



HAL
open science

Résonance magnétique en champ de radiofréquence inhomogène - 2 e partie : Vérifications expérimentales ; mesure du coefficient de self-diffusion de ^3He

René Barbé, M. Leduc, F. Laloë

► **To cite this version:**

René Barbé, M. Leduc, F. Laloë. Résonance magnétique en champ de radiofréquence inhomogène - 2 e partie : Vérifications expérimentales ; mesure du coefficient de self-diffusion de ^3He . Journal de Physique, 1974, 35 (12), pp.935-951. 10.1051/jphys:019740035012093500 . jpa-00208218

HAL Id: jpa-00208218

<https://hal.science/jpa-00208218>

Submitted on 4 Feb 2008

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

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

Classification
 Physics Abstracts
 8.610 — 6.140

RÉSONANCE MAGNÉTIQUE EN CHAMP DE RADIOFRÉQUENCE INHOMOGÈNE 2^e partie : Vérifications expérimentales ; mesure du coefficient de self-diffusion de ³He

R. BARBÉ, M. LEDUC et F. LALOË

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S. (*),
 24, rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

(Reçu le 24 mai 1974, révisé le 2 juillet 1974)

Résumé. — On vérifie en détail les calculs théoriques d'un article précédent sur les formes inhabituelles de courbes de résonance en champ de radiofréquence inhomogène. Les expériences sont réalisées sur du gaz de ³He orienté par pompage optique. Les différents effets prévus sont observés et étudiés (forme des deux courbes, large et étroite, différents types de déplacement des positions de la résonance, etc...). Ces expériences fournissent une mesure du coefficient de self-diffusion gazeux de ³He à 300 K :

$$D_{33} = 1\,440 \pm 80 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ à } 1 \text{ torr} .$$

Abstract. — We report a detailed experimental verification of the theoretical predictions of a previous paper concerning the unusual shapes exhibited by the resonance curves when the RF field is inhomogeneous. The experiments are performed with ³He gas oriented by optical pumping. The various predicted effects are observed (shape of the broad and narrow resonance curves, shifts of the resonance position arising from different origins, etc.). From these experiments one derives a measurement of the self-diffusion coefficient of gaseous ³He at 300 K :

$$D_{33} = 1\,440 \pm 80 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ at } 1 \text{ torr} .$$

Introduction. — Dans un précédent article [1], nous avons présenté une étude théorique détaillée de l'effet d'un champ de radiofréquence inhomogène sur un système de spins en mouvement. Le présent article décrit une série d'expériences qui ont été entreprises dans le but de vérifier ces prévisions théoriques. Rappelons brièvement les phénomènes attendus. Dans une expérience de résonance magnétique où le champ de radiofréquence est très inhomogène, nous avons montré que les variations de l'aimantation longitudinale globale des spins donnent des formes de courbe de résonance souvent assez inhabituelles : on obtient une superposition de deux courbes de largeurs très différentes (désignées par courbe *large* et courbe *étroite*), dont les caractéristiques (forme, largeur) dépendent de la carte du champ de radiofréquence.

La courbe *large* s'interprète comme le résultat d'un processus de relaxation résonnante provoqué par les inhomogénéités du champ de radiofréquence ;

ce processus dépend essentiellement du mouvement des atomes dans le champ. Dans le cas où ce mouvement correspond à un régime de diffusion gazeuse, on peut en déduire une nouvelle méthode générale pour mesurer les coefficients de diffusion des gaz, assez simple d'emploi et qui présente l'intérêt de s'appliquer à la mesure du coefficient de self-diffusion d'un gaz.

La courbe *étroite* prend des formes variées selon les configurations des inhomogénéités des champs statique et de radiofréquence. En particulier, s'il existe une corrélation spatiale entre les différentes composantes de ces deux champs, des effets inhabituels sont attendus : la courbe *étroite* peut se présenter comme la superposition d'une courbe de dispersion et d'une courbe d'absorption, positive ou négative. De plus, on prévoit d'importants déplacements pour la position de cette résonance *étroite*.

Nous avons donc entrepris une vérification expérimentale de tous ces effets sur la résonance magnétique nucléaire des atomes de ³He dans l'état fondamental, dont l'orientation est obtenue par pompage

(*) Associé au C.N.R.S. n° 18.

optique du gaz d'hélium soumis à une décharge faible. Toutefois, il est clair que les mêmes expériences pourraient aussi bien être répétées avec d'autres éléments. Le cas particulier de ^3He a été choisi pour des raisons de simple commodité et ne restreint en rien la généralité des phénomènes présentés.

Signalons que de brefs résumés des principaux résultats théoriques et expérimentaux sur ce sujet ont déjà été publiés [2], [3].

1. Principe de l'expérience. — 1.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL. — La méthode d'orientation nucléaire d'un gaz de ^3He par pompage optique a déjà fait l'objet de nombreuses publications [4], [5]; nous ne reviendrons donc pas ici sur sa description. Rappelons simplement que la cellule de résonance étudiée contient du gaz de ^3He dans lequel est entretenue une décharge faible. Le processus de pompage optique *indirect* [6] y produit, parallèlement à une direction fixe Oz , une certaine orientation nucléaire M_z^S des atomes dans l'état fondamental 1^1S_0 (rappelons que l'isotope ^3He possède un spin nucléaire $I = \frac{1}{2}$); cette orientation est couramment de l'ordre de 5%. Dans cette expérience, l'observable atomique détectée est, dans tous les cas, M_z , orientation nucléaire longitudinale globale de la vapeur dans la direction Oz (direction qui est aussi celle du champ magnétique statique B_0 appliqué à la cellule). La méthode de détection optique employée est décrite dans la référence [7]; elle permet de détecter M_z avec un très bon rapport signal sur bruit.

Les cellules de résonance sont sphériques, généralement de rayon $R \approx 3$ cm, et renferment une vapeur dont la pression p est comprise entre 0,1 et 5 torr. Dans ces conditions, le libre parcours moyen \bar{l} des atomes dans le gaz est faible ($\bar{l} \lesssim 3$ mm), toujours bien inférieur aux dimensions des cellules : le mouvement des atomes ^3He est régi par un processus de diffusion. A partir des valeurs des coefficients de diffusion de l'hélium données par d'autres auteurs [8] [9], on peut évaluer l'ordre de grandeur des temps caractérisant les modes de diffusion les plus lents pour les atomes de ^3He dans nos expériences; on trouve :

$$2 \times 10^{-4} < \tau_d < 8 \times 10^{-3} \text{ s} \quad (1)$$

Comparons τ_d aux temps de relaxation longitudinale T_1^0 et transversale T_2^0 de l'orientation nucléaire de ^3He . On sait qu'à température ordinaire, dans une expérience de pompage optique de ^3He , les temps T_1^0 sont très longs (couramment plusieurs dizaines de secondes), très supérieurs aux temps T_2^0 (qui sont déterminés par l'échange de métastabilité dans la décharge [4] [5] [6]) :

$$0,1 < T_2^0 < 10 \text{ s} . \quad (2)$$

On voit donc, en comparant (1) et (2), que la condition

$$\tau_d \ll T_2^0 \quad (3)$$

est toujours satisfaite dans nos expériences (c'est l'inégalité (A.13) de [1] qui assure que la courbe liée à la partie inhomogène est beaucoup plus large que la résonance habituelle).

Pour obtenir les champs statique et de radiofréquence inhomogènes, nous avons utilisé différents dispositifs expérimentaux que nous décrirons au fur et à mesure, selon les effets à mettre en évidence. Le plus souvent, nous avons créé les gradients de champ à l'aide de paires de bobines en position de Helmholtz connectées en opposition (bobines dites en *Holtzhelm* [5]). Les lignes de champ magnétique ont, dans ce cas, l'allure représentée sur la figure 1a : on voit que cette configuration de champ est impaire (chaque composante du vecteur axial B est changée en son opposée dans une opération de symétrie par rapport à l'origine). Il nous est également arrivé d'utiliser des configurations de champ paires, comme c'est le cas avec une bobine unique de faible diamètre centrée sur la cellule (voir Fig. 1b). Enfin, nous nous sommes parfois servis d'un montage composé de deux fils parallèles parcourus par des courants alternatifs de même intensité et en phase : cette configuration, qui est impaire (voir Fig. 1c), présente l'intérêt de fournir un champ magnétique situé dans un plan (il n'a pas de composante parallèle à la direction des fils).

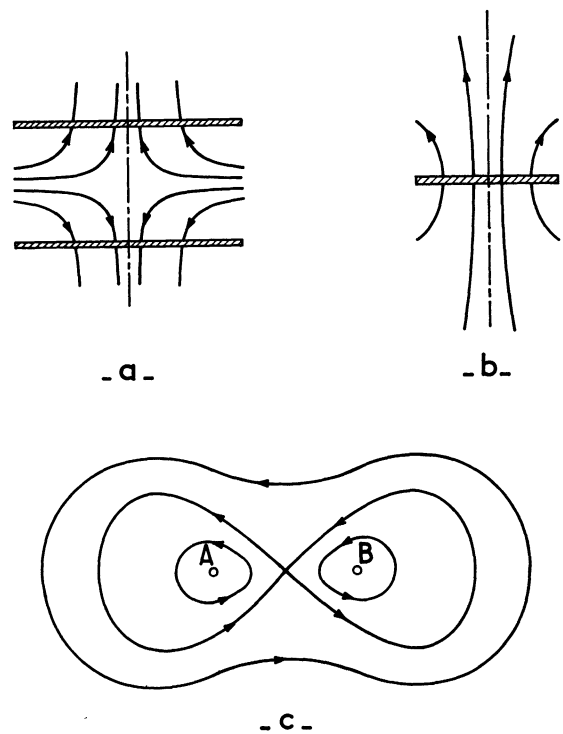


FIG. 1. — Allure des différentes configurations de champ magnétique inhomogène : a) bobines en position de Helmholtz connectées en opposition (bobines dites de *Holtzhelm*); b) bobine unique; c) 2 fils A et B perpendiculaires au plan de la figure et parcourus par un courant de même sens. Les configurations (a) et (b) donnent des champs de révolution, la configuration (c) un champ parallèle au plan de la figure.

Pour le champ statique B_0 , nous avons couramment adopté la valeur : $B_0 \simeq 10$ gauss ; compte tenu du rapport gyromagnétique nucléaire de ^3He :

$$\gamma = 2 \pi \times 3,24 \text{ kHz/G}, \quad (4)$$

ceci correspond à une fréquence de résonance : $\omega/2 \pi \simeq 32 \text{ kHz}$ et, en utilisant (1), on voit que :

$$\omega \tau_d > 40 \gg 1 \quad (5)$$

(condition (A.15a) de [1]).

Nous avons mené les expériences de deux façons différentes : d'une part, nous avons enregistré des courbes de résonance magnétique en balayant la valeur du champ statique d'une petite quantité autour de la résonance ; d'autre part, nous avons utilisé une technique de transitoires pour mesurer directement les constantes de temps de la relaxation nucléaire.

1.2 MISE EN ÉVIDENCE DE LA FORME ANORMALE DES COURBES DE RÉSONANCE. — Le champ statique homogène B_0 étant produit dans la direction Oz , nous avons appliqué à la cellule de ^3He un champ radiofréquence B_1 très inhomogène à l'aide de bobines en *Holtzheim* d'axe Ox perpendiculaire à Oz (voir Fig. 2). Nous avons ainsi enregistré des courbes

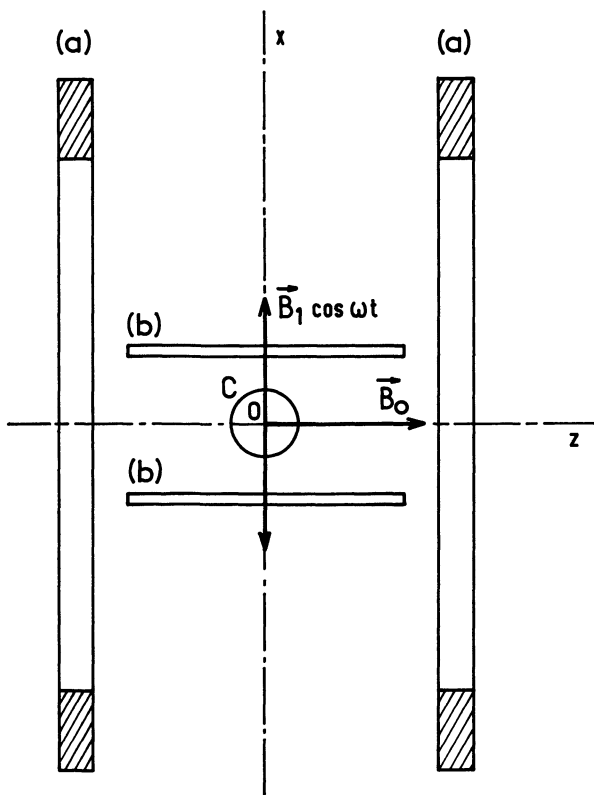


FIG. 2. — Dispositif de bobines créant les champs magnétiques : a) bobines connectées en Helmholtz créant un champ magnétique statique B_0 parallèle à Oz ; b) bobines connectées en Holtzheim créant un champ magnétique oscillant $B_1 \cos \omega t$ très inhomogène sur le volume de la cellule C (les dimensions relatives de la cellule et des bobines sont respectées sur la figure).

