

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE GRENOBLE

pour obtenir le grade

DOCTORAT DE TROISIEME CYCLE

par

CHONG HON YEW

SUJET

ETUDE DES OSCILLATIONS
MAGNETOTHERMIQUES DANS LE
GRAPHITE PYROLYTIQUE IRRADIE
AUX NEUTRONS RAPIDES

Soutenu le 30 mars 1979

devant la commission d'Examen

Président

M. RENARD

Examineurs

J. FISCHER

E. BONJOUR

A. BRIGGS



UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

Monsieur Gabriel CAU : Président
Monsieur Pierre JULLIEN : Vice Président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM	AMBLARD Pierre	Clinique de dermatologie
	ARNAUD Paul	Chimie
	ARVIEU Robert	I.S.N
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique Expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BEAUDOING André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture
	BELORIZKY Elie	Physique
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures
	BEZEZ Henri	Pathologie chirurgicale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Clinique gastro-entérologique
Mme	BONNIER Marie-Jeanne	Chimie générale
MM.	BOUCHERLE André	Chimie et toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées
	BOUTET DE MONTVEL Louis	Mathématiques Pures
	BRAVARD Yves	Géographie
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologique
	CALAS François	Anatomie
	CARLIER Georges	Biologie végétale
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Clinique Oto-rhino-laryngologique
	CHATEAU Robert	Clinique de neurologie
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique
	CONTAMTIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie pathologique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DELORMAS Pierre	Pneumophtisiologie

MM.	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée (IUT I)
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	JANIN Bernard	Géographie
	KAHANE André	Physique générale
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
Mme	LAJZEROWICZ Janine	Physique
MM.	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie Pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LE ROY Philippe	Mécanique (IUT I)
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOISEAUX Pierre	Sciences Nucléaires
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
MM.	MALINAS Yves	Clinique Obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Clinique Cardiologique
	MAZARE Yves	Clinique Médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MICOUD Max	Clinique Maladies infectieuses
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie Nucléaire
	NOZIERES Philippe	Spectrometrie Physique
	OZENDA Paul	Botanique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET Jean	Semeiologie Médicale (Neurologie)
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REVOL Michel	Urologie
	RINALDI Renaud	Physique
	DE ROUGEMONT Jacques	Neuro-Chirurgie
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT I)
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale

MM.	VAILLANT François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
MM.	VERAIN André	Physique
	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	CRABBE Pierre	CERMO
	DEMBICKI Eugéniuz	Mécanique
	JOHNSON Thomas	Mathématiques appliquées
	PENNEY Thomas	Physique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Gilbert	Géographie
	BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BILLET Jean	Géographie
	BOUCHET Yves	Anatomie
	BRUGEL Lucien	Energétique (IUT I)
	BUISSON René	Physique (IUT I)
	BUTEL Jean	Orthopédie
	COHEN ADDAD Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie
	CONTE René	Physique (IUT I)
	DELOBEL Claude	M.I.A.G.
	DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides
	FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures
	GAUTRON René	Chimie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Appliquées
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	KRAROWIACK Sacha	Mathématiques Appliquées
	KUHN Gérard	Physique (IUT I)
	LUU DUC Cuong	Chimie organique
	MAYNARD Roger	Physique du solide
Mme	MINIER Colette	Physique (IUT I)
MM.	PELMONT Jean	Biochimie
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Minéralogie
	PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
Mle	PIERY Yvette	Physiologie animale

MM.	RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	RICHARD Lucien	Biologie végétale
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM.	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	VIALON Pierre	Géologie
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	ARMAND Yves	Chimie (IUT I)
	BACHELOT Yvan	Endocrinologie
	BARGE Michel	Neuro chirurgie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Hélène	Pharmacodynamie
MM.	BOST Michel	Pédiatrie
	BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B) (Personne étrangère habilitée à être directeur de thèse)
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHARDON Michel	Géographie
	CHERADAME Hervé	Chimie papetière
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
	CORDONNIER Daniel	Néphrologie
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	CYROT Michel	Physique du solide
	DENIS Bernard	Cardiologie
	DOUCE Roland	Physiologie végétale
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	FAURE Gilbert	Urologie
	GAUTIER Robert	Chirurgie générale
	GIDON Maurice	Géologie
	GROS Yves	Physique (IUT I)
	GUIGNIER Michel	Thérapeutique
	GUITTON Jacques	Chimie
	HICTER Pierre	Chimie
	JALBERT Pierre	Histologie
	JUNIEN-LAVILLAVROY Claude	O.R.L.
	KOLODIE Lucien	Hématologie
	LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et médecine préventive
	MALLION Jean-Michel	Médecine du travail

MM. MARECHAL Jean
MARTIN-BOUYER Michel
MASSOT Christian
NEMOZ Alain
NOUGARET Marcel
PARAMELLE Bernard
PECCOUD François

Mécanique (IUT I)
Chimie (CUS)
Médecine interne
Thermodynamique
Automatique (IUT I)
Pneumologie
Analyse (IUT B) (Personnalité étrangère
habilitée à être directeur
de thèse).

PEFFEN René
PERRIER Guy
PHELIP Xavier
RACHAIL Michel
RACINET Claude
RAMBAUD Pierre
RAPHAEL Bernard
Mme RENAUDET Jacqueline
ROBERT Jean-Bernard
ROMIER Guy

Métallurgie (IUT I)
Géophysique-Glaciologie
Rhumatologie
Médecine Interne
Gynécologie et Obstétrique
Pédiatrie
Stomatologie
Bactériologie (Pharmacie)
Chimie-Physique
Mathématiques (IUT B) (Personnalité étran-
gère habilitée à être
directeur de thèse.)

SAKAROVITCH Michel
M^{me} SCHAEERER René
SEIGLE-MURANDI Françoise
STOEBNER Pierre
STUTZ Pierre
VROUSOS Constantin

Maths appliquées
Cancérologie
Cryptogamie
Anatomie Pathologie
Mécanique
Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES.

MM. DEVINE Roderick
KANEKO AKIRA
JOHNSON Thomas
RAY Tuhina

Spectro Physique
Maths pures
Maths appliquées
Physique

MAITRE DE CONFERENCES DELEGUE

M. ROCHAT Jacques

Hygiène et Hydrologie (Pharmacie)

Président : M. Philippe TRAYNARD

Vice-Présidents : M. René PAUTHENET
M. Georges LESPINARD

PROFESSEURS TITULAIRES

MM BENOIT Jean	Electronique - Automatique
BESSON Jean	Chimie Minérale
BLOCH Daniel	Physique du solide - cristallographie
BONNETAIN Lucien	Génie Chimique
BONNIER Etienne	Métallurgie
*BOUDOURIS Georges	Electronique - Automatique
BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide - cristallographie
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique - Automatique
COUMES André	Electronique - Automatique
DURAND Francis	Métallurgie
FELICI Noël	Electronique - Automatique
FOULARD Claude	Electronique - Automatique
LANCIA Roland	Electronique - Automatique
LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire Corpusculaire
LESPINARD Georges	Mécanique
MOREAU René	Mécanique
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Electronique - Automatique
PERRET René	Electronique - Automatique
POLOUJADOFF Michel	Electronique - Automatique
TRAYNARD Philippe	Chimie - Physique
VEILLON Gérard	Informatique Fondamentale et appliquée
*en congé pour études.	

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM BLIMAN Samuël	Electronique - Automatique
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique
COHEN Joseph	Electronique - Automatique
GUYOT Pierre	Métallurgie Physique
LACOUME Jean-Louis	Electronique - Automatique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide - Cristallographie
ROBERT André	Chimie Appliquée et des Matériaux
ROBERT François	Analyse numérique
ZADWORNY François	Electronique - Automatique

MAITRES DE CONFERENCES

MM ANCEAU François	Informatique Fondamentale et appliquée
CHARTIER Germain	Electronique - Automatique
CHIAVERINA Jean	Biologie, biochimie, agronomie
IVANES Marcel	Electronique - Automatique
LESIEUR Marcel	Mécanique
MORET Roger	Physique Nucléaire - Corpusculaire
PIAU Jean-Michel	Mécanique
PIERRARD Jean-Marie	Mécanique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Informatique Fondamentale et appliquée
Mme SAUCIER Gabrielle	Informatique Fondamentale et appliquée
SOHM Jean-Claude	Chimie Physique

.../...

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

-2-

CHERCHEURS DU C.N.R.S. (Directeur et Maîtres de Recherche)

M FRUCHART Robert	Directeur de Recherche
MM ANSARA Ibrahim	Maître de Recherche
BRONOEL Guy	Maître de Recherche
CARRE René	Maître de Recherche
DAVID René	Maître de Recherche
DRIOLE Jean	Maître de Recherche
KLEITZ Michel	Maître de Recherche
LANDAU Ioan-Doré	Maître de Recherche
MATHIEU Jean-Claude	Maître de Recherche
MERMET Jean	Maître de Recherche
MUNIER Jacques	Maître de Recherche

Personnalités habilitées à diriger des travaux de recherche (Décision du Conseil Scientifique)

E.N.S.E.E.G.

MM BISCONDI Michel	Ecole des Mines ST ETIENNE (dépt. Métallurgie)
BOOS Jean-Yves	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
DRIVER Julian	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
KOBYLANSKI André	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
LE COZE Jean	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
LESBATS Pierre	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
LEVY Jacques	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
RIEU Jean	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
SAINFORT	C.E.N. Grenoble (Métallurgie)
SOUQUET	U.S.M.G.
CAILLET Marcel	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
COULON Michel	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
GUILHOT Bernard	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
LALAUZE René	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
LANCELOT Francis	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
SARRAZIN Pierre	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
SOUSTELLE Michel	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
THEVENOT François	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
THOMAS Gérard	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
TOUZAIN Philippe	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
TRAN MINH Canh	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)

E.N.S.E.R.G.

MM BOREL	Centre d'Etudes Nucléaires de GRENOBLE
KAMARINOS	Centre National Recherche Scientifique

E.N.S.E.G.P.

MM BORNARD	Centre National Recherche Scientifique
Mme CHERUY	Centre National Recherche Scientifique
MM DAVID	Centre National Recherche Scientifique
DESCHIZEAUX	Centre National Recherche Scientifique

*
* *
*

R E M E R C I E M E N T S

J'exprime toute ma reconnaissance à Monsieur le Professeur A. LACAZE, du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures qui m'a accueilli dans son laboratoire.

J'adresse mes remerciements à Monsieur R. TOURNIER, Directeur du Laboratoire du C.R.T.B.T. pour la compréhension qu'il m'a accordée pendant mon séjour au laboratoire.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur A. BRIGGS qui a dirigé ces travaux. Je lui dois toute mon initiation, son aide constante, sa disponibilité de tous les instants et ses conseils éclairés qui m'ont permis de surmonter les nombreuses difficultés qui se sont présentées. Les nombreuses discussions avec lui furent très fructueuses.

Je remercie vivement Monsieur le Professeur J. FISCHER de l'Université de Pennsylvania ainsi que Monsieur le Professeur M. RENARD de l'U.S.M.G. et Monsieur E. BONJOUR du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble de me faire l'honneur de participer au jury.

Je remercie aussi Monsieur PALLEAU qui s'est occupé des irradiations des échantillons au C.E.N.G. et Monsieur RUB pour ses aides et conseils dans la programmation.

J'adresse mes remerciements à Messieurs HAEN et SOULETIE pour leur assistance en améliorant l'aspect de langage de cette thèse.

Que l'ensemble du personnel du laboratoire trouve ici le témoignage de ma sympathie pour l'aide efficace qu'ils m'ont apportée en toutes occasions.

Je remercie Mademoiselle MAHIEUX qui a assuré la dactylographie de ce mémoire.

Je remercie enfin Madame TREVISSON pour son aide dans le tirage de cette thèse.

T A B L E . . . D E S . . . M A T I E R E S

	Pages
INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : OSCILLATIONS QUANTIQUES	
I - Introduction	3
II - Détermination expérimentale de la surface de Fermi	7
III - Modèle Électrons libres	7
IV - Mouvement semi-classique d'un électron dans un métal en présence d'un champ magnétique	8
V - Les oscillations quantiques	10
CHAPITRE II : QUELQUES PROPRIETES DE LA RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE	
I - Introduction	17
II - Théorie de la résonance simple	17
III - Sensibilité de la méthode R.M.N.	21
IV - Influence de la relaxation	23
V - Sources d'élargissement des raies	24
VI - Saturation du phénomène	25
VII - Détection de la R.M.N. par oscillateur marginal	25
CHAPITRE III : L'EFFET MAGNETOTHERMIQUE QUANTIQUE ET TECHNIQUE EXPERIMENTALE	
I - Introduction	29
II - Théorie de l'effet magnétothermique quantique	29
III - Technique expérimentale	
A) Introduction	32
B) Détection du signal magnétothermique quantique	34
C) Cryostat	37
D) Système électronique et détermination du champ magnétique	37

E) Méthodes de détermination des fréquences d'oscillations magnétothermiques	45
CHAPITRE IV : GRAPHITE: STRUCTURE DE BANDES ET EFFET D'IRRADIATION AUX NEUTRONS RAPIDES	
I - Introduction	49
II - Structure cristalline et zone de Brillouin	49
III - Modèle de bandes de Slonczewski et Weiss et surface de Fermi du graphite	49
IV - Effet d'irradiation aux neutrons rapides	55
CHAPITRE V : RESULTATS ET DISCUSSION	
I - Introduction	57
II - Echantillons	57
III - Résultats (oscillations magnétothermiques)	
A) Première et deuxième série d'échantillons	58
B) L'anisotropie de la surface de Fermi de l'échantillon 4	71
IV - Discussion	
A) Effets d'irradiation aux neutrons rapides sur les fréquences de d.H.v.A.	71
B) Concentration des porteurs	79
C) Comparaison des fréquences avec les résultats du modèle de bande rigide	84
D) Variation des pics magnétothermiques H_n avec la dose	86
E) Variation des phases ν de $\frac{F}{H} = n + \nu - \frac{1}{8}$ avec la dose	88
V - Conclusions	90
ANNEXE 1 : RESULTATS DE L'ECHANTILLON A.P.G. 20	93
Références	97

I N T R O D U C T I O N

Le graphite pur est un matériau dont les propriétés électriques et la structure de bandes sont assez bien connues (Slonczewski et Weiss, 1958 ; Spain, 1973). Il existe un recouvrement de 36 meV entre la bande de valence et la bande de conduction ce qui fait que le graphite est un semi-métal. L'énergie de Fermi, ϵ_F est à 22 meV en dessous du haut de la bande de valence.

De nombreuses expériences ont été faites sur les propriétés électriques du graphite irradié en fonction du taux d'irradiation aux neutrons rapides. On peut citer, par exemple, la résistivité électrique (Kinchin; 1956), la magnétorésistance (Pacault et al, 1972), la susceptibilité magnétique et l'effet Hall (Rappeneau et al., 1976). Les résultats de ces mesures reflètent des modifications de la surface de Fermi avec l'irradiation. En général, la surface de Fermi, autrement dit ϵ_F , peut être modifiée par la création d'accepteurs d'électrons (par exemple, par irradiation aux neutrons rapides) ou l'introduction de donneurs d'électrons dans le réseau.

Les modifications de la surface de Fermi par irradiation neutronique rapide ont été étudiées pour la première fois par Cooper et al. (1970) en utilisant l'effet Shubnikov - De Haas (S.d.H.). Ils ont trouvé qu'une fréquence de De Haas-Van Alphen (d.H.v.A.) (~ 45 KGauss) augmente de ~ 7 % avec l'irradiation tandis que l'autre (~ 62 KGauss) diminue de ~ 2 % pour les doses comprises entre 0 et $1,2 \times 10^{17}$ n.v.t. Ces fréquences ont été obtenues en ajustant les résultats expérimentaux à une expression théorique à six paramètres.

Or, Pereira (1974) a fait une mesure de l'effet magnétothermique quantique sur un échantillon irradié à 4×10^{16} n.v.t. Il ne trouve qu'une fréquence (~ 50 KGauss), ce qui est en désaccord avec les résultats de Cooper et al. Récemment, une étude d'échantillons irradiés avec des doses de 0 à $2,9 \times 10^{17}$ n.v.t. ($E > 1$ Mev) a été faite par Dillon et al (1977 et 1978). Leur calcul théorique fait avec l'approximation de bande rigide donne les variations des fréquences d'électrons et de trous, F_e et F_t en fonction des taux d'impuretés. Ils ont montré que

pour une certaine concentration d'accepteurs les deux fréquences se croisent et que F_e tend vers 0 quand la dose augmente.

Afin de résoudre le désaccord entre les résultats de Cooper et al et ceux de Pereira et de vérifier les résultats de Dillon et al, nous avons fait des mesures de l'effet magnétothermique quantique du graphite pyrolytique irradié aux neutrons rapides. Les échantillons sont irradiés dans la pile "MELUSINE" du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble avec des doses allant jusqu'à $1,1 \times 10^{17}$ n.v.t. ($E > 1$ MeV). Pour améliorer la précision de mesure du champ magnétique nous avons utilisé la méthode de résonance magnétique nucléaire (R.M.N.).

Dans le premier chapitre nous considérons la théorie des oscillations quantiques et l'utilisation de son étude pour déterminer la surface de Fermi des métaux.

Nous décrivons dans le deuxième chapitre quelques propriétés de la R.M.N. avec une discussion sur l'oscillateur marginal.

Dans le troisième chapitre, nous traiterons la technique expérimentale pour détecter l'effet magnétothermique quantique et la R.M.N.

Le quatrième chapitre est consacré à quelques notions sur la structure de bandes du graphite pur et à une comparaison avec celle du graphite irradié aux neutrons rapides.

Finalement, dans le cinquième chapitre, nous présenterons nos résultats et nos conclusions.

C H A P I T R E I

OSCILLATIONS QUANTIQUES

I.1 INTRODUCTION

Les études de la surface de Fermi des métaux sont devenues une branche importante en physique de l'état solide. Les propriétés électriques ne dépendent souvent que des électrons dans les états près de cette surface. Il s'en suit qu'une connaissance de la surface de Fermi d'un métal est essentielle pour la compréhension de ses propriétés électriques. Si, par exemple, l'aire de la surface de Fermi est petite et les électrons sur cette surface ont des faibles vitesses, la résistivité électrique correspondante sera grande. Selon la théorie, la magnétorésistance pour une surface de Fermi sphérique (d'un gaz d'électrons libres) doit être nulle. Donc, en mesurant la magnétorésistance on peut déterminer les écarts à la sphéricité de la surface de Fermi. La magnétorésistance de Na est très petite (Justi et Kohler, 1939), ainsi il est considéré comme un système d'électrons presque idéal. Dans le Li, la magnétorésistance est assez grande (Jones et Zener, 1934), donc ce métal a probablement une surface de Fermi assez distordue.

Afin de définir la surface de Fermi, nous considérons un système d'électrons en équilibre thermique à $T = 0$ K. Les électrons obéissent à la fonction de distribution de Fermi-Dirac ; la probabilité de l'occupation $f(\epsilon)$ d'un niveau d'énergie ϵ est

$$f(\epsilon) = \{ \exp [(\epsilon - \epsilon_F)/k_B T] + 1 \}^{-1},$$

où ϵ_F est l'énergie de Fermi, k_B est la constante de Boltzmann et T est la température absolue. Au zéro absolu, les états $\epsilon < \epsilon_F$ seront occupés et les états $\epsilon > \epsilon_F$ seront vides. La surface d'énergie constante définie par la relation $\epsilon = \epsilon_F$ est appelée la surface de Fermi. Pour des électrons libres, la surface de Fermi est une sphère dans l'espace - \vec{k} . L'énergie à la surface de la sphère est l'énergie de Fermi ϵ_F ; les vecteurs d'ondes à la surface ont un module k_F tel que

$$\epsilon_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2 m_0},$$

où \hbar est la constante de Planck divisée par 2π et m_0 est la masse de l'électron. Mais dans un métal réel on est presque certain que la surface de Fermi est différente d'une sphère. Même pour un métal monovalent la surface peut être en contact avec les parois de la première zone de Brillouin. S'il y a deux (ou plus de deux) électrons par atome, il est impossible de construire une sphère de Fermi qui soit entièrement contenu à l'intérieur de la première zone de Brillouin. Cela veut dire que les propriétés d'un gaz d'électrons ne seront plus isotropes. Les propriétés dynamiques d'un électron au niveau de Fermi dépendront de la direction du mouvement. Si l'électron se déplace dans une direction où il subit des réflexions de Bragg du réseau, alors il peut paraître "lent" et "lourd" ; dans d'autres directions il peut se conduire comme un électron libre. Ces propriétés dépendent de la situation du porteur (électron ou trou) sur la surface de Fermi. Ainsi la forme de la surface de Fermi et sa situation par rapport à la zone de Brillouin sont des données déterminantes pour les propriétés électriques du métal.

La surface de Fermi n'est pas une surface dans l'espace réel mais dans un espace abstrait, qui est l'espace réciproque. La première zone de Brillouin n'est qu'une cellule élémentaire de l'espace réciproque. Chaque portion de la surface de Fermi enfermée dans la zone de Brillouin est répétée périodiquement dans toutes les autres cellules élémentaires de l'espace réciproque. Cependant, la surface de Fermi n'est pas forcément une surface fermée (Mercoureff, 1967). Si la surface de Fermi coupe la zone de Brillouin, elle ne sera pas une surface fermée mais une certaine surface multi-connectée qui se répète à travers une succession infinie des cellules élémentaires dans l'espace réciproque. Trois exemples de la surface de Fermi des métaux sont montrés dans les figures 1, 2 et 3.

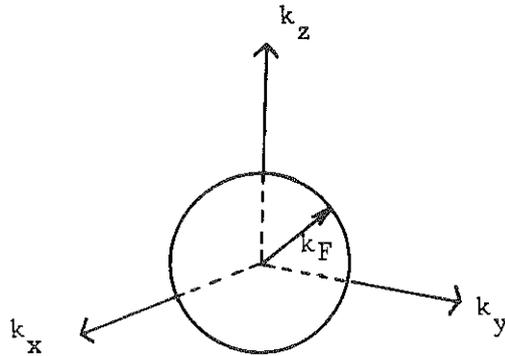


Figure 1

Dans l'état fondamental d'un système de N électrons libres, les états occupés du système remplissent une sphère de rayon k_F , où $\epsilon_F = \hbar^2 k_F^2 / 2m_0$ est l'énergie d'un électron ayant un vecteur d'onde k_F à la surface d'une sphère.

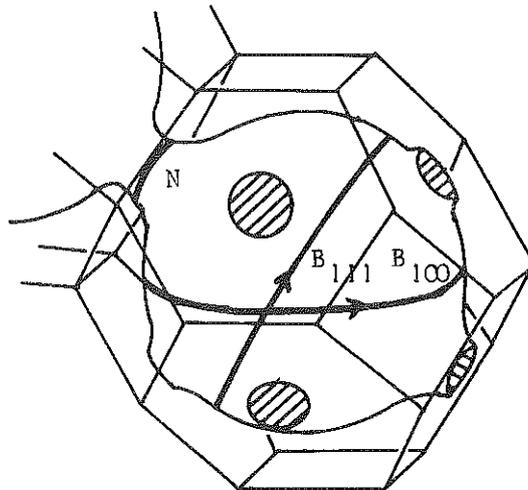


Figure 2

Surface de Fermi du cuivre, d'après Pippard (Pippard, 1965). La zone de Brillouin de la structure c.f.c. est l'octaèdre tronqué. La surface de Fermi touche la limite de zone au centre des faces hexagonales de la zone, dans les directions $[111]$ de l'espace \vec{k} . Deux orbites, "de ventre" sont représentées ici avec la lettre B et une orbite extrême "de cou" est représentée par la lettre N.

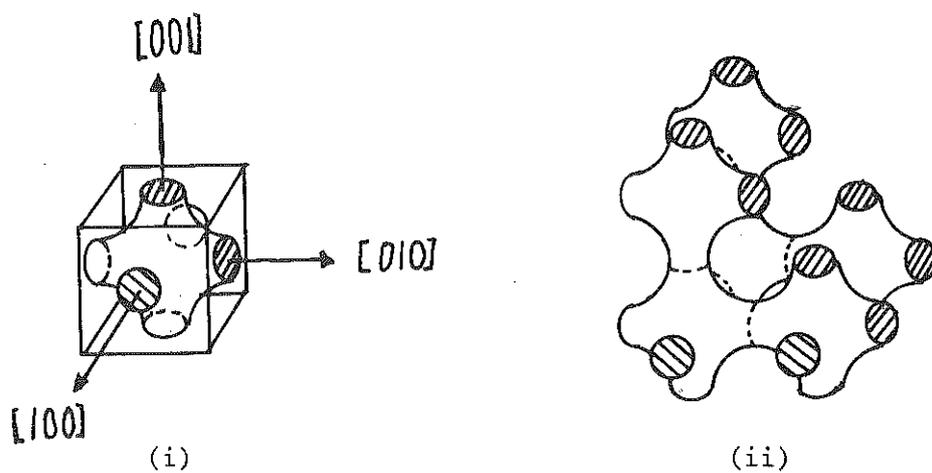


Figure 3

Modèle de surface de Fermi pour un réseau cubique (grille à trois dimensions).

- (i) Portion réduite à la première zone de Brillouin.
- (ii) Répétition périodique du motif précédent par translations du réseau réciproque.

I.2 DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA SURFACE DE FERMI

Des méthodes expérimentales puissantes ont été développées pour la détermination des surfaces de Fermi. Ces méthodes comprennent la magnéto-résistance (BEER, 1963, JAN, 1957), l'effet de peau anormal (Pippard, 1957), la résonance cyclotron (Lax et Mavroides, 1960, Azbel et Lifshitz, 1961), l'effet magnéto-acoustique (Stolz, 1963) et les "oscillations quantiques". Sous ce terme d'"oscillations quantiques", on peut grouper toute une variété de phénomènes produite en présence d'un champ magnétique et dont l'étude constitue le moyen le plus efficace pour obtenir des informations sur la surface de Fermi d'un métal. C'est d'ailleurs essentiellement à partir de ces études que s'est élaborée la connaissance que l'on a actuellement des surfaces de Fermi d'un grand nombre de métaux. L'une de ces oscillations quantiques est l'effet de De Haas-Van Alphen (De Haas et Van Alphen, 1931) qui est une variation oscillatoire de l'aimantation d'un métal en fonction du champ magnétique aux basses températures. Maintenant, nous allons considérer la théorie concernant l'origine de ces oscillations quantiques.

I.3 MODELE ELECTRONS LIBRES

Dans un matériau solide la plupart des électrons atomiques sont liés aux noyaux situés aux points du réseau, mais dans un conducteur métallique les électrons des couches extérieures des atomes sont relativement libres de circuler dans le matériau. Ces électrons sont des électrons de conduction. On peut considérer ces électrons de conduction comme des particules libres approximativement et les traiter comme un gaz d'électrons idéal. En effet, pour ces électrons, l'intérieur du métal est considéré comme une région de potentiel approximativement constant, les parois du métal jouant le rôle de barrières à haut potentiel.

Si les électrons sont confinés dans un cube d'arête L , les composantes du vecteur d'onde \vec{k} s'écrivent comme :

$$(k_x, k_y, k_z) = \left(n_x \frac{2\pi}{L}, n_y \frac{2\pi}{L}, n_z \frac{2\pi}{L} \right), \quad (1.1)$$

où n_x, n_y, n_z sont des nombres entiers ≥ 0 . L'énergie de l'état ϵ_k de

vecteur d'onde \vec{k} s'écrit :

$$\epsilon_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} = \frac{\hbar^2}{2m_0} (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2), \quad (1.2)$$

où m_0 est la masse de l'électron libre.

Dans l'état fondamental d'un système de N électrons libres, on peut représenter les états occupés comme des points dans une sphère dans l'espace- \vec{k} . Les vecteurs d'ondes sur la surface de Fermi ont une grandeur k_F telle que :

$$\epsilon_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m_0}, \quad (1.3)$$

où ϵ_F est l'énergie de Fermi.

La vitesse \vec{v} dans l'état \vec{k} est donnée par :

$$\vec{v} = \frac{\hbar \vec{k}}{m_0}. \quad (1.4)$$

Si le volume est égal à V, on peut montrer que

$$k_F = \left(\frac{3\pi^2 N}{V}\right)^{1/3} \quad (1.5)$$

et la vitesse v_F à la surface de Fermi est :

$$v_F = \left(\frac{\hbar}{m_0}\right) \left(\frac{3\pi^2 N}{V}\right)^{1/3}. \quad (1.6)$$

I.4 MOUVEMENT SEMI-CLASSIQUE D'UN ELECTRON DANS UN METAL EN PRESENCE D'UN CHAMP MAGNETIQUE

En l'absence de collisions, l'équation du mouvement d'un électron dans un champ magnétique \vec{H} est :

$$\frac{d\vec{k}}{dt} = \frac{e}{c\hbar} \vec{v} \times \vec{H} = \frac{e}{c\hbar} \frac{d\vec{r}}{dt} \times \vec{H}, \quad (1.7)$$

où \vec{v} : vitesse du paquet d'ondes ;

\vec{r} : vecteur de position ;

e : charge de l'électron ;

c : vitesse de la lumière.

