

RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE ENTRE  
4.2 ET 1.2 K A L'AIDE D'UN SQUID

par

Christian FRANCOISE

Thèse présentée à l'Ecole des Etudes Supérieures  
de l'Université d'Ottawa en vue de l'obtention  
de la Maîtrise de Physique



Université d'Ottawa

Ottawa, Canada

1978

UMI Number: EC55198

### INFORMATION TO USERS

The quality of this reproduction is dependent upon the quality of the copy submitted. Broken or indistinct print, colored or poor quality illustrations and photographs, print bleed-through, substandard margins, and improper alignment can adversely affect reproduction.

In the unlikely event that the author did not send a complete manuscript and there are missing pages, these will be noted. Also, if unauthorized copyright material had to be removed, a note will indicate the deletion.

**UMI<sup>®</sup>**

---

UMI Microform EC55198  
Copyright 2011 by ProQuest LLC  
All rights reserved. This microform edition is protected against  
unauthorized copying under Title 17, United States Code.

---

ProQuest LLC  
789 East Eisenhower Parkway  
P.O. Box 1346  
Ann Arbor, MI 48106-1346

## RESUME

Un cryostat fonctionnant entre 4.2 et 1.4 K muni d'une tête de résonance magnétique nucléaire mettant à profit la grande sensibilité d'un fluxmètre à SQUID a été conçu et réalisé. Le spectre obtenu en variant la fréquence de l'excitation se présente sous des formes très variées dépendantes de l'intensité des champs polarisant et d'excitation, de la vitesse de passage et de la température. Ces spectres renferment des informations intéressantes sur le temps de relaxation spin-réseau et l'interaction spin-spin, l'analyse en est cependant difficile et il a été tenté de l'amorcer.

## TABLE DES MATIERES

	page
RESUME .....	i
TABLE DES MATIERES.....	ii
LISTE DES FIGURES .....	v
REMERCIEMENTS .....	vii
INTRODUCTION .....	1
Principe de la mesure .....	2
CHAPITRE -1- CONCEPTION DU CRYOSTAT .....	6
1-1 CONTRAINTES DE CONSTRUCTION .....	6
1-2 TETE DE RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE .....	7
1-2-1 Détecteur et bobine r.f. ....	9
1-2-2 Le piège et le solénoïde générateur du champ $B_0$ .....	11
1-3 ENCEINTE A 1 K .....	13
1-3-1 Vanne de remplissage .....	15
1-3-2 Passage des conducteurs .....	15
1-4 LIGNES DE POMPAGE .....	17
1-5 MESURE DE LA PRESSION .....	19
1-6 ENCEINTE A 4.2 K .....	19
1-6-1 Le SQUID .....	19
1-6-2 Les écrans supraconducteurs .....	20
1-6-3 Raccordement de la ligne radiofréquence	20

1-6-4	Indicateur de niveau d'hélium .....	22
1-7	MONTAGE D'ENSEMBLE .....	22
1-8	DETAILS DIVERS .....	25
1-9	APPAREILLAGE EXTERNE .....	25
CHAPITRE -2-	FONCTIONNEMENT DU CRYOSTAT .....	28
2-1	MISE EN ROUTE DE L'APPAREIL .....	28
2-1-1	Prérefroidissement à 77 K .....	28
2-1-2	Transfert de l'hélium liquide .....	30
2-1-3	Piègeage du champ $B_0$ .....	31
2-2	MESURE .....	33
2-2-1	Recherche du signal et mesure à 4.2 K ..	33
2-2-2	Mesures à températures inférieures à 4.2K	34
CHAPITRE -3-	THEORIE .....	35
3-1	MOUVEMENT D'UN SPIN $\frac{1}{2}$ ISOLE .....	35
3-2	MODELE D'UN SYSTEME DE N SPINS PAR UNITE DE VOLUME .....	36
3-2-1	Aimantation en fonction du temps .....	37
3-2-2	Temps nécessaire pour atteindre l'équi- libre .....	43
3-3	AMELIORATION DU MODELE .....	45
3-4	ETUDE PHENOMENOLOGIQUE DES COURBES EXPERIMENTALES .....	52

CHAPITRE -4- RESULTATS EXPERIMENTAUX ET ANALYSE .....	54
4-1 PROTONS DANS LE "DELRIN" .....	54
4-1-1 Courbes de résonance .....	54
4-1-2 Courbes de relaxation .....	62
4-1-3 Analyse des courbes .....	62
4-2 LITHIUM 7 DANS LE NIOBATE DE LITHIUM .....	68
4-2-1 Réponse à champ $B_0$ faible .....	70
4-2-2 Réponse à champ $B_0$ élevé .....	70
4-2-3 Analyse des courbes .....	76
4-2-4 Signal du niobium .....	79
CHAPITRE -5- DISCUSSION DES RESULTATS .....	80
5-1 NOUVELLE AMELIORATION DU MODELE .....	80
5-2 INTERACTION SPIN-SPIN .....	84
5-2-1 Création d'un champ local .....	84
5-2-2 Transition mutuelle .....	84
5-2-3 Influence des transitions mutuelles ..	85
5-3 MODELE DU SYSTEME DE NOYAUX DE ${}^7\text{Li}$ .....	88
CONCLUSION .....	93
REFERENCES .....	96
APPENDICE .....	97

## LISTE DES FIGURES

Numéro	Titre	page
1	SCHEMA DE PRINCIPE .....	2
2	TETE DE RESONANCE, MONTAGE D'ENSEMBLE .....	8
3	MONTAGE CLASSIQUE .....	9
4	TETE DE RESONANCE, DETAIL .....	10
5	SOLENOIDE ET PIEGE A CHAMP .....	12
6	CONTACT CUIVRE-NIOBIUM .....	13
7	CRYOSTAT A 1.4 K .....	14
8	VANNE DE REMPLISSAGE .....	16
9	ETANCHEITE DU TRANSFORMATEUR DE FLUX ET DE LA LIGNE RADIOFREQUENCE .....	17
10	CANALISATIONS DE POMPAGE .....	18
11	RACCORDEMENT DE LA LIGNE RADIOFREQUENCE .....	21
12	MONTAGE DE L'ENSEMBLE .....	23
13	ECRAN DU DETECTEUR .....	26
14	SORTIE ETANCHE DES DIVERS CONDUCTEURS ELECTRIQUES	26
15	ECHANGEUR DE CHALEUR .....	29
16	ALLURE DE LA FONCTION $u(t)$ .....	44
17	FONCTION $s(x,2)$ .....	49
18	FONCTION $s(x,10)$ .....	50
	COURBES DE RESONANCE PROTONS DANS LE "DELRIN"	
19	$B_0 = 4.2 \text{ mT}$ , $\Omega = 29 \text{ krds}^{-2}$ , $T = 4.2 \text{ K}$ .....	55
20	$B_0 = 4.2 \text{ mT}$ , $\Omega = 9.7 \text{ krds}^{-2}$ , $T = 4.2 \text{ K}$ .....	56

21	$B_0 = 47 \text{ mT}, \Omega = 126 \text{ krds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	57
22	$B_0 = 47 \text{ mT}, \Omega = 15.3 \text{ krds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	58
23	$B_0 = 47 \text{ mT}, \Omega = 3.63 \text{ krds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	59
24	$B_0 = 11 \text{ mT}, \Omega = 2.35 \text{ krds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	60
25	$B_0 = 10.6 \text{ mT}, \Omega = 25 \text{ krds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	61
26	COURBE DE RELAXATION, $B_0 = 11 \text{ mT}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	63
27	COURBE DE RELAXATION, $B_0 = 50 \text{ mT}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	64
28	$f(\omega)$ TRANSFORMEE DE fig 21 .....	65
29	$f(\omega)$ TRANSFORMEE DE fig 22 .....	66
30	$f(\omega)$ TRANSFORMEE DE fig 25 .....	67
	COURBES DE RESONANCE LITHIUM DANS $\text{LiNbO}_3$ .	
31	$B_0 = 29 \text{ mT}, \Omega = 630 \text{ rds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	71
32	$B_0 = 29 \text{ mT}, \Omega = 126 \text{ rds}^{-2}, T = 1.4 \text{ K}$ .....	72
33	$B_0 = 64 \text{ mT}, \Omega = 73 \text{ rds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	73
34	$B_0 = 64 \text{ mT}, \Omega = -78 \text{ rds}^{-2}, T = 4.2 \text{ K}$ .....	74
35	$B_0 = 87 \text{ mT}, \Omega = 117 \text{ rds}^{-2}, T = 1.5 \text{ K}$ .....	75
36	$f(\omega)$ TRANSFORMEE DES fig. 33 et 34 .....	77
37	$f(\omega)$ TRANSFORMEE DE LA fig. 35 .....	78
38	VARIATION DES POPULATIONS .....	90
39	VARIATION DE L'AIMANTATION .....	90

REMERCIEMENTS

L'achèvement de cette thèse me donne l'occasion d'exprimer mes remerciements,

à mon directeur de thèse et chef du département de physique, le Docteur Gilles Lamarche, pour son aide efficace et ses encouragements qui m'ont permis de mener à bien cette tâche,

aux professeurs du département pour leurs cours intéressants, leur prévenance et leurs conseils éclairés,

au personnel de l'atelier pour sa compétence et son efficacité sans lesquels la construction du cryostat n'aurait pas été possible,

a Louis Emery pour son aide à l'ordinateur

aux Docteurs André Guilbaud et Alain Roth pour leurs discussions intéressantes ainsi qu'à G. Goodchild et Michael O'Connell pour m'avoir fait profiter de leur expérience,

à mon épouse Hélène pour son constant support et son dévouement pour la dactylographie de l'original,

et à tous ceux qui m'ont aidé sous quelque forme que ce soit.

## INTRODUCTION

Après les résultats encourageants obtenus par G. Goodchild (1) dans ce même laboratoire du Docteur Lamarche, il a été décidé de développer l'utilisation du SQUID (Superconducting Quantum Interference Device)(2) pour l'étude de la résonance magnétique nucléaire dans les solides à basse température. Les expériences précédentes ont été réalisées à 4.2 K dans des champs magnétiques assez faibles, de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-2}$  T. Il a alors semblé intéressant de tenter de procéder à température plus basse, environ 1.2 K, et à champ plus élevé, environ 0.10 T, ce qui a pour effet de découpler l'aimantation et ainsi d'améliorer d'un ordre de grandeur le rapport signal sur bruit. Un nouveau cryostat muni d'une tête de résonance magnétique nucléaire améliorée a donc été conçu et réalisé ainsi que le décrit le chapitre 1 de ce travail. Un second chapitre décrira le fonctionnement et les performances de l'appareil. Le troisième sera consacré à une analyse théorique de la résonance magnétique nucléaire (RMN) dans le cas de notre montage. Le chapitre suivant présentera les résultats obtenus avec deux échantillons différents:

- les protons dans le "delrin"
- le lithium 7 dans le niobate de lithium.

Un essai d'analyse de la forme des signaux y sera également présenté et le chapitre 5 sera consacré à une discussion des résultats.

PRINCIPE DE LA MESURE

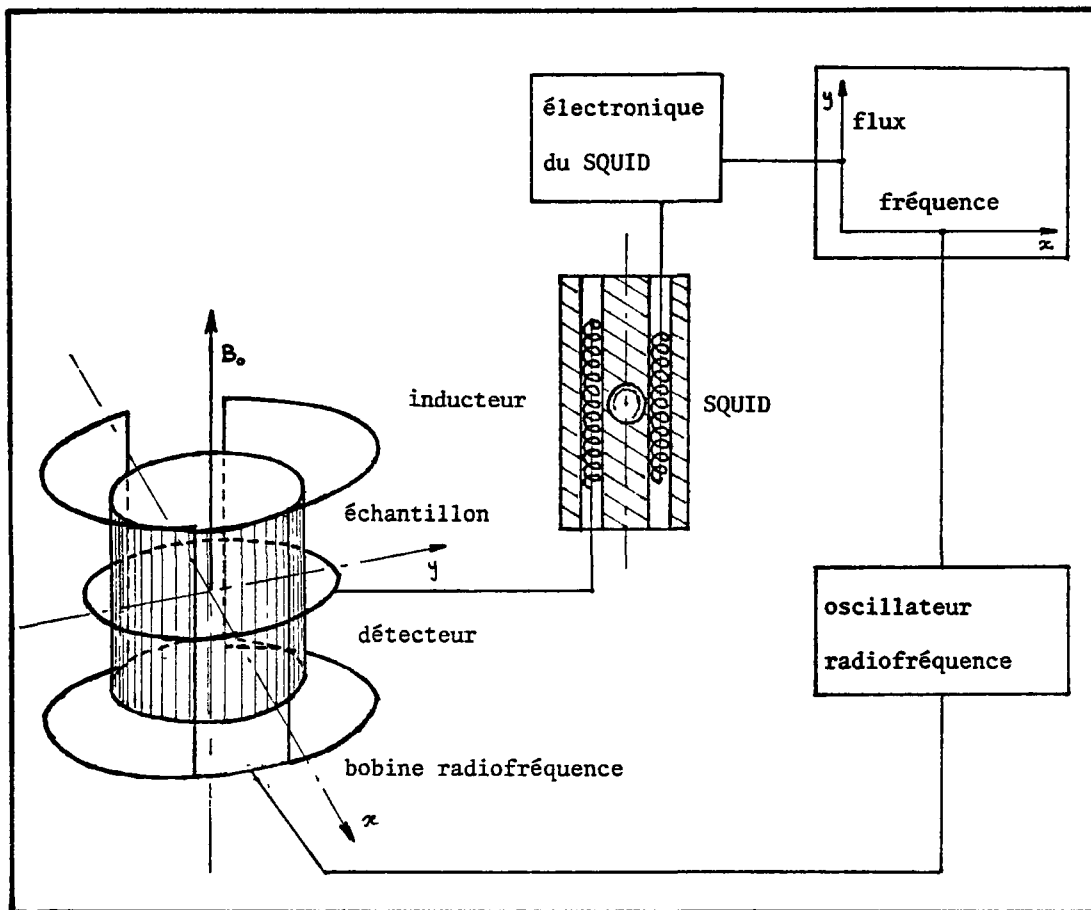


figure -1- SCHEMA DE PRINCIPE

L'appareil est schématisé par la figure -1-. L'échantillon est placé dans un champ magnétique externe  $B_0$  suivant l'axe  $Oz$ . La projection  $I_z$  du moment cinétique intrinsèque

$$I = \sqrt{s(s+1)}\hbar$$

des noyaux, ou spin nucléaire, est quantifiée et ne peut prendre que les valeurs:

$$I_z = m\hbar \quad (1)$$

où  $m \in \{-s, -(s-1), \dots, s-1, s\}$

A ce moment cinétique est associé un moment magnétique  $\mu$  donné par:

$$\mu = \gamma I$$

dont la projection sur Oz s'écrit:

$$\mu_z = \gamma I_z = \gamma m\hbar$$

où  $\gamma$ , déterminé expérimentalement, est le rapport gyromagnétique du noyau considéré. En présence du champ magnétique  $B_0$  chaque noyau acquière une énergie:

$$E = \mu_z B_0$$

A chaque valeur de  $m$  correspond donc un niveau d'énergie:

$$E_m = m\gamma\hbar B_0$$

Dans un échantillon renfermant  $N$  noyaux par unité de volume, les noyaux se répartissent dans les différents niveaux accessibles suivant la statistique de Maxwell-Boltzman. La population de chaque niveau est donc proportionnelle à:

$$e^{-\frac{E_m}{kT}} = e^{-\frac{m\gamma\hbar B_o}{kT}}$$

Il en résulte une différence de population entre les différents niveaux qui produit une aimantation d'équilibre  $M_o$  que l'on montre égale à (3)

$$M_o = \frac{N\gamma^2\hbar^2 B_o s(s+1)}{3kT}$$

relation qui exprime la loi de Curie

$$M_o = \chi_o B_o$$

avec

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

susceptibilité nucléaire du matériau.

L'échantillon est maintenant soumis à un champ radiofréquence produit par les bobines représentées sur le schéma de la figure -1-. Pour certaines valeurs de la fréquence  $\nu$  telles que l'énergie des photons correspond à la différence d'énergie entre niveaux voisins

$$h\nu = \gamma\hbar B_o$$

$$\text{soit } \omega = \gamma B_o$$

$$\text{où } \omega = 2\pi\nu$$

des transitions vont se produire entre les états correspondants provoquant des variations d'aimantation de l'échantillon et de flux dans le détecteur. Ces variations sont extrêmement faibles, leur détection est cependant rendue possible grâce à l'utilisation d'un SQUID qui est en fait un fluxmètre de grande sensibilité. Le couplage entre l'échantillon et le SQUID est assuré par une boucle supraconductrice fermée dite transformateur de flux (1). Le flux total traversant une telle boucle étant invariable, tout changement de flux dans le détecteur produit une variation opposée dans l'inducteur (voir figure -1-) ce qui permet de la transmettre au SQUID. La sensibilité de ce dernier est d'environ  $.01 \phi_0$  soit  $2 \cdot 10^{-17}$  Wb, le rapport de couplage entre l'échantillon et l'inducteur étant d'environ  $.01$  la sensibilité globale de l'appareil se situe alentour de  $10^{-15}$  Wb. Les plus grandes variations enregistrées au cours des expériences ont été de l'ordre de  $10 \phi_0$  au niveau du SQUID soit  $10^3 \phi_0$  ou  $2 \cdot 10^{-12}$  Wb au niveau de l'échantillon. Les signaux produits par le SQUID sont ensuite amplifiés puis enregistrés en ordonnée d'une table traçante dont l'abscisse est asservie à la fréquence de l'oscillateur radio. Un spectre de l'aimantation en fonction de la fréquence est ainsi produit.

## CHAPITRE -1-

### CONCEPTION DU CRYOSTAT

Le présent chapitre a pour objet la description du cryostat. Après avoir souligné les contraintes de construction nous décrivons successivement:

- La tête de résonance magnétique nucléaire.
- L'enceinte à 1 K.
- Les lignes de pompage et de mesure de pression.
- L'enceinte à 4.2 K.
- Le montage de l'ensemble.

#### 1 - 1 CONTRAINTES DE CONSTRUCTION

Partant du schéma de principe de la figure -1- un certain nombre de contraintes sont à respecter.

1- On veut pouvoir faire varier la température de l'échantillon entre 1.2 et 4.2 K alors que le SQUID ne fonctionne correctement qu'à 4.2 K. Ils doivent donc se trouver dans des enceintes séparées thermiquement isolées.

2- La moindre variation de  $B_0$  produirait dans le détecteur une variation de flux de plusieurs ordres de grandeur supérieure au signal. On doit donc avoir recours à un piège à champ constitué par un cylindre creux en niobium supraconducteur à l'intérieur duquel le flux est invariable. Pour assurer l'homogénéité du champ tout en évitant un cylindre de grande dimension celui-ci doit être situé dans la même enceinte que l'échantillon.

3- Toute source extérieure de bruit magnétique doit être écrantée. Ceci est accompli par l'emploi d'écrans supraconducteurs.

4- Le détecteur doit être protégé du champ radiofréquence par un écran de cuivre métallique; le SQUID étant très sensible au bruit radiofréquence et ne pouvant fonctionner lorsqu'il y est soumis

5- Afin d'obtenir des températures assez basses, l'enceinte à 1 K doit être thermiquement isolée par le vide de celle à 4.2 K, elle doit en outre pouvoir être remplie plusieurs fois en cours de fonctionnement de l'appareil ce qui nécessite l'emploi d'une vanne de remplissage permettant d'établir ou de couper la communication entre les deux enceintes

6- Le remplacement de l'échantillon doit pouvoir s'effectuer sans autre démontage que l'ouverture de l'enceinte à 1 K.

#### 1-2 ˆ TETE DE RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE

La tête de résonance magnétique, partie active de l'appareil, a été conçue de manière à minimiser les pertes en optimisant le couplage entre l'échantillon et le détecteur. Les pièces de liaisons sont réalisées en bakelite, leurs dimensions ont été réduites au minimum pour laisser à l'hélium liquide le plus grand volume possible.

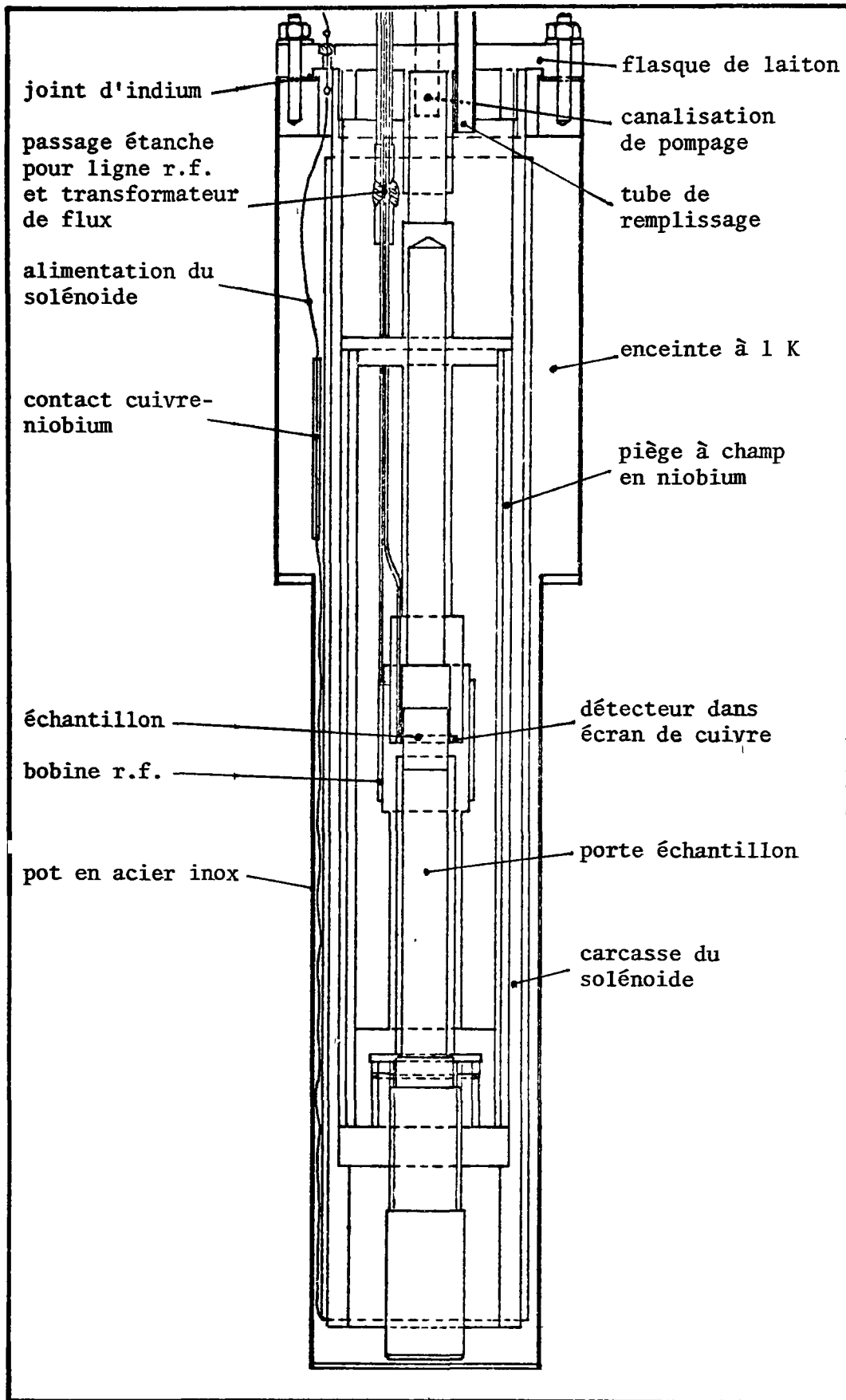


figure -2- TETE DE RESONANCE, MONTAGE D'ENSEMBLE

Afin d'éviter tout mouvement relatif des différentes pièces l'ensemble est ajusté avec précision et solidement fixé à la masse du cryostat.

1-2-1 Détecteur et bobine r.f.

Dans les montages précédents (1) on retrouvait par ordre de diamètre croissant:

- l'échantillon
- le bobinage r.f.
- l'écran de cuivre
- le détecteur

comme l'illustre le schéma ci-dessous

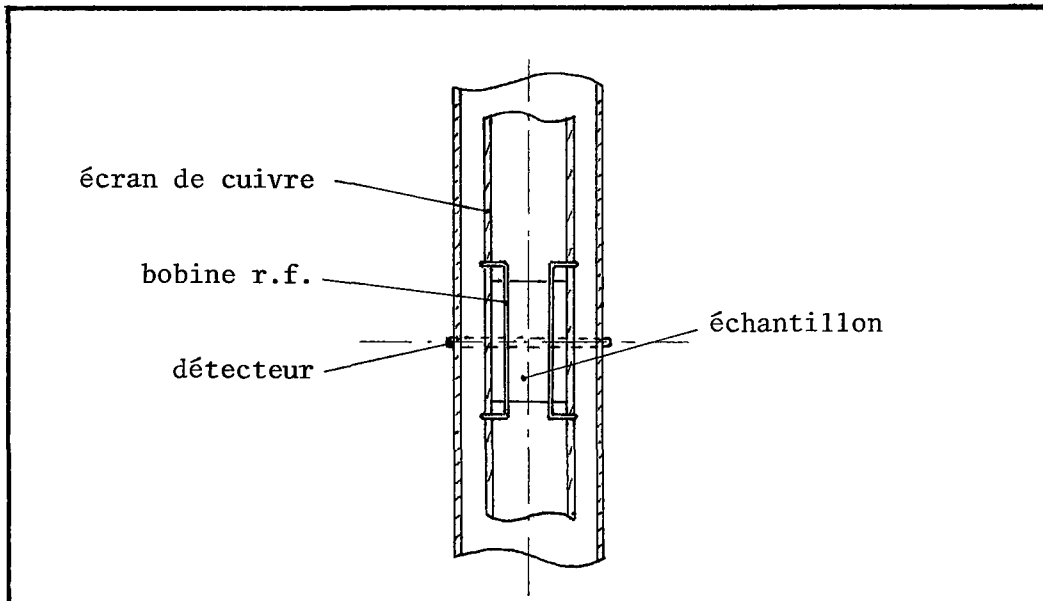


figure -3- MONTAGE CLASSIQUE

La bobine r.f. se trouvant contre l'échantillon, le champ r.f. était très inhomogène.

Un certain espace devait exister entre le bobinage r.f. et l'écran pour permettre aux lignes de champ de se refermer. Il en résultait que l'échantillon n'occupait qu'une faible partie de la surface du détecteur, ce qui avait pour effet de diminuer considérablement le signal.

La figure -4- montre l'arrangement adopté dans le présent montage.

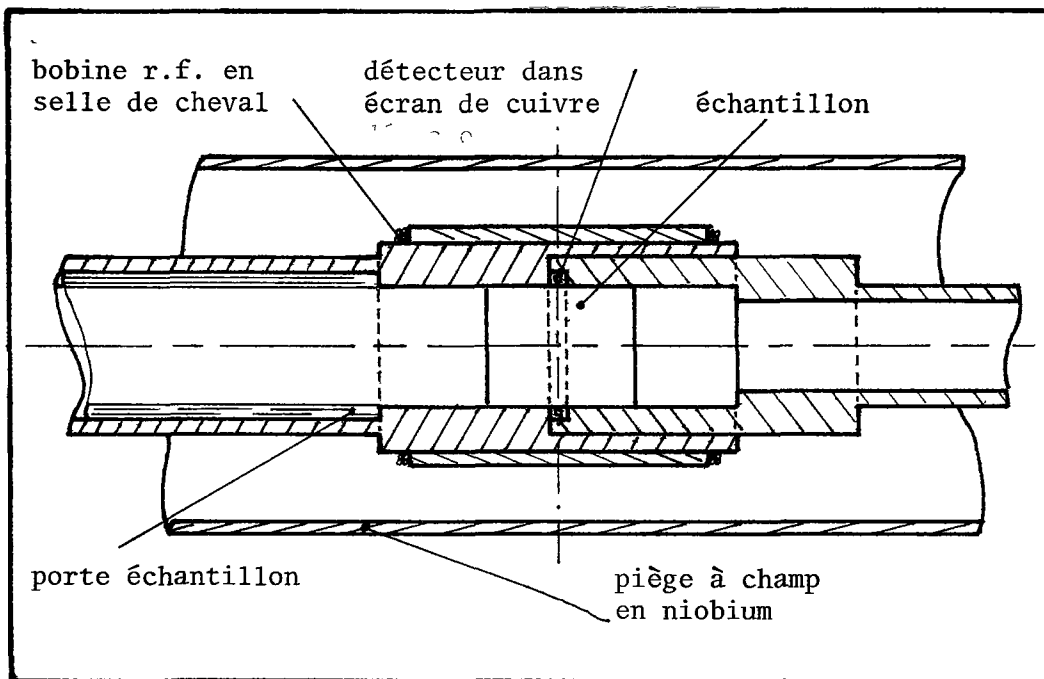


figure -4- TETE DE RESONANCE, DETAIL

Par ordre de diamètre croissant on reconnaît:

- l'échantillon
- le détecteur et l'écran
- la bobine r.f.

