N° d'ordre

UNIVERSITÉ DE LILLE

FACULTÉ DES SCIENCES

CENTRE DE 3e CYCLE D'ÉLECTRONIQUE

THÈSE DE 3e CYCLE

Contribution à l'Etude du Transfert de Moment Cinétique Spins-Réseau des Spins Electroniques en Champ Faible

Membres du Jury : M. GABILLARD Président
M. LEBRUN Examinateur
M. CONSTANT Examinateur

Présentée à Lille, le Janvier 1967

par

Maurice CHIVÉ

UNIVERSITE DE LILLE

FACULTE DES SCIENCES

Doyens Honoraires

MM. PRUVOST, LEFEBVRE, PARREAU

Professeurs Honoraires

MM. ARNOULT, BEGHIN, BROCHARD, CAU, CHAPELON, CHAUDRON, CORDONNIER, DEHEUVELS, DEHORNE, FLEURY, GERMAIN, KOURGANOFF, LAMOTTE, LELONG, Mme LELONG, MM. MAZET, MICHEL, NORMANT, PARISELLE, PASCAL, PAUTHENIER, ROIG, ROSEAU, ROUBINE, WIEMANN, ZAMANSKY, KAMPE DE FERIET.

Doyen

M. TILLIEU, Professeur de Physique

Assesseurs

MM. DURCHON	Professeur de Zoologie
HEUBEL.	Professeur de Chimie Minérale

Professeurs

MM. BACCHUS	Astronomie Calcul Numérique
BECART	Physique
BERKER	Mécanique des Fluides
BLOCH	Psychophysiologie
BONNEMAN-BEMIA	Chimie et Physico-Chimie Industrielles
BONTE	Géologie appliquée
BOUGHON	Mathématiques
BOUISSET	Physiologie animale
BOURIQUET	Botanique
CELET	Géologie
CORSIN	Paléobotanique

.../...

.../...

MM.	DECUYPER	Mathématiques
	DEDEKER	Professeur associé de Mathématiques
	DEFRETIN	Biologie marine
	DEHORS	Physique industrielle
	DELATTRE	Géologie
	DELEAU	Géologie
	DELHAYE	Chimie minérale
	DESCOMBES	Calcul différentiel et intégral
	GABILLARD	Radioélectricité et Electronique
	GERMAIN	Chimie générale et Chimie organique
	GLACET	Chimie
	GONTIER	Mécanique des Fluides
	HEIM DE BALSAC	Zoologie
	HOCQUETTE	Botanique générale et Appliquée
	LEBEGUE	Botanique
Mme	LEBEGUE	Physique
M.	LEBRUN	Radioélectricité et Electronique
Mlle	LENOBLE	Physique
MM.	LIEBAERT	Radioélectricité
	LINDER	Botanique
	LUCQUIN	Chimie minérale
	MARION	Chimie
Mlle	MARQUET	Mathématiques
MM.	MARTINOT-LAGARDE	Mécanique des Fluides
	MAUREL	Chimie
	MENESSIER	Géologie
	MONTREUIL	Chimie Biologie
	PARREAU	Mathématiques
	PEREZ	Physique expérimentale
	PHAM MAU QUAN	Mécanique rationnelle et expérimentale
	POITOU	Algèbre supérieure
	POUZET	Calcul numérique
	PROUVOST	Géologie

.../...

.../...

MM.	ROUELLE	Physique et Electricité Industrielles
	SAVARD	Chimie générale
	SCHALLER	Zoologie
	SCHILTZ	Physique
Mme	SCHWARTZ	Analyse supérieure
MM.	TRIDOT	Chimie
	VIVIER	Biologie animale
	WATERLOT	Géologie et minéralogie
	WERTHEIMER	Physique

Maîtres de Conférences

MM.	ANDRE	Zoologie
	BEAUFILS	Chimie appliquée
	BLANCHARD	Chimie générale
	BOILLET	Physique
	BUI TRONG LIEU	Mathématiques
	CHASTRETTE	Chimie générale
	COMBET	Mathématiques
	CONSTANT	Physique
	DANZE	Géologie
	DERCOURT	Géologie et minéralogie
	DEVRAINNE	Chimie minérale
Mme	DRAN	Chimie appliquée
MM.	FOATA	Mathématiques
	FOURET	Physique
	GAVORET	Physique
	HERZ	Mathématiques
	HUARD DE LA MARRE	Calcul numérique
	LACOMBE	Mathématiques
	MAES	Physique
	MONTARIOL	Chimie
	MORIAMEZ	Physique
	MOUVIER	Chimie

.../...

.../...

MM. NGUYEN PHONG CHAU	Physique
PANET	Electromécanique
RAUZY	Mathématiques
SAADA	Physique
SEGARD	Chimie biologique
TUDO	Chimie minérale appliquée
VAZART	Botanique
VAILLANT	Mathématiques
VIDAL	Physique Industrielle

Secrétaire Général, Attaché Principal

M. LEGROS

Attachés d'Administration

MM. COLLIGNON

FACON

JANS

LEROY

Ce travail a été effectué au laboratoire de Radioélectricité et Electronique de la Faculté des Sciences de LILLE.

Nous tenons à remercier Monsieur le Professeur GABILLARD, Directeur du Laboratoire, qui nous a confié ce travail et nous a constamment guidé.

Nous exprimons nos remerciements chaleureux à Monsieur le Professeur GOZZINI et à Monsieur ALZETTA, qui, en nous accueillant dans leur laboratoire de l'Institut de Physique de l'Université de PISE, nous ont initiés à la technique de résonance mécanique, base de notre étude.

Nous exprimons également nos remerciements à Monsieur le Professeur LEBRUN et à Monsieur CONSTANT, Maitre de Conférences, pour l'intérêt et la sympathie qu'ils nous ont témoignés tout au long de notre travail.

Enfin nous exprimons notre reconnaissance à tous nos camarades et au personnel du laboratoire pour leurs témoignages de sympathie et leur aide constante.

INTRODUCTION

Il est bien connu qu'une onde électromagnétique transporte un moment cinétique parallèle à la direction de propagation ; si l'onde est absorbée par un écran, l'écran est soumis à un couple qui tend à le faire tourner autour de la direction de propagation. Ce couple est nul si la radiation n'est pas polarisée ou si elle est polarisée rectilignement et il atteint sa valeur maximum $\frac{P}{\omega}$ lorsque la polarisation est circulaire (P est la puissance absorbée, ω la pulsation angulaire). Enfin ce couple change de signe lorsque la polarisation change de signe.

L'existence d'un tel couple de radiation a été mis en évidence expérimentalement par BETH[1] pour les fréquences optiques, et par CARRARA[2] pour les hyperfréquences.

Notre travail a consisté en l'étude de ce phénomène dans le cas de la résonance paramagnétique électronique d'un échantillon de DPPH.

1°) Dans une première partie, reprenant l'expérience de GOZZINI et ALZETTA, nous montrons qu'il est possible expérimentalement - en utilisant la résonance mécanique d'un fil de quartz - de mettre en évidence le transfert de moment cinétique spin-réseau lors de la résonance électronique du DPPH.

Nous établissons ensuite l'expression du couple qui permet de calculer l'angle de rotation du fil de quartz. Enfin nous décrivrons l'appareillage nécessaire à la réalisation d'une telle expérience.

2°) Dans une deuxième partie nous montrons comment les deux composantes circulaires d'un champ excitateur $2H_1 \cos\omega t$ polarisé linéairement produisent des effets observables mais opposés sur les raies de résonance. Cette étude est réalisée dans deux cas : d'abord lorsque le champ directeur H_o

est très supérieure à la largeur de raie, ensuite lorsque ce même champ H_0 est de l'ordre de la largeur de raie.

Afin d'éliminer l'un de ces effets, nous avons modifié notre appareillage pour produire un champ tournant. Nous étudions les modifications apportées à la raie de résonance et montrons que les résultats obtenus sont comparables à ceux déduits de la théorie de GARSTENS et KAPLAN.

PREMIERE PARTIE

EXISTENCE ET MISE EN EVIDENCE D'UN COUPLE DE TORSION LORS DE LA R.P.E. D'UN ECHANTILLON DE DPPH

CHAPITRE.I.

EXISTENCE ET CALCUL DU COUPLE PRODUIT LORS DE LA R.P.E. D'UN ECHANTILLON DE DPPH.

I. LE TRANSFERT DE MOMENT CINETIQUE SPINS-RESEAU

I. quelques rappels de résonance magnétique

Dans un champ magnétique H_0 un noyau ne peut avoir qu'un certain nombre de positions quantifiées. Lorsque son spin est $j = \frac{1}{2}$ il n'y a que deux positions possibles : parallèle et antiparallèle.

L'énergie est : $+\mu H_0$ dans l'état parallèle
$-\mu H_0$ dans l'état antiparallèle
(μ est le moment magnétique du noyau)

Par ailleurs le noyau possède un moment cinétique $\sigma = j \frac{h}{2\pi}$

Lorsqu'un noyau transite de l'état antiparallèle à l'état parallèle il transfère au réseau une énergie égale à $2\mu H_0$ et également une quantité de moment cinétique égale à 2σ .

Si l'unique champ appliqué est un champ continu H_0 les seules transitions possibles sont celles qui résultent de l'agitation thermique du solide dont fait partie le système des noyaux : c'est l'interaction spin-noyau ou encore spin-phonon. Cette interaction provoque continuellement des transitions dans les deux sens et son action est d'établir un état d'équilibre statistique dit répartion de BOLTZMAN caractérisé par un surplus de n_o spins en position parallèle par rapport à ceux en position antiparallèle.

$$n_o = N \frac{\mu H_o}{kT} \quad (1)$$

où N est le nombre total de spins dans l'échantillon

Si maintenant en plus du champ continu H_o on applique un champ alternatif transversal H_1 de fréquence f telle que :

$$hf = 2\mu H_o \quad (2)$$

ceci revient à irradier le système de spins avec des photons ayant l'énergie convenable pour provoquer des transitions dans les deux sens. L'effet de ces transitions est d'établir un nouvel état d'équilibre caractérisé par une valeur n du surplus de population de l'état parallèle, plus petite que n_o

$$n < n_o$$

Le mécanisme de relaxation thermique (intéraction spin-phonon) tend continuellement à restaurer la valeur n_o du surplus de population de l'état parallèle suivant une loi régie par l'équation :

$$\frac{dn}{dt} + \frac{n}{T_1} = \frac{n_o}{T_1} \quad (3)$$

Lorsque le champ alternatif H_1 est maintenu en permanence, n et $\frac{dn}{dt}$ ont des valeurs constantes, on a en particulier :

$$\left(\frac{dn}{dt}\right)_o = \frac{n_o - n}{T_1} \quad (4)$$

où $\left(\frac{dn}{dt}\right)_o$ est le nombre par unité de temps du surplus des transitions antiparallèles - parallèles induites par l'intéraction spin-phonon sur les transitions inverses.

Le produit $2\mu H_o \cdot \left[\frac{dn}{dt}\right]_o$ = W mesure donc l'énergie constamment transférée par unité de temps du système de spins au réseau ; cette énergie est empruntée au champ H.F. et mesure l'absorption de résonance magnétique.

De même le système de spins transfère continuellement au réseau par unité de temps un moment cinétique Σ

$$\Sigma = 2\sigma\left[\frac{dn}{dt}\right]_o = 2\sigma\left[\frac{n-n_o}{T_1}\right] \quad (5)$$

de ce transfert de moment cinétique résulte un couple C appliqué en paermanence au réseau :

$$C = \Sigma$$

remarque : . un moment cinétique a la dimension : énergie x temps

. un moment cinétique par unité de temps a donc la dimension d'une énergie.

or un couple a bien la dimension d'une énergie : F x L, donc on a bien : $C = \Sigma$

2. expression du couple en fonction de la variation de l'aimantation M selon la direction du champ H_o

Nous savons que l'aimantation et le moment cinétique sont unis par la relation $\mu = \gamma\sigma$; γ étant le rapport gyromagnétique (γ = 17,6 10^6 Hertz par oersted pour l'électron).

De l'expression (5) nous déduisons :

$$C = 2\sigma\cdot\frac{(n-n_o)}{T_1} = \frac{2\mu}{\gamma T_1}\cdot(n - n_o)$$

or $2\mu(n - n_o)$ n'est autre que $M_z - M_o$, la variation d'aimantation macroscopique selon la direction du champ H_o :

. M_z représente en effet l'aimantation selon H_o à un instant donné en présence du champ haute fréquence H_1

. M_o est l'aimantation selon H_o au repos : c'est-à-dire en l'absence du champ H_1, le champ H_o étant seul appliqué.

En conséquence l'expression du couple s'écrit :

$$C = \frac{1}{\gamma T_1} \cdot (M_z - M_o) \qquad (6)$$

II. CALCUL DU COUPLE LORS DE LA RESONANCE MAGNETIQUE

Pour effectuer le calcul du couple nous allons utiliser les équations de BLOCH : ces équations permettent en effet de définir les composantes macroscopiques de l'aimantation $\vec{M}$ d'un ensemble de noyaux.

I. les équations de BLOCH

En I946 Félix BLOCH a proposé de décrire les propriétés d'un ensemble de noyaux dans un champ magnétique extérieur H_o par un système d'équations très simples déduites de considérations phénoménologiques qui ont permis une description quantitative des phénomènes, correcte et détaillée. Les considérations qui mènent à ces équations sont les suivantes :

a) dans un champ magnétique homogène quelconque $\vec{H}$, l'équation du mouvement de l'aimantation $\vec{M}$ d'un ensemble de spins libres est :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \vec{M} \wedge \vec{H}$$

b) dans un champ statique $H_z = H_o$ l'évolution de l'aimantation vers sa valeur d'équilibre $M_z = M_o = \chi_o H_o$ peut souvent se décrire avec une très bonne approximation par l'équation :

$$\frac{dM_z}{dt} = - \frac{M_z - M_o}{T_1}$$

T_1 s'appelle le temps de relaxation longitudinal

c) si par contre l'aimantation nucléaire possède une composante perpendiculaire au champ appliqué H_o, les divers champs locaux font décroître l'aimantation transversale d'une façon qu'on peut représenter en première approximation par les équations :

$$\frac{dM_x}{dt} = - \frac{M_x}{T_2}$$

$$\frac{dM_y}{dt} = - \frac{M_y}{T_2}$$

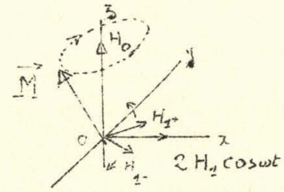
où T_2 est le temps de relaxation transversal

<u>remarque</u> : les divers champs locaux sont dus au fait que les spins ne sont pas libres et intéragissent entre eux et avec leur environnement

d) on suppose qu'en présence d'un champ appliqué somme d'un champ continu H_o et d'un champ radiofréquence H_1 beaucoup plus petit on peut ajouter les termes dus à la relaxation, à ceux de l'équation du mouvement des spins libres. L'équation obtenue s'écrit alors :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma\vec{M} \wedge \vec{H} - \frac{M_x \vec{i}' + M_y \vec{j}'}{T_2} - \frac{M_z - M_o}{T_1} \vec{k}' \quad (8)$$

$\vec{i}'$, $\vec{j}$, $\vec{k}'$ sont les vecteurs unitaires du système de coordonnées du laboratoire



Le champ appliqué est la somme du champ continu $H_z = H_o = - \frac{\omega_o}{\gamma}$ et du champ radiofréquences $H_1 = - \frac{\omega}{\gamma}$ tournant à une fréquence ω voisine de ω_o.

Ce champ H_1 sera en général l'une des deux composantes tournantes d'un champ $H_x = 2H_1 \cos\omega t$ polarisé linéairement le long de l'axe Ox. L'effet de l'autre composante tournante est ici négligé.

Dans le cas où les variations du champ H_o s'effectuent lentement, il est possible de négliger le terme en $\frac{dM}{dt}$ et l'intégration de l'équation différentielle (8) conduit alors aux valeurs suivantes des composantes de l'aimantation:

$$M_x = \underbrace{M_o \cdot \frac{\gamma H_1 T_2^2 \Delta\omega}{1 + (T_2\Delta\omega)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}}_{\widehat{M}_x} \cos\omega t - \underbrace{M_o \frac{\gamma H_1 T_2}{1 + (T_2\Delta\omega)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}}_{\widehat{M}_y} \sin\omega t$$

$$M_y = \widehat{M}_x \sin\omega t + \widehat{M}_y \cos\omega t$$

$$M_z = M_o \frac{1 + (\Delta\omega\, T_2)^2}{1 + (\Delta\omega T_2)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

avec $\Delta\omega = \omega - \omega_o$

$\omega_o = -\gamma H_o$

$M_o = \chi_o H_o$ $\qquad\qquad$ χ_o est la susceptibilité magnétique

2. expression du couple C à partir des composantes de l'aimantation

Nous avons établi que le couple s'exprimait, en fonction de l'aimantation par la relation :

$$C = \frac{M_z - M_o}{\gamma T_1}$$

La résolution des équations de BLOCH nous a conduit à :

$$M_z = M_o \frac{1 + (\Delta\omega T_2)^2}{1 + (\Delta\omega\, T_2)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

que nous pouvons écrire :

$$M_z = M_o\left[1 - \frac{\gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}{1 + (\Delta\omega T_2)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}\right]$$

soit : $$\frac{M_z - M_o}{\gamma T_1} = - M_o \cdot \frac{\gamma H_1^2 T_2}{1 + (T_2 \Delta\omega)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

étant donné que $M_o = \chi_o H_o$ et $\omega_o = -\gamma H_o$, $\Delta\omega = \omega - \omega_o$ et $\chi_o = \frac{N}{3kT} \gamma^2 \hbar^2 j(j + 1)$

le couple C a pour expression :

$$C = \chi_o H_1^2 \frac{\omega_o T_2}{1 + (\omega - \omega_o)^2 T_2^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

$$C = \frac{N}{3kT} \cdot \gamma^2 \hbar^2 \cdot j \cdot (j+1) \cdot \frac{\omega_o T_2 H_1^2}{1 + T_2^2 (\omega - \omega_o)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

CHAPITRE.2.

MISE EN EVIDENCE DU TRANSFERT DE MOMENT CINÉTIQUE LORS DE RÉSONANCE ÉLECTRONIQUE DU DPPH

I. L'EXPÉRIENCE GOZZINI - ALZETTA[2]

GOZZINI et ALZETTA furent les premiers qui réalisèrent une expérience permettant de mesurer le transfert du moment cinétique des spins au réseau lors de la résonance électronique d'un échantillon de DPPH. Nous avons refait cette expérience qui est la base de notre étude.

Le dispositif utilisé est schématisé figure.1., il comprend essentiellement :

. un pendule de torsion auquel est suspendu l'échantillon

. un système d'excitation de la résonance électronique : champ directeur H_o, champ excitateur H_1.

. un système de détection et d'enregistrement des oscillations du pendule.

Les différents aspects technologiques de cet appareillage seront donnés en chapitre.III. ; nous allons ici décrire l'expérience.

On suspend l'échantillon à étudier à un fil de torsion (ici un fil de quartz) ; le long de l'axe Oz ainsi défini on applique un champ magnétique continu H_o ; parallèlement à l'axe Ox, perpendiculaire à Oz, l'échantillon est soumis à un champ magnétique haute fréquence H_1 de fréquence fixe f et de forte intensité $H_1 \# 1$ gauss eff.