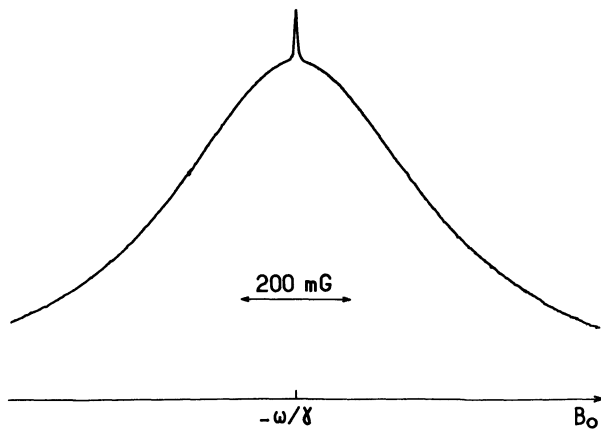


FIG. 3. — Courbe de résonance magnétique nucléaire de ^3He enregistrée avec un champ de radiofréquence très inhomogène (dispositif de la figure 2). Pression du gaz : $p = 0,5$ torr ; rayon de la cellule : $R = 3$ cm ; fréquence de résonance : $\omega/2 \pi = 32 \text{ kHz}$.

analogues à celle de la figure 3. Celle-ci apparaît bien comme une superposition de deux courbes de largeurs très différentes, centrées à la même valeur du champ magnétique statique, comme prévu par le modèle simple développé au § A de [1].

La courbe large présente une forme très sensiblement lorentzienne. Elle apparaît comme non totalement saturée. Sa largeur ΔB mesurée ($\Delta B \simeq 500 \text{ mG}$) est bien, en unités de pulsations ($L = \gamma \Delta B$), du même ordre de grandeur que les valeurs de $1/\tau_d$ données par (1) (cf. formule (A.12) de [1]).

La courbe étroite est également une courbe d'absorption. Nous attribuons son existence au fait que le champ de radiofréquence n'est pas parfaitement inhomogène (il possède, en moyenne sur le volume de la cellule, une certaine partie homogène ω_1 non nulle). L'observation de la courbe étroite d'absorption positive est conforme aux prévisions du § A.2 de [1]. En particulier, sa largeur l (l mesuré $\simeq 1 \text{ mG}$) est bien du même ordre de grandeur que $1/T_2^0$ dont les valeurs sont données par (2) ; (cf. formule (A.21) de [1]).

De façon à confirmer cette interprétation, nous avons cherché à annuler exactement la partie homogène ω_1 du champ de radiofréquence sur le volume de la cellule. Pour cela, nous avons alimenté séparément chacune des deux bobines (b) de la figure 2 ; en jouant simultanément sur l'amplitude et la phase des deux tensions alternatives appliquées à ces bobines, nous avons annulé ω_1 . Dans ces conditions, on parvient à faire disparaître complètement la courbe étroite : la courbe large apparaît alors seule, comme le montre la courbe (B) de la figure 4, qui est à peu près à mi-saturation.

Dans une seconde étape, nous avons changé de π la phase relative des deux tensions appliquées aux bobines (b) : celles-ci deviennent ainsi des bobines de Helmholtz produisant un champ de radiofréquence homogène ω_1 intense. On enregistre alors la courbe (A)

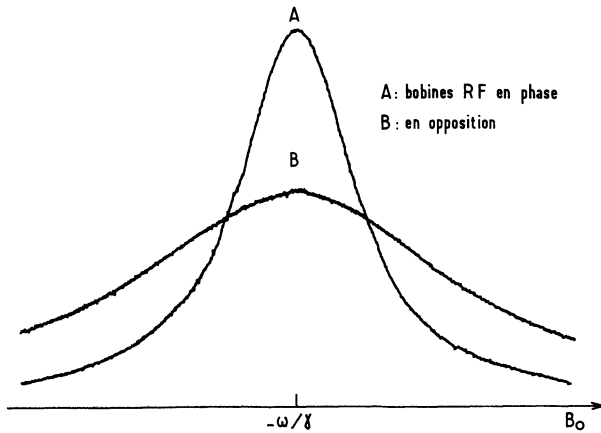


FIG. 4. — Courbes de résonance magnétique nucléaire de ³He : A) les bobines (b) de la figure 2 sont connectées en Helmholtz et le champ de radiofréquence est homogène ; B) le champ de radiofréquence est très inhomogène ; les bobines (b) de la figure 2 sont connectées en Holtzhelm (la tension appliquée à chacune des bobines est la même que pour A).

de la figure 4, qui est simplement une courbe de résonance lorentzienne du type habituel, mais ici très fortement saturée.

Ces deux expériences confirment donc le fait que l'existence de la courbe large de la figure 3 est bien liée à la présence d'une composante inhomogène du champ de radiofréquence.

2. Etude de la courbe large ; mesure du coefficient de diffusion de l'hélium. — 2.1 COMPORTEMENT RÉSONNANT DE L'AIMANTATION LONGITUDINALE. —

2.1.1 Influence de l'intensité du champ de radiofréquence. — Nous avons repris l'expérience précédente (montage de la figure 2) avec les bobines (b) de radiofréquence en Holtzhelm (le champ RF très fortement inhomogène présentant une petite partie homogène à la même fréquence). Nous avons alors fait varier son intensité : le réseau de courbes de résonance correspondant est montré sur la figure 5.

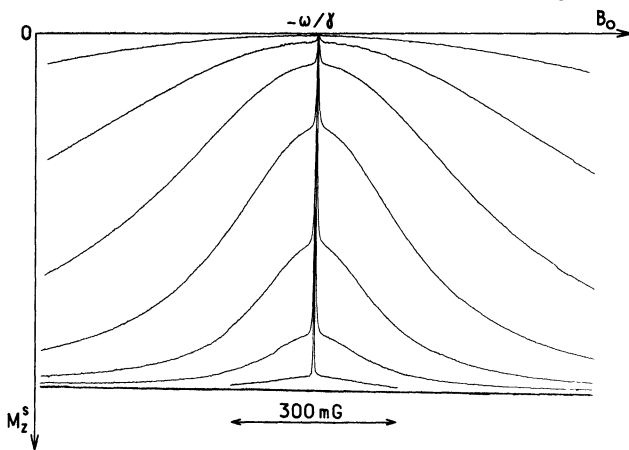


FIG. 5. — Courbes de résonance magnétique nucléaire de ³He enregistrées en champ RF fortement inhomogène, pour des tensions croissantes appliquées aux bobines RF

($p = 0,39$ torr ; $\omega/2\pi = 32$ kHz).

Aux faibles valeurs du champ RF la courbe fine est pratiquement seule présente ; pour des valeurs plus grandes, la courbe large devient importante et finit par manger la courbe fine.

Pour l'interpréter, on doit se reporter simultanément aux formules (A.11) et (A.20) du modèle simple de [1]. A cause de l'inégalité $1/T_2^0 \ll 1/\tau_d$, il est clair que la courbe étroite est généralement beaucoup plus facile à saturer que la courbe large (à moins que la partie homogène du champ oscillant n'ait été très soigneusement annulée) : aux faibles intensités du champ RF, la courbe étroite apparaît donc la première. Puis, lorsque ce champ augmente, la courbe large se manifeste à son tour ; elle croît, tout en s'élargissant, conformément aux prévisions de [1]. Finalement, aux fortes intensités de radiofréquence, la courbe étroite est pratiquement mangée par la courbe large.

On constate que les courbes larges enregistrées sont sensiblement lorentziennes : ceci signifie qu'avec la configuration de champ RF utilisée, l'un des modes de diffusion est beaucoup plus favorisé que les autres et apparaît seul en pratique. En fait, il est clair qu'étant donnée la symétrie impaire du champ RF créé (voir Fig. 1a), seuls des modes de diffusion correspondant à des valeurs de l impaires sont susceptibles d'apparaître (voir par exemple la formule (B.31) du modèle complet de [1]). De plus, si la taille de la cellule est petite devant celle des bobines, les variations du champ peuvent, en première approximation, être considérées comme linéaires ; dans ces conditions, dans la décomposition (B.31) de [1] seuls subsistent les termes correspondant au mode 3 fois dégénéré $l = n = 1$; par suite le temps de diffusion qui inter-

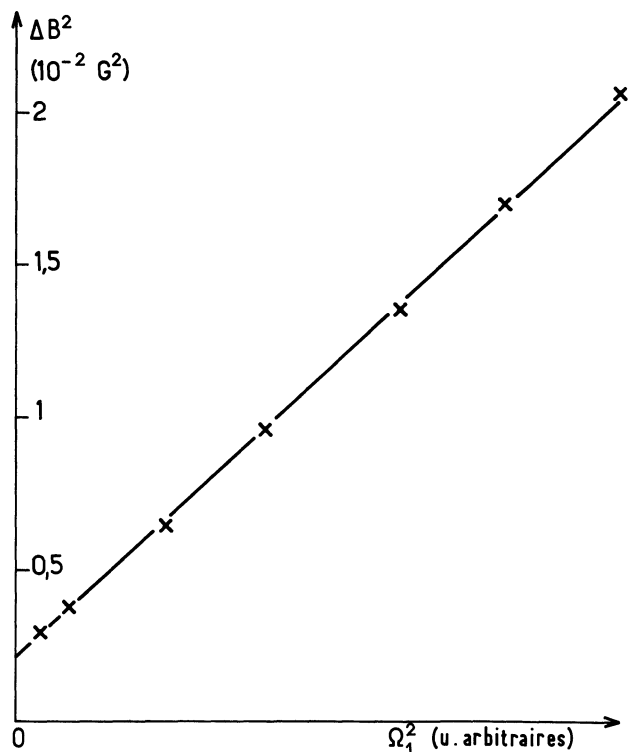


FIG. 6. — Carré des largeurs à mi-hauteur des courbes larges lorentziennes, en fonction du carré de l'intensité du champ de radiofréquence inhomogène ($p = 0,4$ torr ; $R = 5,8$ cm).

vient principalement dans le problème est τ_{11} , donné par :

$$\frac{1}{\tau_{11}} = \frac{4,31 D}{R^2} \quad (6)$$

où R est le rayon de la cellule sphérique et D le coefficient de diffusion, inversement proportionnel à la pression p du gaz.

Nous avons porté sur la figure 6 le carré de la largeur ΔB de la courbe large, en fonction du carré de l'intensité du champ de radiofréquence. On trouve bien une variation linéaire, conformément à la relation (A.12) de [1] ⁽¹⁾. La largeur ΔB^0 , obtenue après extrapolation à intensité nulle du champ de radiofréquence, fournit une mesure du temps de diffusion τ_{11} des atomes de ^3He dans la cellule. Nous reviendrons plus en détail sur ce point au § 2.3 suivant.

2.1.2 Influence de la pression et de la taille de la cellule. — Nous avons fait varier la pression p du gaz entre 0,1 et 5 torr, et avons utilisé des cellules sphériques de trois tailles différentes. Dans chaque cas, nous avons déterminé la largeur ΔB^0 de la courbe large extrapolée à intensité de radiofréquence nulle. Sur la figure 7, nous avons porté en ordonnées le temps de diffusion τ_{11} déduit des mesures de ΔB^0 , en fonction de p . Ces résultats sont à comparer à la formule (6). On constate que, pour chaque valeur du rayon R , τ_{11} est bien proportionnel à p . On voit aussi sur la figure 7 que, pour une valeur donnée de p , τ_{11} est sensiblement proportionnel à R^2 . En d'autres termes, les valeurs de D déduites des pentes de chacune des trois droites de la figure 7, correspondant à trois rayons R différents, sont compatibles entre elles; nous discuterons la précision de ces mesures au § 2.3. Ces résultats confirment sans ambiguïté le rôle joué par les processus de diffusion dans le problème étudié.