Le détecteur a été bobiné dans une gaine de cuivre de dimensions aussi réduites que possible afin de ne pas trop perturber le champ r.f. produit par les bobines. On remarque que

- l'échantillon empli toute la surface du détecteur
- le champ r.f. est plus homogène, l'échantillon occupant une plus faible proportion du volume de la bobine r.f.

#### 1-2-2 Le piège et le solénoïde générateur du champ $B_0$ .

Le processus de piègeage du champ est le suivant:

- établissement du courant dans le solénoïde supraconducteur
- chauffage du piège pour le rendre normal
- pénétration du flux
- coupure du courant dans le solénoïde.

Afin d'assurer l'homogénéité du champ  $B_0$  dans le volume de l'échantillon le piège constitué par un tube de niobium à parois épaisses a été fait 10 fois plus long que l'échantillon.

Pour limiter la dissipation d'hélium lors du piègeage du champ le chauffage du piège est effectué selon une génératrice, ce qui permet la pénétration du flux sans avoir à rendre normale toute la masse de niobium - la résistance de chauffage est constituée d'un fil de nichrome double replié sur lui-même pour éviter la création et le piègeage d'un champ parasite. L'isolation thermique entre le bain d'hélium et la résistance est assurée par plusieurs couches de ruban adhésif collées sur le tube de niobium.

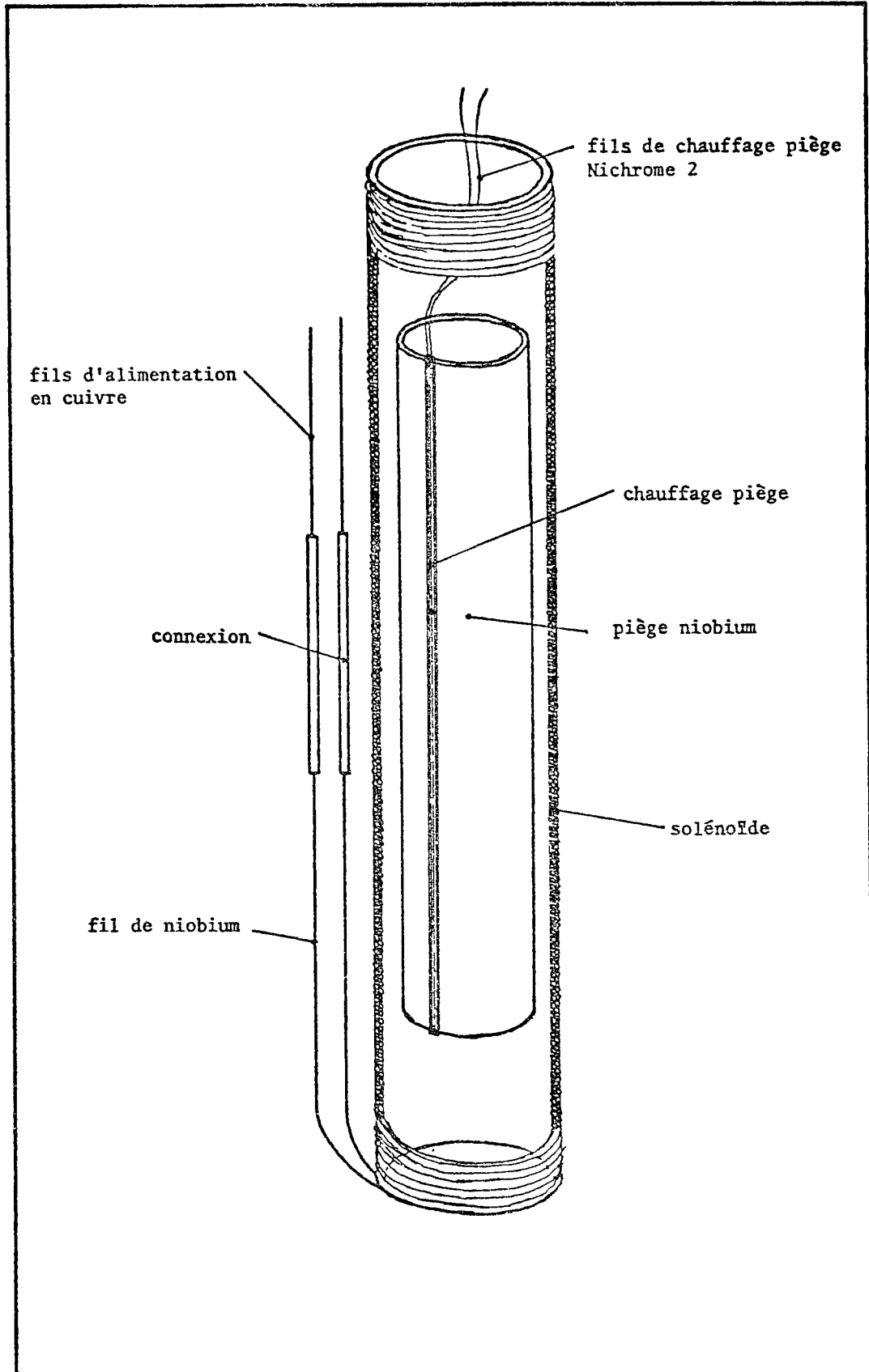


figure -5- SOLENOÏDE ET PIÈGE A CHAMP

Le solénoïde est alimenté par une alimentation HP Harison 6260 A basse tension courant élevé 100 A sous 10 V. Le solénoïde est constitué de 2620 tours de fil de niobium. Le champ magnétique produit est  $1.71 \cdot 10^{-2} \text{ TA}^{-1}$ . Le schéma ci-dessous indique comment le contact entre les fils d'alimentation en cuivre et le fil supraconducteur de l'électroaimant a été réalisé.

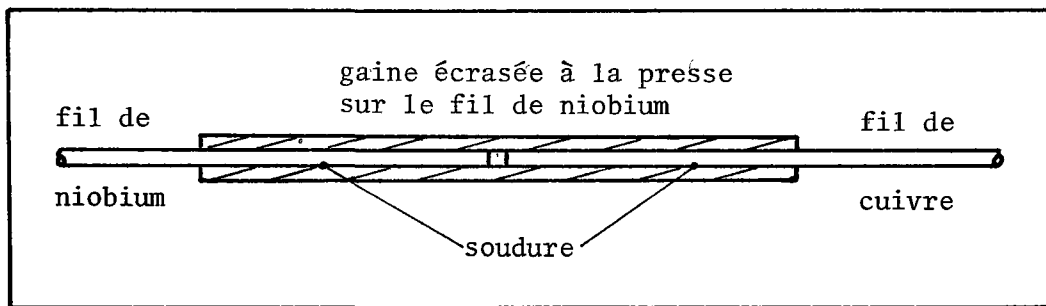


figure -6- CONTACT CUIVRE-NIOBIUM

### 1-3 ENCEINTE A 1 K

Afin de garantir une isolation aussi bonne que possible la tête de résonance magnétique est placée dans une enceinte à deux cloisons séparées par le vide. Ces deux cloisons sont constituées par deux pots en acier inox fermés par deux flasques en laiton fixées sur les canalisations de pompage, l'étanchéité est assurée par des joints d'indium. Au cours du fonctionnement de l'appareil cette enceinte est complètement immergée dans l'hélium à 4.2 K. Ainsi que l'illustre le schéma ci-dessous, les deux enceintes sont reliées par une vanne permettant le remplissage.

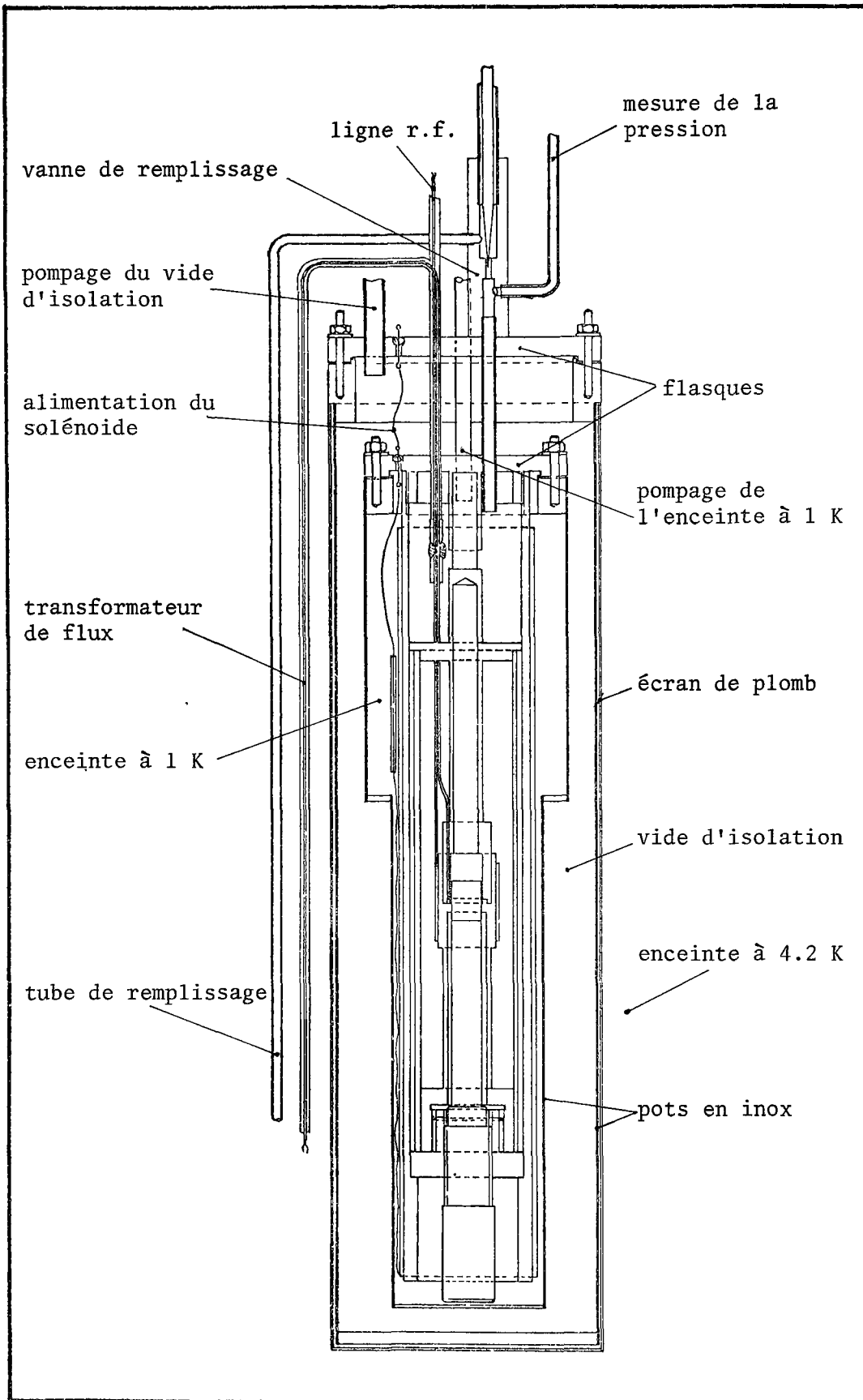


figure -7- CRYOSTAT A 1.4 K

### 1-3-1 Vanne de remplissage

Ainsi que l'illustre la figure 8 la vanne est constituée d'une tige, manoeuvrée de l'extérieur du cryostat, terminée par une pointe conique d'angle au sommet d'environ  $10^{\circ}$ . Cette pointe prend appui sur un siège circulaire rôdé. Une forte pression est exercée sur les parties en contact grâce à un filetage à pas fin. L'arrivée d'hélium liquide se fait par un tube qui descend jusqu'au fond du réservoir à 4.2 K de sorte que le remplissage peut s'effectuer tant que le niveau d'hélium est au dessus du SQUID (voir paragraphe 1-6-1)

### 1-3-2 Passage des conducteurs

Quatre types de conducteurs doivent traverser les parois de l'enceinte à 1 K.

- l'entrée radiofréquence
- le transformateur de flux
- l'alimentation du solénoïde
- divers conducteurs pour la mesure de résistances et le chauffage du piège

Afin d'éviter les interférences, la ligne radiofréquence ainsi que le transformateur de flux sont enfilés dans des tubes capillaires recouverts de soudure étain plomb supraconductrice aux températures de fonctionnement. La figure 9 montre comment l'étanchéité des capillaires a été réalisée.

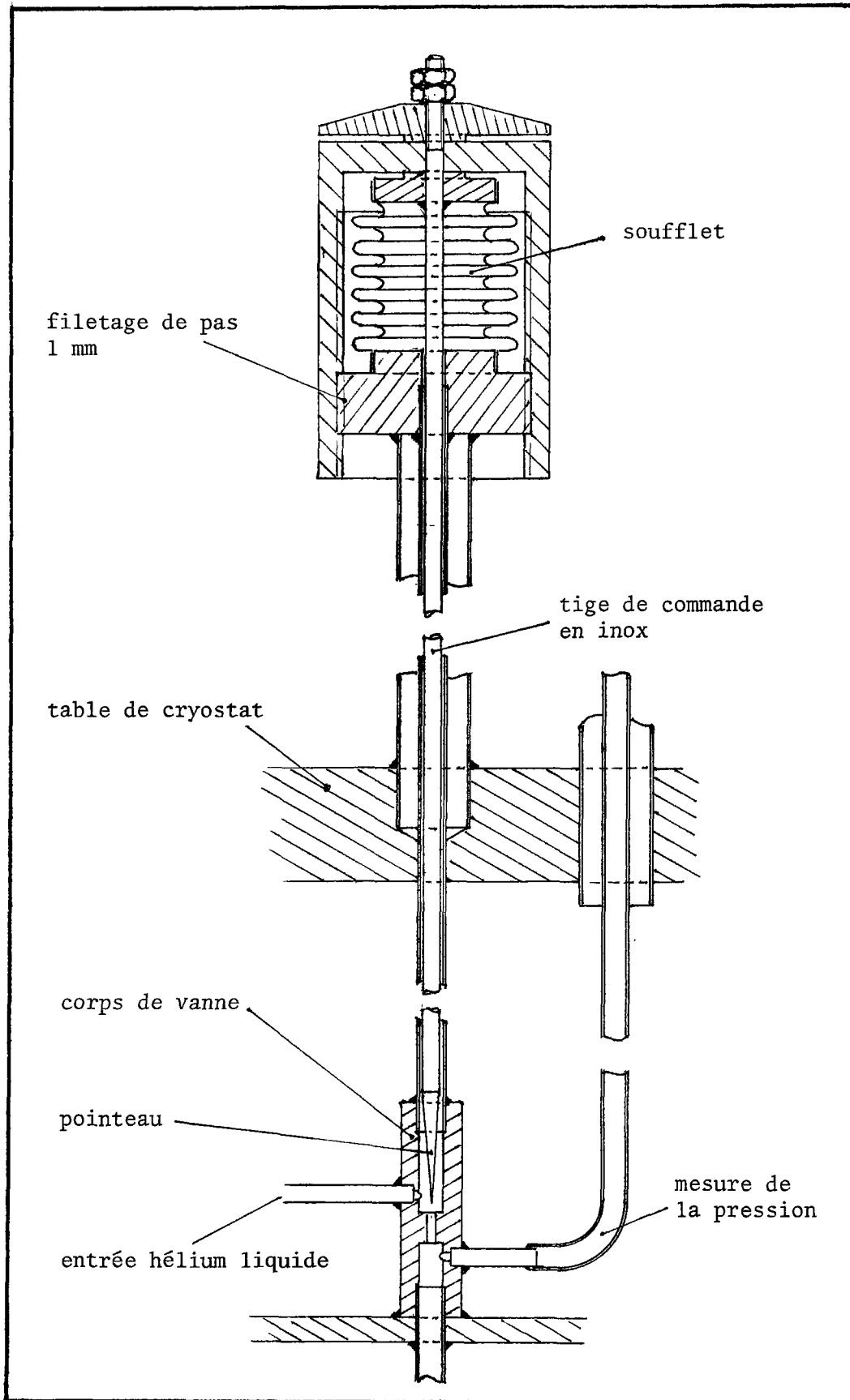


figure -8- VANNE DE REMPLISSAGE

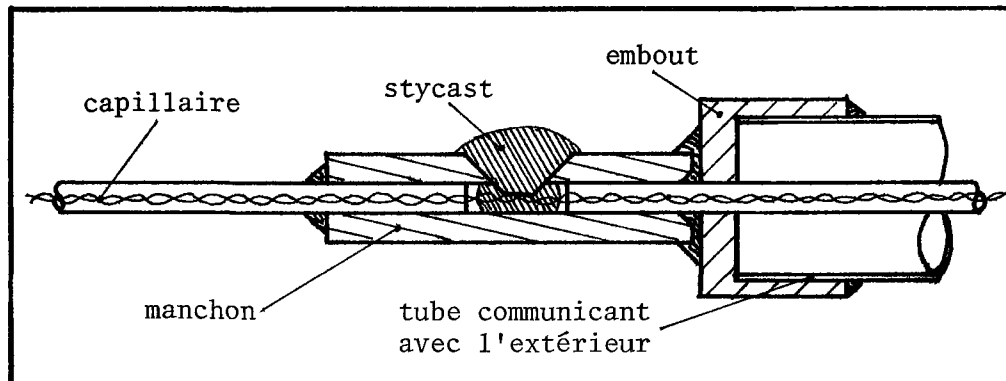


figure -9- ETANCHEITE TRANSFORMATEUR DE FLUX ET LIGNE R.F.

Le passage des fils d'alimentation du solénoïde est réalisé à l'aide de passages isolants de même que pour les fils des résistances de mesure de la température et du chauffage du piège.

Afin de réduire les entrées de chaleur dues à l'écoulement du film d'hélium superfluide la section des orifices a été réduite au minimum.

#### 1-4 LIGNES DE POMPAGE

Une ligne de pompage à gros débit aboutit à l'enceinte à 1 K pour pomper sur l'hélium. Elle est munie de deux pièges à radiations, l'un opérant à environ 77 K, l'autre immergé dans l'hélium de l'enceinte à 4.2 K.

Une autre ligne sert à évacuer l'espace entre les deux parois de l'enceinte à 1 K. Elle est également munie d'un piège à radiation à 4.2 K.

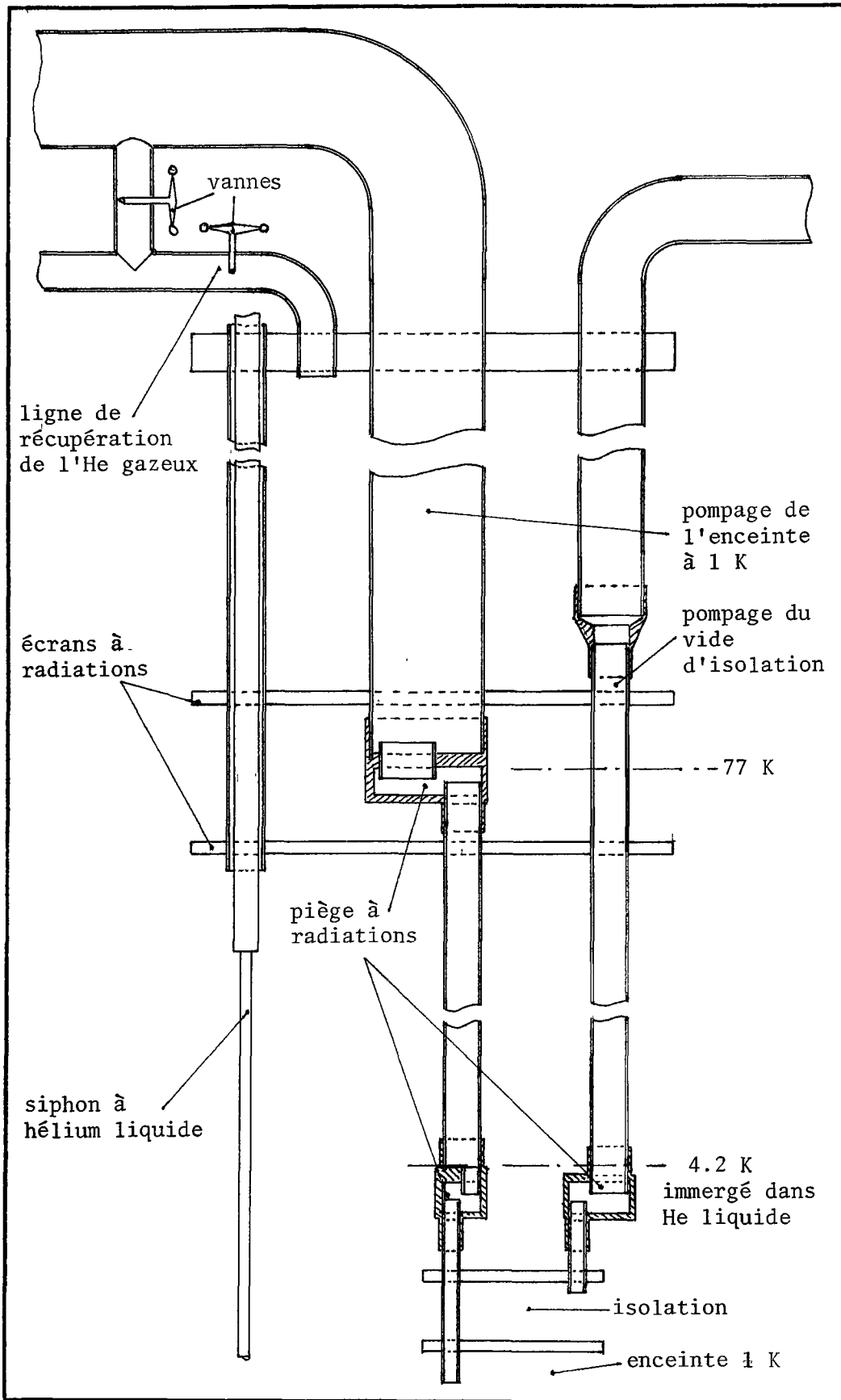


figure -10- CANALISATIONS DE POMPAGE

Les lignes de pompage servent en même temps de support mécanique à l'enceinte à 1 K. Elles sont constituées de tuyaux de diamètre croissant pour compenser la diminution du débit en fonction de la température.

#### 1-5 MESURE DE LA PRESSION

Pour déterminer la température avec précision un tube, branché à l'extérieur sur un manomètre à mercure et à huile, est en communication directe avec l'enceinte à 1 K par un orifice en aval de la vanne sur le tube de remplissage. Ainsi les inhomogénéités de la pression dans la canalisation de pompage n'affectent pas la mesure de la température, (voir figure 8 )

#### 1-6 ENCEINTE A 4.2 K

L'enceinte à 4.2 K contient le SQUID et joue le rôle de réservoir d'hélium pour l'enceinte à 1 K. Elle est constituée par la cloison interne du dewar contenant l'ensemble de l'appareil.

##### 1-6-1 Le SQUID

Le SQUID est du type symétrique à deux trous, Il est placé au fond du réservoir plutôt qu'au dessus de l'enceinte à 4.2 K de manière à ce qu'il puisse fonctionner jusqu'à ce que toute la réserve d'hélium soit épuisée. Ceci a entraîné un allongement considérable du transformateur de flux qui sort de l'enceinte à 1 K par le dessus du calorimètre. Pour s'assurer

que ce transformateur de flux demeure supraconducteur même s'il n'est pas plongé dans l'hélium liquide, le capillaire qui le contient a été enfilé dans un tube de cuivre depuis la sortie de la boîte à 1 K jusqu'au SQUID.

#### 1-6-2 Les écrans supraconducteurs

Etant donné l'extrême sensibilité de l'appareil tout bruit magnétique extérieur doit être écranté et le SQUID doit être isolé magnétiquement du champ produit par le piège. Cet écrantage a été réalisé grâce à deux cylindres de plomb fermés hermétiquement à un bout par un disque de plomb soudé à l'alliage supraconducteur plomb-étain. Le premier de ces écrans enveloppe l'enceinte à 1 K, le second épouse le fond et les parois du réservoir à 4.2 K.

Afin de limiter les entrées de chaleur dans le réservoir à 4 K deux écrans de radiation en cuivre poli ont été placés à une hauteur telle que leur température soit environ 80 K, en supposant un gradient uniforme entre la surface libre de l'hélium et le couvercle du cryostat.

#### 1-6-3 Raccordement de la ligne radiofréquence

La ligne radiofréquence est constituée de deux parties: un câble coaxial ordinaire de l'extérieur du cryostat jusque dans l'enceinte à 4.2 K; suivi d'un conducteur bifilaire dans

un capillaire jusqu'aux bobines r.f. Le schéma ci-dessous montre comment la boîte de raccordement entre les deux sections a été réalisée afin d'éviter la "fuite" d'ondes radio pouvant créer des interférences.

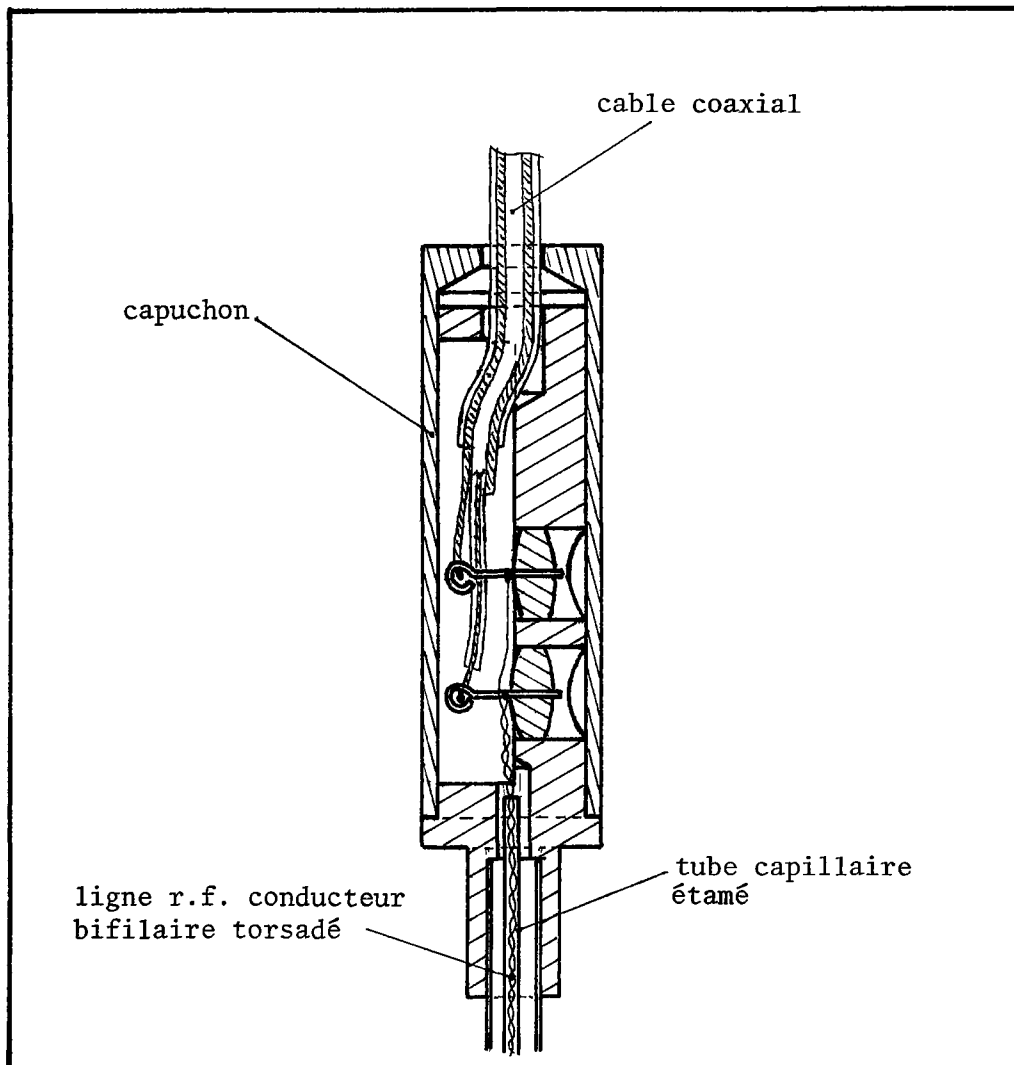


figure -11- RACCORDEMENT DE LA LIGNE RADIOFREQUENCE

#### 1-6-4 Indicateur de niveau d'hélium

Cet appareil est basé sur une technique utilisée au centre de recherche sur les très basses températures (CRTBT) à Grenoble, transmise par Hébral et déjà décrite par M.D. O'Connell (4).