En faisant varier l'intensité du champ H_o de façon à passer par la résonance, nous observons la rotation du système mécanique. Afin d'accroître l'amplitude de l'angle de rotation nous mettons le système mécanique en oscillations forcées : le champ H_1 est mis en marche et arrêté automatiquement avec une

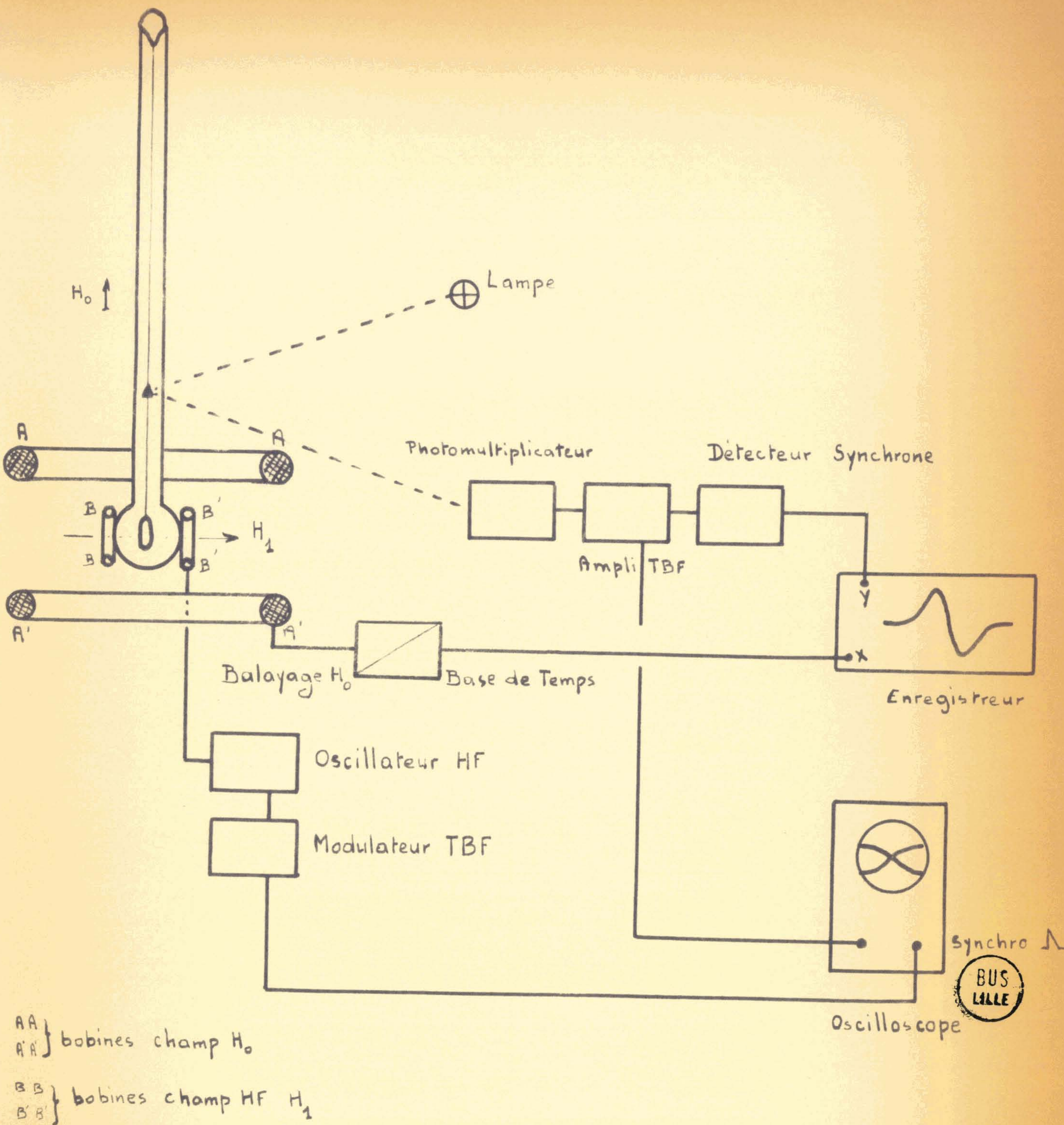

H₀
Lampe
A
A
Photomultiplicateur
Détecteur Synchrone
B
B'
H1
B
B'
Ampli TBF
Y
A'
A'
Balayage H0
Base de Temps
X
Enregistreur
Oscillateur HF
Modulateur TBF
Synchro
Oscilloscope
AA A'A' bobines champ H0
BB B'B' bobines champ HF H1

fig 1

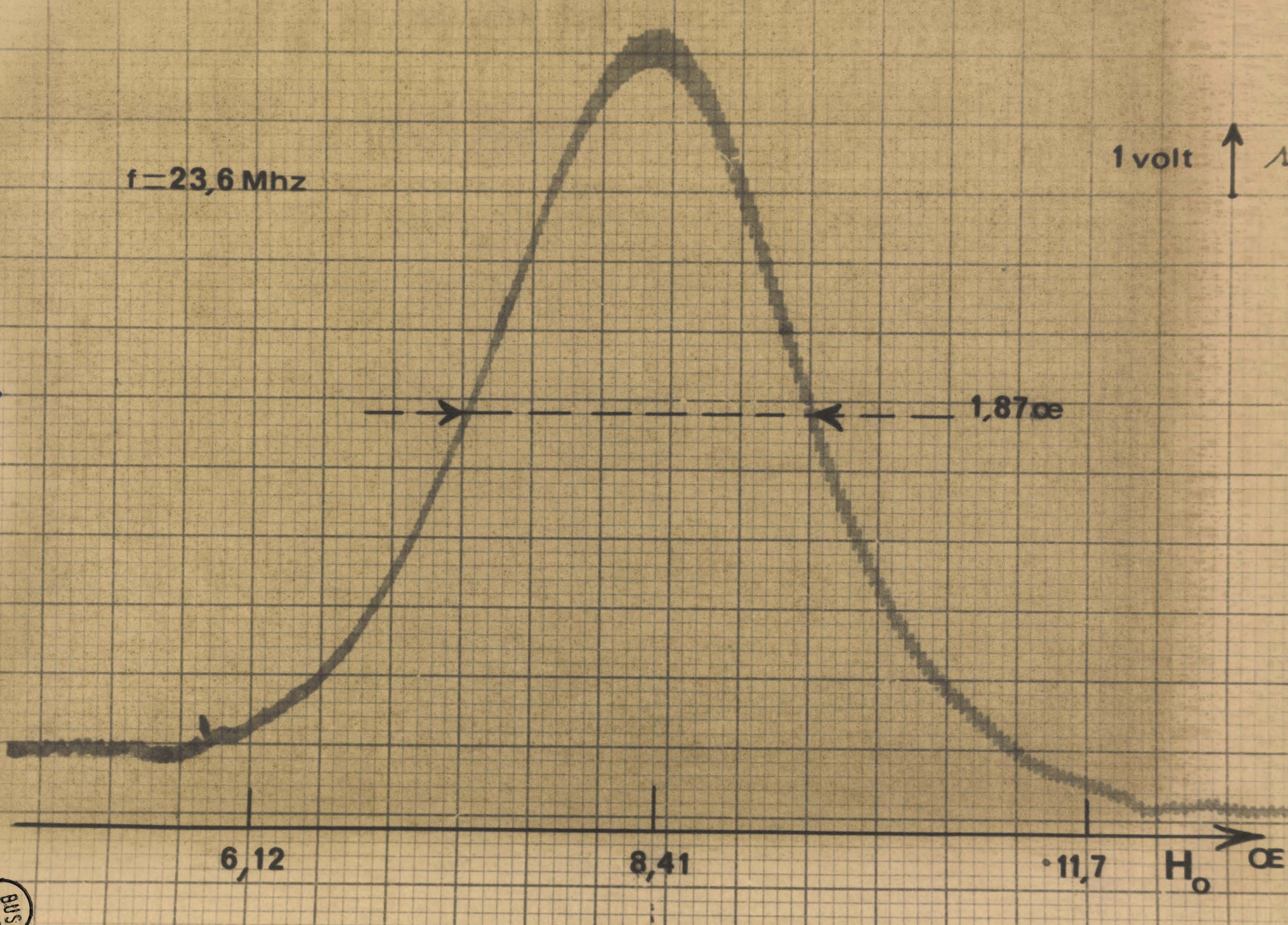


fig 2

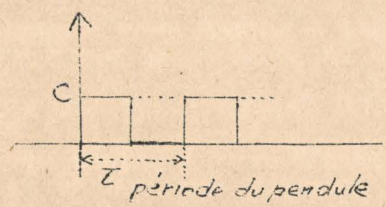
périodicité égale à la période du pendule de torsion. De la sorte le transfert de moment cinétique spin-réseau se produit avec un rythme qui lance le pendule dont on bénéficie de la surtension de résonance mécanique, ce que montre l'intégration de l'équation du mouvement du pendule développée ci-dessous.

L'enregistrement des oscillations du pendule lors d'un balayage du champ H_o fournit une courbe qui est une courbe typique de résonance comme le montre la figure.2.

II. Equation du mouvement du système mécanique

1°) L'équation différentielle du mouvement.

Le couple appliqué au système est de la forme :



cette excitation se décompose en **série** de sinus

$$F(t) = b_o + \sum_n b_n \sin n x \qquad \text{avec } F(t) = \begin{cases} C \text{ de } t = 0 \text{ à } t = \frac{\tau}{2} \\ 0 \text{ de } t = \frac{\tau}{2} \text{ à } t = \tau \end{cases}$$

Le terme b_o n'a aucune action pour la mise en oscillation forcée : le terme b_1 est par contre prépondérant.

$$b_1 = \frac{1}{\tau} \int_{-\tau/2}^{\tau/2} F(t) \sin 2\pi \frac{t}{\tau} \, dt = \frac{1}{\tau} \int_{o}^{\tau/2} C \sin 2\pi \frac{t}{\tau} \, dt$$

soit $$b_1 = \frac{C}{\pi}$$

Le mouvement du pendule s'exprime par l'équation différentielle :

$$I \frac{d^2\alpha}{dt^2} + R \frac{d\alpha}{dt} + K\alpha = \frac{C}{\pi} \sin 2\pi \frac{t}{\tau} \qquad (9)$$

et la solution est de la forme : $\alpha = A \sin(\frac{2\pi}{\tau} t + \phi)$

Résolution et condition de résonance mécanique

Reportons l'expression $\alpha = A \sin(2\pi \frac{t}{\tau} + \phi)$ dans l'équation précédente (9), nous obtenons :

$$\frac{-4\pi^2}{\tau^2} AI \sin(\frac{2\pi t}{\tau} + \phi) + \frac{2\pi}{\tau} AR\cos(\frac{2\pi t}{\tau} + \phi) + AK\sin(\frac{2\pi t}{\tau} + \phi) = \frac{C}{\pi} \sin\frac{2\pi t}{\tau}$$

développons et identifions les deux membres, nous obtenons :

$$\sin\frac{2\pi}{\tau}t \left[- \frac{4\pi^2}{\tau^2} IA\cos\phi - \frac{2\pi}{\tau} RA\sin\phi + KA\cos\phi \right] = \frac{C}{\pi} \sin \frac{2\pi}{\tau} t \qquad (10)$$

$$\text{et } \cos \frac{2\pi}{\tau} t \left[- \frac{4\pi^2}{\tau^2} IA\sin\phi + \frac{2\pi}{\tau} RA\cos\phi + KA\sin\phi \right] = 0 \qquad (11)$$

Nous pouvons déduire alors de (11) :

$$tg\,\phi = - \frac{2\pi R}{\tau} \frac{1}{K - \frac{4\pi^2 I}{\tau^2}}$$

La résonance mécanique du système est obtenue lorsque :

$$tg\phi = -\alpha \quad \text{soit} \quad \phi = - \frac{\pi}{2}$$

ceci a lieu pour : $K - \frac{4\pi^2}{\tau^2} I = 0$

alors l'amplitude A des oscillations, dans les conditions de résonance mécanique, se déduit de l'équation (10)

$$A = - \frac{C}{\pi} \frac{1}{\frac{2\pi R}{\tau} \sin \phi} = \frac{\tau}{2\pi^2} \frac{C}{R} \quad \text{car } \phi = - \frac{\pi}{2}$$

Le décrément logarithmique δ et la période τ du pendule sont des grandeurs aisément mesurables ; leur expression en fonction des grandeurs physiques caractéristiques du système pendulaire sont :

$$\delta = \frac{R}{2I}\tau \quad \text{et} \quad \tau = 2\pi\sqrt{\frac{I}{K}}$$

d'où

$$R = \frac{2I}{\tau}\delta \quad \text{et} \quad I = \frac{\tau^2}{4\pi^2}K$$

alors l'amplitude A des oscillations s'écrit :

$$A = \frac{C}{K}\,\frac{1}{\delta}$$

Nous allons maintenant faire intervenir le coefficient de surtension mécanique Q du pendule ; Q est une grandeur physique liée à δ par la relation :

$$Q = \frac{\pi}{\delta}$$

Soit donc :

$$A = \frac{C}{K}\,\frac{Q}{\pi}$$

Si le système n'est pas mis en oscillation forcée le fil est soumis à une torsion permanente d'angle :

$$A_o = \frac{C}{K}$$

K le couple de rappel dû à la torsion du fil se calcule pour le quartz par la relation :

$$K = \frac{\pi\mu}{32}\,\frac{d^4}{\ell}$$

$\left\{\begin{array}{l} d : \text{diamètre du fil de quartz} \\ \ell : \text{longueur du fil} \\ \mu : \text{coefficient de lamé du fil} \end{array}\right.$

La résonance mécanique du pendule en oscillation forcée a donc un effet amplificateur que traduit le facteur $\frac{Q}{\pi}$

$$A = A_o \frac{Q}{\pi}$$

Enfin la torsion du fil observable par la méthode de POGGENDORF conduit à une déviation x du spot, à la distance d :

$$x = 2d\, A_o \frac{Q}{\pi} = 2d \frac{C}{K} \frac{Q}{\pi}$$

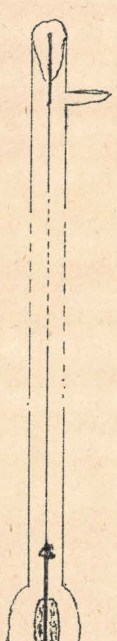
CHAPITRE .III.

DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE ET PREMIERS RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le dispositif expérimental comprend essentiellement :

- un pendule de torsion auquel est suspendu l'échantillon
- un système d'excitation de la résonance électronique : champ directeur H_o, champ excitateur H_1
- un système de détection et d'enregistrement des oscillations du pendule

I. La pendule de torsion



Il est constitué d'un fil de quartz de 20 microns de diamètre portant à l'une de ses extrémités un petit ensemble rigide constitué par :

. la capsule remplie de DPPH, enfilée sur un fil de quartz de 200 microns

. un petit miroir (1mm^2 environ) fait d'une feuille de mica argentée, collée sur le fil de 200µ.

Le fil de 20µ est collé, à son autre extrémité sur un fil de 200µ .

L'ensemble est suspendu à l'intérieur d'un tube de verre que l'on vide alors, puis que l'on scelle, ceci afin de diminuer les frottements qui amortissent le pendule.

Un pinceau lumineux éclaire le miroir ; l'observation du spot réfléchi permet de détecter les oscillations du pendule.

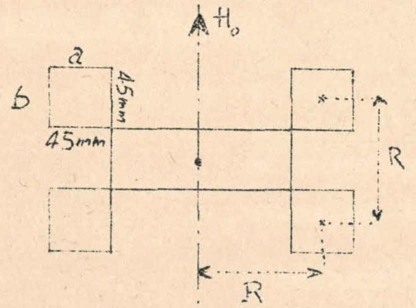
Un enregistrement de la décroissance des oscillations du pendule (fig.3.) nous a permis de déterminer sa période et son coefficient de surtension mécanique $\mathcal{Q}$. Nous avons trouvé :

$$\tau \neq\neq 2,7 \text{ secondes} ; \mathcal{Q} \neq\neq 75$$

II. Le système d'excitation de la résonance électronique

I. Le champ directeur H_o

Il est produit par deux bobines circulaires et concentriques en position d'HELMOLTZ, d'axe vertical, parallèle au fil de torsion. Les dimensions de ces bobines sont indiquées sur le dessin ci-dessous. Pour que le champ H_o créé soit le plus homogène possible, il faut que la section rectangulaire du bobinage soit telle que le rapport des côtes $\frac{a}{b} = 1,0776$ (thèse G. BENE, PARIS 1951). Pour respecter ces conditions chaque bobine comporte 51 couches de 47 spires chacune.



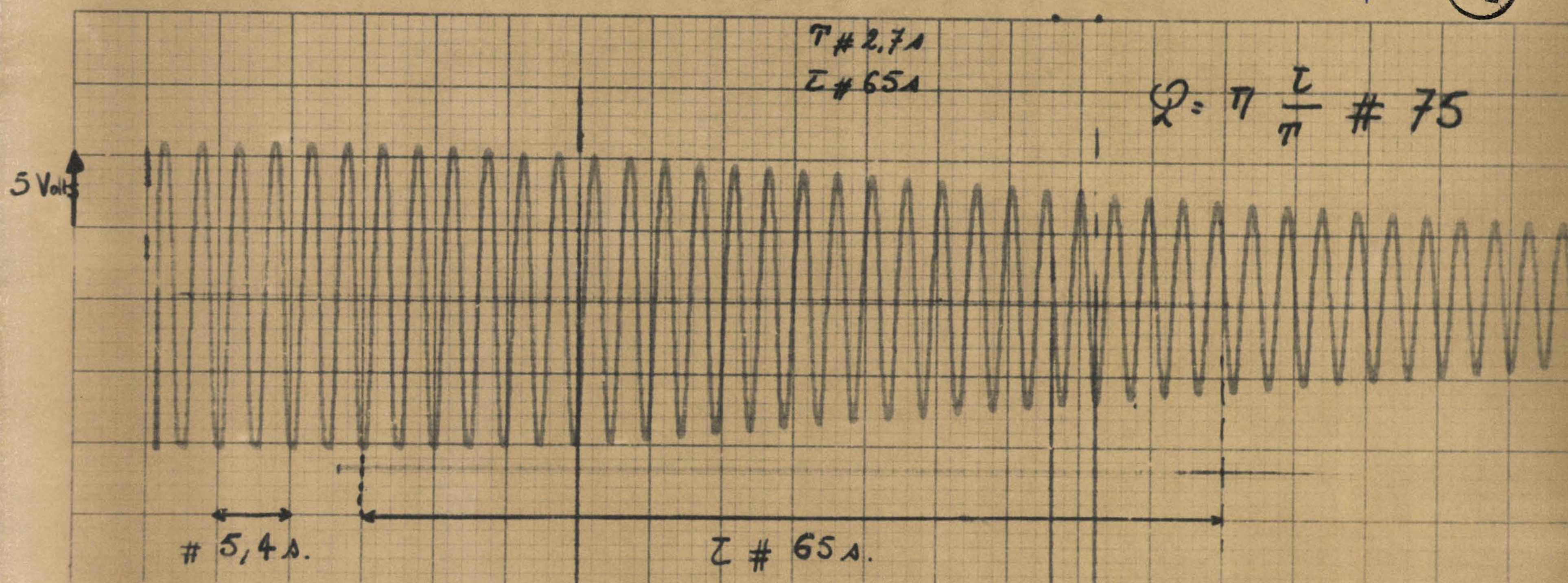
Ces bobines en série avec un ampèremètre sont montées en pont entre les deux émetteurs d'un montage à deux transistors de puissance ASZ 17. Ce dispositif schématisé figure.4. est alimenté par deux batteries de f.e.m. 24V. et il permet un balayage du champ directeur H_o de part et d'autre du champ nul. Autrement dit ce dispositif permet l'inversion du signe de champ directeur H_o ; nous verrons l'utilité de cette inversion dans la deuxième partie de notre travail.

H_o peut varier entre + 15 gauss et - 15 gauss.

La vitesse de balayage du champ H_o lors d'une expérience de résonance mécanique est telle qu'elle doit permettre aux oscillations du pendule d'atteindre leur amplitude de régime, amplitude qui dépend du couple C produit par la résonance. La vitesse de balayage est correcte lorsque l'amplitude du signal n'augmente plus lorsque l'on augmente le temps de balayage. Avec le pendule utilisé le temps

MESURE de Q par DECREMENT

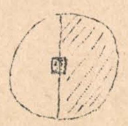
fig 3



III. Système de détection et d'enregistrement des oscillatinns pendulaires

I. Le photomultiplicateur

La lumière réfléchie sur le petit miroir collé sur l'échantillon tournant de DPPH est recueillie par un photomultiplicateur dont une moitié de la partie sensible a été noircie : le spot au repos tombe au milieu de la photocathode ; une rotation du miroir augmente ou diminue la lumière recueillie par le photomultiplicateur provoquant à la sortie de celui-ci une variation d'intensité donc de tension aux bornes de la résistance de charge.



Les oscillations sinusoïdales du pendule vont donc donner naissance à la sortie du photomultiplicateur à une tension sinusoïdale T.B.F. observable à l'oscilloscope.