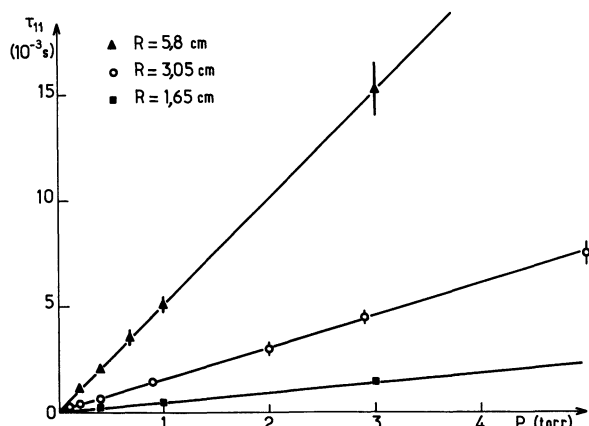


FIG. 7. — Temps de diffusion τ_{11} déduit de la largeur ΔB^0 des courbes larges (après extrapolation à $\Omega_1 = 0$). p : pression de ^3He dans la cellule. Les trois droites correspondent à 3 valeurs différentes du rayon R de la cellule. Leurs pentes sont bien proportionnelles à R^2 .

⁽¹⁾ Comme un seul mode de diffusion intervient ici, on peut se contenter des résultats théoriques du modèle simple (§ A de [1]).

2.1.3 Autres modes de diffusion. — Nous avons vu au § 2.1.1 qu'avec les bobines (b) de la figure 2 en Holtzheim, seuls les modes de diffusion $l = 1$ intervenaient dans le problème. Nous avons ensuite cherché à fabriquer des configurations de champ radiofréquence différentes et plus complexes, de façon à faire apparaître d'autres modes de diffusion. Si plusieurs modes sont présents simultanément, le modèle simple du § A de [1] n'est plus suffisant; il faut utiliser les résultats du § B, et en particulier reporter l'expression (B.34) dans (C.1) pour obtenir les variations de l'aimantation longitudinale; celles-ci ne correspondent plus à une seule courbe lorentzienne, mais à une superposition de telles courbes de largeurs différentes.

Expérimentalement, nous avons bien mis ce fait en évidence, par exemple avec une bobine de radiofréquence unique de petite taille centrée sur la cellule (voir Fig. 1b). La symétrie paire du champ ainsi créé entraîne que les modes de l pairs ont une importance prépondérante. En fait, les modes $l = 2$ et $l = 4$ interviennent avec des poids du même ordre de grandeur dans nos conditions expérimentales. On enregistre alors des courbes larges analogues à celle de la figure 8 : celle-ci est visiblement non lorentzienne; sa décomposition en deux courbes de Lorentz est visible sur la figure 8 (la courbe ne comporte pas de résonance fine, car l'intensité du champ RF est assez forte pour saturer les résonances larges liées à la partie inhomogène de ce champ). Cette étude des différents modes de diffusion sera reprise avec plus de détail au § 2.2.3.

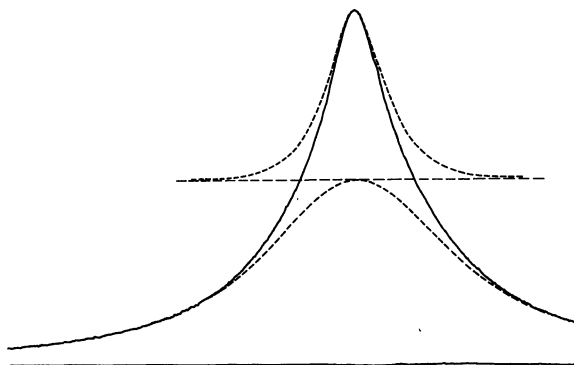


FIG. 8. — Courbe de résonance magnétique nucléaire de ^3He enregistrée avec une configuration particulière du champ de radiofréquence inhomogène, créé par une bobine unique centrée sur la cellule (champ pair). On a indiqué en pointillés la décomposition en deux courbes de Lorentz, qui correspondent aux modes de diffusion pairs $l = 2, n = 1$ et $l = 4, n = 1$.

2.2 PROBABILITÉ RÉSONNANTE DE RELAXATION LONGITUDINALE. — Nous avons mené une étude parallèle à celle du § 2.1 par une autre méthode, qui consiste à mesurer directement le temps de relaxation T_1 de l'aimantation longitudinale M_z et non plus la valeur stationnaire M_z^S de cette aimantation. La technique employée est celle des transitoires de pompage optique : à partir d'un instant initial où la vapeur possède

de l'orientation M_z^S , on applique brusquement le champ de radiofréquence inhomogène, tout en coupant simultanément le faisceau lumineux de pompage ; on enregistre alors les variations de M_z en fonction du temps ; M_z décroît exponentiellement vers une valeur limite nulle, avec une constante de temps juste égale à T_1 . Ces mesures peuvent être répétées à différentes valeurs du champ statique B_0 : on a ainsi une méthode d'étude de la résonance qui est en quelque sorte la transformée de Fourier de la méthode par enregistrement des courbes de résonance magnétique.

2.2.1 Influence de l'intensité des champs magnétiques. — Le champ de radiofréquence est dans cette expérience produit par les bobines (b) en Holtzheim de la figure 2. Pour une valeur fixe de la fréquence et de l'intensité de ce champ de radiofréquence, nous avons enregistré une série de transitoires correspondant à des valeurs différentes du champ statique B_0 , s'éloignant de plus en plus de la valeur de résonance ($B_0 = -\omega/\gamma$). Ces signaux sont visibles sur la figure 9. On vérifie bien que la décroissance de M_z

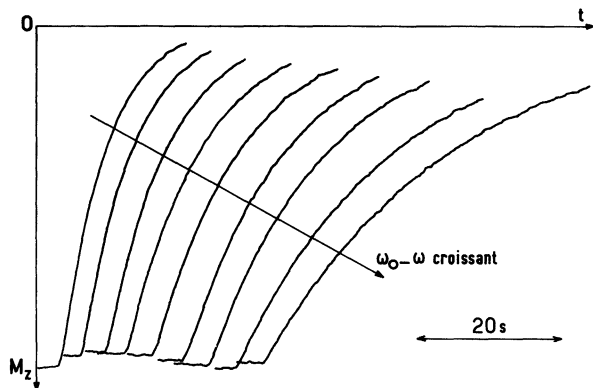


FIG. 9. — Signaux transitoires donnant la décroissance exponentielle de l'orientation nucléaire longitudinale M_z de ^3He en fonction du temps, lorsqu'on applique le champ de radiofréquence inhomogène (en coupant simultanément le faisceau de pompage). Les différentes constantes de temps correspondent à un écart croissant des valeurs de B_0 par rapport à la valeur de résonance — ω/γ .

est exponentielle pour chaque valeur de B_0 . La constante de temps de l'exponentielle s'allonge quand B_0 s'écarte de la résonance, conformément à la formule (A.6) de [1]. La transitoire la plus lentement amortie de la figure 9 correspond à l'évolution de M_z quand on coupe le faisceau de pompage sans brancher le champ de radiofréquence inhomogène : elle donne une mesure directe du temps de relaxation T_1^0 qui intervient dans (A.10a) de [1].

Sur la figure 10, nous avons porté les valeurs expérimentales de la probabilité de relaxation $1/T_1$ en fonction du champ statique B_0 , pour plusieurs valeurs de l'intensité Ω_1 du champ de radiofréquence inhomogène. Pour chaque valeur de Ω_1 , on constate bien que les variations de $\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_1^0}\right)$ sont lorentziennes en fonction de B_0 , conformément à (A.6) de [1]. On parvient à la même conclusion qu'au § 2.1.1 pour la

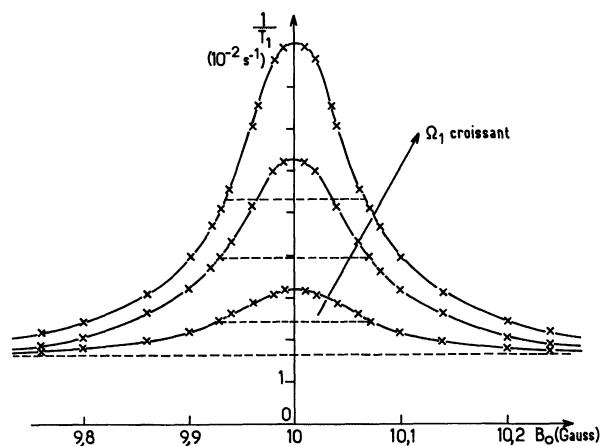


FIG. 10. — Valeurs expérimentales de la probabilité de relaxation longitudinale $1/T_1$ en fonction de l'écart du champ statique B_0 par rapport à la valeur de résonance — ω/γ . Les trois courbes correspondent à des valeurs croissantes de l'intensité Ω_1/γ du champ de radiofréquence inhomogène ($p = 0,5$ torr ; $R = 3$ cm). On remarque l'absence d'élargissement de ces courbes par la radiofréquence.

courbe large : seuls les modes $l = n = 1$ interviennent. Un fait est cependant très remarquable ici : on voit sur la figure 10 que la largeur à mi-hauteur de ces lorentziennes est indépendante de l'intensité du champ de radiofréquence. Cette largeur est, d'après (A.6), juste égale à $1/\tau_{11}$. La connaissance d'une seule courbe de variation de $1/T_1$ en fonction de B_0 suffit donc à la détermination du temps de diffusion τ_{11} : il n'est donc pas nécessaire de répéter cette expérience à différentes intensités du champ de radiofréquence. Ce fait a une importance pratique pour la mesure des coefficients de diffusion, que nous discuterons au § 2.3.

On voit de plus que la valeur maximale de $1/T_1$ (à résonance) augmente rapidement avec l'intensité Ω_1 du champ de radiofréquence. D'après la formule (A.6) de [1] on prévoit que

$$\frac{1}{T_1^*} = \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_1^0} \right)$$

varie comme Ω_1^2 ; c'est ce que nous avons vérifié en portant sur la figure 11 la valeur de la probabilité de relaxation $1/T_1$ au sommet des courbes de la figure 10, en fonction du carré de la tension appliquée aux bornes des bobines de radiofréquence : on trouve bien une variation linéaire, l'ordonnée à l'origine étant égale à $1/T_1^0$, probabilité de relaxation en l'absence d'inhomogénéités de champ.

A ce stade, nous avons cherché à comparer quantitativement les valeurs de $1/T_1^*$ ainsi mesurées à celles prévues par la théorie. Il est nécessaire pour cela de se reporter aux formules du calcul complet de [1] (§ B.3a). Seuls les modes $l = 1, n = 1$ intervenant ici, la formule (B.34) se réduit (lorsque $\omega = \omega_0$) à :

$$\frac{1}{T_1^*} = \left(\sum_m |c_{1m}|^2 \right) \times \frac{3}{16\pi} \times \frac{I_{11}^2}{Q_{11}} \times R^2 \times \tau_{11}. \quad (7)$$

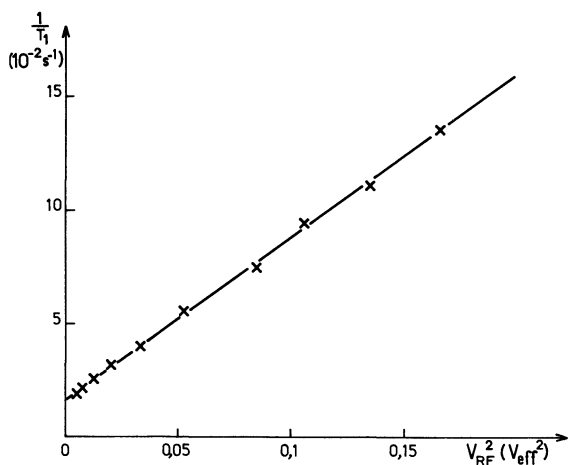


FIG. 11. — Probabilité de relaxation longitudinale $1/T_1$ à résonance, en fonction du carré de l'intensité du champ de radiofréquence inhomogène ($p = 0,5$ torr ; $R = 3$ cm).

Les intégrales de normalisation I_{11} et Q_{11} ont été évaluées par un calcul-machine, qui donne (voir Appendice de [1]) :

$$I_{11} = 0,1007, \quad Q_{11} = 0,05123.$$

De plus, si l'on fait l'approximation que la configuration du champ radiofréquence n'a de composante que sur les modes $l = 1$, la décomposition (B. 31) donne immédiatement :

$$\sum_m |c_{1m}|^2 = \frac{20\pi}{3} \hat{\Omega}_1^2$$

où $\hat{\Omega}_1$, exprimé en $\text{rad s}^{-1} \text{ cm}^{-1}$, est l'intensité du gradient de la composante transversale tournante du champ créé par les bobines en Holtzhelm.