Il est constitué d'un fil de niomax qui a la propriété d'être supraconducteur lorsqu'il est immergé dans l'hélium liquide et normal au dessus de sa surface libre s'il est parcouru par un courant adéquat (120 mA dans notre cas). Un simple fil est donc installé verticalement dans l'enceinte à 4.2 K et la mesure de la résistance de ce fil fourni directement la hauteur d'hélium dans le réservoir.

#### 1-7 MONTAGE D'ENSEMBLE

La figure 12 montre le montage de l'ensemble du système. La tête de résonance magnétique est montée sous un disque de laiton et rigidement positionnée par la carcasse du solénoïde vissé sur le même disque. Celui-ci sert de couvercle pour le premier pot d'acier inox qui vient s'y fixer; l'étanchéité est réalisée à l'aide d'un joint torique en indium. Le deuxième pot se fixe sur un deuxième disque de diamètre supérieur au premier et un deuxième joint d'indium assure l'étanchéité. L'espace entre les deux pots est évacué pour assurer l'isolation. Les deux disques sont maintenus en place par les différentes tubulures qui les traversent, les lignes de pompage

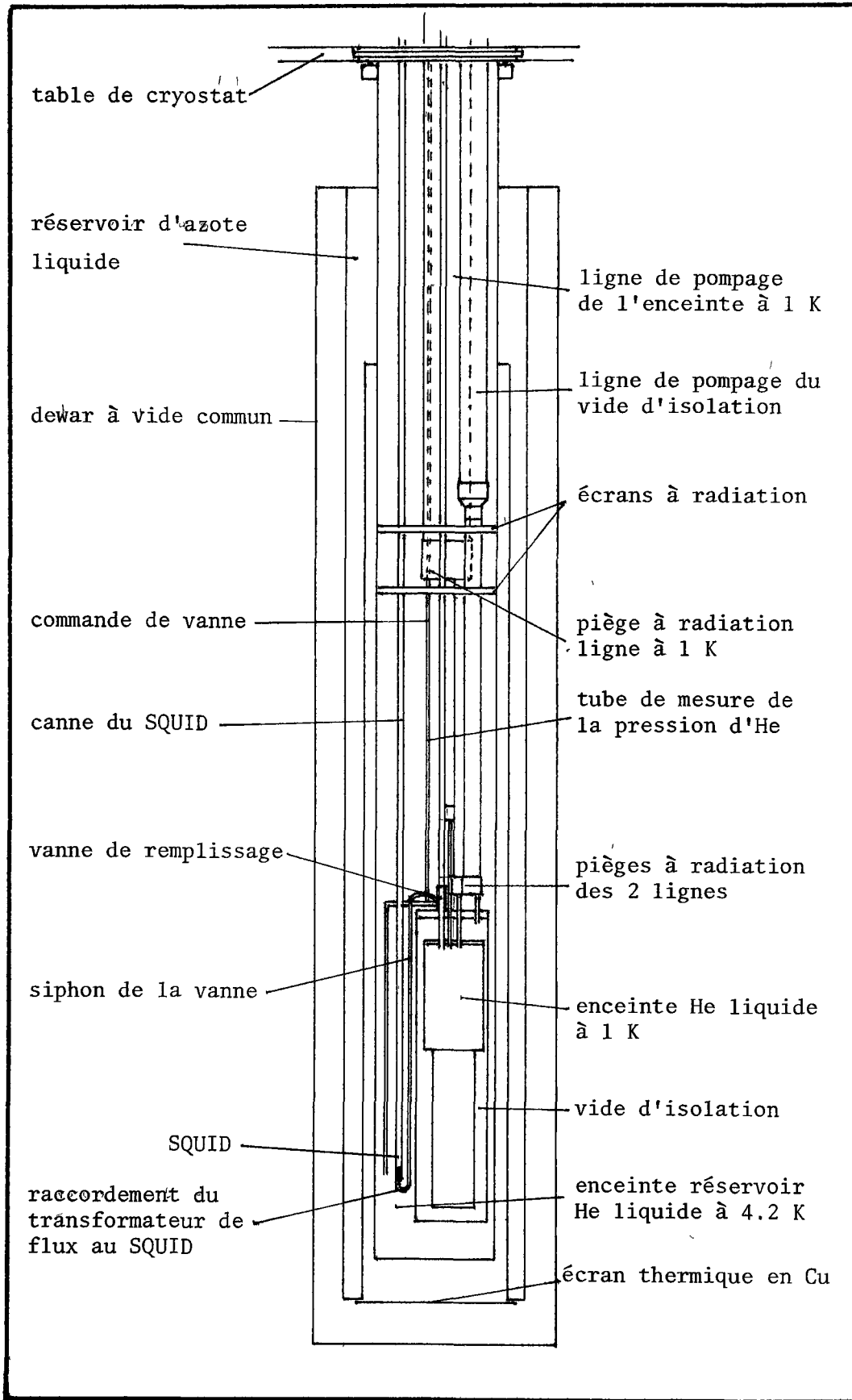


figure -12- MONTAGE DE L'ENSEMBLE

assurent la liaison mécanique entre l'enceinte à 1 K ainsi constituée et la tête du cryostat. D'autres tubes servant au passage du SQUID, des fils, de la ligne de pompage et du siphon à hélium liquide jusqu'aux écrans de radiation renforcent l'ensemble. L'indicateur de niveau est fixé sur une tige de plastique dont les extrémités sont liées à l'écran de radiation et au tube de remplissage de l'enceinte à 1 K. Le disque de laiton formant la tête du cryostat se glisse horizontalement dans une rainure pratiquée dans la table du cryostat afin de permettre un démontage facile de l'ensemble. Les interventions délicates sur la tête de résonance magnétique peuvent ainsi s'effectuer dans les meilleures conditions sur un établi. Le dewar vient se fixer sur la tête du cryostat à l'aide d'un élévateur. Son étanchéité est assurée par un joint torique en caoutchouc. Tous les passages à travers la tête du cryostat sont étanches pour éviter les pertes d'hélium gazeux. Une conduite munie d'une vanne relie la ligne de pompage de l'enceinte à 1 K avec la ligne de récupération d'hélium gazeux ce qui permet de forcer la circulation de l'hélium gazeux à basse température à travers l'enceinte à 1 K lors du refroidissement initial, la ligne de récupération directe étant alors fermée (voir figure 10)

#### 1-8 DETAILS DIVERS

Les figures 13 et 14 illustrent divers détails de construction non mentionnés dans les précédents paragraphes de ce chapitre.

#### 1-9 APPAREILLAGE EXTERNE

L'appareillage externe est composé des instruments suivants:

- l'électronique du SQUID (système 330 de la S.H.E. Corp.) traite et amplifie le signal reçu du SQUID et délivre une tension proportionnelle au flux dans le détecteur. Elle permet en outre de visualiser sur oscilloscope le signal SQUID afin de contrôler son fonctionnement.
- un oscilloscope Tektronix type 504.
- un générateur de fonctions HP 3310 A.  
Utilisé pour produire une onde triangulaire très basse fréquence ( $10^{-1}$  à  $10^{-4}$  Hz) pour commander le balayage de l'oscillateur radiofréquence.
- oscillateur radiofréquence Wavetek 164 produit le signal radiofréquence nécessaire à l'expérience. Il est utilisé dans la gamme 50 kHz 10 MHz. La fréquence peut être variée proportionnellement à la tension produite par le générateur de fonction. La puissance

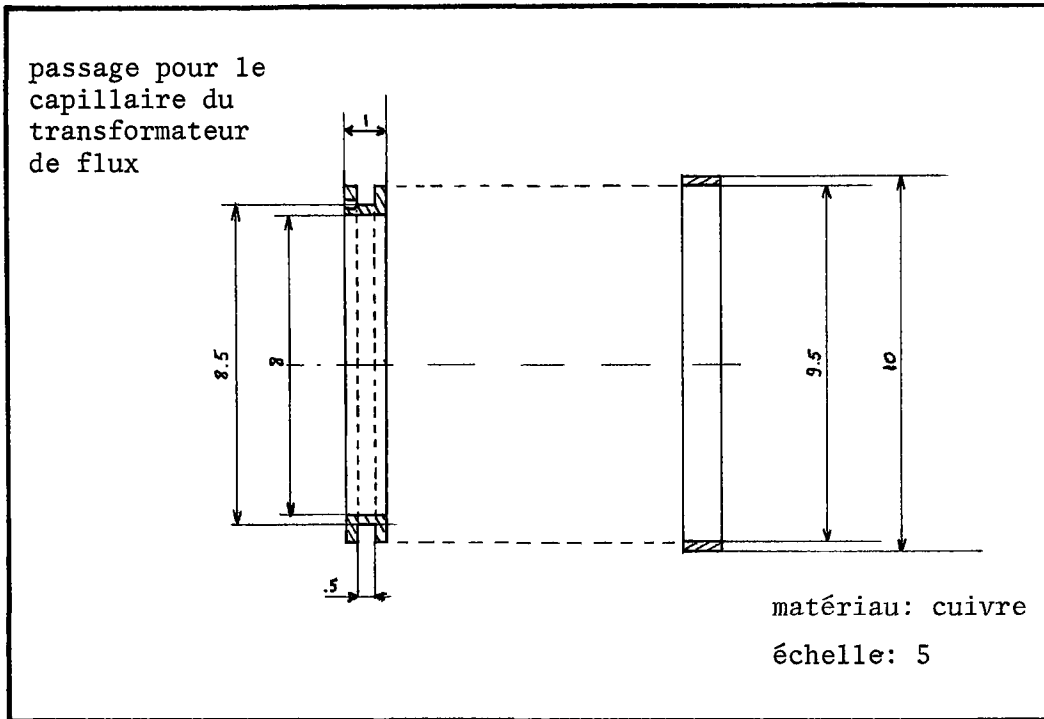


figure -13- ECRAN DU DETECTEUR

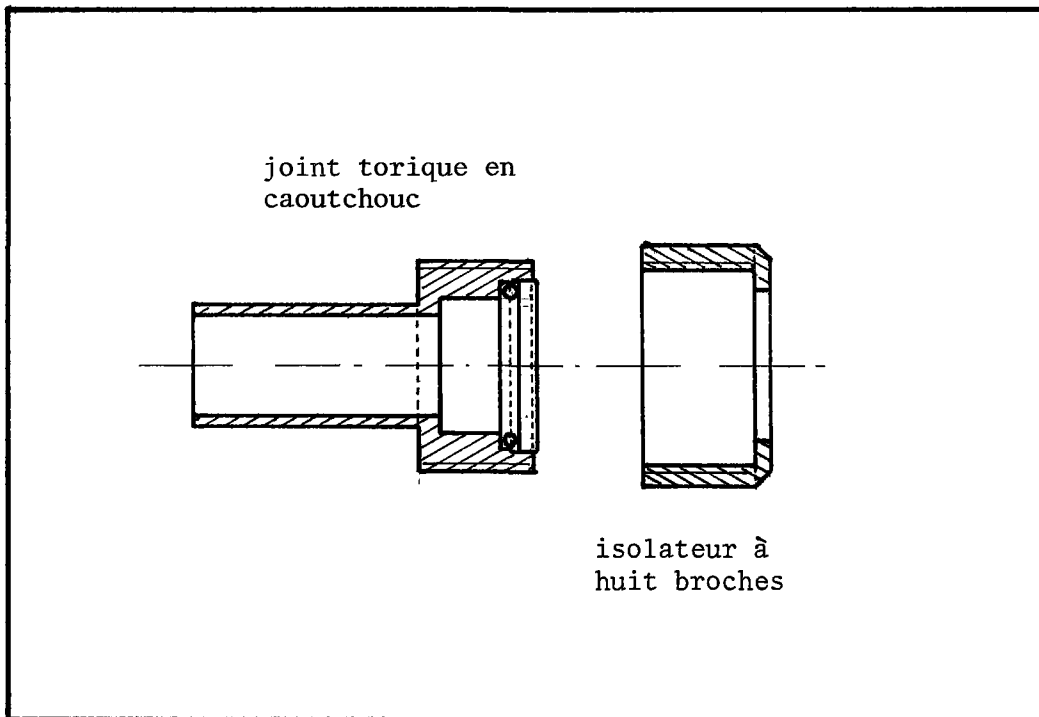


figure -14- SORTIE ETANCHE DES DIVERS CONDUCTEURS ELECTRIQUES

de sortie est réglable sur une très grande gamme (0 à - 60 dB).

table traçante HP 7004 B. Abscisse asservie à la fréquence, ordonnée commandée par la sortie de l'électronique 330.

- fréquencesmètre General radio 1192.
- chronomètre,  $10^4$  s par dixièmes de seconde.
- deux multimètres digitaux DYNA 3800 et 3800 B pour la mesure des résistances indicatrices de température.
- une alimentation continue Heathkit IP 27 pour la résistance de chauffage du piège.
- une alimentation HP Harrison 6260 A, 10 V, 100 A pour alimenter le solénoïde.
- un indicateur de niveau, ohmètre spécialement construit pour mesurer la résistance du fil de niomax, indique le niveau en 1/10 du maximum.
- un manomètre à mercure et à huile pour la mesure précise de la pression de vapeur d'hélium dans l'enceinte à 1 K.

la ligne de pompage aboutit à une pompe Kinney à grand débit.

## CHAPITRE -2-

### FONCTIONNEMENT DU CRYOSTAT

Ce chapitre a pour objet de décrire la mise en route et le fonctionnement du cryostat, de souligner les difficultés rencontrées et les solutions retenues et enfin de rapporter les performances obtenues.

#### 2-1 MISE EN ROUTE DE L'APPAREIL

##### 2-1-1 Prérefroidissement à 77 K

Le prérefroidissement de l'appareil s'effectue avec de l'azote liquide selon la méthode classique. Un système de remplissage automatique maintient un niveau constant dans le réservoir d'azote du dewar externe. Le prérefroidissement nécessite plusieurs heures et s'effectue pendant la nuit.

Une méthode plus rapide, consistant à faire circuler l'azote liquide dans un échangeur de chaleur en contact thermique avec l'enceinte à 4.2 K, a cependant été utilisée avec succès pour porter l'appareil à 77 K en 2 ou 3 heures.

La figure 15 montre l'échangeur. Celui-ci est introduit dans l'enceinte à 4.2 K par l'orifice destiné au passage du siphon à hélium liquide.

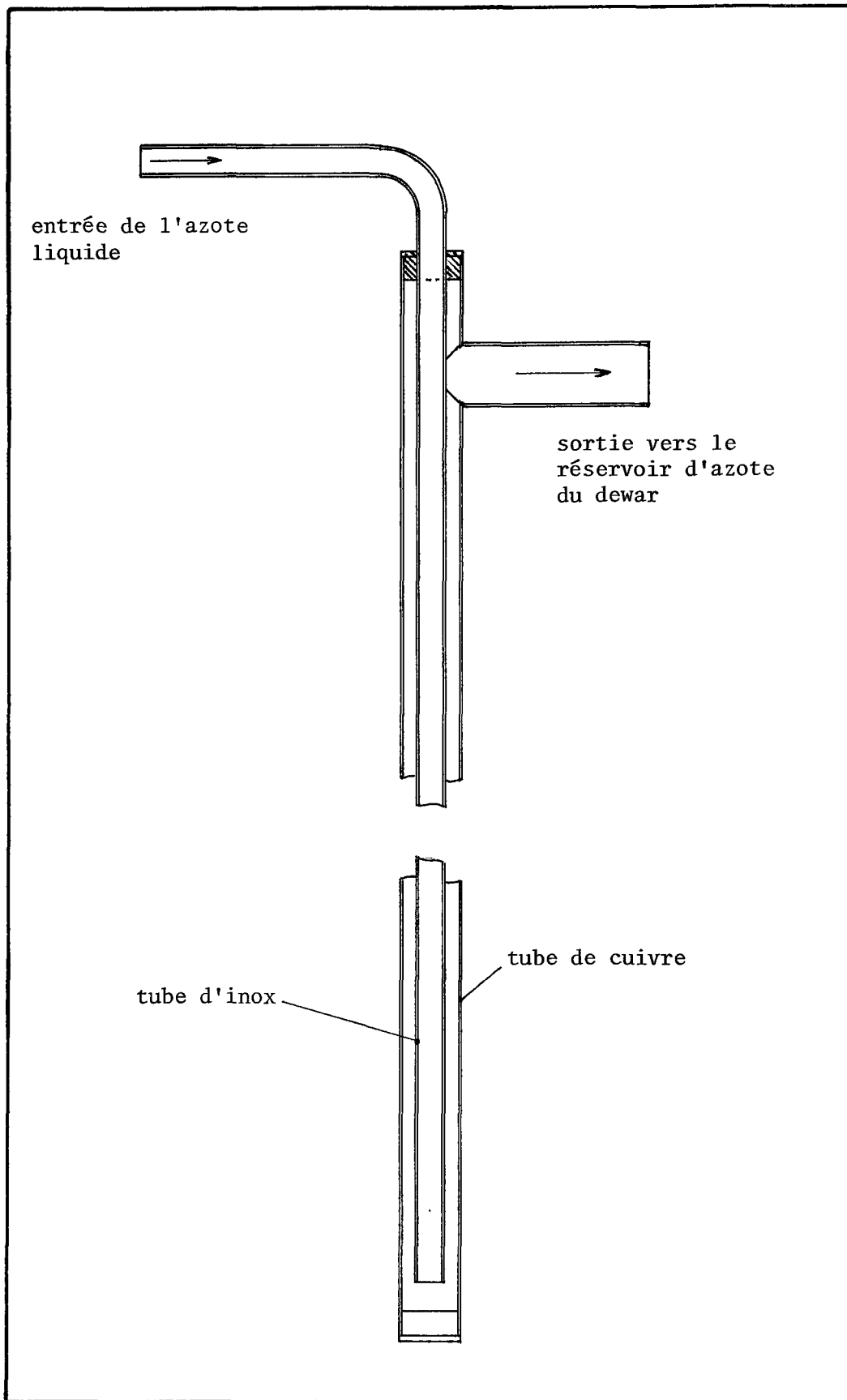


figure -15- ECHANGEUR DE CHALEUR

### 2-1-2 Transfert de l'hélium liquide

Pendant les premiers essais il a été tenté d'utiliser l'hélium gazeux pour refroidir l'enceinte à 1 K en forçant le gaz produit par la vaporisation de l'hélium dans l'enceinte à 4.2 K à circuler à travers la vanne de remplissage et la ligne de pompage. Cependant à cause de la faible section des orifices l'impédance est trop élevée pour que le gaz circule librement et le transfert est beaucoup trop lent. Par la suite cette méthode a été abandonnée et le refroidissement s'effectue grâce au transfert d'hélium liquide dans l'enceinte à 1 K, le passage entre la ligne de pompage et la récupération étant ouvert. Le temps nécessaire pour remplir l'enceinte à 4.2 K est alors d'environ une demi heure. Il faut ensuite une heure pour remplir l'enceinte à 1 K. Pendant tout le fonctionnement l'indicateur de niveau fournit une indication précise du niveau d'hélium dans le réservoir à 4.2 K.

Deux résistances d'indication de la température sont placées dans l'enceinte à 1 K, l'une en haut l'autre en bas, elles permettent d'en suivre le refroidissement. Au moment où le transformateur de flux devient supraconducteur la fréquence de l'onde triangulaire visible sur l'oscilloscope est divisée brusquement par deux, ce qui permet de contrôler le fonctionnement du détecteur.

### 2-1-3 Piègeage du champ $B_0$

L'enceinte à 1 K étant remplie on procède au piègeage du champ (sa température est encore 4.2 K).

- Le courant est établi dans le solénoïde. On remarque alors un défilement des triangles sur l'écran de l'oscilloscope indiquant qu'un changement de flux a eu lieu dans le détecteur.
- Pendant environ 7 à 10 secondes on fait circuler un courant de 200 mA dans la résistance de chauffage du piège. La valeur de la durée et du courant ont été établies empiriquement à la suite de plusieurs essais. Pendant la pénétration du champ les triangles disparaissent sur l'écran de l'oscilloscope probablement à cause de la grande vitesse de variation du flux dans le détecteur. Ce phénomène permet de contrôler la pénétration du flux dans le cylindre de niobium.
- 1 à 2 secondes après la coupure du courant de chauffage les triangles réapparaissent et après avoir laissé au piège le temps de se refroidir à nouveau à 4.2 K le courant dans le solénoïde peut être coupé.

Il a été calculé que le processus de piègeage du champ vaporise environ  $50 \text{ cm}^3$  d'hélium liquide. Le gaz produit doit pouvoir être évacué rapidement, il est donc nécessaire que la vanne de remplissage et la liaison entre la canalisation de

pompage et la ligne de récupération soient ouvertes. La valeur du champ piégé est toujours légèrement inférieure à celle du champ produit par le solénoïde pour une raison mal comprise. Le champ piégé est environ  $1.50 \cdot 10^{-2}$  T/A au lieu de  $1.71 \cdot 10^{-2}$  T/A.

Plusieurs difficultés ont été rencontrées lors de la mise au point du processus de piégeage. Le seul moyen permettant d'affirmer que le champ est piégé est de détecter un signal de RMN, malheureusement il n'est pas facile de trouver la fréquence de résonance quand on ignore la valeur du champ. Cependant après les quelques tâtonnements qui ont permis de déterminer les caractéristiques mentionnées plus haut dans ce paragraphe le piégeage est devenu une opération de routine.

Par ailleurs, il s'est avéré impossible pendant les premiers essais de faire circuler un courant supérieur à 4.5 A dans le solénoïde celui-ci devenant normal à cette valeur, alors qu'un courant nettement supérieur à 10 A devrait pouvoir circuler. Il est apparu après quelques essais que l'une des causes du problème était que le fil supraconducteur n'était pas complètement immergé dans l'hélium liquide parce que la communication entre l'espace limité par l'extérieur du solénoïde et le pot d'une part et l'orifice de pompage-récupération était mal assuré. Il s'ensuivait que la chaleur produite à la jonction

cuiivre-supraconducteur ne pouvait être évacuée, ce qui avait pour effet de rendre normal le supraconducteur. Après correction de ce défaut le courant maximal pût être porté à 8 A ce qui, bien qu' en deçà des 10 A initialement prévus, permet d'atteindre des champs de 120 mT. Il semble qu'une amélioration supplémentaire dépende de la réfection des contacts cuivre-niobium.

## 2-2 MESURE

### 2-2-1 Recherche du signal et mesure à 4.2 K

L'étape suivante est la recherche du signal. En général, on cherche d'abord celui des protons contenus dans l'échantillon ou dans le porte échantillon, la fréquence est balayée sur une large gamme au voisinage de la résonance escomtée puis une fois le signal trouvé, on réduit la gamme si on s'intéresse au proton ou on calcule la fréquence correspondant au noyau étudié. Différentes mesures peuvent alors être entreprises en faisant varier la vitesse  $\Omega$  de passage sur le signal et l'intensité du champ radiofréquence. On peut également mesurer le temps nécessaire pour que le système retrouve son équilibre après avoir subit la perturbation radiofréquence

### 2-2-2 Mesures à température inférieure à 4.2 K

Pour atteindre des températures inférieures à 4.2 K, on ferme la vanne de remplissage de l'enceinte ainsi que la vanne de communication entre les circuits de pompage sur l'hélium et de récupération sur l'enceinte réservoir à

4.2 K, on pompe ensuite sur le bain d'hélium. La température du liquide baisse et, après quelques minutes, se stabilise. on peut varier cette température en modifiant le débit de pompage à l'aide d'une vanne placée dans le circuit.

De nombreuses fuites sur les diverses enceintes ont empêché pendant plusieurs expériences le fonctionnement de l'appareil en dessous de 4,2 K. Le problème le plus délicat a été une fuite d'hélium entre le réservoir et le vide d'isolation empêchant le pompage cryogénique sensé se produire au moment du remplissage de ce même réservoir. L'utilisation d'un détecteur de fuite à spectromètre de masse ~~acc~~ependant a permis de dépister et de colmater ces fuites. Une température de 1.3 K a ensuite pu être obtenue ce qui est proche de l'objectif visé.

CHAPITRE -3-

THEORIE

Après un bref rappel de la théorie de base que l'on trouvera amplement développée dans des ouvrages généraux de mécanique quantique (5) ou plus spécialisés de résonance magnétique nucléaire (3) nous nous proposons dans ce chapitre de présenter un modèle, d'abord simple puis amélioré par la suite, dans le but d'analyser les phénomènes observés.

3-1 MOUVEMENT D'UN SPIN  $\frac{1}{2}$  ISOLE

Rappelons brièvement le résultat de la théorie du mouvement d'un spin  $\frac{1}{2}$  isolé dans un champ magnétique ayant une composante verticale  $B_0$  constante et une composante horizontale polarisée circulairement

$$\begin{aligned} B_{1x} &= B_1 \cos \omega t \\ B_{1y} &= B_1 \sin \omega t \end{aligned} \tag{3-1}$$

Chaque spin est alors un système à deux états,  $|-\rangle$  et  $|+\rangle$  et en supposant qu'à  $t = 0$  il se trouve dans l'état  $|+\rangle$ , la probabilité de transition vers l'état  $|-\rangle$  à l'instant  $t$  est donnée par

$$P(t) = \frac{\omega_1^2}{a^2} \sin \frac{at}{2} \quad (3-2)$$

où  $a = \sqrt{(\omega - \omega_0)^2 + \omega_1^2}$

avec  $\omega$  pulsation radiofréquence

$$\omega_0 = -\gamma B_0$$

$$\omega_1 = -\gamma B_1$$

$\gamma$  rapport gyromagnétique du noyau.

### 3-2 MODELE D'UN SYSTEME DE N SPINS PAR UNITE DE VOLUME

Nous allons maintenant décrire un modèle simple pour tenter d'interpréter le comportement d'un système de N spins en présence du champ  $\vec{B}(t) = \vec{B}_0 + \vec{B}_1(t)$

-a- Nous supposerons qu'en plus d'être soumis à la probabilité de transition induite donnée par l'expression (3-2) le système est en contact thermique avec le thermostat constitué par le réseau cristallin. Nous ne tenterons pas de définir les mécanismes de couplage entre le système de spins et le réseau mais nous postulons que si le système s'écarte de l'équilibre thermique sous l'influence du champ il y est ramené suivant une loi exponentielle dont le temps de relaxation est  $\tau_1$ .

-b- Pour simplifier encore l'étude du phénomène nous supposons que les spins sont tous placés dans un environnement rigoureusement identique ce qui a pour conséquence l'identité de leur pulsation de résonance  $\omega_0$ .

### 3-2-1 Aimantation en fonction du temps

Nous allons maintenant calculer la composante  $M_z(t)$  suivant  $B_0$  de l'aimantation de l'échantillon. Soit  $N_+(t)$  et  $N_-(t)$  les populations respectives des états  $| + \rangle$  et  $| - \rangle$  et

$$n_+(t) = \frac{N_+(t)}{N}$$

$$n_-(t) = \frac{N_-(t)}{N}$$

les populations relatives correspondantes.