2. Amplificateur T.B.F. et détecteur

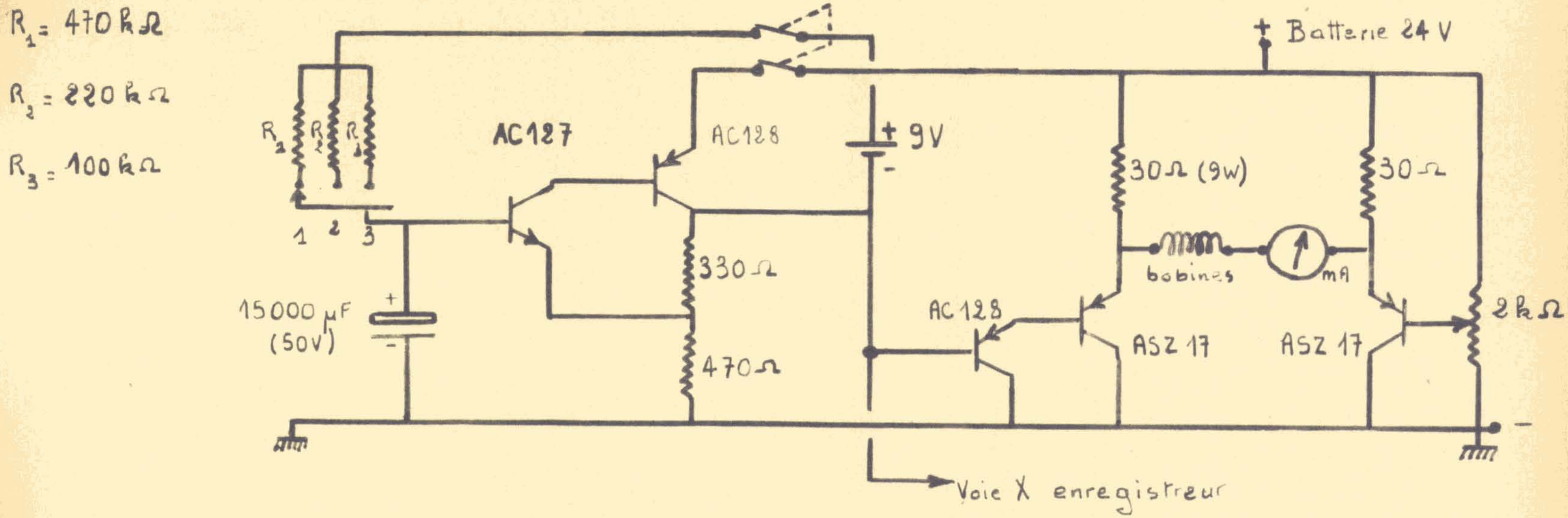
L'onde T.B.F. est amplifiée avant d'être détectée. Le schéma de l'amplificateur T.B.F. de gain 10 est celui de la figure.5. ; le détecteur utilisé schématisé figure.6. est du type synchrone. En fait dans toute la première partie de notre travail nous l'avons utilisé en détecteur simple.

Le signal carré de référence qui excite ce détecteur provient de l'onde carrée obtenue à la sortie du modulateur T.B.F. Cette onde est envoyée à un étage adaptateur schématisé figure.9. avant d'attaquer l'entrée référence du détecteur.

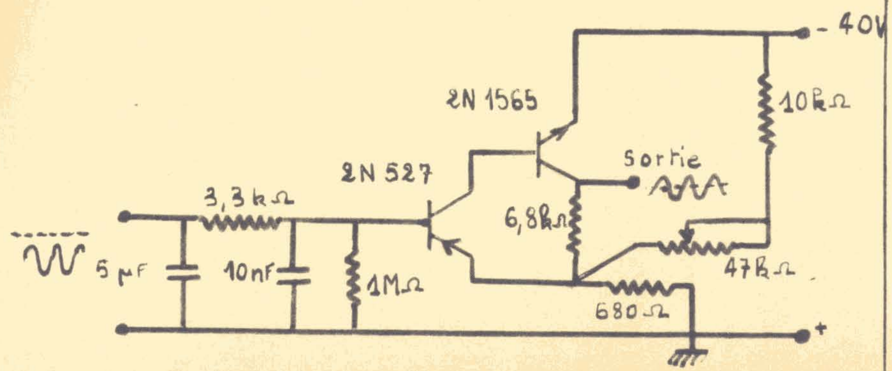
3. L'enregistreur

L'onde détectée est envoyée à un enregistreur XY sur la voie Y. La voie X est attaquée par l'échelon rampe : l'avancement de la plume se fait donc à la même vitesse que le balayage du champ H_o, ce qui évite la déformation des signaux enregistrés.

fig 4

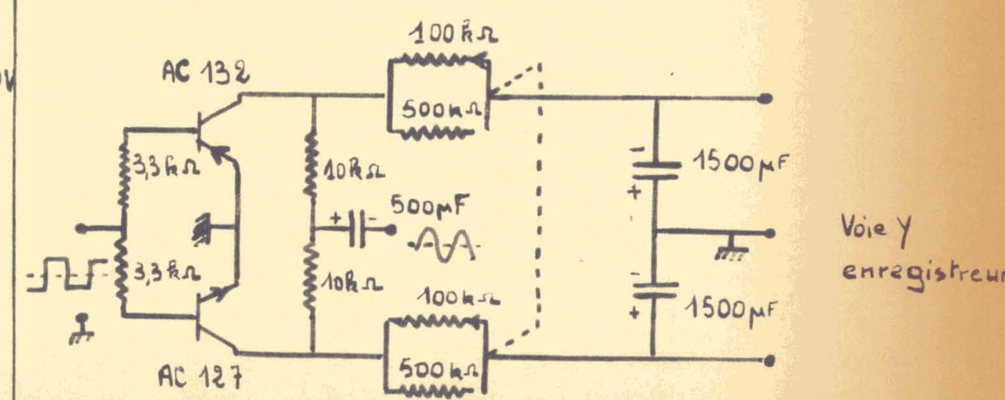


Base de Temps Balayage champ Ho



Amplificateur TBF gain 10

fig 5



Détecteur Synchrone

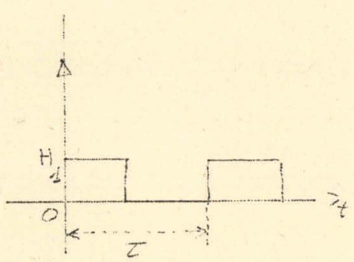
fig 6

de balayage est de l'ordre de 30 minutes ; ce temps doit être doublé lors d'une variation de H_o de part et d'autre du champ nul.

Un montage classique basé sur la charge d'un condensateur à courant constant a permis d'obtenir un échelon rampe de durée variable (2h, Ih et 35mn environ). Cet échelon rampe attaque le dispositif d'excitation des bobines de champ H_o et sa linéarité étant très bonne nous l'avons utilisé sur la voie X de l'enregistreur comme base de temps.

2. Le champ excitateur H_1

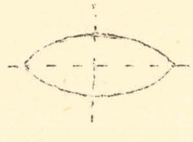
Un oscillateur de puissance de fréquence déterminée (24MHz, puis 20 MHz et enfin 17 MHz) produit dans les deux bobines BB, B'B' de la figure.1. un champ haute fréquence H_1 de l'ordre de 1,2 gauss efficaces. Le schéma de cet oscillateur est donné figure.7.



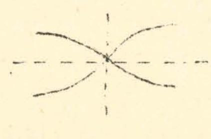
Cet oscillateur est mis en marche puis arrêté avec une période qui est celle du pendule. Cette modulation du champ H_1 au rythme de la période du pendule permet la mise en oscillations forcées du système mécanique.

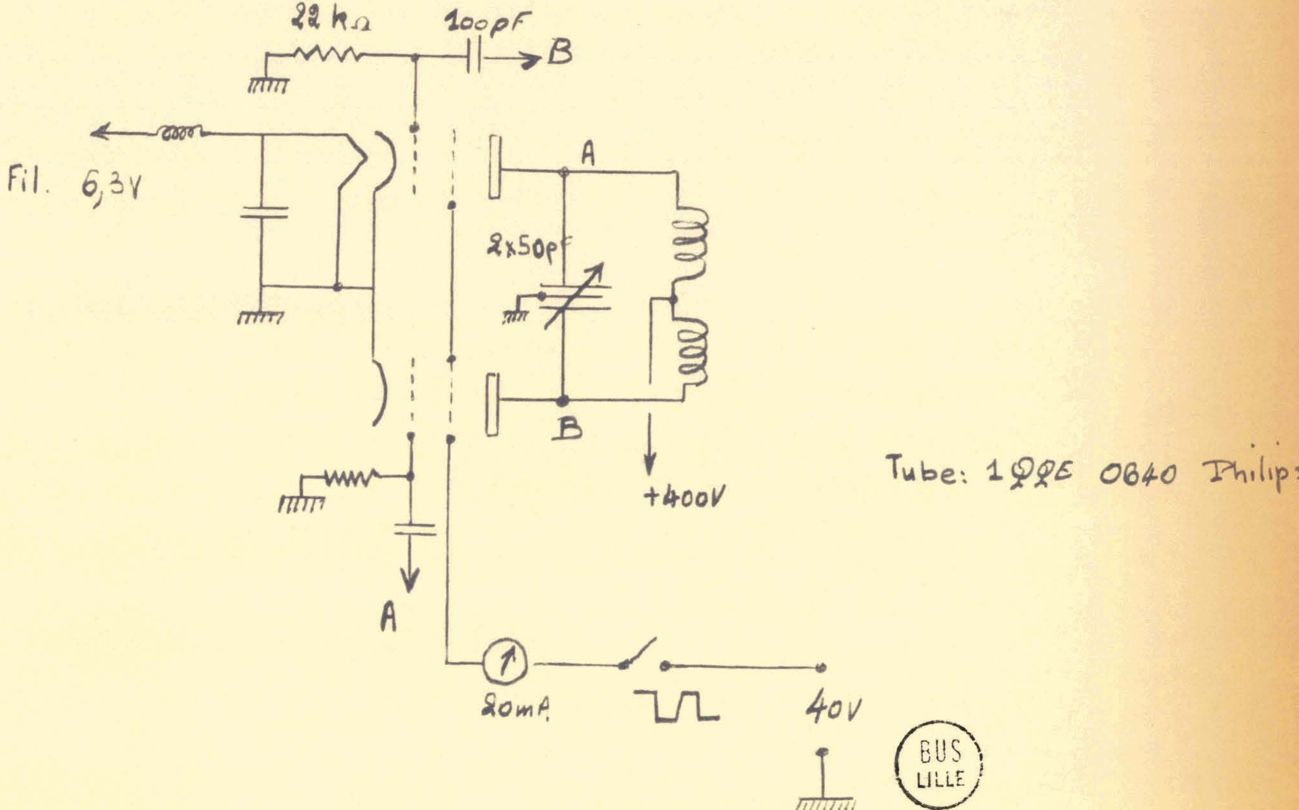
La commande de blocage et déblocage de l'oscillateur est réalisée à l'aide du modulateur T.B.F. (figure.8.) synchronisé sur la période du pendule. Cette synchronisation est rendue possible grâce aux impulsions délivrées par la sortie "gate" de l'oscilloscope avec lequel nous observons le signal résultant des oscillations du pendule.

Il suffit en effet de synchroniser sur l'écran de cet oscilloscope une 1/2 période de l'onde T.B.F. délivrée par le photomultiplicateur pour obtenir des impulsions à la sortie gate égale à la 1/2 période du pendule. Les deux figures ci-dessous représentent le signal T.B.F. que l'on peut observer à l'oscilloscope :



ou

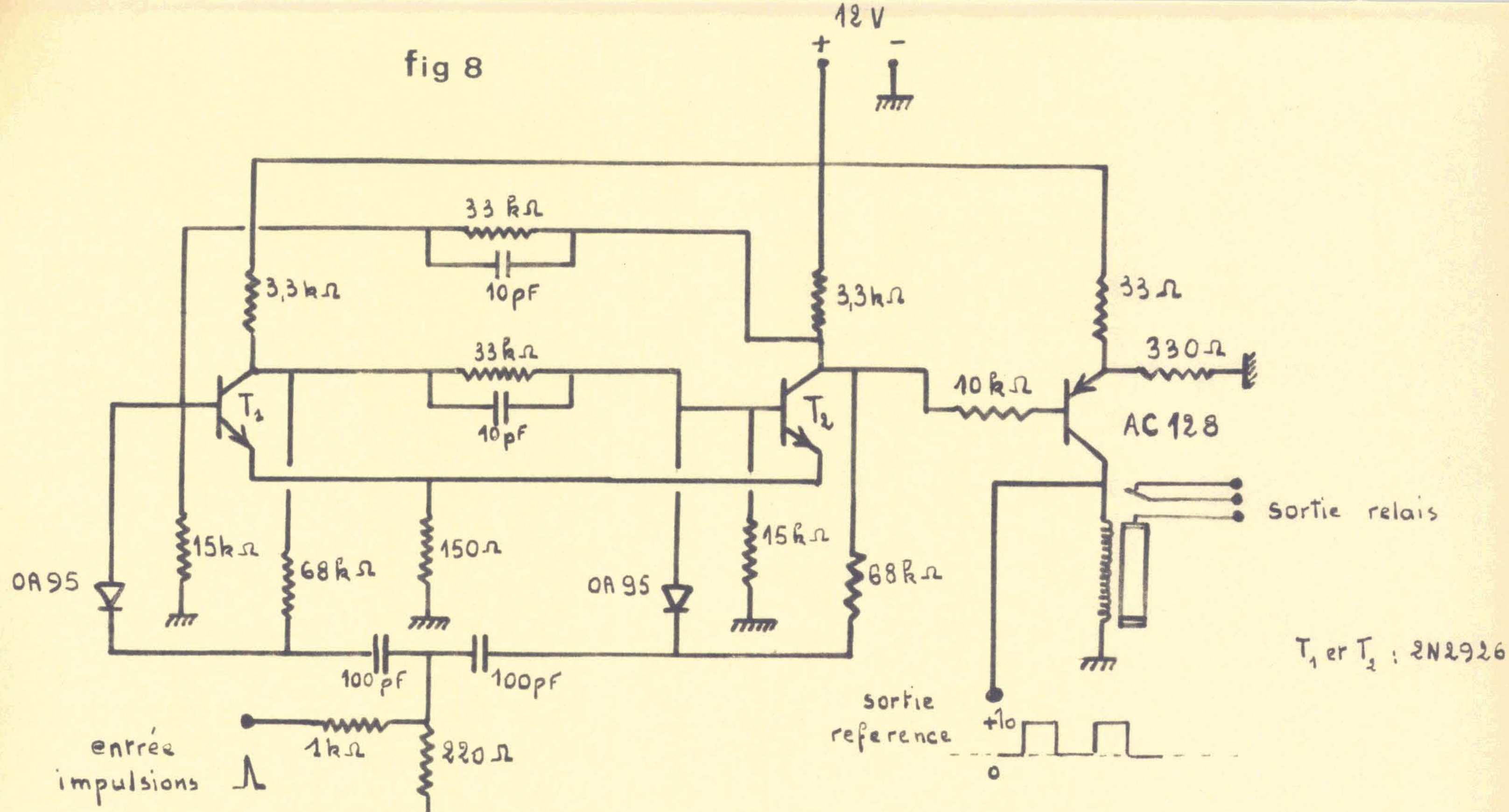




Oscillateur HF

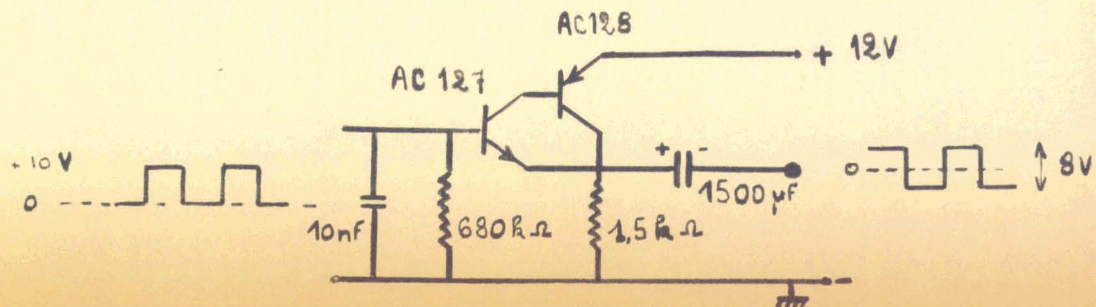
fig 7

fig 8



Modulateur TBF

fig 9



Adaptateur TBF

IV. Quelques remarques sur le réglage de l'appareillage

Toute la sensibilité de l'appareillage dépend de la qualité du système mécanique, donc il 'est : nécessaire d'apporter un soin extrême à la réalisation du pendule : le fil de quartz lorsqu'il est trop manipulé perd facilement ses qualités mécaniques ce qui réduit condidérablement le coefficient de qualité Q du pendule.

Le système mécanique est très sensible aux vibrations extérieures il a donc été nécessaire pour mener à bien ces expériences de trouver un endroit très calme : nous avons eu la chance de travailler au Château de PHALEMPIN situé dans la forêt de PHALEMPIN, loin des vibrations de toute nature qui existent en ville et sur les routes.

Lors de la mise en oscillations forcées du pendule, nous avons constaté en dehors de la zone de résonance électronique du DPPH, une oscillation parasite certainement due à l'inhomogénie de champ H_0 et surtout du champ H_1, ainsi qu'à l'influence de H_1 sur le miroir métallisé. Il a été possible de la minimiser en cherchant une orientation favorable des bobines de champ H_1 et en soignant la construction de ces bobines.

V. Les premiers résultats expérimentaux

1°) l'échantillon employé pesait $p = 0{,}14g$ et la masse atomique du DPPH est de 394,16. Le nombre total de spins contenue dans cet échantillon est donc :

$$N = N_A \frac{p}{394{,}16} \neq\neq 2{,}45\ 10^{20}$$

où N_A est le nombre d'AVOGADRO

Le couple C calculé à la résonance pour la fréquence 23,6 MHz avec $2H_1 \neq\neq 1{,}2$ gauss efficaces, vaut :

$$C \neq\neq 0{,}13\ 10^{-5} \text{dyne.cm}$$

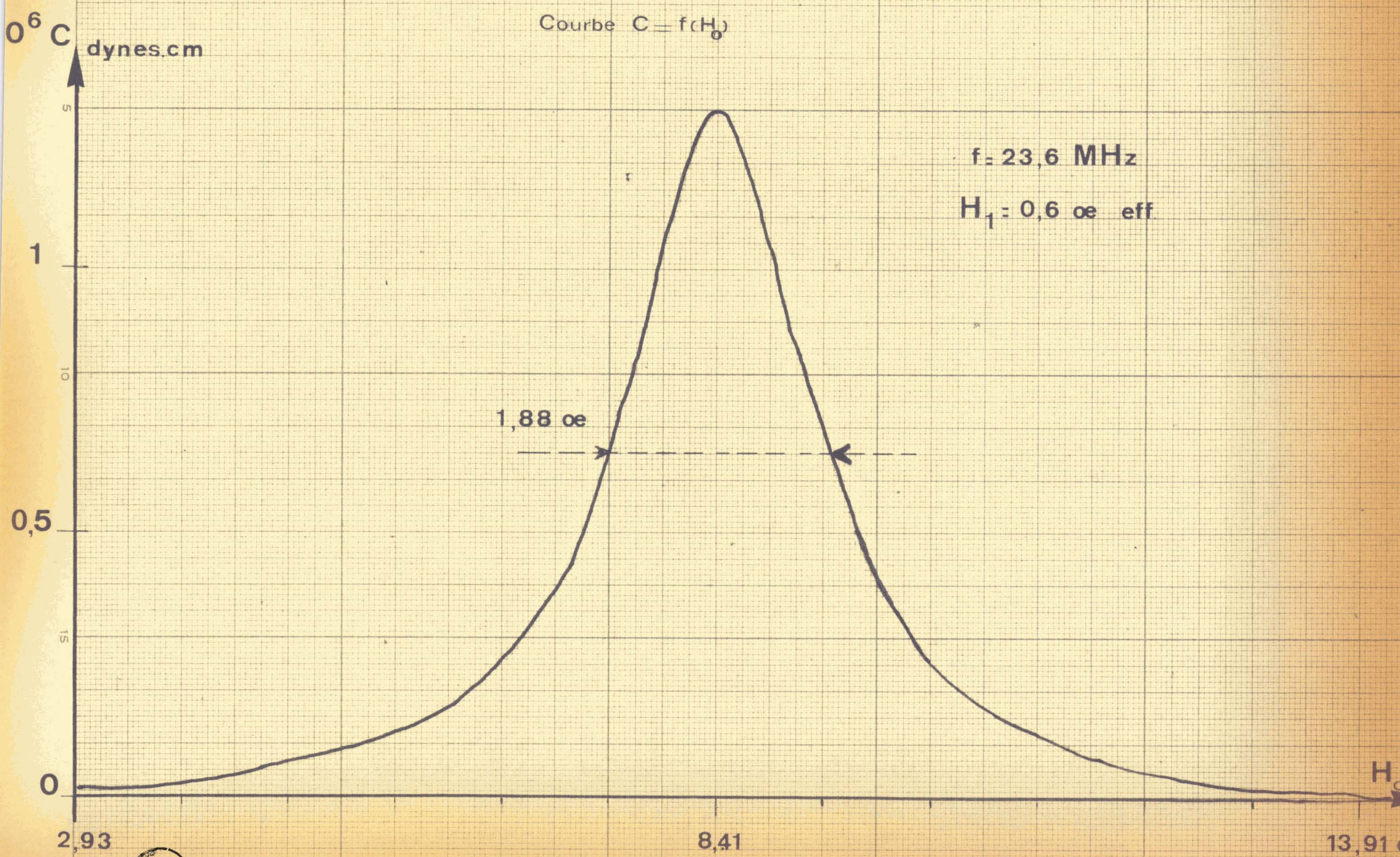

Courbe C = f(H0)
10^6 C dynes.cm
1
0,5
0
f = 23,6 MHz
H1 : 0,6 oe eff
1,88 oe
H0
2,93
8,41
13,91 oe

fig 10

le couple de rappel K du fil de quartz de diamètre 20µ et de longueur 20 cm a pour valeur :

$$K = 3.10^{-2} \text{ dyne.cm/radian}$$

le déplacement du spot est donc, pour le pendule utilisé (Q = 75) :

$$x = 2d \frac{C}{K} \frac{Q}{\pi} = 0{,}25\text{cm} \quad \text{à la distance } d = 120\text{cm}$$

ce déplacement est bien de l'ordre de grandeur de celui observé.

