulier tenir compte de l'existence des autres modes de diffusion excités et détectés dans le volume  $V_1$ . Leur amortissement est certes plus rapide, mais le rapport des constantes de temps n'est pas vraiment négligeable pour les deux modes suivants (il s'agit d'un rapport égal à 0,6 et 0,1 respectivement). Nous estimons la précision globale des résultats à quelques pour cent pour les mesures de variations relatives de pression.

### II-C-3) Détection radioélectrique à basse température

#### II-C-3a) *Champ magnétique statique*

Toutes les expériences se déroulent en présence d'un champ magnétique statique, dans lequel s'effectuent à la fois le pompage optique, le transfert de polarisation à basse température et la détection par RMN. Pour satisfaire aux contraintes d'homogénéité du champ sur l'étendue de la double cellule (voir § III-C de la première partie) et d'encombrement minimal, nous avons utilisé un ensemble de bobines dont la géométrie et les courants ont été calculés et optimisés numériquement ([5]). Nous avons réalisé 5 bobines octogonales, représentées sur la figure II-12a (avec du fil de cuivre émaillé de  $1,3\text{mm}^2$  de section). La résistance totale est de l'ordre de  $30\Omega$ , et une alimentation en série par 96 volts sous 3 ampères fournit un champ de 13 Gauss, sans refroidissement nécessaire. La carte de champ a également été calculée, et l'homogénéité obtenue est satisfaisante : la figure II-12b représente la variation relative du champ statique le long de l'axe des bobines, au long duquel est placée la cellule: elle est de l'ordre de quelques  $10^{-4}$ .

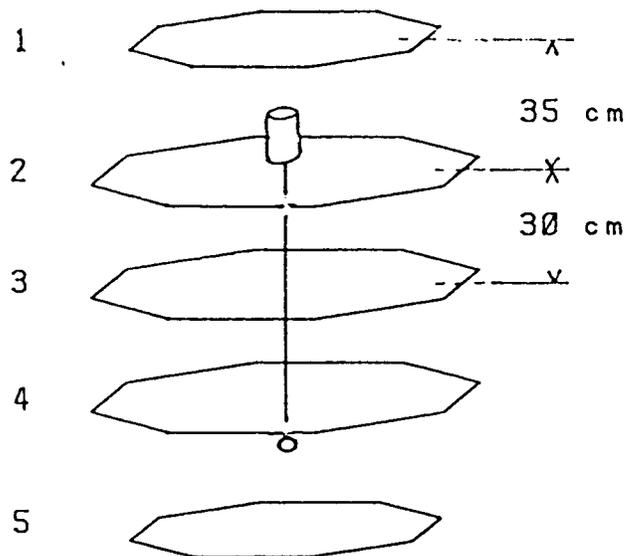
Un second circuit, enroulé sur le précédent en respectant les mêmes rapports de nombres de tours, permet de varier la valeur du champ statique d'environ 1G autour de la valeur choisie sans modifier l'homogénéité ou la stabilité du champ principal.

#### II-C-3b) *Dispositif RMN*

Les bobines réceptrices sont des enroulements de fil de cuivre émaillé analogues à ceux décrits dans la première partie, disposés de part et d'autre de la cellule d'étude. Selon le type de cellule étudiée (figure II-2a et b), elles ont été placées à l'intérieur ou à l'extérieur du cryostat à  $^3\text{He}$ .

En revanche, pour des raisons d'encombrement, nous avons choisi un circuit d'induction différent de celui utilisé pour l'autre montage expérimental. Il s'agit d'une bobine en "selle de cheval" (voir figure II-13), qui crée un champ magnétique homogène sur la cellule et perpendi-

fig. II-12 a Ensemble de bobines octogonales fournissant un champ homogène sur une cellule double.



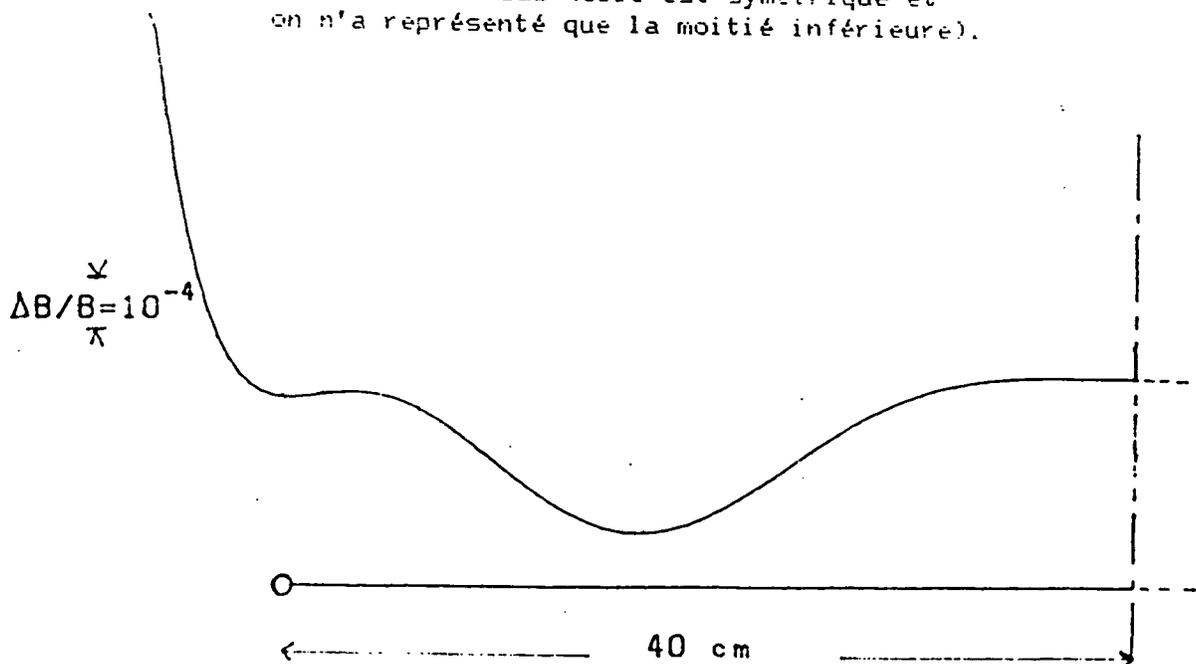
1 et 5: côté 32 cm et 152 tours

2 et 4: côté 42 cm et 136 tours

3: côté 42 cm et 106 tours

fig. II-12 b

Carte de champ calculée pour l'ensemble de bobines ci-dessus (elle est symétrique et on n'a représenté que la moitié inférieure).



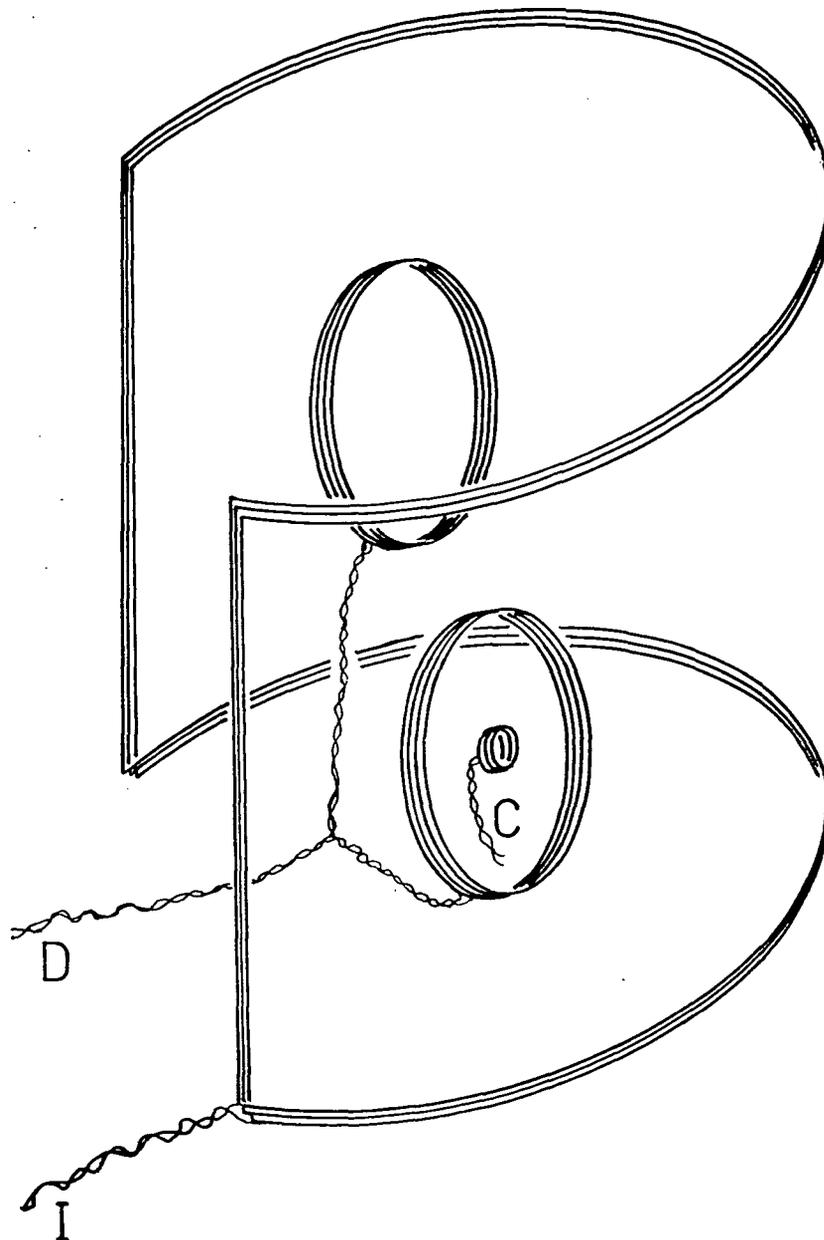


Fig. II-13

Circuit de détection RMN

- I : bobine d'induction créant une impulsion de champ radiofréquence à la fréquence de résonance des spins nucléaires
- D : paire de bobines de détection du signal de précession de l'aimantation transverse. connectées en série
- C : bobine de compensation

culaire au champ statique  $\vec{B}_0$ . Avec les dimensions géométriques indiquées sur la figure, la carte de champ calculée est telle que la variation de l'amplitude du champ entre le centre et le bord de la cellule d'étude est de l'ordre de quelques pour cent au plus, pour une sphère de 2cm de diamètre.

L'orientation du circuit inducteur est choisie pour que le champ de radiofréquence produit soit perpendiculaire à l'ordre des bobines réceptives. Dans la pratique, le flux capté n'est pas strictement nul, et il produit pendant l'impulsion RF un signal parasite que la chaîne de détection ne peut supporter. Pour y remédier, nous avons placé une petite bobine de compensation dans le plan d'une des bobines réceptrices. L'amplitude et la phase du courant qui y circule (produit par le même générateur RF que l'impulsion inductrice) sont réglés pour annuler exactement le flux capté. Nous utilisons, à cette fin, le circuit déphaseur actif à amplis opérationnels représenté sur la figure II-14. La compensation est ainsi exacte, puisqu'on opère une addition de flux induits dans les bobines réceptrices, et non plus de signaux électriques en un point quelconque de la chaîne de détection (voir § III-D-2 de la première partie). Ici, nous ne sommes plus gênés par le temps de réponse non nul des bobines réceptrices, comme le montre la figure II-15.

La figure II-16a indique les divers éléments de la chaîne électronique de détection utilisée. La bande passante de l'ensemble est fondamentalement déterminée par le temps de réponse de la détection synchrone employée. Son allure est représentée sur la figure II-16b, où l'on voit que la largeur maximale obtenue est de l'ordre de 500Hz.

Enfin, les signaux électriques reçus sont convertis en données numériques, enregistrées et traitées par un microordinateur, qui sert aussi à gérer le fonctionnement des parties électrique et électronique du montage expérimental.

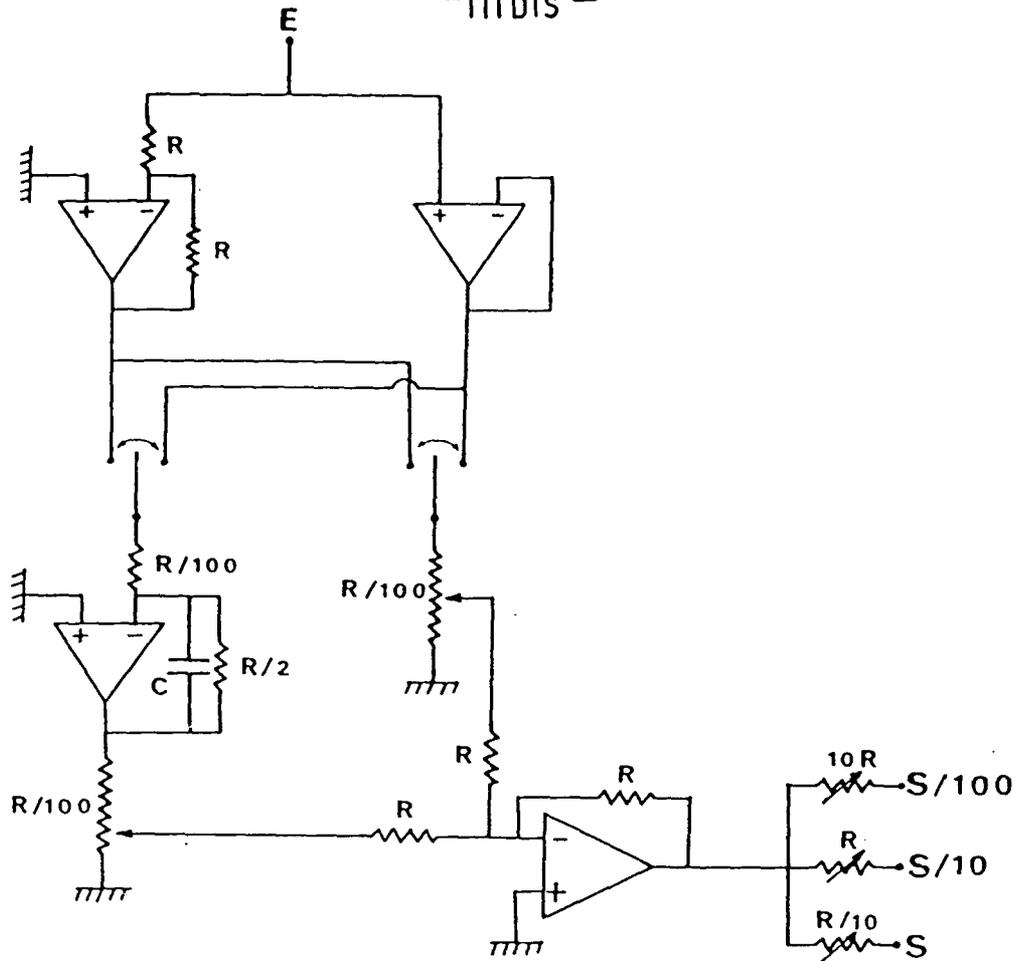


Fig.II-14: Schéma du circuit déphaseur actif utilisé pour la compensation du signal radioélectrique parasite capté. ( $C = 4\text{nF}$ ,  $R = 100\text{k}\Omega$ )

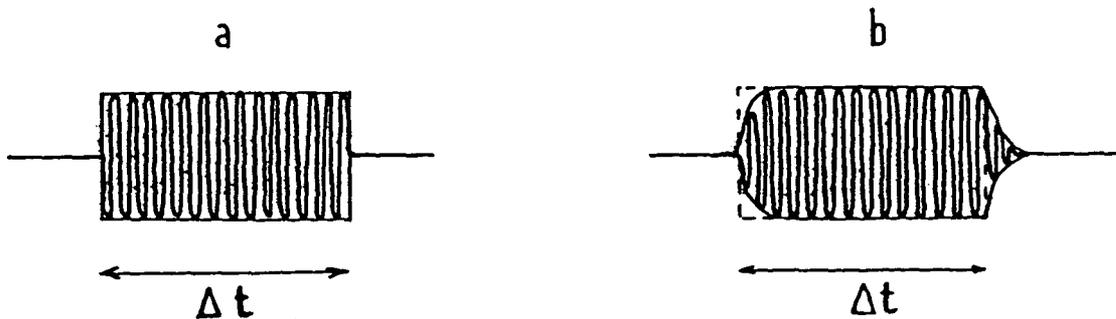
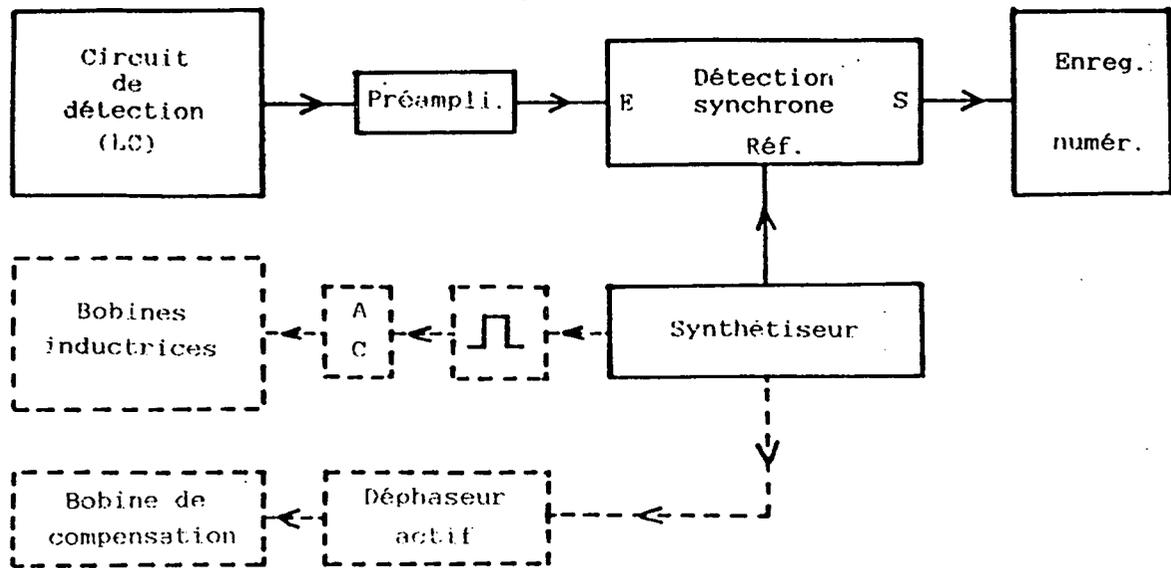


Fig.II-15: Représentation schématique du signal de compensation:

- a: impulsion délivrée en sortie du déphaseur, et appliquée aux bornes de la bobine de compensation.
- b: f.e.m. induite dans le circuit de détection résonnant, dont le facteur de qualité a une valeur finie.