Puisque $\vec{v} = \hbar^{-1} \partial \epsilon / \partial \vec{k}$ est normal à la surface de Fermi (ϵ : énergie en champ magnétique nul), $d\vec{k}/dt$ est parallèle à la surface de Fermi et perpendiculaire à \vec{H} . La composante de \vec{k} parallèle à \vec{H} est donc constante, alors l'orbite électronique dans l'espace- \vec{k} est une section de la surface de Fermi par un plan normal à \vec{H} .

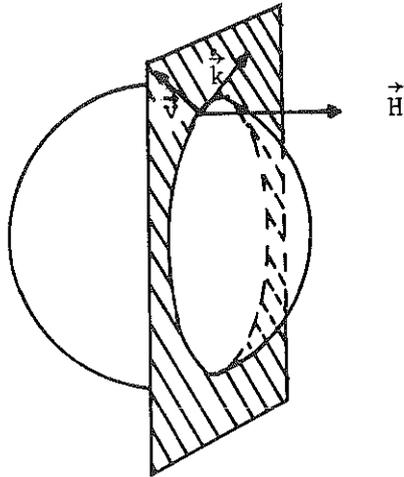


Figure 4

Trajectoire réciproque dans un champ magnétique

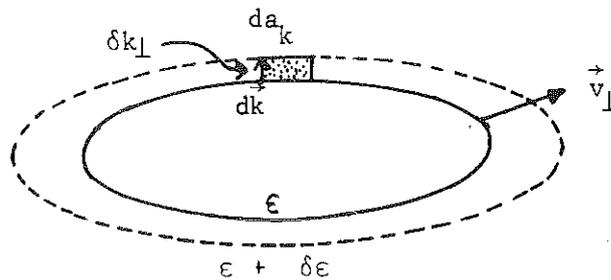


Figure 5

Trajectoire réciproque dans un plan perpendiculaire au champ magnétique

La période T d'une orbite électronique dans un champ magnétique s'écrit :

$$T = \oint dt = \oint \frac{dr}{v},$$

où
$$\vec{v} = \frac{d\vec{r}}{dt} = \hbar^{-1} \frac{\partial \epsilon}{\partial \vec{k}} = \hbar^{-1} \frac{\delta \epsilon}{\delta \vec{k}_\perp}, \quad (1.8)$$

où dans la figure 5, $\delta \vec{k}_\perp$ est un accroissement de \vec{k} dans un plan normal à \vec{H} , perpendiculaire à la surface de Fermi d'énergie ϵ . Ainsi :

$$\begin{aligned} T &= \hbar \oint \frac{d\vec{r} \cdot \delta \vec{k}_\perp}{\delta \epsilon} = \frac{c\hbar^2}{eH} \oint \frac{|\delta \vec{k} \times \delta \vec{k}_\perp|}{\delta \epsilon} \\ &= \frac{c\hbar^2}{eH} \frac{\delta a_k}{\delta \epsilon}, \end{aligned} \quad (1.9)$$

où a_k est l'aire de l'orbite électronique dans l'espace- \vec{k} . La fréquence correspondante est appelée la fréquence cyclotron ω_c et est donnée par :

$$\omega_c = \frac{2\pi}{T} = \frac{2\pi eH}{c\hbar^2} \frac{d\epsilon}{da_k}. \quad (1.10)$$

En comparant avec un gaz d'électrons libres où

$$\omega_c(\text{électrons libres}) = \frac{eH}{m_0 c},$$

on peut donc par analogie définir une masse effective de cyclotron comme

$$m_H^* = \frac{\hbar^2}{2\pi} \frac{da_k}{d\epsilon}. \quad (1.11)$$

I.5 LES OSCILLATIONS QUANTIQUES

En présence d'un champ magnétique H dans la direction de z, l'énergie due au mouvement cyclotronique d'un électron dans une boîte cubique avec des bords de longueur L parallèles aux axes x, y et z est quantifiée dans un plan perpendiculaire au champ suivant l'expression :

$$\epsilon_n(k_z) = \frac{\hbar^2}{2m_0} k_z^2 + (n + \nu)\hbar\omega \pm \frac{1}{2} g\mu_B H, \quad (1.12)$$

$n = 0, 1, 2, \dots$

où k_z est le vecteur d'onde dans la direction de z . Dans l'expression (1.12) :

$$k_z = \frac{2\pi n_z}{L}, \quad n_z = 0, 1, 2, \dots \quad (1.13)$$

et ω est la fréquence de cyclotron eH/m_H^*c ,
 g est le facteur spectroscopique de splitting,
 μ_B est le magnéton de Bohr, $\frac{e\hbar}{2m_0c}$,
 ν est une constante de phase ($0 \leq \nu \leq 1$) et
 $\nu = \frac{1}{2}$ pour des électrons libres.

A cause de la quantification de l'orbite des électrons en espace- \vec{k} dans le plan perpendiculaire au champ magnétique, la bande parabolique est partagée en sous-bandes qui diffèrent en énergie par la quantité $\hbar\omega$. Le dernier terme est dû au fait que la dégénérescence du spin est levée par le champ magnétique. La distribution uniforme des états quantiques dans l'espace- \vec{k} est remplacée en présence d'un champ magnétique par une série de cylindres concentriques, appelées "cylindres de Landau", dont les aires transversales $(a_k)_n$ sont perpendiculaires au champ magnétique :

$$(a_k)_n = \frac{2\pi eH}{ch} (n + \nu). \quad (1.14)$$

Le spin a été négligé dans cette discussion. La nature discrète des cylindres de Landau est détruite sauf si leur séparation énergétique $\hbar\omega$ est plus grande que $k_B T$. La condensation des états quantiques dans un champ magnétique a des conséquences radicales pour la densité des états. La densité des états totale $g(\epsilon)$ par unité d'énergie et de volume (Kahn et Frederikse, 1959) est de la forme :

$$g(\epsilon) = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{2m^*}{\hbar^2}\right)^{3/2} \sum_{n=0}^{n_{\max}} \frac{\hbar\omega}{[\epsilon - (n + \nu)\hbar\omega]^{1/2}}. \quad (1.15)$$

La somme est faite sur tous les états quantiques. Toutes les fois que l'énergie ϵ coïncide avec celle d'un niveau de Landau, la densité d'états diverge. Cela est dû à une simplification exagérée où on a négligé la largeur de raie finie des niveaux de Landau. Si l'élargissement de collision est considéré, la divergence disparaît. Afin de démontrer

cet effet, la densité d'états a été calculée (Landwehr, 1969), pour les divers degrés de l'élargissement de niveau. Une forme Lorentzienne a été choisie pour les niveaux d'énergies dans la figure 6.

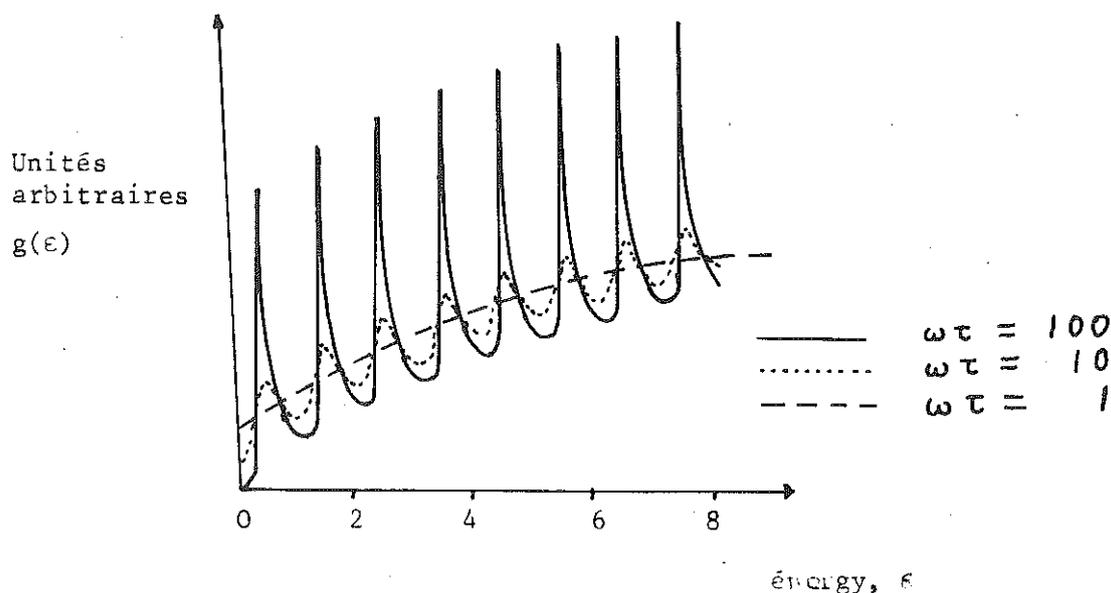


Figure 6

Densité d'états en fonction de l'énergie (unités de $\hbar\omega$) pour les divers degrés de l'élargissement de niveau. D'après Landwehr (Landwehr, 1969).

Dans la figure 6, les pics pointus en $g(\epsilon)$ ont disparu pour $\omega\tau = 10$ et les oscillations sont presque supprimées pour $\omega\tau = 1$. En fait, le modèle choisi est trop primitif, puisque τ n'est pas constant pour toute la gamme des énergies. Néanmoins, on peut envisager les conséquences de l'élargissement de collision pour la région près de la surface de Fermi. Les oscillations dans la densité d'états en fonction du champ magnétique influencent fortement l'énergie libre et les taux de diffusion des électrons et produisent des oscillations dans les propriétés électriques. Supposons que dans un métal les niveaux énergétiques sont remplis jusqu'au niveau de Fermi ϵ_F avec des électrons ; pourvu que $\epsilon_F > \hbar\omega_c$ et que les conditions préalables $\omega_c\tau > 1$ et $\hbar\omega_c > k_B T$ soient satisfaites, des maxima dans l'énergie libre et dans la diffusion se produiront quand les cylindres de Landau passent à travers la surface de Fermi. Si le niveau de Fermi reste constant, les oscillations dans l'énergie libre seront périodiques en H^{-1} ($= P$), la réciproque du champ

magnétique.

Onsager (Onsager, 1952) a montré que l'équation (1.14) est valable pour des surfaces de Fermi de forme quelconque. Dans ce cas, les oscillations quantiques dans les différentes parties de la surface de Fermi interfèrent de façon destructive sauf dans les aires où la section transversale est stationnaire, c'est-à-dire, aux sections transversales extrêmes. La relation suivante est valable :

$$P \equiv \Delta\left(\frac{1}{H}\right) = \frac{2\pi e}{\hbar c} \frac{1}{a_{\text{extr}}}, \quad (1.16)$$

où a_{extr} est l'aire extrême de la surface de Fermi perpendiculaire à la direction du champ magnétique. La fréquence $F = \frac{1}{P}$ est appelée fréquence de De Haas-Van Alphen (d.H.v.A.) et cette fréquence est proportionnelle à a_{extr} . L'équation (1.16) est une expression utile pour étudier la forme des surfaces de Fermi.

A température finie, les oscillations sont quasi-sinusoïdales. Cependant, leur allure peut se compliquer s'il y a plusieurs sections extrêmes d'aires différentes ; c'est le cas par exemple d'une surface de Fermi en cylindre ondulé parallèle à H : il y a d'une part la section d'un "ventre" d'aire maximum, d'autre part la section d'un "cou" d'aire minimum, donnant des périodes différentes. Il y a alors composition des différentes oscillations et la résultante n'est plus sinusoïdale. Si les périodes et les amplitudes sont très différentes, il n'y a aucune difficulté pratique à les séparer ; si elles sont voisines, on peut avoir des battements qui rendent les identifications plus délicates, et peuvent même conduire à des résultats erronés.

Pour donner une idée concernant les résultats expérimentaux des oscillations quantiques, nous avons mis dans le tableau 1 les écarts typiques en champ magnétique entre deux pics maxima choisis pour des champs magnétiques indiqués pour les divers métaux.

TABLEAU 1

Fréquences d'oscillations	Direction du champ magnétique	Exemple	Séparation entre deux pics maxima		
			\bar{a} 25 KG	\bar{a} 50 KG	\bar{a} 70 KG
$1,828 \times 10^8 \text{ G}^{(a)}$	-	K	3 G	14 G	27 G
$5,809 \times 10^8 \text{ G}^{(b)}$	[111]	Cu	1 G	4 G	8 G
$2,174 \times 10^7 \text{ G}^{(c)}$	[111]	Cu	29 G	115 G	225 G
$1 \times 10^7 \text{ G}^{(d)}$	[100]	Al	60 G	250 G	500 G
$2,778 \times 10^5 \text{ G}^{(e)}$	[100]	Al	$2 \times 10^3 \text{ G}$	$9 \times 10^3 \text{ G}$	$2 \times 10^4 \text{ G}$
$6,573 \times 10^4 \text{ G}^{(f)}$	[0001]	Graphite Pyrolytique	$1 \times 10^4 \text{ G}$	$4,5 \times 10^4 \text{ G}$	$1 \times 10^5 \text{ G}$
$4,849 \times 10^4 \text{ G}^{(g)}$	[0001]	Graphite Pyrolytique	$1,4 \times 10^4 \text{ G}$	$7 \times 10^4 \text{ G}$	$2,1 \times 10^5 \text{ G}$

(a) D'après Schoenberg et Stiles, 1964.

(b) et (c) D'après Jan et Templeton, 1964.

(d) et (f) D'après Shepherd, Larson, Roberts et Gordon, 1964.

(f) et (g) D'après Vegas, 1974.

Sur le tableau 1, on voit qu'afin de détecter les oscillations quantiques dans les métaux comme le K et le Cu, les considérations de l'homogénéité du champ magnétique sur le volume de l'échantillon sont importantes. Pour un champ magnétique donné, si l'homogénéité de ce champ est de l'ordre de, ou plus grande que l'écart entre deux pics maxima, ces oscillations ne peuvent pas être observées. Cependant, pour un champ magnétique plus grand, la considération de l'homogénéité du champ magnétique devient moins exigeante.

Afin de mesurer la variation de la surface de Fermi en fonction du nombre de porteurs dans un métal, par exemple, par l'introduction des impuretés, il est nécessaire de déterminer avec précision les valeurs des fréquences de d.H.v.A. Dans nos expériences, nous avons étudié les oscillations magnétothermiques quantiques dans le graphite pyrolytique, irradié aux neutrons. Ces études ont été faites en fonction du

taux d'irradiation. Nous avons utilisé la méthode de résonance magnétique nucléaire pour les mesures du champ magnétique simultanément avec les expériences de l'effet magnétothermique quantique. Dans cette méthode, la mesure du champ magnétique est réduite à la mesure d'une radiofréquence ; celle-ci peut être mesurée avec une grande précision ; on peut ainsi déterminer les fréquences de d.H.v.A. avec une grande précision.

Nous allons considérer dans le chapitre II quelques propriétés de la résonance magnétique nucléaire.

C H A P I T R E II

QUELQUES PROPRIETES DE LA RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE

II.1 INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous allons discuter de la Résonance Magnétique Nucléaire et son application pour des mesures du champ magnétique. Son intérêt dans ces mesures est dû au fait que les largeurs de raies ΔH de certains noyaux sont étroites, de l'ordre de plusieurs Gauss ; on peut ainsi déterminer un champ donné avec une précision meilleure que $\Delta H/5$. Par exemple, pour le chlorure d'ammonium, la largeur de raie à 77 K est de l'ordre 6 Gauss et à 298 K la largeur de raie est de l'ordre de 2,5 Gauss (Bersohn et al., 1954). Dans nos expériences, nous avons utilisé la R.M.N. afin de mesurer, avec précision, le champ magnétique dans une bobine supraconductrice du champ homogène. Nous allons traiter, d'abord la théorie de la R.M.N. et ensuite la technique utilisée pour faire ces mesures.

II.2 THEORIE DE LA RESONANCE SIMPLE

Nous considérons un ensemble composé d'un grand nombre de spins nucléaires, appartenant à des atomes identiques, placés dans un champ magnétique constant. Dans l'état fondamental, chaque noyau a un moment cinétique de rotation $\hbar \vec{I}$ où I est un opérateur caractéristique de spin du noyau et par conséquent un moment magnétique nucléaire \vec{m} . La grandeur de ce moment est donnée par l'équation :

$$\vec{m} = \gamma \hbar \vec{I}, \quad (2.1)$$

où γ est le rapport gyromagnétique du spin de noyau. Le moment magnétique nucléaire, tout comme celui que l'on a coutume de lier au mouvement de l'électron, crée un paramagnétisme de même nature que le paramagnétisme électronique, mais beaucoup plus petit.

Sous l'influence d'un champ magnétique extérieur \vec{H}_0 , l'énergie

nucléaire de Zeeman E est donnée par :

$$\begin{aligned}
 E &= - \vec{m} \cdot \vec{H}_0 \\
 &= - \gamma \hbar \vec{I} \cdot \vec{H}_0.
 \end{aligned}
 \tag{2.2}$$

Prenant l'axe des z dans la direction de \vec{H}_0 , l'hamiltonien complet du système s'écrit;

$$E = - \gamma \hbar H_0 I_z.$$

Les valeurs propres de cet hamiltonien sont des multiples $\gamma \hbar H_0$ des valeurs propres de I_z . Donc

$$E = - \gamma \hbar H_0 m. \tag{2.3}$$

Ici, m est la valeur propre de I_z , soit l'une des $2I + 1$ valeurs $I, I-1, \dots, -I$ (figure 7).

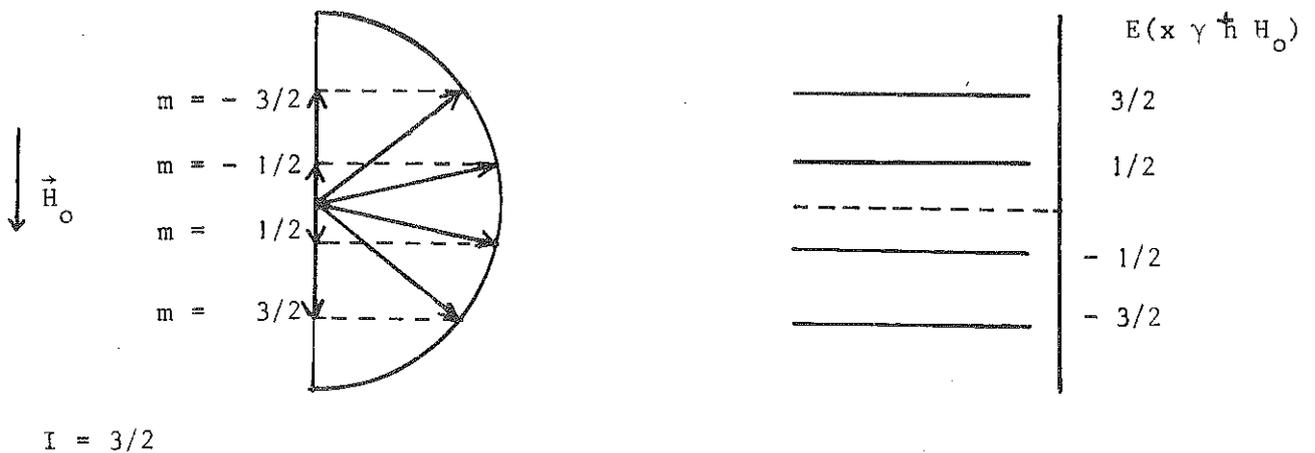


Figure 7

Niveaux d'énergie de l'équation(2.3)

Par exemple, pour le cas $I = 3/2$ (noyau de Cu ou Na), les niveaux sont équidistants, la distance entre les niveaux adjacents étant $\gamma \hbar H_0$.

On devrait être capable de détecter la présence de tel groupe des niveaux par une certaine technique d'absorption spectrale. Il faudrait une interaction qui puisse provoquer les transitions entre ces niveaux. Pour satisfaire au principe de la conservation de l'énergie, il faudrait que l'interaction soit une fonction du temps et que la fréquence angulaire ω vérifie la relation:

$$\hbar\omega = \Delta E, \quad (2.4)$$

où ΔE est la différence d'énergie entre les énergies nucléaires de Zeeman initiale et finale.

En général, le couplage utilisé pour produire des résonances magnétiques est l'application d'un champ magnétique alternatif $H_x^\circ \cos \omega t$ perpendiculaire au champ magnétique continu (Abragam, 1961a).

Si l'on pose $H = H_x^\circ \cos \omega t$, on ajoute dans l'hamiltonien une perturbation (Abragam, 1961b):

$$E_{\text{pert.}} = -\gamma \hbar H_x^\circ I_x \cos \omega t. \quad (2.5)$$

Les éléments $\langle m' | I_x | m \rangle$ sont nuls, sauf pour $m' = m \pm 1$ (Abragam, 1961c), par conséquent seules les transitions entre niveaux d'énergie adjacents sont possibles:

$$\hbar\omega_0 = \Delta E = \gamma \hbar H_0,$$

$$\text{où } \omega_0 = \gamma H_0. \quad (2.6)$$

Le système nucléaire plongé dans un champ magnétique de radiofréquence ω_0 est soumis à un champ magnétique variable H (balayage en champ). Lorsque le champ magnétique H passe par la valeur H_0 correspondant à ω_0 , le champ de radiofréquence sera en mesure d'induire des transitions entre les deux niveaux d'énergie ; ce phénomène met en jeu un processus d'absorption et un processus d'émission qui sont en concurrence.

Absorption :

Les noyaux dans l'état de moindre énergie β emprunteront de l'énergie à l'émetteur pour passer à l'état α (figure 8). En d'autres

termes, il y a une absorption d'énergie qui sert à "retourner" en sens inverse du champ magnétique des noyaux initialement orientés dans la direction du champ magnétique externe.

Emission :

Simultanément, la radiofréquence ω_0 a pour effet d'induire des transitions de l'état α à l'état β . Dans cette transition les noyaux restituent au contraire de l'énergie.

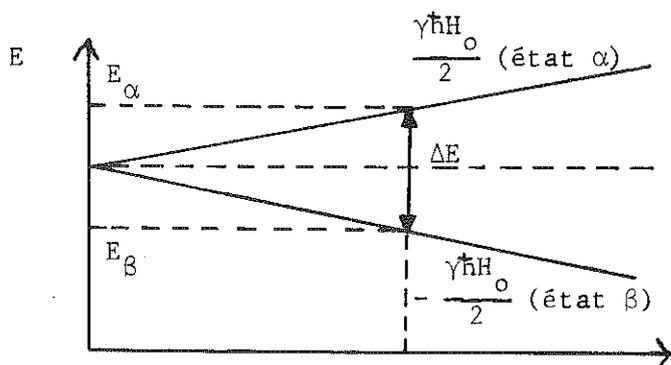


Figure 8

Processus d'absorption et émission

La fréquence de résonance est indépendante, au premier ordre, de la molécule dont le noyau fait partie. Cette remarque permet de détecter sans ambiguïté (car les fréquences sont largement espacées) toutes les espèces chimiques intervenant dans un échantillon et souvent même les divers isotopes présents. Le tableau 2 donne les fréquences de certains noyaux dans un champ magnétique de 10.000 Gauss (d'après Varian Associates Nuclear Magnétique Résonances, Cinquième Edition).

TABLEAU 2

Isotope	Fréquence de résonance à 10 KG (MHz)	Abondance naturelle (%)	Sensibilité relative pour le même nombre de noyaux		Moment magnétique (en magnétons nucléaires)	Spin (unités h)	Moment électrique (en multiples de 10^{-24} cm ²)
			à champ constant	à fréquence constante			
n ^{1*}	29,1670	-	0,322	0,685	- 1,01315	1/2	-
H ¹	42,5776	99,9844	1,000	1,000	2,79268	1/2	-
Li ⁷	16,547	92,57	0,294	1,94	3,2560	3/2	- 0,1
Al ²⁷	11,094	100,	0,206	3,04	3,6385	5/2	0,149
Cl ³⁵	4,172	75,4	$4,70 \times 10^{-3}$	0,490	0,82091	3/2	- $7,9 \times 10^{-2}$
V ⁵¹	11,193	100	0,382	5,52	5,1392	7/2	0,2
Cu ⁶³	11,285	69,09	$9,31 \times 10^{-2}$	1,33	2,2206	3/2	- 0,16
Rb ⁸⁵	4,111	72,8	$1,05 \times 10^{-2}$	1,13	1,3182	5/2	0,28
Sr ¹¹⁹	15,87	8,68	$5,18 \times 10^{-2}$	0,373	- 1,0409	1/2	-

II.3 SENSIBILITE DE LA METHODE R.M.N.

Pour un champ magnétique de 10.000 Gauss, la fréquence de résonance des systèmes nucléaires est de l'ordre de $\omega/2\pi = 10$ MHz (une radiofréquence) tandis que celle des systèmes électroniques est de l'ordre de 10.000 MHz (dans la région des micro-ondes). Dans le premier cas, on peut utiliser les techniques classiques de radioélectricité et dans le second, celles des guides d'ondes. La plupart des résonances atomiques sont dans le domaine intermédiaire (500-5.000 MHz) où les techniques sont plus délicates.

Une difficulté propre aux résonances magnétiques surgit : il n'y a en général qu'une très faible différence de population entre ces sous-niveaux dont l'écart énergétique est en général plus petit que l'énergie thermique ambiante $k_B T$. Pour montrer la sensibilité de la technique R.M.N., on utilise le facteur de Boltzmann :

$$\frac{n_{\text{Boltz}}(E_2)}{n_{\text{Boltz}}(E_1)} = \exp [- (E_2 - E_1) / k_B T], \quad (2.7)$$

où $n_{\text{Boltz}}(E_1)$ = nombre des particules avec énergie E_1 ,

et $n_{\text{Boltz}}(E_2)$ = nombre des particules avec énergie E_2 .

Si l'absorption à résonance est détecté à la fréquence de 10 MHz;

a) A l'ambiante, $T = 300 \text{ K}$:

$$\frac{n_{\text{Boltz}}(E_2)}{n_{\text{Boltz}}(E_1)} = \exp [- (E_2 - E_1) / k_B T] = \frac{n_2}{n_1},$$

$$(E_2 - E_1 = h \nu \quad \text{et} \quad \nu = 10^7 \text{ sec}^{-1}).$$

Donc

$$\begin{aligned} \frac{n_2}{n_1} &= e^{-h\nu/k_B T} \\ &= e^{-6,6 \times 10^{-34} \text{ joule-sec} \times 10^7 \text{ sec}^{-1} / 1,4 \times 10^{-23} \text{ joule-K}^{-1} \times 300 \text{ K}} \\ &= e^{-1,6 \times 10^{-6}} \\ &\approx 1 - 1,6 \times 10^{-6}. \end{aligned}$$

On a

$$1 - \frac{n_2}{n_1} = 1,6 \times 10^{-6}$$

d'où

$$\frac{n_1 - n_2}{n_1} = 1,6 \times 10^{-6}.$$

Ainsi on devrait détecter une différence de population inférieure à 2 p.p.m.

b) Dans nos expériences, la gamme de température où on peut mesurer les oscillations quantiques est comprise entre 0,4K et 1,5K.

Donc

$$\begin{aligned} \frac{n_2}{n_1} &= e^{-6,6 \times 10^{-34} \text{ joule-sec} \times 10^7 \text{ sec}^{-1} / 1,4 \times 10^{-23} \text{ joule-K}^{-1} \times 0,95 \text{ K}} \\ &= e^{-5,0 \times 10^{-4}} \\ &\approx 1 - 5,0 \times 10^{-4}. \end{aligned}$$

Ainsi $1 - \frac{n_2}{n_1} = 5,0 \times 10^{-4}$

où $\frac{n_1 - n_2}{n_1} = 5,0 \times 10^{-4},$

soit une différence de population de 500 p.p.m.

II.4 INFLUENCE DE LA RELAXATION

La durée de vie du noyau dans les sous-niveaux m est, en général, très grande. Comme l'a montré le calcul précédent, à la température ambiante et à l'équilibre thermique, le rapport des populations de deux niveaux adjacents est proportionnel au facteur de Boltzmann et à une faible valeur. Sous l'effet d'un champ de radiofréquence $H_x^\circ \cos \omega t$, l'équilibre thermique est détruit et la population des divers sous-niveaux tend à s'égaliser. Le rétablissement de l'équilibre thermique est produit par un "processus de relaxation" qui est une transformation de l'énergie magnétique du système en énergie thermique ; ce processus l'emporte toujours sur la réémission spontanée ou induite, qui est négligeable dans ces conditions.

Pour les noyaux, deux processus de relaxation sont à considérer, la relaxation spin-réseau et la relaxation spin-spin. La relaxation spin-réseau commande les échanges d'énergie entre les dipôles magnétiques et les autres degrés de liberté du système ; elle est caractérisée par le temps de relaxation spin-réseau (aussi appelé spin-milieu) T_1 . Il y a une très grande diversité des temps de relaxation T_1 et l'ordre de grandeur typique est de 10^{-4} sec à 10^4 sec. La relaxation spin-spin fixe la constante de temps des échanges d'énergie entre moments magnétiques de deux noyaux voisins, caractérisée par le temps de relaxation spin-spin T_2 . Ces interactions s'établissent par le jeu d'un champ magnétique local, produit par les voisins, et qui se superpose au niveau de chaque noyau avec le champ magnétique appliqué H_0 . Ainsi chaque noyau ne résonne pas exactement dans le même champ magnétique que ses voisins, d'où un étalement des fréquences de résonance dans une certaine bande Δf et une largeur spectrale du signal de résonance, autre aspect du temps de relaxation T_2 . Dans nos expériences, cet étalement de fréquences de résonance correspond à une largeur de raie de résonance ΔH en champ magnétique. En règle générale, pour les solides, le temps de relaxation

T_1 est plus grand que T_2 , alors que pour les liquides mobiles T_2 est de l'ordre de grandeur de T_1 .