2. l'enregistrement du signal observé (fig.2.) est une raie classique de résonance comparable à celle obtenue en traçant la courbe déduite de l'expression de C en fonction de H_o :

$$C = \chi_o \frac{\gamma H_1^2 T_2 \cdot H_o}{1 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2 + T_2^2 (\omega - \gamma H_o)^2} = f(H_o)$$

avec $2H_1 \neq\neq$ 1,2 gauss efficaces la courbe $C = f(H_o)$ est tracée figure.10.

La largeur de raie déduite de la courbe expérimentale soit 1,87 gauss est identique à celle obtenue par le tracé de la courbe théorique $C = f(H_o)$ soit 1,88 gauss.

Ce résultat est comparable à ceux obtenus par les méthodes classiques de résonance dans le cas du DPPH.

- DEUXIEME - PARTIE -

ETUDE DES RAIES DE RESONANCE EN CHAMP DIRECTEUR FAIBLE

CHAPITRE .I.

INFLUENCE DU SIGNE DU CHAMP DIRECTEUR H_o SUR LE SIGNE DU COUPLE

I. Comparaison entre les techniques classiques de résonance et la technique de résonance mécanique

Considérons un observateur placé au dessus de l'axe du champ directeur H_o. Pour cet observateur la précession magnétique se fait dans un certain sens dépendant du signe du rapport gyromagnétique, soit par exemple le sens trigonométrique (fig.a.).

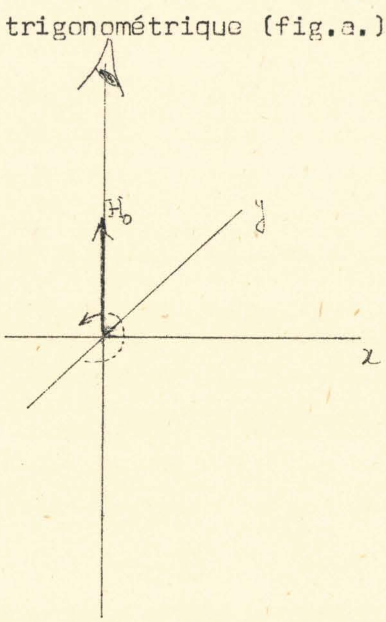


fig.a.

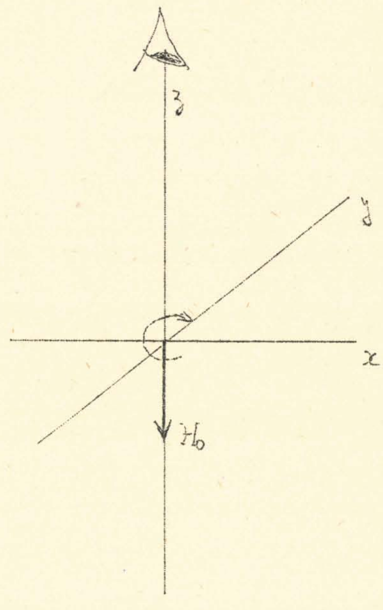


fig.b.

Si le sens du champ H_o est inversé l'observateur voit alors la précession se faire en sens inverse. (fig b)

Les appareils de résonance classique détectent l'absorption d'énergie et, que le champ H_o soit positif ou négatif, cette énergie absorbée a un signe constant. Ainsi lors d'un balayage des champ continus H_o négatifs vers les champs positifs les raies de résonance auront le même signe (figure.c.)

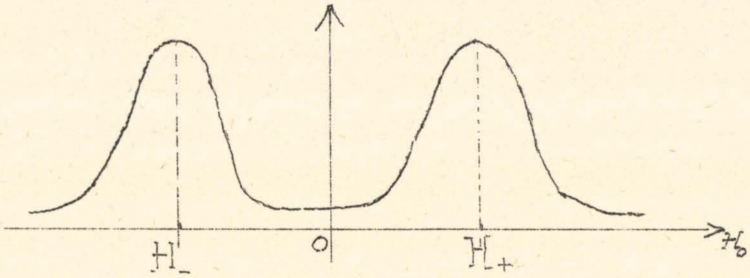


figure.c.

Considérons maintenant la détection mécanique de la résonance magnétique : nous mesurons par cette méthode une variation de moment cinétique qui se traduit par un couple de torsion C détecté.

L'expression de ce couple est, nous l'avons vu dans la première partie de notre exposé :

$$C = \chi_o H_1^2 T_2 \frac{\gamma H_o}{1 + (T_2 \Delta\omega)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

Dans cette formule γ ayant un signe bien défini (négatif pour l'électron), le signe du couple C dépend donc de celui du champ H_o.

En conséquence lors d'un balayage du champ H_o de part et d'autre du champ nul, le couple changera de signe et les raies de résonance auront la forme suivante :

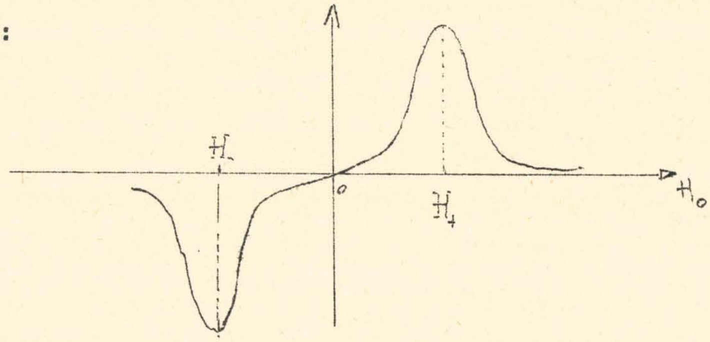


figure.d.

Ces résultats ne sont obtenus que si le champ excitateur H_1 est polarisé linéairement. H_1 est alors décomposable en deux composantes circulaires tournant en sens inverse.

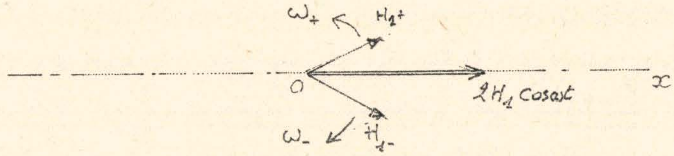


figure.e.

Chaque raie de résonance n'est excitée que par la composante H_1 qui tourne dans le sens du gyroscope représentatif du mouvement de précession.

Par exemple sur la figure.f., avec H_0 dirigé selon Oz positif et $2H_1 \cos \omega t$ dirigé selon Ox, c'est la composante H_{1-} qui excite la résonance.

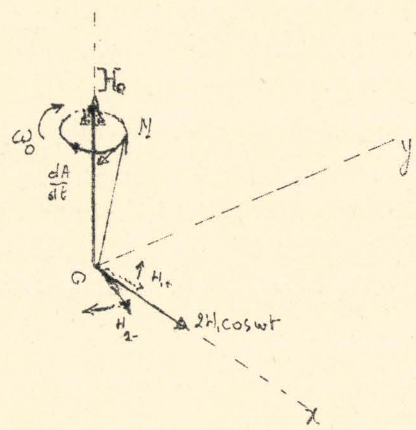


figure.f.

II. Résultats expérimentaux

Nous avons observé l'inversion du signe du couple lors d'un balayage du champ H_0 des valeurs négatives vers les valeurs positives et avec une fréquence du champ H_1, $f = 17,3$ MHz.

L'inversion du signe du couple correspond à une inversion du sens de rotation du pendule c'est-à-dire à une variation de phase égale à π, pour l'onde très basse fréquence à la sortie du photomultiplicateur.

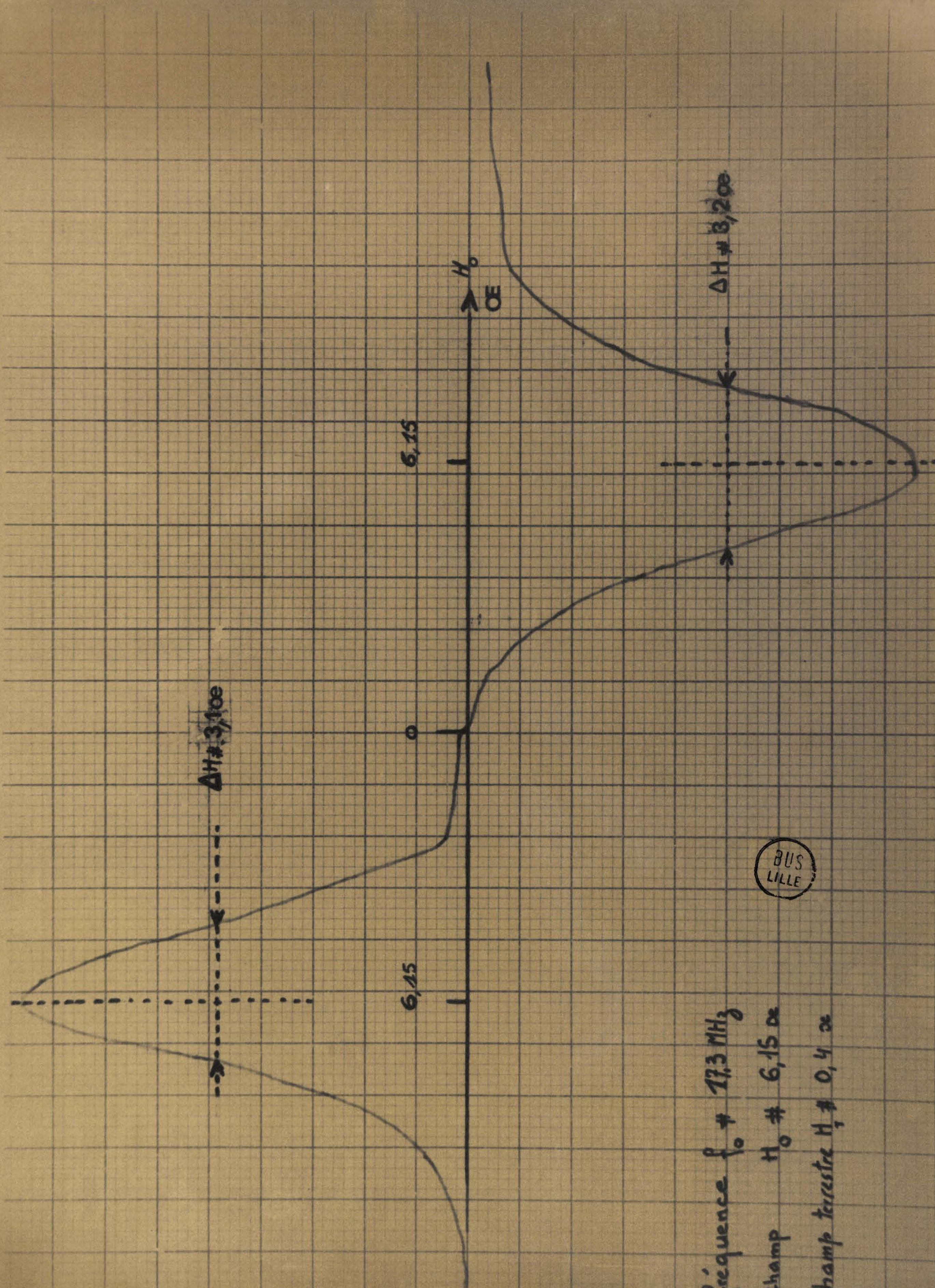

ΔH # 3,1 oe
ΔH # 3,2 oe
6,15
0
6,15
H_0
OE
fréquence f_0 # 17,3 MHz
champ H_0 # 6,15 oe
champ terrestre H_1 # 0,4 oe

fig 11

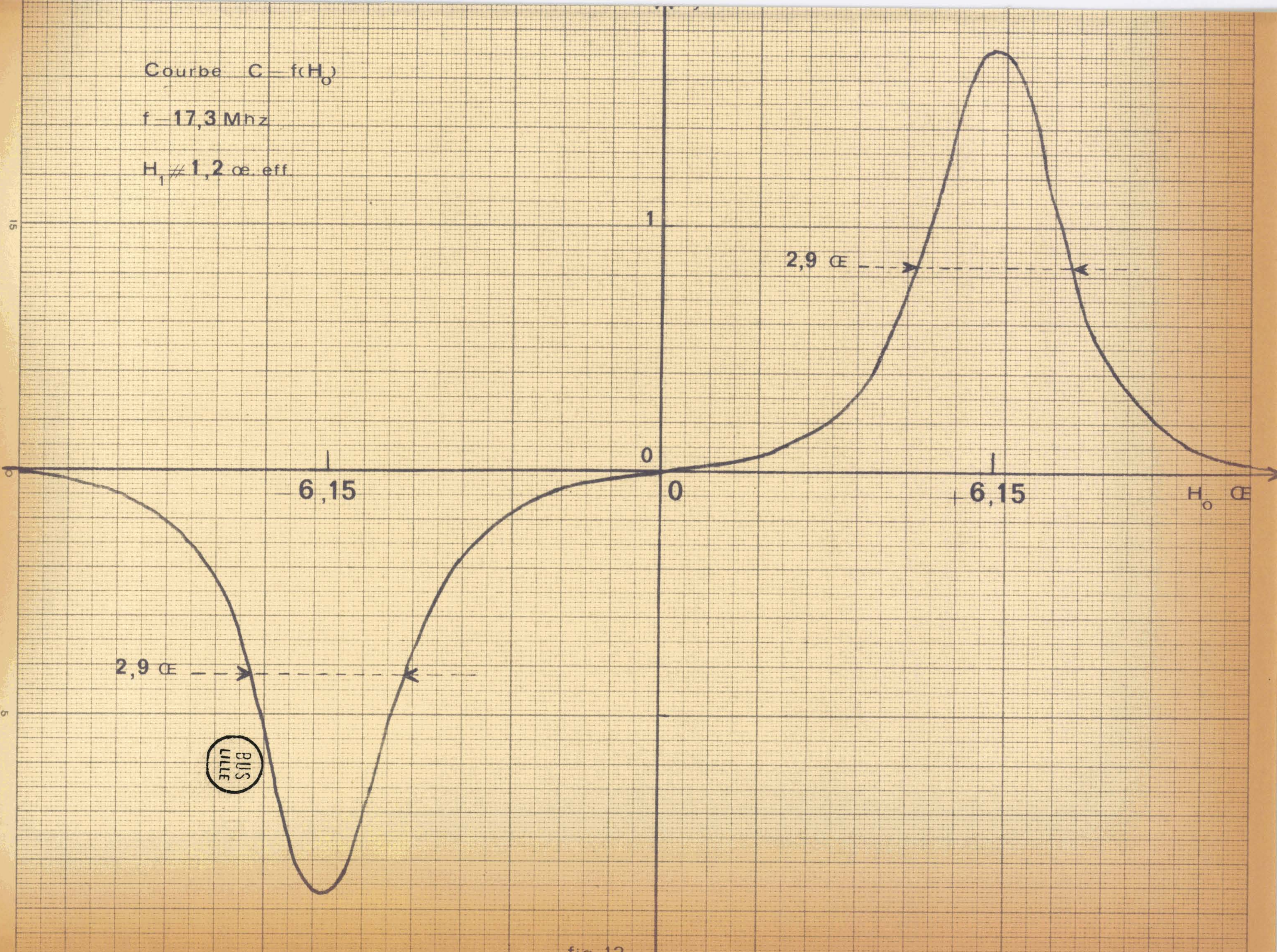


fig 12

L'emploi du détecteur synchrone schématisé figure.6. a permis de visualiser sur l'enregistreur le changement de phase du pendule.

L'enregistrement obtenu figure.11. montre bien les deux raies inversées la largeur de chaque raie est :

$$\Delta H = 3{,}1 \pm 0{,}1 \ .œ$$

pour un champ excitateur $2H_1 \cos \omega t$ d'amplitude $2H_1 \neq\neq 2{,}4$ gauss efficaces.

Ces largeurs de raie sont comparables à celles déduites du tracé de la courbe (figure.12.) :

$$C = f(H_o) = \chi_o H_1^2 T_2 \frac{\omega_o}{1 + (T_2 \Delta\omega)^2 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}$$

avec : $\omega_o = |\gamma| H_o$

$H_1 \neq\neq 1{,}2$ gauss efficaces

Le pendule utilisé était le même que celui de la première partie (fil de quartz 20μ, $\tau = 2{,}7$s, $\mathcal{Q} = 75$).

Le temps de balayage des deux raies était de l'ordre de 1 heure.

<u>Remarque</u> La technique employée pour mesurer le champ excitateur $2H_1 \cos\omega t$ est la suivante :

Une petite boucle est plongée au centre des deux bobines de champ haute fréquence, la tension recueillie à ses bornes est directement reliée à l'induction $2B_1$ par la relation :

$$e = 2B_1 S\omega$$

S : surface de la boucle (environ $130 mm^2$ ici)

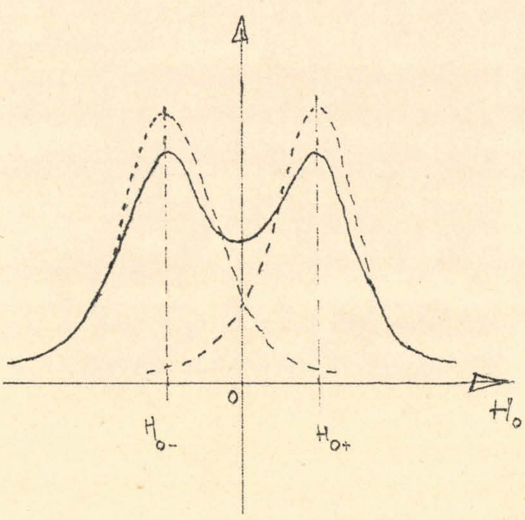
CHAPITRE .II.

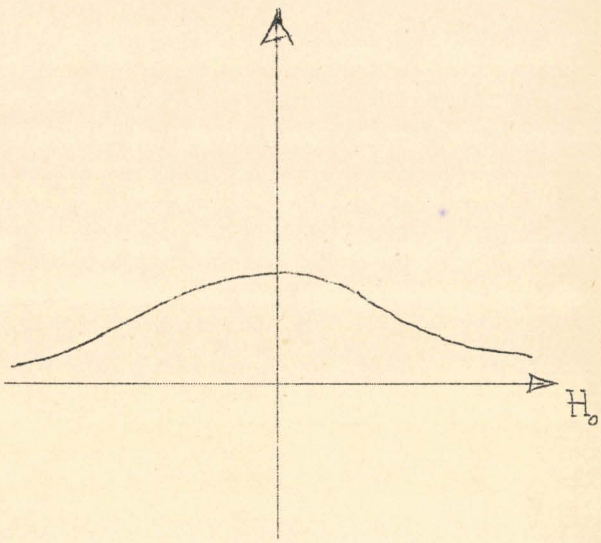
ETUDE DES RAIES DE RESONANCE EN CHAMP FAIBLE

I. Nécessité d'employer un champ haute fréquence tournant pour l'étude des raies en champ faible.

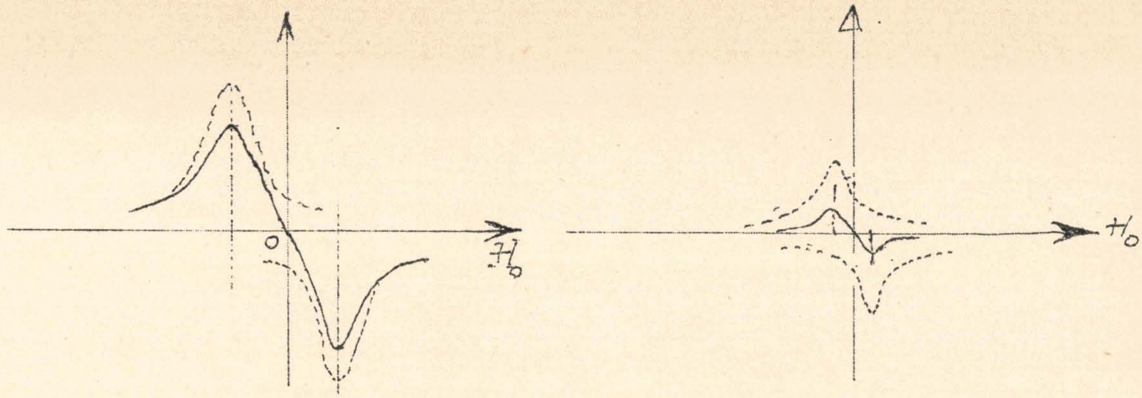
Les composantes circulaires H_{1+} et H_{1-} du champ excitateur polarisé linéairement ont des effets contraires comme nous venons de le voir. Lorsque le champ directeur H_o va devenir de l'ordre de la largeur de raie nous constatons :

a) en résonance magnétique classique, un élargissement des raies qui en champ très faible se confondent en une seule raie large de faible amplitude (figures ci-dessous).





b) en détection mécanique de la résonance ; les deux composantes circulaires H_{1+} et H_{1-} ayant des effets contraires, le couple C prend la valeur zéro lorsque le champ directeur H_o est nul ; les deux raies tendent à s'éliminer d'où modification de leur forme et diminution de leur amplitude qui tend vers zéro.