On a donc 
$$N_+(t) + N_-(t) = N$$

soit encore 
$$n_+(t) + n_-(t) = 1$$

et 
$$\begin{aligned} M_z(t) &= \gamma \hbar \{N_+(t) - N_-(t)\} \\ &= N \gamma \hbar \{n_+(t) - n_-(t)\} \end{aligned} \tag{3-3}$$

En utilisant la relation (3-2) et les caractéristiques du modèle nous pouvons déterminer les populations des deux états en fonction du temps.

La caractéristique -a- nous permet d'écrire

$$N_+(t) - N_{+0}(t) = (N_+(0) - N_{+0})e^{-\frac{t}{\tau_1}} \quad (3-4)$$

ou  $N_{+0}$  représente le nombre de spins dans l'état  $| + \rangle$  lorsque le système est en équilibre en l'absence de perturbation. Ce qui en termes de populations donne

$$n_+(t) - n_{+0} = (n_+(0) - n_{+0})e^{-\frac{t}{\tau_1}} \quad (3-5)$$

soit en dérivant

$$\frac{dn_+(t)}{dt} = -\frac{n_+(t) - n_{+0}}{\tau_1}$$

Sous l'action simultanée des deux processus la population relative  $n_+(t)$  de l'état  $| + \rangle$  est constituée de deux parties:

- l'ensemble des spins qui n'ont subi aucune interaction avec le thermostat entre l'instant  $t = 0$  d'établissement de la perturbation et l'instant  $t$ . Ils se répartissent entre les deux états avec des populations relatives  $n_{-0}$  et  $n_{+0}$  si on admet que le système était à l'équilibre à  $t = 0$ . Ces spins oscillent entre  $| - \rangle$  et  $| + \rangle$  avec  $P(t)$ , leur contribution à  $n_+(t)$  s'écrit donc

$$e^{-\frac{t}{\tau_1}} \{n_{-0} P(t) + n_{+0} (1 - P(t))\} \quad (3-6)$$

- l'ensemble des spins qui ont subit leur dernière interaction avec le thermostat entre  $t'$  et  $t' - dt'$ , leur nombre relatif

est  $\frac{dt'}{\tau_1}$ , à l'instant  $t$  il est multiplié par  $e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}}$ .

Ces spins se répartissent suivant les populations d'équilibre au moment de l'interaction. En intégrant sur  $t'$  on obtient la contribution de tous les spins ayant subit une interaction avec le thermostat, soit:

$$\int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} (n_{-0}P(t-t') + n_{+0}\{1-P(t-t')\})$$

il vient donc finalement:

$$n_+(t) = e^{-\frac{t}{\tau_1}} (n_{-0}P(t) + n_{+0}\{1-P(t)\}) + \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} (n_{-0}P(t-t') + n_{+0}\{1-P(t-t')\}) \quad (3-7)$$

On peut écrire une relation similaire pour la population de l'état  $| - \rangle$ :

$$n_-(t) = e^{-\frac{t}{\tau_1}} (n_{+0}P(t) + n_{-0}\{1-P(t)\}) + \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} (n_{+0}P(t-t') + n_{-0}\{1-P(t-t')\}) \quad (3-8)$$

D'après (3-3), l'aimantation est proportionnelle à la différence entre ces deux quantités. Il vient:

$$M_z(t) = M_0 \left( e^{-\frac{t}{\tau_1}} \{1-2P(t)\} + \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} - 2 \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} P(t-t') \right) \quad (3-9)$$

en remarquant que l'aimantation à l'équilibre  $M_0$  est proportionnelle à  $n_{+0} - n_{-0}$ . En remplaçant  $P(t)$  par sa valeur (3-2),

$$M_z(t) = M_0 \left( e^{-\frac{t}{\tau_1}} \left\{ 1 - 2 \frac{\omega_1^2}{a^2} \sin^2 \frac{at}{2} \right\} + \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} - \frac{\omega_1^2}{a^2} \int_0^t 2 \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} \sin^2 \frac{a(t-t')}{2} \right)$$

Soit  $I_1$  la première et  $I_2$  la seconde intégrale. En utilisant

$$2 \sin^2 x = 1 - \cos 2x$$

$$I_2 = \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} \int_0^t \frac{dt'}{\tau_1} e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} \cos a(t-t')$$

où l'on reconnaît  $I_1$  et où l'on appellera  $I_3$  la seconde intégrale en faisant le changement de variable

$$\frac{t-t'}{\tau_1} = x$$

on obtient:

$$I_1 = \int_0^{\frac{t}{\tau_1}} e^{-x} dx$$

$$I_1 = 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}}$$

Le changement de variable  $t-t' = z$  donne

$$I_3 = \int_0^t \frac{dz'}{\tau_1} e^{-\frac{z}{\tau_1}} \cos az$$

en utilisant:

$$\int e^{ax} \cos bx \, dx = \frac{e^{ax}}{a^2 + b^2} (a \cos bx + b \sin bx)$$

il vient

$$I_3 = \left| \frac{1}{\tau_1} \frac{e^{-\frac{z}{\tau_1}}}{\frac{1}{\tau_1} + a^2} \left( -\frac{1}{\tau_1} \cos az + a \sin az \right) \right|_0^t$$

soit en réarrangeant

$$I_3 = \frac{1}{1 + \tau_1^2 a^2} \left( \tau_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}} a \sin at - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos at + 1 \right)$$

on obtient alors pour  $M_z(t)$ :

$$\begin{aligned} M_z(t) &= M_0 \left( e^{-\frac{t}{\tau_1}} \left( 1 - \frac{2\omega_1^2}{a^2} \sin^2 \frac{at}{2} \right) + \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right) \left( 1 - \frac{\omega_1^2}{a^2} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{\omega_1^2}{a^2} \frac{1}{1 + \tau_1^2 a^2} \left( \tau_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}} a \sin at - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos at + 1 \right) \right) \\ &= M_0 \left( 1 - \frac{\omega_1^2}{a^2} e^{-\frac{t}{\tau_1}} \left( 2 \sin^2 \frac{at}{2} - 1 - \frac{\tau_1 a \sin at}{1 + a^2 \tau_1^2} - \frac{\cos at}{1 + a^2 \tau_1^2} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{\omega_1^2}{a^2} \left( \frac{1}{1 + a^2 \tau_1^2} - 1 \right) \right) \end{aligned}$$

la première parenthèse de cette expression peut se réécrire:

$$E_1 = \cos at \left( \frac{1}{1+a^2\tau_1^2} - 1 \right) - \frac{\tau_1 a \sin at}{1+a^2\tau_1^2}$$

$$= - \frac{a^2\tau_1^2}{1+a^2\tau_1^2} \left( \cos at + \frac{11}{a\tau_1} \sin at \right)$$

on obtient donc

$$M_z(t) = M_0 \left( 1 - \frac{\omega_1^2\tau_1^2}{1+a^2\tau_1^2} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} (\cos at + \frac{1}{a\tau_1} \sin at) \right) \right)$$

et finalement

$$M_z(t) = M_0 \left( 1 - \frac{\omega_1^2\tau_1^2}{1+a^2\tau_1^2} + \frac{\omega_1^2}{a^2} e^{-\frac{t}{\tau_1}} \sin(at + \arctg a\tau_1) \right) \quad (3-10)$$

Noter que pour  $\tau_1 = \infty$  (pas de relaxation)

$$M_z(t) = M_0 \left( 1 - \frac{\omega_1^2}{a^2} (1 - \cos at) \right)$$

$$M_z(t) = M_0 \left( 1 - 2 \frac{\omega_1^2}{a^2} \sin \frac{at}{2} \right)$$

ce qui correspond bien à l'expression obtenue pour un ensemble de spins libres et sans interaction.

Dans les conditions expérimentales pour notre appareil,  $B_1$  est toujours compris entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$  T, la valeur minimale de

$\omega_1 = \gamma B_1$  est donc pour le lithium 7 ( $\gamma = 1.04 \cdot 10^8 \text{ rds}^{-1}\text{T}^{-1}$ )

$\omega_1^2 \text{ rds}^{-2}$  Par ailleurs  $\tau_1$  varie entre 5 et  $2 \cdot 10^3$

$\omega_1 = 10^2 \text{ rds}^{-1}$ . Par ailleurs  $\tau_1$  varie entre 1 et  $10^3 \text{ s}$ , la valeur minimale de  $a$  étant  $\omega_1$ , le minimum de  $a\tau_1$  se situe aux environs de  $10^2$ . Il s'ensuit que  $\text{arctg } a\tau_1 = \pi/2$  avec une excellente approximation et que le 1 est négligeable devant  $a^2\tau_1^2$  dans le dénominateur du deuxième terme de la parenthèse de (3-10).

Cette expression peut donc s'écrire:

$$M_z(t) = M_0 \left( 1 - \frac{\omega_1^2}{a^2} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos at \right) \right) \quad (3-11)$$

### 3-2-2 Temps nécessaire pour atteindre l'équilibre

Nous commencerons par étudier l'allure de la fonction

$$u(t) = 1 - \frac{\omega_1^2}{a^2} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos at \right)$$

afin d'acquérir une vision plus précise du phénomène.

Rappelons d'abord que

$$a = \sqrt{(\omega - \omega_0)^2 + \omega_1^2}$$

et posons

$$A = \frac{\omega - \omega_0}{\omega_1}$$

$u(t)$  devient alors:

$$u(t) = 1 + \frac{1}{A^2+1} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos \omega_1 t \sqrt{A^2+1} \right)$$

Le graphe a pour enveloppes

$$1 - \frac{1}{A^2+1} \left( 1 \pm e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right)$$

et il oscille avec une pulsation  $\omega_1 \sqrt{A^2+1}$  entre ces deux enveloppes.

Le graphe de la figure -16- montre l'allure de la courbe

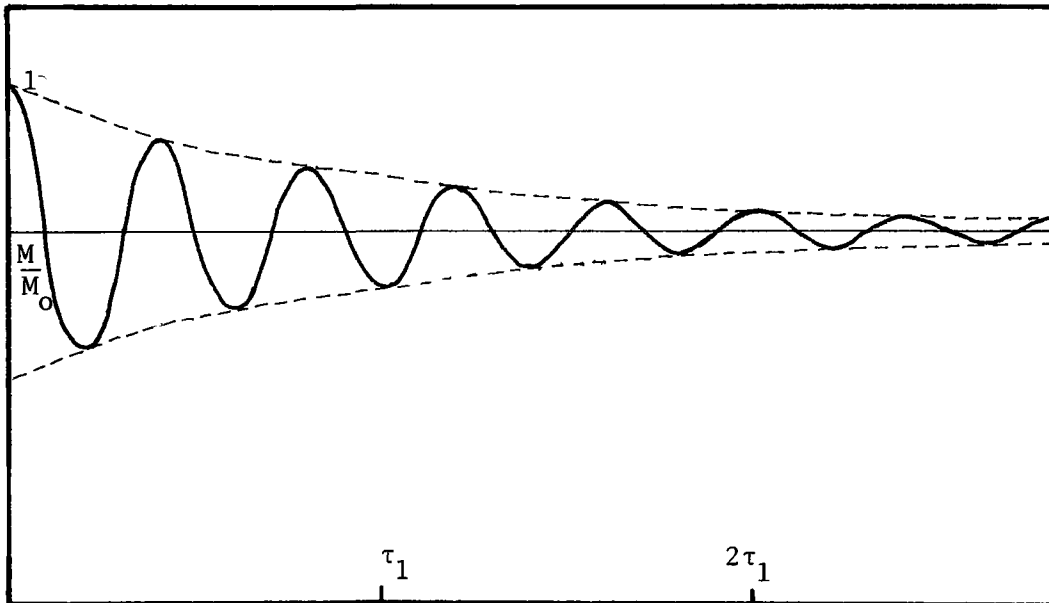


figure -16- ALLURE DE LA FONCTION  $u(t)$

Il est à noter que la fonction oscille un très grand nombre de fois avant de s'amortir. Il semblerait donc à première vue que le système n'atteint l'état d'équilibre sous l'influence simultanée de la perturbation radiofréquence et de la relaxation spin réseau qu'au bout d'un temps de l'ordre de  $\tau_1$ . Bien entendu ce modèle est beaucoup trop simplifié pour décrire correctement la réalité. Nous allons dans le prochain paragraphe l'améliorer pour le rendre plus utilisable.

### 3-3 AMELIORATION DU MODELE

En effet deux faits importants sont à considérer pour poursuivre l'analyse.

- 1- Les spins interagissent relativement fortement dans un solide ce qui cause une dispersion considérable des fréquences de résonance  $\omega_0$  des différents spins. Nous noterons  $f(\omega_0)$  la fonction normalisée représentant la distribution des pulsations de résonances des spins. La réponse du système peut alors être obtenue en intégrant la relation (3-11) sur  $\omega_0$ .
- 2- Il faut aussi considérer que la radiofréquence  $\omega$  n'est pas constante. En fait elle varie linéairement avec le temps, il s'ensuit que l'analyse précédente n'est qu'une approximation pour le cas où cette variation serait très lente ce qui est notre cas. En effet la relation (3-2) n'est valable que pour  $\omega = \text{constante}$

Nous généraliserons donc le modèle dans le sens suggéré dans la remarque 1 ci-dessus en introduisant la fonction  $f(\omega_0)$ . Pour simplifier, écrivons d'abord la relation (3-11) sous la forme:

$$\frac{M_0 - M_z(t)}{M_0} = \frac{\omega_1^2}{a^2} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos at \right) \quad (3-12)$$

que nous allons intégrer sur l'ensemble des spins. L'aimantation relative devient donc:

$$\begin{aligned} \frac{M_0 - M_z(t)}{M_0} &= \omega_1^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0)}{a^2} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \cos at \right) d\omega_0 \\ &= \omega_1^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0)}{a^2} d\omega_0 - \omega_1^2 e^{-\frac{t}{\tau_1}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0)}{a^2} \cos at d\omega_0 \end{aligned} \quad (3-13)$$

en remplaçant  $a$  par sa valeur, la première intégrale que nous appellerons  $I_4$  se réécrit:

$$I_4 = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0) d\omega_0}{(\omega - \omega_0)^2 + \omega_1^2}$$

nous considèrerons le cas où  $f(\omega_0)$  varie très peu dans un intervalle  $[\omega_0 - \omega_1, \omega_0 + \omega_1]$ , en effet le dénominateur croît rapidement si  $|\omega - \omega_0| > \omega_1$  et si la condition ci-dessus est vérifiée,  $f(\omega_0)$  peut être sortie de l'intégrale et remplacée par sa valeur pour  $\omega = \omega_0$ . On obtient alors, en posant  $\omega - \omega_0 = x$

$$I_4 = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{x^2 + \omega_1^2}$$

en utilisant

$$\int \frac{dx}{a + bx^2} = \frac{1}{\sqrt{ab}} \operatorname{arctg} \frac{x\sqrt{ab}}{a} \quad \text{si } ab > 0$$

il vient

$$I_4 = \frac{f(\omega)}{\omega_1} \left| \operatorname{arctg} \frac{x}{\omega_1} \right|_{-\infty}^{\infty}$$

$$I_4 = \frac{\pi}{\omega_1} f(\omega)$$

De la seconde intégrale  $I_5$  de (3-13) et à la même condition que pour  $I_4$  on peut sortir  $f(\omega_0)$ , il vient alors:

$$I_5 = f(\omega) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\cos t\sqrt{(\omega-\omega_0)^2 + \omega_1^2}}{(\omega-\omega_0)^2 + \omega_1^2} d\omega_0$$

Aucune solution analytique n'a été trouvée pour cette intégrale mais nous allons examiner la forme de la fonction à intégrer, qui en faisant le changement de variable  $x = (\omega - \omega_0)$  s'écrit:

$$s(x,t) = \frac{\cos t\sqrt{x^2 + \omega_1^2}}{x^2 + \omega_1^2},$$

afin de tirer une conclusion qualitative suffisante pour les besoins de notre étude.

Nous observerons d'abord qu'à  $t = 0$

$$s(x,0) = \frac{1}{x^2 + \omega_1^2},$$

l'intégrale  $S(t)$  vaut alors  $S(0) = \pi/\omega_1$  et l'expression (3-13)

prend la valeur:

$$\frac{M_0 - M_z(0)}{M_0} = f(\omega) (\pi\omega_1 - \pi\omega_1)$$

soit 0 comme il se doit

Le graphe de la figure -17- montre la courbe  $s(x,t)$  pour des valeurs arbitraires,  $t = 2$  et  $\omega_1 = 1$ . Elle oscille dans l'enveloppe

$1/(x^2 + \omega_1^2)$  et son intégrale est plus petite que  $\pi/\omega_1$  à cause des

contributions de signe alterné des arches successives.

La figure -18- montre la fonction  $s(x,10)$ , l'enveloppe reste la même mais les oscillations sont plus serrées ce qui rend l'intégrale plus petite encore. On peut également noter que  $S(t)$  évolue en fonction du temps en oscillant pour atteindre une valeur négligeable en un temps  $\tau$ . Pour nos besoins présents il importe de comparer ce temps  $\tau$  au temps de relaxation  $\tau_1$  du système de spins.

En effet, la relation (3-13) s'écrit:

$$\frac{M_0 - M_z(t)}{M_0} = \pi\omega_1 f(\omega) + \omega_1^2 e^{-\frac{t}{\tau_1}} f(\omega) S(t) \quad (3-14)$$

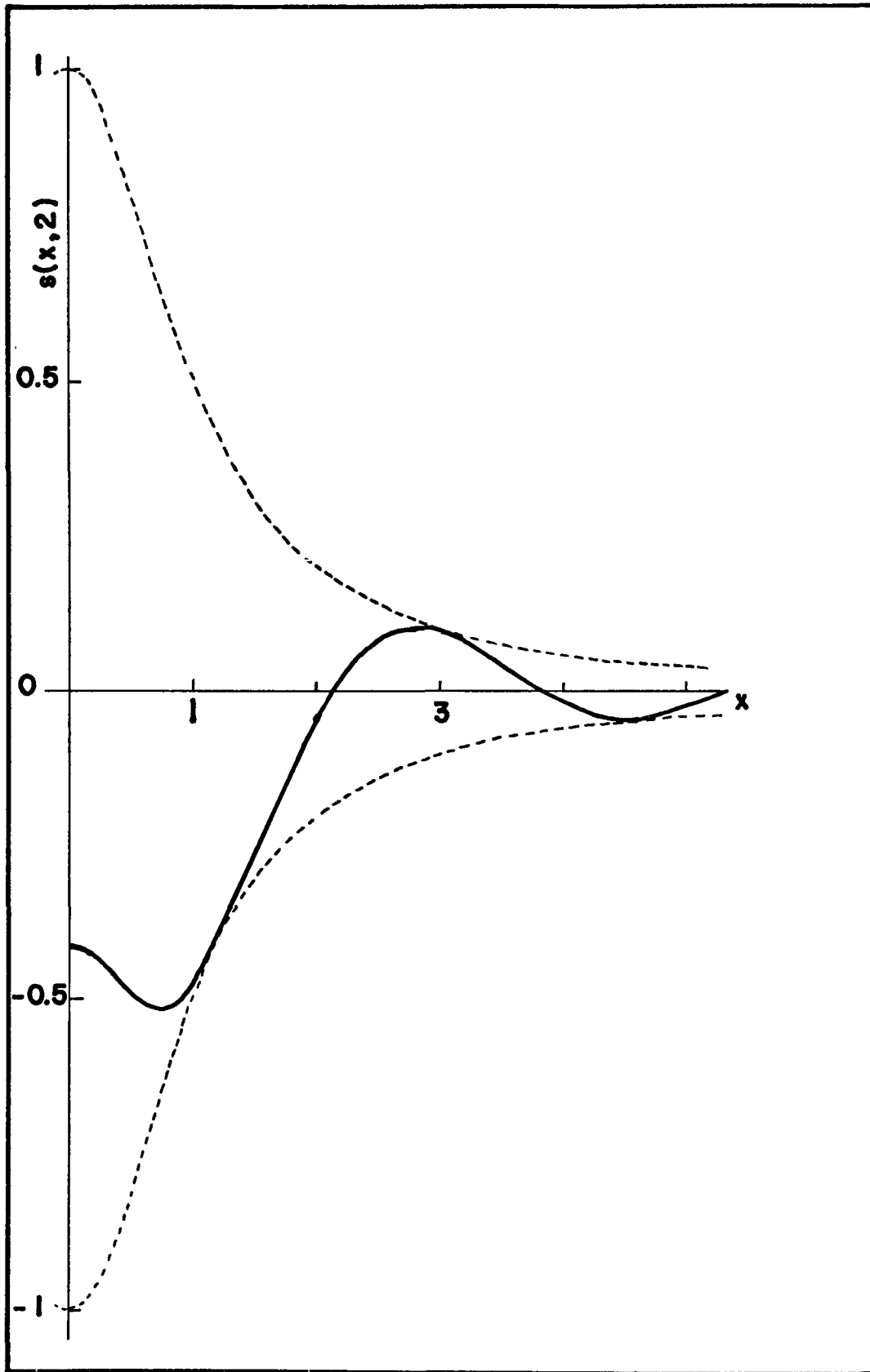


figure -17- FONCTION  $s(x,2)$

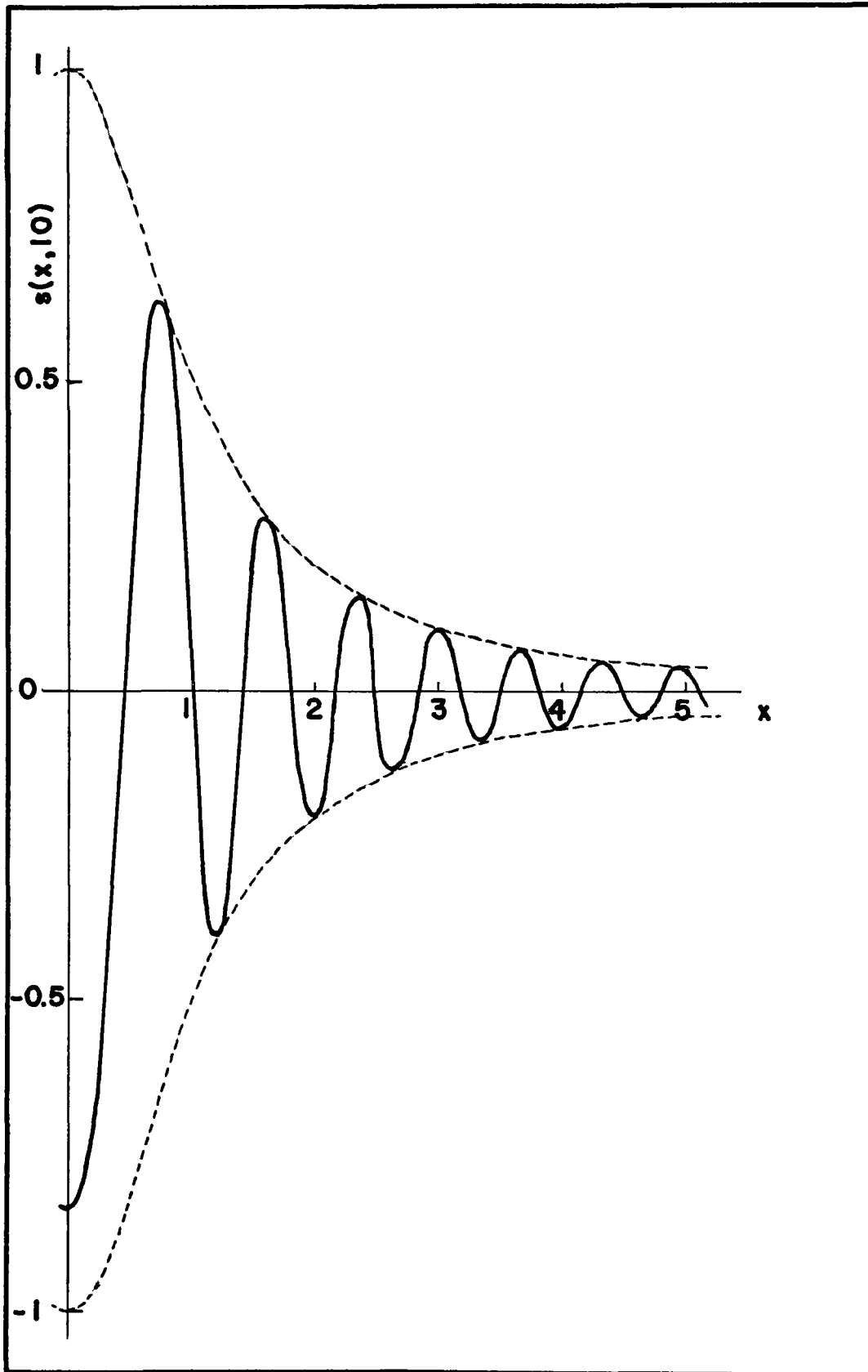


figure -18- FONCTION  $s(x, 10)$

et la question est alors de savoir laquelle des deux fonctions

$S(t)$  et  $e^{-\frac{t}{\tau_1}}$  devient négligeable le plus rapidement, afin d'évaluer le temps nécessaire pour que le système atteigne l'équilibre sous l'effet de la perturbation radiofréquence.

Remarquons que les valeurs expérimentales de  $\omega_1$  sont de l'ordre de  $10^3$  à  $10^4$  rds<sup>-1</sup> de sorte que la valeur minimale de l'argument du cosinus dans  $s(x,t)$  est  $\omega_1 t$  soit environ  $10^3 t$ . Pour que le dénominateur de cette fonction devienne négligeable, il faut que  $x_1$  passe de 0 à quelques  $\omega_1$ . Si dans ces conditions  $t$  est très supérieur à  $1/\omega_1$  le cosinus oscille un grand nombre de fois dans la région qui contribue le plus à l'intégrale  $S(0)$  de l'enveloppe et il s'ensuit que  $S(t)$  n'est qu'une faible partie de  $S(0)$ . On peut donc conclure que  $I_5$  devient négligeable dès que  $t$  dépasse  $1/\omega_1$ .

Il ressort de cette discussion que le système atteint l'équilibre en un temps de l'ordre de la milliseconde, notablement inférieur au temps de relaxation  $\tau_1$ , qui dans notre cas ne descend pas en dessous de quelques secondes, contrairement à ce qui se produirait si la dispersion des fréquences de résonance  $\omega_0$  était très faible. Dans les conditions de notre modèle on peut donc admettre, si le passage est lent:

- que la réponse maximale du système à la perturbation est atteinte quasi instantanément,
- et que cette réponse est proportionnelle à  $f(\omega)$ .

### 3-4 ETUDE PHENOMENOLOGIQUE DES COURBES EXPERIMENTALES

Comme nous l'avons déjà souligné précédemment la pulsation radiofréquence n'est pas constante mais varie avec le temps suivant la relation

$$\omega = \Omega t \quad (3-15)$$

Dans ces conditions l'aimantation mesurée à l'instant  $t$  est la résultante des réponses antérieures pondérées par le facteur exponentiel  $\exp(-\Delta t/\tau_1)$ . La contribution à

$$g(\omega(t)) = \frac{M_o - M_z(t)}{M_o}$$

des spins renversés pendant un intervalle de temps  $dt'$  autour de l'instant antérieur  $t'$  s'écrit:

$$f(\omega(t')) e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} dt' \quad (3-16)$$

si on abandonne le facteur de proportionnalité étant donné qu'on ne s'intéresse ici qu'à la forme des courbes. Il vient alors:

$$g(\omega(t)) = \int_0^t f(\omega(t')) e^{-\frac{t-t'}{\tau_1}} dt'$$

en notant  $\omega = \omega(t)$  et  $\omega' = \omega(t')$ , en utilisant (3-15) et

toujours en abandonnant les facteurs de proportionnalité, on obtient:

$$g(\omega) = \int_0^{\omega} f(\omega') e^{-\frac{\omega-\omega'}{\Omega\tau_1}} d\omega' \quad (3-17)$$

on en tire

$$e^{\frac{\omega}{\Omega\tau_1}} g(\omega) = \int_0^{\omega} e^{\frac{\omega'}{\Omega\tau_1}} f(\omega') d\omega'$$

en dérivant par rapport à  $\omega$  il vient finalement:

$$f(\omega) = \frac{g(\omega)}{\Omega\tau_1} + g'(\omega) \quad (3-18)$$

Cette relation simple basée sur la seule hypothèse que la réponse instantanée du système est proportionnelle à  $f(\omega)$  permet de reconstruire la forme de la raie de résonance à partir des courbes obtenues expérimentalement. L'influence du phénomène de relaxation rend en effet difficile l'interprétation de ces dernières.