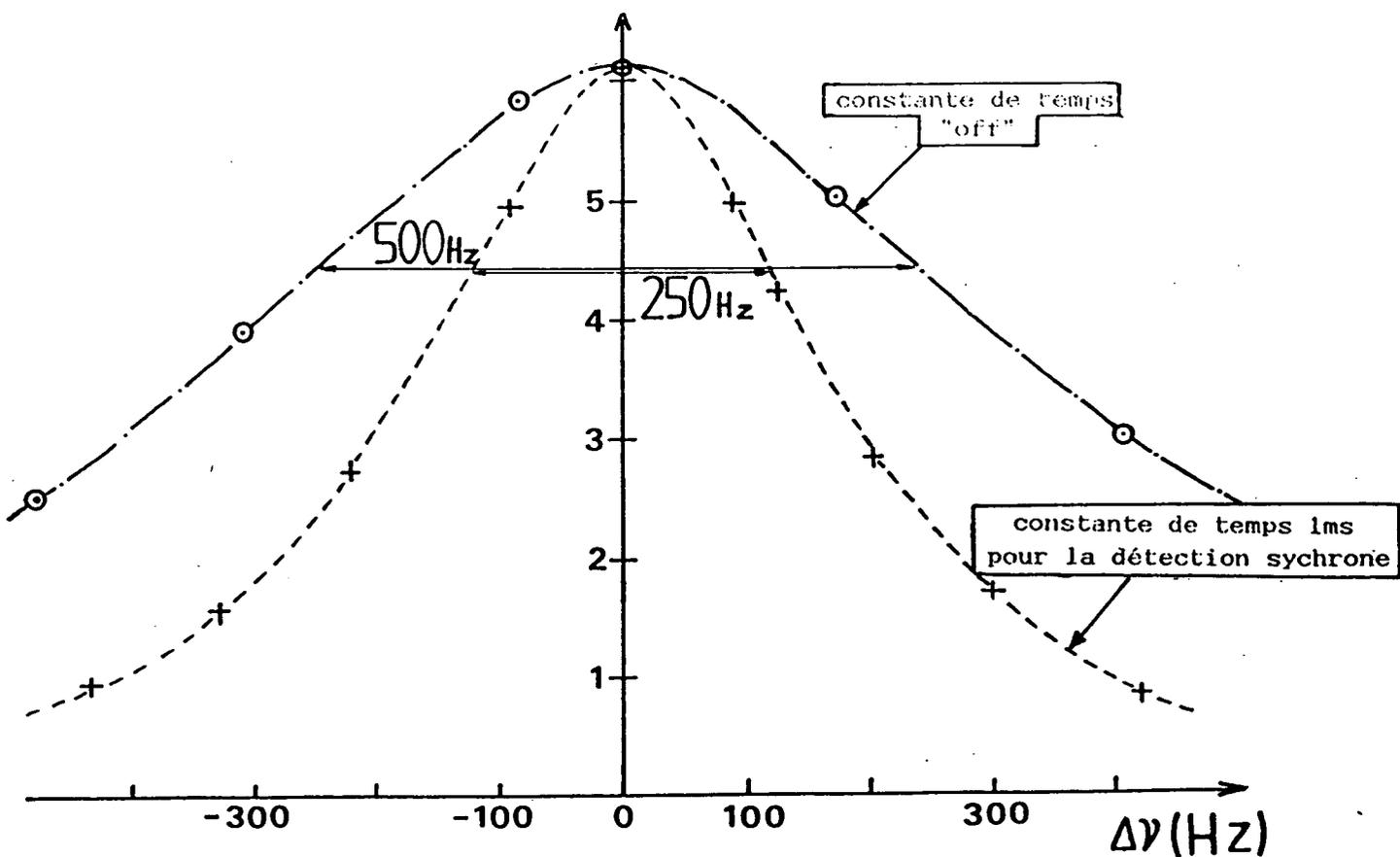
-111 ter -  
fig.II-16a



AC: amplificateur de courant;  $\square$ : porte; "enr. num.": enregistreur numérique, micro-ordinateur

Circuits électroniques de détection (—)  
et d'induction (---)

fig.II-16b



Courbes de réponse en fréquence

### III - EXPERIENCES

#### III-A. PROCEDURE EXPERIMENTALE

La procédure expérimentale mise au point pour la préparation de  $^3\text{He}$  liquide peut se décomposer en 3 étapes distinctes :

1) le refroidissement jusqu'à 4,2K : au cours de ce refroidissement du montage, l'enduit cryogénique d'hydrogène moléculaire se forme sur les parois. Pour obtenir de bons résultats, il faut que la répartition de  $\text{H}_2$  soit uniforme sur toute la partie "froide" (voir § II-B) de la cellule. Une méthode assez fiable consiste à maintenir, pendant 15 minutes environ, la partie inférieure autour de 8K, puis à la refroidir très rapidement à 4,2K pour figer l'enduit. Toutes les opérations suivantes s'effectuent en dessous de 4,2K, jusqu'au réchauffement final au terme de l'expérience. Cependant même avec ces précautions, il arrive que l'enduit ne soit pas de qualité suffisante (cf § III-B-2b) et doive être refait.

2) la descente à 1,5K : elle correspond à la phase de liquéfaction de  $^3\text{He}$  cryogénique, et à la construction simultanée de l'orientation nucléaire dans la partie froide par échange avec la cellule du haut, où les atomes sont pompés optiquement de manière permanente.

3) le refroidissement jusqu'à la "température de travail" ( $T \leq 0,5\text{K}$ ), atteinte en quelques dizaines de secondes par pompage sur le bain cryogénique.

Après que les mesures aient été effectuées et que l'orientation nucléaire ait été totalement détruite, nous réchauffons l'intérieur du cryostat à  $^3\text{He}$  jusqu'à 2K environ. Nous reprenons alors l'étape numéro 2 pour préparer un nouvel échantillon gazeux polarisé.

Nous avons pris le parti de présenter au paragraphe suivant les expériences et leurs résultats dans l'ordre chronologique. Nous avons

successivement utilisé les deux cellules, de type a et b, que nous avons décrites en I-B (voir figure II-2).

La première (cellule à deux volumes,  $V_1$  et  $V_2$ ) nous a servi à mettre en évidence la présence de l'échantillon liquide polarisé. Pour plus de clarté, nous distinguons dans notre exposé deux étapes :

- l'étude de la liquéfaction du gaz  $^3\text{He}$  à l'intérieur de la cellule (§ III-B-1a)

- l'étude RMN de l'évolution de l'orientation nucléaire du gaz avant et après la condensation (§ III-B-1b).

La seconde cellule (à trois volumes  $V_1$ ,  $V'_1$  et  $V_2$ ) permet d'obtenir un meilleur taux d'orientation nucléaire et surtout une fraction de l'échantillon d'hélium trois condensée plus importante. Nous avons ainsi pu mener à bien une étude préliminaire RMN du liquide polarisé lui-même (§ III-B-2).

### III-B. OBSERVATIONS

III-B-1) Mise en évidence de la présence de  $^3\text{He}$  liquide dans la cellule

#### III-B-1a) Liquéfaction du gaz

Nous avons étudié en premier lieu la variation de pression à l'intérieur de la cellule lorsque la température du volume  $V_2$  varie entre 1,5K et 0,45K. Considérons, par exemple, le cas d'un refroidissement. On s'attend a priori à ce que la diminution de la température se traduise au début par une variation lente de la pression du gaz, liée à la modification de la carte des températures dans la double cellule. Au moment où l'on rencontre la courbe d'équilibre liquide gaz, le gaz commence à se liquéfier dans  $V_2$  : la pression est alors égale à la pression de vapeur saturante du

gaz, qui varie très vite avec la température dans cette région. La figure II-17 représente les courbes pression/température correspondantes. La courbe 1 est obtenue par le calcul à partir de la pression de remplissage, de la taille de la cellule et de la carte présumée des températures. La courbe 2 ( $P_s(T)$ ) représente les variations de la tension de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  dans la même zone de température [31]. Le début de la liquéfaction du gaz se traduit donc par une brusque accélération de la chute de pression à l'intérieur de la cellule. De la même façon au cours d'un réchauffement, la pression dans la cellule cesse de suivre la variation rapide  $P_s(T)$  dès que tout le liquide est évaporé: elle augmente ensuite plus lentement avec la température.

Expérimentalement, nous avons mesuré optiquement (§ II-C-2b) la pression dans le volume  $V_1^{(*)}$ , à 300K. Simultanément, nous avons enregistré la pression et la température du bain de  $^3\text{He}$  cryogénique dans lequel trempe le volume  $V_2$ . La figure II-18 présente les résultats obtenus pour un refroidissement (18a) et un réchauffement (18b), entre 0,75K et 0,43K. Nous voyons que la variation de pression dans la cellule a bien l'allure prévue. La température de liquéfaction est égale à 0,54K pour cette cellule. La condensation se produit à une pression voisine de 270mtorr; cette valeur expérimentale est en accord avec celle calculée à partir de nos données. La densité du gaz est alors de l'ordre de  $5 \cdot 10^{18}$  atomes/cm<sup>3</sup>.

Toutefois, il apparaît clairement sur la figure II-18 que la pression dans le volume  $V_1$  suit avec un peu de retard (1/2 à 1 minute environ) les variations induites par les changements de température dans  $V_2$ . Ce décalage temporel peut être imputé à l'impédance que constitue le tuyau vis-à-vis de l'écoulement des atomes. En effet, lorsque

---

(\*) L'effet thermomoléculaire dans le tuyau de communication [26] entraîne de légères différences de pression entre  $V_1$  et  $V_2$  à l'équilibre. Vers 0,54K, l'écart relatif de pression correspondant est de l'ordre de 10%. Il est à noter que le même écart, traduit en termes de tension de vapeur saturante, correspond à une correction en température de 2% seulement pour le liquide.

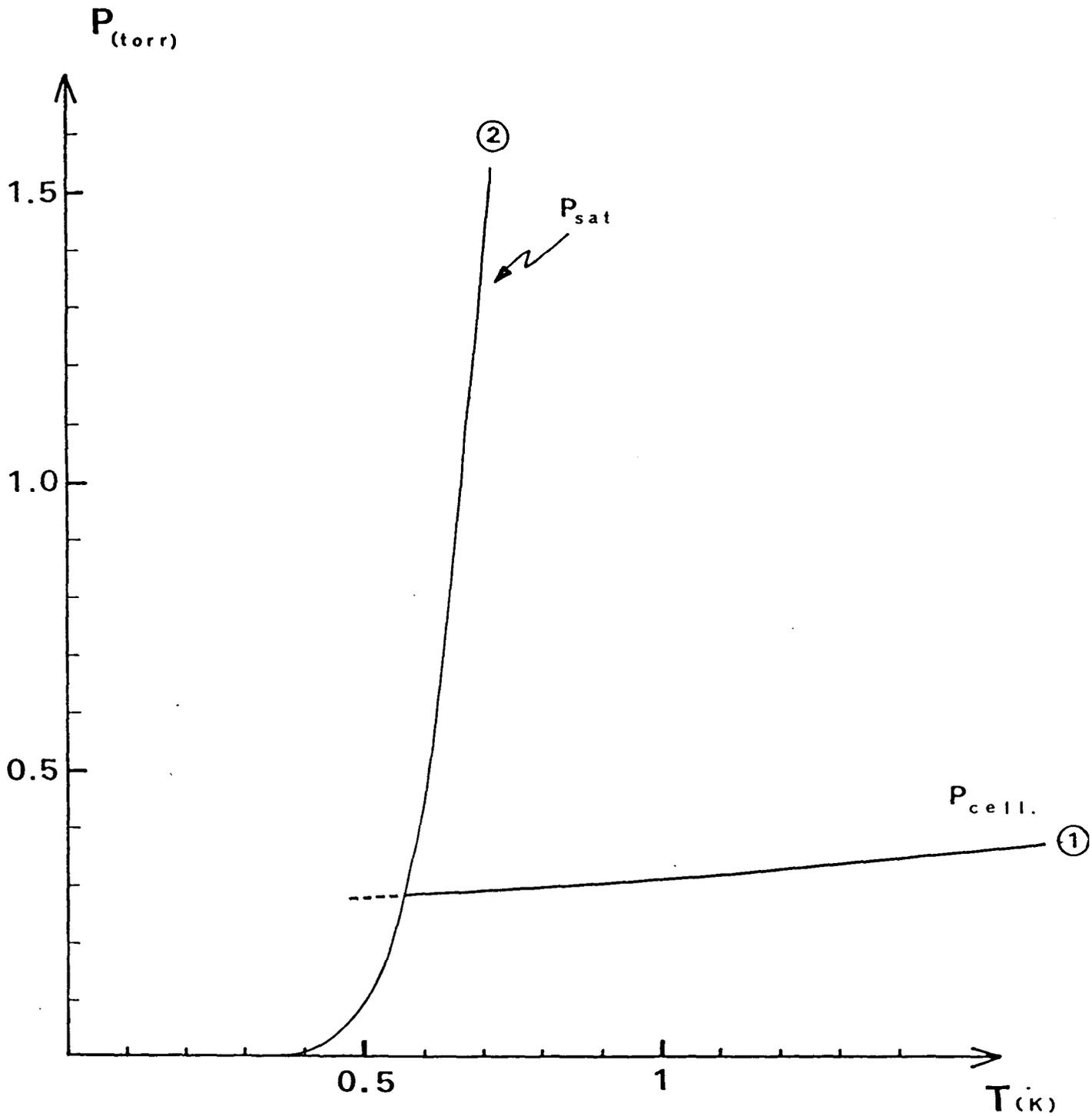
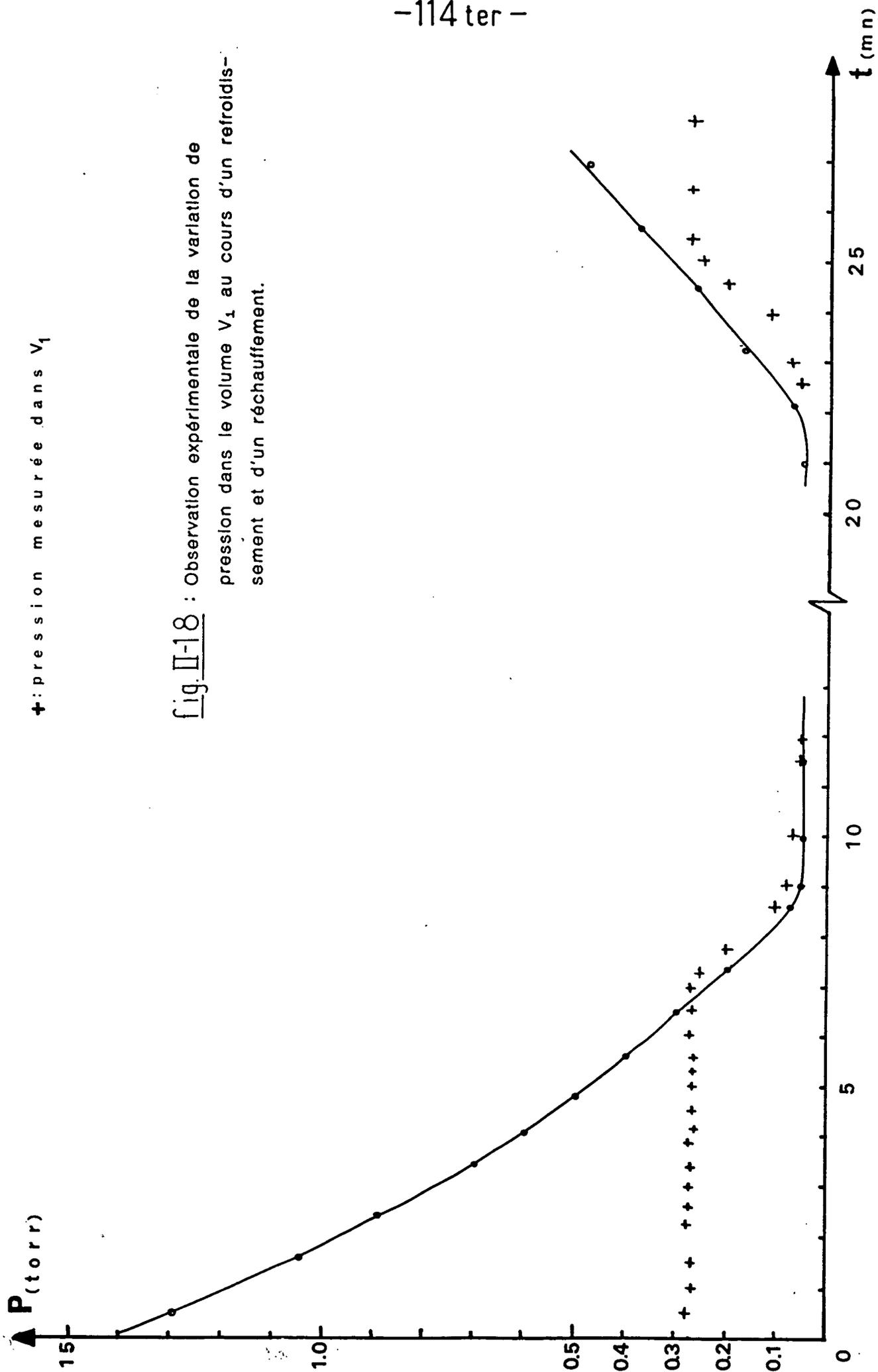


fig. II-17

Variations comparées de la pression à l'intérieur de la cellule et de la tension de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  en fonction de la température.