II.5 SOURCES D'ELARGISSEMENT DES RAIES

Deux sortes d'élargissement des raies sont possibles. Premièrement, il y a un élargissement des raies dû aux phénomènes naturels a), b) et c) ; deuxièmement, un élargissement dû au facteur d'imprécision de l'appareillage d).

a) Interaction spin-spin :

Dans un solide un noyau n'est pas isolé des autres. Leurs moments nucléaires sont toujours couplés et l'interaction entre deux moments magnétiques $\vec{m}_1 = \gamma_1 \hbar \vec{I}_1$ et $\vec{m}_2 = \gamma_2 \hbar \vec{I}_2$ s'écrit (Monographs du Centre d'Actualisation Scientifique et Technique, I.N.S.A., 1969) :

$$E_{12} = \frac{\gamma_1 \gamma_2 \hbar^2}{\gamma_{12}^3} \left[\vec{I}_1 \cdot \vec{I}_2 - \frac{3(\vec{I}_1 \cdot \vec{r}_{12})(\vec{I}_2 \cdot \vec{r}_{12})}{r_{12}^2} \right], \quad (2.8)$$

où \vec{r}_{12} est le vecteur joignant les deux noyaux. Les moments magnétiques nucléaires étant de l'ordre de 10^{-3} magnéton de Bohr et les distances internucléaires étant de l'ordre de plusieurs angströms, les champs locaux dans les réseaux rigides seront en général de plusieurs gauss. Chaque spin du réseau ayant plusieurs voisins, dont les positions relatives et les orientations varient d'un spin à l'autre, la composante statique du champ local varie également d'un site à l'autre, d'où une dispersion des fréquences de Larmor et un élargissement de la raie.

b) Interaction spin-réseau :

Cette interaction est à l'origine du processus de relaxation spin-réseau. On se borne souvent à n'envisager que la largeur de raie ΔH , que l'on peut lier à T_2 par la relation (Freyman et Soutif, 1960) :

$$T_2 = \frac{1}{\gamma \Delta H}. \quad (2.9)$$

c) Interaction quadrupolaire :

Tous les noyaux pour lesquels le spin I est supérieur à 1/2 ont, outre leur moment magnétique, un moment électrique quadrupolaire qu'on peut représenter comme une déformation de la symétrie sphérique de la charge électrique du noyau. Au lieu d'avoir une résonance, il y aura 2 I raies, également espacées si la perturbation est faible, inégalement si la perturbation du second ordre n'est plus négligeable.

d) Inhomogénéités du champ magnétique :

Le champ magnétique continue H_0 doit être homogène sur tout le volume de l'échantillon. Faute de cela, les différents noyaux dans la substance résoneraient à tour de rôle donnant lieu à une résonance d'ensemble élargie. Dans nos expériences, une résolution satisfaisante exige un champ magnétique sur le volume de l'échantillon une inhomogénéité ΔH telle que :

$$\frac{\Delta H}{H_0} < 10^{-6}$$

Si le champ magnétique est de 10 KG, il faut donc que l'inhomogénéité ΔH sur le volume de l'échantillon et la stabilité du champ dans le temps pendant l'enregistrement des données soient inférieures à 10 milligauss.

II.6 SATURATION DU PHENOMENE

L'application d'un champ magnétique de radiofréquence induit des transitions correspondant à l'émission stimulée comme à l'absorption. Tant que les niveaux inférieurs seront plus peuplés que les niveaux supérieurs, l'absorption sera prépondérante. Mais ce phénomène tend lui-même à égaliser les populations des niveaux et par la suite à diminuer les possibilités d'absorption. Lorsque la radiation excitatrice est assez intense, l'absorption sera saturée.

II.7 DETECTION DE LA R.M.N. PAR OSCILLATEUR MARGINAL

L'utilisation des bobines supraconductrices de haut champ nous impose le besoin de produire un champ de radiofréquence de fréquence

variable aux basses températures. Dans nos expériences, nous avons utilisé la méthode de l'oscillateur marginal (Pound et Knight, 1950, Watkins et Pound 1951, Blume 1958) pour produire le champ de radiofréquence. La simplicité et la possibilité de faire varier aisément la fréquence dans de larges limites sont les principaux avantages de cette méthode. Nous avons montré dans la figure 9 le schéma de principe de l'oscillateur marginal. La partie encadrée (en tirets) de ce schéma comprend la bobine de radiofréquence L_1 , l'échantillon de R.M.N. et le coaxial. Cette partie fonctionne aux températures comprises entre 0,4 K et 4,2 K. La bobine L_1 et le condensateur variable C_1 constitue un circuit LC. Dans une expérience typique de R.M.N., l'échantillon est placé dans la bobine de radiofréquence L_1 . A la fréquence de résonance les noyaux de l'échantillon absorbent énergie de la bobine L_1 , diminuant ainsi son facteur de surtension Q et provoquant un changement dans l'amplitude de l'oscillation. Puisque cet effet est souvent très petit, il est désirable d'avoir un oscillateur marginal avec une bonne sensibilité aux variations de Q . Afin d'obtenir une large gamme de fréquences avec les varicaps disponibles (capacité max. ~ 5 x capacité min.), il faut pouvoir changer la bobine L_2 . La gamme de fréquences utilisée dans nos expériences s'étend de 9 à 43 MHz. En changeant la valeur de la bobine L_2 , nous pouvons diviser cette gamme de fréquence en trois gammes s'étendant respectivement de 9 à 18 MHz, de 18 à 30 MHz et de 30 à 43 MHz. Le signal de l'oscillateur est envoyé sur un amplificateur à gain variable (figure 9). L'amplitude détectée par le détecteur est toujours maintenue constante à l'aide d'un système d'asservissement d'amplitude qui comprend l'amplificateur différentiel, l'intégrateur et la consigne d'amplitude. Le signal de résonance est observé par la technique de détection synchrone. Un petit champ magnétique alternatif est superposé au champ magnétique H_0 . La résonance est observée en balayant lentement le champ H_0 jusqu'à ce que la condition de résonance

$$\omega_{res.} = 2\pi f_{res.} = \gamma H_{res.} \text{ soit satisfaite.}$$

Dans nos expériences, nous avons choisi les noyaux de proton et d' Al^{27} pour mesurer les champs magnétiques à cause de leur abondance naturelle et de leur facteur gyromagnétique γ convenable. La valeur de γ pour des protons est de $\gamma/2\pi = 4,25776$ MHz/KG et pour Al^{27} métallique $\gamma/2\pi = 1,10945$ MHz/KG. Les valeurs de γ étant connues avec une grande précision, si la stabilité de l'oscillateur marginal est bonne, on peut déterminer le champ magnétique aussi avec une grande précision.

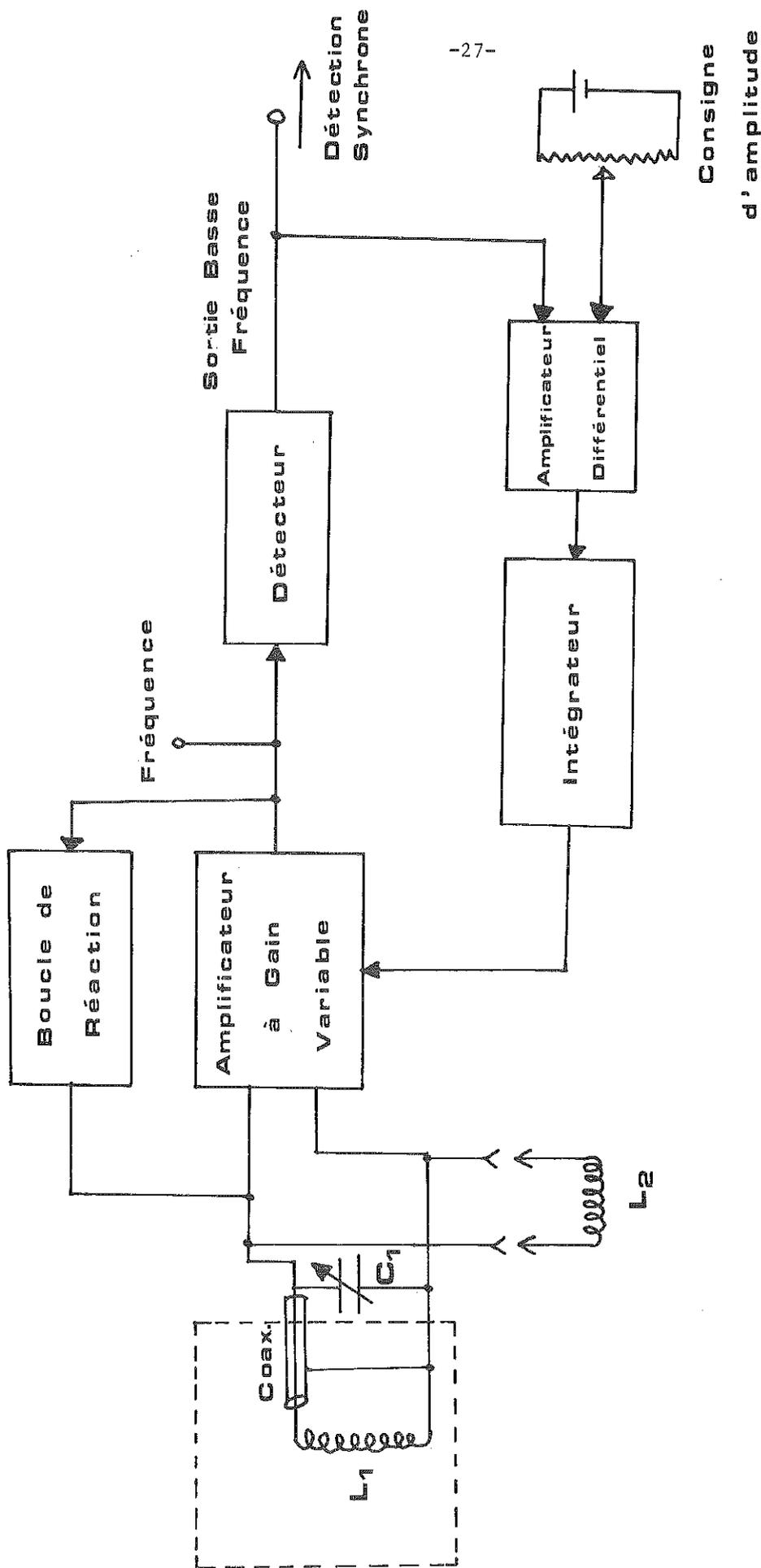


Figure 9. Schéma de principe d'un Oscillateur Marginal

La principale faiblesse de la méthode de l'oscillateur marginal est la difficulté de produire aussi bien de très petits champs de radiofréquence, parfois nécessaire pour éviter la saturation en présence de long temps de relaxation T_1 , que des champs forts nécessaires pour des temps de relaxation très courts. Cette difficulté provient, dans le premier cas, de l'existence d'un seuil pour le niveau d'oscillation au-dessous duquel l'oscillateur devient instable, dans le second cas du bruit qui devient prohibitif pour de hauts niveaux d'oscillation.

Puisque une grande partie du dispositif utilisé pour observer la R.M.N. est aussi utilisée dans les expériences de l'effet magnétothermique quantique, l'ensemble de l'appareillage et du système cryogénique sera décrit dans le chapitre III.

L'EFFET MAGNETOTHERMIQUE QUANTIQUE ET TECHNIQUE EXPERIMENTALE

I - INTRODUCTION

L'effet magnétothermique quantique est un exemple des oscillations quantiques qui sont discutées au chapitre I, section 5. Dans ce phénomène, on observe une variation adiabatique de la température T de l'échantillon en fonction du champ magnétique. Kunzler, Hsu et Boyle (1962) ont observé ce phénomène pour la première fois dans le bismuth à la température de ^4He en mesurant directement la température de l'échantillon. Dans nos expériences, nous avons utilisé une technique alternative qui a été utilisée par McCombe et Seidel (1967), Pereira (1974) et Vegas et Briggs (1974). Dans cette méthode, un faible champ magnétique alternatif est superposé au champ magnétique continu. La variation de température est détectée avec un système de détection synchrone. La quantité mesurée est le coefficient magnétothermique, défini par $(\frac{\partial T}{\partial H})_{S,\theta}$ où S et θ sont respectivement l'entropie et l'angle qui sont constants pendant une mesure.

D'après les relations de Maxwell, le coefficient $(\frac{\partial T}{\partial H})_{S,\theta}$ est lié à l'aimantation M par la relation :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_{S,\theta} = -\left(\frac{\partial T}{\partial S}\right)_{H,\theta} \left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_{H,\theta} = \frac{-T}{C_{H,\theta}} \left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_{H,\theta} = \frac{T}{C_{H,\theta}} \frac{\partial^2 E}{\partial T \partial H} \quad (3.1)$$

où E est l'énergie libre de Helmholtz, $C_{H,\theta}$ est la capacité thermique totale dans un champ magnétique H, et l'angle θ mesure la direction de ce champ par rapport à un axe cristallographique de l'échantillon.

Nous allons établir par la suite la formule générale du coefficient $(\frac{\partial T}{\partial H})_{S,\theta}$ et discuter la théorie de l'effet magnétothermique quantique.

II - THEORIE DE L'EFFET MAGNETOTHERMIQUE QUANTIQUE

L'énergie libre E d'un gaz d'électrons dans un champ magnétique nul est donnée par la formule (Wilson, 1953) :

$$E = \frac{N}{V} \epsilon_F - 2k_B T \sum_i \ln [1 + e^{(\epsilon_F - \epsilon_i)/k_B T}], \quad (3.2)$$

où N est le nombre total d'électrons, V le volume du gaz d'électrons ; la sommation est faite sur tous les états électroniques ϵ_i . Lifshitz et Kosevitch (1956) ont fait un calcul de l'énergie libre d'un système d'électrons soumis à un champ magnétique. Cette énergie libre peut être divisée en deux composantes ; une composante monotone E_{mon} . et une composante oscillatoire E_{osc} . La composante oscillatoire, la seule qui nous intéresse dans cette discussion, est donnée par l'expression

$$E_{\text{osc}} = -2k_B T_L^3 \left(\frac{eH}{c\hbar}\right)^{3/2} \left(\frac{\partial^2 a_{\text{extr.}}}{\partial k_H^2}\right)^{-1/2} \sum_{r=1}^{\infty} \frac{\exp\left(-\frac{rX}{T_H}\right) \cos\left(\frac{\pi r g m_H^*}{2m_0}\right)}{r^{3/2} \sinh(rT/T_H)} \times \cos\left(\frac{2\pi r}{HP} - 2\pi r \nu \mp \frac{\pi}{4}\right) \quad (3.3a)$$

avec les définitions :

$$T_H = \frac{\mu_B^* H}{\pi^2 k_B}$$

$$\mu_B^* = \frac{e\hbar}{2m_H^* c}, \text{ magnéton de Bohr effectif.}$$

$$\frac{1}{P} = F = \frac{\hbar c}{2\pi e} a_{\text{extr.}}, \text{ fréquence de De Haas-Van Alphen.} \quad (3.3b)$$

$$m_H^* = \frac{\hbar^2}{2\pi} \frac{\partial a_{\text{extr.}}}{\partial \epsilon}, \text{ masse effective de l'électron.}$$

$a_{\text{extr.}}$: aire extrême de la surface de Fermi normal à H.

X : "température de Dingle". Cette température est liée à la largeur \hbar/τ des niveaux de Landau donnée par $k_B X = 2\hbar/\pi\tau$ (Dingle, 1952).

g : facteur de spin-splitting ou facteur de Landé.

m_0 : masse de l'électron libre.

Les signes moins et plus dans la phase correspondent respectivement à un maximum ou un minimum de $a_{\text{extr.}}$. Le paramètre ν provient de

la condition de quantification d'Onsager (1952) pour les orbites magnétiques fermées. Pour une coïncidence d'un niveau de Landau avec le niveau de Fermi, a_{extr} est donnée par la relation :

$$a_{\text{extr}} = \frac{2\pi eH}{\hbar c} (n + \nu), \quad (3.4)$$

avec $\nu = \frac{1}{2}$ pour les électrons libres.

En utilisant l'équation (3.3a) et la relation thermodynamique (3.1), nous pouvons écrire le coefficient magnétothermique $(\frac{\partial T}{\partial H})_{S, \theta}$ comme :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_{S, \theta} = & - \frac{T}{C_{H, \theta}} \left(\frac{2\pi F}{H}\right) H^{1/2} \sum_{r=1}^{\infty} \frac{1}{r^{1/2}} \left[1 - \frac{rT}{T_H} \coth\left(\frac{rT}{T_H}\right) \right] \\ & \times \frac{P_r \exp\left(-\frac{rX}{T_H}\right)}{\sinh\left(\frac{rT}{T_H}\right)} \sin\left(\frac{2\pi rF}{H} - 2\pi r\nu \mp \frac{\pi}{4}\right), \end{aligned} \quad (3.5)$$

$$\text{où } P_r = -2L^3 k_B \left(\frac{e}{\hbar c}\right)^{3/2} \frac{\partial^2 a_{\text{extr}}}{\partial k_H^2}^{-1/2} \cos\left(\frac{\pi r g m^* H}{2m_0}\right). \quad (3.6)$$

Par conséquent, le coefficient magnétothermique est périodique et la fréquence F des oscillations est donnée par la relation (3.3b). Nous allons discuter maintenant de plusieurs facteurs qui peuvent modifier l'amplitude des oscillations dans l'expression théorique (3.6) en supposant que la fréquence F est constante.

$$\cos\left(\frac{\pi r g m^* H}{2m_0}\right) :$$

ce terme provient d'un effet du spin de l'électron. Ce spin produit une séparation de Zeeman de $\frac{1}{2} g \mu_B^* H$ pour chaque niveau de Landau. Le facteur de splitting g peut être différent de sa valeur de 2,0023 pour des électrons libres à cause de l'effet de couplage spin-orbite de l'électron.

$$\exp\left(\frac{-rX}{T_H}\right) :$$

ce terme exprime l'effet de l'élargissement des niveaux de Landau dû aux collisions des électrons avec des impuretés et défauts du métal. Dingle (1952) a montré que ce type d'élargissement donne lieu à une réduction de l'amplitude des oscillations.

$$\frac{1}{\sinh(rT/T_H)} \left[1 - \frac{rT}{T_H} \coth\left(\frac{rT}{T_H}\right) \right] :$$

quand la température T tend vers 0, les amplitudes des harmoniques A_r subissent un amortissement thermique à cause de ce terme. Cependant, pour $T > 0$, les amplitudes d'oscillations s'accroissent et sont maximales à une certaine température. Il est facile de démontrer (McCombe et Seidel, 1967) qu'aux basses températures, le deuxième et le troisième harmonique du signal magnétothermique sont plus grands que le premier harmonique (figure 10).

Dans la figure 10, l'élargissement dû aux collisions a été négligé [$\exp(-rT/T_H) = 1$] et dans le calcul de A_1 , la capacité thermique totale $C_{H,e}$ est considérée comme proportionnelle à T (les harmoniques $r > 3$ seront réduits par rapport à l'harmonique $r = 1$ à cause du terme $\exp(-rX/T_H)$). Le signal magnétothermique enrichi de plusieurs harmoniques présente des oscillations plus aiguës, ce qui augmente la résolution et permet d'observer l'effet de splitting de spin des niveaux de Landau.

$$\frac{\partial^2 a_{\text{extr.}}}{\partial k_H^2} :$$

l'amplitude des oscillateurs dépend du rayon de courbure de la surface de Fermi aux sections extrêmes, dans un plan normal à H .

III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

A) Introduction.

Pour observer les oscillations magnétothermiques, il faut que

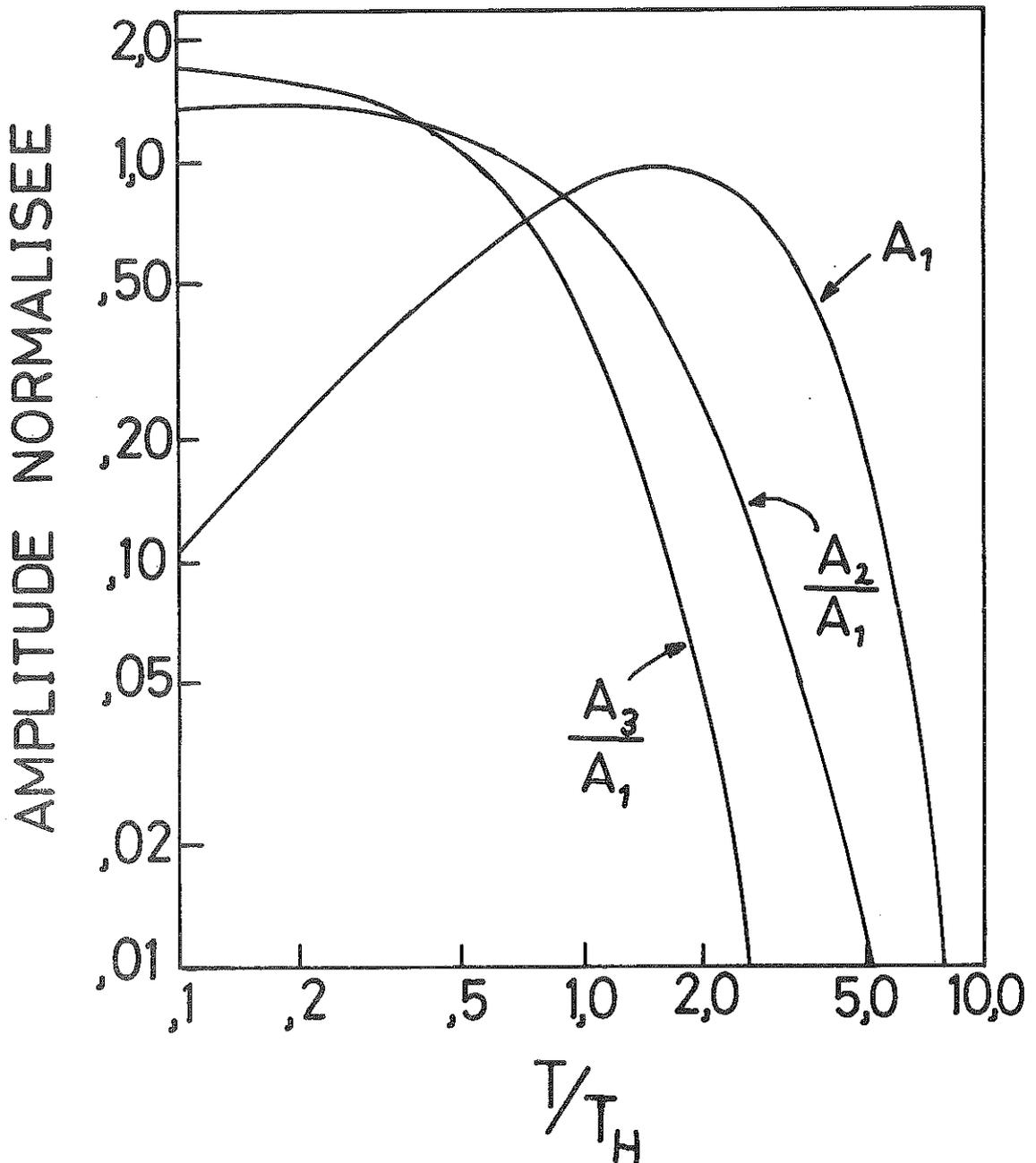


Figure 10. Dépendance de température des trois premiers harmoniques de $\left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_{S,0}$

A₁ représente le premier harmonique.
A₂/A₁ et A₃/A₁ représentent respectivement les valeurs relatives des deuxième et troisième harmoniques par rapport au premier.

la condition quantique $\hbar\omega_c > k_B T$ et la relation $\omega_c \tau > 1$ soient satisfaites. Ces deux relations impliquent l'utilisation de basses températures (< 4 K), d'échantillons de haute pureté et d'un champ magnétique de bonne homogénéité à tout le volume de l'échantillon.

Notre montage cryogénique nous permet d'atteindre un champ magnétique de 76 KGauss de bonne homogénéité (voir ce chapitre, section 3.D) et une température de 0,4 K. Dans nos mesures, les conditions sur la température, le champ magnétique et son homogénéité sont aussi valables pour observer la R.M.N. Nous avons utilisé un système de modulation à basse fréquence pour détecter les signaux magnétothermiques et R.M.N. Par conséquent, une grande partie du montage cryogénique et électronique utilisée pour étudier l'effet magnétothermique quantique est aussi employée pour étudier la R.M.N.

Maintenant, nous allons considérer la méthode de détection du signal magnétothermique et ensuite le cryostat, le système électronique et les méthodes permettant de déterminer les fréquences d'oscillations magnétothermiques.

B) Détection du signal magnétothermique quantique.

Les signaux d'oscillations magnétothermiques et de R.M.N. ont été détectés par une technique de modulation de champ basse fréquence. Dans cette technique, un faible champ magnétique alternatif $h = h_m \cos \omega t$ est superposé au champ continu H_0 qui est en même temps balayé lentement. Les signaux provenant des échantillons magnétothermiques et R.M.N. sont détectés par deux systèmes de détection synchrone. Dans la discussion suivante nous allons considérer l'application de cette technique de détection au signal magnétothermique.

Dans notre procédé, l'amplitude du champ de modulation h_m est beaucoup plus petit que l'écart de champ $\Delta H = H_0^2 / F$ correspondant à un cycle d'oscillation magnétothermique. Le champ magnétique total H s'écrit :

$$H = H_0 + h_m \cos \omega t \quad (h_m \ll \frac{H_0^2}{F}) \quad (3.7)$$

où H_0 est le champ continu et $h_m \cos \omega t$ est le champ de modulation. Ces deux champs sont parallèles et on suppose qu'il y a une pénétration complète du champ de modulation dans l'échantillon.

La contribution principale à la partie oscillatoire de température de l'échantillon est due au premier terme $r = 1$ de l'équation (3.5). Pour un champ donné H , cette température s'écrit, sous la forme simplifiée :

$$T = D(H) \cos \left(\frac{2\pi F}{H} \right), \quad (3.8)$$

où $D(H)$ est une fonction du champ H . L'introduction du facteur de phase ne changera pas la discussion suivante. En mettant (3.7) dans (3.8), nous obtenons :

$$\tilde{T} = D(H) \cos \left[\frac{2\pi F}{(H_0 + h_m \cos \omega t)} \right], \quad (3.9)$$

où \tilde{T} est la température de l'échantillon en présence du champ total $H_0 + h_m \cos \omega t$. Puisque $h_m \ll H_0$, on peut écrire (3.9) comme (Springford, 1971) :

$$\tilde{T} = D(H_0) \cos \left[\frac{2\pi F}{H_0} \left(1 - \frac{h_m}{H_0} \cos \omega t + \dots \right) \right] \quad (3.10)$$

et en négligeant les termes d'ordre supérieur à $(h_m/H_0) \cos \omega t$,

$$\tilde{T} = D(H_0) \left[\cos \left(\frac{2\pi F}{H_0} \right) \cos(\phi \cos \omega t) + \sin \left(\frac{2\pi F}{H_0} \right) \sin(\phi \cos \omega t) \right], \quad (3.11)$$

où $\phi = \frac{2\pi h_m}{\Delta H}$, ΔH étant la période de d.H.v.A. ($= H_0^2/F$).

(3.11) s'écrit maintenant avec les fonctions $J_n(\phi)$ de Bessel d'ordre n (Korn et Kohn, 1961) :

$$\begin{aligned} \tilde{T} = D(H_0) \left\{ \cos \left(\frac{2\pi F}{H_0} \right) \left[J_0(\phi) / 2 + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n J_{2n}(\phi) \cos(2n\omega t) \right] \right. \\ \left. + \sin \left(\frac{2\pi F}{H_0} \right) \left[\sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n J_{2n+1}(\phi) \cos(2n+1)\omega t \right] \right\}. \quad (3.12) \end{aligned}$$

Les mesures d'oscillations magnétothermiques se font par la détection synchrone à la fréquence fondamentale ω ($n=0$) de $\cos[(2n+1)\omega t]$, ainsi (3.12) devient :

$$\tilde{T} = D(H_0) J_1(\phi) \sin \left(\frac{2\pi F}{H_0} \right). \quad (3.13)$$

On voit que dans (3.13) l'amplitude d'oscillation n'est plus une quantité proportionnelle à $D(H_0)$ mais celle-ci est modifiée par le facteur multiplicatif $J_1(\phi)$ de la fonction de Bessel. Pour un champ constant H_0 , l'amplitude est maximale lorsque ϕ est tel que $J_1(\phi)$ est maximum. Puisque les fonctions de Bessel $J_{2n+1}(\phi)$ ne prennent pas simultanément les mêmes valeurs, un choix approprié de h_m haussera sélectivement une fréquence magnétothermique particulière. Pour $n = 0$, la valeur minimale de ϕ , qui donne ce maximum de $J_1(\phi)$ est $\phi = 1,84$ d'où $J_1(1,84) = 0,582$. Pour un champ de modulation h_m faible tel que $\phi \ll 1$, nous avons $J_1(\phi) \propto \phi$. Ainsi $J_1(\phi) \propto h_m$, et le signal détecté sera proportionnel à h_m .