L'application de cette transformation nécessite la détermination du temps de relaxation spin réseau  $\tau_1$ , notre appareil se prête bien à cette mesure ainsi que nous le verrons dans le prochain chapitre.

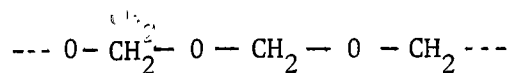
CHAPITRE -4-

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET ANALYSE

Dans ce chapitre nous présentons les résultats obtenus à l'aide de notre appareil puis nous les analysons à l'aide du développement théorique présenté dans le chapitre 3.

4-1 PROTONS DANS LE "DELRIN"

Le delrin obtenu par polymérisation du formaldéhyde



a été sélectionné à cause de sa grande concentration en hydrogène qui donne un signal important facilement détectable.

Les caractéristiques des noyaux d'hydrogène 1 sont

$$\gamma_{\text{H}^1} = 2.675 \cdot 10^8 \text{ rds}^{-1} \text{ T}^{-1}$$

abondance naturelle 99.98%

Notre échantillon était de forme cylindrique de diamètre 8 mm et de longueur 20 mm, de manière à remplir au maximum l'espace disponible à l'intérieur du détecteur.

4-1-1 Courbes de résonance

Les figures -19- à -25- illustrent les résultats obtenus dans différentes conditions. Ils représentent la

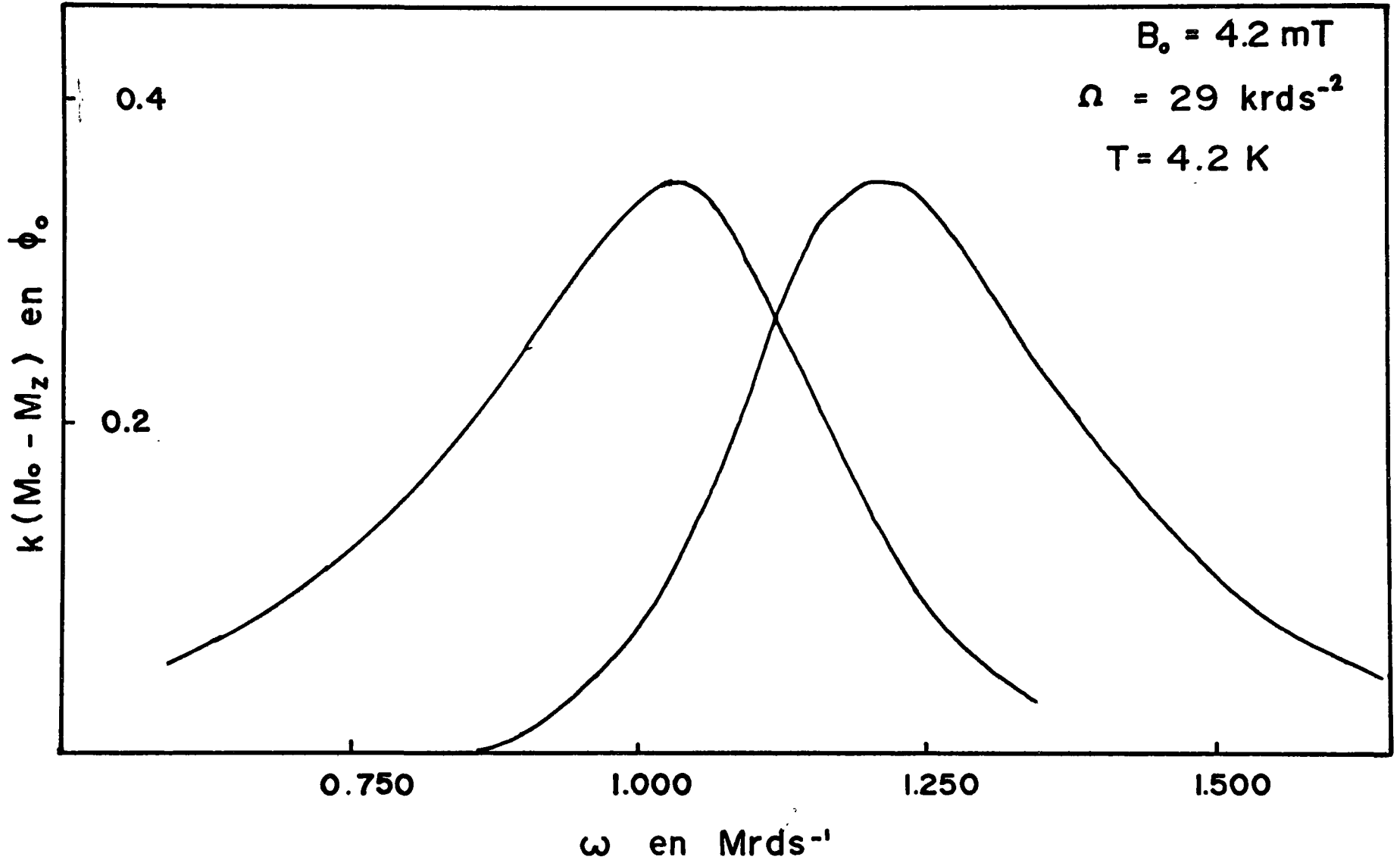


figure -19- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 4.2 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 29 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

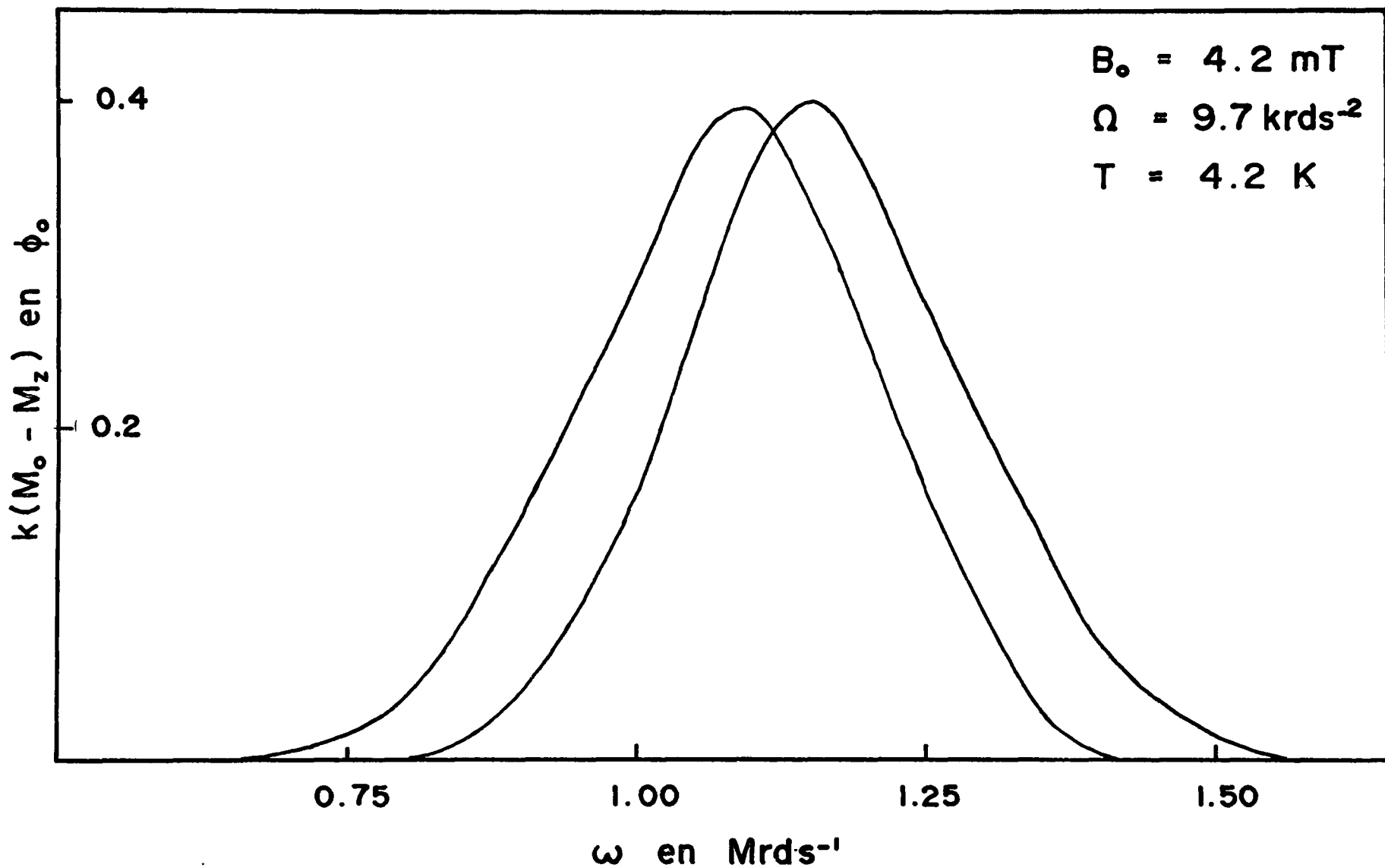


figure -20- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 4.2 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 9.7 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

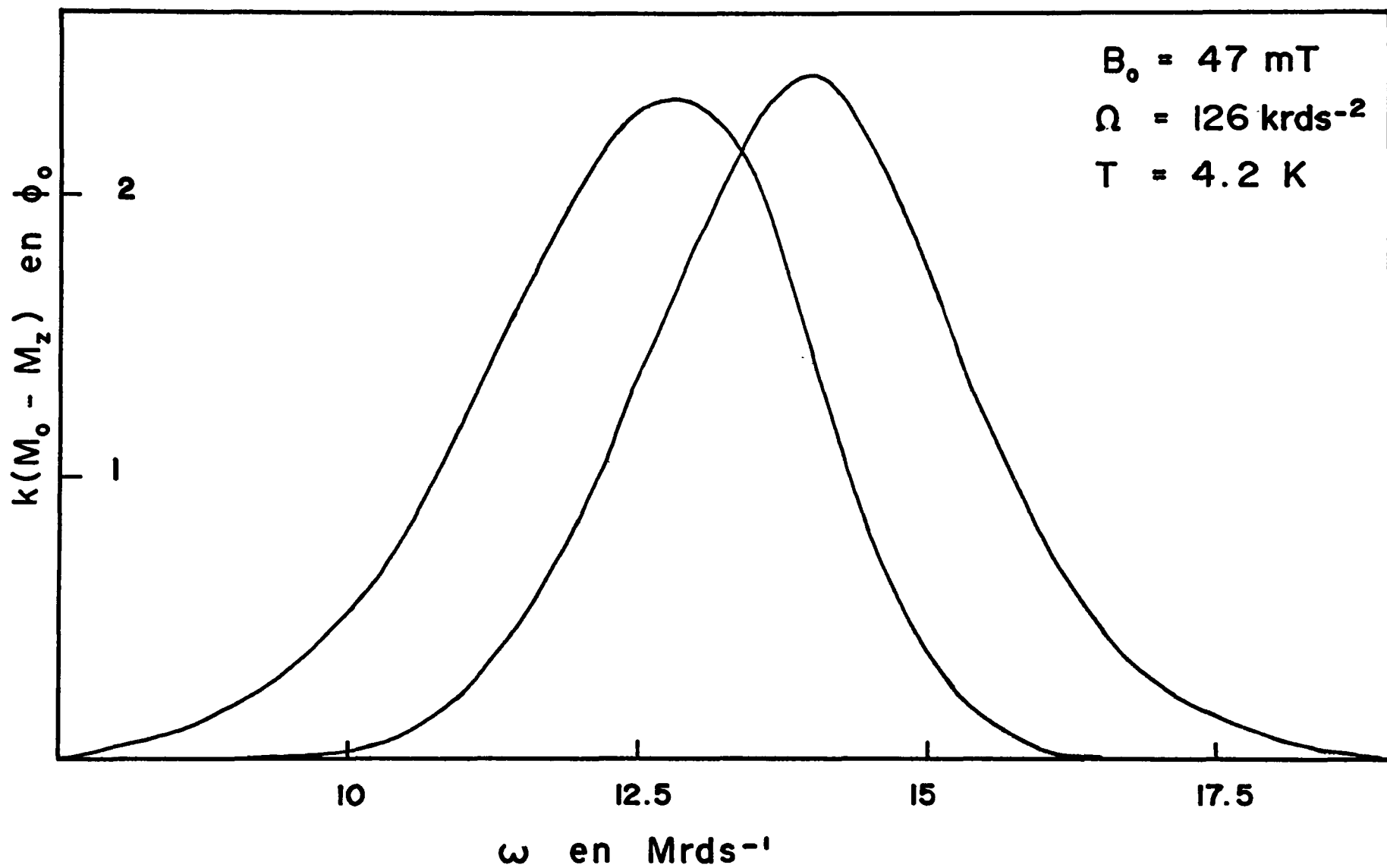


figure -21- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 47 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 126 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

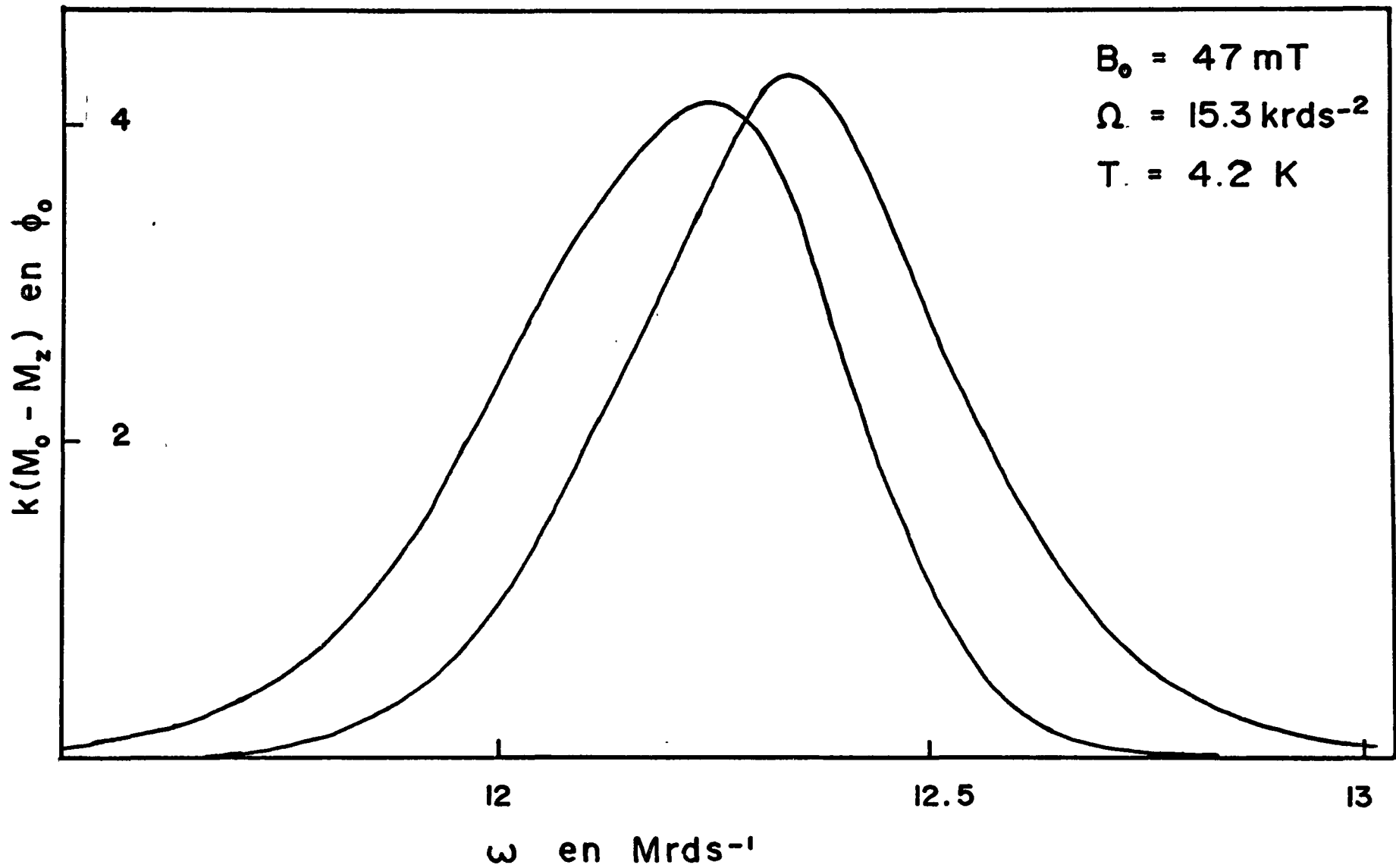


figure -22- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 47 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 15.3 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

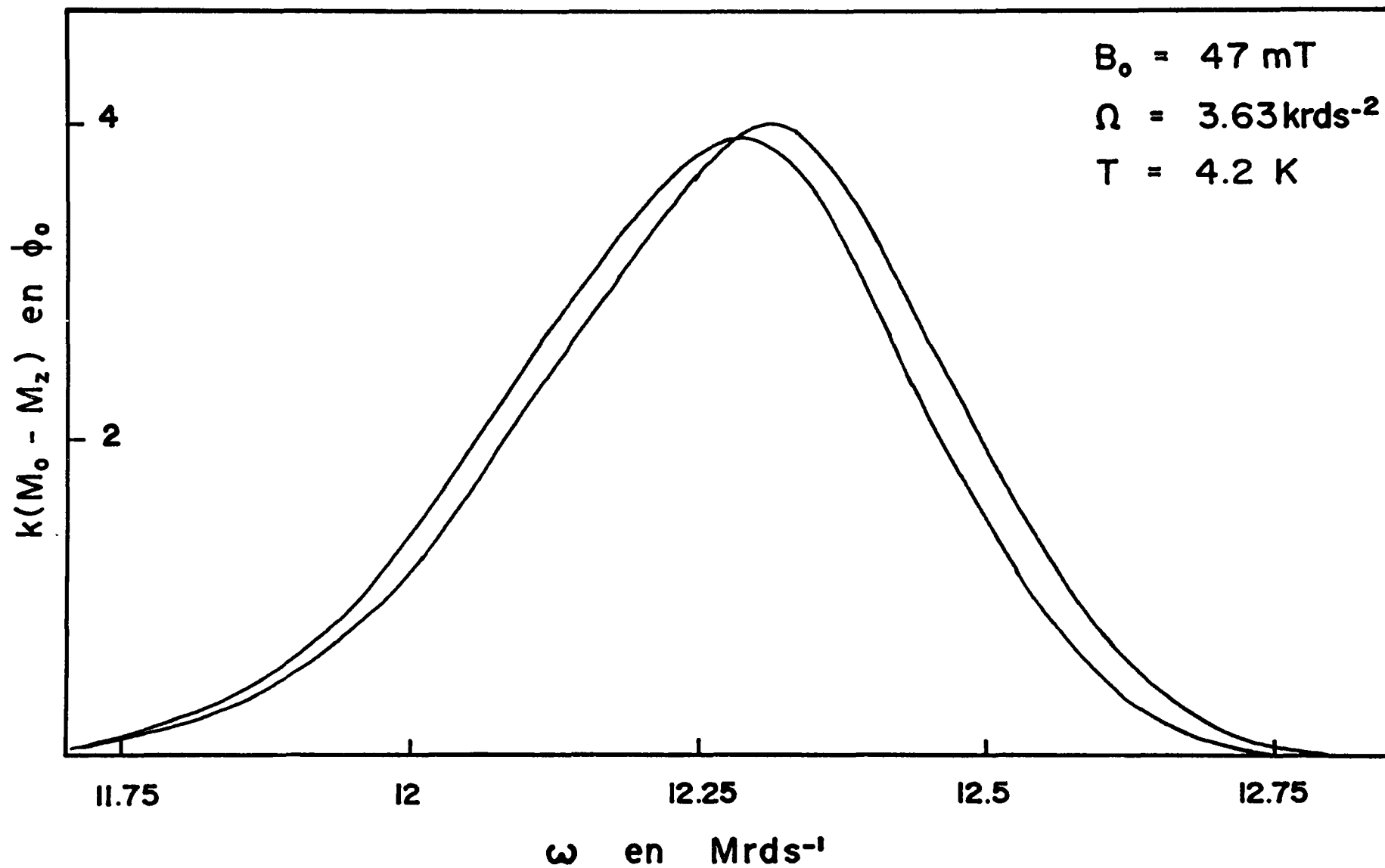


figure -23- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 47 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 3.63 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

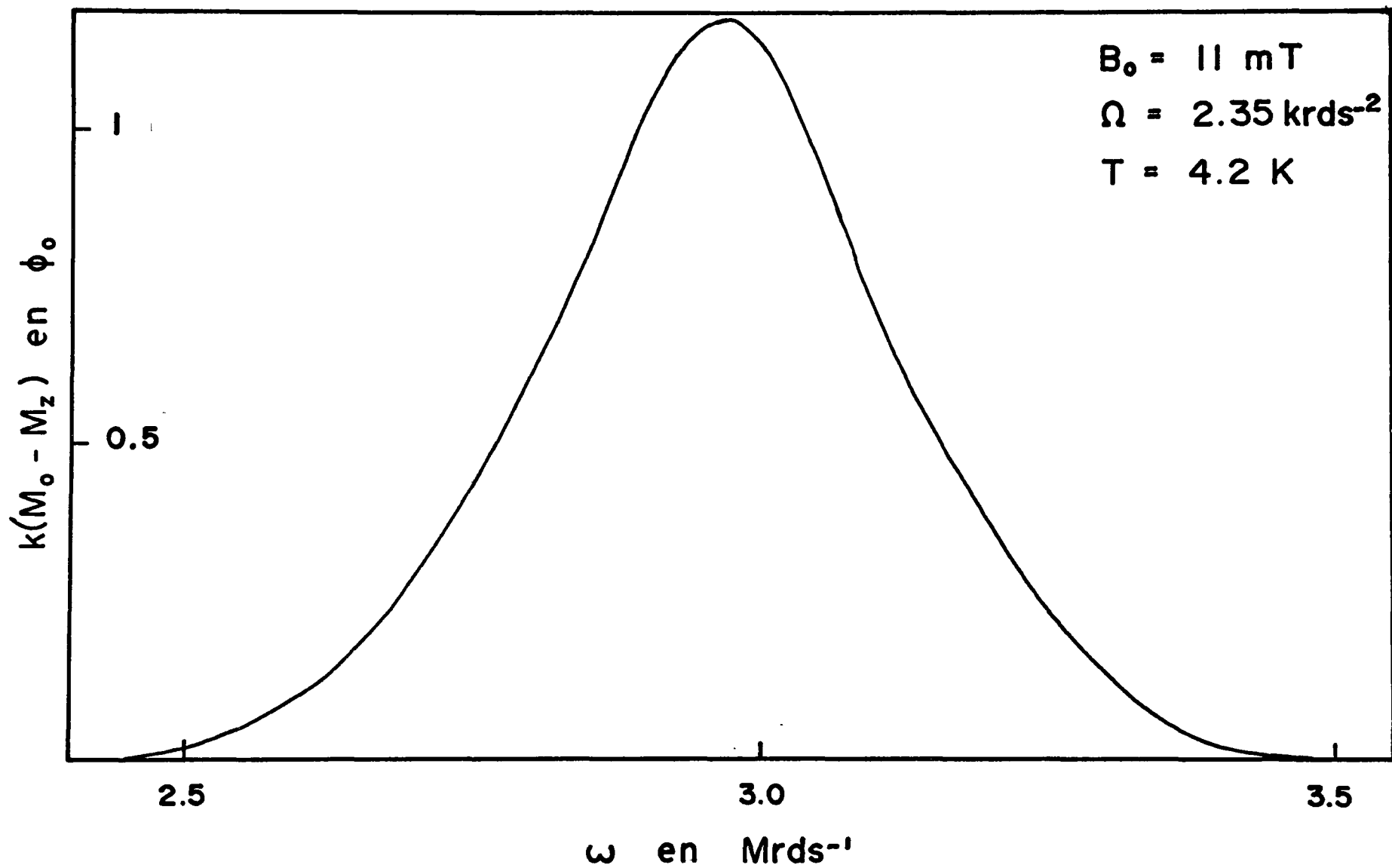


figure -24- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 11\text{mT}$ ,  $\Omega = 2.35 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

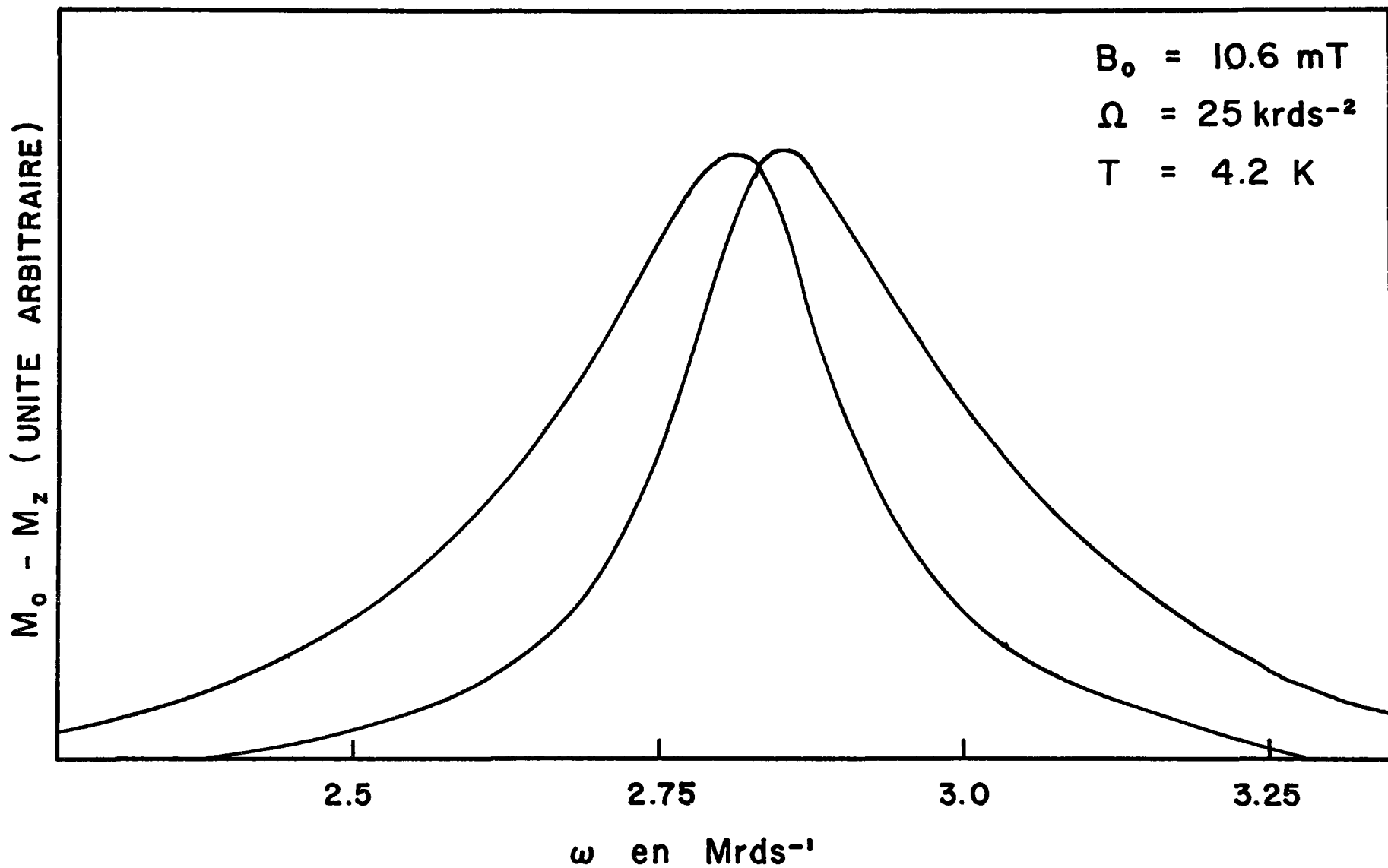


figure -25- RESONANCE  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 10.6 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 25 \text{ krds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

Aimablement fournie par le Docteur Lamarche qui l'a obtenue sur un autre appareil

$$\text{fonction } g(\omega) = \frac{M_0 - M_z}{M_0}$$

#### 4-1-2 Courbes de relaxation

Soumis à un champ radiofréquence intense, l'échantillon, d'abord saturé, revient à l'aimantation d'équilibre  $M_0$  en suivant une loi exponentielle comme les deux exemples présentés figure -26- et -27- permettent de le constater. D'après ces courbes on peut calculer le temps de relaxation. Ceux-ci ont été mesurés pour diverses valeurs de  $B_0$ . Les résultats sont donnés dans le tableau ci-dessous

B (mT)	$\tau_1$ (s)
11	7.3
21	7.5
50	7.5

Il semble donc y avoir peu de dépendance des temps de relaxation en fonction de l'intensité  $B_0$  du champ.