Pour l'exemple correspondant aux figures 10 et 11 ($p = 0,5$ torr), on a $R = 3$ cm et $\tau_{11} = 7,35 \times 10^{-4}$ s ; la formule théorique (7) se réduit donc à :

$$\frac{1}{T_1^*} = 1,69 \times 10^{-3} \hat{\Omega}_1^2 \quad (\text{avec } \hat{\Omega}_1 \text{ en } \text{rad s}^{-1} \text{ cm}^{-1}). \quad (8)$$

Le coefficient de cette formule est à comparer à la pente de la droite de la figure 11. Nous avons effectué un étalonnage en valeur absolue de l'intensité du champ RF à l'aide d'une petite bobine-sonde explorant la carte du champ à l'intérieur des bobines (b) en Holtzhelm. Nous avons ainsi déterminé que $\hat{\Omega}_1 = 21,5 V_{RF}$ (où V_{RF} est la tension appliquée aux bobines en volts efficaces). La pente de la figure 11 fournit ainsi le résultat expérimental :

$$\frac{1}{T_1^*} = 0,72 V_{RF}^2 = 1,55 \times 10^{-3} \hat{\Omega}_1^2 \quad (9)$$

qui est bien compatible avec le résultat théorique (8). L'accord obtenu peut même être considéré comme très bon, compte tenu des approximations faites pour le calcul (champ RF décomposable sur les modes

$l=n=1$ uniquement) et des erreurs expérimentales (dus principalement à l'étalonnage du champ RF).

2.2.2 Influence de la taille de la cellule. — Nous avons fait varier le rayon de la cellule de façon à vérifier les prévisions du § B. 3a de [1]. Sur la figure 12, nous avons porté les résultats expérimentaux obtenus pour deux cellules contenant la même pression de gaz mais de rayons R_1 et R_2 différents ($R_1 = 2,9$ cm, $R_2 = 1,5$ cm) ; les deux courbes sont relatives à une même tension appliquée sur les bobines créant le champ de radiofréquence inhomogène. Pour $l = 1$,

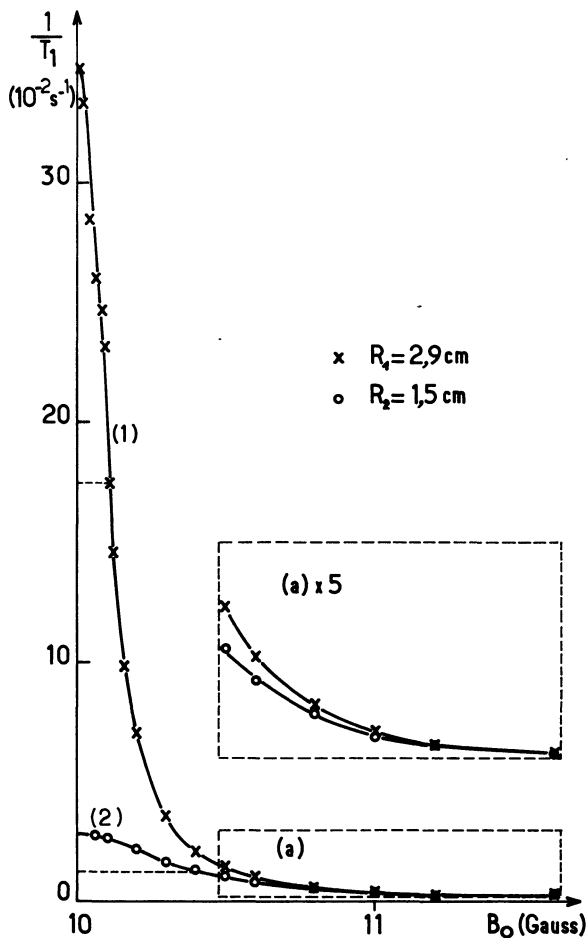


FIG. 12. — Probabilité de relaxation longitudinale $1/T_1$ en fonction du champ magnétique statique B_0 , pour deux valeurs R_1 et R_2 du rayon de la cellule et une même valeur de la pression ($p = 0,39$ torr) : $R_1 = 2,9$ cm ; $R_2 = 1,5$ cm. La partie encadrée en pointillés (a) a été reportée sur la même figure après multiplication des ordonnées par un facteur 5.

la formule (B. 35b) se réduit à $1/T_1^* = \text{Cte}$: loin de la résonance la relaxation est indépendante du rayon de la cellule ; c'est bien ce que l'on constate sur la figure 12, où l'on voit les courbes (1) et (2) tendre asymptotiquement l'une vers l'autre aux fortes valeurs de B_0 . Par contre les formules (8) de l'Appendice de [1] et (B. 35a) deviennent ici :

$$\begin{cases} \tau_{11} \propto R^2 \\ 1/T_1^* \propto R^4 \text{ à la résonance.} \end{cases}$$

Le tableau I résume la comparaison de ces prévisions théoriques aux résultats expérimentaux. On constate que l'accord est bon.

TABLEAU I

Résultats relatifs aux hauteurs et largeurs des courbes 1) et 2) de la figure 12, qui correspondent à des cellules de rayon $R_1 = 2,9$ cm et $R_2 = 1,5$ cm respectivement.

	Résultats expérimentaux	Résultats théoriques
$\frac{\text{largeur (2)}}{\text{largeur (1)}}$	3,6	$\left(\frac{R_1}{R_2}\right)^2 = 3,8$
$\frac{\text{hauteur (1)}}{\text{hauteur (2)}}$	13,8	$\left(\frac{R_1}{R_2}\right)^4 = 14$

2.2.3 *Autres modes de diffusion.* — Comme au § 2.1.3, nous avons cherché à faire apparaître des modes de diffusion plus élevés en considérant d'autres configurations de champ radiofréquence. Nous avons en particulier utilisé une bobine unique de petit diamètre (≈ 8 cm), d'axe parallèle à Oz et déplaçable sur cet axe. Les variations de $1/T_1^*$ en fonction de B_0 sont alors des superpositions de courbes de Lorentz ; nous avons dépouillé les courbes obtenues de façon à déduire dans chaque cas la largeur et le poids de ces différentes courbes de Lorentz superposées. Nous avons ainsi mis en évidence jusqu'à 3 modes de diffusion différents intervenant dans une même expérience.

Les résultats sont schématisés sur la figure 13. La première ligne rappelle ce que nous avons trouvé avec des bobines en Holtzhelm (champ impair) de 30 cm de diamètre : seul le mode $l = n = 1$ apparaît.

Bobines RF en opposition	Mode de diffusion $l =$	Poids
	1	1
	2	≈ 0
	4	≈ 0
<hr/>		
Bobine unique	Mode de diffusion $l =$	Poids
	1	0,8
	2	0,2
	4	$\approx 0,0$
<hr/>		
	1	0,6
	2	0,3
	4	0,1
<hr/>		
	1	0,2
	2	0,6
	4	0,2

FIG. 13. — Poids des différents modes de diffusion observés par la méthode des transitoires pour différentes configurations de champ de radiofréquence inhomogène.

La dernière ligne correspond au cas où la bobine de radiofréquence est unique et centrée sur la cellule (champ assez sensiblement pair) : les modes pairs (ici $l = 2, n = 1$ et $l = 4, n = 1$) sont très favorisés par rapport aux modes impairs : le poids du mode $l = 1$ a beaucoup diminué par rapport au cas de la première ligne (s'il n'a pas disparu totalement, c'est que le centrage de la bobine sur la cellule n'est pas géométriquement parfait, et donc que la symétrie du champ créé n'est pas complètement paire). Les deux autres lignes de la figure 13 rendent compte des résultats dans le cas intermédiaire où le champ radiofréquence a une partie paire et une partie impaire : des modes de l pair et impair interviennent simultanément.

2.3 MESURE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION DE ^3He . — Il ressort clairement de ce qui précède que, pour faire une mesure du coefficient de diffusion des atomes, on a intérêt à utiliser une configuration de champ RF inhomogène telle que le mode le plus bas ($n = l = 1$) intervienne seul. C'est ce que nous avons réalisé avec une bonne précision grâce aux bobines en position de Holtzhelm de diamètre 30 cm. Nous avons vu que la détermination de τ_{11} peut se faire par deux méthodes différentes. D'une part, on peut enregistrer un réseau de courbes de résonance larges pour différentes intensités Ω_1 du champ de radiofréquence ; on mesure alors leur largeur à mi-hauteur, dont on extrapole la valeur à Ω_1 nul. D'autre part, on peut utiliser la technique des transitoires de relaxation, qui fournit τ_{11} par une unique courbe correspondant à une valeur quelconque de Ω_1 . La seconde méthode apparaît en pratique plus précise que la première, car elle ne nécessite pas d'extrapolation à $\Omega_1 = 0$. Elle est d'ailleurs beaucoup plus simple d'emploi et aussi plus rapide (au moins dans le cas de ^3He , où l'enre-

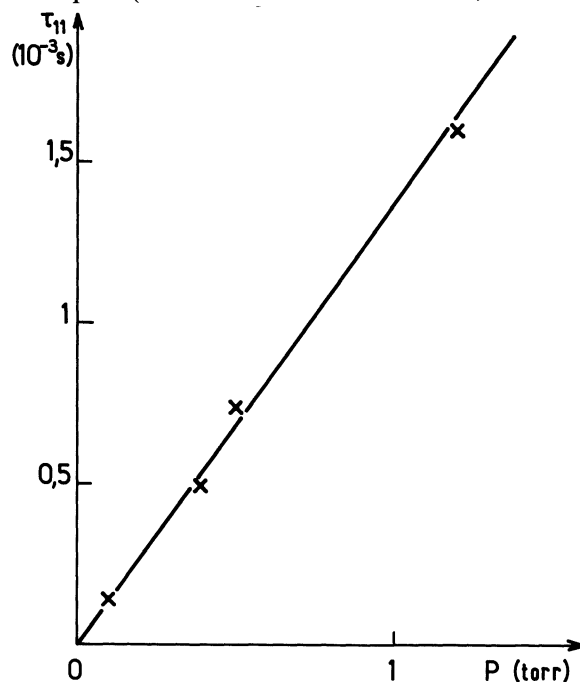


FIG. 14. — Temps de diffusion τ_{11} déduit de la mesure des temps de relaxation longitudinale. p : pression de ^3He . $R = 2,9$ cm.

gistroment sans distorsion des courbes de RMN est très long, étant données les grandes constantes de temps de réponse du système atomique). Finalement la mesure du coefficient de diffusion D de ^3He que nous adoptons est celle qui est déduite de la figure 14 ; nous y avons porté les valeurs de τ_{11} trouvées par la méthode des transitoires de relaxation, en fonction de la pression d'hélium, dans des cellules de rayon R constant. De la pente de la droite obtenue, on déduit à l'aide de la formule (6) :

$$D = (1\,440 \pm 80) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ à } 1 \text{ torr}.$$

La barre d'erreur indiquée pour D provient essentiellement de l'incertitude sur les valeurs de la pression et du rayon intérieur de la cellule, jamais parfaitement sphérique. Le temps de diffusion τ_{11} lui-même est donc déterminé avec une précision bien supérieure à celle du coefficient D .

D est un coefficient de self-diffusion, c'est-à-dire relatif à la diffusion des atomes de ^3He dans l'état fondamental à travers un gaz constitué des mêmes atomes ^3He et à notre connaissance, ce coefficient (encore appelé D_{33}) n'avait jamais été mesuré auparavant. Cependant, il existe différents travaux antérieurs qui ont déterminé le coefficient D_{34} (diffusion de l'isotope ^3He dans un gaz de ^4He) [8] [9]. Les méthodes employées sont totalement différentes de celles décrites ici, et dans l'ensemble plus complexes : elles impliquent en particulier l'utilisation de la spectrographie de masse pour doser les deux isotopes de l'hélium après la diffusion. On peut chercher à comparer les valeurs de D_{34} trouvées antérieurement à celle de D_{33} que nous proposons. Pour cela nous supposons que la section efficace de diffusion est indépendante de l'isotope d'hélium considéré. Dans ces conditions, le coefficient de diffusion D est simplement proportionnel à la vitesse relative des deux atomes entrant en collision. Les vitesses atomiques sont thermiques, donc proportionnelles à $1/\sqrt{m}$, où m est la masse atomique. D'où :

$$D_{34} \propto \sqrt{\frac{1}{m_3} + \frac{1}{m_4}}$$

et

$$D_{33} \propto \sqrt{\frac{2}{m_3}}.$$

On en déduit que :

$$D_{33} = D_{34} \cdot \sqrt{\frac{8}{7}}. \quad (10)$$

Ceci permet de comparer les résultats de [8] [9] au nôtre. Sur le tableau II, nous avons inscrit dans les deux premières lignes de la dernière colonne les valeurs de D_{33} déduites des mesures [8] et [9] à l'aide de la relation (10). Elles sont en très bon accord avec la valeur donnée par notre expérience (3^e ligne), compte tenu des barres d'erreur.