La tension $v_{d.s.}$ détectée à la sortie du système de détection synchrone s'écrit (approximation linéaire) :

$$\begin{aligned} v_{d.s.} &= ig v_{ech.} \\ &= igh_m \left(\frac{\partial T}{\partial H} \right)_{S,\theta} \left(\frac{\partial R}{\partial T} \right)_H \end{aligned} \quad (3.14)$$

avec $v_{ech.}$: tension détectée aux bornes du thermomètre solidaire de l'échantillon.
 g : gain total du système de détection synchrone.
 i : courant constant dans le thermomètre.
 et $\left(\frac{\partial R}{\partial T} \right)_H$: caractéristique résistance - température de ce thermomètre pour un champ H donné.

En mettant (3.13) dans (3.14) et après simplification, on voit que :

$$v_{d.s.} = (\text{constante}) \times D(H_0) J_1(\phi) \cos \left(\frac{2\pi F}{H_0} \right) \quad (3.15)$$

Cependant, pour obtenir une valeur globale du signal détecté, il est nécessaire de faire une sommation de tous les termes $r > 1$ obéissant à l'équation (3.15).

Par l'utilisation de la détection synchrone on peut détecter les signaux de très faible amplitude ayant la même fréquence et la même phase d'une onde de référence. Cette mesure s'effectue même si le signal est fortement perturbé par du bruit ou des parasites. Elle permet d'extraire un signal noyé dans le bruit par rétrécissement de la

bande d'analyse au détriment du temps d'examen (en ce sens, elle constitue un filtre très étroit, synchronisé extérieurement sur le signal à examiner). En outre, on voit une augmentation du rapport signal sur bruit.

C) Cryostat.

La figure 11 montre un schéma du montage cryogénique. L'impédance G nous permet d'obtenir une température de 1 K en pompant sur la boîte d'⁴He (E sur la figure 11). Ensuite, en pompant sur la boîte d'³He (F), nous arrivons à une température de 0,4 K. Juste après un siphonnage d'⁴He, le dewar A contient approximativement 10 litres d'⁴He à 4,2 K ; cette quantité est suffisante pour une opération de cinq heures. Les thermomètres utilisés sont des résistances de carbone de 47 Ω de marque Allen-Bradley pour la boîte ⁴He (boîte 1 K) et de 470 Ω de marque Speer pour la boîte ³He (boîte 0,4 K). Une résistance Allen-Bradley a été amincie à 0,5 mm d'épaisseur et sert à mesurer la température de l'échantillon. Puisque ce thermomètre est fragile, on peut obtenir un montage robuste en le collant sur une plaque d'araldite avec du vernis General Electric. L'échantillon est placé sur le thermomètre avec une feuille (10⁻³ cm) de kapton entre eux servant d'isolant électrique. Echantillon et thermomètre sont mis en bon contact thermique avec de la graisse à vide. Aux environs de 0,4 K la sensibilité de la mesure de température est de 10⁵ Ω/K et la résistance correspondante est de R ~ 10⁵ Ω.

D) Système électronique et détermination du champ magnétique.

Le système électronique pour mesurer l'effet magnétothermique quantique est représenté sur la figure 12. Nous avons utilisé un générateur basse fréquence alimentant la bobine de modulation avec un courant de 8-10 Hz. Un courant continu de 1 à 10 μA est débité dans le thermomètre solidaire de l'échantillon. La tension aux bornes de ce thermomètre est détectée à l'harmonique fondamental par un système de détection synchrone P.A.R. Modèle 124 A. L'échantillon est orienté à l'aide d'un mécanisme de rotation à vis sans fin (figure 13). Les avantages de ce mécanisme résident dans sa compacité et sa grande démultiplication (rapport 100). Le porte-échantillon tournant et le support du porte-échantillon sont en delrin. L'angle entre leurs axes

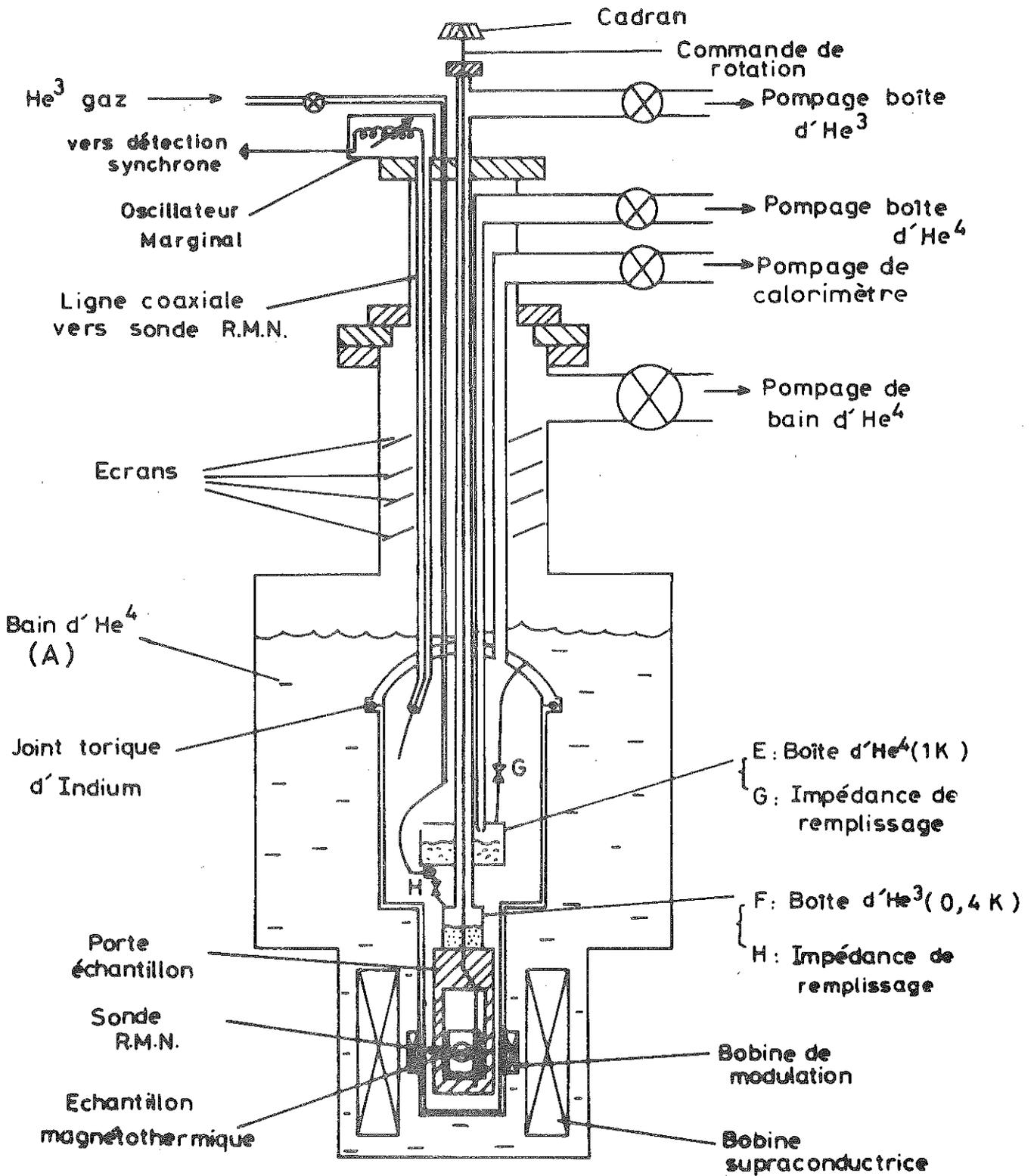


Figure 11. Diagramme schématique du cryostat

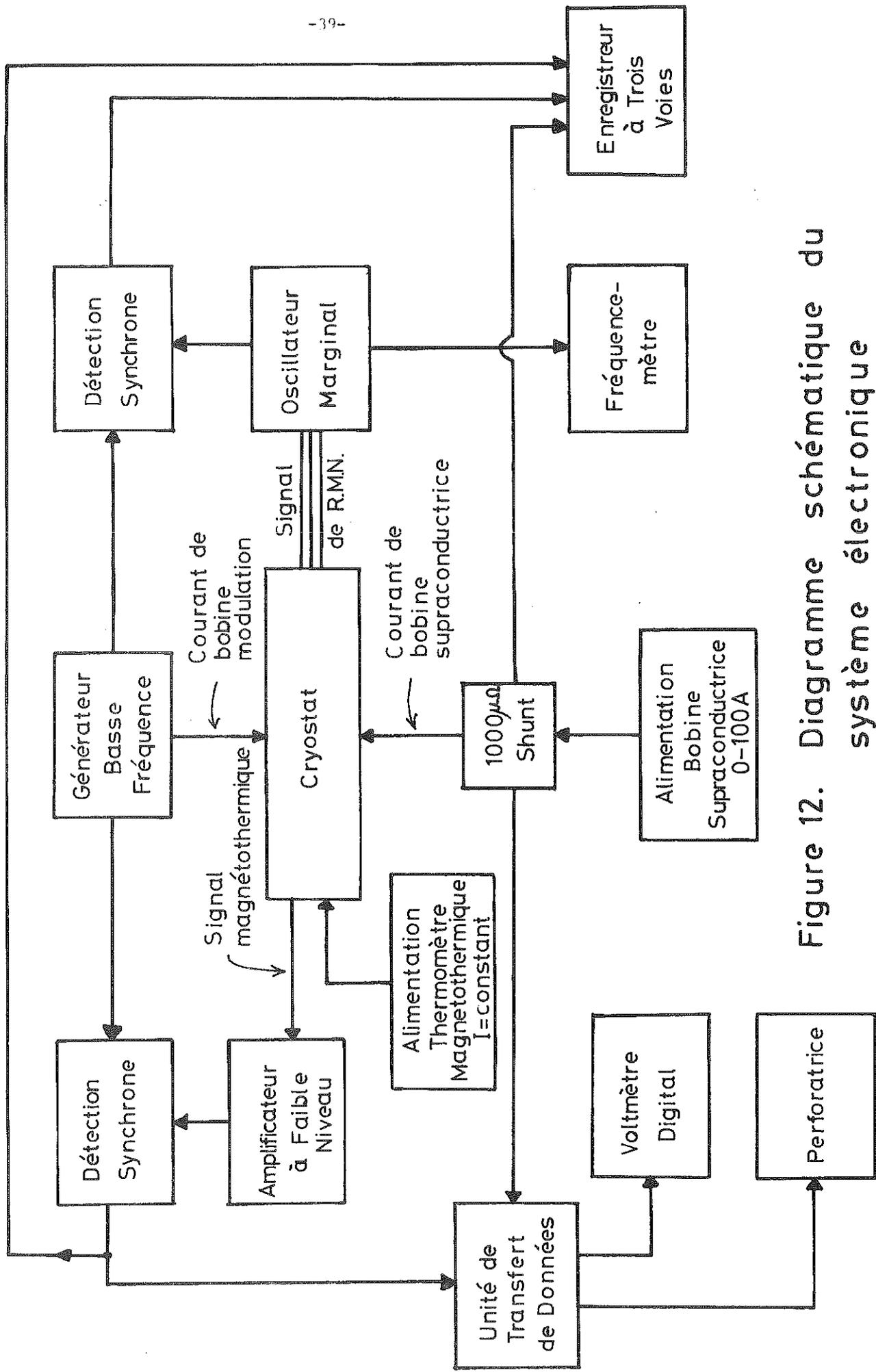


Figure 12. Diagramme schématique du système électronique

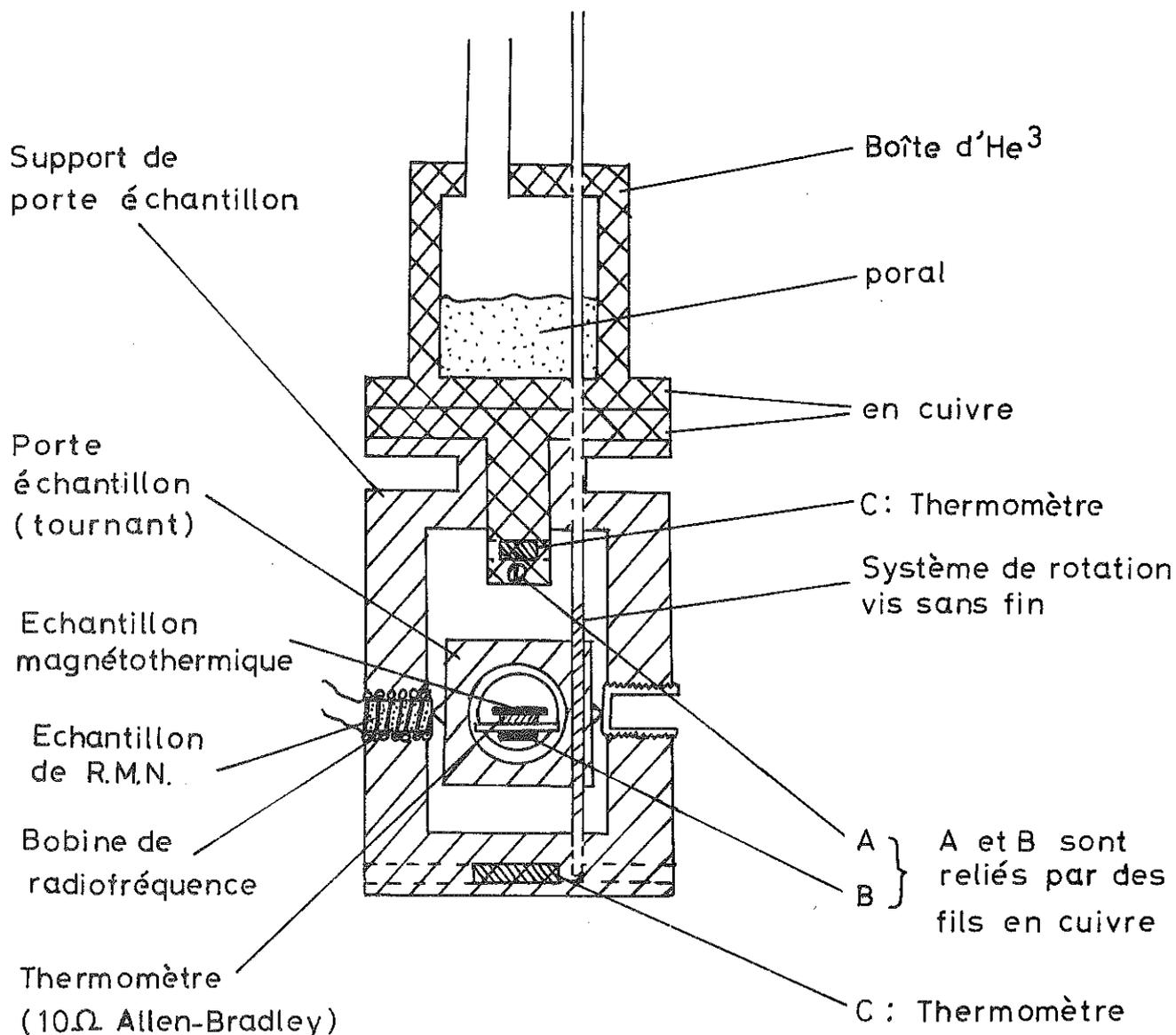


Figure 13. Porte échantillon et support en delrin (schématique)

est déterminé avec une précision de $\pm 0,5^\circ$. La précision absolue de la détermination de l'angle de l'échantillon par rapport au champ magnétique est de l'ordre de $\pm 1^\circ$.

Le champ magnétique est mesuré par l'observation de la R.M.N. des noyaux de Al^{27} et du proton en utilisant un oscillateur marginal (voir figure 9 et chapitre II, section 7) et un système de détection synchrone réalisé au C.R.T.B.T. La sonde de R.M.N. est constituée d'une bobine de 10 tours ($\phi = 0,3$ mm) remplie avec l'échantillon R.M.N. Ce dernier est constitué de poudre d' Al^{27} mélangée avec de l'araldite (proton) et moulée ensuite en forme de cylindre de diamètre 3 mm et longueur 4 mm. Ceci est nécessaire pour diminuer l'influence de l'effet de peau sur le signal détecté. Cette sonde est placée très près de l'échantillon magnétothermique comme le montre la figure 13. Ainsi le même champ de modulation $h_m \cos \omega t$ nécessaire pour la détection du signal magnétothermique est utilisé dans la mesure du signal R.M.N. ($h_m \approx 4$ Gauss).

La figure 14 montre un signal typique de résonance d' Al^{27} pur (99,99 %). Le champ de radiofréquence est de 16,7428 MHz et le champ magnétique à la résonance est de 15,091 KG. L'anisotropie du signal observée est probablement due à la pénétration partielle du champ de radiofréquence dans les particules métalliques à cause de l'effet de peau. La symétrie des signaux de résonance nous permet de déterminer le centre de résonance et ainsi le champ magnétique avec une précision de ± 1 G. La largeur de raie d' Al^{27} à 50 KG est de l'ordre de 15-20 G tandis que la largeur naturelle de raie est de l'ordre de 8-10 G (Maxfield et al., 1965).

Nous avons utilisé une bobine supraconductrice calculée pour produire un champ magnétique de bonne homogénéité dans la région centrale occupée par les deux échantillons. Cette bobine est alimentée par une source de courant C.R.T.B.T. et peut fournir un champ maximum de 76 KG ($I_{\max} = 100$ A). Le courant I dans cette bobine est déterminé en mesurant la tension V_I aux bornes d'une résistance d'étalon de $10^{-3} \Omega$ (figure 12). Avant de faire les mesures d'oscillations magnétothermiques nous avons fait un étalonnage du rapport champ sur courant (H/I) au centre de cette bobine et aussi déterminé l'homogénéité de ce champ. Le rapport H/I a été obtenu par R.M.N. et vaut 0,774 KG/A (figure 15).

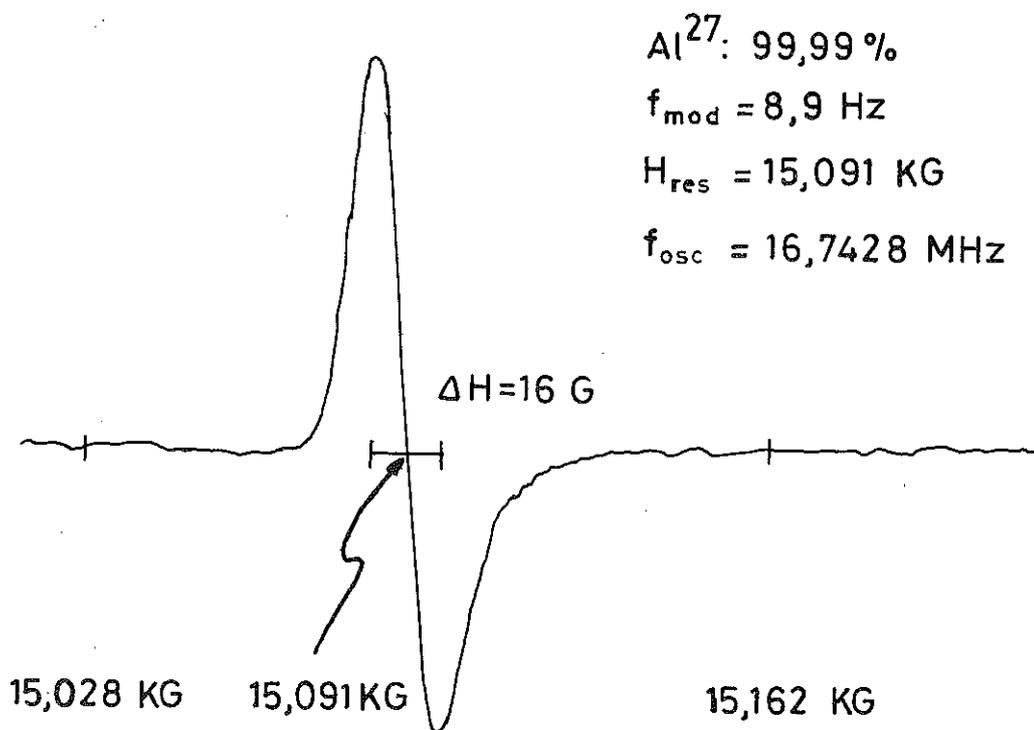


Figure 14 Signal d'absorption différentiel pour Al^{27} métallique pur (99,99 %)

A cause des effets d'hystérésis de la bobine supraconductrice et la largeur des raies de R.M.N., nous avons estimé que la précision de mesure du champ magnétique pour un courant donné est de 0,005 %. Nous avons aussi utilisé la R.M.N. pour déterminer l'homogénéité du champ dans la bobine supraconductrice pour deux champs, l'un de 3,999 KG et l'autre de 11,108 KG. Au centre de la bobine, nous avons déterminé que l'homogénéité du champ sur le volume de la sonde R.M.N. est meilleure que 50 p.p.m. (figure 16).

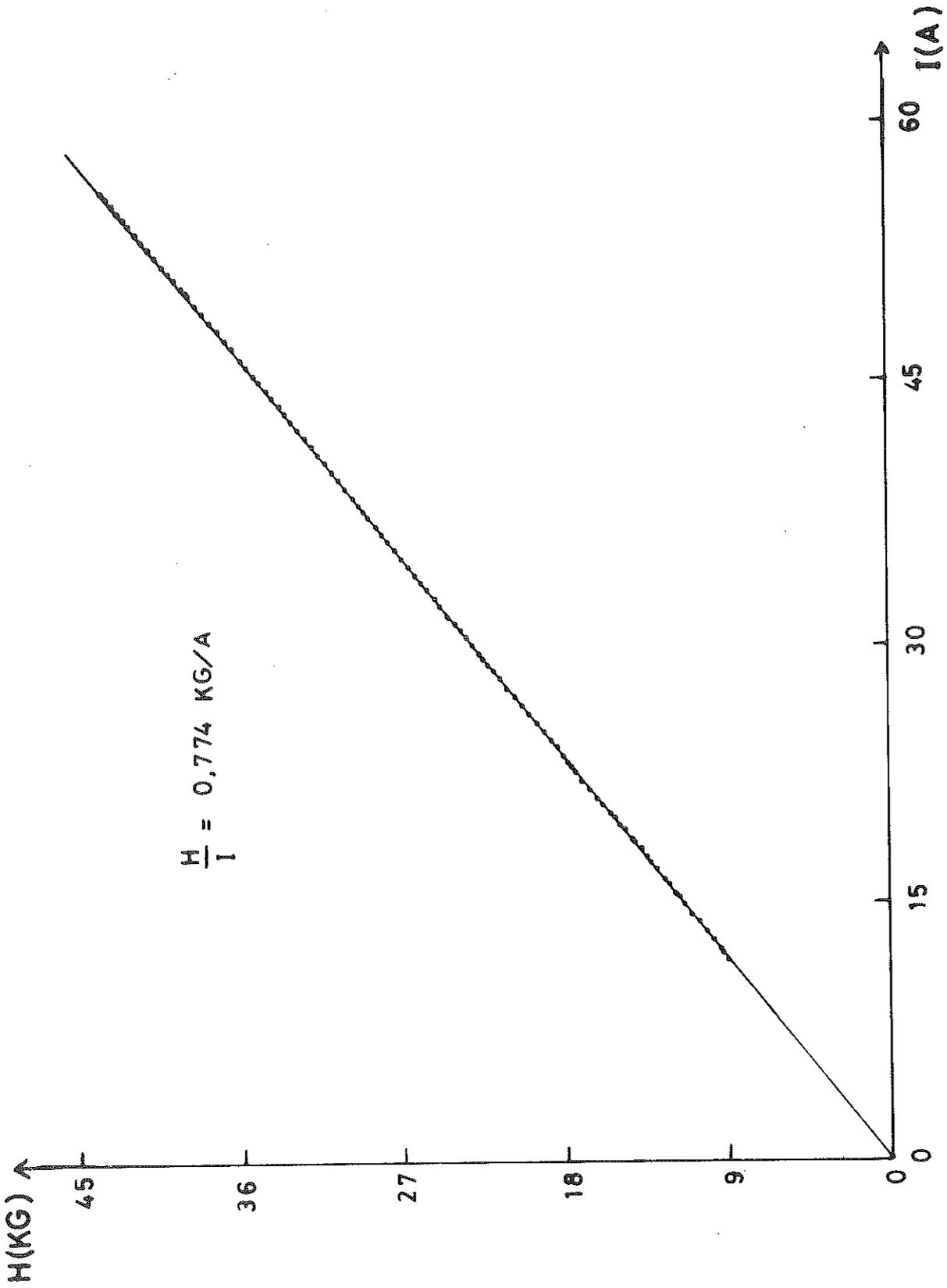


Figure 15. Variation de H en fonction de I de la bobine supraconductrice

différence en champ magnétique

$$\text{champ } H = H_0 [1 - (\text{constante}) \times z]$$

ou H_0 : champ au centre $z = z_0$.

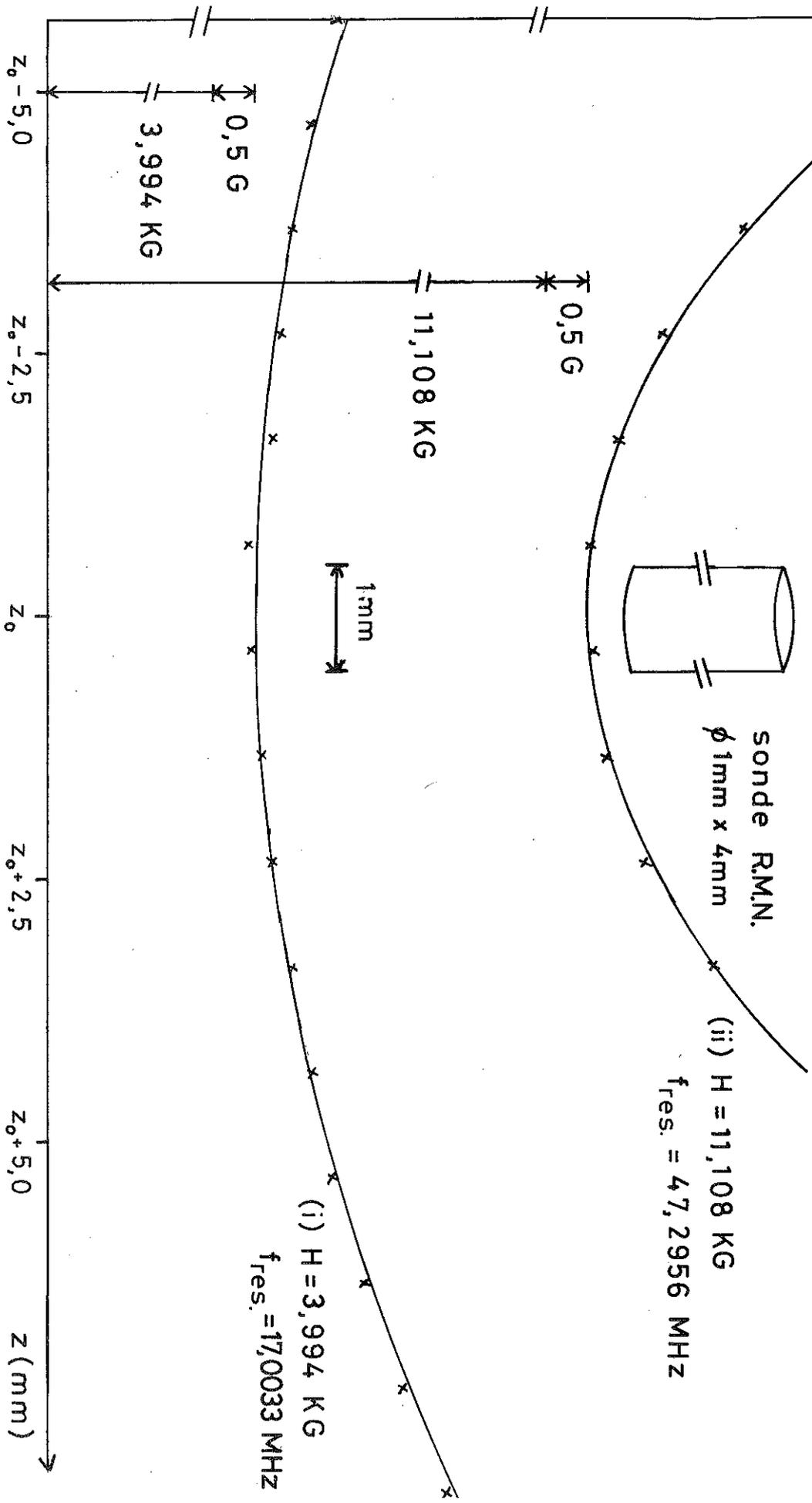


Figure 16 Profils des champs au centre de la bobine supra-conductrice pour (i) $H = 3,994 \text{ KG}$ et (ii) $H = 11,108 \text{ KG}$.

E) Méthodes de détermination des fréquences d'oscillations magnétothermiques.

Deux méthodes ont été utilisées pour déterminer les fréquences d'oscillation F.

Dans la première méthode, les valeurs V_I correspondant aux champs H_O sont lues sur un voltmètre digital à des intervalles de temps t et notées sur le papier quadrillé d'un enregistreur à trois voies où $V_I(t)$ est enregistré en même temps qu'un maximum d'oscillation magnétothermique et une résonance magnétique nucléaire. Les résonances d' Al^{27} et du proton ont été préchoisies pour que le centre de chaque résonance tombe le plus près de possible d'un pic magnétothermique. On a utilisé une vitesse de balayage du champ lente et constante afin d'obtenir de large signaux de résonances.