#### 4-1-3 Analyse des courbes

Des courbes  $g(\omega)$  du paragraphe précédent la transformation (3-18) permet d'extraire  $f(\omega)$ . Un programme a été mis

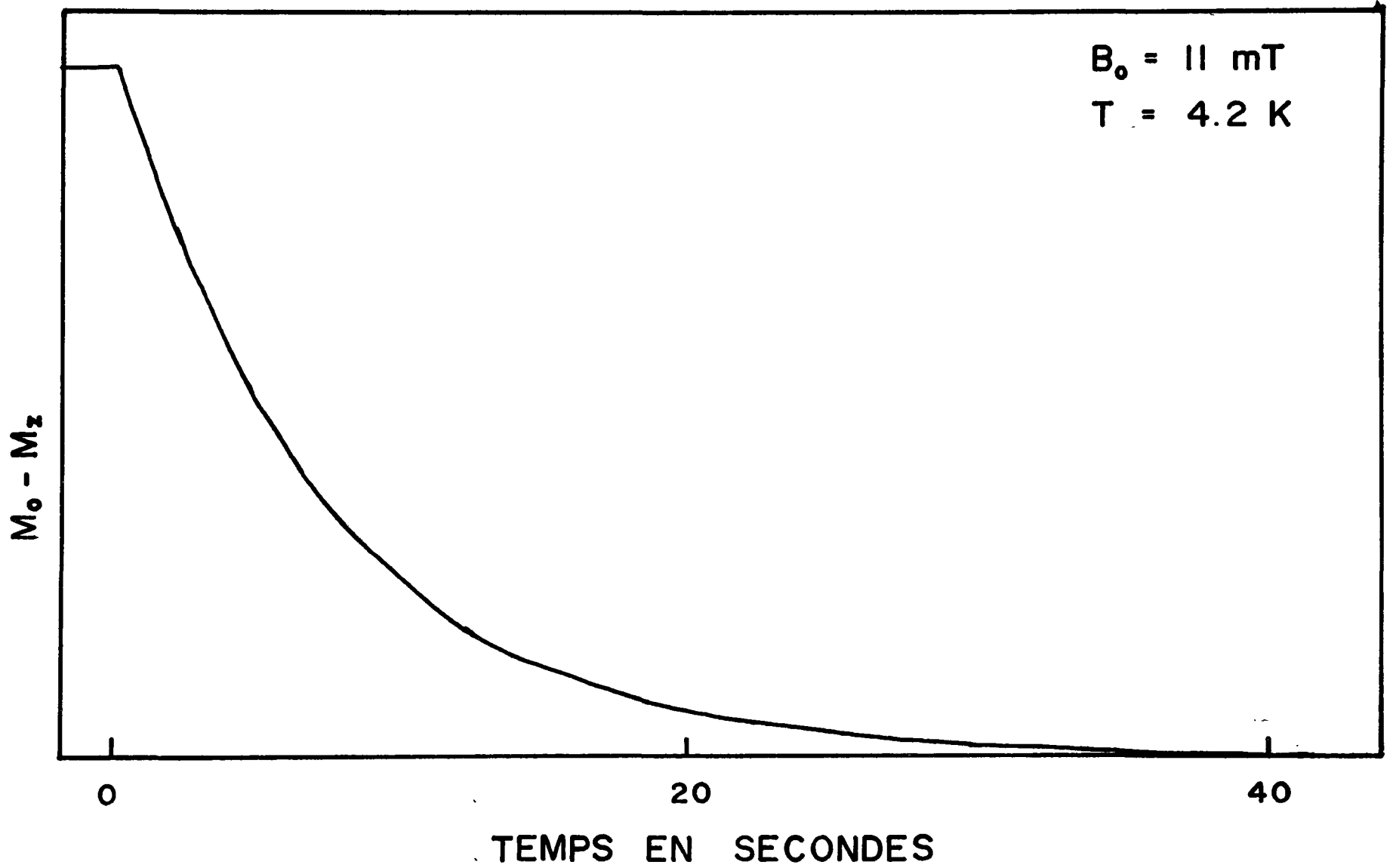


figure -26- RELAXATION,  $B_0 = 11 \text{ mT}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

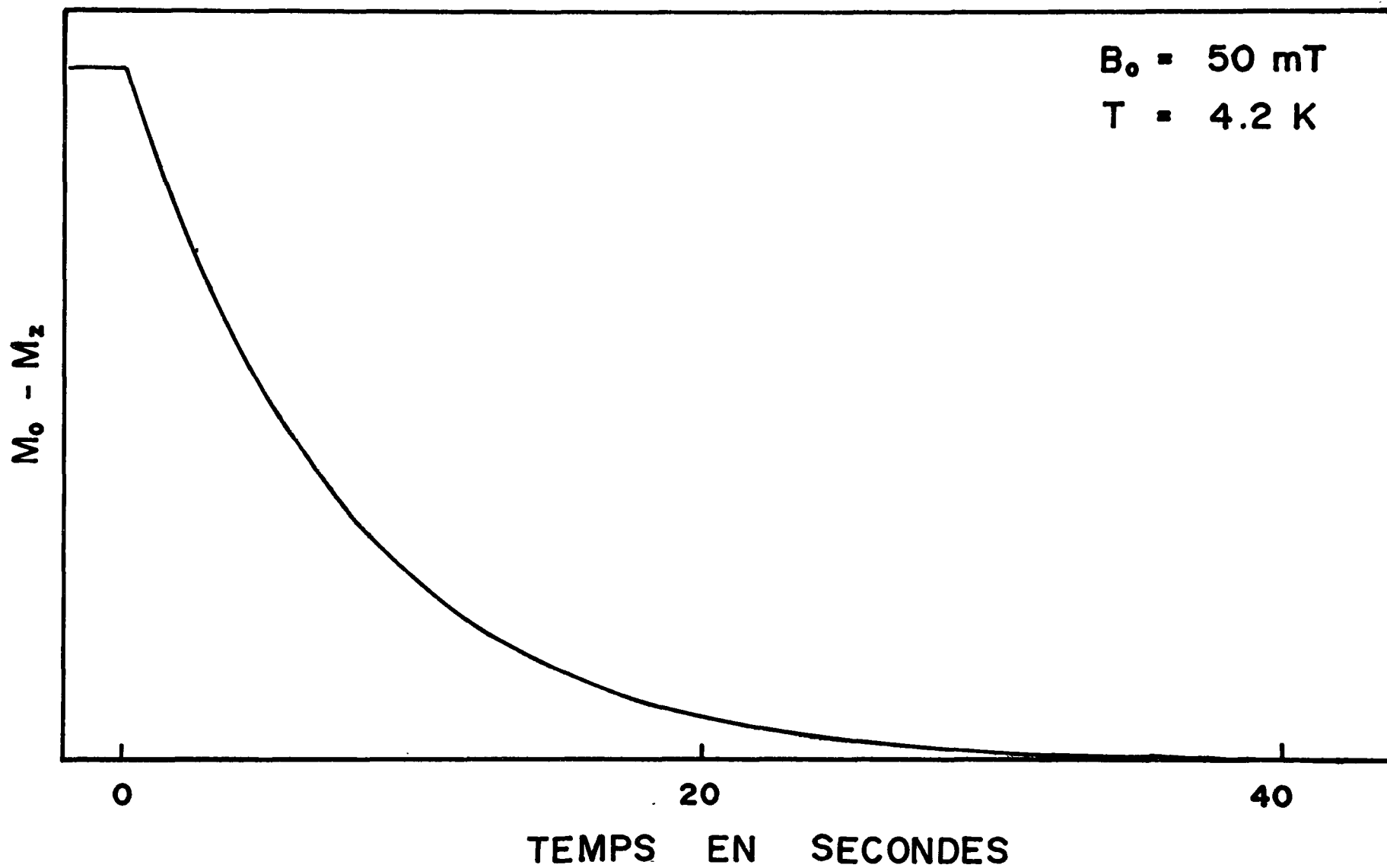


figure -27- RELAXATION  $^1\text{H}$ ,  $B_0 = 50 \text{ mT}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

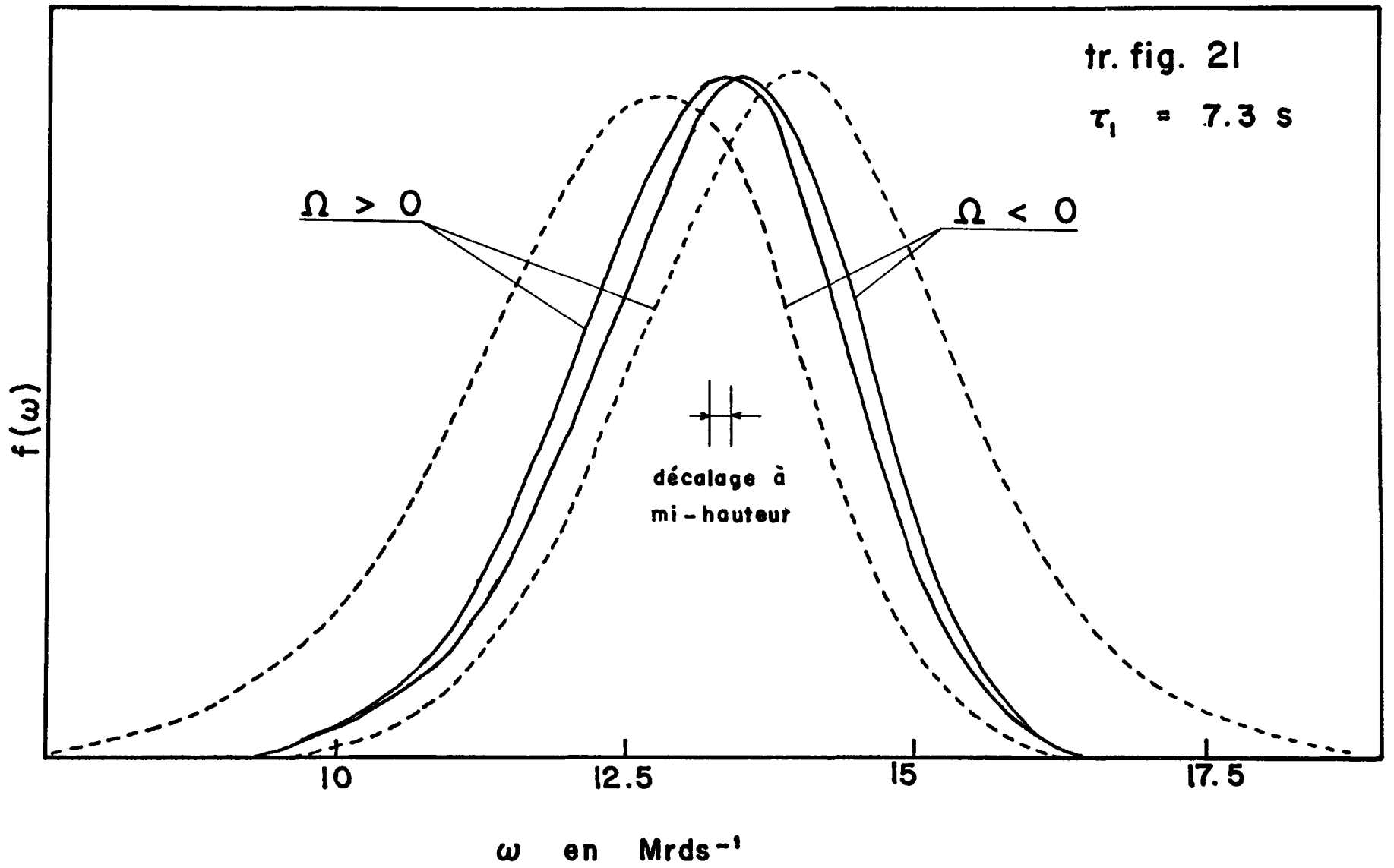


figure -28-  $f(\omega)$  TRANSFORMEE DE LA figure 21

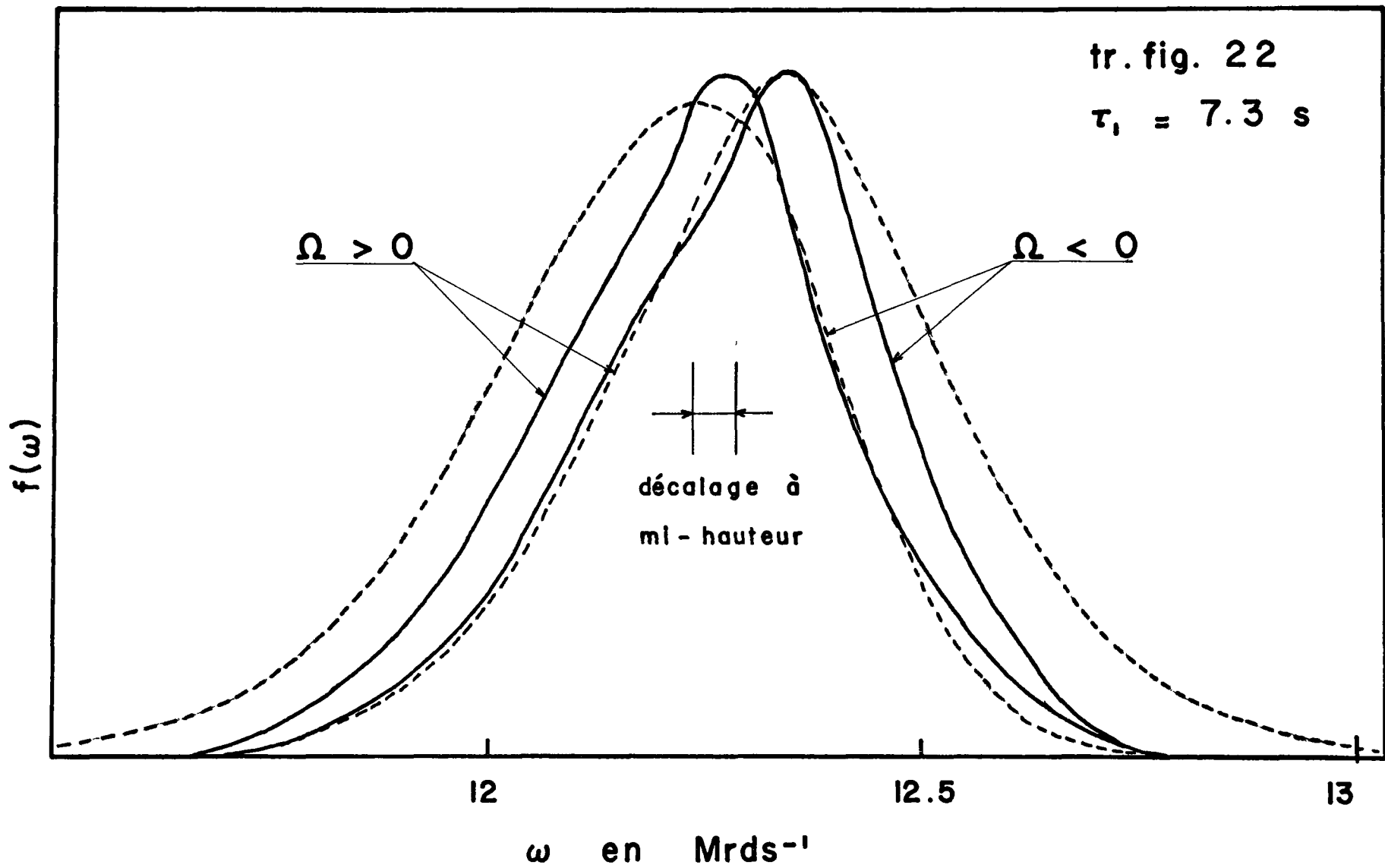


figure -29-  $f(\omega)$  TRANSFORMEE DE LA figure 22

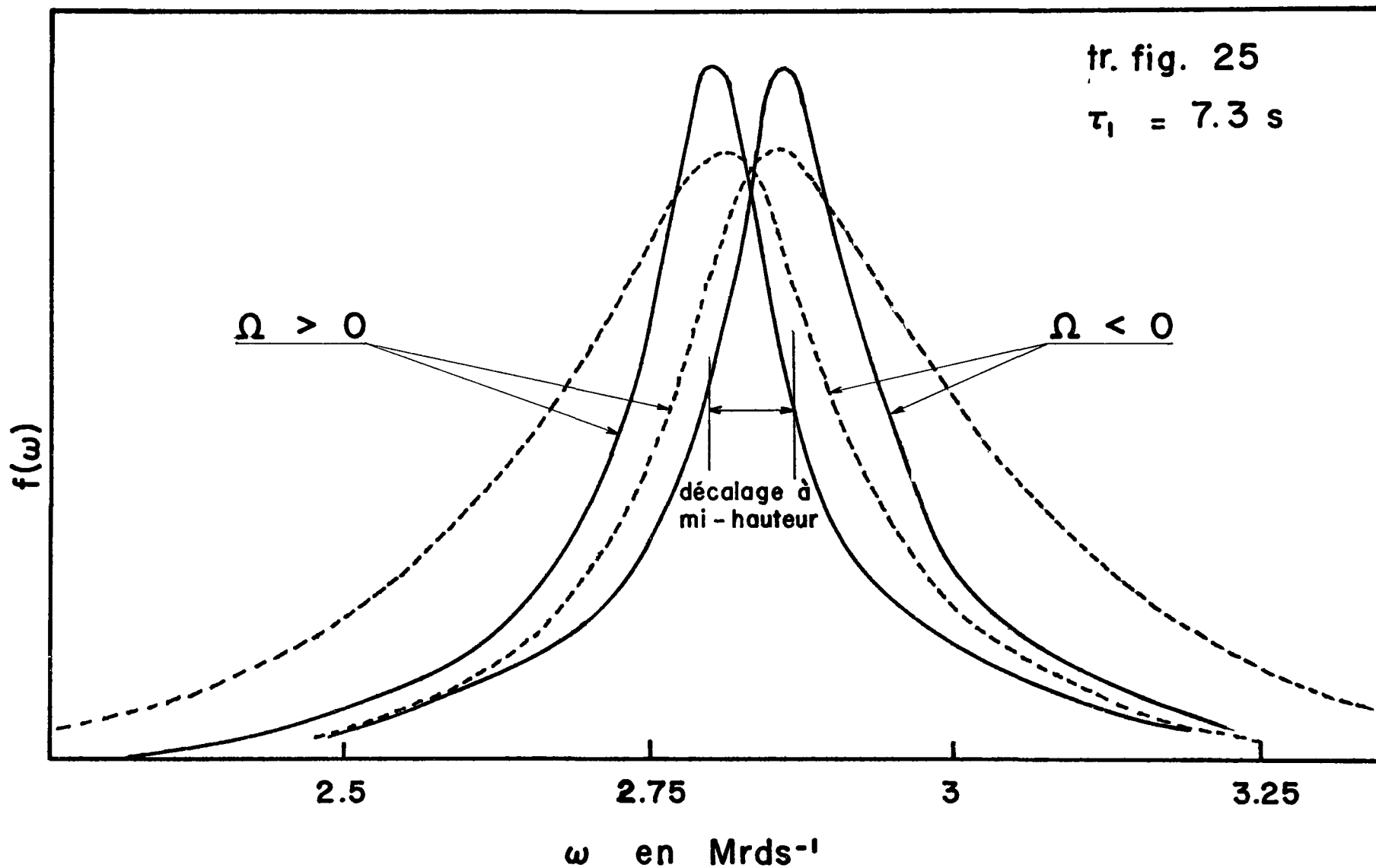


figure -30-  $f(\omega)$  TRANSFORMEE DE LA figure 25

au point pour effectuer ce calcul. Dès les premiers résultats (fig 28 à 30) il est apparu que les transformées ne possédaient pas les caractéristiques importantes que  $f(\omega)$  doit vérifier, à savoir:

$f(\omega)$  doit être symétrique par rapport à la pulsation centrale  $\omega_0^0$  à laquelle les courbes aller et retour se coupent

- les  $f(\omega)$  correspondant aux deux signes de  $\Omega$  doivent être superposables.

Le calcul a donc été repris en considérant  $\tau_1$  comme un paramètre et dans quelques cas les  $f(\omega)$  obtenues vérifiaient les deux conditions énoncées ci-dessus mais pour des temps de relaxation notablement différents

Dans d'autres cas la superposition est impossible à réaliser

La valeur du temps de relaxation mesurée au paragraphe précédent ne pouvant être mise en doute il faut donc conclure que l'application de la relation (3-18) ne permet pas de reconstruire  $f(\omega)$ . Il reste donc à expliquer la cause du décalage observé entre les transformées pour les deux signes de  $\Omega$ . Nous reprenons ce problème au chapitre 5 où une nouvelle amélioration du modèle sera présentée.

#### 4-2 LITHIUM 7 DANS LE NIOBATE DE LITHIUM $\text{LiNbO}_3$

Deux raisons nous ont poussé à étudier le niobate de lithium:

- c'est un matériau très utilisé en optique non linéaire et il peut être intéressant d'étudier la forme des courbes de résonance dans le but d'en tirer des renseignements sur les liaisons cristallines responsables de la dispersion des pulsations de résonance
- il contient deux noyaux de rapport gyromagnétique  $\gamma$  élevé, et donc facile à détecter, le lithium 7 et le niobium 93. Ces noyaux possèdent en outre des moments quadrupolaires donnant une structure remarquable aux raies de résonance.

Les caractéristiques RMN de ces noyaux sont

Lithium 7 spin  $\frac{3}{2}$

$$\gamma = 1.040 \cdot 10^8 \text{ rd s}^{-1} \text{ T}^{-1}$$

abondance naturelle 92,57%

Niobium 93 spin  $\frac{9}{2}$

$$\gamma = 6.54 \cdot 10^7 \text{ rd s}^{-1} \text{ T}^{-1}$$

abondance naturelle 100%

Les dimensions de notre échantillon cylindrique sont: diamètre 8mm, hauteur 8 mm. C'est un monocristal qui nous a été gracieusement fourni par le docteur Feigelson du "Center for Material Research, Stanford University, Stanford Ca 94305".

#### 4-2-1 Réponse à champ $B_0$ faible

Les figures -31- et -32- montrent deux graphes des raies de  $\text{Li}^7$  en champ faible. Les signaux étant petits, la sensibilité du SQUID a dû être utilisée au maximum et un bruit de fond, surtout composé de variations très basse fréquence impossibles à filtrer, apparaît. Bien que difficilement analysables ces deux courbes montrent que le temps de relaxation est court, aussi bien à 4.2 K qu'à 1.4 K. On observe en effet que la pente des parties ascendantes est sensiblement égale à celle des parties descendantes.

#### 4-2-2 Réponse à champ $B_0$ élevé

En augmentant le champ magnétique  $B_0$  on obtient les graphes des figures -33- à -35- pour deux valeurs de la température.

Un examen rapide de ces trois courbes permet de constater deux faits:

- l'amplitude du signal est considérablement augmentée si on la compare aux réponses à champ faible
- le temps de relaxation est notablement allongé passant de quelques dizaines à environ 2000 secondes.

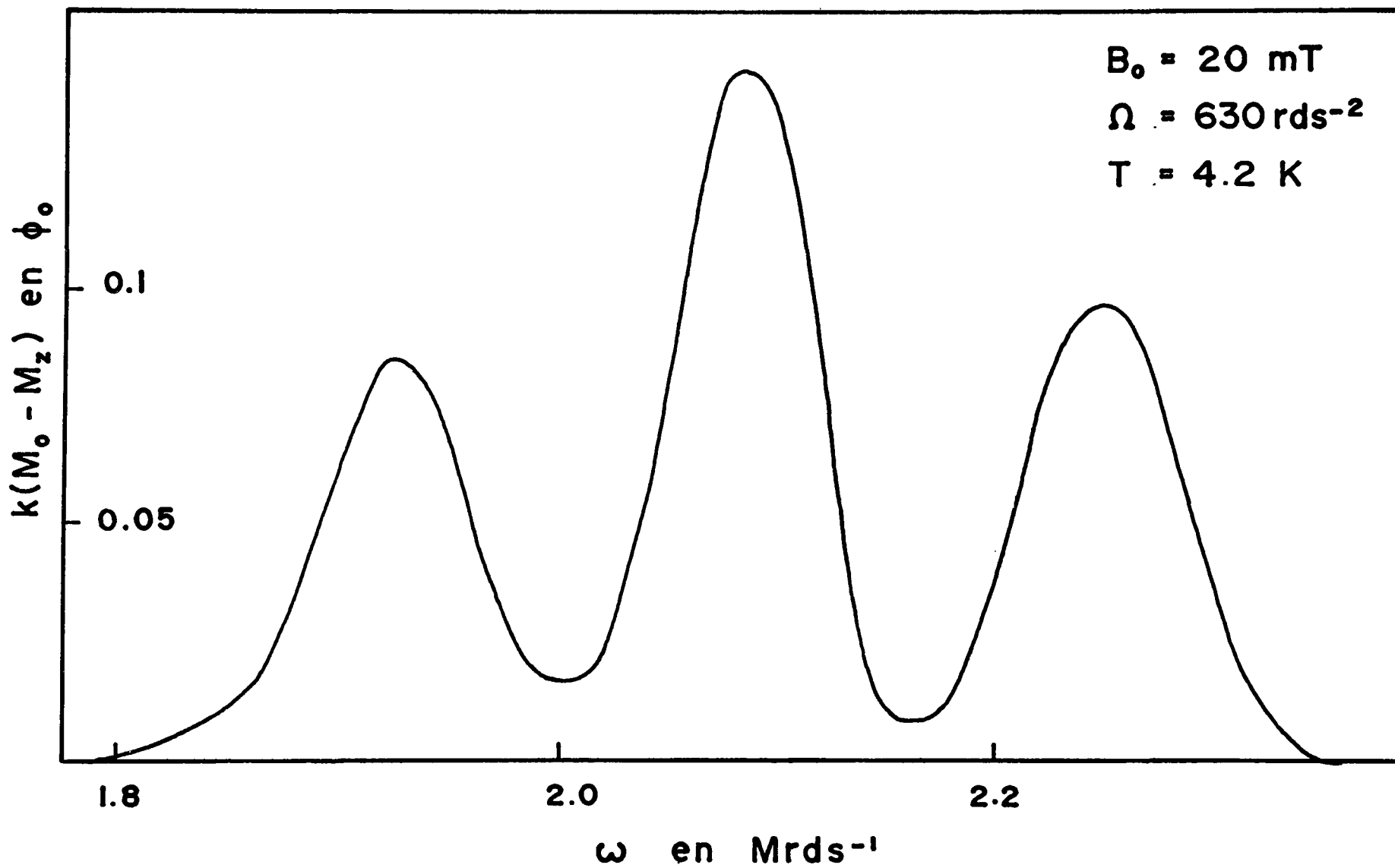


figure -31- RESONANCE  ${}^7\text{Li}$ ,  $B_0 = 20 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 630 \text{ rds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