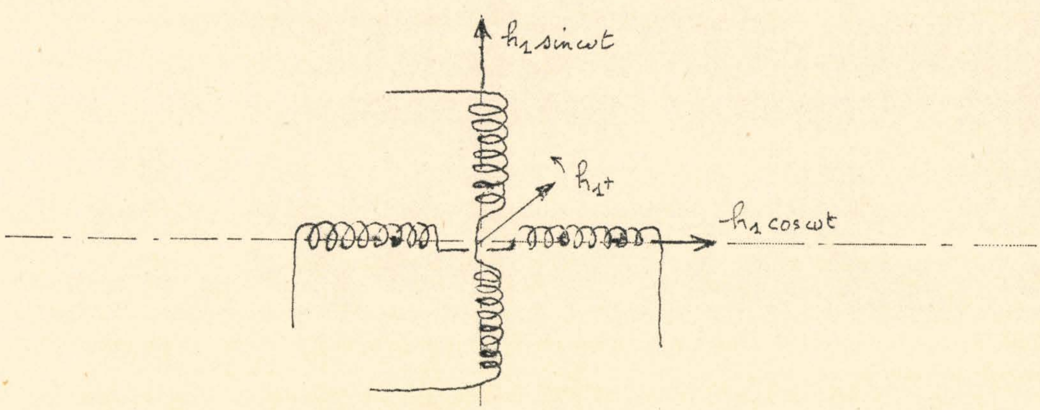


Si nous voulons donc étudier la forme des raies en champ très faible, il faut éliminer l'une des composantes circulaires du champ H_1 ; autrement dit il est nécessaire de créer un champ haute fréquence tournant.

Le principe en est très simple :

. plaçons perpendiculairement à la bobine de champ H_1 orientée selon Ox, une deuxième bobine identique dirigée selon Oy et alimentée par un courant HF de même fréquence mais déphasé de $\pi/2$ par rapport au courant de la bobine Ox.

. la résultante générale des deux champs linéaires ainsi créés est un champ haute fréquence polarisé circulairement.



Le champ excitateur H_1 n'ayant plus qu'une seule composante tournante il n'apparaîtra qu'une seule raie de résonance lorsque nous balaierons des champs directeurs négatifs vers les champs positifs : la résonance ne peut en effet se produire que si H_o a le sens défini par le sens de rotation de H_1 et le signe du rapport gyromagnétique.

Avant d'exposer nos résultats expérimentaux et de les comparer aux résultats déduits de la théorie de GARSTENS et KAPLAN pour les champs faibles, nous allons détailler l'appareillage qui nous a servi dans cette deuxième partie de notre travail.

2. Description de l'appareillage

Le schéma général est donné figure.13. les modifications essentielles par rapport au dispositif expérimental précédent concernent la production du champ haute fréquence, le pendule et la durée de balayage.

I. le pendule

Nous avons dû construire un nouveau pendule afin d'augmenter la sensibilité du système mécanique et compenser ainsi la décroissance du couple de résonance en champ faible. Les caractéristiques essentielles en sont les suivantes :-un échantillon identique en poids et en forme au précédent.

- un fil de torsion en quartz de 10 microns ce qui divise par 16 le couple de rappel K du fil et multiplierait par 16 l'angle de torsion si le couple C restait identique.

- une période d'environ 11s. et un coefficient de qualité $\mathcal{Q}$ de l'ordre de 35.

2. le balayage de H_0 est plus lent : sa durée est de deux heures environ pour parcourir la même plage de champ H_0 (+12 œ à -12 œ).

3. l'amplification et la détection des signaux utilisent les mêmes montages. Seul le temp de modulation du champ H_1 a été allongé puisque la période du pendule est plus longue.

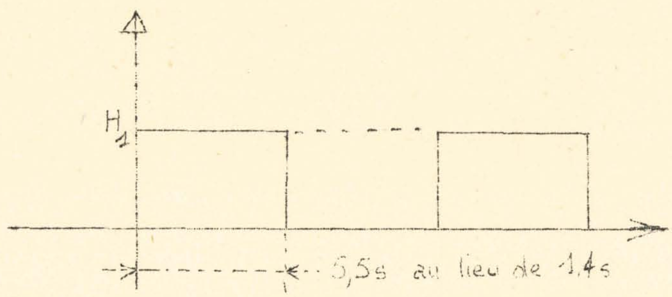
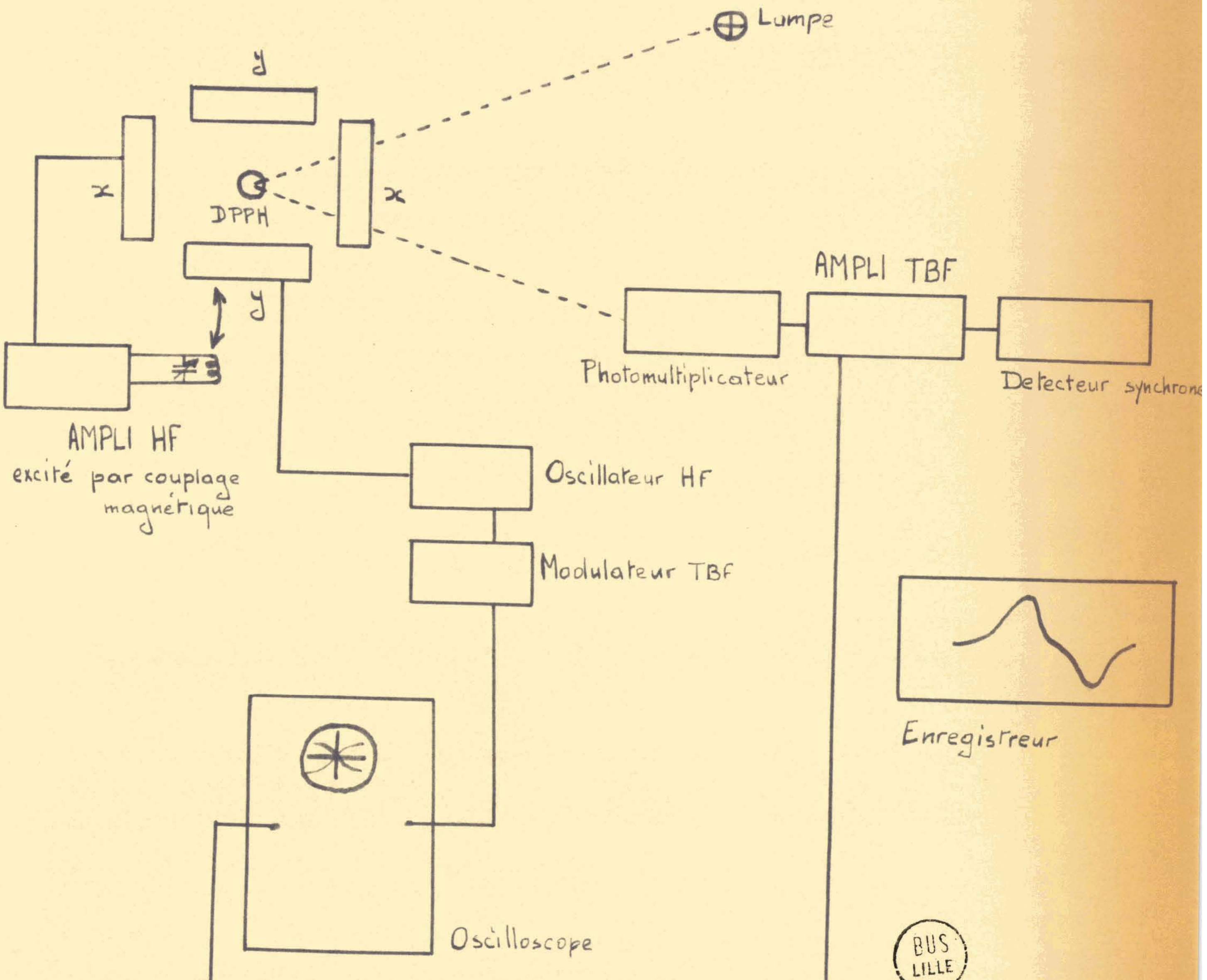


fig 13



xx
yy } bobines de champ HF croisées

les bobines de champ H_0 et leur système de balayage ne sont pas représentés ici

4) <u>le champ excitateur tournant H_I</u>

La production d'un champ tournant nécessite la construction de deux paires de bobines identiques disposées à angle droit et alimentées par deux courants déphasés de $\pi/2$ entre eux.

Nous avons donc réalisé un mandrin ayant la forme d'une croix de Malte, percé en son centre pour laisser passer le pendule, deux enroulements identiques ont alors été bobinés selon les deux axes perpendiculaires du mandrin. La figure.14. montre une vue en perspective du mandrin et le schéma qui l'accopagne donne la constitution des deux enroulements.

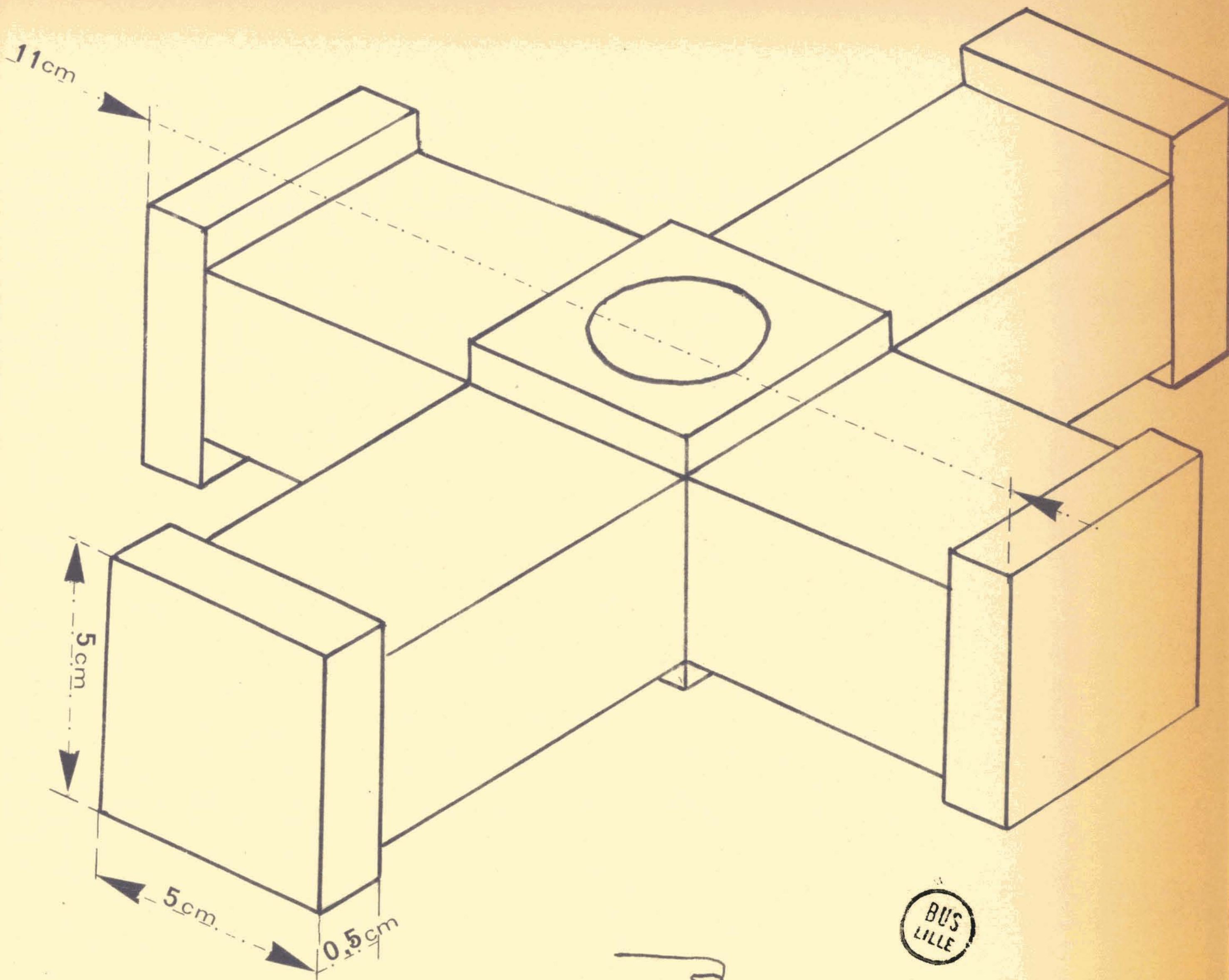
Pour alimenter le premier couple de bobines dirigé selon x'x nous avons construit un oscillateur du type de celui utilisé dans la première partie.

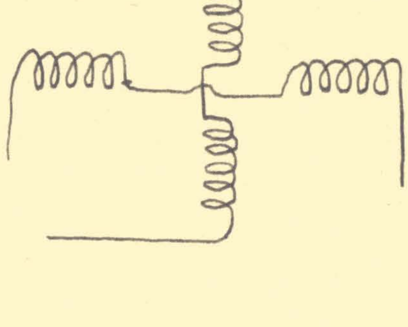
Le deuxième couple de bobines disposé selon y'y perpendiculairement à x'x, est alimenté par un amplificateur de puissance accordé de type pushpull. Cet amplificateur est excité par couplage magnétique avec les bobines Ox :

. une bobine B_3 (10 spires) accordée à la fréquence de l'oscillateur est disposée à quelques centimètres des bobines Ox. Cette bobine B_3 couplée magnétiquement aux bobines Ox excite l'amplificateur de puissance par une tension déphasée de $\pi/2$ par rapport à celle existant aux bornes des bobines Ox. Cette tension est amplifiée et alimente les bobines Oy elles-mêmes accordées à la fréquence de l'oscillateur.

. le réglage du déphasage de $\pi/2$ qui doit exister entre les courants des bobines Ox et Oy se fait à l'aide d'un oscilloscope TEKTRONIX XY type 536 ; deux petites boucles identiques, placées l'une selon Ox, l'autre selon Oy contre les joues du mandrin recueillent respectivement une tension qui est envoyée aux voies X et Y. L'oscillogramme obtenu est, en l'absence de tout accord des bobines B_3 et Oy, une ellipse d'axes quelconques. L'accord des bobines B_3 et Oy permet d'obtenir une ellipse d'axe OX et OY ; enfin la modification du couplage entre B_3 la bobine de l'oscillateur permet d'obtenir un cercle sur l'oscilloscope :

fig 14





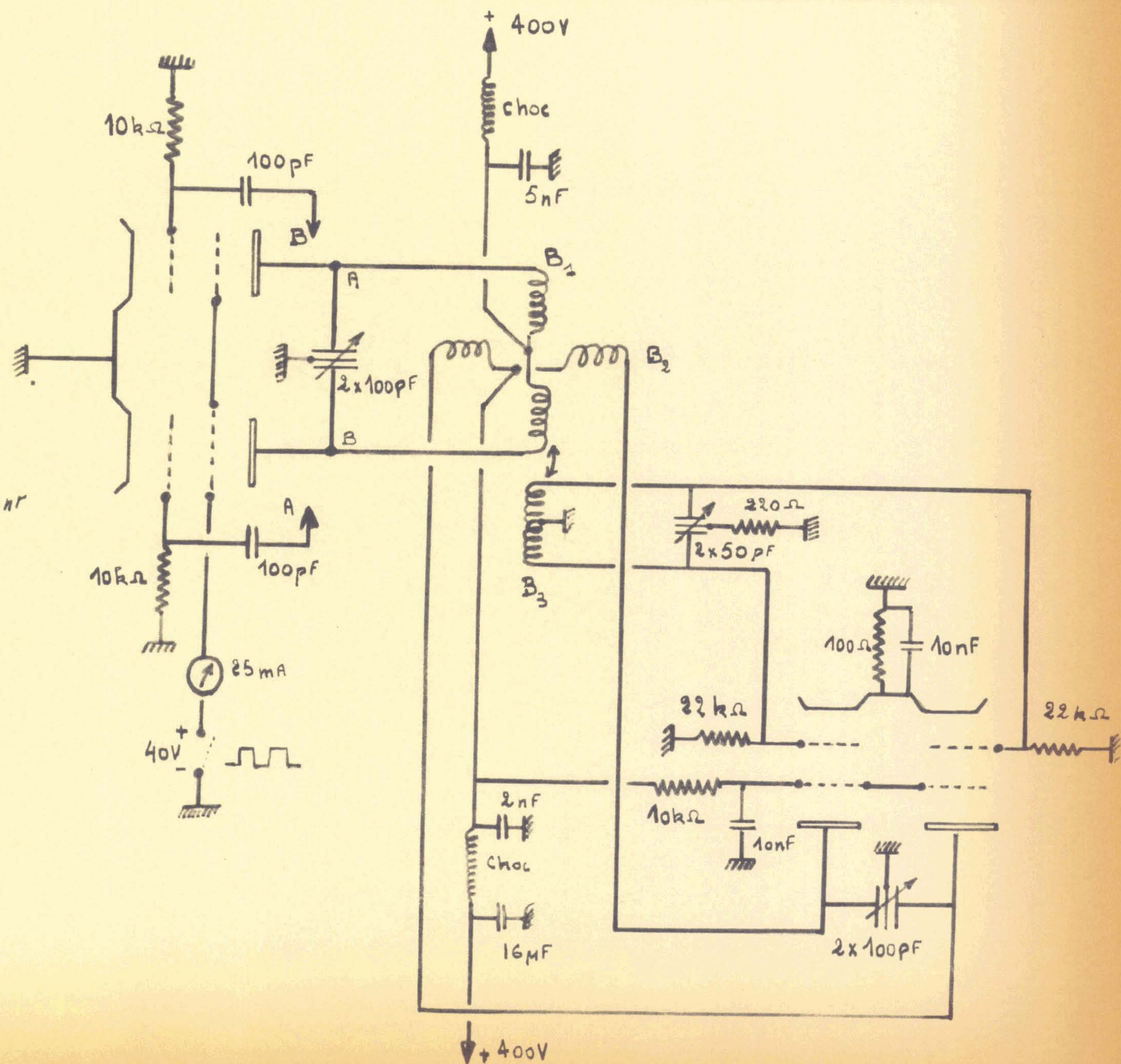
10 spires sur chaque bras
fil Ø 10/10 Cu émaillé

fig 15

B_1 et B_2 : bobines croisées

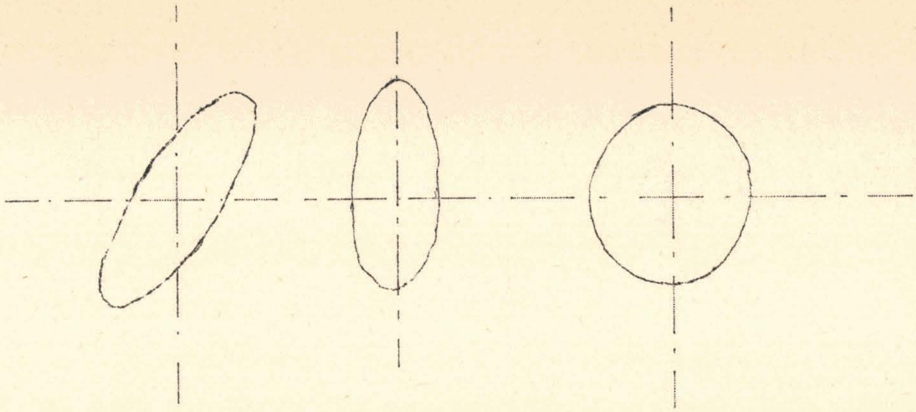
B_3 : bobine couplée magnétiquement à B_2

2 Tubes: QQE 0640 Philips



Oscillateur HF

Amplificateur HF de Puissance



Le déphasage de $\pi/2$ est réalisé et l'amplitude des deux champs HF produits dans les bobines Ox et Oy est identique. Nous avons réalisé un champ tournant d'amplitude constante.