TABLEAU II
Mesure du coefficient de diffusion de l'hélium
à la température ordinaire

Références	D_{34} cm ² s ⁻¹ à 1 torr	D_{33} cm ² s ⁻¹ à 1 torr
[8]	1 310 ± 40	1 400 ± 50
[9]	1 320 ± 50	1 410 ± 60
cette expérience		1 440 ± 80

La précision des différents types de mesure de D est du même ordre de grandeur.

La méthode de mesure des coefficients de self-diffusion décrite ici s'apparente par certains aspects à celle dite des *échos de spin* [10] [11]. Dans celle-ci on peut en effet relier l'amortissement de l'amplitude de l'écho au coefficient de diffusion du gaz, à condition de connaître la valeur absolue du gradient de champ statique appliqué. Notons que la méthode décrite ici ne requiert pas la connaissance de la valeur du gradient de champ radiofréquence utilisé, ce qui peut la rendre éventuellement plus précise que celle des échos de spin. De plus, elle ne nécessite pas l'emploi des techniques de *pulses* de champ. On peut envisager de l'étendre à de nombreux autres gaz, sur lesquels on sait produire la résonance magnétique. Signalons que C. Fabre et J. Dupont-Roc ont récemment observé une courbe *large* sur du ^{87}Rb pompé optiquement ⁽²⁾ tandis que Novikov *et al.* ont mis en évidence le même effet dans le cas de ^{199}Hg et ^{201}Hg [12], donnant ainsi l'interprétation correcte des formes de courbes anormales décrites par ces mêmes auteurs dans une publication très antérieure [13].

3. Etude de la courbe étroite ; déplacements de fréquence. — 3.1 DÉPLACEMENT $\delta\omega_0^*$ DE LA FRÉQUENCE DE RÉSONANCE. — 3.1.1 *Mise en évidence.* — Dans le § 2 précédent, nous avons étudié de différentes façons l'effet d'un champ de radiofréquence inhomogène sur l'aimantation longitudinale des atomes. Nous avons plus particulièrement mis en évidence les variations résonnantes de la relaxation longitudinale $1/T_1$. Mais nous avons vu, au § B.3a de [1], que l'aimantation transversale est également affectée par le champ RF inhomogène : la probabilité $1/T_2$ de relaxation transversale subit aussi des variations résonnantes ; de plus une certaine modification $\delta\omega_0^*$ de la précession de cette aimantation transversale est prévisible. L'expression complète de $\delta\omega_0^*$ est donnée par la formule (B.39a) de [1] dans le cas général. Dans le cas où un seul mode de diffusion intervient, cette formule se simplifie (cf. (B.39b)). L'expression (B.39b) montre bien que les variations résonnantes de $1/T_1^*$ et de $\delta\omega_0^*$ sont deux effets intimement liés.

Un tel déplacement de la fréquence de résonance est nul à résonance ($B_0 = -\omega/\gamma$). Pour le mettre en évidence, nous avons dû utiliser deux champs de

(2) FABRE, C. et DUPONT-ROC, J., Communication privée.

radiofréquence distincts. Le premier, de pulsation ω , est purement inhomogène (il est créé par les bobines (b) en Holtzhelm de la figure 2) ; son rôle est de créer le déplacement de fréquence. Le second, de pulsation ω' différente de ω , est purement homogène et beaucoup moins intense que le précédent. Il est destiné à produire une résonance-sonde (courbe étroite) qui ne soit pas située au centre de la courbe large. Le principe de la

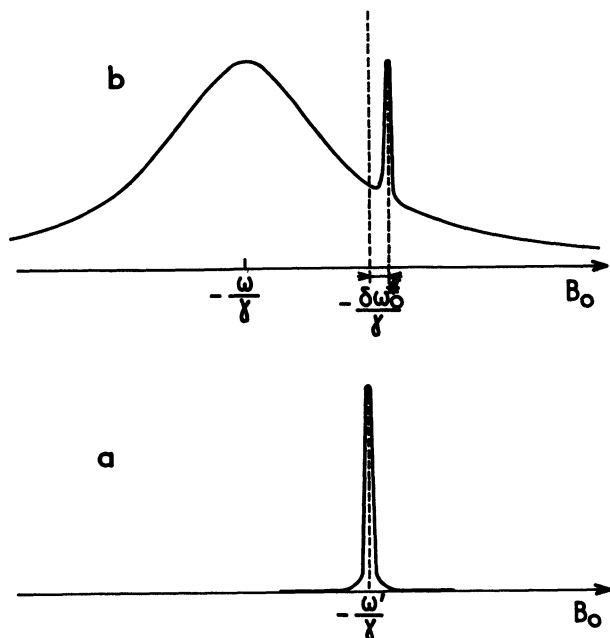


FIG. 15. — Principe de la méthode de mise en évidence du déplacement $\delta\omega_0^*/2\pi$ de la fréquence de résonance : a) un premier champ RF, homogène, peu intense, de fréquence $\omega'/2\pi$, permet d'enregistrer une courbe de résonance fine ordinaire centrée à la valeur $-\omega'/\gamma$ de B_0 ; b) un deuxième champ RF, complètement inhomogène, très intense, de fréquence $\omega/2\pi$, est appliqué en plus du précédent. La résonance fine est déplacée d'une quantité $-\delta\omega_0^*/\gamma$ par rapport à sa position (a).

mise en évidence expérimentale du déplacement $\delta\omega_0^*$ est illustré sur la figure 15. La figure 15a montre la courbe de résonance étroite attendue, à la valeur $-\omega'/\gamma$ du champ statique B_0 , lorsque le champ RF homogène est seul présent (résonance magnétique habituelle). La figure 15b montre ce qui doit se produire lorsqu'on applique simultanément le champ RF inhomogène : d'une part une courbe large centrée en $B_0 = -\omega/\gamma$; d'autre part une courbe étroite sur l'aile de cette courbe large, dont la position n'est pas la même que dans le cas de la figure 15a (déplacement vers les ailes de la courbe large, d'après (B.39b) de [1]) ; sa largeur et sa hauteur sont d'ailleurs également modifiées.

Les résultats de l'expérience sont présentés sur la figure 16. Sur la partie inférieure (a) apparaît la courbe de résonance étroite sans champ inhomogène (ici $\omega'/2\pi = 172$ kHz) ; sa largeur est de quelques hertz ($\sim 1/T_2^0$ loin de la saturation). La partie supérieure (b) de la figure 16 montre ce que devient cette résonance lorsqu'on applique le champ RF inhomogène ; les deux courbes enregistrées correspondent à deux

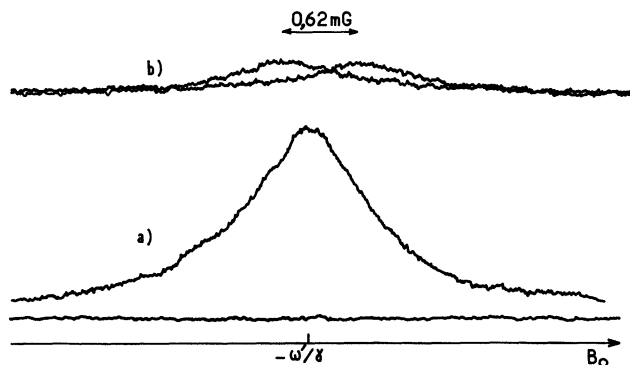


FIG. 16. — Mise en évidence expérimentale du déplacement de fréquence $\delta\omega_0^*/2\pi$ dans le cas de la RMN de ^3He . a) Courbe de résonance ordinaire en champ RF homogène ($\omega'/2\pi = 172$ kHz) ; b) un champ RF inhomogène est appliqué, en plus du précédent, à la pulsation $\omega = \omega' \pm \Delta$ ($\Delta/2\pi = 30$ kHz).

valeurs différentes $\omega = \omega' \pm \Delta$ de la pulsation du champ inhomogène (ici $\Delta/2\pi = 30$ kHz), pour une même intensité Ω_1 de ce champ. La valeur de Ω_1 a été choisie aussi grande que possible ($\delta\omega_0^*$ est en effet proportionnel à Ω_1^2), sa limite étant évidemment imposée par le fait qu'il doit subsister une certaine orientation atomique au champ $B_0 = -\omega'/\gamma$, de façon à ce que les courbes de résonance de la figure 16b soient encore visibles, malgré l'importance du fond continu (aile de la courbe large). Avec les valeurs de Δ choisies, on voit que la quantité $|\omega_0 - \omega| \tau_d$ des formules (B.39) de [1] est très grande devant 1 ($\Delta \tau_d \approx 100$). La courbe large est ici très fortement élargie par le champ RF inhomogène (sa largeur est plus de 100 fois celle qu'elle aurait si elle était désaturée). Le déplacement $\pm \delta\omega_0^*/\gamma$ de la position des résonances apparaît clairement sur la figure 16b. On remarque que le signe de l'effet correspond aux prévisions ($\delta\omega_0^* > 0$ pour $\omega = \omega' - \Delta$ et $\delta\omega_0^* < 0$ pour $\omega = \omega' + \Delta$, d'après (B.39b) de [1]). Le déplacement $\delta\omega_0^*$ est ici du même ordre de grandeur (quelques hertz) que la largeur de la résonance ; cet effet n'est donc pas négligeable.

3.1.2 Vérifications quantitatives. — Nous avons répété des enregistrements analogues à ceux de la figure 16b en faisant varier les paramètres Ω_1 et Δ , de façon à vérifier quantitativement les prévisions théoriques (B.39b) de [1]. La figure 17 montre les valeurs obtenues pour $2\delta\omega_0^*/2\pi$, en fonction du carré de l'intensité Ω_1 du champ de radiofréquence inhomogène, pour une valeur fixe de Δ ($\Delta/2\pi = 30$ kHz). Compte tenu de la forte imprécision inhérente à la mesure de $\delta\omega_0^*$, on voit que ces résultats sont compatibles avec une droite passant par l'origine. Ceci est en accord avec la formule (B.39b) de [1].

A valeur de Ω_1 fixée, nous avons également fait varier le paramètre Δ . Pour chaque valeur de Δ , nous avons simultanément mesuré par la méthode des transitoires la probabilité de relaxation

$$\frac{1}{T_1^*} = \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_1^0}$$

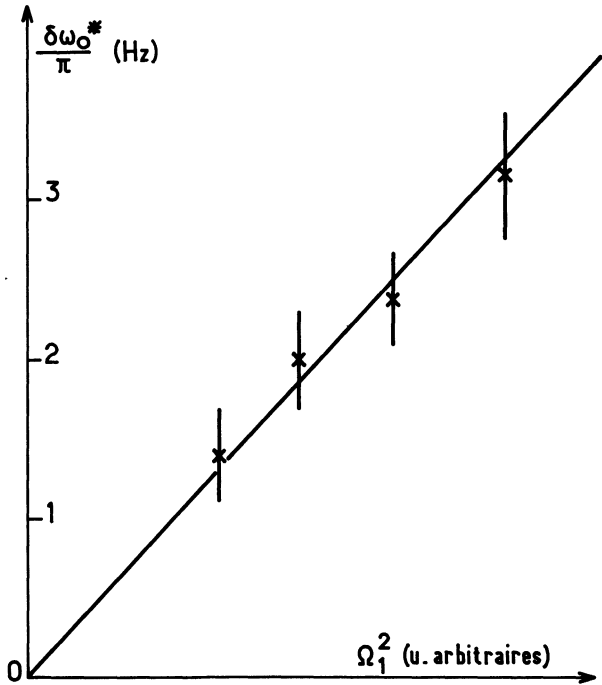


FIG. 17. — Valeurs mesurées pour le déplacement de fréquence $2\delta\omega_0^*/2\pi$ en fonction du carré de l'intensité du champ RF inhomogène.

Nous avons porté sur la figure 18 les valeurs du produit $\delta\omega_0^* T_1^*$ en fonction de Δ . On voit que les résultats se situent sensiblement sur une droite passant par l'origine, conformément à la formule (B.39b). La pente de la droite est, d'après cette formule, égale au temps de diffusion. Nous avons tracé, à titre de comparaison, une droite en pointillés dont la pente a la valeur de τ_{11} mesurée très précisément par ailleurs (voir § 2.2.1). On voit que cette droite en pointillés passe bien à l'intérieur des barres d'erreur de la plupart des points expérimentaux de la figure 18. On trouve donc un bon accord quantitatif entre les prévisions théoriques et les mesures du déplacement de fréquence $\delta\omega_0^*$.