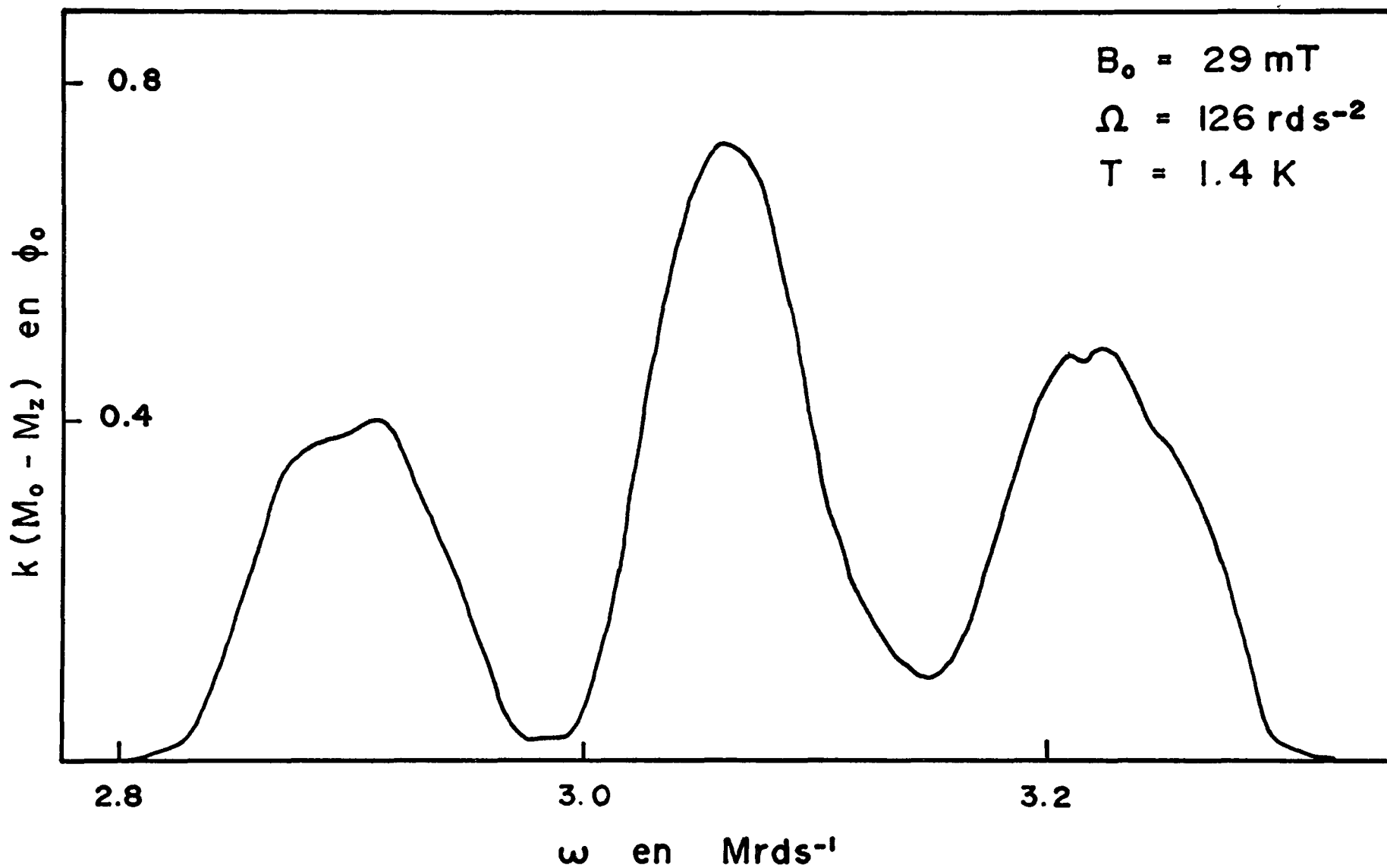


figure -32- RESONANCE  ${}^7\text{Li}$ ,  $B_0 = 29 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 126 \text{ rds}^{-2}$ ,  $T = 1.4 \text{ K}$

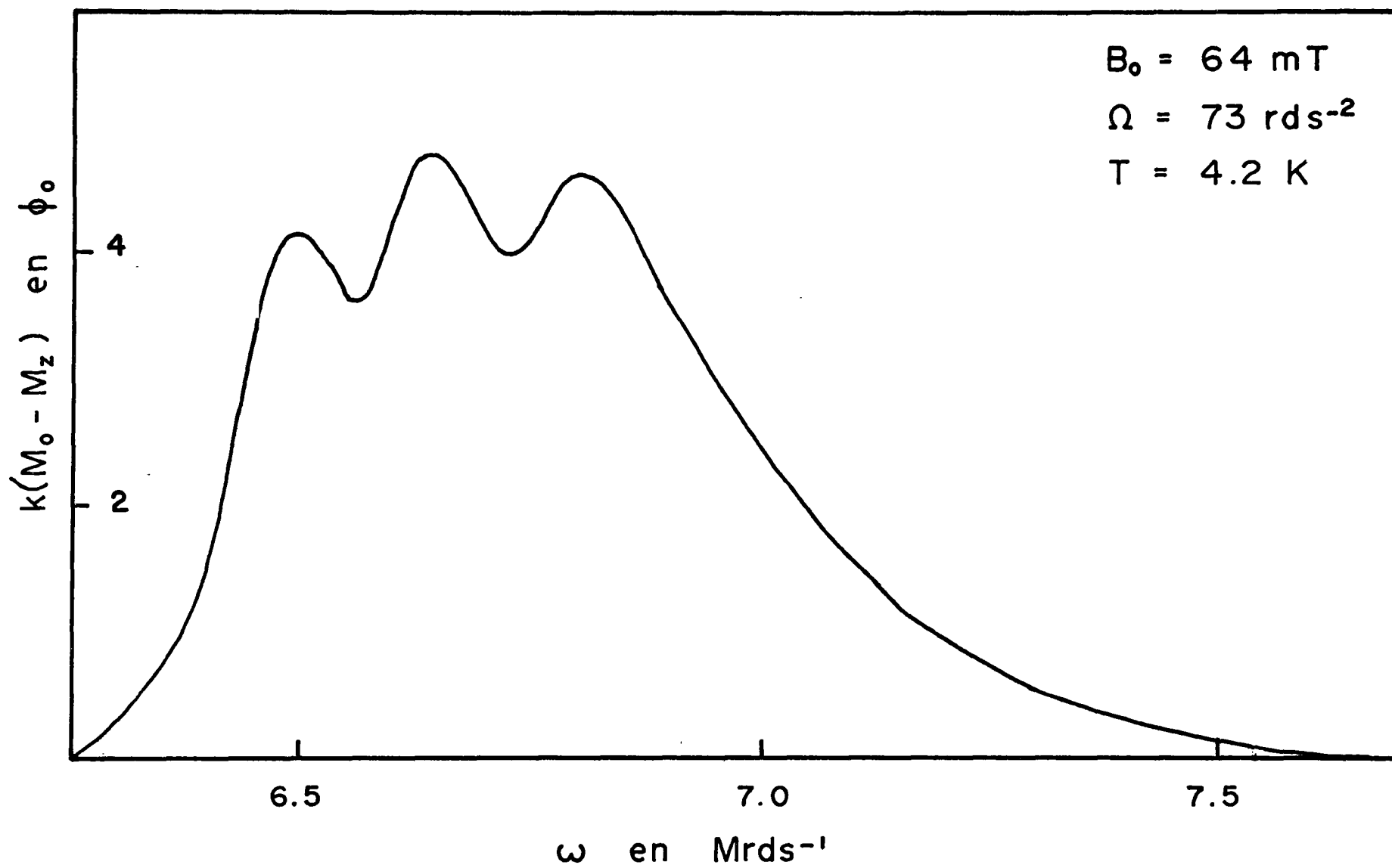


figure -33- RESONANCE  ${}^7\text{Li}$ ,  $B_0 = 64 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 73 \text{ rds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

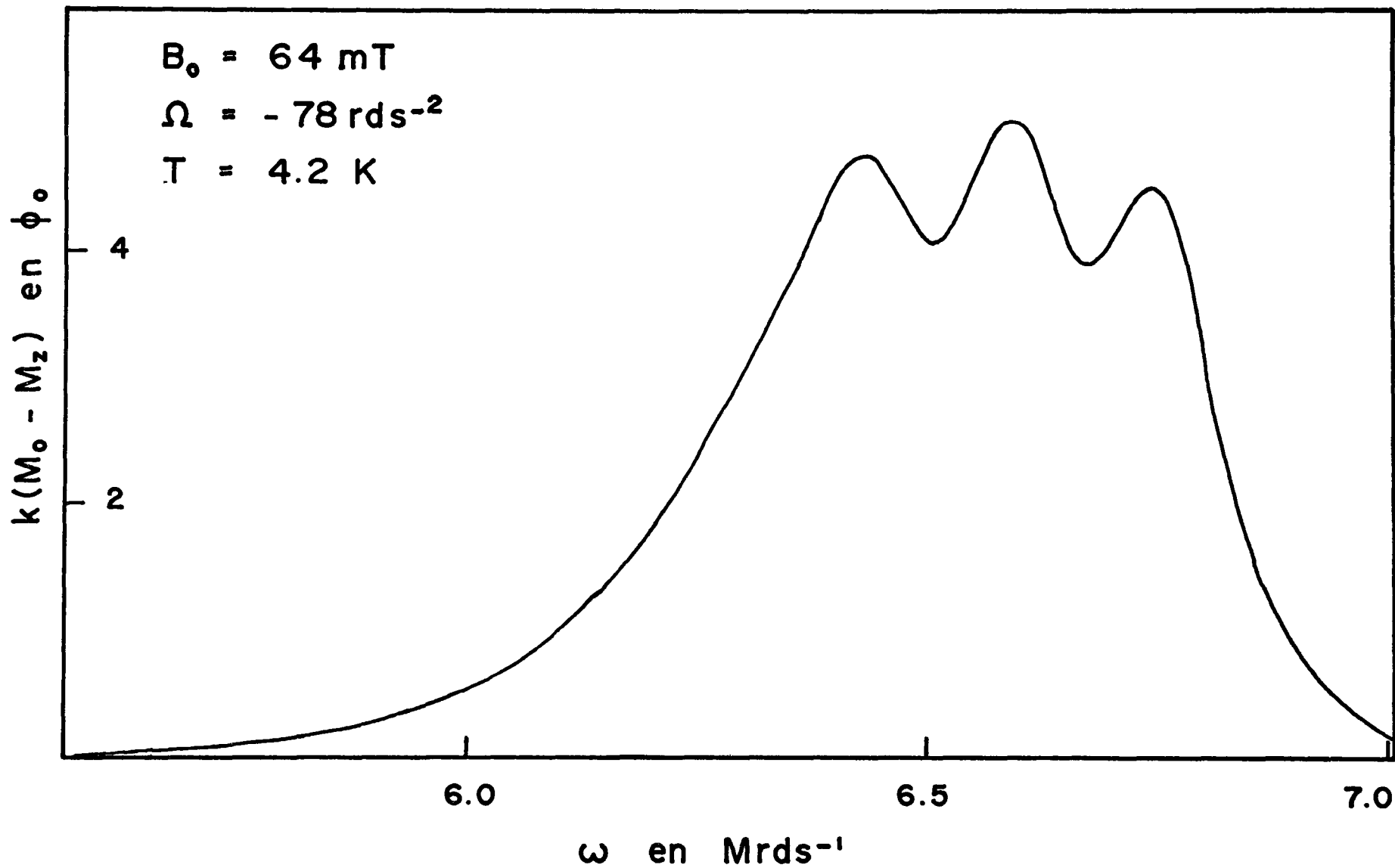


figure -34- RESONANCE  ${}^7\text{Li}$ ,  $B_0 = 64 \text{ mT}$ ,  $\Omega = -78 \text{ rds}^{-2}$ ,  $T = 4.2 \text{ K}$

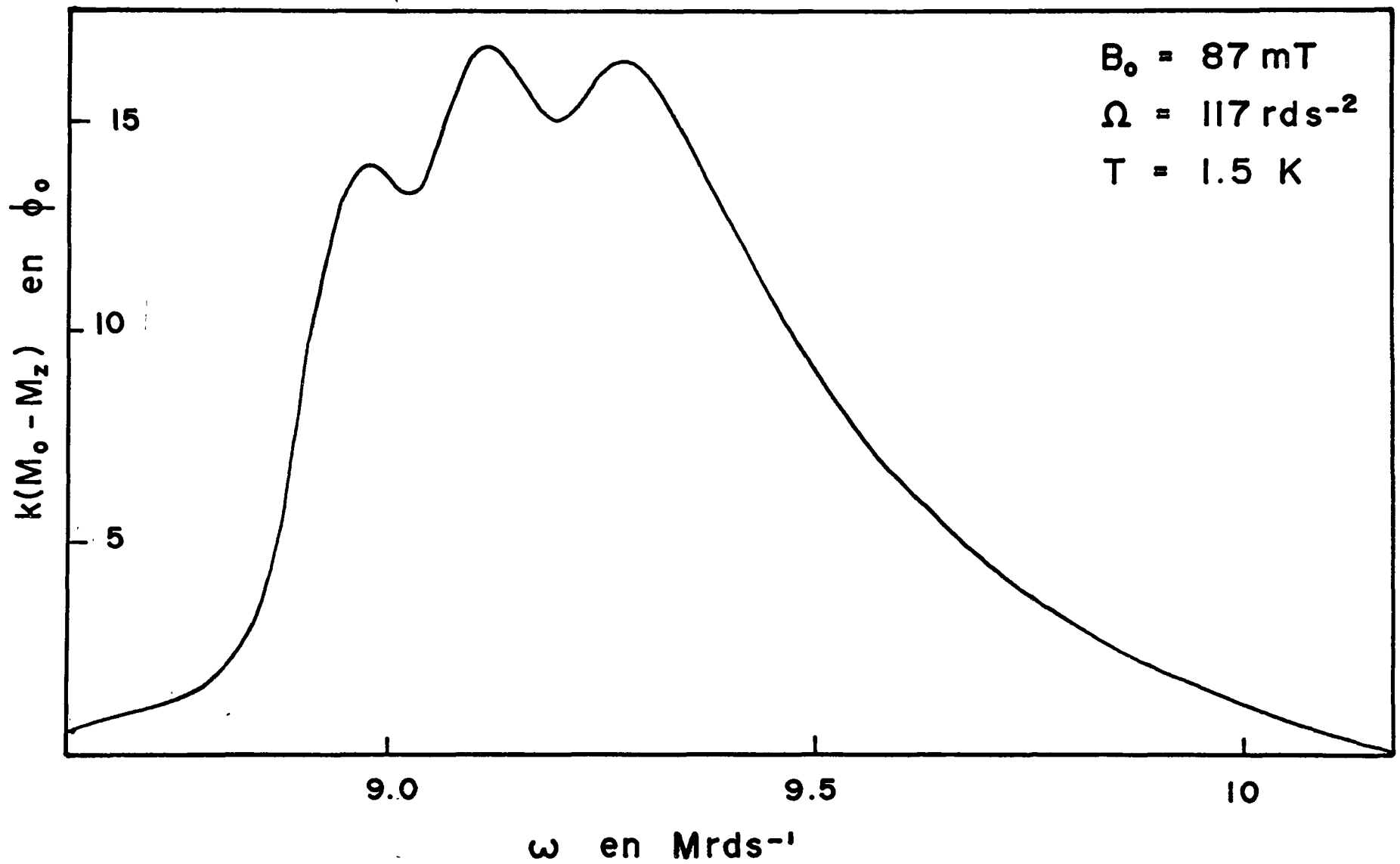


figure -35- RESONANCE  ${}^7\text{Li}$ ,  $B_0 = 87 \text{ mT}$ ,  $\Omega = 117 \text{ rds}^{-2}$ ,  $T = 1.5 \text{ K}$

La symétrie des courbes obtenues pour les deux signes de  $\Omega$  pour  $T = 4.2$  K (fig. 33-34) permet de juger de la fiabilité de la technique. Il convient en effet de souligner que ces courbes ont nécessité un balayage d'environ 5h ce qui posait un problème de stabilité qui ici semble avoir été résolu.

#### 4-2-3 Analyse des courbes

Un noyau de lithium plongé dans un champ magnétique  $B_0$  est un système à quatre niveaux correspondant aux quatre valeurs accessibles du spin  $\left\{ -\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{3}{2} \right\}$  - les trois transitions qui se produisent entre ces 4 niveaux se manifestent sous forme de trois raies de résonances comme on peut le constater sur les figures précédentes. Bien qu'il soit illusoire de penser que le traitement suggéré par la relation (3-18) puisse nous fournir la distribution  $f(\omega_0)$  des pulsations de résonance des différents spins, son application, en éliminant l'influence du temps de relaxation sur la forme du signal, nous permettra de faire quelques remarques intéressantes. Nous présentons donc les courbes transformées obtenues dans les figures 36 et 37

On constate que la transformation découpe les trois pics correspondant aux trois transitions mais que leur importance relative est variable et dépend à la fois de la température et du signe de  $\Omega$ . Les variations de population dans

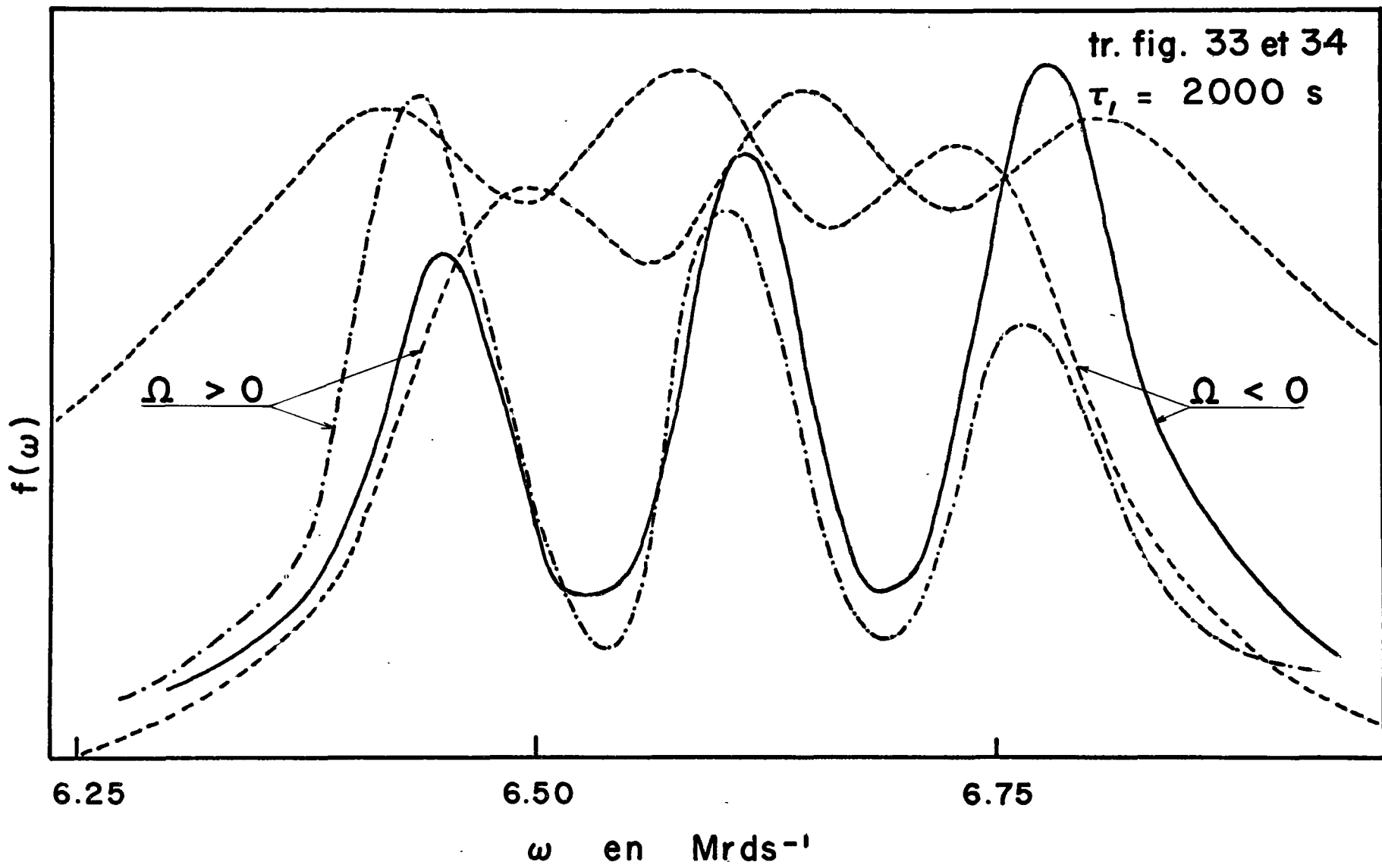


figure -36-  $f(\omega)$  TRANSFORMEES DES figures -33- et -34-

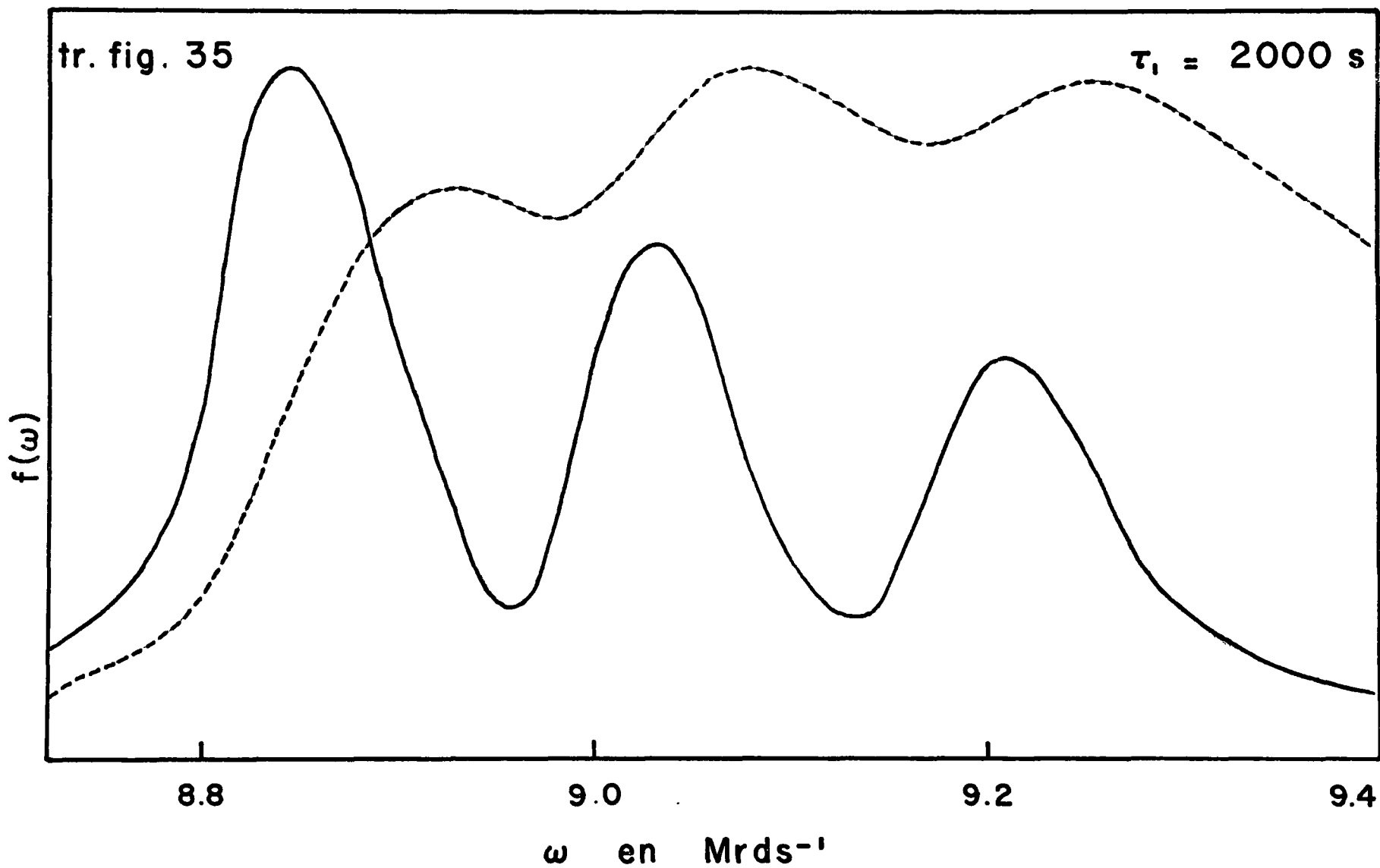


figure -37-  $f(\omega)$  TRANSFORMEE DE LA figure 35

les quatre niveaux sont difficiles à traiter théoriquement dans le cas du  ${}^7\text{Li}$  et nous n'avons pas l'intention ici de tenter cette analyse, nous nous bornerons à suggérer une explication qualitative à l'aide d'un modèle simplifié dans le chapitre 5.

#### 4-2-4 Signaux du niobium

Malgré tout le soin qu'on y a apporté, il n'a pas été possible d'observer le signal du niobium. Il est possible que la dispersion des fréquences de résonance dans les 8 satellites ait amenuisé le signal et que l'interaction spin spin le rende trop étendu pour être observable.

CHAPITRE -5-

DISCUSSION DES RESULTATS

Ainsi que nous l'avons constaté au chapitre 4 (§ 4-1-3) la relation (3-18) ne permet pas de reconstruire  $f(\omega)$  à partir des courbes expérimentales. Dans le présent chapitre nous allons présenter un raffinement du modèle utilisé dans le chapitre 3. Bien qu'il soit impuissant à expliquer le décalage observé, l'approfondissement de la compréhension du phénomène qu'il permet nous a incité à le présenter.

5-1 NOUVELLE AMELIORATION DU MODELE

Dans le paragraphe 3-2 nous avons fait l'hypothèse que  $f(\omega_0)$  variait peu dans un intervalle  $(\omega_0 - \omega_1, \omega_0 + \omega_1)$  ce qui nous a conduit à admettre que la réponse instantanée du système à l'excitation de pulsation  $\omega$  est proportionnelle à  $f(\omega_0 = \omega)$ . Nous allons ici nous affranchir de cette restriction et reprendre le calcul qui nous a mené à la relation (3-18). Nous considérons toujours cependant que le passage est suffisamment lent pour nous permettre de négliger l'intégrale  $I_5$  de la relation (3-13). Cette même relation devient donc

$$\frac{M_0 - M_z(t)}{M_0} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\omega_1^2 f(\omega_0)}{(\omega - \omega_0)^2 + \omega_1^2} d\omega_0 \quad (5-1)$$

dans le cas d'une excitation de pulsation constante  $\omega$ .

Lorsqu'on considère maintenant que  $\omega$  varie linéairement avec le temps selon la relation (3-15) nous sommes conduits à remplacer dans (3-17)  $f(\omega)$  par la relation (5-1).

On obtient alors

$$g(\omega) = \int_0^{\omega} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\omega_1^2 f(\omega_0)}{(\omega' - \omega_0)^2 + \omega_1^2} e^{-\frac{\omega - \omega'}{\Omega \tau_1}} d\omega_0 d\omega'$$

on en tire:

$$\frac{\omega}{\Omega \tau_1} e^{\frac{\omega}{2}} \frac{1}{\omega_1} g(\omega) = \int_0^{\omega} e^{\frac{\omega'}{\Omega \tau_1}} d\omega' \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0) d\omega_0}{(\omega' - \omega_0)^2 + \omega_1^2}$$

ce qui en posant

$$h(\omega') = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0) d\omega_0}{(\omega' - \omega_0)^2 + \omega_1^2}$$

donne

$$\frac{\omega}{\Omega \tau_1} e^{\frac{\omega}{2}} \frac{1}{\omega_1} g(\omega) = \int_0^{\omega} e^{\frac{\omega'}{\Omega \tau_1}} h(\omega') d\omega'$$

puis en dérivant par rapport à  $\omega$

$$h(\omega) = \frac{1}{\omega_1^2} \left( \frac{dg(\omega)}{d\omega} + \frac{g(\omega)}{\Omega\tau_1} \right) \quad (5-2)$$

de sorte que la transformation (3-18) donne en fait, à un facteur près, la fonction  $h$  au lieu de la fonction  $f(\omega_0)$  recherchée

$$h(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0) d\omega_0}{(\omega - \omega_0)^2 + \omega_1^2} \quad (5-3)$$

Nous remarquerons alors que  $h$  est le produit de convolution de  $f(\omega_0)$  et de la fonction

$$e(\omega_0) = \frac{1}{\omega_0^2 + \omega_1^2}$$

représentant l'excitation

$$h(\omega) = f * e \quad (5-4)$$

$$h(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f(\omega_0) e(\omega - \omega_0) d\omega_0 \quad (5-5)$$

Il est à noter que la transformation de Fourier nous permettrait d'atteindre  $f(\omega_0)$ . En effet de (5-4) on tire

$$\mathcal{F}h = \mathcal{F}f \times \mathcal{F}e$$

soit

$$\mathcal{F}f = \frac{\mathcal{F}h}{\mathcal{F}e}$$

$$\text{et} \quad f = \overline{\mathcal{F}} \frac{\mathcal{F}h}{\mathcal{F}e} \quad (5-6)$$

ou  $\mathcal{F}$  et  $\overline{\mathcal{F}}$  désignent respectivement la transformée de Fourier et son inverse.