o : pression mesurée au-dessus du bain de  $^3\text{He}$   
+ : pression mesurée dans  $V_1$

fig. II-18 : Observation expérimentale de la variation de pression dans le volume  $V_1$  au cours d'un refroidissement et d'un réchauffement.



la température (et donc la pression) varie dans  $V_2$ , le retour à l'équilibre entre le haut et le bas de la cellule est ralenti par les effets de viscosité dans le tuyau de communication. Nous pouvons estimer le décalage temporel introduit par le tuyau en calculant le débit d'écoulement des atomes, qui est essentiellement limité par la partie chaude du tube: sa longueur est trois fois supérieure à celle de la partie froide, la viscosité  $\eta$  est plus importante (17 fois plus importante à 200K qu'à 1K), et surtout la densité  $\rho$  est 200 fois plus faible, ce qui réduit considérablement le débit d'atomes à travers le tube. La conductance de la portion à 200K du tube s'écrit en régime visqueux (à 270mtorr, le libre parcours moyen est égal à 0,4mm, donc bien inférieur au diamètre  $D$  du tuyau) [26]:

$$C \text{ (l/sec)} = 3.3 \cdot 10^{-5} \frac{D^4 P}{\eta l}$$

$\eta$  = viscosité du gaz en poise ( $1p = 0,1Ns/m^2$ );  $D$  = diamètre du tuyau en cm ;  $l$  = longueur du tuyau en cm;  $P$  = pression du gaz en millitorr.

Avec  $D = 0,3cm$ ,  $l = 60cm$  et  $\eta = 12.5 \cdot 10^{-5}$  poise, nous avons  $C(cm^3/s) = 3,5 \times 10^{-2} \times P(mtorr)$ , soit environ  $10cm^3/s$  lorsque  $P = 270$  mtorr. En tenant compte du rapport des densités, le temps caractéristique mis pour répercuter dans  $V_1 = 200cm^3$  une variation de pression égale à 1% de la pression initiale (soit à 2,7mtorr) est donc égal à  $\Delta t = 35$  secondes. Ceci est en accord avec le retard observé expérimentalement.

En définitive, les résultats présentés montrent que nous parvenons à condenser notre échantillon gazeux : il y a, dans cette cellule, de l'hélium trois liquide lorsque la température est inférieure ou égale à 0,53K. Il reste à montrer qu'il est effectivement polarisé.

### III-B-1b) Etude RMN de l'évolution de l'orientation nucléaire dans la phase gazeuse

Pour l'étude RMN de cette cellule, nous avons utilisé le dispositif électrique décrit au paragraphe II-C-3b. La technique employée est

identique à celle que nous avons décrite dans la première partie de ce mémoire; nous détectons la f. e. m. induite dans les bobines réceptrices par la précession d'une petite composante transversale, produite à partir de l'aimantation longitudinale par une impulsion radiofréquence résonnante, à la fréquence de Larmor. L'amplitude du signal est directement proportionnelle au module de l'aimantation transversale, ce qui permet d'en déduire la valeur de l'aimantation longitudinale initiale (\*). La figure II-19a donne un exemple de signaux RMN obtenus pour le gaz polarisé : ils correspondent aux composantes du signal électrique en phase et en quadrature par rapport à une fréquence de référence fixe, choisie proche de la fréquence de précession des spins dans le champ extérieur  $B_0$ .

Ces signaux sont analysés numériquement. Nous pouvons, comme cela a été discuté dans la première partie, en extraire l'évolution temporelle du module du signal qui permet de déterminer à la fois l'amplitude initiale et le temps de relaxation  $T_2$  (de l'ordre de quelques secondes, valeur fixée par les inhomogénéités du champ statique sur le volume  $V_2$ ). Nous pouvons également calculer numériquement le spectre en fréquence du signal enregistré. Il se compose d'un pic à la fréquence de Larmor dont la largeur est déterminée par le temps de relaxation  $T_2$  ; la figure II-19b représente le spectre correspondant aux signaux de la figure II-19a.

Nous avons étudié l'évolution de l'aimantation nucléaire au cours du changement d'état. La figure II-20 présente les résultats obtenus au cours d'un refroidissement, suivi d'un réchauffement, de l'échantillon polarisé. Nous y avons dessiné la courbe décrite par l'amplitude du signal RMN en fonction du temps. Plusieurs commentaires s'imposent :

---

(\*) Nous renvoyons le lecteur au chapitre IV de la première partie pour une description de la calibration des signaux RMN et de leur analyse.

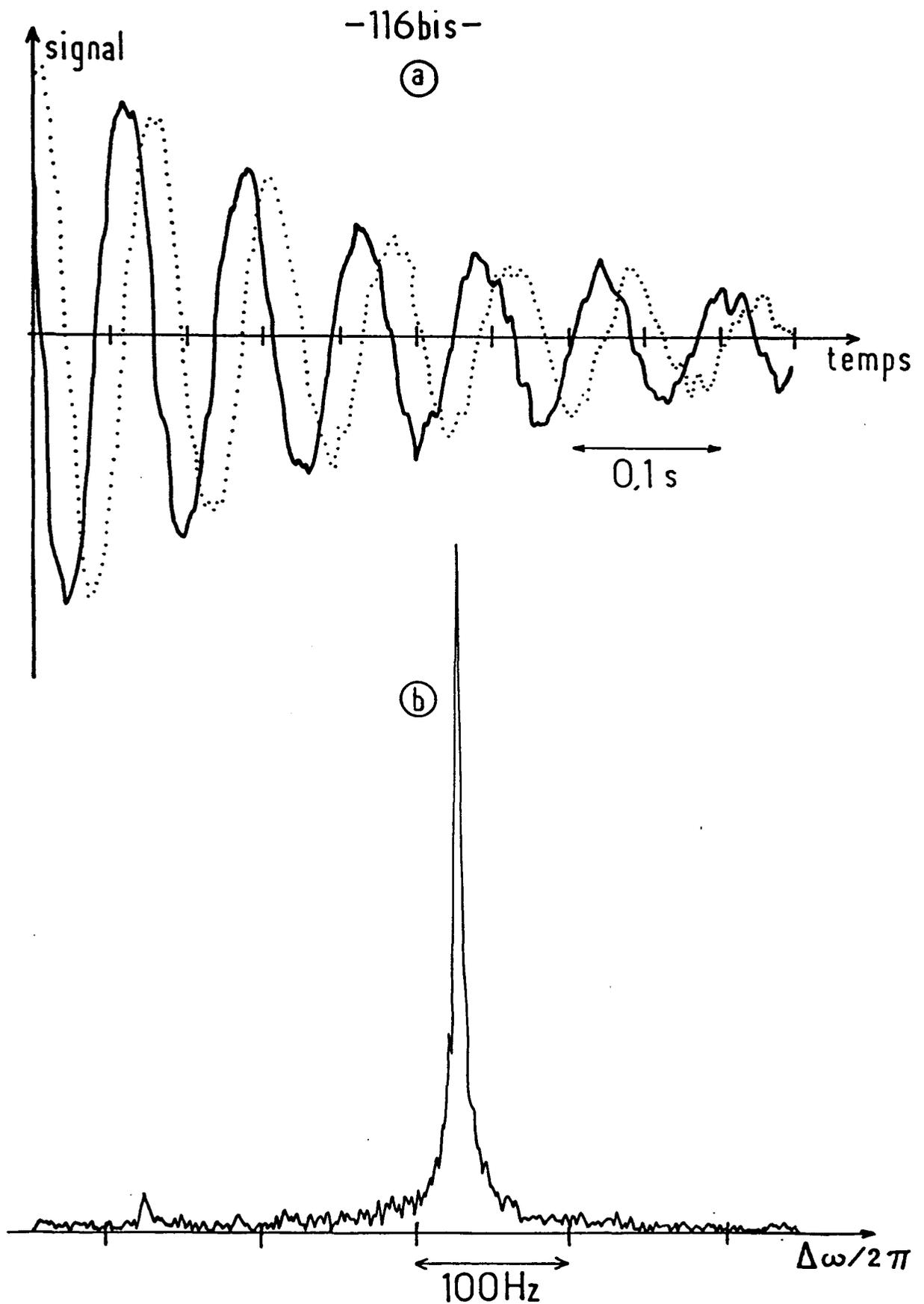
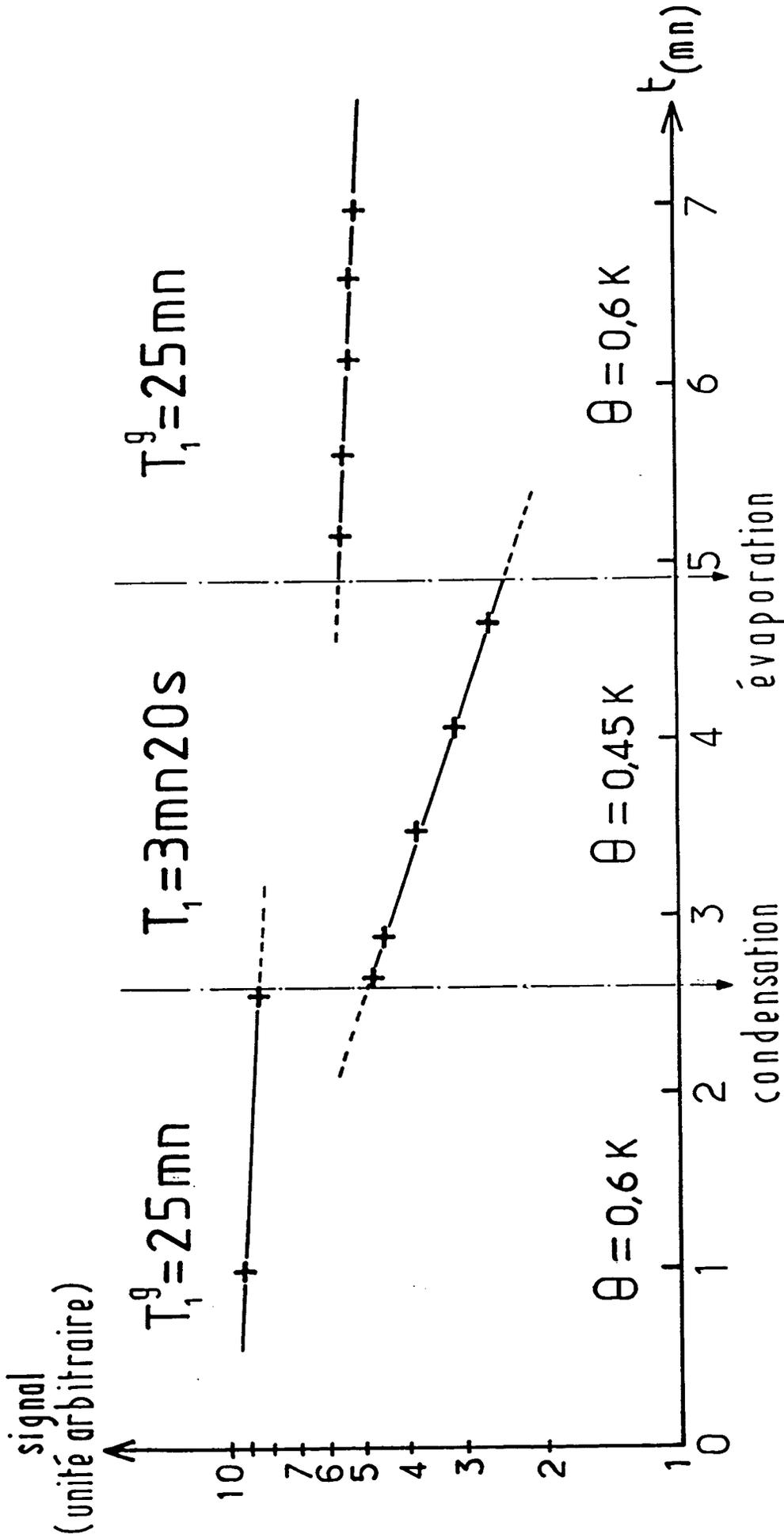


Fig. I-19: Signal RMN enregistré avant liquéfaction de l'échantillon

- (a) évolution temporelle des composantes en phase et en quadrature du signal de précession de l'aimantation transverse ( $T_2 \approx 0.3$  s)
- (b) spectre en fréquence du signal précédent.



**fig. II-20:** Evolution de l'amplitude du signal RMN (proportionnelle au taux de polarisation nucléaire M) de précession de l'aimantation transverse du gaz au cours d'un cycle condensation  $\rightarrow$  évaporation.

En échelle logarithmique, la variation linéaire du signal en fonction du temps donne accès au temps de relaxation longitudinale  $T_1$ . On constate que  $T_1$  est sensiblement plus court lorsque le gaz est en présence du liquide polarisé.

1) le signal RMN détecté dans cette expérience est uniquement celui du gaz. Comme nous le verrons au paragraphe suivant, le signal du liquide présente des caractéristiques très différentes. Nous attribuons ici son absence à la faiblesse de son amplitude; elle résulte à la fois de l'insuffisance de la proportion d'atomes condensés ( $\ll 1/10$ ) et du mauvais facteur de remplissage géométrique. En effet, le couplage entre la goutte formée sur la paroi interne de  $V_2$  et les bobines de détection placées à l'extérieur du cryostat à hélium trois est faible (\*) (écartement de 4,5cm pour un rayon de 1,15cm).

2) La liquéfaction se traduit par une nette diminution du signal RMN du gaz. Nous constatons qu'il est réduit d'un facteur sensiblement égal au rapport entre le nombre d'atomes présents dans le volume  $V_2$  avant et après liquéfaction. Nous pouvons en conclure que le taux d'orientation du gaz n'est pas modifié au cours du processus de liquéfaction. De la même manière, la variation d'amplitude du signal RMN reflète la variation du nombre d'atomes dans  $V_2$  au cours de la réévaporation : l'évaporation ne change pas de façon significative le taux d'orientation du gaz.

3) Nous voyons également sur la figure II-20 qu'après réévaporation du liquide formé, le signal RMN revient à un niveau comparable à son niveau initial. Ceci est dû au fait que la durée de l'expérience présentée est assez brève. En règle générale, nous avons constaté que la différence entre les amplitudes du signal RMN avant liquéfaction et après réévaporation est sensiblement égale à la seule perte par relaxation nucléaire qui correspond à la durée de vie  $T_1$ , visible sur la figure, à l'équilibre diphasé. En fin de compte, la polarisation totale varie peu au cours des deux changements de phase.

---

(\*) Nous pouvons calculer par exemple que si  $s_0$  est le signal induit par un moment magnétique placé au centre de la cellule, le même moment placé 2cm plus bas induit un signal à  $0,24s_0$  seulement.