3.2 CAS OÙ LES CHAMPS STATIQUE ET DE RADIOFRÉQUENCE SONT TOUS DEUX INHOMOGÈNES. — Nous avons vu dans la partie théorique (§ C.2 de [1]) que, lorsque les inhomogénéités de champ comprennent une partie statique en plus d'une partie modulée, des effets nouveaux intéressants sont prévisibles en ce qui concerne la courbe étroite (forme de courbe, position). Ces effets sont liés aux termes non diagonaux de la matrice (R) de relaxation, c'est-à-dire au caractère anisotrope de cette relaxation; nous avons d'ailleurs noté dans [1] que cette anisotropie est le résultat des corrélations entre les inhomogénéités des champs statique et oscillant. Au § C.2c-γ, nous en avons donné une interprétation géométrique dans un cas simple.

Pour illustrer ces prévisions expérimentalement, nous avons choisi un dispositif de champ oscillant

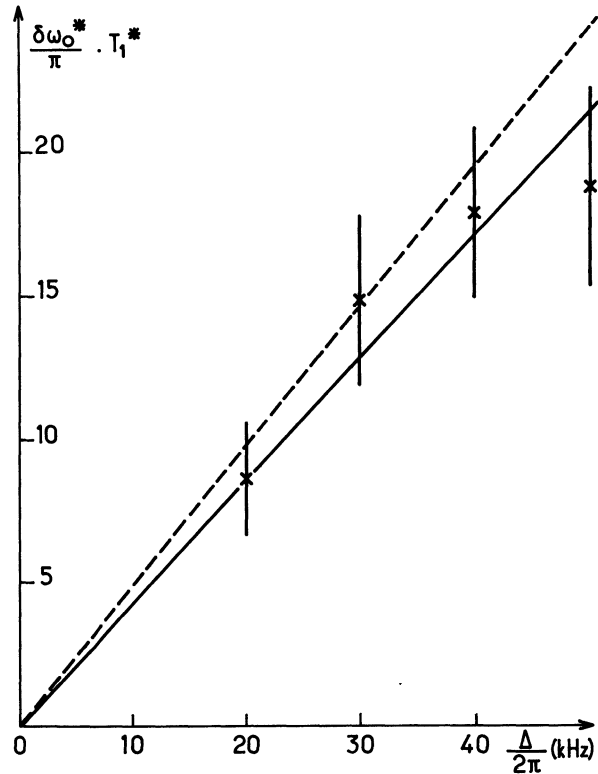


FIG. 18. — Valeurs expérimentales du produit $2\frac{\delta\omega_0^*}{2\pi} T_1^*$.

$\frac{\delta\omega_0^*}{2\pi}$: déplacement de la fréquence de résonance en présence du champ RF inhomogène; T_1^* : temps de relaxation longitudinale pour la valeur $-\omega'/\gamma$ du champ statique; $\Delta = \omega' - \omega$ (ω' et ω : pulsations des champs RF homogène et inhomogène). La droite en pointillés a une pente calculée théoriquement (voir le texte).

inhomogène correspondant à ce cas particulier. La simplification introduite provient du fait que le champ oscillant ne possède pas de composante sur une direction Oy perpendiculaire à Oz . Nous avons réalisé cette situation à l'aide d'un ensemble de 2 fils parallèles à Oy et passant de part et d'autre de la cellule. Ils sont alimentés en phase par deux tensions alternatives d'intensités comparables et réglables de façon à annuler toute partie homogène du champ RF sur la cellule. La configuration de champ oscillant est celle de la figure 1c. Les inhomogénéités du champ statique sont créées par une paire de bobines en Holtzheim parallèles à celles qui fournissent le champ statique homogène B_0 . Les inhomogénéités de champs statique et RF sont alors bien corrélées. En effet, on montre en première approximation que, pour le champ statique créé par les bobines en Holtzheim, on a $B_{0z} \approx \mu z$, tandis que pour le champ oscillant inhomogène produit par les deux fils :

$$\begin{cases} B_{1x} \approx \mu' z \\ B_{1z} \approx \mu' x \end{cases}$$

ce qui, dans le référentiel tournant, et pour un certain choix de l'axe OX , donne les inhomogénéités statiques

suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Omega_{1Z} \simeq -\frac{\mu Z}{\gamma} \\ \Omega_{1X} \simeq -\frac{\mu' Z}{2\gamma} \\ \Omega_{1Y} = 0. \end{array} \right.$$

Les composantes sur les axes OZ et OX des inhomogénéités de champ sont alors proportionnelles l'une à l'autre (corrélation totale). Le coefficient non diagonal A_{XZ} de la matrice de relaxation (R) est ainsi maximal et l'inégalité (C.12) de [1] devient simplement :

$$A_{XZ}^2 = A_{XX} \cdot A_{ZZ}. \quad (11)$$

Si l'on se reporte à l'interprétation géométrique du § (C.2c-γ) de [1], on voit que la direction Ou de non-relaxation (voir Fig. 6 de [1]) fait avec OX l'angle θ tel que :

$$\text{tg } \theta = \frac{\Omega_{1Z}}{\Omega_{1X}} = \frac{2\mu}{\mu'}. \quad (12)$$

Expérimentalement, on peut faire varier cet angle θ en jouant sur les tensions appliquées respectivement aux bobines de Holtzheim et aux deux fils (paramètres μ et μ' de (12)).

Enfin, nous avons ajouté à ce dispositif de champs inhomogènes une paire de petites bobines en Helmholtz d'axe perpendiculaire à Oz , de façon à pouvoir appliquer éventuellement un champ de radiofréquence homogène ($\omega_1 \neq 0$) à la cellule. Ce champ RF homogène, de même fréquence que le champ RF créé par les 2 fils, d'abord été pris en phase avec lui (les 2 champs sont portés par le même axe OX dans le référentiel tournant). Un système de déphasage a permis, dans un deuxième temps, d'effectuer dans le référentiel tournant une rotation de l'un des champs par rapport à l'autre.

Nous distinguerons, dans la présentation des résultats expérimentaux, les cas où $\omega_1 = 0$ et où $\omega_1 \neq 0$.

3.2.1 Sans champ de radiofréquence homogène ($\omega_1 = 0$). — Nous avons, dans ces conditions, enre-

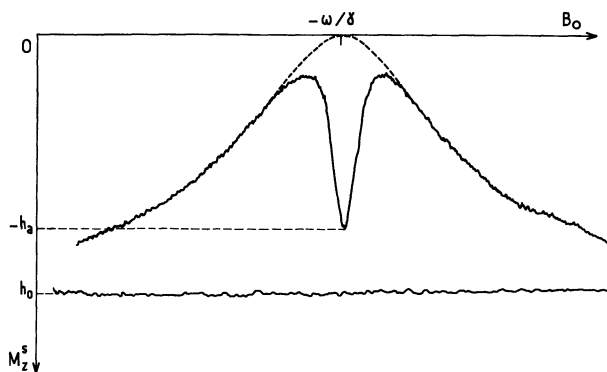


FIG. 19. — Courbe montrant l'existence d'un trou au centre de la courbe large (réorientation à résonance) lorsque le champ statique présente des inhomogénéités corrélées spatialement à celles du champ de radiofréquence.

gistré des courbes de résonance nucléaire de ^3He , qui ont l'allure de celle de la figure 19. On voit que, conformément aux prévisions de [1] (§C.2c-α), une courbe fine apparaît au centre de la courbe large, bien qu'aucun champ de radiofréquence homogène ne soit appliqué à la cellule. De plus cette courbe fine est bien renversée (elle correspond à une réorientation des spins nucléaires à résonance, exactement à l'opposé de ce qui est observé en résonance magnétique habituelle). Sur la figure 20, on voit l'apparition de la courbe fine renversée lorsqu'on applique un gradient de champ statique d'intensité croissante (la tension RF appliquée aux deux fils restant constante) : la hauteur $|h_a|$ du trou augmente, ainsi que sa largeur ℓ . Ceci est en accord avec les formules (C.22a) et (C.22b) de [1], simplifiées grâce à (11) et au fait qu'il n'y a pas d'inhomogénéités de champ suivant l'axe OY .

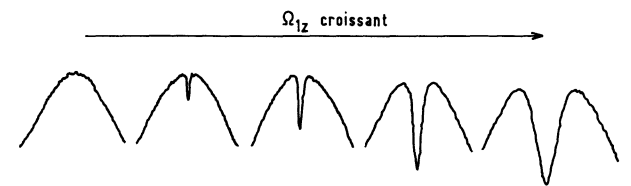


FIG. 20. — Courbes de résonance magnétique nucléaire de ^3He avec un champ de radiofréquence et un champ statique présentant des inhomogénéités corrélées (cas où la partie homogène du champ RF est nulle). Apparition du trou au sommet de la courbe large lorsque le gradient de champ statique croît en intensité à partir de zéro.

Nous avons cherché à vérifier quantitativement les prévisions théoriques. Nous nous sommes placés dans le cas simple où la courbe large est très saturée, c'est-à-dire où $A_{XX} \gg 1/T_1^0$; compte tenu de cette hypothèse, de la nullité de la composante sur OY des inhomogénéités et de la corrélation totale entre ses composantes sur OX et OZ exprimée par (11), la formule (C.22a) de [1] devient simplement :

$$\frac{|h_a|}{h_o} = \frac{A_{ZZ}}{A_{ZZ} + \frac{T_1^0}{T_2^0} A_{XX}} \quad (13)$$

où h_o est la hauteur du signal d'orientation observé en l'absence de tout gradient de champ ($h_o = \frac{M_o T_1^0}{T_p}$ avec les notations de [1]). On peut encore mettre (13) sous la forme :

$$\frac{h_o}{|h_a|} - 1 = \frac{T_1^0 A_{XX}}{T_2^0 A_{ZZ}} = \frac{T_1^0}{T_2^0} \frac{1}{\text{tg}^2 \theta}. \quad (14)$$

Pour vérifier cette loi expérimentalement, nous avons fait varier l'intensité i_z du courant dans les bobines de Holtzheim créant le gradient de champ statique, à courant fixe dans les fils créant le champ oscillant inhomogène (ainsi $\text{tg } \theta \propto i_z$). Nous avons, pour chaque valeur de i_z , mesuré la hauteur $|h_a|$ du trou et la hauteur h_o de la courbe large saturée. Les

résultats sont portés sur la figure 21. On voit que les valeurs de $\frac{h_o}{|h_a|} - 1$, portées en fonction de $1/i_z^2$, s'alignent sensiblement sur une droite passant par l'origine, ce qui est en bon accord avec les prévisions de (14).

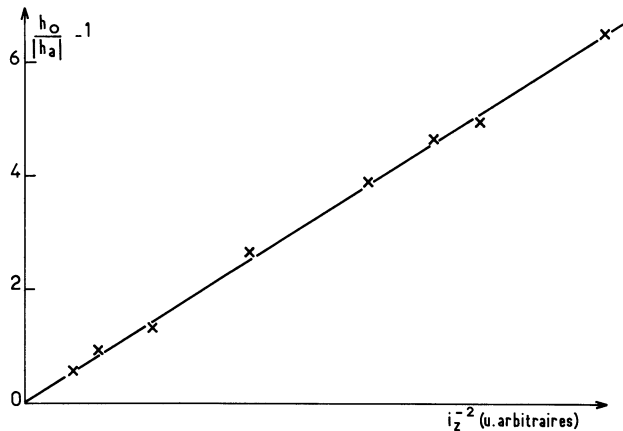


FIG. 21. — Variations de l'amplitude relative $|h_a|/h_o$ du trou central de la figure 19, en fonction du carré de l'intensité i_z du courant dans les bobines créant le gradient de champ statique.

Des vérifications analogues ont été faites dans le cas où la courbe large est désaturée. Nous avons également étudié quantitativement le comportement de la largeur ℓ du trou. Il serait trop long de donner ici le détail de ces expériences. Signalons que, dans tous les cas, un bon accord a été constaté avec les formules (C.22) de [1].