La figure 17 montre la détermination du champ d'un pic magnétothermique. Les valeurs de V_I notées nous permettent de tracer une ligne droite $V_I(t)$ ((a) sur la figure 17). La position (1) correspond à la fréquence et au champ de résonance, $f_{res.}$ et $H_{res.}$. Donc la ligne droite $V_I(t)$ correspond à une fonction du temps de la fréquence de R.M.N. $f_{R.M.N.}(t)$. Cette fonction ainsi obtenue, nous pouvons déterminer la fréquence $f_{M.T.}$ correspondant au pic magnétothermique situé à la position 2 (figure 13). Nous obtenons ensuite le champ du pic magnétothermique $H_{M.T.}$ avec l'aide de l'équation $H_{M.T.} = \frac{2\pi}{\gamma} f_{M.T.}$. La précision de détermination de $H_{M.T.}$ dépend des précisions des trois facteurs suivants ; $V_I(t)$, le centre d'une résonance et le maximum du pic magnétothermique. D'habitude, nous pouvons déterminer $V_I(t)$ avec une précision de 10^{-4} ($\pm 0,005$ mV à 50 mV). On a pu positionner le centre d'une résonance à $(\frac{1}{20}) \times$ raie de résonance. L'incertitude dans le placement d'un pic magnétothermique est de 2×10^{-4} ($\pm 0,010$ mV à 50 mV) ce qui donne finalement pour $H_{M.T.}$ une précision de 4×10^{-4} (± 2 G à 5 KG).

A l'aide de l'équation

$$\frac{F}{H} = n + \nu - \frac{1}{8} \quad (3.16)$$

pour les champs $H_{M.T.}$ des pics magnétothermiques, on peut déterminer les fréquences d'oscillations F en traçant n en fonction de 1/H. Le nombre n prend des valeurs entières et correspond au nombre de niveaux de Landau.

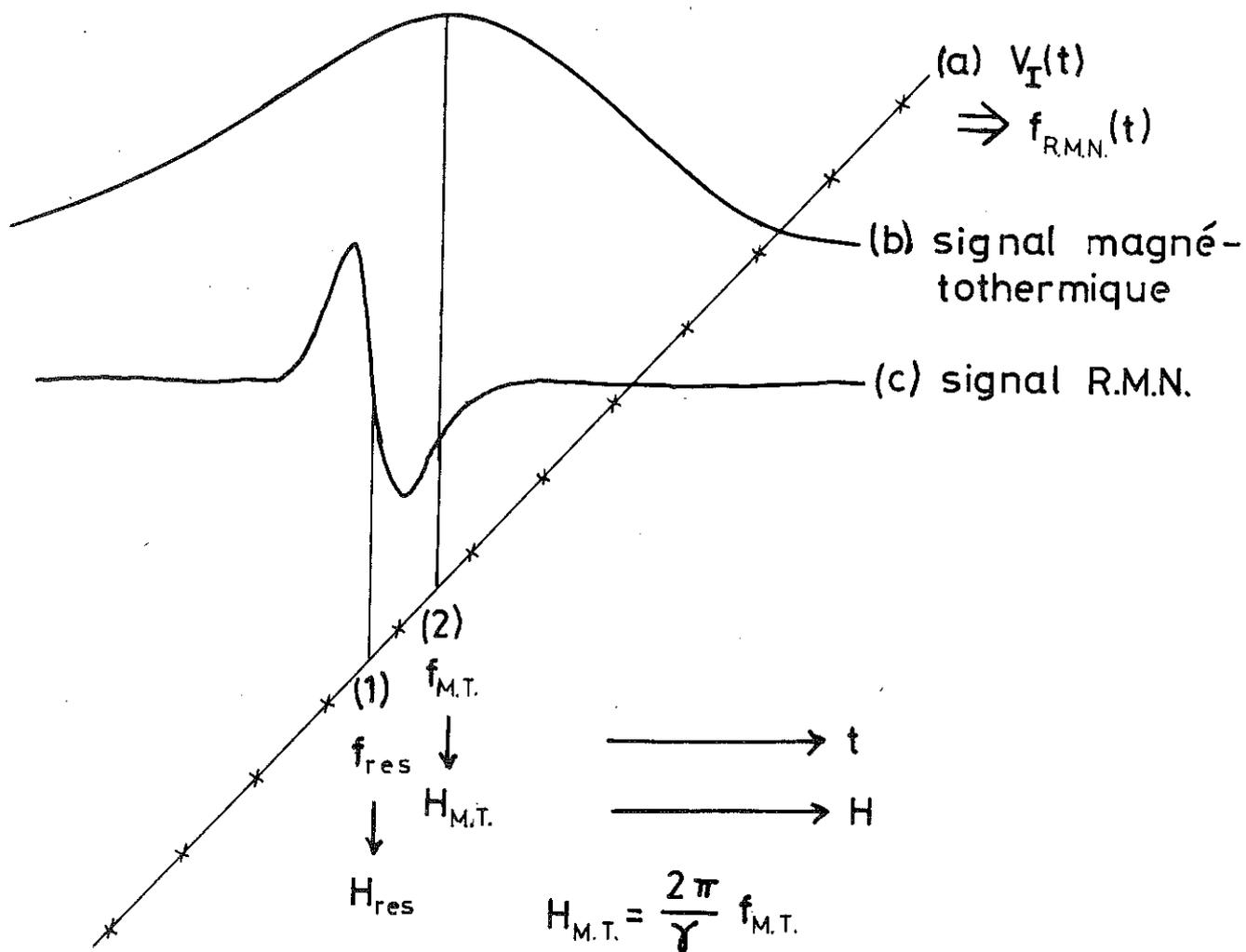


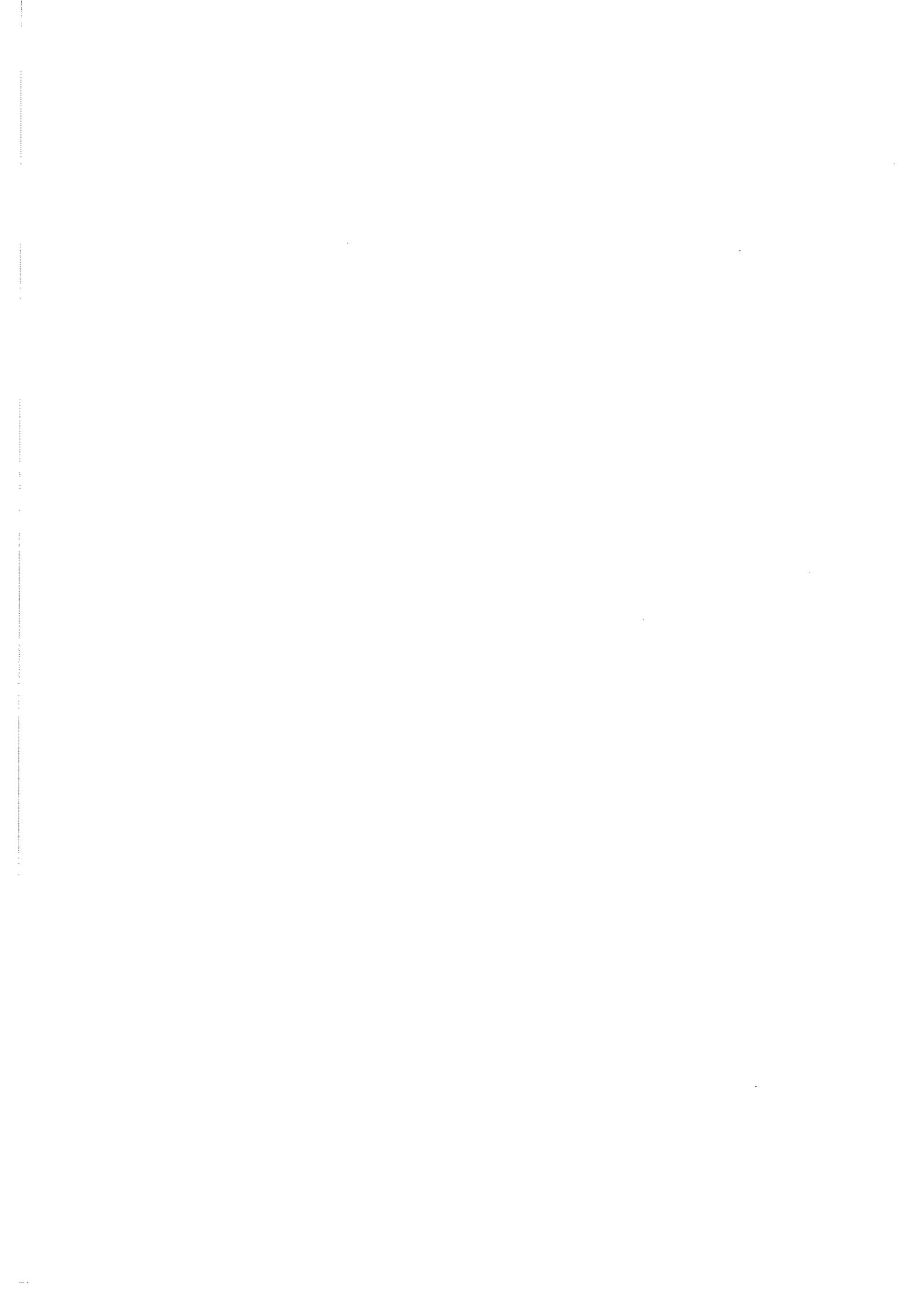
Figure 17. Détermination du champ d'un pic magnétothermique

Dans la seconde méthode utilisée pour déterminer F, les valeurs correspondant aux champs H (en mode de champ descendant) et aux valeurs du signal magnétothermique $(\frac{\partial T}{\partial H})_{S,\theta}$ sont enregistrées automatiquement à l'aide d'une unité de transfert de données (U.T.D.) et d'une perforatrice de bande (figure 12). Cette méthode nous a permis de traiter les résultats par l'utilisation d'un ordinateur P.D.P.10, à l'Institut Laue-Langevin, à Grenoble. Nous avons utilisé la transformée de Fourier rapide pour calculer les fréquences F (Eberhard, 1973). Cette transformée nous permet d'analyser les données dans un temps court même si le nombre i des paires de données $[H, (\frac{\partial T}{\partial H})_{S,\theta}]_i$ est grand. Pour nos résultats, on a, typiquement, $i \sim 1000$.

On peut écrire une fonction périodique $y(1/H)$ sous la forme :

$$y(1/H) = \sum_{r=1}^{\infty} A_r \cos\left(\frac{2\pi r F}{H} + \beta_r\right), \quad (3.17)$$

où β_r est un facteur de phase. En calculant la valeur d'une fréquence, deux considérations interviennent dans la précision de sa détermination. D'abord, le spectre de fréquence est sous une forme discrète, avec une résolution de ΔF . Donc, la gamme de champ H utilisée doit être suffisamment large pour que la fréquence calculée soit bien résolue. En plus, afin d'améliorer la résolution des fréquences, nous avons utilisé une méthode d'interpolation d'au moins cinq points autour de chaque pic dans les spectres de fréquences. Nous avons estimé que l'erreur de détermination de F est de l'ordre de $\pm \frac{\Delta F}{5}$. Ceci conduit finalement à une erreur de $\pm 1\%$ dans les valeurs des fréquences.



C H A P I T R E I V

GRAPHITE : STRUCTURE DE BANDES ET EFFET D'IRRADIATION AUX NEUTRONS RAPIDES

I - INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous allons considérer la structure de bandes du graphite et les effets d'irradiation aux neutrons rapides. La structure de bandes du graphite et ses propriétés électroniques macroscopiques sont fortement déterminées par l'anisotropie de sa structure physique (structure feuilletée). Cependant, les imperfections modifient beaucoup ces propriétés ; plus particulièrement les propriétés liées au transport, par exemple, la conductivité électrique et la magnétorésistance (Soule, 1962).

II - STRUCTURE CRISTALLINE ET ZONE DE BRILLOUIN

Le réseau cristallin idéal du graphite est représenté sur la figure 18. Ce réseau est hexagonal, formé d'un empilement de plans de deux espèces, qui se succèdent dans l'ordre alterné 1,2,1,2,... La distance $C_0/2$ entre deux plans consécutifs (3,354 Å) est beaucoup plus grande que la distance séparant deux atomes voisins d'un même plan (1,415 Å). Le paramètre de maille a_0 est égal à 2,46 Å. La première zone de Brillouin correspondante est un prisme hexagonal aplati tel que celui représenté sur la figure 19. Les états électroniques qui présentent un intérêt sont situés près des arêtes de zone HKH', par conséquent, la surface de Fermi reste voisine de ces arêtes.

III - MODELE DE BANDES DE SLONCZEWSKI ET WEISS ET SURFACE DE FERMI DU

GRAPHITE

Le modèle de bandes qui rend compte actuellement, de la manière la plus satisfaisante des propriétés du graphite, est celui de Slonczewski et Weiss (1958), désigné par les initiales, S.W. Ces auteurs ont fait un calcul de perturbation pour déterminer la structure de bandes du graphite en trois dimensions. La région d'intérêt particulière est la ligne verticale HKH' qui joint deux coins de la zone de Brillouin (figure 19).

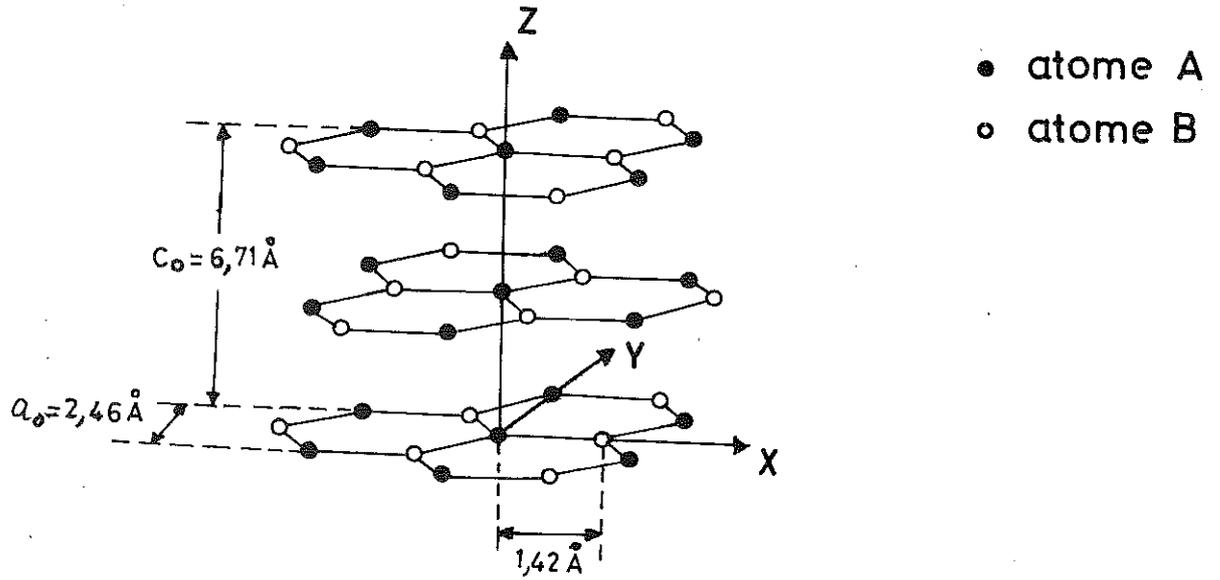


Figure 18. Structure cristalline du graphite

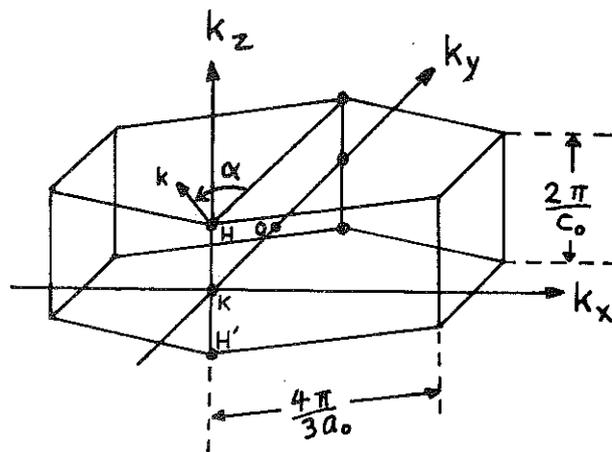


Figure 19. Zone de Brillouin du graphite

Le modèle de S.W. fait intervenir les paramètres suivants (nous avons choisi d'adopter les valeurs de ces paramètres qui ont été données dans l'article de revue de McClure, 1971) :

- γ_0 : paramètre d'interaction entre un atome A et un atome B voisin dans le même plan graphitique ($\gamma_0 = 2,8$ à $3,2$ eV).
- γ_1 : paramètre d'interaction entre deux atomes A voisins appartenant à deux plans voisins ($\gamma_1 = 0,27$ à $0,40$ eV).
- γ_2 : paramètre d'interaction entre deux atomes B voisins appartenant à deux plans seconds voisins ($-0,018$ à $-0,02$ eV).
- γ_3 : paramètre d'interaction entre deux atomes B voisins appartenant à deux plans voisins ($\gamma_3 = 0,14$ à $0,29$ eV).
- γ_4 : paramètre d'interaction entre un atome A et un atome B voisins appartenant à deux plans voisins ($\gamma_4 = 0,2$ à $0,3$ eV).
- γ_5 : paramètre d'interaction entre deux atomes A voisins appartenant à deux plans seconds voisins ($\gamma_5 = -0,018$ à $-0,02$ eV).
- Δ : paramètre qui traduit la différence de nature cristallographique entre les atomes du type A et du type B ($\Delta = 0,005$ à $0,1$ eV).

Dans le modèle de S.W., l'hamiltonien \mathcal{H} pour la structure de bandes près de la surface de Fermi s'écrit :

$$\mathcal{H} = \begin{bmatrix} E_1 & 0 & H_{13} & H_{13}^* \\ 0 & E_2 & H_{23} & -H_{23}^* \\ H_{13}^* & H_{23}^* & E_3 & H_{33} \\ H_{13} & -H_{23}^* & H_{33}^* & E_3 \end{bmatrix}, \quad (4.1)$$

$$\text{où } E_1 = \Delta + \gamma_1 \Gamma + \frac{1}{2} \gamma_5 \Gamma^2 \quad (4.2a)$$

$$E_2 = \Delta - \gamma_1 \Gamma + \frac{1}{2} \gamma_5 \Gamma^2 \quad (4.2b)$$

$$E_3 = \frac{1}{2} \gamma_2 \Gamma^2 \quad (4.2c)$$

$$H_{13} = \frac{\sqrt{3}}{2\sqrt{2}} (-\gamma_0 + \gamma_4 \Gamma) a_0 k e^{i\alpha} \quad (4.3a)$$

$$H_{23} = \frac{\sqrt{3}}{2\sqrt{2}} (\gamma_0 + \gamma_4 \Gamma) a_0 k e^{i\alpha} \quad (4.3b)$$

$$H_{33} = \frac{\sqrt{3}}{2} \gamma_3 \Gamma a_0 k e^{i\alpha} \quad (4.3c)$$

Dans les expressions (4.2) et (4.3), on a $\Gamma = 2 \cos\left(\frac{k_z C_0}{2}\right)$; le vecteur d'onde k est dans le plan xy et l'angle de phase α est représenté figure 19. Donc la surface de Fermi est déterminée par les paramètres de bandes $\gamma_0, \gamma_1, \gamma_2, \gamma_3, \gamma_4, \gamma_5, \Delta$ et l'énergie de Fermi ϵ_F ($\epsilon_F = -0,021$ eV, d'après Nagayoshi et al., 1976). Nous allons considérer l'importance de certains de ces paramètres. Le paramètre γ_0 est le plus important pour déterminer la dépendance de l'énergie avec k_z . γ_1 représente la séparation principale des bandes provoquée par l'interaction entre plans voisins. γ_2 est responsable pour l'essentiel du recouvrement des bandes de valence et de conduction ($2|\gamma_2| = 36$ meV, figure 20). Même à $T = 0$, un petit nombre d'électrons libres occupe la bande de conduction, correspondant à un nombre égal de trous dans la bande de valence. La quantité γ_3 donne lieu à la symétrie trigonale autour de l'axe k_z .

La figure 20 représente des niveaux d'énergie donnés par les relations de (4.2) le long de l'arête HKH'. En un point quelconque de HKH', il existe un état E_3 doublement dégénéré, cette dégénérescence étant liée à la symétrie de l'arrangement atomique. Les deux autres états E_1 et E_2 ne sont pas dégénérés, sauf aux points H et H'. Le paramètre Δ représente la séparation des deux niveaux doublement dégénérés aux points H et H'. Si on considère que $\gamma_3 = 0$ (isotropie dans le plan xy), les solutions de l'équation séculaire :

$$|H_{ij} - E \delta_{ij}| = 0 \quad (4.4)$$

de (4.1) seront représentées par un ensemble d'hyperboloïdes de révolution (Cracknell et Wong, 1973) :

$$E = \frac{1}{2} (E_1 + E_2) \pm \left[\frac{1}{4} (E_1 - E_3)^2 + \frac{3}{4} \gamma_0^2 a_0^2 k^2 \right]^{1/2} \quad (4.5a)$$

$$E = \frac{1}{2} (E_1 + E_2) \pm \left[\frac{1}{4} (E_2 - E_3)^2 + \frac{3}{4} \gamma_0^2 a_0^2 k^2 \right]^{1/2} \quad (4.5b)$$

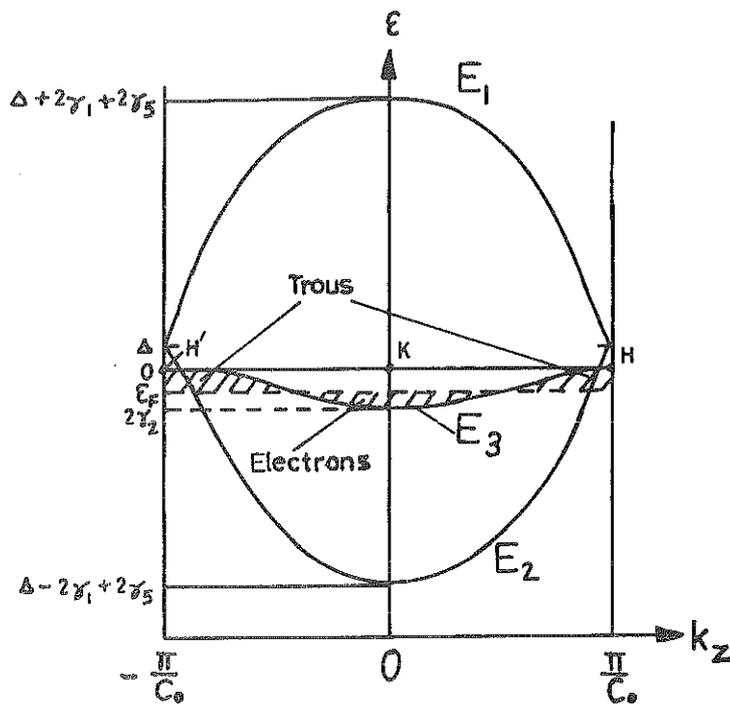


Figure 20. Variation des paramètres E_1, E_2 et E_3 le long d'arête HKH'

La figure 21 montre la surface de Fermi du graphite pur pour chacune des six arêtes de la zone de Brillouin (McClure, 1957 et 1971 ; Schroeder et al., 1968). L'anisotropie trigonale de la région de rencontre des surfaces d'électrons et de trous est exagérée pour la clarté du dessin. Il y a des poches de trous dans les régions situées au-delà des points H et H' . Les surfaces d'électrons et de trous correspondent respectivement aux électrons majoritaires et trous majoritaires.

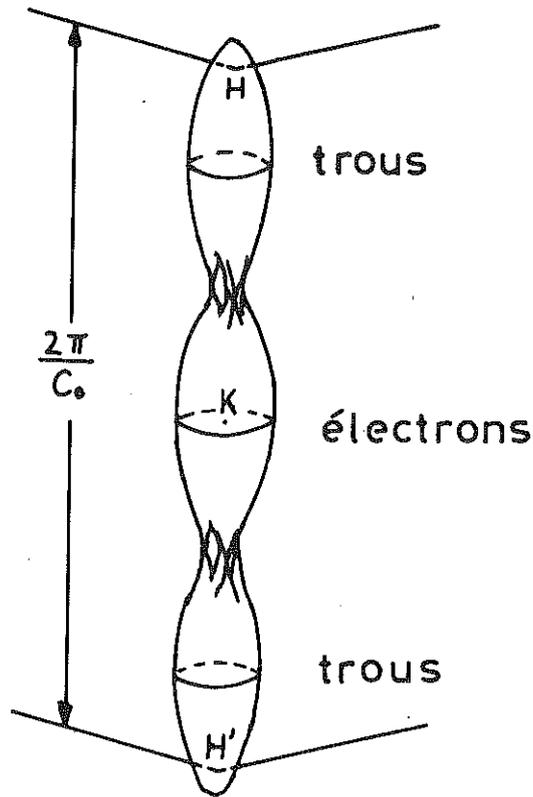


Figure 21. Surface de Fermi du graphite
(D'après McClure, 1957 et 1971;
Schroeder et al, 1968)

Les aires extrêmes de la surface de Fermi représentées sur la figure 21 dans un modèle parabolique, en négligeant γ_3 , γ_4 et γ_5 (\vec{H} parallèle à \vec{C} , Cooper et al., 1970) s'écrivent :

$$a_{\text{extr.}}(\text{électrons}) = \frac{\pi}{2} (2\gamma_0 - \epsilon_F) (\Delta - 2\gamma_1 - \epsilon_F) \quad (4.6)$$

et

$$a_{\text{extr.}}(\text{trous}) = \frac{\pi}{2} (\epsilon_F - \frac{\gamma_2 \Gamma_E^2}{2}) (\epsilon_F - \gamma_1 \Gamma_E - \Delta), \quad (4.7)$$

où

$$\Gamma_E = \frac{-(\Delta - \epsilon_F) + \left| \frac{6\gamma_1^2 \epsilon_F}{\gamma_2} + (\Delta - \epsilon_F)^2 \right|^{1/2}}{3\gamma_1} \quad (4.8)$$

Les volumes des parties de surfaces de Fermi correspondantes sont :

$$V(\text{électrons}) = \frac{4}{3} a_{\text{extr.}}(\text{électrons}) \times k_Z^M \quad (4.9)$$

$$\text{et } V(\text{trous}) = \frac{8}{3} a_{\text{extr.}}(\text{trous}) \times (k_Z^E - k_Z^M) \quad (4.10)$$

où $k_Z^M = \frac{2}{C_0} \cos^{-1} \left(\frac{\epsilon_F}{2\gamma_2} \right)^{1/2}$ est la valeur de k_Z où les surfaces de Fermi d'électrons et de trous se rencontrent et $k_Z^E = \frac{2}{C_0} \cos^{-1} \left(\frac{1}{2} \Gamma_E \right)$, la valeur de k_Z auquelle l'aire de la surface de trous est maximale.

IV - EFFET D'IRRADIATION AUX NEUTRONS RAPIDES

Nous allons maintenant considérer quelques effets physiques de l'irradiation aux neutrons rapides et la modification de la surface de Fermi du graphite qui en résulte. Pendant le bombardement du graphite par les neutrons rapides, certains des atomes de carbone sont déplacés de leurs positions régulières du réseau. Parmi les atomes déplacés, certains regagnent leurs positions presque immédiatement mais d'autres restent piégés entre les couches de carbone, ce qui crée des atomes interstitiels et des sites vacants dans le réseau (Reynolds, 1968a). L'influence des forces de Van der Waals est réduite, d'où une augmentation des distances entre les couches de carbone. En même temps, il y a une contraction de faible importance dans le plan des couches (Reynolds, 1968b). Cela provoque une variation des paramètres d'interaction surtout pour les interactions des atomes entre deux plans voisins, par exemple, γ_1 et γ_2 . Le nombre de défauts dépend de la dose et de la température d'irradiation (Reynolds, 1968c).

On considère que la production des sites vacants provoque la création d'accepteurs d'électrons dans le réseau graphitique. Cependant, un modèle expliquant l'apparition des accepteurs n'est pas encore développé (Dillon et al., 1977). Quand de plus en plus d'accepteurs sont créés par l'irradiation, l'énergie de Fermi ϵ_F diminue. Cela veut dire que la concentration des électrons de conduction a diminué et que celle des trous a augmenté. En étudiant la variation du coefficient de Hall en fonction de la dose à 298 K, Rappeneau et al. (1976) ont déterminé que chaque neutron par cm^2 crée à peu près 4 trous par cm^3 dans la bande de valence. Cette formation de trous est à peu près compensée par une

diminution de la concentration des électrons de conduction.

La figure 22 montre d'après le calcul du modèle de bande rigide de Dillon et al. (1977), la variation des fréquences de d.H.v.A. du graphite en fonction de l'introduction d'accepteurs d'électrons dans le réseau. Ce dopage se fait soit par irradiation aux neutrons rapides, soit par irradiation aux électrons, soit par introduction d'atomes de bore. ϵ_F diminue avec la dose D ; quand $D = 11,4$ p.p.m. les aires extrêmes majoritaires se croisent et quand $D = 81$ p.p.m. ϵ_F est égal à $2\gamma_2$, c'est-à-dire au niveau du bas de la bande de conduction (c.f. figure 22). L'effet du dopage est 2,5 fois plus grand sur la fréquence de trous que sur la fréquence d'électrons.