4) Enfin, la figure II-20 montre que la liquéfaction d'une partie de l'échantillon s'accompagne d'une variation sensible du taux de relaxation nucléaire en phase gazeuse : le temps de relaxation longitudinale  $T_1$ , qui vaut 25mm à 0,6K, devient de l'ordre de 3 ou 4 minutes dès que le liquide est formé. Nous interprétons cette modification par l'échange perpétuel d'atomes entre le liquide et le gaz à l'équilibre biphasé, qui couple étroitement l'évolution du taux de polarisation dans le gaz à celle de la phase liquide, dont l'évolution propre est beaucoup plus rapide (voir § III-B-2b).

En résumé, les expériences qui viennent d'être décrites montrent sans ambiguïté que nous sommes capables de liquéfier une partie de l'échantillon contenu dans la cellule. Lorsque initialement le gaz est nucléairement orienté, le liquide obtenu est également polarisé. L'aimantation est globalement conservée au cours des changements de phase "liquide→gaz" et "gaz→liquide".

Dans le paragraphe suivant, nous abordons l'étude RMN du liquide polarisé lui-même. Nous verrons qu'elle permet d'obtenir de nombreuses informations sur la phase condensée formée dans la cellule.

### III-B-2) Etude RMN du liquide polarisé (2ème cellule)

Pour pouvoir observer directement le signal RMN du liquide polarisé, nous avons légèrement modifié le dispositif expérimental précédent. D'une part, nous avons utilisé un circuit de détection placé à l'intérieur du cryostat à  $^3\text{He}$ : les bobines réceptrices, disposées à proximité immédiate de la cellule, sont ainsi mieux couplées à l'aimantation de l'échantillon : le signal RMN capté est plus grand. D'autre part, nous avons adopté le système de cellules à 3 bulbes (cellules de type b) décrit au paragraphe I-B. Il permet à la fois d'obtenir de meilleurs taux de polarisation, une proportion d'atomes condensés plus grande et un volume total de liquide plus important.

Pour clarifier la présentation des résultats expérimentaux obtenus, nous commençons par expliquer les particularités du signal RMN que l'on peut s'attendre à observer avec notre échantillon liquide (§ III-B-2a). A la lumière de cette analyse, les spectres décrits au paragraphe suivant (III-B-2b) s'interprètent simplement. Il est alors possible d'en extraire d'intéressantes informations relatives à la localisation de la phase condensée, et à l'évolution des spins nucléaires en son sein.

#### III-B-2a) Un modèle pour l'évolution temporelle de l'aimantation nucléaire dans la phase liquide

Considérons un atome appartenant à l'échantillon d'hélium trois que nous supposerons uniformément polarisé dans tout ce paragraphe. Il est soumis à un champ magnétique  $B_{\text{eff}}$  local différent du champ extérieur appliqué  $B_0$ . En effet, il faut ajouter à  $B_0$  le champ magnétique  $B'$  induit sur l'atome considéré par tous les autres atomes présents.

Cette contribution peut être ignorée lorsque le volume de l'échantillon possède la symétrie sphérique. Elle est alors rigoureusement nulle. C'est le cas, par exemple, du gaz polarisé qui est contenu dans la boule  $V_2$  : la fréquence de précession des spins est exactement égale à la fréquence de Larmor correspondant au champ statique  $B_0$ .

Dans nos expériences, la goutte liquide formée sur la paroi a, a priori, une forme aplatie : la fraction de  $\text{mm}^3$  condensée s'étale sur la surface de la cellule. On s'attend par conséquent à ce que le champ  $B'$  ne soit ni nul ni même parallèle à la direction de l'aimantation, et participe à l'évolution temporelle de celle-ci. Dans le liquide, dense et assez fortement polarisé, ce phénomène doit se traduire par une modification sensible du spectre RMN du signal de précession. Pour la déterminer, nous allons d'abord calculer le champ magnétique  $B'$  qui existe à l'intérieur de l'échantillon liquide en l'absence du champ appliqué  $B_0$ ; nous étudierons ensuite l'évolution temporelle de l'aimantation quand on ajoute le champ statique  $B_0$ .

### Champ magnétique à l'intérieur de l'échantillon

En l'absence de champ appliqué  $B_0$ , un atome donné est soumis au champ magnétique  $B'$  induit par tous les autres atomes de l'échantillon (dont nous supposons toujours l'aimantation uniforme). Bien sûr, le champ réel qui agit sur chaque atome fluctue à l'échelle microscopique; ceci donne lieu au phénomène de relaxation dipolaire dans le liquide, qui interviendra un peu plus tard. Pour le moment, nous ignorons ces fluctuations et calculons la valeur moyenne du champ magnétique local.

Pour calculer le champ subi par un atome placé en un point  $P$  de l'échantillon, nous divisons celui-ci en deux parties séparées par une sphère  $\Sigma'$ , centrée en  $P$ , de rayon  $a$  ( $a$  est choisi grand devant les dimensions atomiques mais petit devant les dimensions caractéristiques de l'échantillon (fig II-21a)). A l'intérieur de  $\Sigma'$ , les atomes proches de  $P$  sont nombreux et occupent des positions quelconques aléatoires : le champ induit par leur moment magnétique est nul en moyenne. Il ne reste plus qu'à calculer le champ induit en  $P$  par les atomes situés à l'extérieur de la sphère  $\Sigma'$ , c'est-à-dire dans le volume  $V$  délimité par  $\Sigma'$  et la surface externe de l'échantillon notée  $\Sigma$ . Dans ce volume  $V$ , tous les atomes sont séparés de  $P$  par une distance supérieure ou égale au rayon  $a$  : nous pouvons décrire le système à l'aide d'une distribution continue de densité d'aimantation macroscopique  $\vec{m}$ .

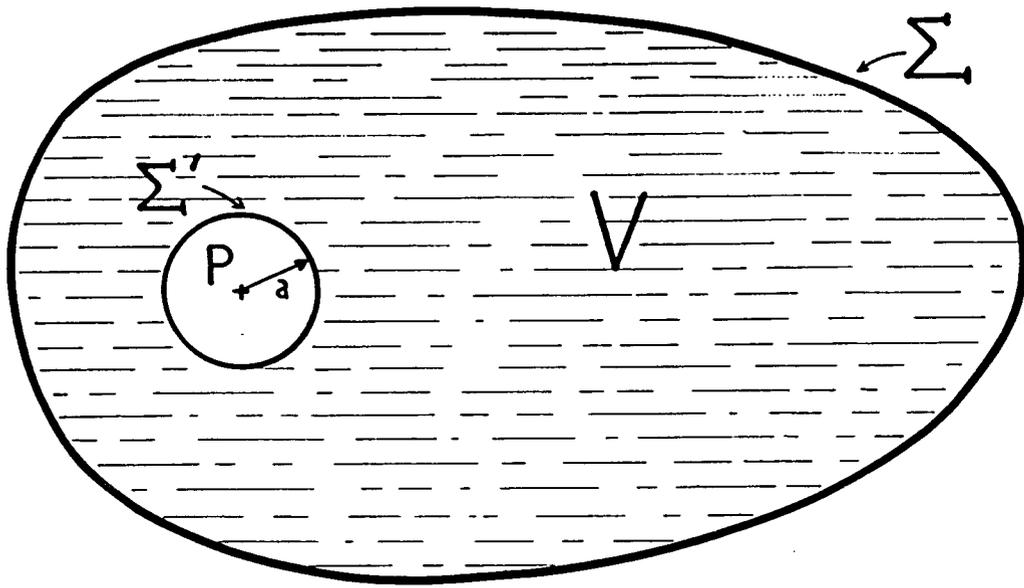


Fig. II-21a

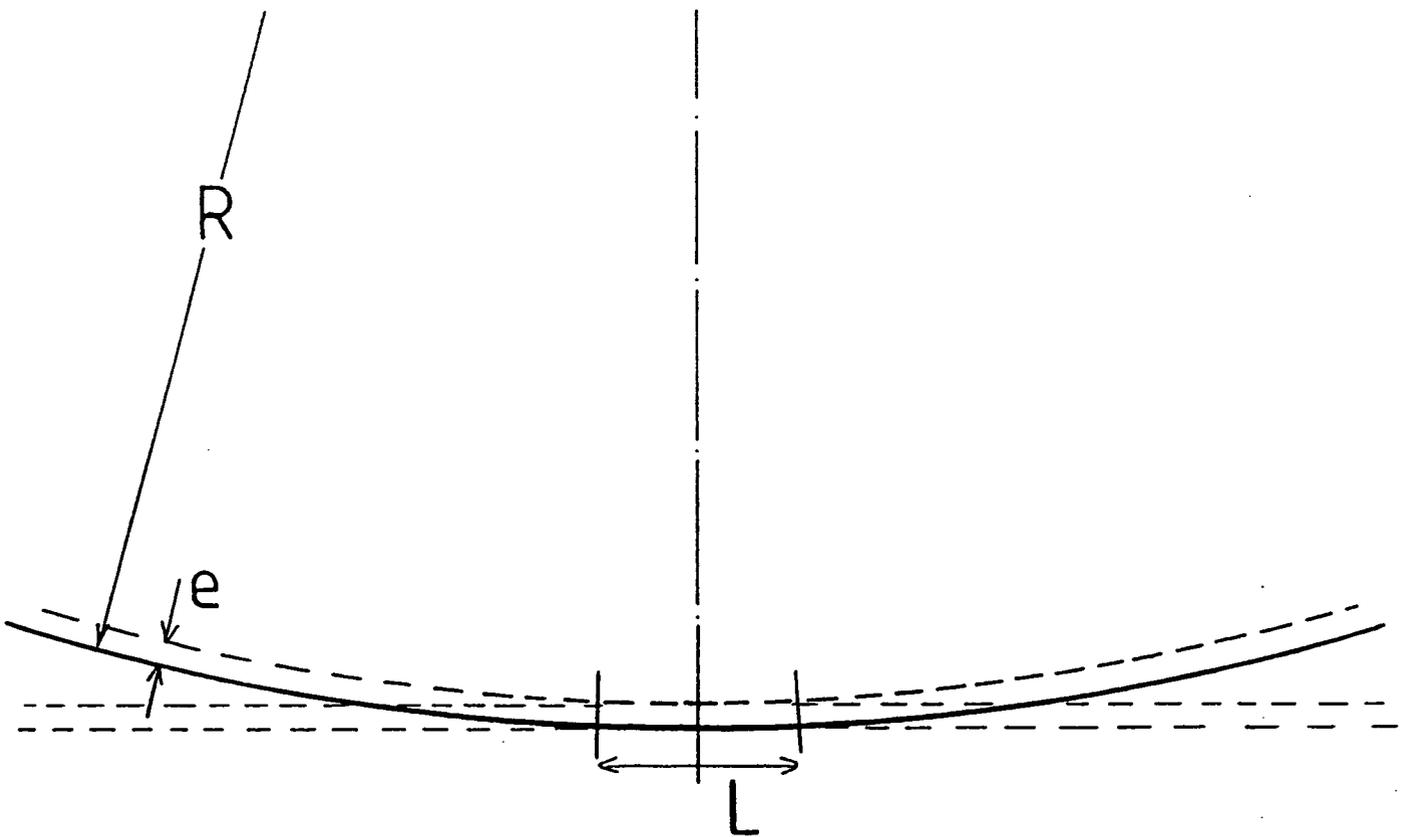


fig. II-21b

A ce stade, nous devons prendre en compte la forme géométrique de l'échantillon liquide : le champ vu par l'atome considéré dépend a priori de l'aimantation de tous les atomes contenus dans le volume  $V$ , y compris ceux qui sont très éloignés. Ceci vient du fait que la contribution d'un élément de volume  $d^3\vec{r}$  situé au voisinage d'une position moyenne repérée, par rapport à l'origine  $P$ , par le vecteur  $\vec{r}$  varie en  $\mu_0 \mathcal{M}_0(\vec{r}) d^3\vec{r}/r^3$ . En coordonnées sphériques,  $d^3\vec{r} = r^2 dr \cdot d\Omega$  où  $d\Omega$  est un angle solide élémentaire. Dans le calcul du champ total, la contribution des parties éloignées ne décroît donc pas avec la distance  $r$  à laquelle elles se situent. Le champ magnétique induit en un point  $P$  dépend ainsi de sa position exacte à l'intérieur de l'échantillon. Cette inhomogénéité se traduit en général par un élargissement de la raie RMN.

Mais dans nos expériences, nous bénéficions de circonstances très particulières : l'échantillon est à peu près bidimensionnel. En effet, compte tenu du volume condensé ( $\sim 0,3\text{mm}^3$ ) et du diamètre de la cellule ( $2R \approx 1\text{cm}$ ), l'épaisseur du film de  $^3\text{He}$  est de l'ordre du micron s'il recouvre toute la cellule de manière uniforme : même si une partie seulement de la cellule est recouverte, l'épaisseur  $e$  du film est très faible par rapport au rayon de courbure de la paroi. Soit  $L$  une distance caractéristique très grande devant  $e$ . Pour les atomes situés à une distance  $r$  supérieure à  $L$ , la somme peut être approchée par une intégrale bidimensionnelle. L'élément d'intégration a alors une dépendance radiale en  $r \cdot dr$ , ce qui conduit à une intégrale convergente à l'infini : la contribution des atomes très éloignés (au delà de  $L$ ) est donc négligeable. Dans le cas particulier de notre échantillon presque bidimensionnel, le champ vu par un atome prend ainsi un caractère "local" : il ne dépend que de la contribution des atomes situés à une distance pas trop supérieure à  $e$ .

Dans notre configuration, il est possible de choisir pour  $L$  une valeur intermédiaire telle que  $R \gg L \gg e$  : on se ramène ainsi à l'étude d'un échantillon qui aurait la forme d'une galette cylindrique plane, de diamètre  $L$  très grand devant son épaisseur  $e$ . A cette échelle, il est d'ailleurs possible (et plus commode) de remplacer cette galette par une plaque infinie d'épaisseur  $e$  (fig.II-21b)

Finalement, le calcul du champ local  $B'$  en  $P$  se ramène à celui du champ magnétique créé à l'intérieur d'une cavité sphérique creusée dans une plaque infinie d'épaisseur  $e$  uniformément aimantée. Il s'agit là d'un problème classique de magnétostatique, que l'on peut résoudre au choix soit par l'intermédiaire des densités de charges équivalentes (par analogie avec l'électrostatique), soit par les densités de courants équivalents (voir la référence [33] par exemple).

• par analogie électrostatique (figure II-21c)

L'aimantation étant uniforme, il n'y a pas de densité volumique de charges ( $\rho = -\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{M}} = 0$ ). Sur chaque surface, il existe en revanche une densité surfacique  $\vec{\sigma} = \vec{\mathcal{M}} \cdot \vec{n}_0$  où  $\vec{n}_0$  désigne la normale extérieure à l'échantillon au point considéré. La contribution  $B_\Sigma$  de la surface externe  $\Sigma$  est donc le champ créé entre deux plans infinis portant des charges surfaciques uniformes et opposées (avec la correspondance  $1/\epsilon_0 \leftrightarrow \mu_0$ ). Elle est uniforme entre les plaques, et vaut :

$$\vec{B}_\Sigma = -\mu_0 (\vec{\mathcal{M}} \cdot \vec{n}) \vec{n}$$

$\vec{n}$  est par définition la normale extérieure à la surface libre de l'échantillon (voir figure)

La contribution de la sphère  $\Sigma'$  est indépendante de son rayon  $a$ , et elle vaut :

$$\vec{B}_{\Sigma'} = \mu_0 \vec{\mathcal{M}}/3$$

Nous en déduisons immédiatement l'expression du champ local  $\vec{B}'$  résultant :

$$\vec{B}' = -\mu_0 (\vec{\mathcal{M}} \cdot \vec{n}) \vec{n} + \mu_0 \vec{\mathcal{M}}/3 \quad (\text{II-1})$$

• par les courants équivalents (figure II-21d)

La densité volumique de courants équivalents est nulle :

$\vec{j} = \vec{\nabla} \times \vec{\mathcal{M}} = \vec{0}$ . Il n'y a que la contribution des discontinuités de  $\vec{\mathcal{M}}$  en  $\Sigma$  et  $\Sigma'$ , à qui est associée à la densité surfacique de courants équivalents:  $\vec{j}_S = \vec{\mathcal{M}} \times \vec{n}_0$  (avec les mêmes notations que précédemment).