3.2.2 Avec champ de radiofréquence homogène ($\omega_1 \neq 0$). — La figure 22 montre comment la courbe large avec un trou central du § précédent se trouve

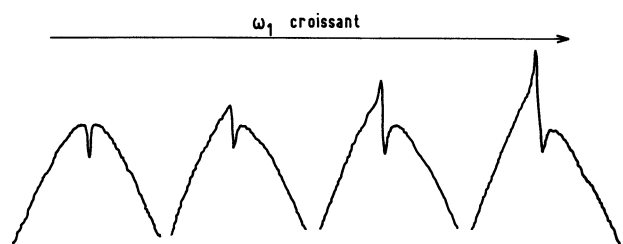


FIG. 22. — Courbes de RMN de ^3He avec un champ de radiofréquence et un champ statique présentant des inhomogénéités corrélées; cas où le champ RF comporte une partie homogène ω_1/γ . On note l'apparition d'une courbe de dispersion centrale au sommet de la courbe large.

modifiée lorsqu'on applique en outre un champ de radiofréquence homogène d'intensité ω_1 croissante à la cellule. Conformément aux prévisions du § C.2c- β de [1], on voit apparaître une courbe de dispersion superposée à la courbe d'absorption centrale, l'amplitude de cette dernière semblant d'ailleurs décroître avec ω_1 . La courbe (2) de la figure 23 montre un exemple d'une telle courbe fine de forme complexe apparaissant au sommet de la courbe large. A titre de comparaison, nous avons tracé sur la même figure la courbe (1) enregistrée dans les mêmes conditions,

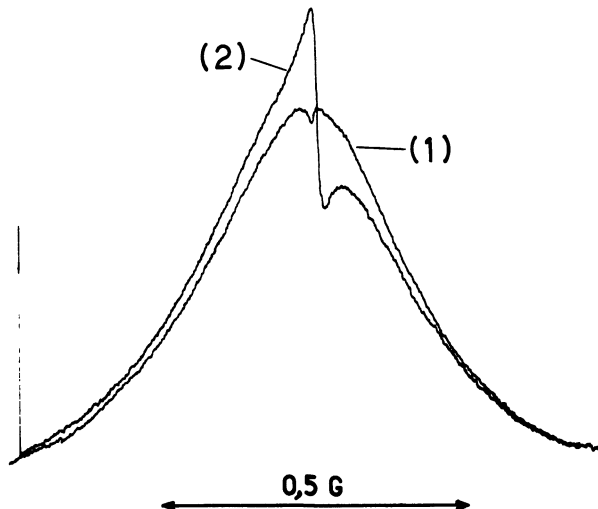


FIG. 23. — Courbes typiques montrant la disposition relative des courbes larges et étroites : 1) avec $\omega_1 = 0$; 2) avec $\omega_1 \neq 0$.

mais sans champ RF homogène. La partie centrale de ces courbes a été reportée avec une échelle dilatée en abscisses sur la figure 24. Sur cette figure, on voit nettement apparaître un autre phénomène : le déplacement $\delta\tilde{\omega}$ de la position de la courbe fine avec ω_1 .

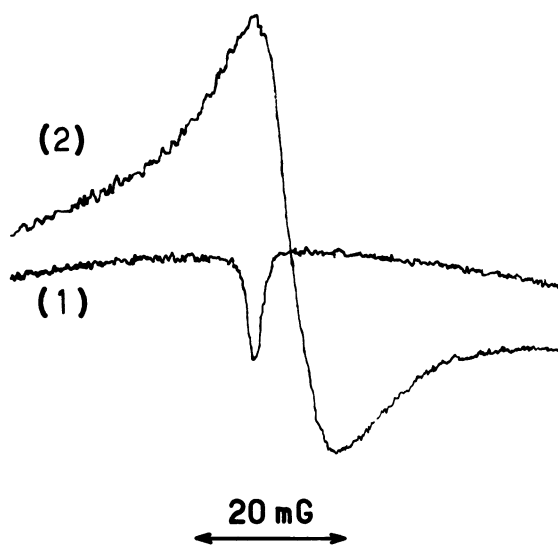


FIG. 24. — Agrandissement de la partie centrale de la figure 23 : 1) avec $\omega_1 = 0$; 2) avec $\omega_1 \neq 0$. Le déplacement de fréquence $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ apparaît clairement sur la courbe (2).

Pour une étude systématique de ces effets, nous avons, dans chaque cas, dépouillé les enregistrements de ces courbes fines de façon à en tirer les 2 courbes d'absorption et de dispersion qui les constituent. Nous avons pour cela supposé, conformément à la théorie, qu'elles sont toutes deux centrées au même point et de même largeur. Connaissant la position de l'asymptote (par le sommet de la courbe large en l'absence de ω_1), il est aisé de connaître, par une construction géométrique simple, la position de ce centre (voir par exemple l'appendice de la référence [14]). On en déduit alors immédiatement les

courbes paire et impaire centrées en ce point dont la somme donne la courbe initiale. On vérifie bien que ces deux courbes de décomposition ont une forme, l'une d'absorption lorentzienne, l'autre de dispersion. On en tire alors simultanément une mesure du déplacement de fréquence $\delta\tilde{\omega}/2\pi$, de la hauteur h_a de la courbe d'absorption et de celle h_d de la courbe de dispersion, ainsi que de leur largeur commune ℓ . Notons que h_a , qui est toujours négatif pour $\omega_1 = 0$ (cas du trou), peut soit devenir positif, soit rester négatif quand ω_1 croît.

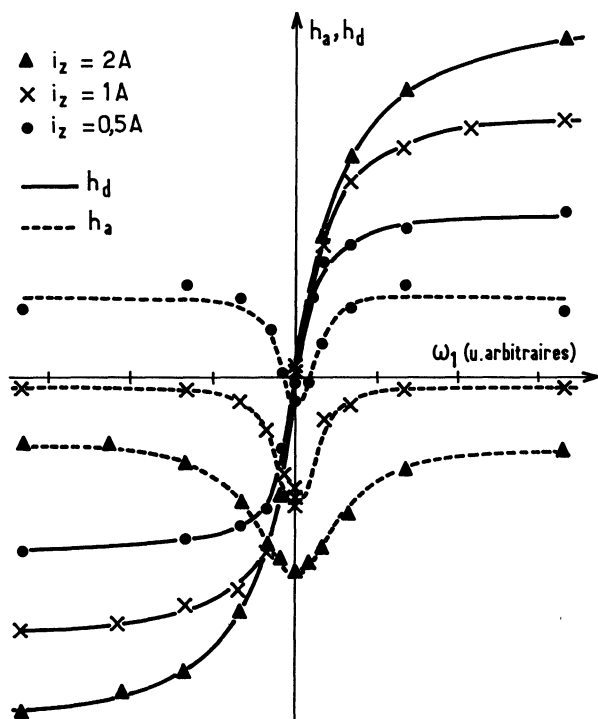


FIG. 25. — Variations avec ω_1 des amplitudes h_a et h_d des courbes d'absorption et de dispersion centrales. Les 3 séries de courbes correspondent à des valeurs croissantes de l'intensité i_z du courant produisant le gradient de champ statique.

Sur la figure 25, nous avons porté trois séries de résultats relatifs aux hauteurs h_a et h_d en fonction de ω_1 . Chacune des 3 séries correspond à une valeur donnée de i_z (proportionnel au gradient de champ statique). En ce qui concerne les hauteurs h_d , comparons ces résultats à la formule (C.21) de [1] ; à gradients de champ donnés, celle-ci prévoit que h_d est une fonction impaire de ω_1 qui tend vers une constante si $\omega_1 \rightarrow \infty$; en fait, c'est bien ce qu'on constate sur la figure 25. Par contre, d'après la formule (C.20) de [1], la hauteur h_a se comporte comme une courbe d'absorption en fonction de ω_1 : ceci apparaît nettement sur la figure 25. Les valeurs de i_z ont été choisies de façon à illustrer les trois situations possibles pour la valeur limite de h_a aux fortes valeurs de ω_1 (cf. formule (C.24) de [1]) : cette valeur limite reste négative si les gradients de champ sont très forts et corrélés ($A_{XZ}^2 > \frac{1}{2} \Gamma_X \Gamma_Z$) ; elle peut être nulle ($A_{XZ}^2 = \frac{1}{2} \Gamma_X \Gamma_Z$), cas auquel la courbe de dispersion apparaît seule aux fortes valeurs de ω_1 ; elle peut enfin être positive

($A_{XZ}^2 < \frac{1}{2} \Gamma_X \Gamma_Z$). Notons que, conformément aux formules (C.20) et (C.21) de [1], la largeur des courbes de la figure 25 augmente avec l'intensité du gradient de champ statique.

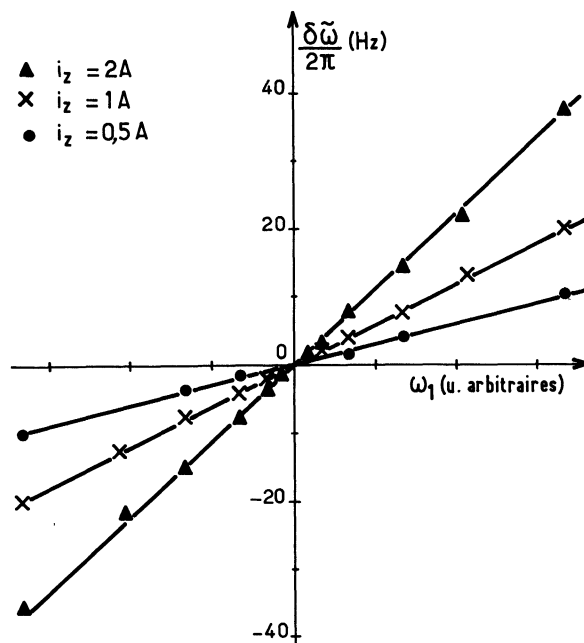


FIG. 26. — Variations avec ω_1 du déplacement $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ de la fréquence de résonance pour les mêmes valeurs de i_z (gradient de champ statique) que sur la figure 25.

Nous avons porté sur la figure 26 les déplacements $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ du centre de la résonance mesurés pour la même série d'enregistrements. On constate bien qu'à intensité donnée des gradients de champ, $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ varie linéairement avec ω_1 . Ceci est conforme à la formule (C.18) de [1] ⁽³⁾. En particulier, si la phase du champ RF homogène est changée de π par rapport à celle du champ RF inhomogène (ω_1 est changé en $-\omega_1$), le déplacement $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ est bien changé de signe. De plus, à valeur de ω_1 fixe, $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ varie proportionnellement à l'intensité du gradient de champ statique (cf. (C.18) de [1] qui montre que $\delta\tilde{\omega} \propto A_{XZ}$). On note que ces déplacements de fréquence peuvent être du même ordre de grandeur que la largeur ℓ des courbes d'absorption et de dispersion précédentes. Sur la figure 27, nous avons porté avec la même échelle les valeurs de ℓ et de $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ en fonction de ω_1 pour une même série de courbes. Le déplacement de la position de la résonance sous l'effet des gradients de champ n'est donc pas du tout négligeable dans cette expérience.

Enfin nous avons fait varier la différence de phase φ entre les champs RF inhomogène et homogène. Ceci équivaut à faire tourner d'un angle φ l'ellipsoïde de relaxation par rapport à la direction qui porte la composante tournante du champ de radiofréquence

⁽³⁾ Note ajoutée aux épreuves : signalons qu'une erreur s'est introduite dans l'expression simplifiée de $\delta\tilde{\omega}$ donnée dans la formule (4) de [3], qu'il faut lire : $\delta\tilde{\omega} = \omega_1 T_1 \Omega_{XZ}^2 \tau_d/2$.

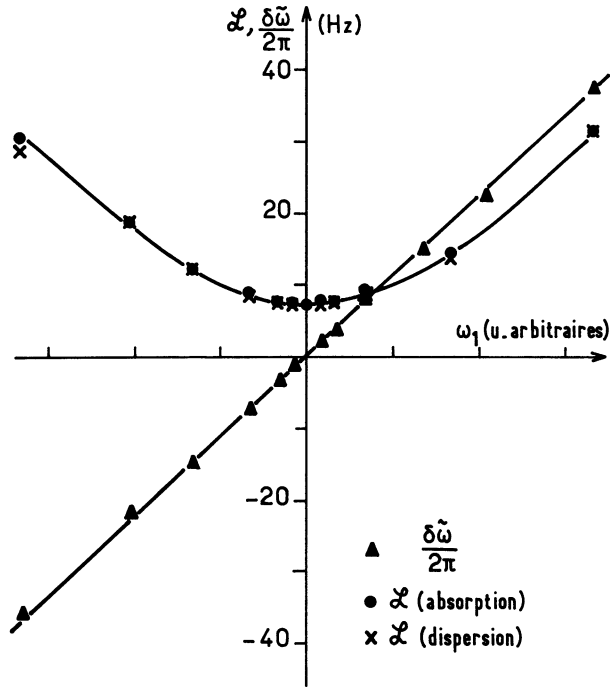


FIG. 27. — Variations avec ω_1 de la largeur ξ et du déplacement $\delta\tilde{\omega}/2\pi$ des courbes de dispersion et d'absorption centrales.

homogène. Clairement, ceci indique que le paramètre A_{XZ} varie comme $\cos \varphi$. Il en est de même pour l'amplitude h_d de la courbe de dispersion et pour le déplacement $\delta\tilde{\omega}$. La vérification expérimentale confirme bien la loi $h_d \propto \cos \varphi$. En particulier lorsque $\varphi = 90^\circ$ (les deux champs RF sont en quadrature ; $A_{XZ} = 0$), seule une courbe d'absorption non déplacée apparaît. Son comportement en fonction de ω_1 est conforme à la formule (C.20) de [1] (avec $A_{XZ} = 0$, mais $A_{YZ} \neq 0$) et du même type que les variations de h_a indiquées sur la figure 25.