Le schéma de l'oscillateur HF couplé à l'amplificateur de puissance est donné figure.15.

L'emploi de deux tubes doubles QQE 0640 PHILIPS et le blindage entre grilles et anodes du tube amplificateur ont évité la mise en oscillation de l'amplificateur sutout lorsque l'oscillateur HF est bloqué et débloqué toutes les demi-période du pendule (condition n écessaire à la mise en oscillations forcées du système mécanique) : l'amplificateur est parfaitement synchrone de l'oscillateur.

La mise au point de ce dispositif à champ tournant pulsé a été très délicate ; la phase de mise au point la plus difficile est l'obtention d'amplitude rigoureusement égale (déphasée de $\pi/2$) condition nécessaire pour obtenir une seule composante tournante.

En outre la moinde variation du déphasage de $\pi/2$ entre les deux courants HF provoque l'apparition d'une oscillation parasite mécanique qui peut masquer la résonance : l'impulsion de champ HF ainsi créée, (nous n'avons plus alors un champ tournant), provoque, en effet, un couple de torsionparasite. L'existence de ce couple parasite est liée aux inhomogénies des champs créés, à la non symétrie de l'échantillon et également à l'influence du champ haute fréquence sur le miroir métallisé.

Si, comme nous l'avons remarqué précédemment, dans le cas d'un champ H_1 linéaire, il est possible de minimiser cette oscillation parasite en cherchant une orientation favorable des bobines haute fréquence, l'emploi d'un champ tournant complique l'élimination de cette oscillation parasite.

III. La théorie de GARSTENS et KAPLAN pour les champs faibles[5] appliquée à la détection mécanique de la résonance magnétique

La validité des équations de BLOCH et leurs solutions en régime permanent sont remis en question lorsque le champ H_o devient de l'ordre soit de la largeur de raie, soit du champ haute fréquence H_1.

La puissance radiofréquence absorbée, calculée à partir de ces équations tend en effet vers zéro avec H_o même si la valeur ω de la haute fréquence garde une valeur finie ; ce résultat diffidilement acceptable du point de vue théorique est en contradiction avec les mesures faites en champ faible par plusieurs chercheurs dont WHITEFIELD et REDFIELD[6].

Afin de se débarasser de cet aspect gênant des équations classiques, on a supposé qu'en présence d'un champ haute fréquence H_1 (le champ directeur étant H_o), l'aimantation relaxait non pas vers la valeur d'équilibre $\vec{M}_o = \chi_o \vec{H}_o$ mais vers la valeur instantanée $\chi_o (\vec{H}_o + \vec{H}_1(t))$. Cette hypothèse se traduit en outre par l'égalité des temps de relaxation longitudinaux et transversaux soit :

$$T_1 = T_2 = T$$

Les équations de BLOCH modifiées par cette hypothèse s'écrivent alors :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \vec{M} \wedge \vec{H} - \frac{\vec{M} - \chi_o \vec{H}}{T} \qquad (1)$$

où H est la somme de $\vec{H_o}$ et $\vec{H_1}$

$$\vec{H} = \vec{H_o} + \vec{H_1}(t)$$

GARSTENS et KAPLAN[5] ont donné une solution approchée des équations de BLOCH modifiées dans les deux cas possibles de polarisation du champ haute fréquence $\vec{H_1}$: linéairement puis circulairement.

Nous allons utiliser leur développement théorique pour calculer le couple produit lors de la résonance du DPPH en champ faible.

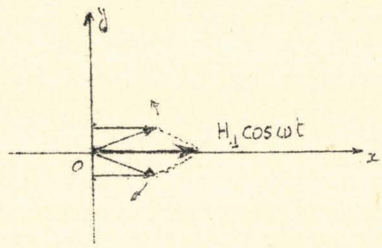
I°) le champ H_1 est polarisé linéairement selon Ox

Le champ directeur H_o étant toujours dirigé selon Oz, les composantes du champ résultant $\vec{H}$ sont dans le référentiel du laboratoire.

$$H_x = H_1 \cos\omega t$$

$$H_y = 0$$

$$H_z = H_o$$



De l'équation vectorielle (1) nous déduisons les trois équations du mouvement :

$$\frac{dM_x}{dt} = \gamma M_y H_o - \frac{M_x - \chi_o H_1 \cos\omega t}{T} \qquad (2)$$

$$\frac{dM_y}{dt} = \gamma M_z H_1 \cos\omega t - \gamma M_x H_o - \frac{M_y}{T} \qquad (3)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = - \gamma M_y H_1 \cos\omega t - \frac{M_z - \chi_o H_o}{T} \qquad (4)$$

La solution en régime permanent du système d'équations ci-dessous s'obtient :

a) en faisant l'hypothèse que $\overline{M_z}$ (valeur moyenne de M_z sur un cycle) est indépendante du temps

b) en posant : $M_x = A_1 \cos\omega t + B_1 \sin\omega t \qquad (5)$

$M_y = A_2 \cos\omega t + B_2 \sin\omega t \qquad (6)$

L'hypothèse faite sur M_z, (hypothèse valable lors d'un balayage lent du champ directeur $H_\circ$) permet de déduire de l'équation (4) :

$$0 = -\gamma H_1 \left[A_2\cos^2\omega t + B_2\sin\omega t \cos\omega t\right] - \frac{M_z - \chi_\circ H_\circ}{T} \qquad (7)$$

Faisons alors la moyenne sur une période du champ haute fréquence H_1, nous obtenons :

$$\frac{\bar{M}_z}{T} = \frac{\chi_\circ H_\circ}{T} - \frac{\omega}{2\pi}\int_0^{2\pi/\omega} \gamma H_1 (A_2\cos^2\omega t + B_2\sin\omega t \cos\omega t)dt \qquad (8)$$

soit $$\bar{M}_z = \chi_\circ H_\circ - \frac{1}{2}\gamma H_1 T A_2 = M_\circ - \frac{1}{2}\gamma H_1 T A_2 \qquad (9)$$

Substituons les équations (5) et (6) dans les équations (2) et (3)

$$-\omega A_1 \sin\omega t + \omega B_1\cos\omega t = \gamma H_\circ\left[A_2\cos\omega t + B_2\sin\omega t\right] - \left[\frac{A_1\cos\omega t + B_1\sin\omega t - \chi_\circ H_1\cos\omega t}{T}\right.$$

$$-\omega A_2\sin\omega t + \omega B_2\cos\omega t = \gamma H_1\cos\omega t\left[\chi_\circ H_\circ - \frac{1}{2}\gamma H_1 T A_2\right] - \gamma H_\circ\left[A_1\cos\omega t + B_1\sin\omega t\right]$$
$$- \frac{1}{T}\left[A_2\cos\omega t + B_2\sin\omega t\right]$$

En identifiant membre à membre nous obtenons le système :

$$\left.\begin{aligned}
&-\omega A_1 + \frac{B_1}{T} + \gamma H_\circ B_2 = 0 \\
&\frac{A_1}{T} + \gamma H_\circ A_2 + \omega B_1 = \chi_\circ \frac{H_1}{T} \\
&-\omega A_2 - \gamma H_\circ B_1 + \frac{B_2}{T} = 0 \\
&-\gamma H_\circ A_1 + \omega B_2 + \frac{A_2}{T}\left(1 + \frac{1}{2}\gamma^2 H_1^2 T^2\right) = \gamma H_1 H_\circ \chi_\circ
\end{aligned}\right\} \qquad (10)$$

Comme nous l'avons vu précédemment, l'expression du couple est :

$$C = \frac{1}{\gamma T} (M_z - M_o)$$

La valeur moyenne au cours d'un cycle de la haute fréquence est donc :

$$\bar{C} = \frac{1}{\gamma T} (\bar{M}_z - M_o)$$

De l'équation (3) nous tirons :

$$C = -\frac{1}{\gamma T} \cdot \frac{1}{2} \gamma T H_1 A_2 = -\frac{1}{2} H_1 A_2$$

La valeur de A_2 s'obtient en résolvant le système d'équations (10). On trouve :

$$A_2 = H_1 \frac{2\omega_o \omega^2 T^3 \chi_o}{\left[1 + T^2(\omega_o - \omega)^2\right]\left[1 + T^2(\omega_o + \omega)^2\right] + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1^2 T^2 \left(1 + \omega^2 T^2 + \omega_o^2 T^2\right)} \qquad (11)$$

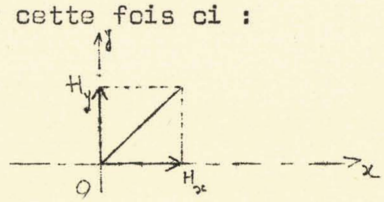
l'expression du couple s'écrit donc avec $\omega_o = -\gamma H_o$

$$\bar{C} = \chi_o H_1^2 \frac{\gamma H_o \omega^2 T^3}{\left[1 + T^2(\omega_o - \omega)^2\right]\left[1 + T^2(\omega_o + \omega)^2\right] + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1^2 T^2 \left(1 + \omega^2 T^2 + \omega_o^2 T^2\right)} \qquad (12)$$

2°) <u>expression du couple $\bar{C}$ lorsque le champ H_1 est un champ tournant</u>

les composantes du champ résultant $\vec{H}$ sont cette fois ci :

$$H_x = H_1 \cos \omega t$$
$$H_y = -H_1 \sin \omega t$$
$$H_z = H_o$$



des équations de BLOCH modifiées s'écrivent alors :

$$\frac{dM_x}{dt} = \gamma (M_y H_o + M_z H_1 \sin \omega t) - \frac{(M_x - \chi_o H_1 \cos \omega t)}{T} \qquad (13)$$

$$\frac{dM_y}{dt} = \gamma(M_z H_1 \cos\omega t - M_x H_o) - \frac{(M_y + \chi_o H_1 \sin\omega t)}{T} \qquad (14)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \gamma(- M_x H_1 \sin\omega t - M_y H_1 \cos\omega t) - \frac{(M_z - \chi_o H_o)}{T} \qquad (15)$$

Comme précédemment nous faisons l'hypothèse que $\bar{M}_z$ est indépendant du temps ; de (15) nous tirons donc :

$$M_z = -\gamma T(-M_x H_1 \sin\omega t - M_y H_1 \cos\omega t) + \chi_o H_o \qquad (16)$$

La solution en régime permanent s'obtient alors en posant :

$$M_x = A_1 \cos\omega t + B_1 \sin\omega t \qquad (17)$$

$$M_y = A_2 \cos\omega t + B_2 \sin\omega t \qquad (18)$$

et la valeur moyenne de M_z sur un cycle est alors :

$$\bar{M}_z = \chi_o H_o - \frac{1}{2} \gamma H_1 T(B_1 + A_2) = M_o - \frac{1}{2} \gamma H_1 T(B_1 + A_2)$$

la résolution des équations (13) et (14) à partir des expressions de M_x, M_y et $\bar{M}_z$ conduit au système d'équations :

$$\left.\begin{aligned}
- \omega T A_1 + \left(1 + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1^2 T^2\right) B_1 + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1^2 T^2 A_2 + \omega_o T B_2 &= \chi_o H_1 \gamma H_o \\
A_1 + \omega T B_1 + \omega_o T A_2 &= \chi_o H_1 \\
-\omega_o T B_1 - \omega T A_2 + B_2 &= - \chi_o H_1 \\
-\omega_o T A_1 + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1^2 T^2 B_1 + \left(1 + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1 T^2\right) A_2 + \omega T B_2 &= \chi_o H_1 \gamma H_o
\end{aligned}\right\} \qquad (20)$$

L'expression du couple $\bar{C}$ est comme précédemment :

$$\bar{C} = \frac{1}{\gamma T} (\bar{M}_z - M_o)$$

soit

$$\bar{C} = - \frac{1}{2} H_1 (B_1 + A_2)$$

la résolution du système (20) nous permet de déduire A_2 et B_1 :

$$A_2 = B_1 = \chi_o H_1 \frac{\omega T}{1 + \gamma^2 H_1^2 T^2 + (\omega_o T - \omega T)^2} \qquad (21)$$

l'expression du couple $\bar{C}$ s'écrit donc :

$$\bar{C} = -\chi_o H_1^2 \frac{\omega T}{1 + \gamma^2 H_1^2 T^2 + (\omega_o T - \omega T)^2} \qquad (22)$$

Rappelons que χ_o est la susceptibilité magnétique d'expresssion :

$$\chi_o = \frac{N}{3kT} \gamma^2 . \hbar^2 . j . (j+1)$$

l'expression du couple étant calculée dans les deux cas possibles de polarisation du champ nous allons maintenant comparer les résultats expérimentaux à ceux que nous pouvons déduire des courbes : $C = C(\omega_o) = C(\gamma H_o)$.

IV. <u>Les résultats expérimentaux</u>

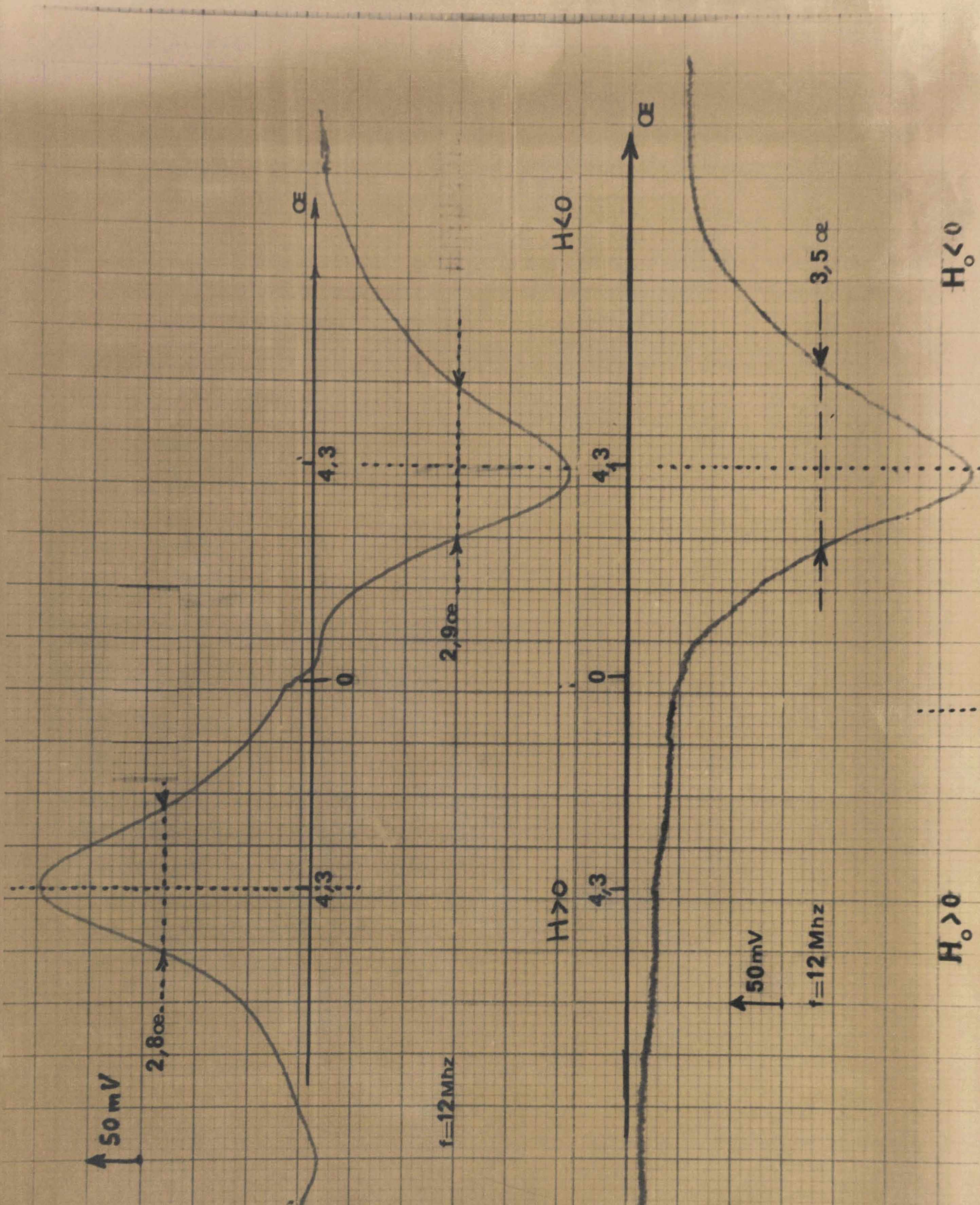
I. <u>Nous avons tout d'abord travaillé à la fréquence f ≠≠ I2 MHz</u> soit un champ H_o à la résonance égal à 4,3 œ.

L'enregistrement fig.16.b. a été réalisé en champ tournant : il ne subsiste alors qu'une seule raie (celle correspondant au champ H_o négatif) ; son amplitude est légèrement supérieure à celle des raies obtenues en champ H_1 linéaire (fig 16a) ; sa largeur à mi-hauteur est :

$$\Delta H \neq\neq 3{,}4 \text{ œ}$$

Ces deux enregistrements ont permis de vérifier le bon fonctionnement du dispositif à champ tournant.

2. <u>La fréquence de travail a alors été divisée par deux soit f ≠≠ 6MHz</u>, ce qui correspond à un champ H_o à la résonance égale à 2,15 œ.



50 mV
2,8 oe
4,3
0
4,3
oe
f=12Mhz
2,9 oe
H>0
H<0
4,3
0
4,3
oe
50mV
f=12Mhz
3,5 oe
$H_o > 0$
$H_o < 0$

16a fig 16b

a) l'enregistrement figure.17.a. obtenu en champ H_1 polarisé linéairement montre deux raies déformées et rétrécies : l'ensemble ressemble d'ailleurs à une courbe de dispersion : la largeur de raie à mi-hauteur est :

$$\Delta H = 2{,}3\,\text{œ} \pm 0{,}1\ \text{œ}$$

En champ H_o nul nous constatons, du fait des effets opposés des deux composantes du champ H_1, que le couple est nul (la valeur mesurée du champ H_1 est ici 1,2 œ efficaces environ).

Comparons ces résultats à ceux déduits de la théorie : l'expression du couple en champ H_1 linéaire est :

$$\bar{C} = \chi_o H_1^2 \frac{\omega^2 \omega_o T^3}{\left[1 + T^2(\omega_o-\omega)^2\right]\left[1 + T^2(\omega_o+\omega)^2\right] + \frac{1}{2} \gamma^2 H_1^2 T^2 (1 + \omega^2 T^2 + \omega_o^2 T^2)}$$

avec $\omega_o = \gamma H_o$

La courbe $C = f(H_o)$ pour $H_1 = 1{,}2$ efficaces a été tracée figure.18.a.