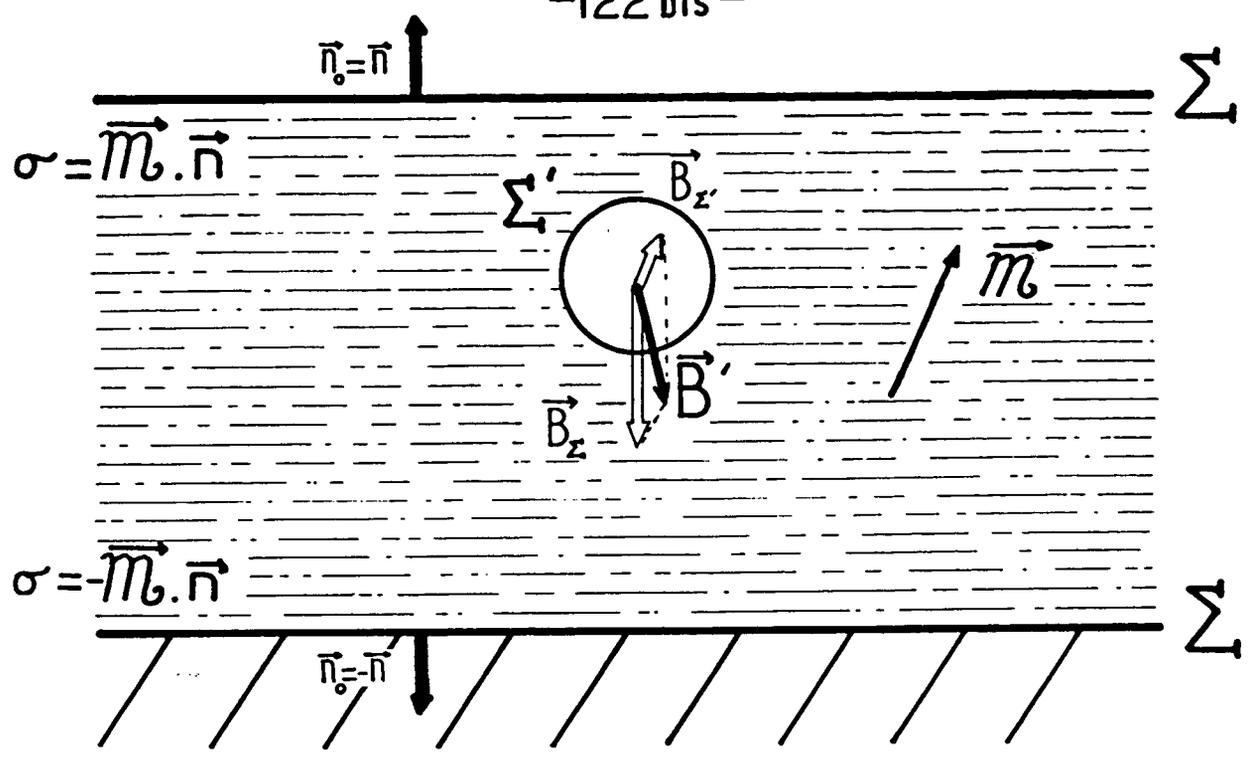


Fig. II-21c

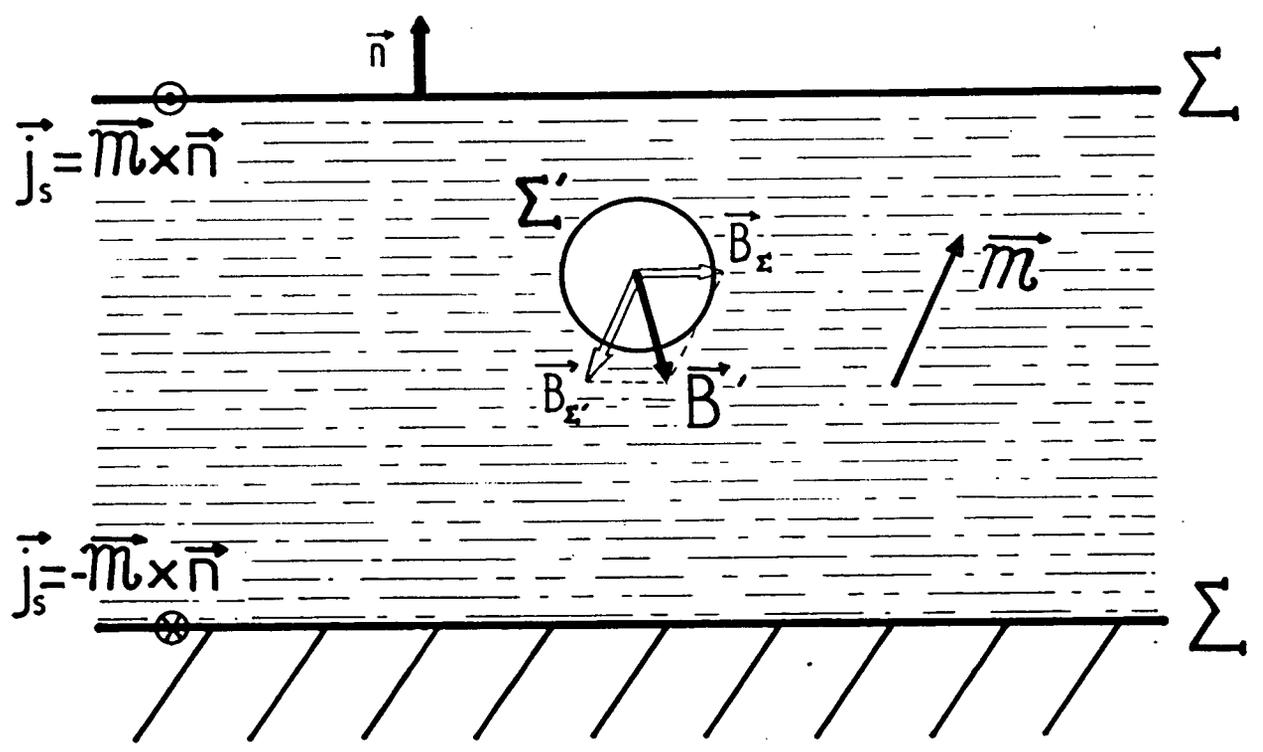


Fig. II-21d

Modèles simples pour le calcul du champ démagnétisant dans le liquide polarisé : charges ou courants ( $\sigma$  ou  $\vec{j}_s$ ) surfaciques équivalents.

La contribution de  $\Sigma$ , toujours uniforme, est cette fois-ci égale à :

$$\vec{B}_{\Sigma} = -\mu_0 \vec{j}_0 \times \vec{n}$$

où  $\vec{j}_0 = \vec{m} \times \vec{n}$  (voir figure) et celle de la sphère  $\Sigma'$  (indépendante du rayon  $a$  choisi) vaut :

$$\vec{B}_{\Sigma'} = (-2/3) \mu_0 \vec{m}$$

Le champ local  $\vec{B}'$  qui en résulte s'écrit :

$$\vec{B}' = -\mu_0 (\vec{m} \times \vec{n}) \times \vec{n} - (2/3) \mu_0 \vec{m} \quad (\text{II-2})$$

Remarque:

Nous pouvons immédiatement vérifier que les deux expressions obtenues (II-1) et (II-2) sont équivalentes :

$$\begin{aligned} \vec{B}' &= -\mu_0 (\vec{m} \times \vec{n}) \times \vec{n} - (2/3) \mu_0 \vec{m} \\ &= -\mu_0 ((\vec{m} \cdot \vec{n}) \vec{n} - \vec{m}) - (2/3) \mu_0 \vec{m} \\ &= -\mu_0 (\vec{m} \cdot \vec{n}) \vec{n} + \mu_0 \vec{m} / 3 \end{aligned}$$

Cette équivalence est illustrée sur la figure II-22.

En définitive, le champ local  $\vec{B}'$  auquel est soumis un atome placé au point P considéré s'écrit :

$$\vec{B}' = -\mu_0 (\vec{m} \cdot \vec{n}) \vec{n} + \mu_0 \vec{m} / 3$$

Il ne dépend pas de la position exacte de l'atome dans la portion d'échantillon considérée : nous pouvons espérer observer, dans nos expériences, des raies RMN sans élargissement notable dû à l'effet du champ démagnétisant local. Ici, le seul paramètre géométrique qui intervient est l'angle que fait l'aimantation  $\vec{m}$  avec la normale à la paroi de la cellule.

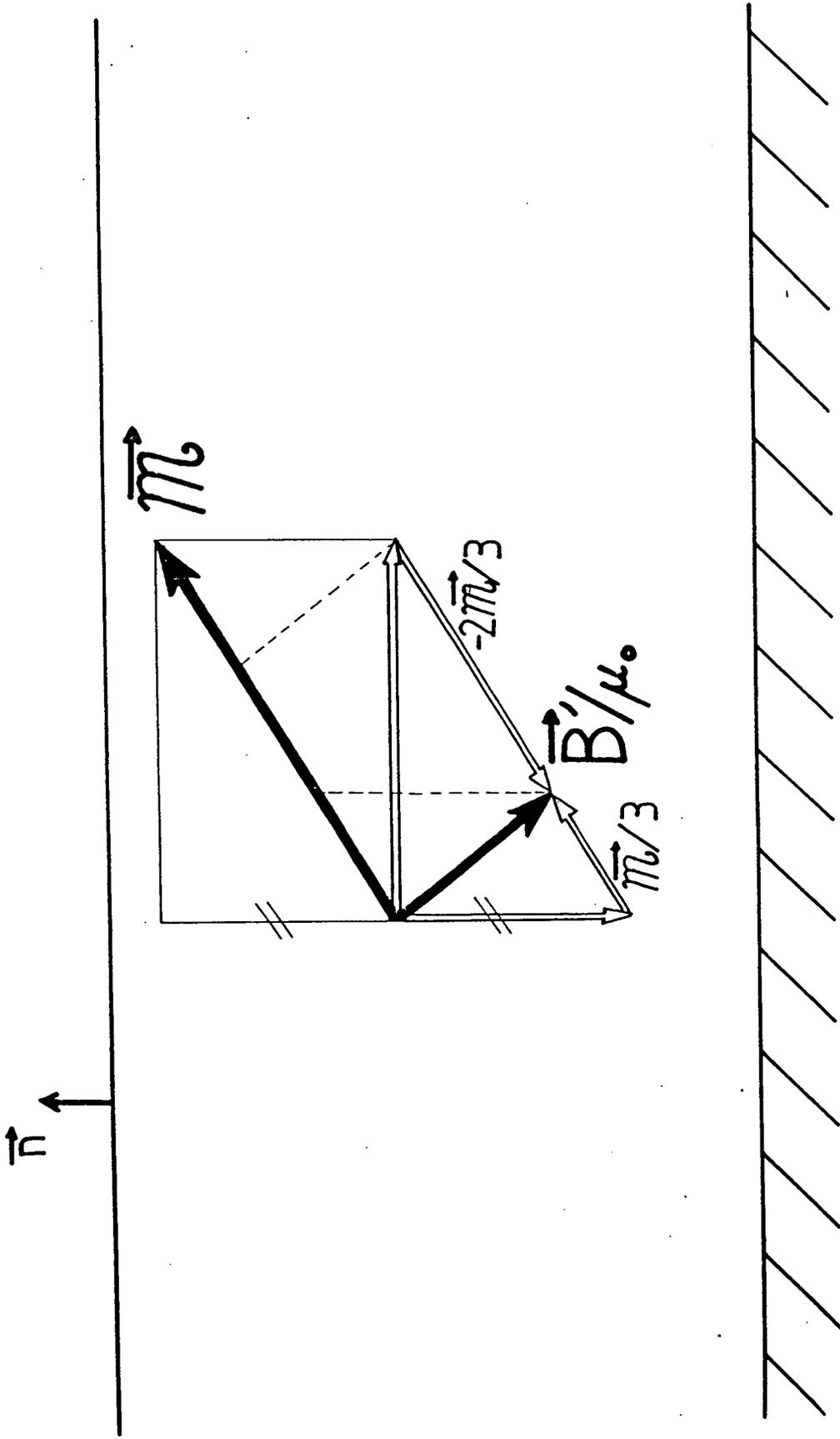


fig. II-22

Illustration vectorielle de l'équivalence, entre les deux points de vue adoptés (charges ou courants surfaciques équivalents) pour calculer le champ magnétique local  $\vec{B}'$ , dans le cas simple d'une plaque infinie à l'intérieur de laquelle la densité volumique d'aimantation  $\vec{M}$  est uniforme.

Evolution de  $\vec{m}$  en présence du champ extérieur appliqué  $\vec{B}_0$

Considérons à présent l'évolution de  $\vec{m}$  en présence du champ magnétique extérieur  $\vec{B}_0$ . Le champ à l'intérieur de l'échantillon est alors égal à :

$$\vec{B}_{\text{eff}} = \vec{B}' + \vec{B}_0$$

$\vec{B}'$  étant le champ que nous venons de calculer. Nous pouvons nous attendre à ce que l'évolution de  $\vec{m}$  dépende de l'orientation locale de la paroi par rapport à la direction du champ statique appliqué  $\vec{B}_0$ . Pour mener le calcul, nous choisissons le repère (O, X, Y, Z) représenté sur la figure II-23 : l'origine O correspond au centre de la boule  $V_2$  et l'axe OZ est défini par  $\vec{B}_0$ , avec :

$$\vec{B}_0 = B_0 \vec{z} \quad \text{et} \quad B_0 > 0$$

L'orientation de la paroi en un point P quelconque de celle-ci est repérée par le trièdre local (x, y, z) associé (voir figure). Avec la convention choisie, le vecteur normal  $\vec{n}$  introduit précédemment vaut  $\vec{n} = -\vec{z}$ .

L'équation d'évolution de l'aimantation  $\vec{m}$  s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \vec{m} = \gamma \vec{m} \times \vec{B}_{\text{eff}}(t) = \gamma \vec{m} \times \vec{B}_0 - \gamma \mu_0 (\vec{m} \cdot \vec{n}) (\vec{m} \times \vec{n}) \quad (\text{II-3})$$

La partie de  $\vec{B}'$  qui est parallèle à  $\vec{m}$  ne contribue évidemment pas à l'évolution temporelle de l'aimantation.

Nous allons résoudre l'équation (II-3) de manière approchée. Dans nos expériences, le champ appliqué  $B_0$  est de l'ordre de 13 Gauss, alors que l'ordre de grandeur de la contribution du champ démagnétisant est donné par  $\mu_0 \gamma M_0$ , qui vaut 22 mG pour un taux de polarisation de 1% (voir plus loin); nous avons donc :

$$\omega_0 \gg |\mu_0 \gamma M_0| \quad (\text{II-4a})$$

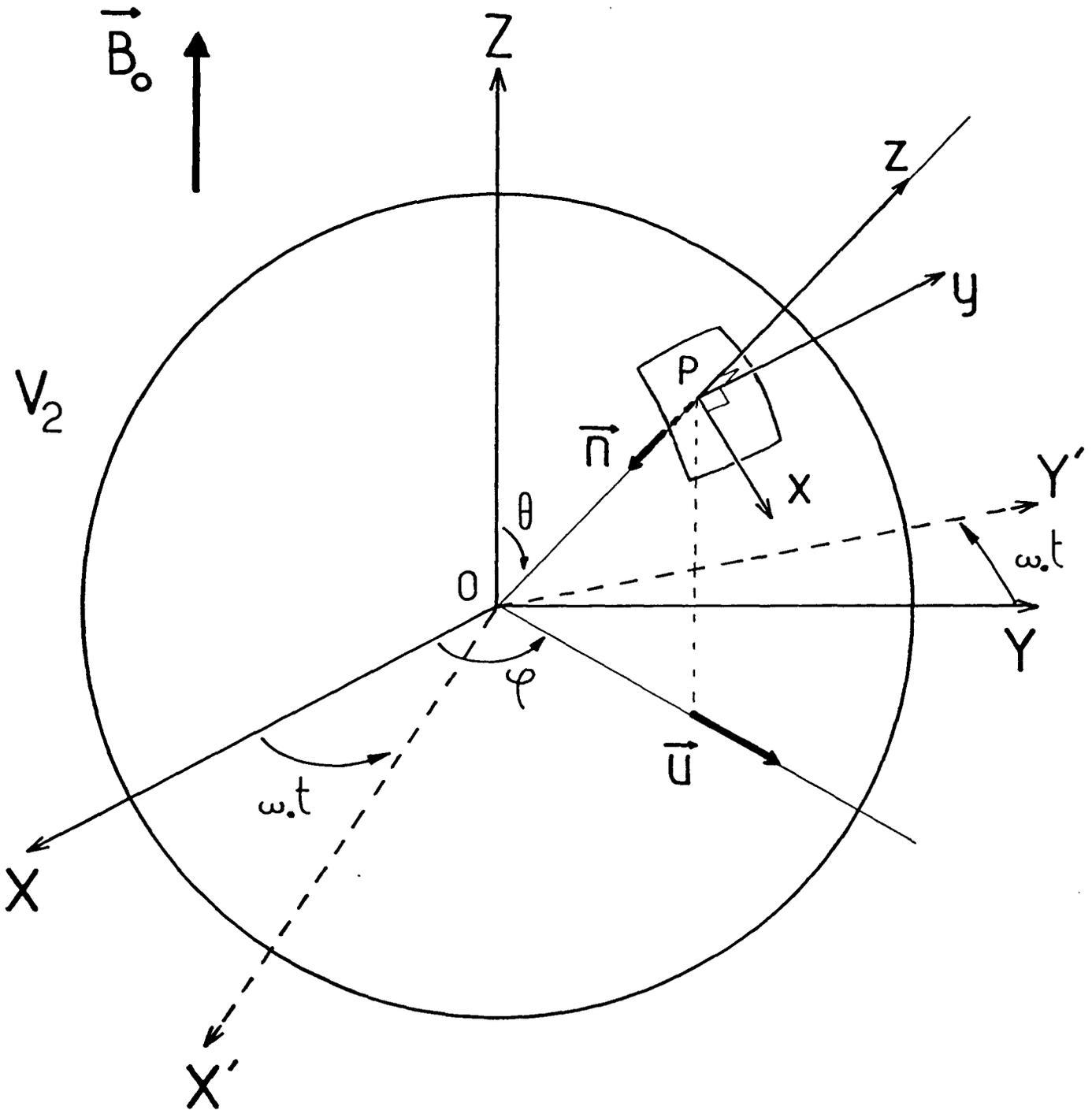


Fig. II-23

Axes de coordonnées adoptés pour repérer l'orientation locale de la paroi par rapport au champ extérieur statique.