On peut alors se demander si la fonction  $h$  dépend du signe de  $\Omega$ . Nous allons montrer que si  $f(\omega_0)$  est symétrique par rapport à  $\omega_0^0$  pulsation centrale de résonance, le produit de convolution  $h$  l'est aussi et il s'ensuit qu'il n'est pas possible d'expliquer ainsi le décalage observé suivant le signe de  $\Omega$ .

$$\begin{aligned} \text{Posons} \quad \omega_0 &= \omega_0^0 + \omega_f \\ \omega &= \omega_0^0 + \omega_h \end{aligned}$$

Il s'agit de montrer que

$$h(\omega_0^0 - \omega_h) = h(\omega_0^0 + \omega_h)$$

Calculons la fonction  $h$  pour ces deux valeurs, il vient:

$$\begin{aligned} h(\omega_0^0 + \omega_h) &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0^0 + \omega_f) d\omega_f}{(\omega_0^0 + \omega_h - \omega_0^0 - \omega_f)^2 + \omega_1^2} \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0^0 + \omega_f) d\omega_f}{(\omega_h - \omega_f)^2 + \omega_1^2} \end{aligned} \quad (5-7)$$

par ailleurs puisque  $f(\omega_0^0 - \omega_f) = f(\omega_0^0 + \omega_f)$

$$h(\omega_0^0 - \omega_h) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\omega_0^0 - \omega_f) d\omega_f}{(-\omega_h + \omega_f)^2 + \omega_1^2} \quad (5-8)$$

Les deux expressions (5.7) et (5.8) sont bien identiques ce qui prouve notre assertion. La fonction  $h$  est donc comme la fonction  $f$  symétrique et centrée sur  $\omega_0^0$ . L'origine du décalage observé entre les fonctions  $h$  correspondant aux deux signes de  $\Omega$  doit donc être cherchée ailleurs.

## 5-2 INTERACTION SPIN SPIN

Nous n'avons jusqu'ici pas tenu compte de l'interaction "spin - spin" mais il apparaît à la lumière de ce qui précède qu'elle ne peut être tenue pour négligeable. Cette interaction est responsable de deux effets.

### 5-2-1 Création d'un champ local

Un spin donné crée au site de ses voisins un champ magnétique qui s'ajoute au champ  $B_0$  ce qui a pour effet de modifier la pulsation de résonance desdits voisins. Il en résulte un élargissement de la distribution des pulsations de résonance  $f(\omega_0)$  que nous avons pour but d'atteindre.

### 5-2-2 Transition mutuelle

A cause de sa précession dans le champ magnétique  $B_0$  un noyau créé au site de ses voisins une perturbation dont la pulsation est justement très proche de leur propre pulsation de Larmor puisqu'ils se trouvent dans un champ presque identique.

Si deux noyaux sont dans des états opposés, une transition mutuelle "flip-flop" peut en résulter avec une certaine probabilité fonction de la distance entre les noyaux et de la différence entre les champs locaux.

Il découle de ce processus qu'un noyau porté de l'état  $| + \rangle$  à l'état  $| - \rangle$  par la perturbation radiofréquence externe peut à son tour provoquer la transition d'un noyau non directement accessible à l'excitation initiale. Le premier noyau redevient donc sujet à la transition sous l'effet de la radiofréquence externe. Le processus est difficile à mathématiser mais on peut tenter d'en apprécier les effets qualitativement.

### 5-2-3 Influence des transitions mutuelles

Afin de mieux comprendre l'influence de ce phénomène dans nos conditions expérimentales, nous ferons d'abord quelques remarques puis nous définirons quelques termes qui faciliteront la description des interactions.

La probabilité d'occurrence de la transition mutuelle est proportionnelle à la fois au nombre de donneurs: noyaux dans l'état  $| - \rangle$ , et au nombre d'accepteurs: noyaux dans l'état  $| + \rangle$  dont la fréquence de résonance est proche de celle du donneur. Nous supposons, ainsi que le suggère la relation (3-2) que cette probabilité est symétrique par rapport à  $\omega$ , c'est-à-dire identique pour des noyaux de pulsations de résonance situées à égale distance de part et d'autre de  $\omega$ .

Ceci étant nous appellerons "pompeurs" les noyaux qui se trouvent directement soumis à l'excitation, tel que leur nombre relatif

en fonction de leur pulsation de résonance  $\omega_0$  soit pondéré par  $1/\{(\omega-\omega_0)^2 + \omega_1^2\}$  et par  $f(\omega_0)$ . Leur nombre relatif total est donc donné par l'intégrale  $I_4$  déjà rencontrée (§ 3-2 page 46).

Le nombre de noyaux "pompables" sera, dans des conditions expérimentales données, défini comme le nombre de noyaux qui effectuent la transition  $| + \rangle \rightarrow | - \rangle$  sous l'influence du phénomène de transition mutuelle.

Le nombre de noyaux "excitables" sera à une pulsation donnée, le nombre de spins qui doivent subir la transition  $| + \rangle \rightarrow | \rangle$  pour établir l'équilibre entre l'influence de l'excitation et celle de la relaxation pour une valeur donnée de la vitesse de balayage  $\Omega$ .

La réponse instantanée du système de spin à l'excitation sera donc constituée de deux composantes:

- la réponse directe, proportionnelle au nombre de spins excitables
- la réponse indirecte proportionnelle au nombre de spins pompables.

Envisageons d'abord les réponses du système de spins à deux excitations de pulsations fixes:  $\omega_- = \omega_0^0 - \Delta\omega$  et  $\omega_+ = \omega_0^0 + \Delta\omega$  équidistantes de la pulsation centrale de résonance  $\omega_0^0$  d'une raie symétrique. Nous avons alors  $f(\omega_+) = f(\omega_-)$  et les nombres des noyaux pompables et excitables sont les mêmes pour les deux fréquences. Dans ces conditions la transition mutuelle se traduit par une déformation de la distribution  $f(\omega_0)$ , car la proportion de pompables n'est pas la

même à toutes les fréquences, mais la symétrie est conservée.

Prenons maintenant le cas où la pulsation de l'excitation est donnée par  $\omega = \Omega t$ , on peut montrer que la réponse instantanée pour  $\omega_-$  est plus grande que pour  $\omega_+$ . Notons d'abord que l'excitation n'agit que sur la différence  $n_+ - n_-$  des populations des états, alors que le pompage agit sur  $n_+$ , il s'ensuit qu'à moins d'un temps de relaxation très élevé, comme dans le cas de notre échantillon de niobate de lithium à haut champ, les variations qu'entraîne le pompage sur  $n_+$  sont négligeables devant  $n_+$  et que par conséquent, tout au moins dans le cas des protons, le nombre des pompables ne dépend pas des petites variations antérieures portant sur  $n_+ - n_-$  (pas de phénomène de mémoire). Cette différence ne représente en effet que  $10^{-4}$  à  $10^{-5}$  de  $n_+$ . Lors du balayage, le nombre de pompables est donc le même pour  $\omega_-$  et  $\omega_+$  et la réponse n'est pas responsable du décalage. Le nombre d'excitables par contre diffère pour les deux fréquences. En effet, au voisinage de  $\omega_-$  le nombre de pompeurs antérieurs est plus petit qu'au voisinage de  $\omega_+$  du fait que  $f(\omega_0)$  est croissante ici et décroissante là. Il s'ensuit que le nombre d'excitables (qui n'ont pas été pompés antérieurement) est plus grand pour  $\omega_-$  que pour  $\omega_+$  quand  $\Omega$  est positif. La réponse instantanée sera donc plus grande pour le premier que pour le second, ce qui explique le décalage, y compris son signe.

Une étude expérimentale systématique serait nécessaire pour permettre de valider l'analyse qui précède, le nombre et la variété des spectres disponibles ne sont en effet pas suffisants

pour produire, par exemple, une courbe du décalage en fonction de  $\Omega$  qui serait certainement pleine d'enseignements. Une étude de la largeur des raies serait également intéressante.

Notons au passage que ce phénomène de transition mutuelle associé à un temps de relaxation élevé pourrait en principe permettre l'obtention de températures de spin négatives sans recours à un renversement du champ  $B_0$ . En effet ce phénomène est à sens unique puisqu'il ne peut que contribuer à peupler le niveau  $| \downarrow \rangle$  aux dépens du niveau  $| \uparrow \rangle$  et on peut concevoir que moyennant un temps de relaxation  $\tau_1$  et une vitesse de balayage  $\Omega$  favorables on produise une inversion de populations.

### 5-3 MODELE DU SYSTEME DE NOYAUX DE ${}^7\text{Li}$

Nous allons dans ce paragraphe présenter un modèle élémentaire pour amorcer l'analyse des courbes expérimentales obtenues.

Ce modèle est illustré par le graphique de la figure -38-

où nous avons représenté en abscisse la population relative des

quatre niveaux et en ordonnée leur énergie. Les pulsations de

résonance  $\omega_0^0$ ,  $\omega_{0-}$  et  $\omega_{0+}$  entre ces niveaux obéissent à la

relation (6) (3)

$$\omega_0^0 - \omega_{0-} = \omega_{0+} - \omega_0^0 = \frac{e^2 q Q}{\hbar} \quad (5-9)$$

Pour ce qui concerne la population nous avons supposé que la température était suffisamment haute pour qu'à l'équilibre la

distribution de Boltzman soit adéquatément approximée par une fonction linéaire ce qui est toujours vérifié dans notre cas. Nous allons, à partir de ce modèle, calculer l'aimantation  $M_0$  de l'échantillon à l'équilibre thermique.

Soit  $n_{-3}, n_{-1}, n_1, n_3$  les populations relatives des quatre niveaux  $-\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$ , l'aimantation est alors donnée par

$$M = 3(n_{-3} - n_3) + (n_{-1} - n_1) \quad (5-10)$$

à un facteur près. Le graphe de la figure -38- permet alors de déterminer l'aimantation  $M_0$  à l'équilibre à l'aide de la relation 5-9 simplement en mesurant les populations et en effectuant l'opération indiquée par (5-10). On peut alors simuler une expérience en faisant varier les conditions.

Supposons pour commencer que le balayage est rapide devant le temps de relaxation, ce qui revient à supposer que  $\tau_1$  est infini, et que par ailleurs les trois transitions sont saturées quand la fréquence d'excitation  $\omega = \Omega t$  traverse les trois valeurs  $\omega_{0-}, \omega_{00}^0$  et  $\omega_{0+}$ , c'est à dire que les populations des niveaux adjacents sont alors égalisées. On peut alors à l'aide du même graphique déterminer l'aimantation en fonction du temps de la manière suivante.

- Passage à  $\omega_{0-}$

les populations des niveaux  $-\frac{3}{2}$  et  $-\frac{1}{2}$  sont égalisées

à leur moyenne puis restent stables étant donné que le temps

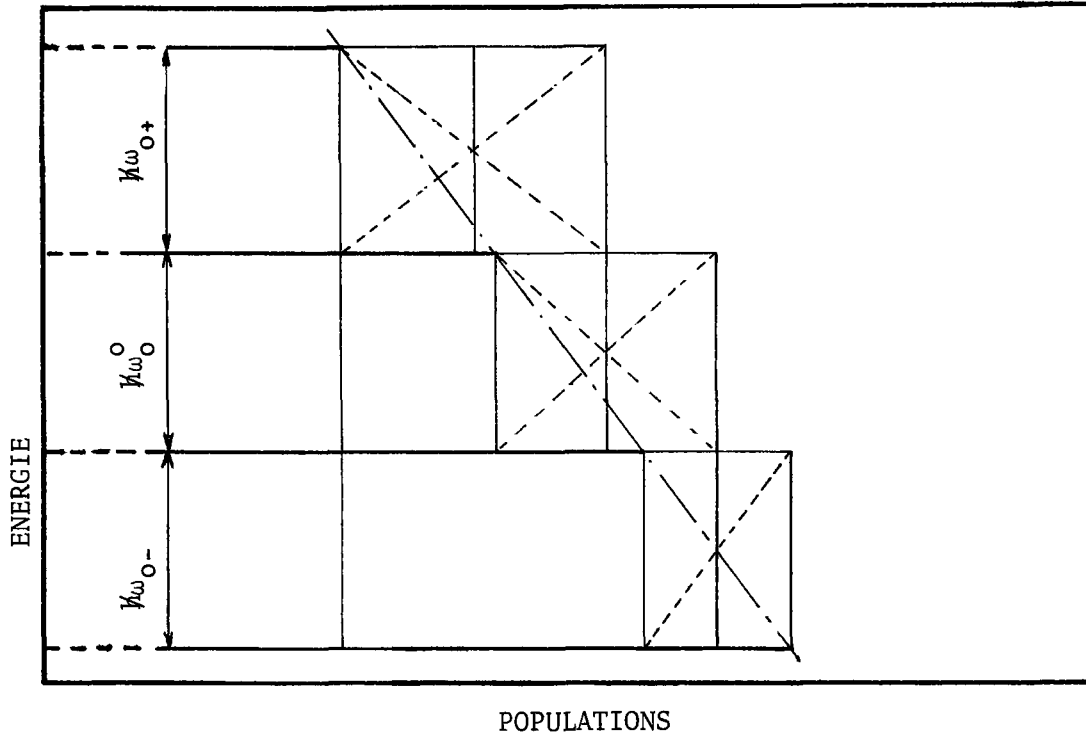


figure -38- VARIATION DES POPULATIONS

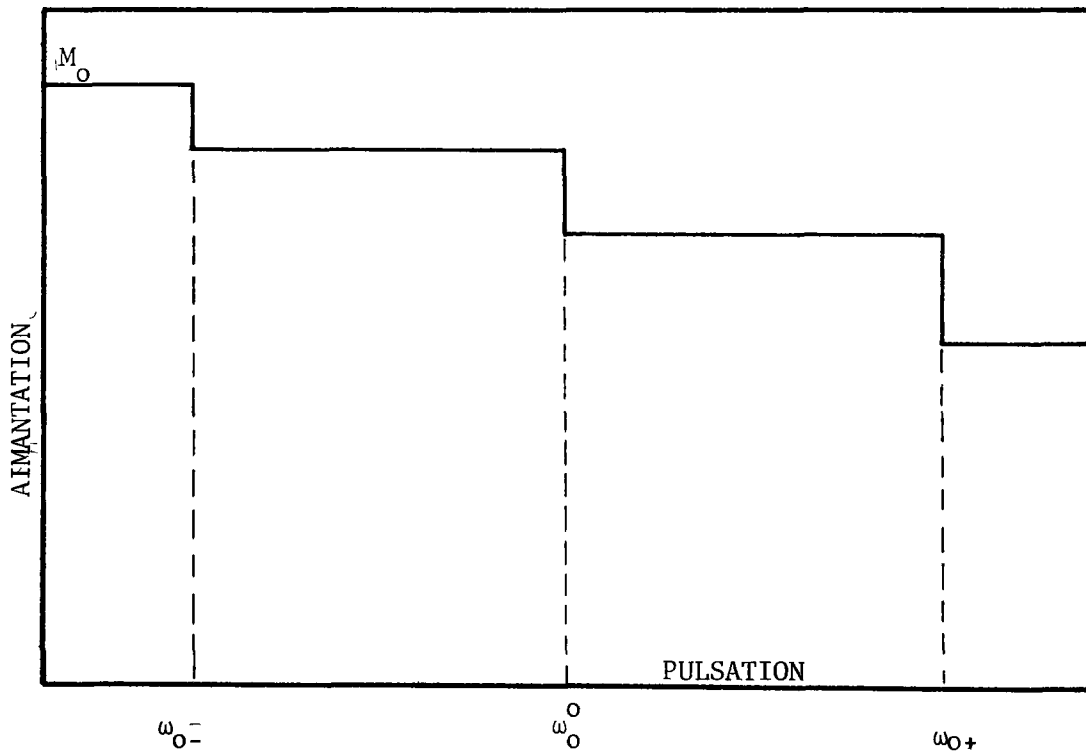


figure -39- VARIATION DE L'AIMANTATION

de relaxation est supposé infini l'aimantation prend alors la valeur  $M_b$  déterminée par la même méthode.

Passage à  $\omega_0^0$

les populations des niveaux  $-\frac{1}{2}$  et  $\frac{1}{2}$  sont égalisées et on obtient l'aimantation  $M_c$ .

Passage à  $\omega_{0+}$

les niveaux  $\frac{1}{2}$  et  $\frac{3}{2}$  sont alors en cause et l'on obtient l'aimantation  $M_d$ .

Le graphe de  $\frac{M_0 - M_z}{M_1}$  en fonction du temps prend alors l'allure

illustrée par la figure -39-. On constate que cette courbe est très éloignée des courbes expérimentales ce qui ne doit pas nous étonner étant donné la simplicité du modèle. Il est cependant intéressant de remarquer que les changements d'aimantation sont, par ordre croissant d'importance, produit par les transitions  $\omega_{0-}$ ,  $\omega_0^0$  et  $\omega_{0+}$  d'après le modèle alors que selon l'expérience la plus grande variation est produite lors de la transition  $\omega_{0-}$  (voir figures +33- et +355).

On se rend compte alors de l'importance du temps de relaxation dans le phénomène. En effet le passage par la transition  $\omega_{0-}$  perturbe l'équilibre thermique entre les niveaux  $-\frac{1}{2}$  et  $+\frac{1}{2}$  lequel a tendance à se rétablir par l'intermédiaire de l'interaction

spin réseau caractérisée par le temps de relaxation  $\tau_1$ . Le niveau  $-\frac{1}{2}$  se dépeuple alors en faveur du niveau  $\frac{1}{2}$  apportant un changement supplémentaire dans l'aimantation ce qui pourrait expliquer la forme effectivement observée.

## CONCLUSION

Le but initial de ce travail était de nature expérimentale. Il s'agissait de concevoir et de réaliser un appareil permettant d'effectuer des mesures de résonance magnétique nucléaire à basse température en tentant d'utiliser au mieux la grande sensibilité du SQUID. De ce point de vue, l'objectif a été atteint puisque le rapport signal sur bruit a effectivement été amélioré d'un ordre de grandeur en agissant sur la température et le champ  $B_0$ . Les difficultés n'ont cependant pas manqué pour atteindre ce but, elles se sont principalement présentées sous forme de problème d'étanchéité à l'hélium, de vibrations mécaniques indésirables et d'interférences entre le système de détection et le circuit radiofréquence, mais elles nous ont permis d'acquérir de l'expérience pour une amélioration ultérieure d'une technique qui n'a pas encore atteint ses limites.

Le fait que notre technique consiste à observer directement l'aimantation de l'échantillon plutôt que des signaux d'absorption ou d'émission d'énergie comme il est fréquent en spectroscopie a donné lieu à des difficultés d'interprétation des résultats et nous avons tenté d'amorcer une étude théorique

qui malheureusement dépasse bien vite la portée d'abord expérimentale de ce travail. Comme nous l'avons montré au paragraphe 3-2 nous travaillons à un niveau de saturation élevé et il n'est plus possible de considérer que la mesure ne perturbe pas la distribution naturelle des fréquences de résonance du système. Il serait intéressant de poursuivre cette analyse théorique car les phénomènes observés sont significatifs et permettraient vraisemblablement une nouvelle mesure des paramètres internes du matériau des échantillons. Des études plus systématiques d'échantillons divers apporteraient des réponses à des questions que nous nous sommes posées au cours de cette étude, l'une d'elle concerne la dépendance par rapport à  $\Omega$ ,  $T$ ,  $B_0$ , et  $B_1$  de  $h(\omega)$ .

En ce qui concerne les signaux du lithium on envisage une simulation à l'ordinateur pour tenter de reproduire, sinon totalement, du moins certaines caractéristiques des courbes obtenues. Nous avons émis l'hypothèse que la forme des spectres observés est due à un allongement considérable du temps de relaxation spin-réseau et nous avons effectivement observé que l'application de la relation 3-18 découpe les trois pics du signal. Il faut cependant mentionner qu'une autre explication plausible serait un échauffement du réseau par transformation en vibrations de l'énergie radiofréquence absorbée par les noyaux. La question

n'en reste cependant pas moins posée de savoir pourquoi cette absorption ne se manifeste qu'en champ élevé et il est peu vraisemblable que le refroidissement de l'échantillon nécessite des temps de l'ordre d'une heure. Comme on le voit donc, ce travail n'a pas atteint l'achèvement mais il aurait été trop ambitieux de le viser dans le cadre limité d'une thèse de maîtrise de physique.

REFERENCES

- (1) Detection of N.M.R. using a Superconducting Quantum Interference Device par R. G. Goodchild.  
Université d'Ottawa, 1975
- (2) Principles and methods of low frequency electric and magnetic measurements using an r.f. biased point-contact superconducting device par Giffard, Webb et Wheatley.  
Journal of low temperature physics, 6,533, 1972.
- (3) Principes de magnétisme nucléaire par Abragam.  
Presse Universitaire de France.
- (4) N.M.R. below 1 K with a SQUID magnetometer par  
M.D. O'Connell, thèse de maîtrise, Université d'Ottawa  
1977
- (5) Mécanique quantique 1 et 2 par Cohen-Tannoudji, Diu  
et Laloe, Hermann. Chapitre 4 et compléments.
- (6) Nuclear magnetic resonance par Andrew. University press  
1955. Chapitre 8

APPENDICE

Nous présentons dans cet appendice, un exemple de programme qui a permis de calculer la transformée du spectre de la figure 22 pour différents temps de relaxation.

```
IRTRAN IV G LEVEL 21 ----- MAIN DATE = /8186 15/17/
----- C XMIN: W MINIMUM XMAX: W MAXIMUM YMIN: H MINIMUM YMAX: H MAXIMUM -----
0001 SUBROUTINE PLOT2(A,M,NZ,XMAX,XMIN,YMAX,YMIN)
0002 DIMENSION A(4,100),T(11)
0003 INTEGER GRAPH(101)/101*' ' //,SPACE/' ' //,POINT(10)/'0','1','2','3',
1'4','5','6','7','8','9' //,PLUS/'+' //,STAR/'*' //,IO/6/
0004 N=NZ
0005 WRITE(6,2000)
0006 2000 FORMAT('1')
0007 STEP=(XMAX-XMIN)/(N-1)
0008 CONS=100./(YMAX-YMIN)
0009 IY0=-YMIN*CONS+1
0010 IF(-YMIN*CONS+1-IY0.GT.0.5)IY0=IY0+1
0011 IC=2
0012 IF((IY0.LT.1).OR.(IY0.GT.101)) IC=1
0013 DY=(YMAX-YMIN)/10.
0014 DO 33 I=1,11
0015 T(I)=YMIN+(I-1)*DY
0016 33 GRAPH(10*(I-1)+1)=STAR
0017 WRITE(6,35)(T(I),I=1,11),((GRAPH(J),J=1,101),K=1,3)
0018 35 FORMAT(/'T19,11F10.5/3(T27,101A1/),T27,101(' '*')/)
0019 DO 37 I=1,11
0020 37 GRAPH(10*(I-1)+1)=SPACE
0021 DO 65 I=1,N
0022 GO TO (40),IC
0023 GRAPH(IY0)=PLUS
0024 40 X=XMIN+(I-1)*STEP
0025 DO 45 J=1,M
0026 IY=(A(J,I)-YMIN)*CONS+1
0027 IF((A(J,I)-YMIN)*CONS+1-IY.GT.0.5)IY=IY+1
0028 GRAPH(IY)=POINT(J)
0029 45 CONTINUE
0030 WRITE(6,50)X,(GRAPH(K),K=1,101)
0031 50 FORMAT('1',7X,E12.5,7X,101A1)
0032 DO 60 K=1,101
0033 GRAPH(K)=SPACE
0034 60 CONTINUE
0035 RETURN
0036 END
```

```

01 REAL IMAX(6), IMIN(6)
02 DIMENSION W(2,80),G(2,80),P(2,80),HH(2,80,6),A(4,100),TAU(6),N(2)
03 DIMENSION Y(80),Z(80)
04 DATA IMAX/6*0./,IMIN/6*0./,HH/960*0./,TAU/6*0./,A/400*0./
05 DATA Z/80*0./
06 IER = 0
07 M=4
08 READ(5,150)DELW,OMEGA
09 150 FORMAT(F8.1,1X,F6.0)
10 H=DELW
11 READ(5,151)TAU(1),DELTAU,TAUFIN
12 151 FORMAT(3(F3.1,1X))
13 GMAX=0
14 DO 11 I=1,2
15 READ(5,152)W(I,1)
16 152 FORMAT(F9.0)
17 READ(5,153)N(I)
18 153 FORMAT(I2)
19 READ(5,2)(G(J,J),J=1,80)
20 2 FORMAT(8(10F6.2/))
21 NX=N(I)
22 DO 1 K=1,NX
23 W(I,K)=W(I,1)+(K-1)*DELW
24 IF(GMAX.LT.G(I,K))GMAX=G(I,K)
25 1 CONTINUE
26 DO 12 KK=1,NX
27 Y(KK)=G(I,KK)
28 12 CONTINUE
29 NDIM=NX
30 CALL DET5(H,Y,Z,NDIM,IER)
31 DO 13 J=1,NX
32 P(I,J)=Z(J)*(3-2*I)
33 13 CONTINUE
34 11 CONTINUE
35 XMAX=W(1,N(1))
36 XMIN=W(2,1)
37 NZ=(XMAX-XMIN)/DELW+1.5
38 L=(W(1,1)-W(2,1))/DELW+.5
39 LL=(W(2,N(2))-W(1,1))/DELW+1+.5
40 LLI=(W(1,N(1))-W(2,N(2)))/DELW+.5
41 NY=(TAUFIN-TAU(1))/DELTAU+1
42 DO 5 J=1,NY
43 TAU(J)=TAU(1)+(J-1)*DELTAU
44 DO 55 I=1,2
45 NX=N(I)
46 DO 55 K=1,NX
47 HH(I,K,J)=G(I,K)/OMEGA/TAU(J)+P(I,K)
48 IF(IMAX(J).LT.HH(I,K,J))IMAX(J)=HH(I,K,J)
49 IF(IMIN(J).GT.HH(I,K,J))IMIN(J)=HH(I,K,J)
50 55 CONTINUE
51 55 CONTINUE
52 5 CONTINUE
53 WRITE(6,100)((TAU(J),J=1,NY),JJ=1,2)
54 100 FORMAT('1',34X,'ALLER',56X,'RETOUR',/,' ',2(4X,'G',5X,
* 'G',5X,'H',3X,5(4X,'H',3X))/,' ',10E6',2(8X,'10E6',1X,6(1X,
* 'T1=',F4.2))/,' ',RD/SEC',4X,'MM',2X,'SEC/RD',51X,'MM',2X,
* 'SEC/RD')
55 DO 101 I=1,L
56 101 WRITE(6,102)W(2,I),G(2,I),P(2,I),(HH(2,I,K),K=1,NY)
57 102 FORMAT('1',-6PF7.4,62X,0PF6.1,6PF7.1,6(6PF8.1))
58 DO 103 I=1,LL
59 103 WRITE(6,104)W(?,I+L),G(1,I),P(1,I),(HH(1,I,K),K=1,6),G(2,L+I),P(2,
* L+I),(4H(2,L+I,K),K=1,6)
60 104 FORMAT('1',-6PF7.4,1X,2(0PF6.1,6PF7.1,6(6PF8.1)))
61 DO 105 I=1,LLI
62 105 WRITE(6,106)W(I,N(1)-LLI+I),G(1,N(1)-LLI+I),P(1,N(1)-LLI+I),(HH(1,
* N(1)-LLI+I,K),K=1,6)
63 106 FORMAT('1',-6PF7.4,1X,0PF6.1,6PF7.1,6(6PF8.1))
64 DO 1000 J=1,NY
65 DO 6 I=1,2
66 NX=N(I)
67 DO 6 K=1,NX
68 A(I,K+L*(2-I))=IMAX(J)*G(I,K)/GMAX
69 6 A(I+2,K+L*(2-I))=HH(I,K,J)
70 YMAX=IMAX(J)
71 YMIN=IMIN(J)
72 CALL PLOT2(A,M,NZ,XMAX,XMIN,YMAX,YMIN)
73 1000 CONTINUE
74
75

```