Rappelons que dans cette expression :

$$\chi_o = \frac{N}{3k\tau} \gamma^2 \hbar^2 j(j+1)$$

N est le nombre de spins contenu dans l'échantillon ≠≠ 2,45 10^{20} ici pour l'échantillon de DPPH utilisé (0,14g.)

k est la constante de BOLTZMAN : 1,38 10^{-16} erg/degré Kelvin

τ est la température ambiante : 293°K

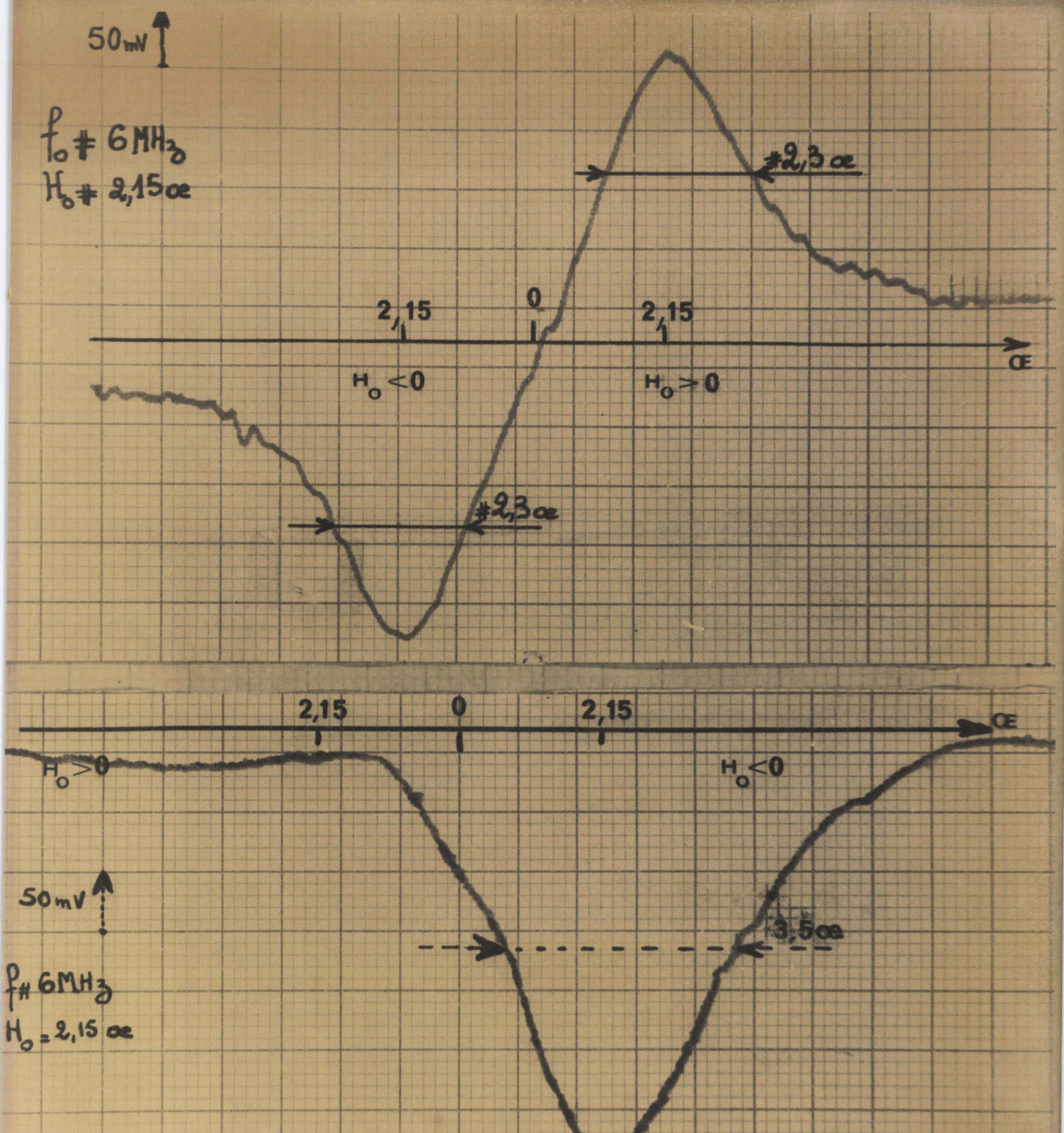
j est le spin : $\frac{1}{2}$ pour l'électron

γ est le rapport gyromagnétique : 17,6 10^6 Hz/œ

h est la constante de PLANCK : 6,65 10^{-27} erg.seconde

Ainsi χ_o ≠≠ 0,5 10^{-6}

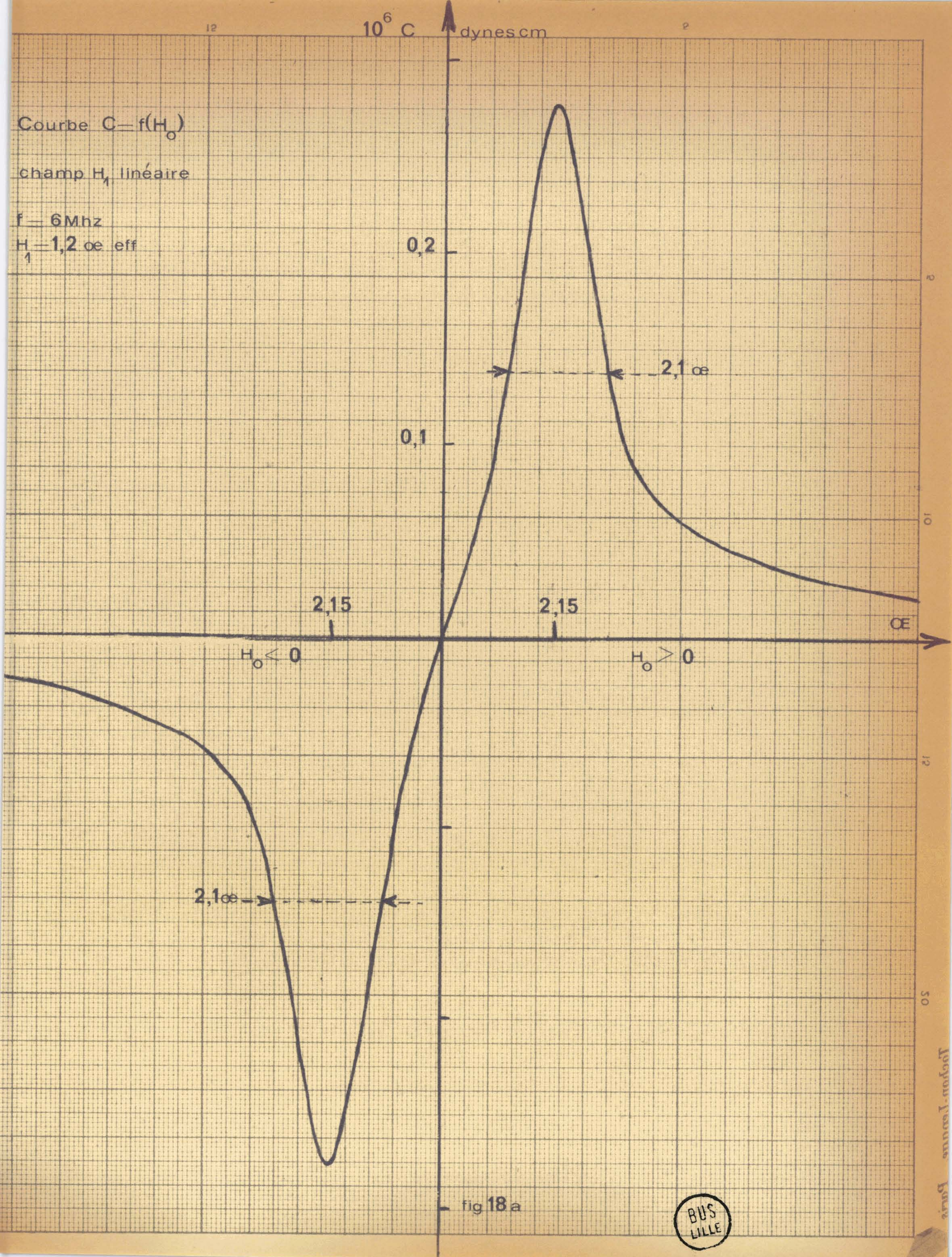
Dans l'expression de C, T est le temps de relaxation : 6,2 10^{-8} seconde


50mV
f0 # 6MHz
H0 # 2,15 oe
#2,3 oe
2,15
0
2,15
oe
H0 < 0
H0 > 0
#2,3 oe
2,15
0
2,15
oe
H0 > 0
H0 < 0
50mV
3,5 oe
f # 6MHz
H0 = 2,15 oe

17a

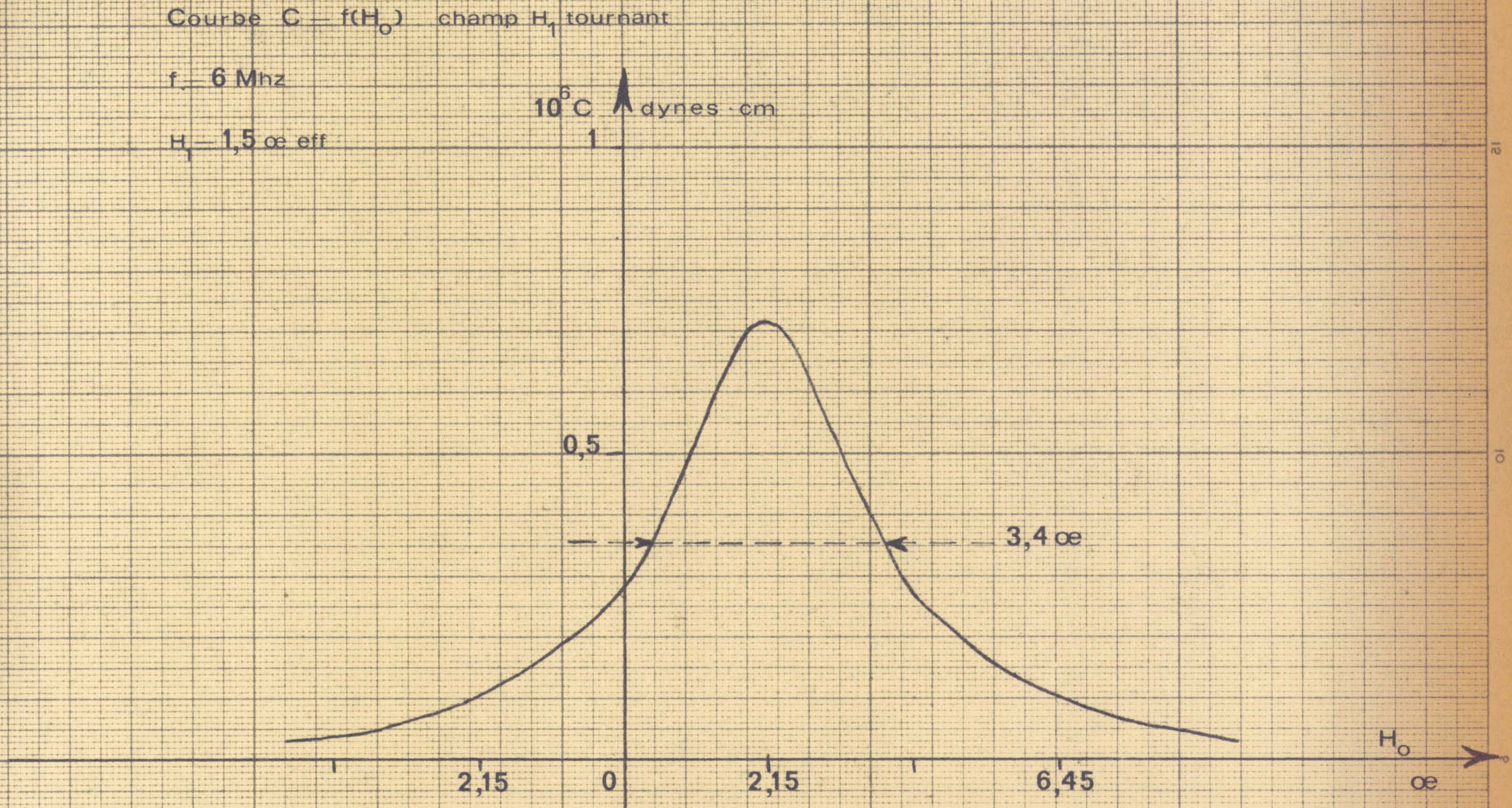
fig

17b



10^6 C dynes cm
Courbe C = f(H_o)
champ H_1 linéaire
f = 6 Mhz
H_1 = 1,2 oe eff
0,2
0,1
2,1 oe
2,15
2,15
OE
H_o < 0
H_o > 0
2,1 oe

fig 18 a



Courbe C = f(H_o) champ H_1 tournant
f = 6 Mhz
H_1 = 1,5 œ eff
10^6 C dynes · cm
1
0,5
3,4 œ
H_o
œ
2,15
0
2,15
6,45

fig 18 b

La courbe tracée a la même forme que celle de l'enregistrement correspondant : deux raies inversées rétrécies, le couple est nul en champ nul. La largeur à mi-hauteur est :

$$\Delta H = 2,1 \text{ œ}$$

Nous constatons donc que l'expression mathématique de $\bar{C}$ permet une représentation correcte de la forme des raies et que les largeurs de ces raies sont comparables.

b) nous avons réalisé l'enregistrement figure.17.b. en champ tournant afin d'éliminer l'une des raies. La raie unique obtenue a, à nouveau une forme de LORENTZ, son amplitude est augmentée par rapport à celle des deux raies précédentes, sa largeur à mi-hauteur est :

$$\Delta H = 3,5 \pm 0,1 \text{ œ}$$

Enfin nous constatons qu'en champ nul le couple n'est pas nul ; le rapport entre l'amplitude du signal à la résonance et l'amplitude du signal en champ nul est :

$$\frac{V_{max}}{V_o} \# 2,8$$

(le champ H_1 mesuré est pour cet enregistrement = $H_1 \# 1,5$ œeff.)

Que nous donne la théorie ? L'expression du couple en champ tournant est :

$$\bar{C} = \chi_o H_1^2 \frac{\omega T}{1 + \gamma^2 H_1^2 T^2 + (\omega_o T - \omega T)^2}$$

La courbe $C = f(H_o)$ pour $H_1 = 1,5$ œeff. et $\chi_o = 0,5 \; 10^{-6}$ est représentée figure.18.b. C'est une raie comparable à celle enregistrée, de largeur : $\Delta H = 3,4$ œ

de rapport : $\frac{C_{max}}{C_o} = 2,6$ (C_o valeur du couple en champ nul)

Nous constatons donc à nouveau un très bon accord entre résultats expérimentaux et résultats théoriques.

Les expressions du couple déduites de la théorie en champ faible pour les champs H_1 polarisés linéairement, puis circulairement, permettent donc dans les deux cas une représentation mathématique correcte des raies étudiées.

3. <u>Pour confirmer l'accord entre l'expérience et la théorie</u>, nous avons refait une série d'enregistrements (figure.19.a., 19;b.) à la fréquence $f \approx 5{,}15$ MHz soit $H_o \approx 1{,}85$ œ à la résonance.

a) en champ linéaire (figure.19.a.) nous obtenons toujours deux raies opposées de largeur :

$$\Delta H = 2{,}1 \pm 0{,}1 \text{ œ} \qquad \text{pour } H_1 = 1{,}2 \text{ œ eff. mesurés}$$

b) en champ tournant (figure.19.b.), une seule raie apparaît d'amplitude plus grande qu'en champ H_1 linéaire, de largeur :

$$\Delta H = 3{,}4 \pm 0{,}1 \text{ œ} \qquad \text{pour } H_1 = 1{,}5 \text{ œ eff. mesurés}$$

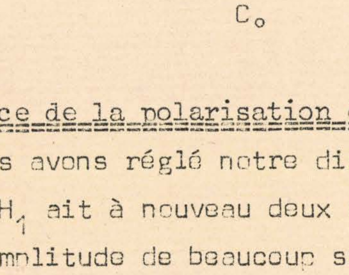
le rapport $\dfrac{V_{max}}{V_o}$ vaut cette fois-ci 2,25 environ.

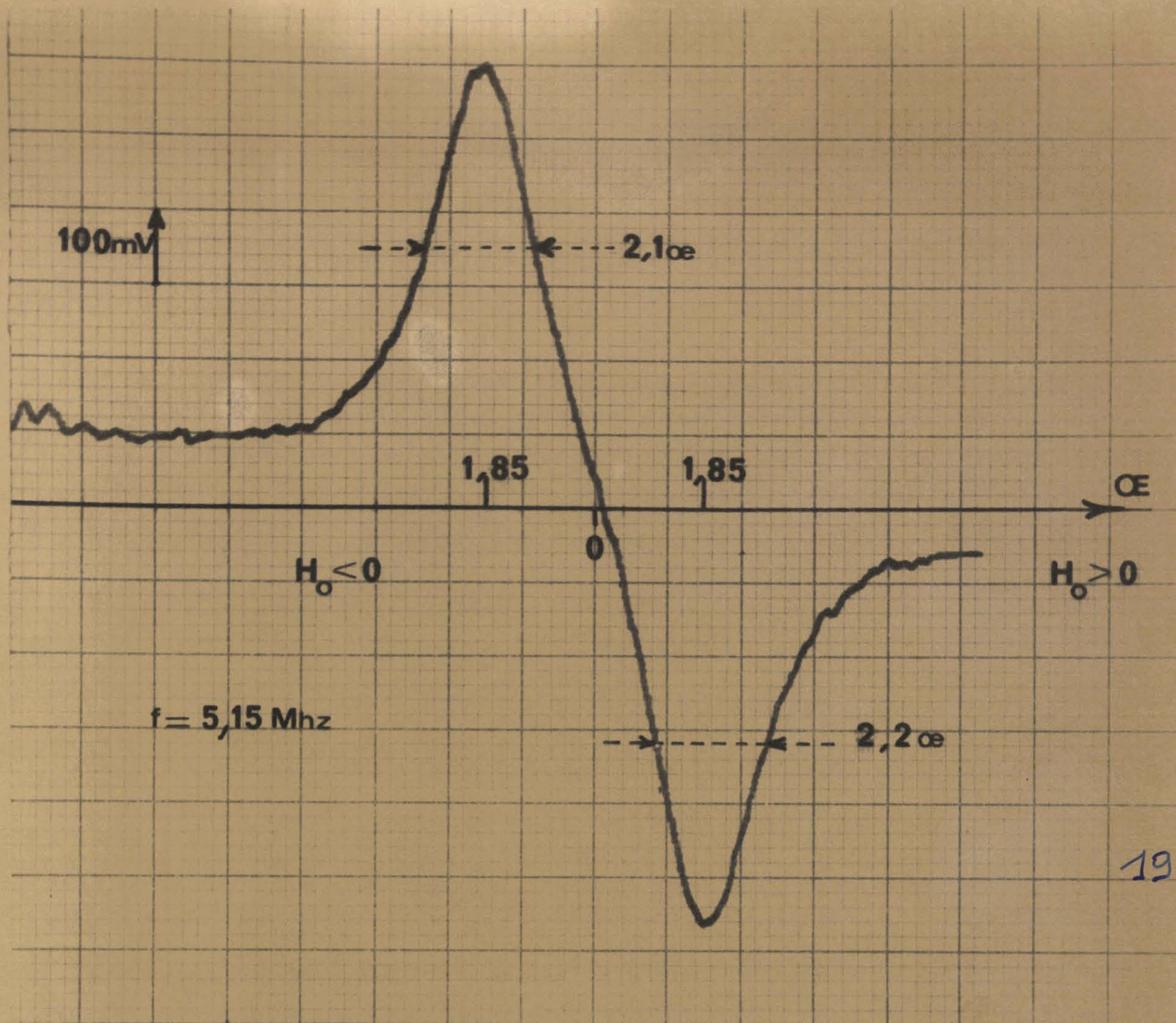
La comparaison avec les courbes théoriques $C = f(H_o)$ tracées figure.20.a. et 20;b. respectivement pour les champs H_1 linéaire puis circulaire est à nouveau probante :

. en champ H_1 linéaire : pour $H_1 \approx 1{,}2$ œ eff. les deux raies opposées ont pour largeur $\Delta H = 2{,}1$ œ (fig.20.a.)

. en champ H_1 circulaire : pour $H_1 \approx 1{,}5$ œ eff., la courbe fig.20.b. nous donne : $\Delta H = 3{,}4$ œ ; $\dfrac{C_{max}}{C_o} = 2{,}15$

4. <u>Afin de voir l'influence de la polarisation du champ haute fréquence sur la forme de la raie</u>, nous avons réglé notre dispositif de champ tournant de telle sorte que le champ H_1 ait à nouveau deux composantes circulaires, l'une d'entre elles ayant une amplitude de beaucoup supérieure à l'autre. Il suffit pour cela que les courants haute fréquence alimentant les bobines croisées ne soient plus déphasés exactement de $\pi/2$.