Considérons le référentiel  $(O, X', Y', Z)$  tournant autour de l'axe  $OZ$  à la fréquence de Larmor  $\omega_0 = -\gamma B_0$  et, compte tenu de (II-4a), résolvons (II-3) dans l'approximation séculaire. Si  $\theta$  désigne l'angle entre les axes  $Oz$  et  $OZ$  (voir figure II-23), le vecteur  $\vec{n}$  s'écrit dans le nouveau repère:

$$\vec{n}(t) = -(\cos \theta \vec{z} + \sin \theta \vec{u}(t)) \quad (\text{II-4b})$$

avec :  $\vec{u}(t) = \cos(\varphi - \omega_0 t) \vec{x}' + \sin(\varphi - \omega_0 t) \vec{y}'$

et l'équation (II-3) devient :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \vec{m} &= -\gamma \mu_0 (\vec{m} \cdot \vec{n}(t)) (\vec{m} \times \vec{n}(t)) \\ &= -\gamma \mu_0 \vec{m} \times \{ \cos^2 \theta m_z \vec{z} + \sin^2 \theta (\vec{m} - m_z \vec{z}) / 2 \} \\ &\quad + \text{termes non séculaires} \end{aligned} \quad (\text{II-5})$$

D'où : 
$$\frac{d}{dt} \vec{m} = \gamma \vec{m} \times (\delta B \vec{z})$$

avec 
$$\delta B = -\mu_0 m_z (3 \cos^2 \theta - 1) / 2 \quad (\text{II-6})$$

Dans le référentiel de Larmor, l'aimantation  $\vec{m}$  évolue sous l'action d'un champ magnétique fictif  $\delta \vec{B}$ , parallèle à  $OZ$ . En revenant dans le repère fixe  $(O, X, Y, Z)$ , nous pouvons en déduire que l'évolution temporelle de  $\vec{m}$  correspond à une précession autour de l'axe  $OZ$  à une fréquence :

$$\omega = -\gamma (B_0 + \delta B) = \omega_0 + \mu_0 \gamma m_z (3 \cos^2 \theta - 1) / 2 \quad (\text{II-7})$$

Le déplacement de fréquence  $\delta\omega = \omega - \omega_0$  est proportionnel à la composante longitudinale de l'aimantation, et ne dépend que de l'angle d'inclinaison  $\theta$  par rapport au champ statique appliqué. Dans nos expériences, le champ  $\vec{B}_0$  est vertical, et le déplacement de fréquence vaut :

$$\delta\omega_H = \mu_0 \gamma m_z \quad \text{sur les parois horizontales } (\theta = 0 \text{ ou } \pi)$$

et

$$\delta\omega_V = -\mu_0 \gamma m_z / 2 \quad \text{sur les parois verticales } (\theta = \pi/2)$$

Nous voyons que  $\delta\omega_V = -\delta\omega_H/2$  : le déplacement de fréquence par rapport à la fréquence de Larmor est de signe opposé selon que la flaque est verticale (i.e. parallèle à  $B_0$ ) ou horizontale (i.e. perpendiculaire à  $B_0$ ) et que son module varie du simple au double. Le déplacement de fréquence maximal sera donc observé lorsque la flaque est au fond de la cellule et que l'aimantation est essentiellement parallèle au champ statique: Il vaut alors en module :

$$\delta\omega = \mu_0 |\gamma| (n_0 \mu M) \quad (\text{II - 8})$$

où  $n_0$  désigne la densité volumique d'atomes du liquide,  $M$  le taux de polarisation nucléaire, et  $\mu$  le moment magnétique du noyau d'hélium trois. Les données numériques dont nous avons besoin pour calculer  $\delta\omega$  sont :

- . densité atomique :  $n_0 = 1,64 \cdot 10^{22}$  atomes/cm<sup>3</sup> à 0,5K  
(volume molaire  $\simeq 36,7$  cm<sup>3</sup> [34])
- . moment magnétique :  $\mu = 1,08 \cdot 10^{-26}$  J/Tesla
- . facteur gyromagnétique  $|\gamma| = 3,24$  kHz/Gauss
- .  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  dans le système d'unités international

Elles conduisent à :

$$\delta\omega = 72,1 \text{ Hz par pour cent de polarisation nucléaire.}$$

### III-B-2b) Résultats expérimentaux

#### α) Signaux RMN

La liquéfaction des atomes de  $^3\text{He}$  dans la cellule de type b utilisée se produit aux environs de 0,5K et se traduit (comme précédemment avec la cellule de type a du III-B-1) par une nette augmentation de la variation de pression en fonction de la température. L'évolution de l'orientation nucléaire est étudiée par la même technique de RMN pulsée qu'auparavant.

Les figures II-24a, à d, présentent des exemples de signaux RMN induits par la précession de l'aimantation transverse, enregistrés en temps réel.

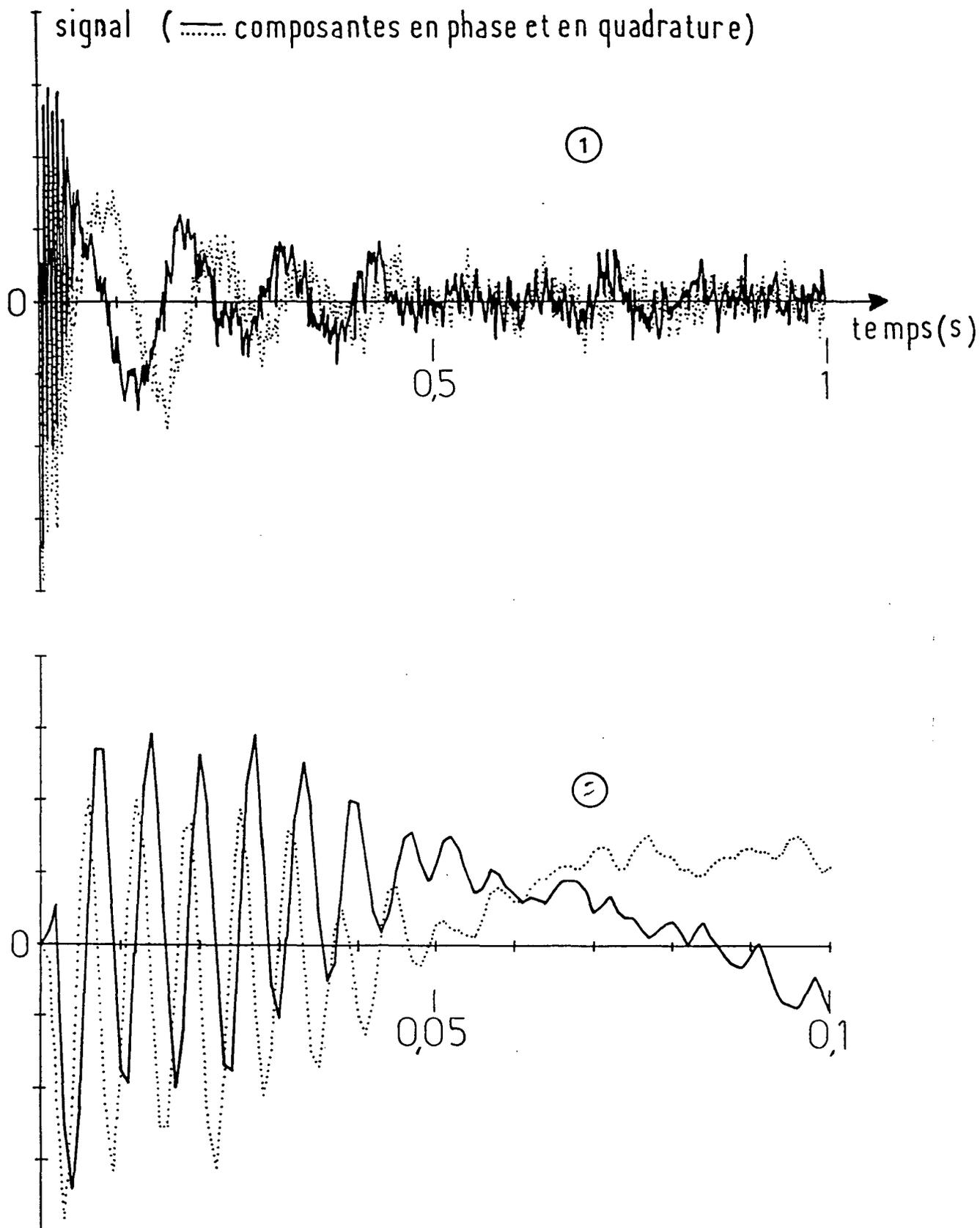
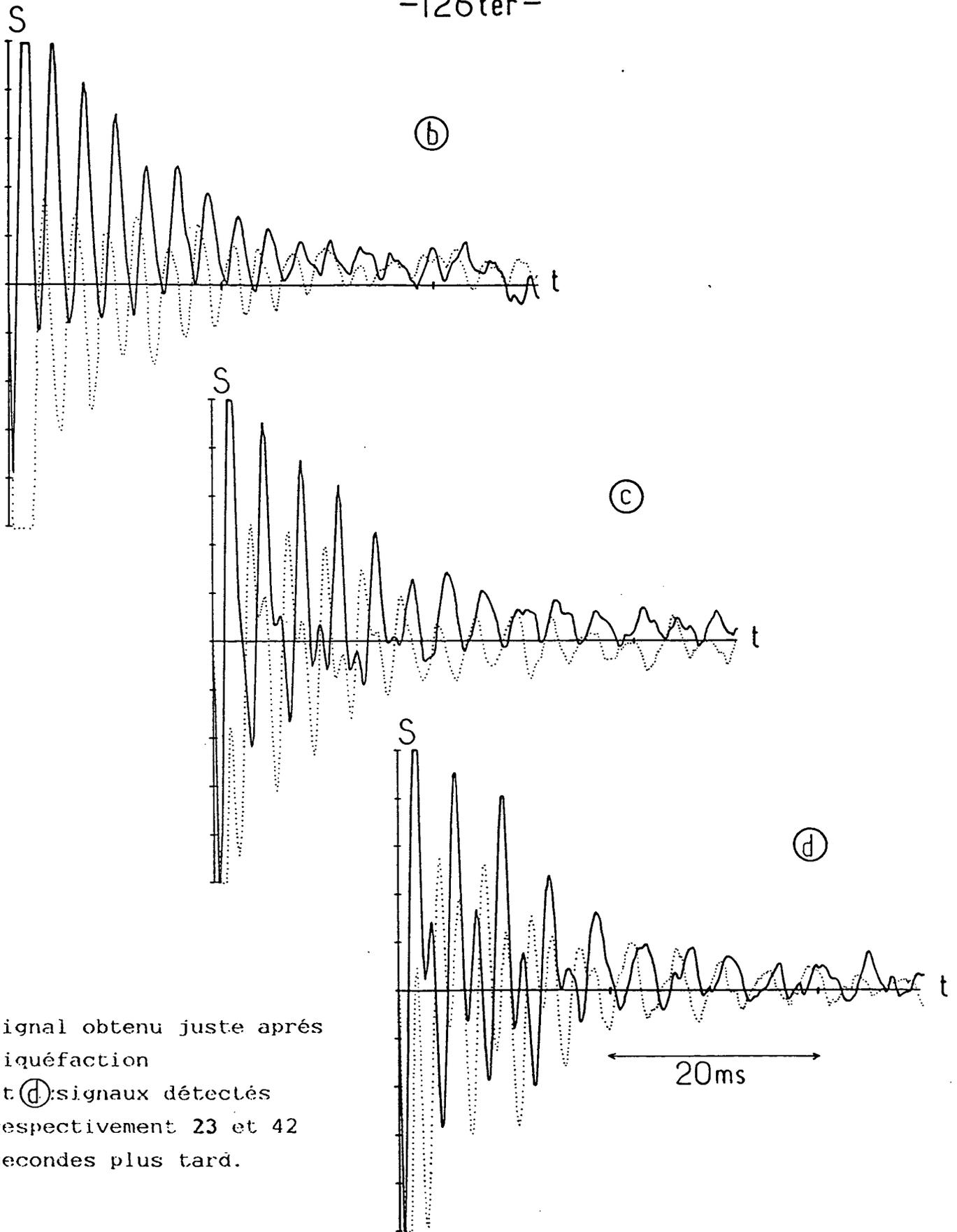


Fig. II-24a: Exemple de signal RMN pour le système diphasé liquide-gaz

- ① enregistrement effectué juste après la liquéfaction: on distingue la contribution du gaz de celle du liquide, qui oscille et disparaît plus rapidement.
- ② détail des 100 premières ms de l'enregistrement.

-126ter-



(b): signal obtenu juste après  
liquéfaction  
(c) et (d): signaux détectés  
respectivement 23 et 42  
secondes plus tard.

Fig. II-24b: Evolution temporelle de la contribution de la phase condensée  
Les courbes (b) à (d) présentent les composantes en phase et en quadrature du  
signal de précession de l'aimantation nucléaire transverse.

La figure II-24a correspond à un signal obtenu juste après la liquéfaction. On y distingue nettement la contribution du gaz de celle du liquide. Celle-ci oscille à une fréquence différente, et disparaît en un temps caractéristique beaucoup plus court.

Les figures II-24b, c, d présentent des enregistrements effectués respectivement à  $t = 0$  s,  $t = 23$  s et  $t = 42$  s. On constate que le signal du liquide se modifie sensiblement à mesure que le temps passe : la durée de vie du signal s'allonge et la structure de l'oscillation s'enrichit. Il est plus commode alors de travailler sur les spectres de Fourier des signaux plutôt que sur leur enregistrement en temps réel.

### β) Spectres en fréquence des signaux RMN

Les signaux électriques que nous détectons sont mémorisés sous forme digitale à l'aide d'un micro-ordinateur. Le spectre en fréquence de chaque enregistrement peut ensuite être calculé numériquement à partir de ces données. Pour dépouiller nos résultats expérimentaux, nous avons utilisé un algorithme, FFT (pour Fast Fourier Transform) classique [32] qui permet d'effectuer rapidement une transformée de Fourier discrète du signal enregistré.

La figure II-25 reproduit différents spectres obtenus de cette manière. Il s'agit de signaux successivement enregistrés au cours d'une même expérience. La courbe  $t=0$  représente le signal RMN du gaz avant liquéfaction. C'est un pic fin, sensiblement centré en  $\delta\omega_g \approx 0$  ( $\delta\omega_g$  désigne ici la différence entre la fréquence de précession des spins du gaz et la fréquence de référence de la détection synchrone, que nous avons choisie très proche de la première afin de nous placer au centre de la bande passante de la détection). La largeur du pic est déterminée par le temps de relaxation transversale  $T_2^g$  en phase gazeuse. Dans l'expérience considérée,  $T_2^g$  est de l'ordre de 0,5s à  $T = 0,6$ K.