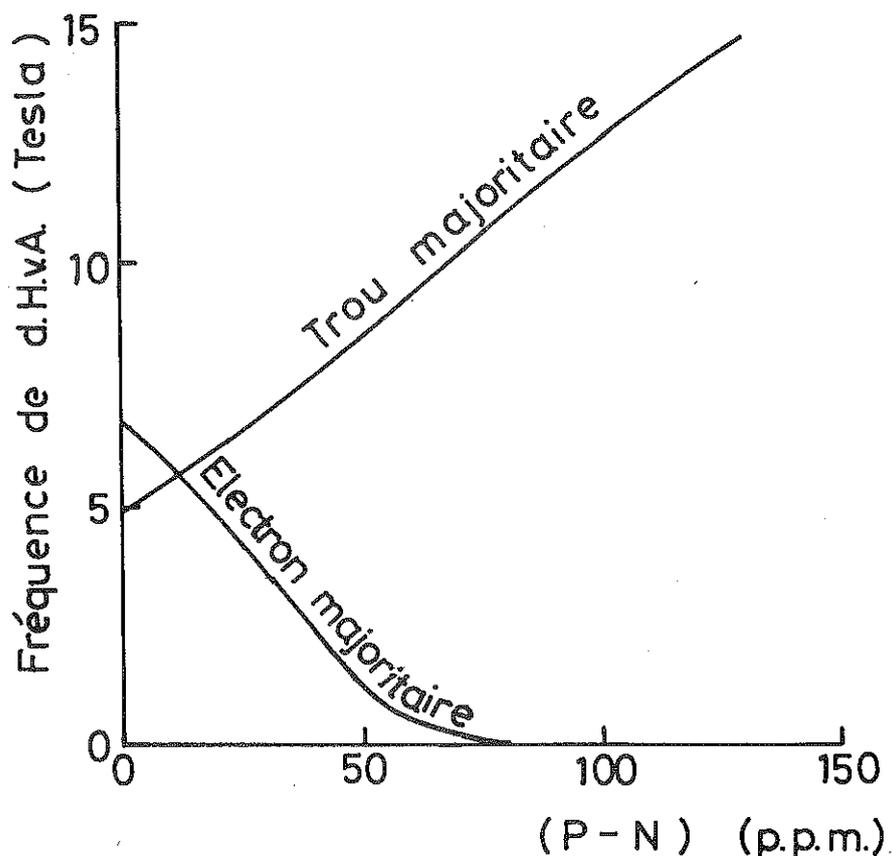


Figure 22. Fréquences de d.H.v.A. en fonction de concentration d'accepteurs (D'après Dillon et al, 1977)

C H A P I T R E V

RESULTATS ET DISCUSSIONS

I - INTRODUCTION

Nous allons présenter dans ce chapitre les résultats des échantillons irradiés aux neutrons rapides avec les doses de $0-1,1 \times 10^{17}$ n.v.t. ($E > 1$ MeV). Ensuite nous discuterons de l'effet d'irradiation sur le graphite.

II - ECHANTILLONS

Les échantillons sont préparés à partir du même lot de graphite pyrolytique fourni par la société "Union Carbide Corporation". Les dimensions typiques de ces échantillons sont approximativement 8 mm x 4 mm x 1 mm. Ces échantillons ont été irradiés à 298 K dans la pile "MELUSINE" du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, dans les emplacements et pour les durées de temps indiquées dans le tableau 3. Les doses pour les échantillons 4, 5 et 6 ont été vérifiées avec des témoins de Ni. Les doses des échantillons 2 et 3 furent obtenues par extrapolation du temps d'irradiation de l'échantillon 5.

TABLEAU 3
Irradiation aux neutrons rapides

Echantillon	Date d'irradiation	Emplacement dans la pile	Temps dans la pile	Date d'expérience	Dose (n.v.t.) (E > 1 MeV)	Déplacement par atome (D.P.A.)
1	-	-	-	16/11/77	2×10^{15}	$0,3 \times 10^{-5}$
2	07/06/78	84 AVG	27min	16/06/78	$7,7 \times 10^{15}$	$1,1 \times 10^{-5}$
3	07/06/78	84 AVG	36min	09/08/78	$1,0 \times 10^{16}$	$1,5 \times 10^{-5}$
4	12/01/78	84 ARD	4hrs.35min	08/02/78	$4,0 \times 10^{16}$	$5,8 \times 10^{-5}$
5	12/01/78	84 AVG	4hrs.35min	01/02/78	$7,9 \times 10^{16}$	$1,1 \times 10^{-4}$
6	17/01/78 et 18/01/78	84 ARD	12hrs.15min	02/03/78	$1,1 \times 10^{17}$	$1,6 \times 10^{-4}$

III - RESULTATS (oscillations magnétothermiques)

A) Première et deuxième séries d'échantillons.

Nous avons fait les premières expériences sur un échantillon non-irradié, A.P.G. 20 (fourni par le Professeur I. Spain), pour $\theta(\vec{H}, \vec{C})$ entre 0° et 90° . Les résultats de ces expériences sont présentés dans l'Annexe 1.

Afin de tester le système de R.M.N., nous avons fait des mesures sur un échantillon légèrement irradié (échantillon 1). La première série d'échantillons étudiée comprend les échantillons 4, 5 et 6. Les températures d'expérience pour ces échantillons sont de 0,4 K à 0,5 K. L'effet d'irradiation devient déjà important pour l'échantillon 4 (voir tableau 4). Pour l'échantillon 6 nous ne pouvons observer que cinq oscillations dans le signal magnétothermique.

Nous avons fait des mesures sur une seconde série d'échantillons (échantillons 2 et 3) afin de préciser l'évolution des effets d'irradiation dans la gamme $7,7 \times 10^{15} - 1,0 \times 10^{16}$ n.v.t. Les températures d'expérience de la seconde série sont les mêmes que pour

la première série. Les courbes expérimentales des échantillons 1 à 5 sont représentées dans les figures 23 à 27. Ces courbes montrent l'amplitude d'oscillation en fonction du champ H pour l'angle de $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$. Les fréquences d'oscillation de ces échantillons obtenues par analyse de Fourier sont données dans le tableau 4.

TABLEAU 4

Fréquences d'oscillations dans le spectre du signal magnétothermique quantique pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$.

Echantillon	F ₁ (KG)	F ₂ (KG)	ΔF/5 (KG)
1	63,71	46,26	0,10
2	65,04	48,16	0,08
3	64,30	47,80	0,07
4	~57,00	50,70	0,18
5	51,30 (une fréq.)		0,50
6	54,00 (une fréq.)		0,12

Nous avons plusieurs remarques à faire concernant le tableau 4. D'abord, les oscillations magnétothermiques des échantillons 4 et 5 nous montrent toujours un signal périodique avec quelques oscillations supplémentaires vers les hauts champs. Par exemple, sur la courbe expérimentale relative à l'échantillon 4 (figure 28), on voit que le signal est périodique sauf pour les champs $H > 17 \text{ KG} (1/H < 6 \times 10^{-5} \text{ G}^{-1})$ où il y a trois oscillations supplémentaires (†) superposées sur le signal dominant. Dans le spectre de fréquence (figure 29) il y a une anomalie (♣) qui semble indiquer la présence d'une deuxième fréquence. Sur la figure 29, la résolution du spectre nous permet de déterminer la fréquence dominante avec une bonne précision. Mais pour déterminer la deuxième fréquence l'imprécision est peut-être de l'ordre de ΔF car un pic correspondant à cette fréquence n'est pas évident dans la figure 29.