100mV
2,1oe
1,85
1,85
Œ
0
$H_o < 0$
$H_o > 0$
f = 5,15 Mhz
2,2oe

19a

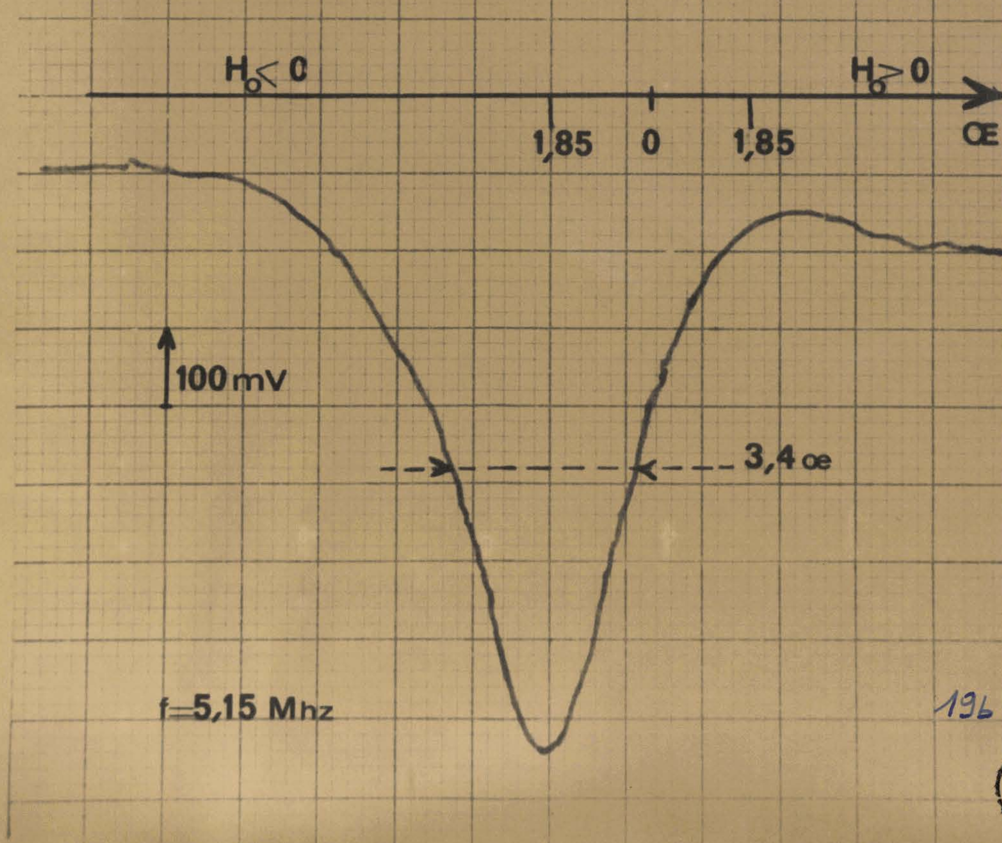
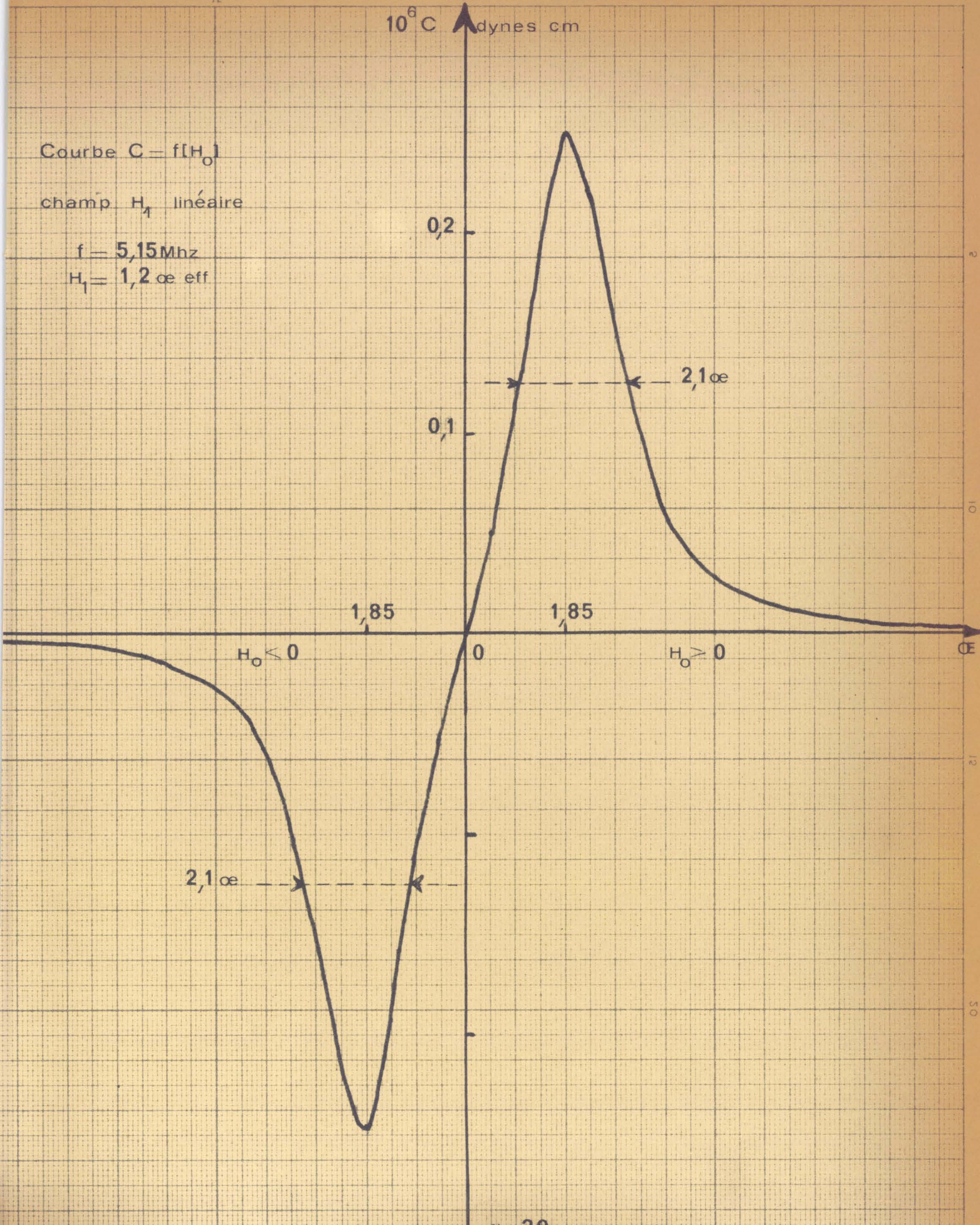

$H_o < 0$
$H_o > 0$
1,85
0
1,85
Œ
100mV
3,4oe
f=5,15 Mhz

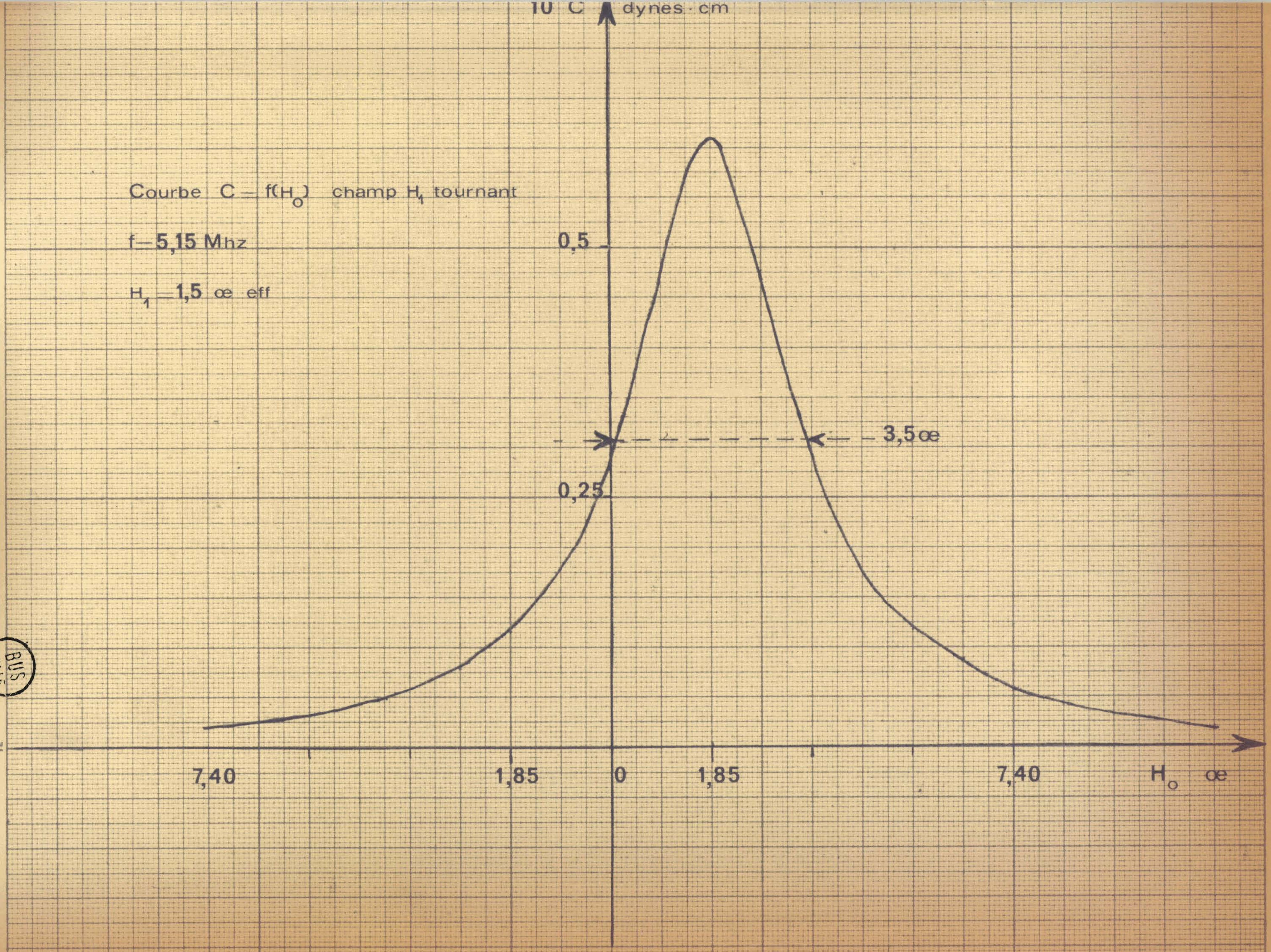
fig.

19b



10^6 C dynes cm
Courbe C = f[H_o]
champ H_1 linéaire
f = 5,15 Mhz
H_1 = 1,2 œ eff
0,2
0,1
2,1 œ
1,85
1,85
H_o < 0
0
H_o > 0
Œ
2,1 œ

fig 20a



10 C dynes · cm
Courbe C = f(H0) champ H1 tournant
f=5,15 Mhz
H1=1,5 œ eff
0,5
0,25
3,5 œ
7,40
1,85
0
1,85
7,40
H0 œ

fig 20 b

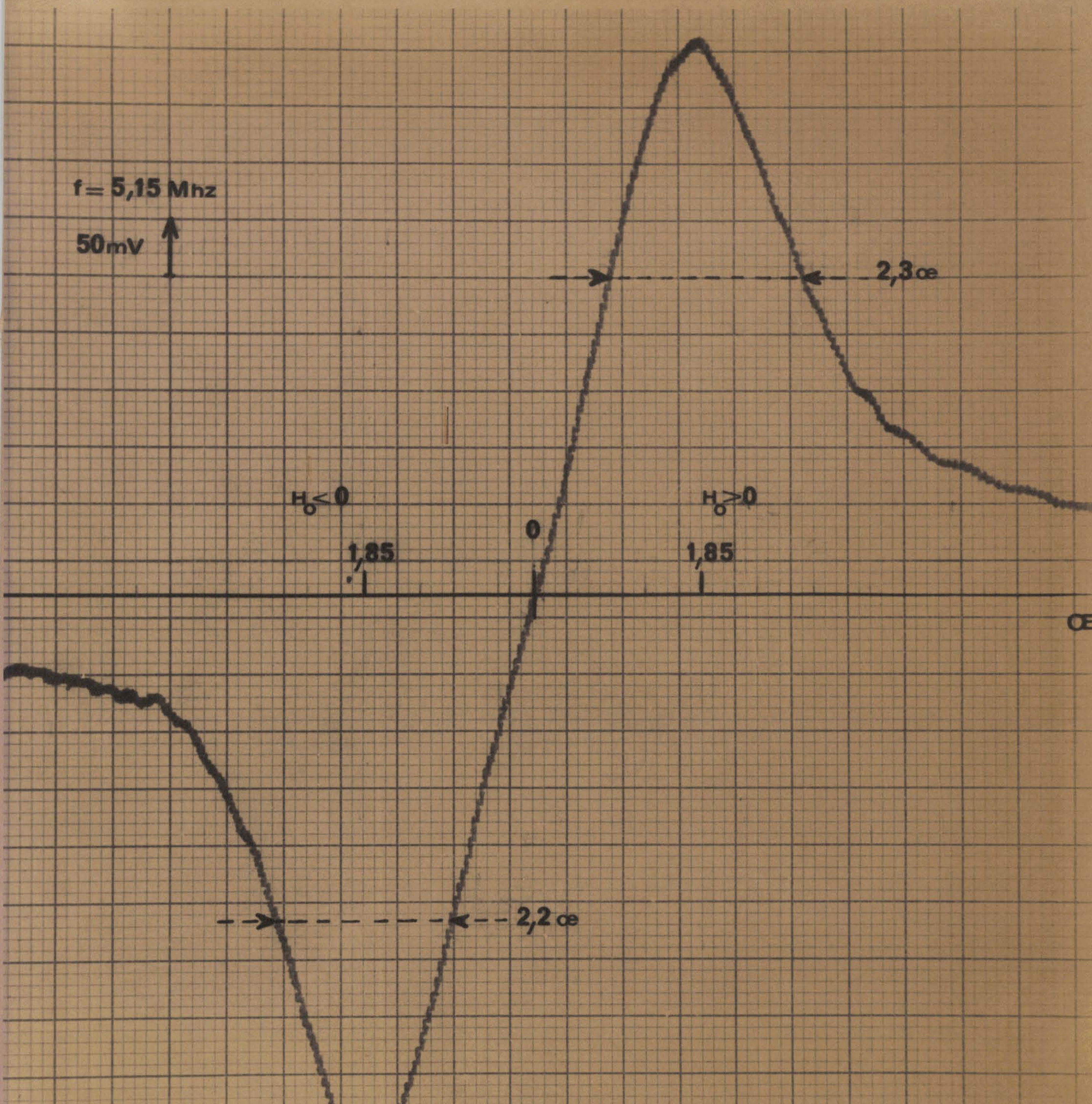


fig 21

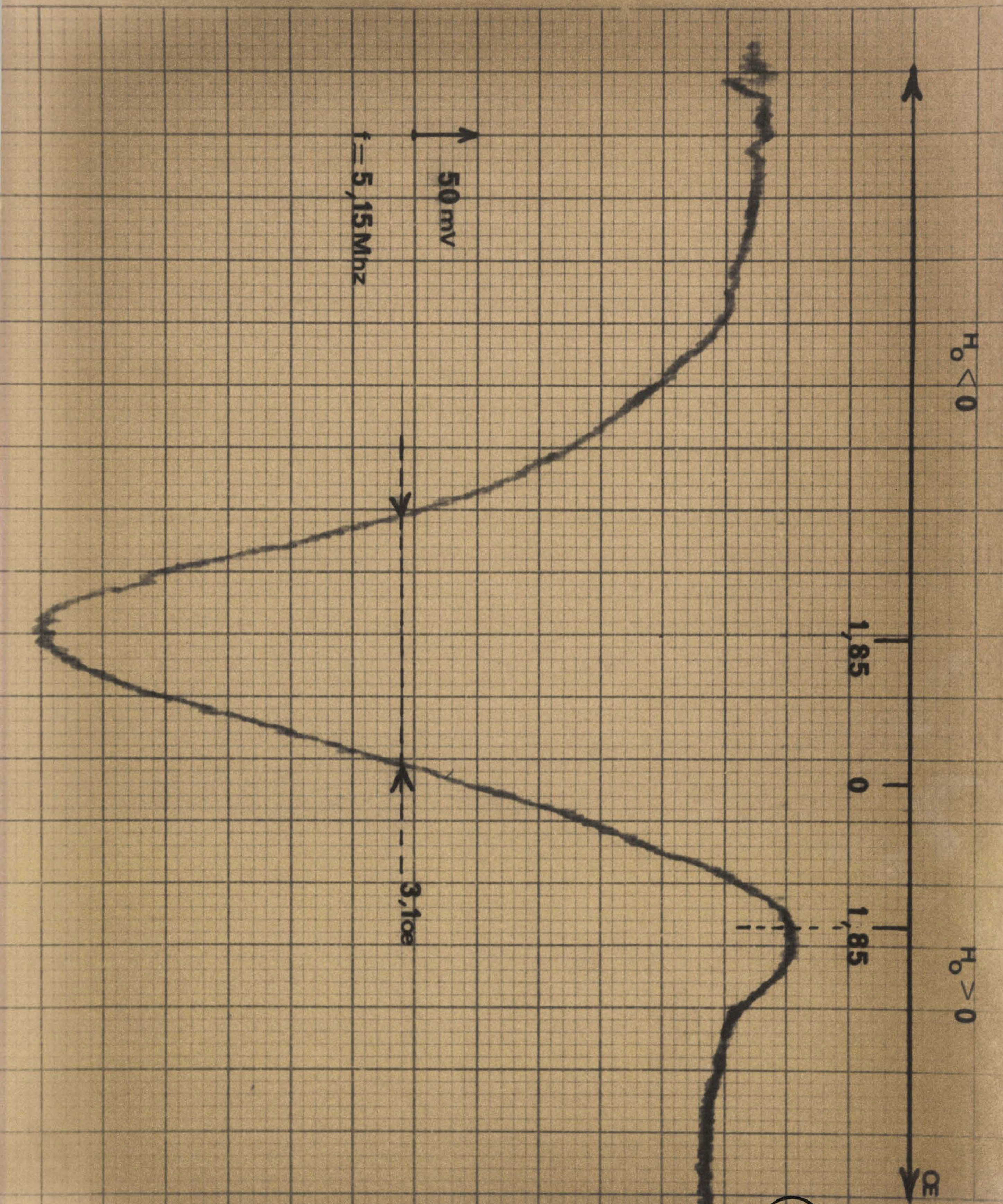


fig 22

L'enregistrement figure.21. correspond à un champ haute fréquence linéaire à la fréquence 5,15MHz : il montre l'existence de deux raies symétriques.

L'enregistrement figure.22. réalisé à f = 5,15MHz dans les conditions expérimentales exposées ci-dessous permet de constater l'existence de deux raies fortement dissymétriques du point de vue amplitude et forme.

La raie en champ directeur positif est d'amplitude très faible (70mV environ), de largeur non mesurable.

La raie en champ H_o négatif, raie correspondant à celle excitée par le champ H_1 parfaitement tournant, a une amplitude 10 fois plus grande environ que la raie positive, amplitude comparable à la raie obtenue en champ tournant. La largeur à mi-hauteur par contre est diminuée,

ΔH = 3,1 α par rapport à celle de la raie en champ tournant

Nous constatons donc la nécessité d'un champ haute fréquence H_1 de polarisation rigoureusement circulaire si nous voulons que l'éude des raies de résonance soit correcte.

C O N C L U S I O N

Au cours de notre travail nous avons tout d'abord repris l'expérience de GOZZINI et ALZETTA qui montre qu'il est possible d'étudier la résonance paramagnétique électronique du DPPH par une métbode différente des méthodes classiques : cette méthode consiste à mettre en évidence, en utilisant la résonance mécanique d'un fil de quartz, l'existence d'un couple de torsion dû au transfert du moment cinétique spin réseau lors de la résonance magnétique du DPPH.

Les raies que nous avons observées et enregistrées par cette technique sont des raies d'absorption et l'étude théorique que nous avons faite à partir de la théorie de BLOCH est en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Appliquant cette technique à une étude des raies en champ fabile, nous avons montré expérimentalement puis théoriquement à partir des équations de BLOCH modifiées, les effets opposés des deux composantes circulaires d'un champ H_1 polarisé linéairement, sur la forme de la raie. L'emploi d'un champ H_1 tournant (champ polarisé circulairement) nous a alors permis de retrouver la forme correcte de la raie d'absorption, forme confirmée par l'expression mathématique de la raie déduite des équations de BLOCH modifiées.

B I B L I O G R A P H I E

(1) BETH, Phys. Rev., (1936), 50, 115

(2) CARRARA, Nature, (1949), 164, 882

(3) ABRAGAM, "Principes du magnétisme nucléaire", P. U. F., (1961), chap.III

(4) GOZZINI et ALZETTA, "Un effet mécanique lié à la résonance paramagnétique" Coll. AMPERE, BORDEAUX, Septembre 1963

(5) GARSTENS et KAPLAN, "Low field magnetic resonance", Phys. Rev., 1955, 99, 459

(6) WHITFIELD et REDFIELD, "Paramagnetic resonance detection along the polarizing field direction", Phys. Rev., (1957), 106, 918

TABLE DES MATIERES