La courbe suivante correspond à un signal enregistré 30 secondes plus tard. La liquéfaction de l'échantillon a débuté dans l'intervalle qui sépare les deux premiers enregistrements. Le spectre se compose à

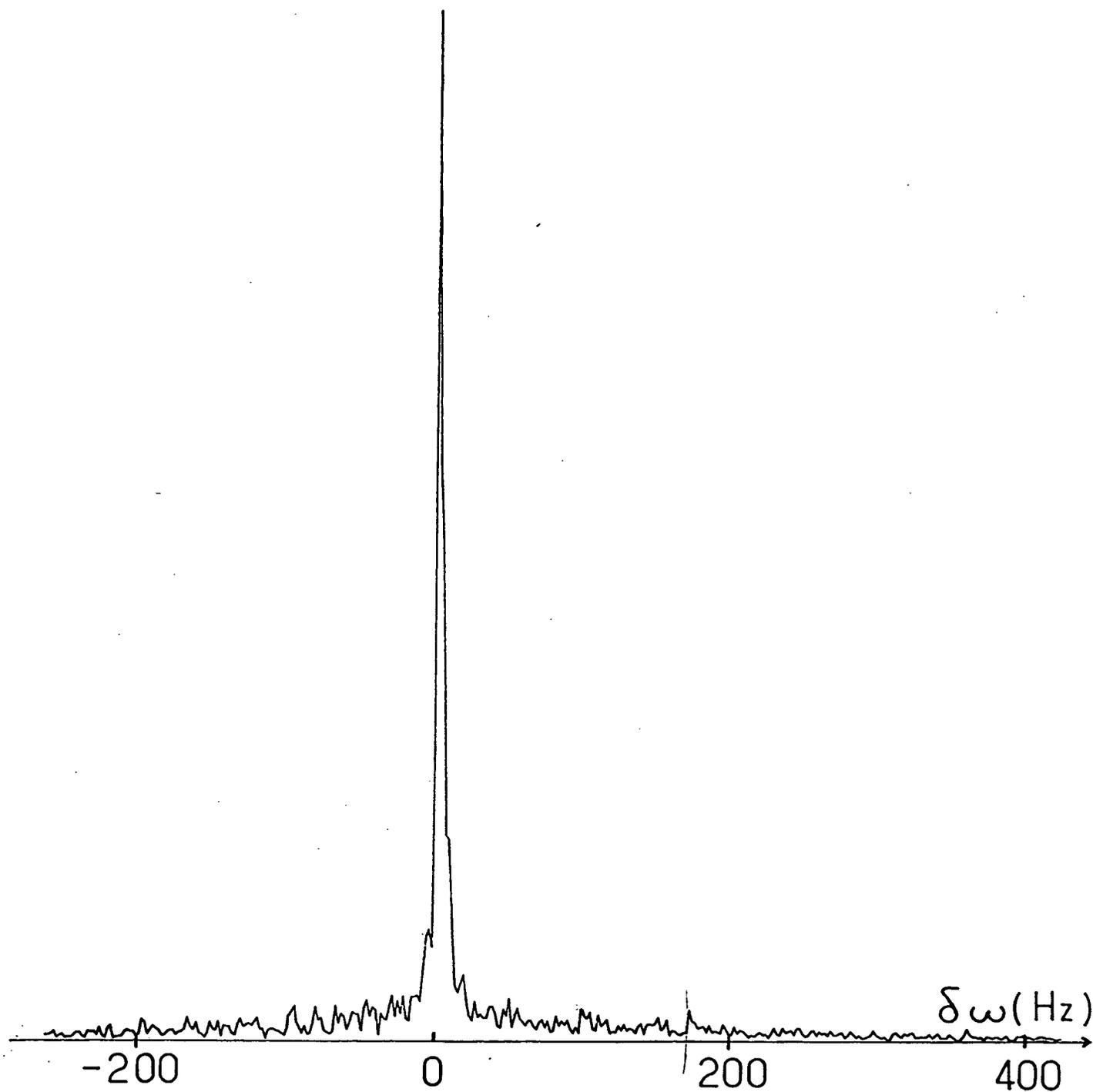


Fig.II-25a : Spectre de Fourier du signal RMN enregistré à  $t=0$ , juste avant la liquéfaction.

Compte tenu de la hauteur du pic central, ce spectre n'a pas été représenté sur la figure II-25b de la page suivante. Il est tracé ici avec la même échelle horizontale, et une échelle verticale réduite par un facteur 0,5.

-127ter -

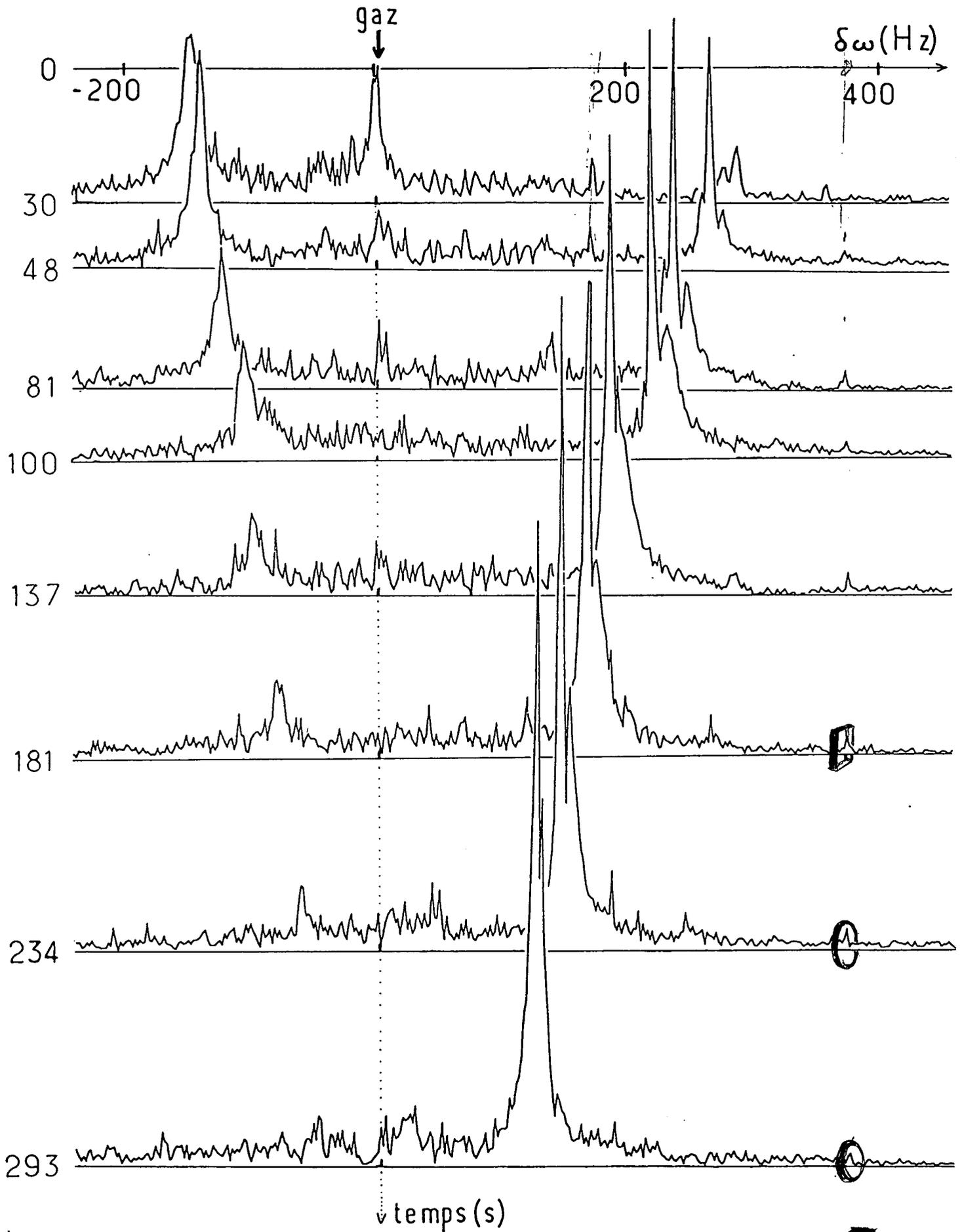


Fig. II-25b: Exemple d'évolution temporelle du spectre RMN du système diphasé polarisé.

présent de trois pics bien distincts.

- Le pic central correspond à la contribution du gaz, dont l'amplitude a diminué. Sa position n'a pas changé, mais il s'est élargi. En règle générale, nous avons pu observer que l'apparition de la phase liquide s'accompagne d'un net raccourcissement de la durée de vie de l'aimantation transverse du gaz (signal nul au bout de 200 à 300ms) : la décroissance de son amplitude devient non-exponentielle dès que le taux d'orientation du liquide dépasse quelques pour cent : on n'est plus dans les conditions de rétrécissement par le mouvement. Plusieurs phénomènes peuvent expliquer cela, comme par exemple les inhomogénéités magnétiques supplémentaires introduites par la présence de la goutte polarisée, ou bien l'échange d'atomes entre le gaz et le liquide où les champs locaux sont différents.

- Les deux autres pics correspondent au liquide polarisé. Ils sont un peu plus larges que celui du gaz et situés de part et d'autre de celui-ci. Les déplacements de fréquences associés sont donc de signes opposés et ils sont visiblement dans un rapport voisin de 2. Ils diminuent au cours du temps, à mesure que le taux d'orientation décroît. Simultanément, la durée de vie de l'aimantation transverse s'allonge (elle passe de quelques dizaines de ms pour  $M \approx 5\%$  à quelques centaines de ms lorsque la polarisation  $M$  tend vers zéro). Enfin, l'importance relative des deux pics évolue en fonction du temps : en quelques minutes, le pic le moins déplacé en fréquence disparaît tandis que l'autre grandit. Au bout de 10mn environ, le signal de précession des spins nucléaires est devenu si faible qu'il se noie totalement dans le bruit.

## γ) Interprétation

### 1) localisation de la phase condensée:

Au moment du refroidissement, l'échantillon gazeux se condense au point le plus froid de la cellule, qui est déterminé par le niveau auquel arrive le liquide cryogénique qui baigne la cellule. En effet, lorsque l'on pompe sur le bain de  $^3\text{He}$  l'évaporation se produit à sa surface libre : la conductivité thermique de  $^3\text{He}$  étant faible à 0,5K, la température du bain n'est pas uniforme et le liquide cryogénique reste plus froid en surface.

Dans l'expérience décrite au paragraphe  $\beta$ , la quasi totalité de la sphère  $V_2$  était immergée et le liquide s'est essentiellement formé sur les parois verticales de la cellule. A mesure que le temps passe, le liquide s'écoule et finit par former une flaque qui repose au fond de la cellule. Le signal détecté au cours de ce processus résulte alors de la contribution de l'ensemble de la phase liquide étalée sur les parois de la cellule, mais les résultats expérimentaux montrent que seules comptent en fait les parois verticales et horizontales. Le signal RMN subit un déplacement de fréquence qui varie avec l'orientation locale de la paroi par rapport au champ statistique  $B_0$  appliqué, à cause de la dépendance en  $(3 \cos^2\theta - 1)$  de la formule (II-7) : il est naturel de trouver que les contributions dominantes correspondent aux positions où cette modulation est stationnaire ici ;  $\theta = 0$  ou  $\pi$ , et  $\theta = \pi/2$ . Au bout de 2 ou 3 mn, le signal observé correspond bien à la contribution dont le déplacement de fréquence est le plus grand en valeur absolue, qui est associé à la position  $\theta = \pi$ .

Le signe du déplacement de fréquence  $\delta\omega$  calculé est celui du produit  $\gamma\mathcal{M}_z$ . Pour l'hélium trois,  $\gamma$  est négatif, et  $\delta\omega$  est opposé à la valeur algébrique de la projection de l'aimantation  $\vec{\mathcal{M}}$  sur le champ  $\vec{B}_0$ . Expérimentalement, le signe du déplacement de fréquence observé peut être repéré en envoyant dans les bobines réceptrices un signal RF de fréquence connue, inférieure puis supérieure à la fréquence de référence choisie. Le signe de  $\mathcal{M}_z$  dépend de l'orientation de la lame  $\lambda/4$  par rapport à l'axe de polarisation électrique du faisceau laser de pompage. En pratique, nous pouvons déterminer sans ambiguïté le signe de  $\mathcal{M}_z$  en comparant par exemple la phase du signal des spins nucléaires de l'échantillon avec celle du signal induit par la faible polarisation du liquide cryogénique lui-même (dans  $B_0 \approx 13$  Gauss, elle atteint quelques  $10^{-6}$  à  $T = 0,5K$ ). Cette dernière correspond à une orientation nucléaire qui minimise l'énergie potentielle magnétique, soit  $E = -\vec{\mathcal{M}} \cdot \vec{B} < 0$  et donc  $\mathcal{M}_z > 0$ . Si le pompage optique oriente les atomes en sens opposé (resp. dans le même sens), l'aimantation créée correspond à  $\mathcal{M}_z < 0$  (resp.  $\mathcal{M}_z > 0$ ). Dans l'expérience présentée, l'orientation de la lame quart d'onde a été choisie de manière à ce que l'orientation créée corresponde à une aimantation antiparallèle à  $\vec{B}_0$ , c'est-à-dire  $\mathcal{M}_z < 0$ . D'après la formule (II-8) cela doit induire un déplacement de fréquence positif pour le liquide reposant sur

les parois horizontales. Ceci est effectivement vérifié sur la figure II-25 : le pic le plus décalé en fréquence, deux fois plus que l'autre, qui correspond au fond de la cellule ( $|\delta\omega_H| = 2 |\delta\omega_V|$ ), a subi un déplacement de fréquence positif.

Expérimentalement, la quantité de liquide cryogénique est aisément contrôlable. Nous avons pu vérifier qu'en introduisant la quantité juste nécessaire pour obtenir un bain qui atteint à peine le fond de la cellule, on ne pouvait observer qu'un seul pic dans le signal du liquide polarisé : celui-ci se forme au fond de la sphère et y reste. D'autre part, la localisation de la phase condensée peut s'analyser par cartographie RMN. On peut par exemple appliquer sur le volume  $V_2$  un champ statique supplémentaire qui varie linéairement, de manière calibrée, avec la cote verticale. La position de la source du signal RMN capté est alors repérée en comparant les fréquences de précession avec et sans ce champ supplémentaire. Les résultats obtenus sont en accord avec les conclusions précédemment énoncées. En particulier, ils confirment que la condensation ne correspond pas à la formation d'une buée répartie sur l'ensemble de la sphère  $V_2$ , mais bien d'une flaque macroscopique localisée au point le plus froid.

## 2) Temps de relaxation longitudinale en phase liquide

Nous pouvons utiliser la proportionnalité entre le déplacement de fréquence de précession et la composante longitudinale de l'aimantation pour avoir accès au temps de relaxation longitudinale  $T_1$  dans l'échantillon liquide polarisé.

La figure II-26a montre un exemple de résultats obtenus dans une expérience où le niveau de liquide cryogénique a été choisi de manière à pouvoir observer les deux pics sur le signal RMN de la goutte polarisée. Pour comparaison, la figure II-26b présente les résultats d'une expérience où le point de liquéfaction se situe au fond de la cellule. Nous voyons d'abord que pour chaque contribution, le logarithme du déplacement de fréquence mesuré est une fonction linéairement décroissante du temps. Le temps de relaxation est ici de l'ordre de 5 minutes, dans les deux expériences. De manière générale, nous avons relevé une nette corrélation