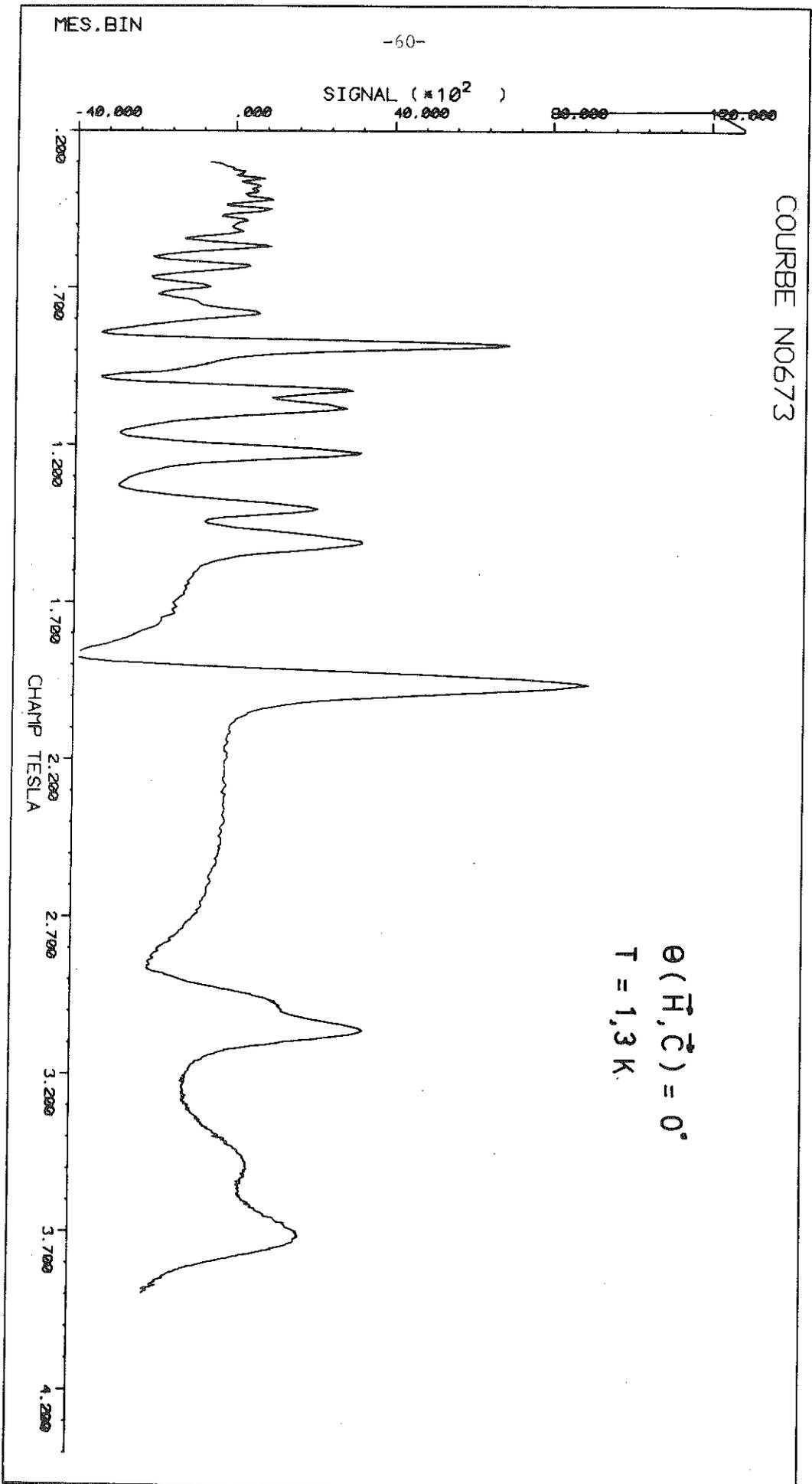


Figure 23. Courbe expérimentale de l'échantillon 1

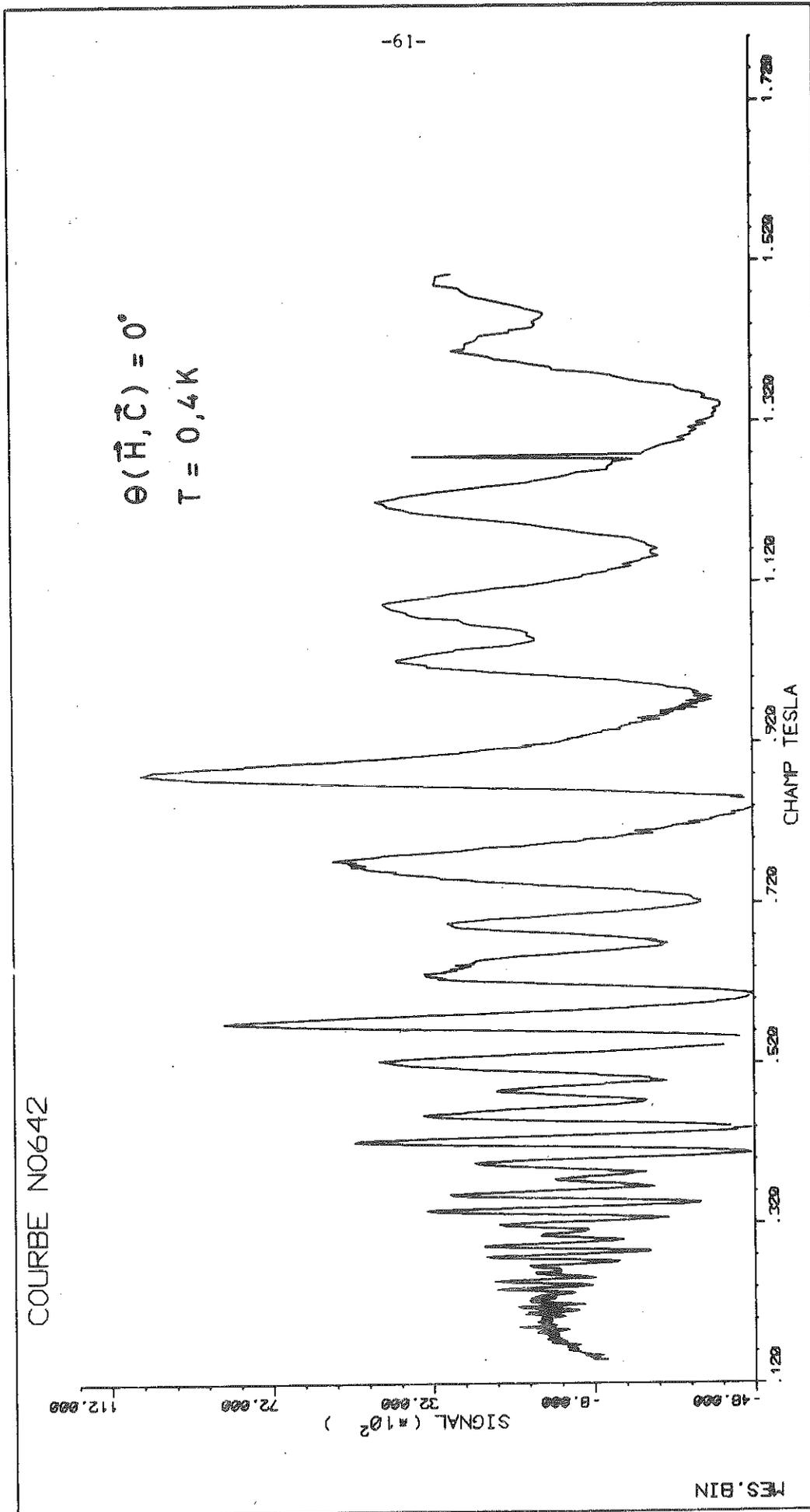


Figure 24. Courbe expérimentale de l'échantillon 2

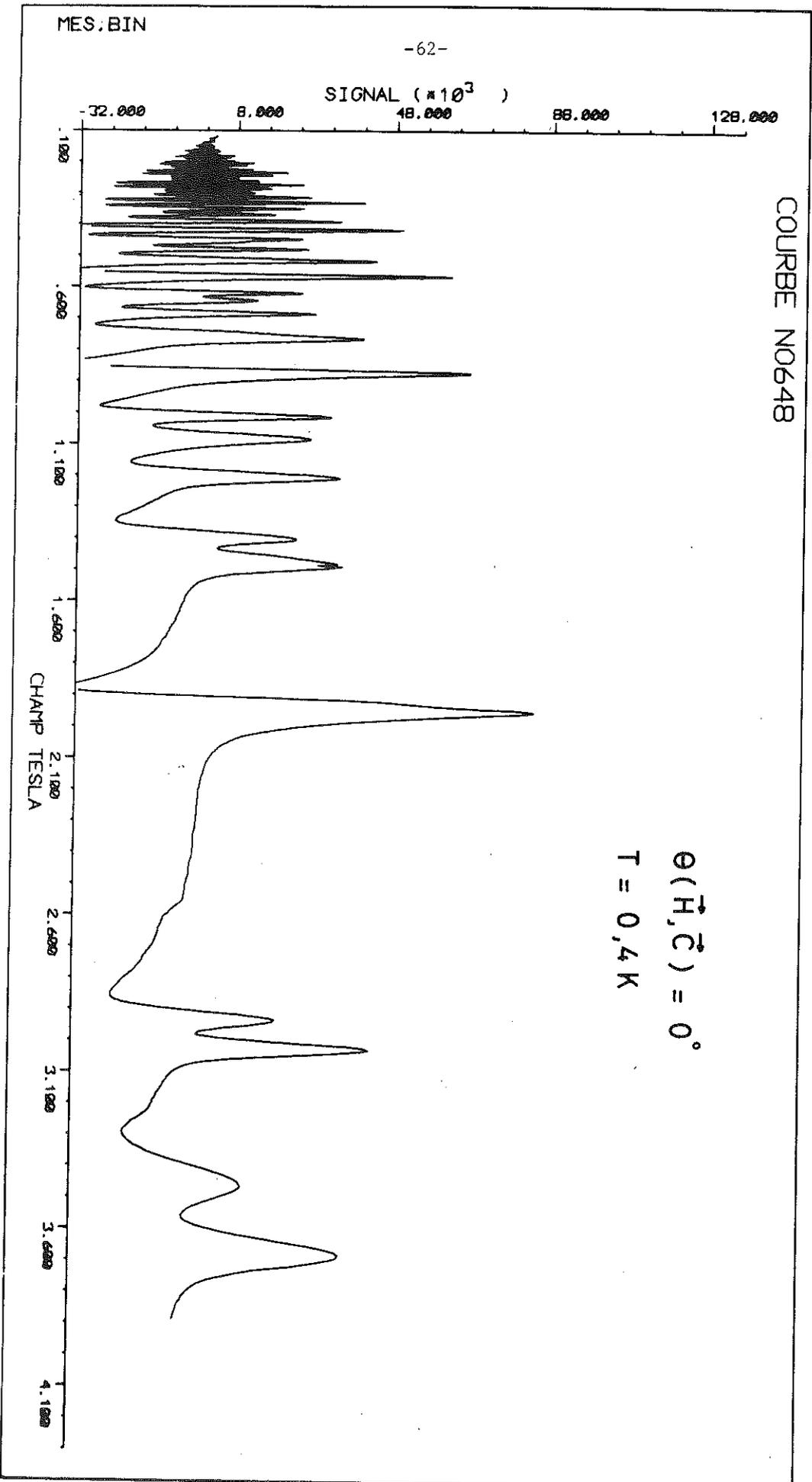


Figure 25. Courbe expérimentale de l'échantillon 3

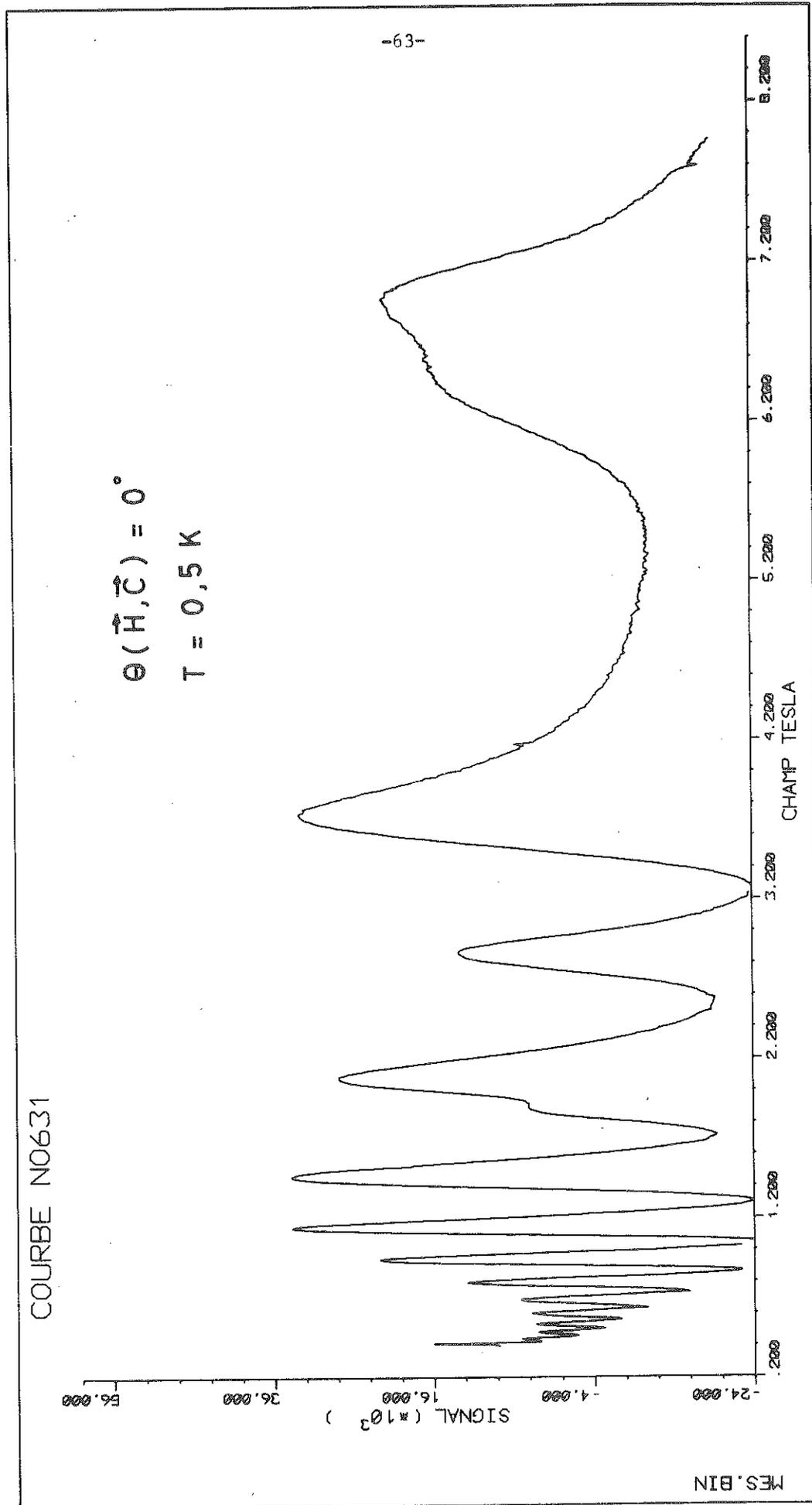


Figure 26. Courbe expérimentale de l'échantillon 4

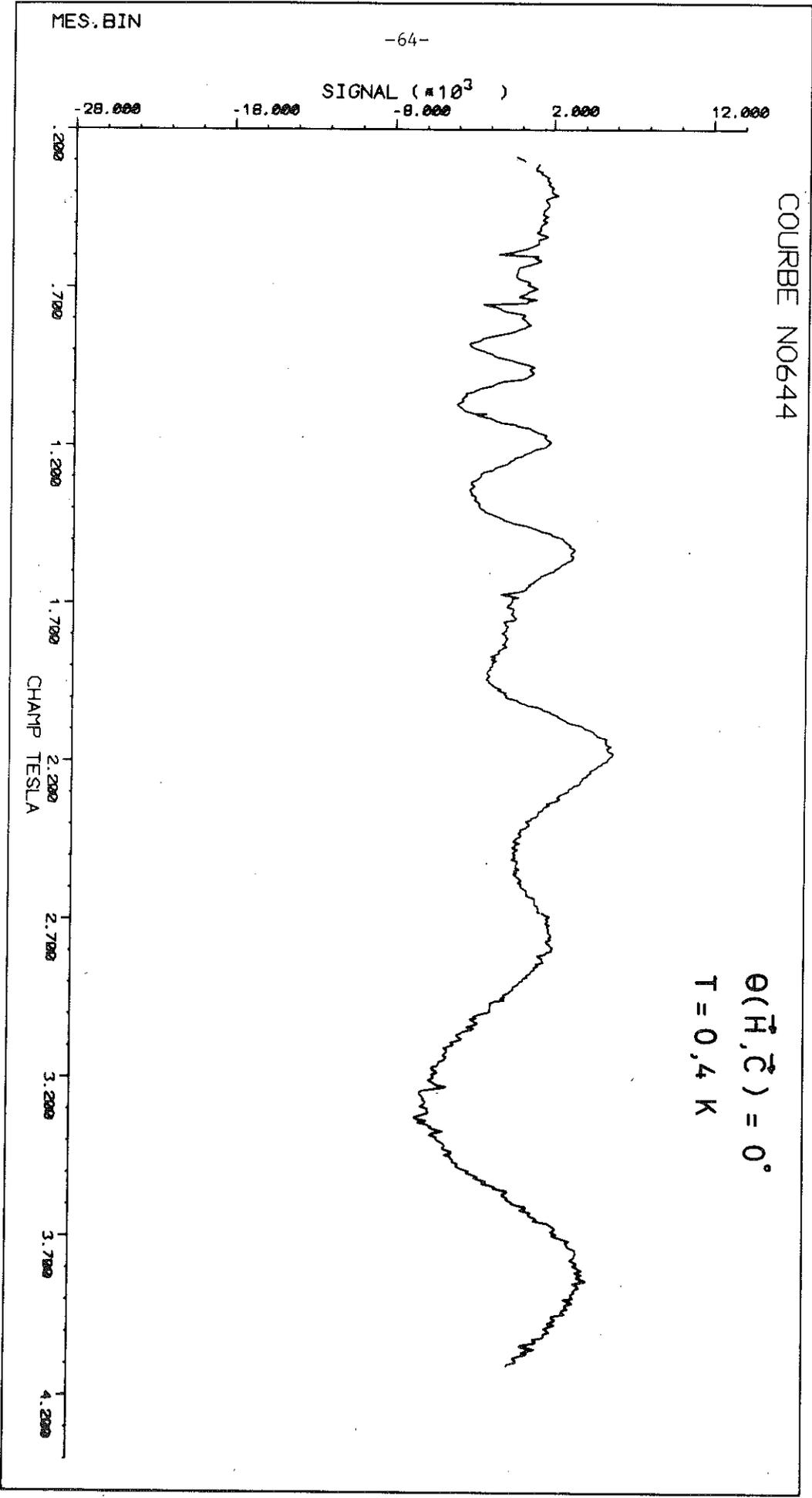


Figure 27. Courbe expérimentale de l'échantillon 5

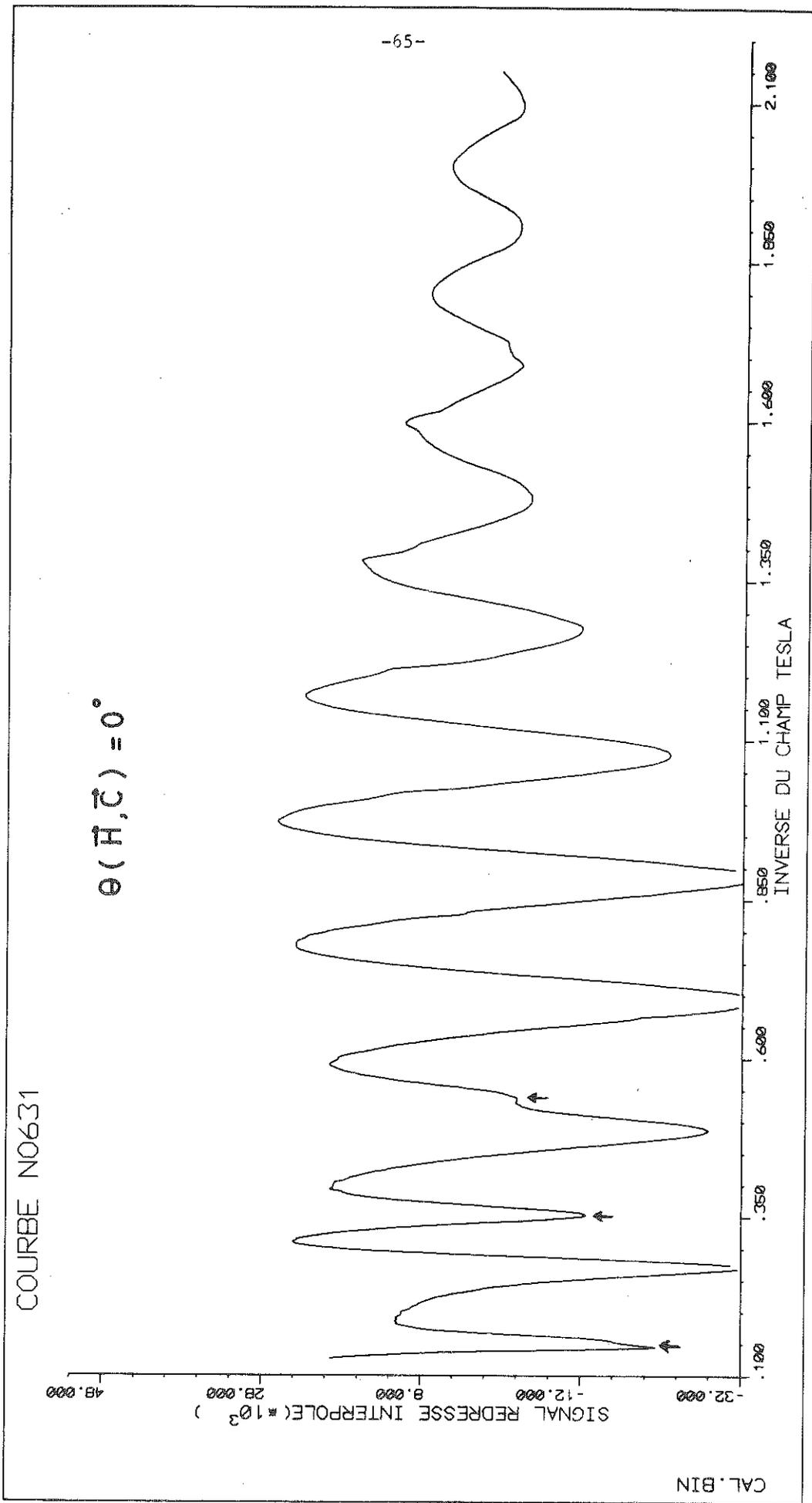


Figure 28. Courbe expérimentale de l'échantillon 4

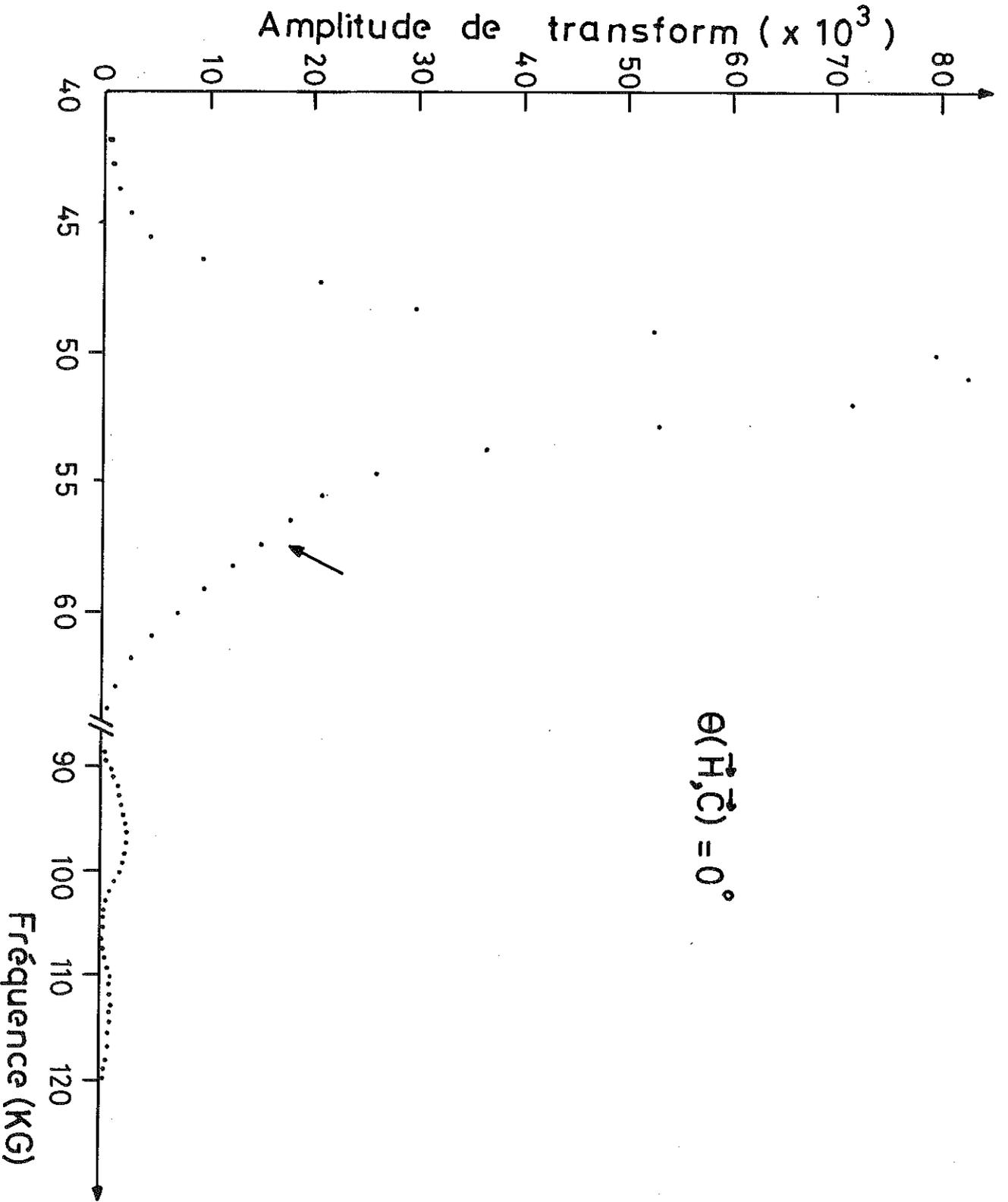
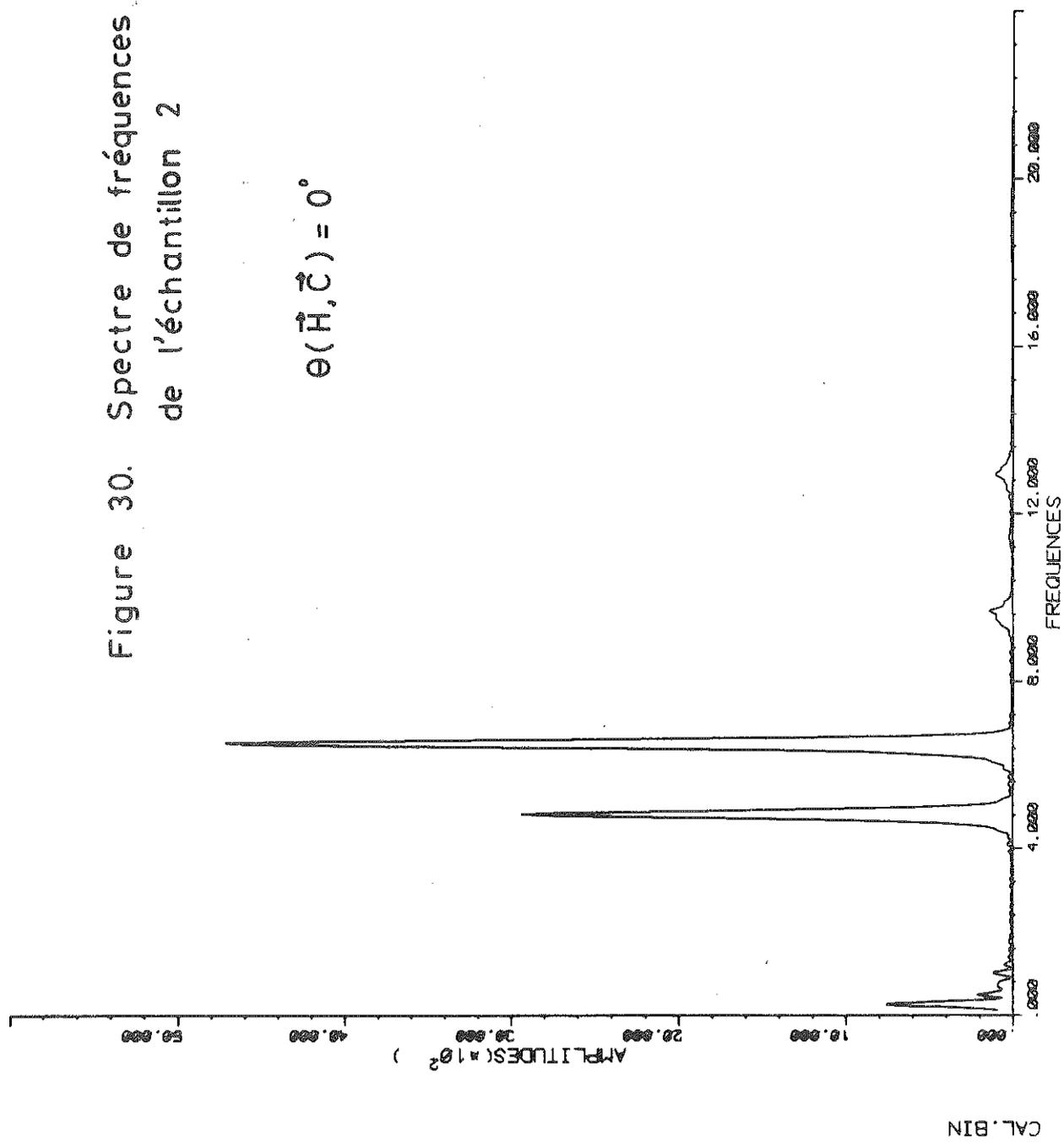


Figure 29. Spectre de fréquences de l'échantillon 4

COURBE N0642

Figure 30. Spectre de fréquences
de l'échantillon 2

$$\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$$



Souvent, dans les spectres, nous trouvons des deuxièmes harmoniques. Par exemple, dans le spectre de fréquences relatif à l'échantillon 2 (figure 30), les deux fréquences fondamentales ainsi que leur deuxième harmonique sont faciles à distinguer. Dans la figure 29, les deux deuxième harmoniques sont également présentes. Donc, par analogie, nous pensons que ceci indique qu'il y a deux fréquences pour l'échantillon 4. Nous pouvons faire les mêmes observations pour l'échantillon 5.

Nous avons aussi calculé les fréquences à partir de l'équation $F/H = n + \nu - 1/8$. Les résultats pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$ sont donnés dans le tableau 5.

TABLEAU 5

Fréquences obtenues de l'équation $F/H = n + \nu - 1/8$ pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$.

Echantillon	F ₁ (KG)	F ₂ (KG)	ν_1	ν_2
1	63,95	46,08	0,2 854	0,3 016
2	64,86	47,85	0,4 195	0,5 047
3	63,69	48,23	0,3 585	0,5 775
4	51,94	50,01	-0,1 840	0,5 128
5	53,52 (une freq.)		-0,3 112	
6	51,89 (une fréq.)		-0,2 372	

Le fait qu'il y a deux fréquences pour échantillon 4 ne signifie pas nécessairement que ces deux fréquences sont du même ordre de grandeur. En vérité, seulement les trois pics (†) vers les hauts champs (figure 28) correspondent à la deuxième fréquence. La différence entre les valeurs des tableaux 4 et 5 ne dépasse pas 5 %. Pour les faibles doses (échantillons 1 à 3) la différence est moins que 1 %.

La surface de Fermi du graphite pur est constituée par des ellipsoïdes (voir ce chapitre, section 3.B et annexe 1). Pour $\theta = \theta(\vec{H}, \vec{C})$ petit, les fréquences augmentent comme $\sec \theta$ quand θ

augmente. Les incertitudes dans les fréquences dues aux incertitudes d'orientation doivent être petites, par exemple, $\sec(10^\circ) - \sec(0^\circ) = 0,015$. Afin de vérifier ceci, nous avons fait quelques mesures en fonction de l'orientation. Le tableau 6 montre la variation de F avec θ pour une petite rotation d'échantillon 2.

TABLEAU 6

Echantillon 2 (fréquences obtenues de l'analyse de Fourier)

$\theta (\vec{H}, \vec{C})$	F_1 (KG)	F_2 (KG)	$\frac{\Delta F}{5}$ (KG)
0 °	65,04	48,16	0,08
3,6 °	65,14	48,23	0,13
10,8 °	66,79	49,60	0,11

De ce tableau, l'incertitude dans la valeur absolue de θ est moins que $3,6^\circ$. Nous avons estimé que l'incertitude de θ en commençant chaque série d'expérience est de l'ordre de $1,5^\circ$. Entre $\theta = 0^\circ$ et $10,8^\circ$, l'augmentation des fréquences est très petite, de l'ordre de 3 % et l'erreur dans les fréquences dues à l'incertitude de θ à $\theta = 0^\circ$ est négligeable.

Pour l'échantillon 4, nous avons essayé de déterminer le volume de la surface de Fermi et ainsi la concentration des trous et des électrons. Nous avons fait des expériences en fonction de l'angle θ , entre 0° et 90° . Les résultats de l'analyse de Fermi de 0° à $79,2^\circ$ sont donnés dans le tableau 7.

TABLEAU 7

Fréquences d'oscillations dans le spectre du signal magnétothermique de l'échantillon 4 ($4,0 \times 10^{16}$ n.v.t.)

$\theta(\vec{H}, \vec{C})$	Fréquence dominante (KG)	Deuxième fréquence (KG)	$\frac{\Delta F}{5}$ (KG)
0 °	50,70	57,00	0,81
21,6°	55,21	61,20	0,22
32,4°	60,83	69,30	0,27
43,2°	69,62	78,00	0,29
54,0°	83,66	91,60	0,33
64,8°	114,39	128,60	0,52
70,2°	133,26	150,00	0,45
79,2°	217,88	217,88	1,97

Les spectres de fréquences de l'échantillon 4 nous montrent qu'il y a une fréquence dominante. Cependant il y a peut-être une deuxième fréquence, indiquée dans le spectre par un épaulement de la fréquence dominante et la présence d'une seconde deuxième harmonique. Ceci étant le cas, les valeurs de la deuxième fréquence du tableau 7 ont une plus grande erreur que la fréquence dominante.

Avec une imprécision de 1° dans le système tournant du porte-échantillon, l'imprécision globale de la valeur absolue de θ est de l'ordre de $1,5^\circ + 1^\circ = \pm 2,5^\circ$. Pour les petites valeurs de θ , ceci ne provoque pas un changement important pour les fréquences. Cependant, pour les grandes valeurs de θ (80° à 90°), cette imprécision peut amener à une erreur importante sur la détermination de la forme de la surface de Fermi (voir figure 31). Par exemple, pour un modèle cylindrique, de la surface de Fermi, $\sec(87,5^\circ) - \sec(85,0^\circ) = 22,9 - 11,5 = 11,4$.

B) L'anisotropie de la surface de Fermi de l'échantillon 4.

La variation de la fréquence dominante avec orientation (tableau 7) est présentée figure 31. La surface de Fermi ayant la forme d'un ellipsoïde de révolution, la fréquence devrait varier selon la fonction :

$$F(\theta) = F(0^\circ) \times [\cos^2 \theta + X^{-2} \sin^2 \theta]^{-1/2} \quad (5.1)$$

où X est le facteur d'anisotropie ($X = \frac{c}{a}$). Les courbes représentées dans la figure 31 montrent les variations de $F(\theta)$ avec les diverses valeurs de X. Nous avons trouvé que pour la fréquence dominante (trous), la meilleure valeur de X est de $7,0 \pm 0,5$ par un calcul de moindres carrés. L'anisotropie calculée pour la deuxième fréquence (électrons) a une grande imprécision puisque les valeurs de cette fréquence (tableau 7) ont une grande imprécision. Les figures 32 et 33 montrent les déviations de la surface de Fermi de la fréquence dominante d'un cylindre et d'un ellipsoïde pur.

Dans l'annexe 1, nous avons déterminé pour X une valeur de 12 pour le graphite pur. Dans la figure 31, la différence entre les fréquences avec $X = 7$ et $X = 12$ devient $\sim 0,5 \%$ à $\theta = 50^\circ$ et $\sim 14,1 \%$ à $\theta = 80^\circ$. Les résultats expérimentaux de θ entre 70° et 90° sont les plus importants dans la détermination de X. Pour l'échantillon 4 nous avons aussi fait des mesures entre $\theta = 80^\circ$ et $\theta = 90^\circ$ mais nous n'avons pas vu des oscillations.

IV - DISCUSSION

A) Effets d'irradiation aux neutrons rapides sur les fréquences de d.H.v.A.

La figure 34 représente la variation des fréquences (des trous et des électrons de $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$ en fonction de la dose D (en n.v.t.). Les valeurs des fréquences sont une moyenne de celles des tableaux 4 et 5. Entre les doses de $0 - 1,0 \times 10^{16}$ n.v.t., les fréquences ont peu changées. Par exemple, l'augmentation de fréquence de trous est de $\frac{48,01 - 46,51}{46,51} = 3 \%$. Les fréquences ont énormément changé pour une dose de $4,0 \times 10^{16}$ n.v.t. Il y a une fréquence dominante à 50,36 KG et peut-être une deuxième fréquence à 54,47 KG. La fréquence dominante F correspond à la

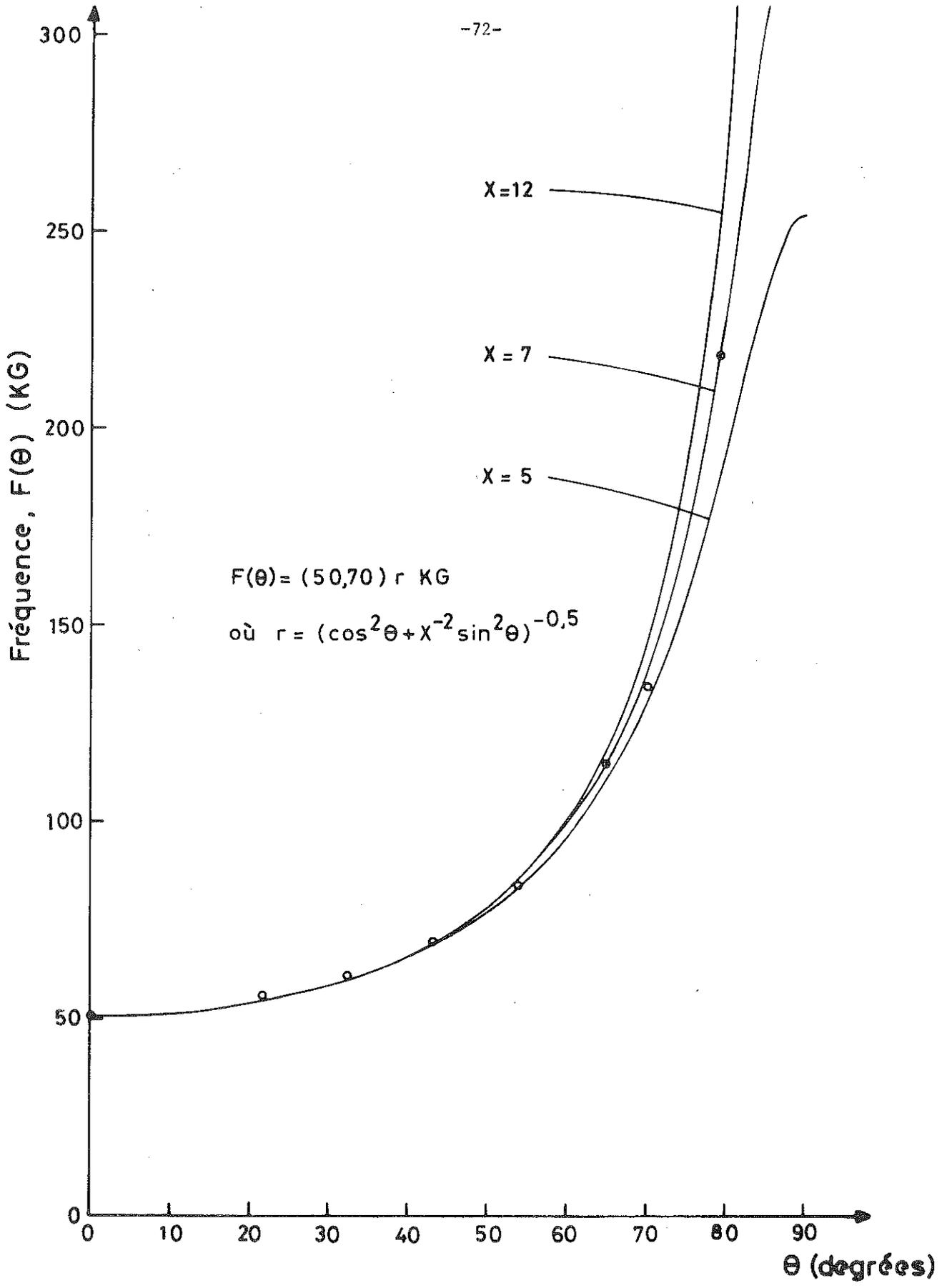


Figure 31. Fréquence dominante et l'anisotropie de l'échantillon 4

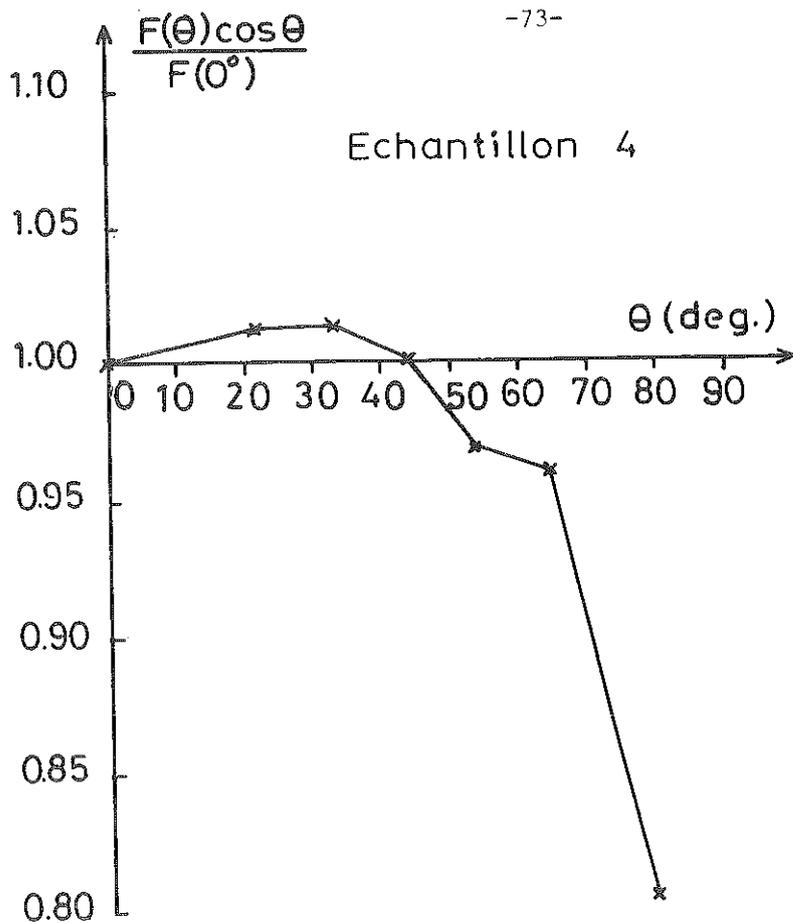


Figure 32. Déviation de la fréquence d'une forme cylindrique

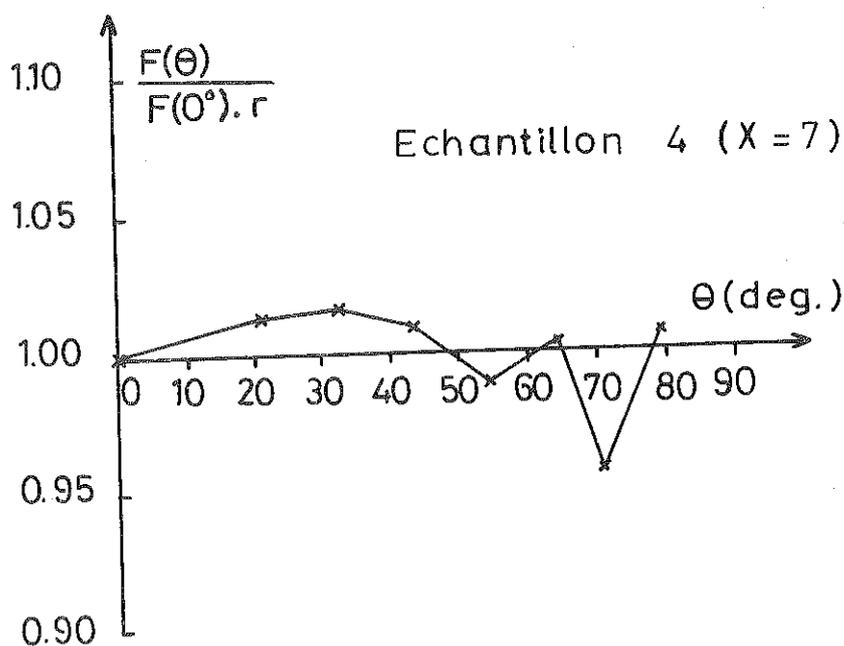


Figure 33. Déviation de la fréquence d'une forme ellipsoïdale

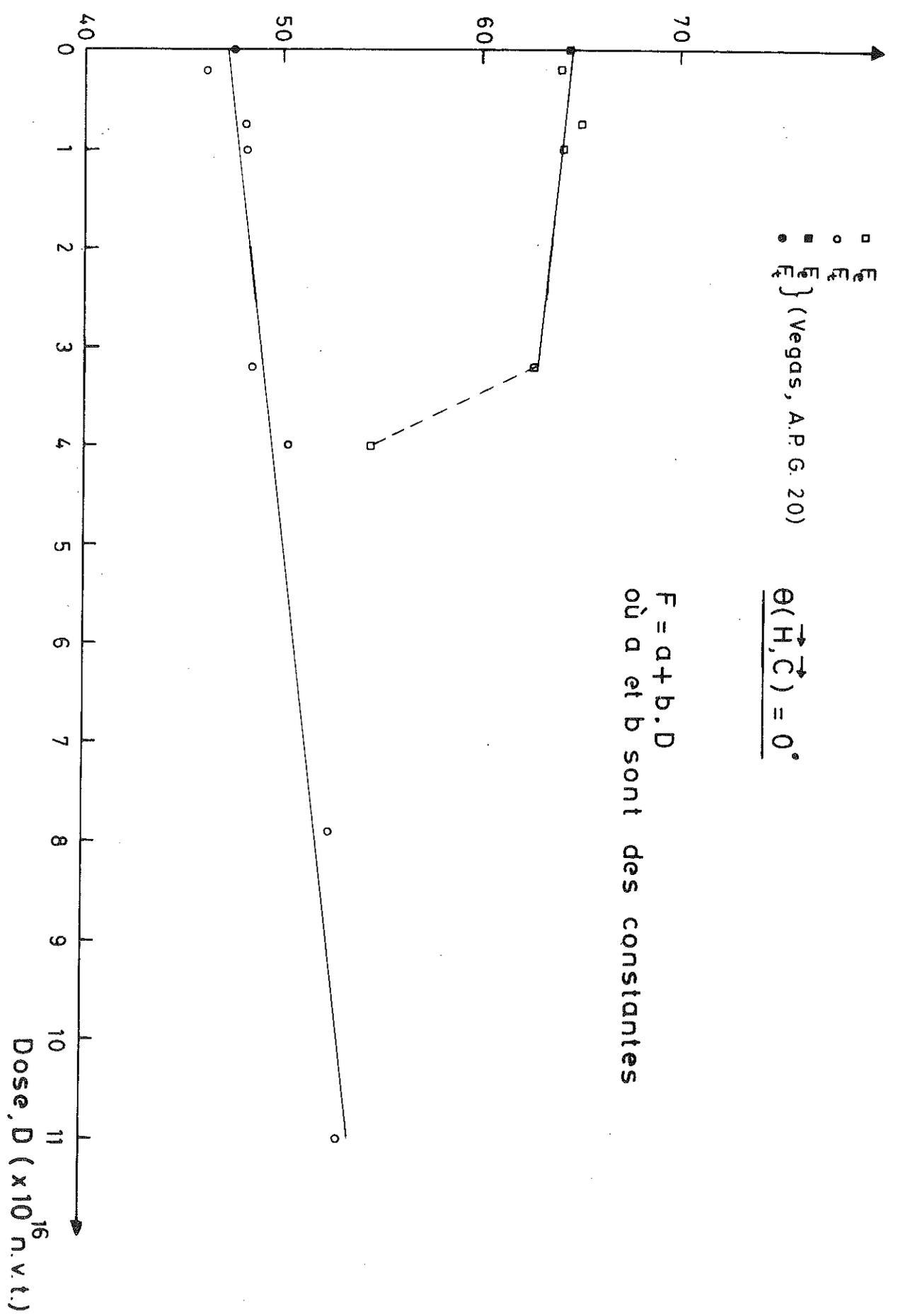


Figure 34. Variation des fréquences F_e et F_r en fonction de la dose D

fréquence de trous et diffère des résultats de Pereira pour la même dose par $\frac{50,36 - 50,25}{50,25} \approx 0,2 \%$. Cependant, l'énergie des neutrons n'était pas mentionnée pour l'échantillon de Pereira et la comparaison des fréquences ne peut pas être exacte.

Afin de déterminer l'évolution de fréquences dans la gamme $(1,0 - 4,0) \times 10^{16}$ n.v.t., nous avons fait des mesures sur un échantillon A, irradié à 298 K avec une dose donnée dans le tableau 8. Les fréquences d'oscillations pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$ de cet échantillon sont

TABLEAU 8

Echantillon	Date d'irradiation	Emplacement dans la pile	Temps dans la pile	Date d'expérience	Dose(n.v.t.) E > 1 MeV	Déplacement par atome (D.P.A.)
A	07/06/78	84 AVG	110 mins	24/11/78	$3,2 \times 10^{16}$	$4,6 \times 10^{-5}$

données dans le tableau 9. La courbe expérimentale pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$ est montré dans la figure 35. Dans la figure 34 les valeurs de fréquences pour l'échantillon A sont une moyenne des valeurs du tableau 9. Les valeurs des fréquences pour la dose de 0 sont celles du graphite pur, A.P.G. 20 (voir annexe 1) et celles de Vegas (1974).