4. Résonance à deux quanta. — 4.1 PRINCIPE DE L'EXPÉRIENCE. — Au § C.2d de [1], nous avons prévu l'existence d'une résonance à 2 quanta en champ de radiofréquence inhomogène (résonance centrée à la valeur $B_0 = -2\omega/\gamma$ du champ statique B_0 , si ω est la pulsation du champ oscillant). D'après [1] ceci nécessite que le champ de radiofréquence présente des inhomogénéités corrélées pour ses composantes parallèles aux axes OZ et OX (OX : axe du référentiel tournant qui porte la composante transversale du champ de radiofréquence). En d'autres termes, avec les notations du § C.2d de [1], le produit scalaire

$$\Omega_{1z+} \propto \langle \Omega_{1z} | \Omega_{1+} \rangle$$

doit être non nul sur le volume de la cellule. Nous avons réalisé cette condition expérimentalement en créant le champ RF à l'aide d'une paire de bobines connectées en Holtzheim, et dont l'axe horizontal fait l'angle α avec l'axe Oz . On montre que dans ce cas :

$$\Omega_{1z+} \propto \Omega_1^2 \sin 2\alpha \quad (15)$$

où Ω_1 est une quantité proportionnelle à l'intensité du champ inhomogène donné par les bobines. Dans un premier temps, de façon à produire un effet maximal, nous avons choisi la valeur $\alpha = 45^\circ$.

L'intensité de la résonance à 2 quanta est donnée par la formule (C.37) de [1] (notons que les temps T_1 et T_2 qui y figurent sont les temps de relaxation globale à la valeur $-2\omega/\gamma$ du champ statique, compte tenu de la relaxation longitudinale et transversale additionnelles introduites par les inhomogénéités du champ oscillant).

La valeur des paramètres expérimentaux ω et Ω_1 a été choisie pour réaliser un compromis entre deux exigences contradictoires : d'une part, à ω donné, on a intérêt à avoir Ω_1 grand (la résonance à deux quanta croît comme Ω_1^4 tant qu'elle n'est pas saturée) ; d'autre part, il ne faut pas que Ω_1 soit si intense que le temps de relaxation T_1 en soit trop raccourci au voisinage de la résonance à deux quanta : dans ce cas, celle-ci ne serait pas visible car il ne lui resterait plus d'orientation atomique à détruire. On voit donc qu'on a intérêt à se placer en champ assez fort. En pratique, nous avons été limités par la puissance de radiofréquence disponible. Ceci nous a conduits à choisir pour $\omega/2\pi$ la valeur de 32 kHz, ce qui laisse prévoir une résonance à deux quanta au voisinage d'un champ B_0 de 20 Gauss. Signalons que nous avons réalisé un accord résonnant des bobines de radiofréquence, pour une fréquence très voisine de 32 kHz, de façon à diminuer considérablement l'harmonique à la fréquence double, susceptible de produire une résonance normale mais ici parasite à la fréquence $2\omega/2\pi$. Au cours de toutes ces expériences, nous avons d'ailleurs contrôlé constamment, à l'aide d'un analyseur d'ondes, le taux d'harmonique 2 présent dans la tension aux bornes des bobines.

4.2 MISE EN ÉVIDENCE. VÉRIFICATIONS QUANTITATIVES. — A l'aide du montage précédemment décrit, nous avons d'abord procédé à l'annulation soigneuse de la partie homogène ω_1 du champ de radiofréquence à la fréquence $\omega/2\pi$, en faisant disparaître totalement la courbe étroite au sommet de la courbe large centrée en $B_0 = -\omega/\gamma$. Le but de ce réglage très critique est d'éviter de produire au champ $B_0 = -2\omega/\gamma$ la résonance à deux quanta habituelle que l'on observe d'ordinaire avec un champ de radiofréquence homogène.

Puis, en balayant le champ B_0 au voisinage de la valeur $-2\omega/\gamma$, nous avons enregistré des courbes analogues à celles de la figure 28. Elles correspondent à des valeurs croissantes du paramètre Ω_1 . On voit qu'elles apparaissent sur un fond continu d'autant plus important que Ω_1 est grand (aile de la courbe large centrée en champ moitié). Nous avons identifié ces résonances à deux quanta comme liées à la présence des inhomogénéités du champ RF.

Ceci a été confirmé par les vérifications quantitatives suivantes. Avec les notations indiquées sur la figure 28,

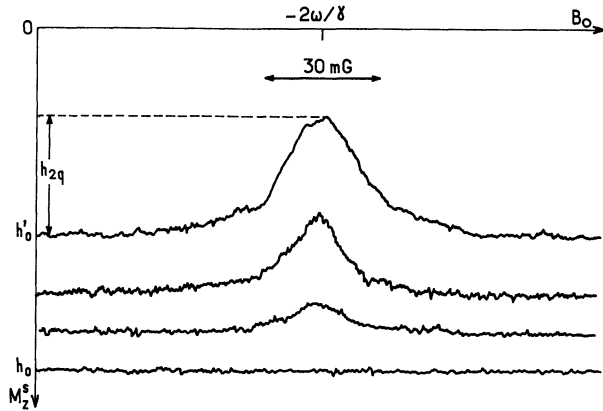


FIG. 28. — Enregistrement de résonances à 2 quanta en champ de radiofréquence totalement inhomogène. Les différentes courbes correspondent à des valeurs croissantes de l'intensité du champ RF inhomogène. $p = 1$ torr ; $\omega/2\pi = 32$ kHz.

et en utilisant (15), on peut récrire l'équation (C.37) de [1] sous la forme :

$$\frac{h'_0}{h_{2q}} - 1 \propto \frac{4\omega^2}{T_1 T_2} \times \frac{1}{\Omega_1^4} \times \frac{1}{\sin^2 2\alpha} \quad (16)$$

Nous avons d'abord étudié le comportement de la hauteur h_{2q} de la résonance à deux quanta en fonction de l'intensité Ω_1 du champ RF inhomogène. Remarquons que dans (16) T_1 est une quantité qui peut aussi dépendre de Ω_1 , comme l'attestent les variations du fond continu des résonances de la figure 28. Nous avons donc, pour chaque valeur de Ω_1 , enregistré simultanément la résonance à deux quanta et une transitoire de pompage donnant une mesure directe

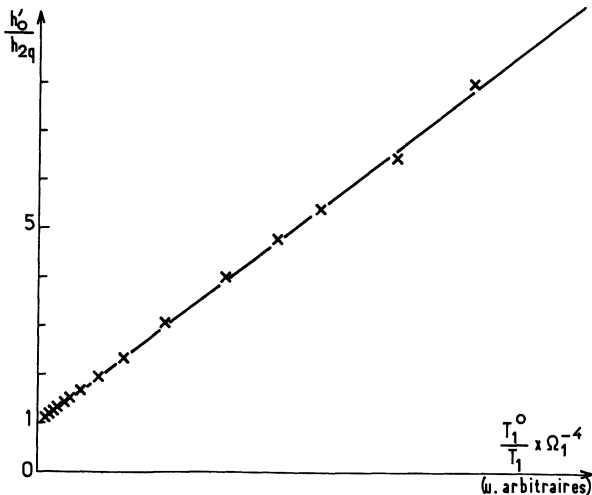


FIG. 29. — Variation de l'amplitude de la résonance à deux quanta en fonction de l'intensité du champ RF inhomogène.

h_{2q}/h'_0 : amplitude relative de la résonance à 2 quanta.
 Ω_1/γ : intensité du champ RF inhomogène.
 T_1 : temps de relaxation longitudinal global à la valeur $-2\omega/\gamma$ du champ statique B_0 .
 T_1^0 : temps de relaxation longitudinal en l'absence de champ RF inhomogène.

de T_1 à la valeur $-2\omega/\gamma$ du champ B_0 . Nous avons porté sur la figure 29 les valeurs de h'_0/h_{2q} trouvées en fonction de $1/T_1 \Omega_1^4$. On constate que les points expérimentaux se répartissent très exactement sur une droite dont l'ordonnée à l'origine est égale à 1. Ceci est en excellent accord avec la formule (16).

De plus, nous avons mis en évidence la dépendance en α de la hauteur h_{2q} . Nous avons montré que la résonance à 2 quanta disparaît pratiquement totalement lorsque $\alpha = 90^\circ$ et $\alpha = 0^\circ$. Pour des valeurs intermédiaires de α , nous avons tenu compte des variations éventuelles de T_1 en mesurant simultanément h_0 , h'_0 et h_{2q} (voir Fig. 28). (On sait que $h_0/h'_0 = T_1^0/T_1$.) Ces résultats sont portés sur la figure 30. Ils présentent un accord acceptable avec la formule (16), compte tenu des importantes barres d'erreur affectant les mesures.

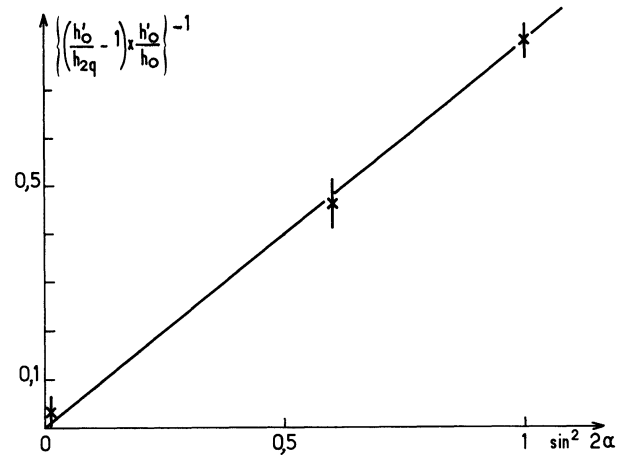


FIG. 30. — Comportement de l'amplitude de la résonance à 2 quanta en fonction de l'orientation des bobines produisant le champ RF inhomogène.

Conclusion. — Nous avons décrit dans cet article un ensemble d'expériences de résonance magnétique nucléaire de ^3He effectuées dans des conditions assez variées de champ de radiofréquence inhomogène. Les résultats expérimentaux vérifient dans le détail toutes les prévisions théoriques exposées dans un article précédent. Parmi tous les effets nouveaux qui ont été mis en évidence, deux surtout retiennent l'attention, car ils sont susceptibles d'avoir des conséquences pratiques.

D'une part, lorsque le mouvement des spins est régi par un processus de diffusion, l'étude de la résonance magnétique en champ de radiofréquence très inhomogène fournit une méthode de mesure du coefficient de diffusion du gaz.

D'autre part, lorsque le champ statique présente également des inhomogénéités corrélées à celles du champ de radiofréquence, d'importants déplacements de la position de la résonance sont possibles. Dans les mesures de très haute précision, cette cause d'erreur systématique n'est pas toujours à négliger.

Bibliographie

- [1] BARBÉ, R., LEDUC, M. et LALOË, F., *J. Physique* **35** (1974) 699.
- [2] BROSSEL, J., « *Atomic Physics 3* », Proceedings of the Third International Conference on Atomic Physics, Boulder 1972, p. 435 (Plenum Press).
- [3] BARBÉ, R., LEDUC, M. et LALOË, F., *Nuovo Cimento Lett.* **8** (1973) 915.
- [4] COLEGROVE, F. D., SCHEARER, L. D. et WALTERS, G. K., *Phys. Rev.* **132** (1963) 2561.
- [5] SCHEARER, L. D., Thèse, Rice University (1966).
- [6] DUPONT-ROC, J., LEDUC, M. et LALOË, F., *J. Physique* **34** (1973) 961 et 977.
- [7] PAVLOVIC, M. et LALOË, F., *J. Physique* **31** (1970) 173.
LALOË, F., Thèse, Paris (1970) : *Annls. de Phys.* **6** (1971) 5.
- [8] DU BRO, G. A. et WEISSMAN, S., *Phys. Fluids* **13** (1970) 2682.
- [9] BENDT, P. J., *Phys. Rev.* **110** (1958) 85.
- [10] HAHN, E. L., *Phys. Rev.* **80** (1950) 580.
- [11] ABRAGAM, A., *Les principes du magnétisme nucléaire* (P.U.F.) 1961.
- [12] NOVIKOV, L. N., VOTIAKOV, S. et POUTIRSKY, V., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **277B** (1973) 175.
- [13] POPESCU, I. M. et NOVIKOV, L. N., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **259** (1964) 1321.
- [14] DUPONT-ROC, J., Thèse de 3^e cycle, Paris (1968).
-