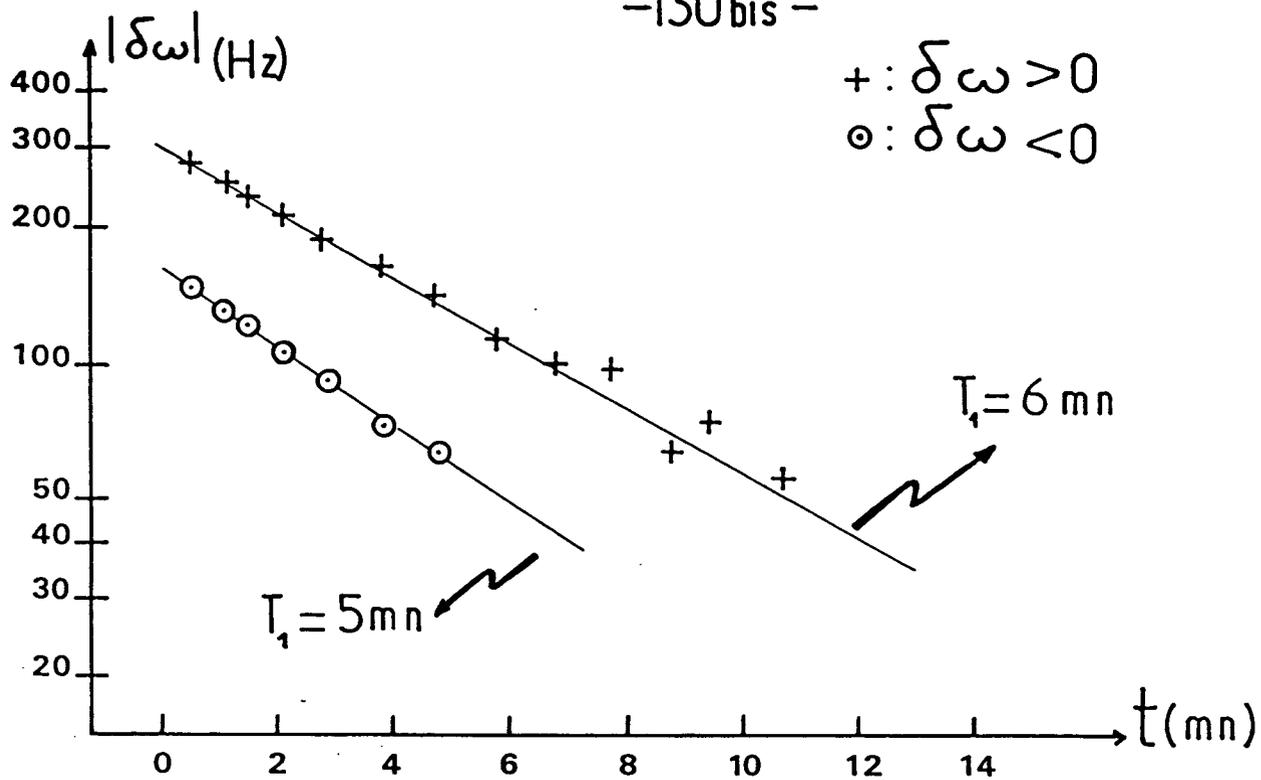


fig. II-26 a

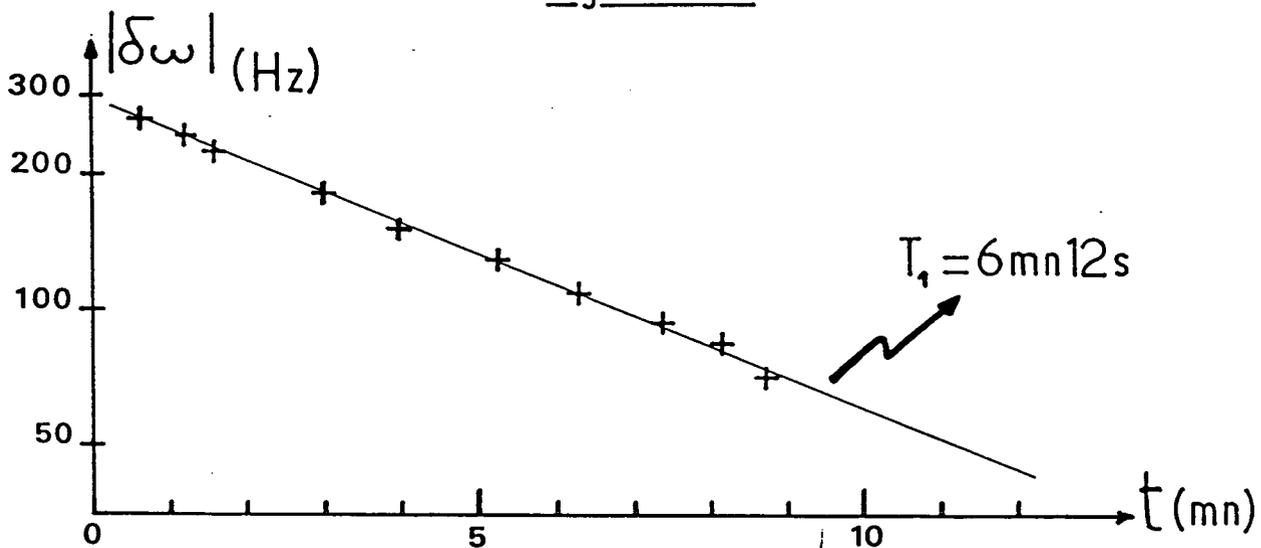


fig. II-26 b

Le déplacement de fréquence  $\delta\omega$  par rapport à la fréquence de Larmor, directement proportionnel au taux de polarisation du liquide, donne accès au temps de relaxation longitudinale dans la phase condensée  $T_1$ .

La figure a correspond aux spectres présentés sur la figure II-25. La figure b correspond à une autre expérience, où le point de condensation se situe au fond de la cellule.

entre la qualité de l'enduit cryogénique d'hydrogène solide et la valeur du temps de relaxation longitudinale  $T_1$ .  $T_1$  est systématiquement plus court lorsque l'enduit est mauvais, c'est-à-dire qu'il joue mal son rôle de protection vis-à-vis de la paroi relaxante. Un bon test de la qualité de l'enduit est l'efficacité du transfert de polarisation de  $V_1$  à  $V_2$  pour le gaz, puisque le taux d'orientation maximal pouvant être atteint dans  $V_2$  est limité avec notre dispositif par la relaxation sur les parois froides de la cellule. C'est ainsi qu'un enduit "raté", qui limite la polarisation initiale du gaz à quelques pour cent, réduit ensuite pour l'échantillon condensé le temps de relaxation  $T_1$  à 1 minute seulement. La légère différence entre les temps de relaxation observés en deux endroits distincts de la sphère  $V_2$  (figure II-26a) peut être imputé à des variations locales de la qualité de l'enduit d'hydrogène.

L'enduit cryogénique, qui réduit l'influence de la paroi relaxante du verre vis à vis de l'orientation nucléaire de la phase gazeuse, est donc également efficace en ce qui concerne le liquide polarisé. Avec un "bon" enduit,  $T_1$  est compris entre 5 et 6mn. Dans ce cas, la relaxation paroi n'est plus le phénomène dominant et la durée de vie de l'aimantation atteint la limite fixée par le couplage dipôle-dipôle. Les temps de l'ordre de 350 secondes que nous avons mesurés sont en accord avec les estimations théoriques et les résultats expérimentaux publiés [35] pour la relaxation en volume dans  $^3\text{He}$  liquide à la pression de vapeur saturante autour de 0,5K.

### 3) Taux de polarisation du liquide

Avec le dispositif expérimental utilisé pour l'étude RMN du liquide polarisé, la calibration absolue directe du signal électrique détecté est difficile. Il faut d'abord séparer les contributions des deux phases. Ensuite, nous avons vu que seuls participent au signal les atomes situés sur les parois horizontales ou verticales de la cellule : la proportion d'atomes concernés dépend trop des conditions initiales de refroidissement pour pouvoir être connue avec une précision raisonnable. Enfin, l'amplitude du signal induit varie avec la position des atomes par rapport au circuit de détection : le coefficient géométrique de couplage est en effet différent selon que la goutte est à égale distance des deux bobines réceptrices, ou bien juste devant l'une d'elles.

Mais nous pouvons utiliser, comme mesure de la polarisation nucléaire  $M$ , le déplacement de fréquence  $\delta\omega$  observé. Celui-ci est directement proportionnel à  $M$  puisqu'il ne dépend que de la densité volumique d'aimantation (équation II-8). Nous avons ainsi calculé que pour le pic associé aux parois horizontales, un déplacement de fréquence de 72,5Hz correspond à  $M = 1\%$ . Ainsi, les résultats de la figure II-25 ont été obtenus avec une polarisation  $M = 5\%$  ceux des figures II-26 a et II-26b avec  $M = 4\%$ . Les déplacements de fréquence extrêmes correspondants sont de l'ordre de 300Hz, ce qui est encore dans la bande passante de notre détection (voir fig II-16b). En revanche, l'observation directe d'échantillons liquides polarisés à plus de 10% est difficile puisque le déplacement correspondant vaut 725 Hz.

La solution que nous avons adoptée consiste à appliquer un champ statique homogène  $\delta B_0$  supplémentaire. A l'aide d'un courant continu  $I$  des bobines annexes décrites au § II, nous déplaçons la fréquence de Larmor des spins de manière à ramener le pic du liquide à l'intérieur de notre fenêtre de détection. Le courant  $I$  est préalablement calibré à partir du déplacement de fréquence observé sur le gaz polarisé : nous connaissons alors exactement le rapport (Hz/mA) de notre dispositif.

Nous avons ainsi observé des signaux dont le déplacement de fréquence atteint 1,3 kHz, qui correspondent par conséquent à un taux de polarisation nucléaire de 18%. Ces résultats peuvent sans doute être améliorés : le laser LNA pompé par laser  $Ar^+$  de 9W, qui permet d'atteindre 60% de polarisation à 300K et qui était utilisé sur un autre montage expérimental, est à présent disponible pour l'étude de  $^3He$  liquide. Il suffit de réussir à transférer efficacement cette orientation de 300K à 0,5K.

## CONCLUSION

Nous avons décrit dans ce mémoire un certain nombre d'expériences relatives à l'observation d'effets collectifs liés à la polarisation nucléaire. Leur existence montre bien que, comme discuté dans l'introduction, cette dernière joue un rôle assimilable à celui d'une grandeur thermodynamique supplémentaire du système. Dans toutes nos expériences, la durée de vie de l'aimantation nucléaire est très nettement supérieure à toutes les autres constantes de temps caractéristiques. L'étude d'un système polarisé est donc en quelque sorte celle d'un système physique métastable dont les propriétés diffèrent, par l'intermédiaire d'effets purs de statistique quantique, de celles du véritable système à l'équilibre. Il est clair que l'adjonction d'une variable thermodynamique supplémentaire peut considérablement enrichir la variété et l'intérêt des diagrammes de phases du système.

C'est effectivement dans cette voie que nous semblent se situer les prolongements les plus importants de notre travail. Maintenant qu'est établie l'efficacité de la méthode de liquéfaction rapide pour produire des échantillons liquides fortement polarisés, il reste à l'utiliser pour l'étude des équilibres diphasés liquide gaz. En particulier, il faut mettre au point des mesures de pression à basse température qui ne détruisent pas l'orientation nucléaire de l'échantillon. Ce travail est actuellement en cours au laboratoire.

Une autre voie prometteuse nous semble être l'étude des propriétés dynamiques du liquide polarisé, et en particulier de son taux de relaxation nucléaire. Ce liquide, fortement hors d'équilibre, est décrit dans le cadre de la théorie de Landau par deux sphères de Fermi de diamètres différents, ce qui peut changer considérablement les propriétés des quasi particules (modification radicale des conditions d'encombrement d'espace des phases). A cet égard, le fait que des observations expérimentales très préliminaires semblent indiquer que le temps de relaxation longitudinale  $T_{1\gamma}$  du liquide formé dépend de l'orientation nucléaire nous paraît un élément très encourageant.

## REFERENCES

- [1] "Spin polarized quantum systems" (Aussois 1980) J. Physique Coll. 41 (1980) C-7 et références citées.
- [2] Lhuillier C. et Laloë F., J. Physique 43, 197 et 225 (1982);  
Lhuillier C., J. Physique 44, 1 (1983)
- [3] Lefèvre-Seguin V., Thèse d'Etat, Paris (1984).
- [4] Tastevin G., Nacher P.J., Leduc M. et Laloë F., J. Physique Lett. 46 (1985) L-249.
- [5] Nacher P.J., Thèse d'Etat, Paris (1985)
- [6] Nacher P.J., Tastevin G., Leduc M., Crampton S.B. et Laloë F., J. Physique Lett. 45 (1984) L-441.
- [7] Johnson B.R., Denker J.S., Bigelow N., Levy L.P., Freed J.H. et Lee D.M., Phys. Rev. Lett 52 (1984) 1508;  
Levy L.P. et Ruckenstein A.E., Phys. Rev. Lett. 52 (1984) 1512.
- [8] Lefèvre-Seguin V., Nacher P.J. et Laloë F., J. Physique Lett. 43 (1982) 737.
- [9] Barbé R., Leduc M. et Laloë F., J. Physique 35 (1974) 699.
- [10] Than Myint M., Ph D Thesis, Harvard University (1966);  
Robinson H.G. et Than Myint M., App. Phys. Lett 5 (1964) 116
- [11] Colegrove F.D., Schearer L.D. et Walters G.K., Phys. Rev. 132 (1963) 2561
- [12a] Mollenauer L.F., Opt. Lett 5, (1980) 188
- [12b] Nacher P.J., Leduc M., Tréneç G. et Laloë F., J. Physique Lett 43 (1982) L-525.

- [13] Nacher P.J. et Leduc M., *J. Physique* **46** (1985) 2057 et références citées.
- [14] Barbé R., Laloë F. et Brossel J., *Phys. Rev. Lett* **34**, 1488 (1975);  
Lefèvre-Seguín V., Nacher P.J., Brossel J., Hardy W.N. et Laloë F., *J. Physique* **46**, 1145 (1985)
- [15] Nacher P.J., Thèse de 3ème cycle, Paris (1979)
- [16] Leduc M., Crampton S.B., Nacher P.J. et Laloë F., *Nuclear Sci. Appl.* **2**, 1 (1984).
- [17] Pinard M., Thèse de 3ème cycle Paris 1973;  
Pinard M. et Van der Linde J., *Can. J. Phys.* **52**, 1615 (1974).
- [18] Pavlovic M. et Laloë F., *J. Physique* **31**, 173 (1970)
- [19] Kügler K.J., Lindenberg W. et Niehues N., *Cryogenics* **24**, 63 (1984)
- [20] Abragam A., "Principles of nuclear Magnetism" Oxford Science Publications.
- [21] Bardotti G., Berdotti B et Grianolio L., *J. of Math. Phys.* **5**, 1387 (1964)
- [22] Thomasson J.W. et Ginsberg D.M., *Rev. Sci. Instrum.* **47**, 387 (1976)
- [23] Himbert M., Dupont-Roc J., *Proceedings of the 17th International Conference on low temperature physics*, Eckern et al editors, North Holland (1984);  
Himbert M., Lefèvre-Seguín V., Nacher P.J., Dupont-Roc J., Leduc M. et Laloë F., *J. Physique Lett* **44** (1983) L-253.

- [24] Romer H. R. , Phys. Rev. 117, 1183 (1960)  
Gaines J. R. , Luszczynski K. et Norberg R. E. , Phys. Rev. 131, 901 (1963) ;  
Horvitz E. P. , Phys. Rev. 1A, 1708 (1970)
- [25] Rose-Innes A. C. , "Low temperature techniques" (the use of liquid helium in the lab), English University Press (1964)
- [26] Conte R. R. , "Eléments de cryogénie", Masson (1970) et pour l'effet thermomoléculaire : [28].
- [27] Mota A. C. , Rev. Scient. Instrum. 42, 1541 (1971)
- [28] Becker E. W. , Misenta R. et Schmeissner F. , Z. Physik 137, 126 (1954)  
Roberts T. R. et Sydoriak S. G. , Phys. Rev. 102, 304 (1956)
- [29] Daniels J. M. , Schearer L. D. , Leduc M. et Nacher P. J. , soumis à Journal of Optical Society of America B.
- [30] Fitzsimmons W. A. , Lane N. F. et Walters G. K. , Phys. Rev. 174, 193 (1968).
- [31] Durieux M. et Rusby R. L. , Metrologia 19, 67 (1983)  
Rusby R. L. et Durieux M. , Cryogenics, July 1984, 363.
- [32] Press W. H. , Flannery B. P. , Teukolsky S. A. et Vetterling W. T. , "Numerical Recipes. The Art of Scientific Computing", Cambridge University Press, Chap. 12, p. 381.
- [33] Jackson J. D. , "Classical Electrodynamics", Wiley (2ème édition 1975)  
Vassalo C. "Electromagnétisme classique dans la matière", Dunod Université (1980).

- [34] Wilks J. , "The properties of liquid and solid helium", Clarendon Press (1967)
- [35] Vollhardt D. et Wölfe P. , Phys. Rev. Lett. 47, 190 (1981) et références citées, ainsi que [24].
- [36] Bouchaud J.P. et Lhuillier C. , à paraître dans Europhys. Lett. Manousakis E. , Fontani S, Pandharipande U.R. et Usmani Q.N. , Phys. Rev. 28B, 3770 (1983)
- [37] Stringari S. , Barranco M. , Polls A. , Nacher P.J. et Laloë F, soumis à J. Physique.
- [38] Mc Adams H.H. et Walters G.K. Phys. Rev. Lett 18, 436 (1967)  
Mc Adams H.H. , Phys. Rev. 170, 276 (1968).

Quelques expériences récentes sur  $^3\text{He}$  sur les solutions  $^3\text{He}$  -  $^4\text{He}$ :

- [39] Leduc M. , Nacher P.J. , Betts D.S. , Daniels J.M. , Tastevin G. et Laloë F. , Soumis à Europhysic Letters.
- [40] Kopietz P. , Dutta A. et Archie C.N. , Phys. Rev. Lett. 57, 1231 (1986)
- [41] Bonfait G. , Puech L. , Halperin W.P. et Castaing B. , Europhys. Lett. 3, (1987)489.
- [42] Vermeulen G.A. , Wiegers S.A.J. , Kranenburg C.C. , Jochemsen R. et Frossati G. , soumis à Proc. of Banff Conference (1986)
- [43] Frossati G. , Bedell K.S. , Wiegers S.A. et Vermeulen G.A. , Phys. Rev. Lett. 57, 1032 (1986)

[44] Greywall S. et Paalamen M. A. , Phys. Rev. Lett. 46, 1292 (1981).

Ondes de spin

- . dans les solutions  $^3\text{He}\uparrow - ^4\text{He}$  : [45] Owers-Bradley J. R. ,  
Chocholacs H. , Mueller R. M. , Buchal Ch. , Kubota M. et  
Pobell F. , Phys. Rev. Lett. 51, 2110 (1983)
- . dans  $\text{H}\uparrow$  : [7]
- . dans  $^3\text{He}\uparrow$  gazeux : [4] et [6].