TABLEAU 9

Fréquences d'oscillations d'échantillon A, $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$

Analyse de Fourier			$\frac{F}{H} = n + \nu - \frac{1}{8}$			
F_1 (KG)	F_2 (KG)	$\frac{\Delta F}{5}$ (KG)	F_1 (KG)	F_2 (KG)	ν_1	ν_2
62,98	48,61	0,10	62,29	48,44	0,3121	0,5338

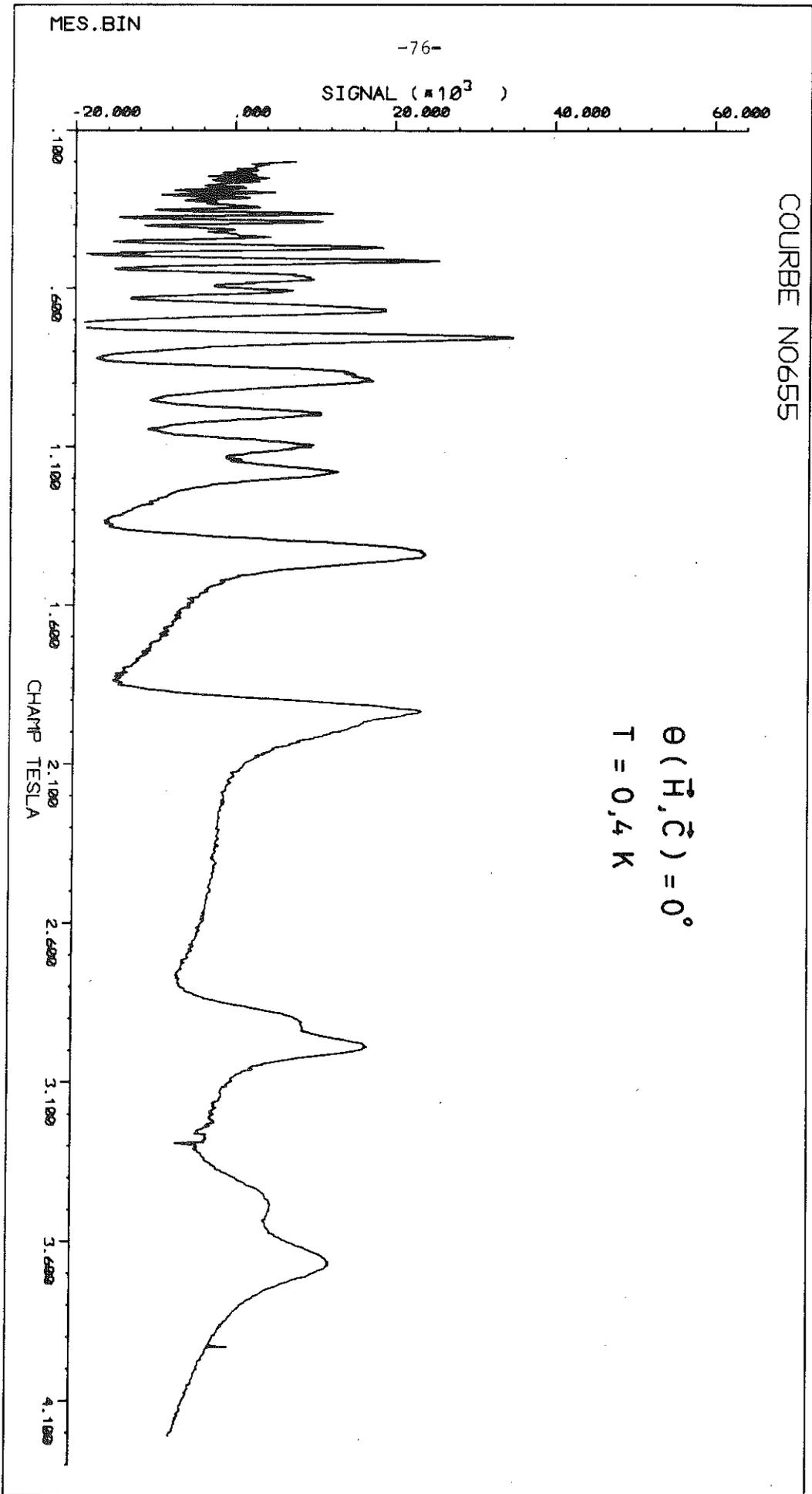


Figure 35. Courbe expérimentale de l'échantillon A

Des tableaux 4, 5 et 9 on voit que les fréquences des électrons et trous, F_e et F_t , ont peu changé dans la gamme $(0 - 3,2) \times 10^{16}$ n.v.t. Par exemple, la variation de F_e est de l'ordre de 2,7 % qui est plus grande que celui de trous (2,2 %). Nous avons fait un calcul de moindre carrés à partir de nos résultats (lignes droites dans la figure 34). Dans la figure 34 la ligne en tirets représente une évolution possible de F_e entre $3,2 \times 10^{16}$ n.v.t. et $4,0 \times 10^{16}$ n.v.t. Dans cette gamme de doses la chute de F_e est de l'ordre de $\frac{62,65 - 54,47}{54,47} \cong 15$ %. Cependant si on considère seulement la fréquence dominante à $4,0 \times 10^{16}$ n.v.t., la chute de F_e est de l'ordre de $\frac{62,25 - 50,36}{50,36} \cong 24$ %. L'augmentation dans F_t est de l'ordre de : $\frac{50,36 - 48,47}{48,47} \cong 4$ %.

Dans la figure 36, nos résultats sont comparés avec ceux de Cooper et al. (1970). Ils ont utilisé deux sortes d'échantillons, J.D.C. (graphite pyrolytique) et J.P.S. (graphite monocristallin). Pour faire cette comparaison il faut être prudent car il y a un paramètre important qui n'est pas mentionné dans les résultats de Cooper et al., celui de l'énergie des neutrons utilisée pour irradiation. Cependant nous pouvons constater que qualitativement la tendance des deux séries de résultats sont semblables.

Nous avons considéré que l'évolution des fréquences pour nos résultats et ceux de Cooper et al. prend la forme $F = A + B \times \text{Dose}$ où A et B sont des constants. Dans le tableau 10, la gamme de dose est de $(0 - 3,2) \times 10^{16}$ n.v.t. pour nos résultats de F_e .

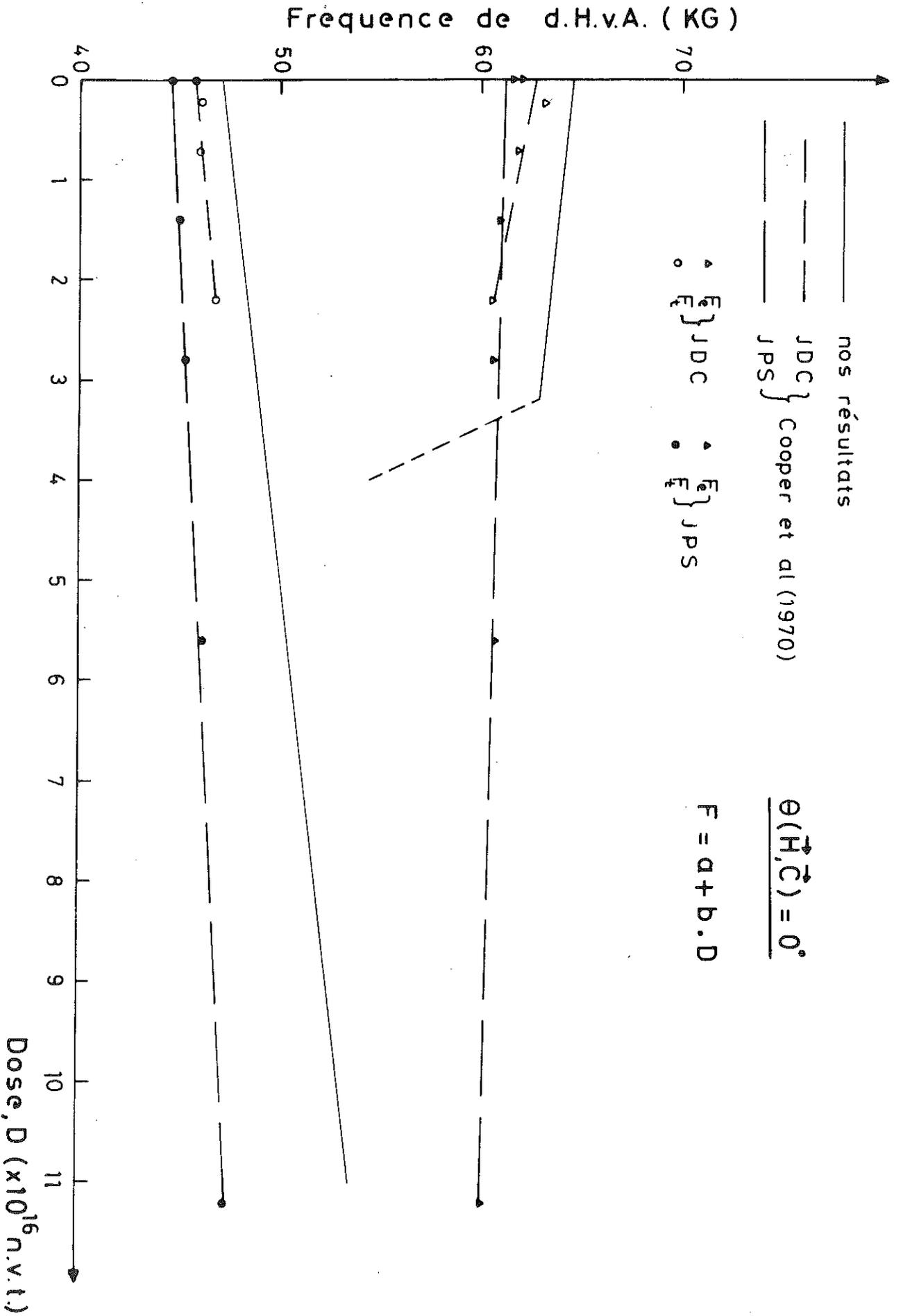


Figure 36. Comparaison des frequences avec Cooper et al(1970)

TABLEAU 10

r^2 = coefficient de détermination

Résultats	F_e			F_t		
	A(KG)	$B\left(\frac{KG}{10^{17} \text{ nvt}}\right)$	r^2	A(KG)	$B\left(\frac{KG}{10^{17} \text{ nvt}}\right)$	r^2
Nos résultats (0-11)x10 ¹⁶ n.v.t.	64,54*	-54,20*	0,663	47,18	5,833	0,916
Cooper et al., J.D.C. (0-2,2)x10 ¹⁶ n.v.t.	62,62	- 9,08	0,713	45,76	4,41	0,885
Cooper et al., J.P.S. (0-11,2)x10 ¹⁶ n.v.t.	61,17	- 1,01	0,835	44,54	1,57	0,989

* calculé pour les doses entre 0 et 3,2 x 10¹⁶ n.v.t.

Sur la figure 36, nous avons deux remarques à faire. D'abord les variations des fréquences du monocristal (J.P.S.) sont plus petites que celles observées pour nos échantillons (tableau 10). Deuxièmement, la variation de F_e dans la gamme (2,8 - 5,6)x10⁶ n.v.t. de Cooper et al., est de l'ordre de 0,1 % (à une dose de 11,2 x 10¹⁶ n.v.t. cette variation est de l'ordre de 1 %). Cela est en désaccord avec nos résultats où il y a une grande variation de F_e dans la gamme (3,2 - 4,0)x 10¹⁶ n.v.t.

B) Concentration des porteurs.

Nous avons calculé les concentrations des porteurs, P et N, pour chaque échantillon avec l'aide de l'équation :

$$P, N \equiv n_{t,e}(\text{osc.}) = \left(\frac{\pi}{3}\right) \left(\frac{4e}{\pi h c}\right)^{3/2} \times Q \cdot F_{t,e}(\theta = 0^\circ)^{3/2} \quad (5.2)$$

où X est l'anisotropie,

Q est un facteur qui est égal au numéro des surfaces dans la zone de Brillouin, ainsi Q = 2 pour électrons et Q = 4 pour trous.

Les résultats de ces calculs sont montrés dans le tableau 11.

TABIEAU 11.

Dose, D (n.v.t.)	F_e (a) (KG)	F_t (a) (KG)	K_Z^M ($\times 10^7 \text{ cm}^{-1}$)	K_Z^E ($\times 10^7 \text{ cm}^{-1}$)	V_e ($\times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)	V_t ($\times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)	P ($\times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)	N ($\times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)	$(P-N)$ ($\times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)	X
Soule et al. (1964)	66,23	48,31	1,73	3,19	1,41	1,78	2,90	2,20	0,70	↕
Vegas(1974)	65,32	48,30	1,69	3,14	1,39	1,79	2,88	2,26	0,62	↕
A.P.G. 20	63,42	46,51	1,67	3,10	1,34	1,70	2,72	2,16	0,56	↕
2,0x10 ¹⁵	63,95	46,08	1,67	3,06	1,36	1,69	2,72	2,13	0,59	↕
7,7x10 ¹⁵	64,95	48,01	1,68	3,14	1,39	1,77	2,85	2,25	0,60	↕
1,0x10 ¹⁶	64,00	48,02	1,68	3,12	1,37	1,75	2,86	2,19	0,67	↕
3,2x10 ¹⁶	62,65	48,47	1,66	3,12	1,32	1,81	2,90	2,13	0,77	↕
4,0x10 ¹⁶	54,47	50,36	0,93	1,80	0,68	1,15	1,80	1,08	0,72	↕
7,9x10 ¹⁶	52,41		0,88	1,75	0,59	1,18	1,90	0,95	0,95	↕
1,1x10 ¹⁷	52,95		0,89	1,77	0,60	1,19	1,92	0,96	0,96	↕

(a) valeurs de F_e , F_t sont celles de $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$ (tableaux 4, 5 et 9), Soule et al.(1964) et Vegas (1964).

Dans nos calculs, nous avons pris en considération les résultats de Soule et al. (1964) pour le graphite monocristallin non-irradié. Ils ont déterminé que pour les surfaces des électrons et trous les anisotropies sont respectivement 17 et $12,1 \pm 1,4$ (voir annexe 1). Dans l'annexe 1 nous avons estimé que l'anisotropie dans les fréquences F_e et F_t de l'échantillon A.P.G. 20 est de $X = 12$ (tableau 11). Puisque les variations des fréquences entre les doses 0 et $3,2 \times 10^{16}$ n.v.t. sont petites, nous avons considéré que l'anisotropie reste constante autour de 12. Pour les doses entre $4,0 \times 10^{16}$ et 11×10^{16} n.v.t., l'anisotropie est de l'ordre de 7 (voir tableau 11 et aussi figure 31). Les valeurs de K_Z^M et K_M^E sont calculées à partir respectivement des équations (4.9) et (4.10). Du tableau 11 on voit que la concentration des électrons de conduction N a diminué pendant l'irradiation. Cependant la concentration des trous a aussi diminué. Ce désaccord apparent avec la théorie vient du fait que pour les hautes doses nous n'avons déterminé l'anisotropie que pour l'échantillon 4. Il est, probable que l'anisotropie varie graduellement, avec l'irradiation. La figure 37 représente la variation du facteur (P-N) avec la dose D . Chaque neutron rapide (n.v.t.) crée pour le facteur (P-N) une valeur de 3,5 soit 10^{17} n.v.t. $\equiv 0,35 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ de (P-N) (ou 10^{-4} D.P.A. $\equiv 0,24 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$). Il y a $1,13 \times 10^{23}$ atomes de carbone par cm^3 dans le graphite pur (Reynolds, 1968-d). Donc chaque 10^{17} n.v.t. crée dans 1 cm^3 du graphite une valeur de $3,1 \times 10^{-6}$ pour (P-N), soit 10^{17} n.v.t. $\equiv 3,1$ p.p.m.

Le tableau 12 montre les valeurs de taux d'accepteurs (P-N) obtenues par différents auteurs. Il y a une grande dispersion dans les valeurs de (P-N). Notre valeur est plus petite que la plupart des valeurs du tableau 12, sauf celle de Cooper et al., mesurée avec l'effet S.d.H.

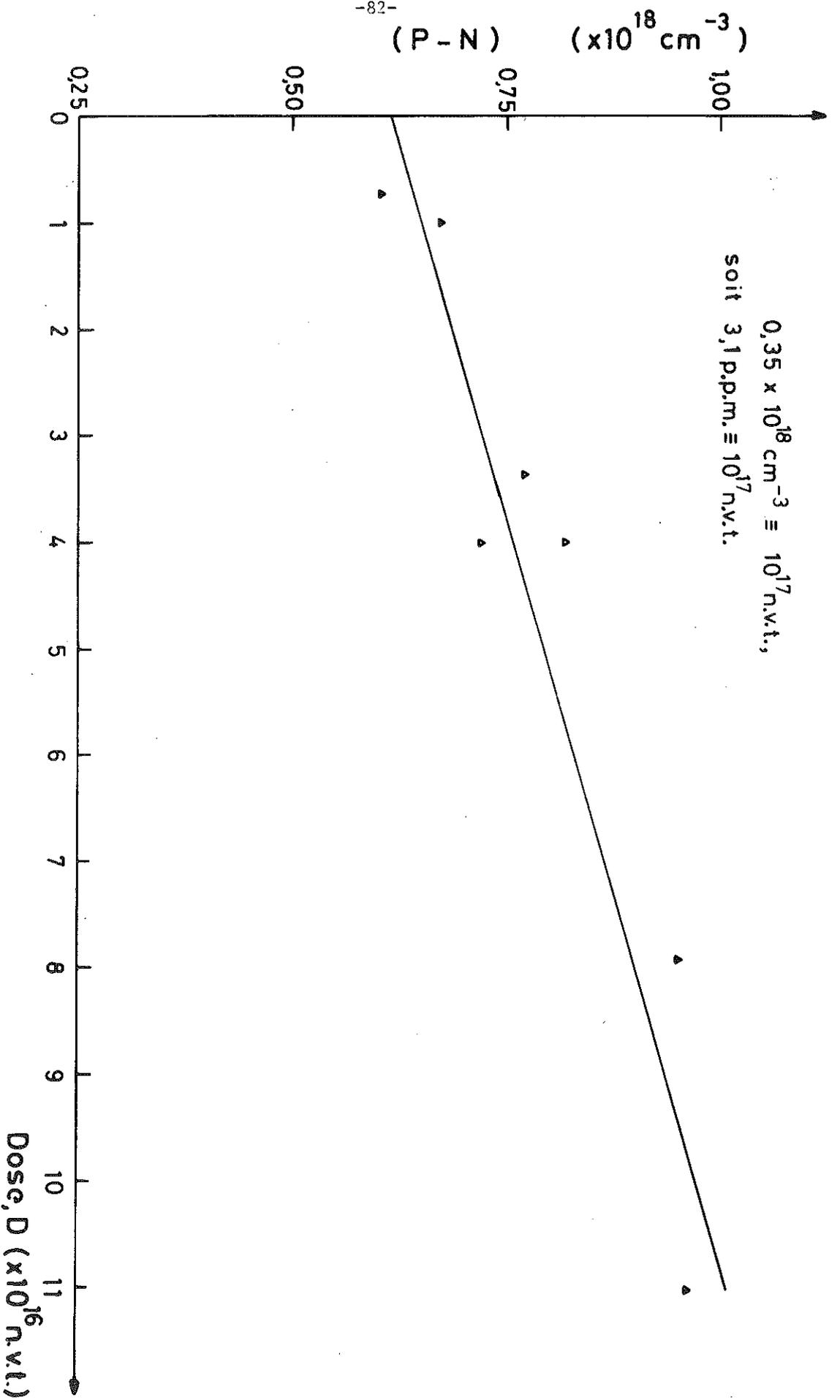


Figure 37. Variation de (P-N) avec la dose

TABLEAU 12

Comparaison des valeurs de taux d'accepteurs (P-N)

Référence	Type de mesure	(P-N) (ppm/10 ¹⁷ nvt)	Energie d'irradiation
Blackman et al(1961)	Effet Hall(H ₀ < 5KG) (T ~ 295 K)	~ 75	E > 1 MeV
Cooper et al (1970)	S.d.H. T ~ 1 - 4 K	2,8	pas de donnée
McClure (1971)	Susceptibilité magnétique, E.S.R. et résultats de l'effet Hall	5,7	E > 0,25 MeV
Dillon et al (1978)	Résultats galvano- magnétiques T = 4,2 K, H=80 KG T = 4,2 K, H=80 KG	14 ± 3 9 ± 2 30 ± 10	E > 1 Mev E > 0,1 MeV E > 1 MeV
Nos résultats	Oscillations magné- tothermiques T ~ 0,4K, H=76 KG	~ 3,1	E > 1 MeV

C) Comparaison des fréquences avec les résultats du modèle de bande rigide.

En général, on peut écrire la variation des fréquences F due aux variations de $\gamma_0, \gamma_1, \gamma_2, \gamma_3, \gamma_4, \gamma_5, \Delta$ et ϵ_F avec les relations :

$$F = F(\gamma_0, \dots, \Delta, \epsilon_F) \quad (5.3)$$

$$\epsilon_F = \epsilon_F(\gamma_0, \dots, \Delta, \eta) \quad (5.4)$$

$$\gamma_i = \gamma_i(\eta) \quad (5.5)$$

où $\eta = (P-N) \quad (5.6)$

Après irradiation, ϵ_F diminue et en même temps les paramètres de bandes sont changés, probablement à cause de variations des dimensions du réseau et de l'introduction des défauts. Dans une forme logarithmique (Dillon et al., 1977) :

$$\frac{\Delta F}{F} = \sum_i \left(\frac{\partial \ln F}{\partial \ln \gamma_i} \right)_{\gamma_j, i \neq j} \frac{d\gamma_i}{\gamma_i} + \left(\frac{\partial \ln F}{\partial \epsilon_F} \right) \gamma_i d\epsilon_F \quad (5.7)$$

Dillon et al. (1978) ont fait un calcul des fréquences en fonction du paramètre (P-N) en utilisant un modèle de bande rigide. Dans ce modèle, tous les paramètres de bande $\gamma_0, \gamma_1, \gamma_2, \gamma_3, \gamma_4, \gamma_5, \Delta$ sauf ϵ_F sont considérés constants, seulement le dernier paramètre varie avec l'introduction d'accepteurs (P-N). Donc, pour ce modèle,

$$\frac{\Delta F}{F} = 0 + \left(\frac{\partial \ln F}{\partial \epsilon_F} \right) d\epsilon_F \quad (5.8)$$

Les doses utilisées pour nos échantillons ($\lesssim 4 \times 10^{17}$ n.v.t., $E > 1$ MeV) ne créent que des petites variations des paramètres du réseau ($< 0,1$ %) (Reynolds, 1968e). Ces variations des paramètres sont telles que le rapport $\Delta c/c_0$ est positif et $\Delta c/c \sim -3\Delta a_0/a$. De l'analyse de Dillon et al., les paramètres γ_0, γ_1 et γ_2 sont les plus importants en déterminant les fréquences et γ_3 et γ_4 sont moins importants. La dépendance de $F_{e,t}$ sur γ_5 et Δ est négligeable. L'énergie de Fermi ϵ_F est fortement déterminée par γ_2 .

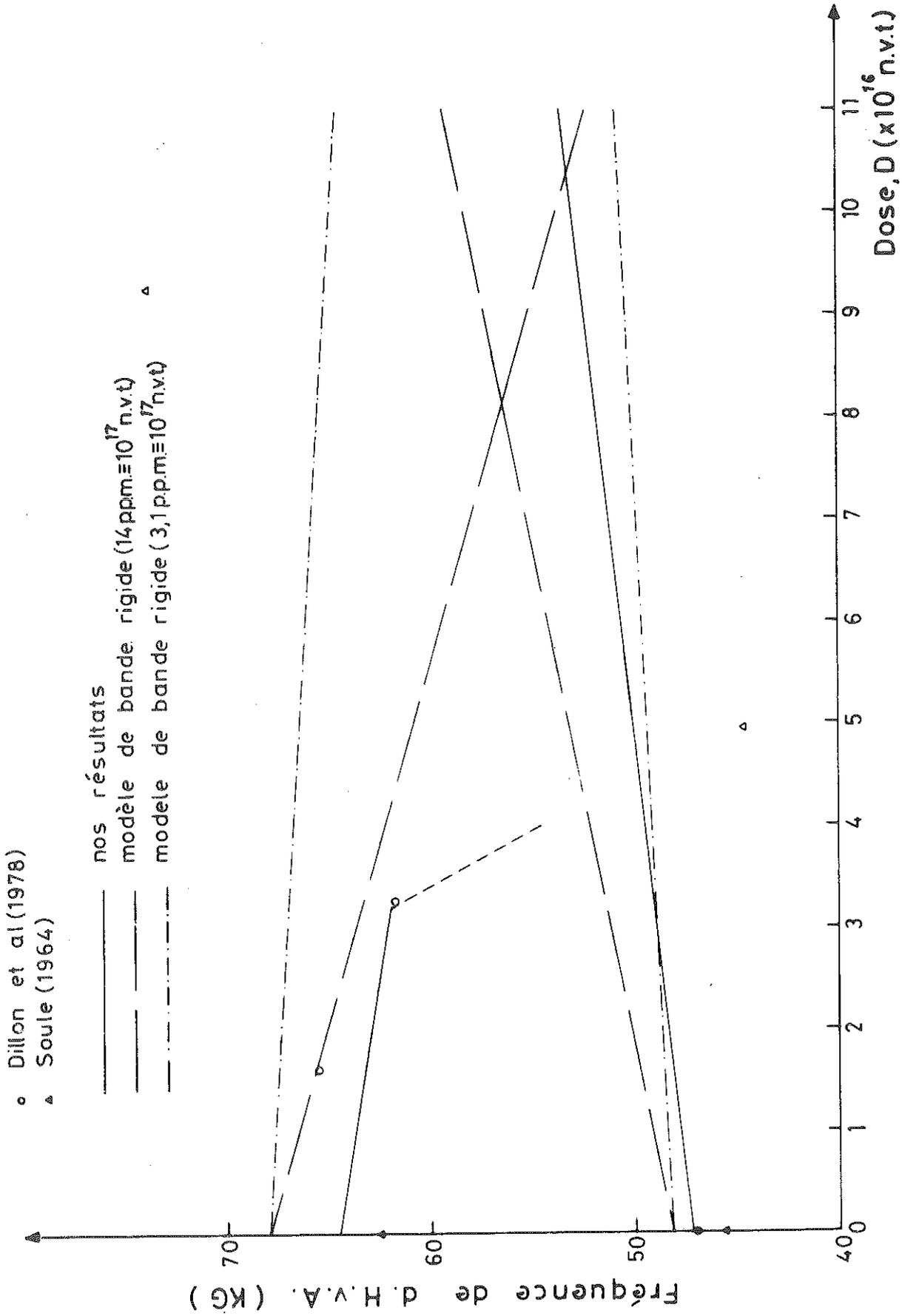


Figure 38. Comparaison des fréquences avec modèle de bande rigide

Dans la figure 38, nous avons fait une comparaison de nos résultats avec ceux de Soule et al. (1964) et Dillon et al. (1978). Afin de faciliter la comparaison, nous avons choisi le rapport (a) $(14 \pm 3) \text{ p.p.m.} \equiv 10^{17} \text{ n.v.t.}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) qui a été déterminé par Dillon et al. (tableau 12). Les courbes (en tirets) dans la figure 38 représentent les valeurs de F_e et F_t calculées par Dillon et al. pour un modèle de bande rigide. Les résultats de Soule et al. sont de l'effet de d.H.v.A. sur les monocristaux dopés en bores et ceux de Dillon et al. de l'effet S.d.H. sur les monocristaux irradiés aux neutrons rapides ($E > 1 \text{ MeV}$). Dans cette figure les courbes (en traits - - - - -) représentent F_e et F_t du modèle de bande rigide en utilisant notre valeur de (b) $3,1 \text{ p.p.m.} \approx 10^{17} \text{ n.v.t.}$ ($E > 1 \text{ MeV}$).

De la figure 38 on voit que pour la fréquence de trous F_t l'accord est meilleur avec nos résultats expérimentaux si on considère le rapport (b). Avec ce même rapport pour F_e , la gamme est meilleure dans le sens que dans la gamme $0 - 3,2 \times 10^{16} \text{ n.v.t.}$, la diminution de F_e avec D (modèle de bande rigide) est près de celui obtenu de nos résultats expérimentaux. Cependant nos résultats indiquent une chute dans F_e pour les doses plus grandes que $3,2 \times 10^{16} \text{ n.v.t.}$ tandis que le modèle de bande rigide présente une graduelle diminution dans F_t .

D) Variation des pics magnétothermiques H_n avec la dose.

La figure 39 montre la variation des cinq premiers pics magnétothermiques ($n = 1, 2$ et 3 électrons et $n = 1$ et 2 trous) en fonction de la dose (les signes + et - correspondent au spin \uparrow et \downarrow de l'électron). Nos résultats montre que les valeurs de H_{1e} , H_{2e} et H_{3e} diminuent et celles de H_{1t} et H_{2t} augmentent quand D augmente. Les variations dans H_{1e} , H_{2e} et H_{3e} avec D sont plus grandes que celles de H_{1t} et H_{2t} . Les résultats expérimentaux de Dillon et al. sont aussi montrés dans la figure 39. Dans cette figure les courbes représentent les valeurs de H_n calculées par Dillon et al. pour les champs H_{1e}^{\pm} , H_{2e}^{\pm} et H_{1t}^{\pm} en utilisant le modèle de bande rigide.

Si on compare nos résultats expérimentaux avec ceux de Dillon et al. (1978), on voit que en général nos valeurs de H_n sont plus grandes. Ceci est probablement dû au fait que nos résultats sont ceux d'oscillations magnétothermiques (O.M.T.), tandis que les résultats de Dillon et al. dans la figure 39 sont ceux de la magnétorésistance

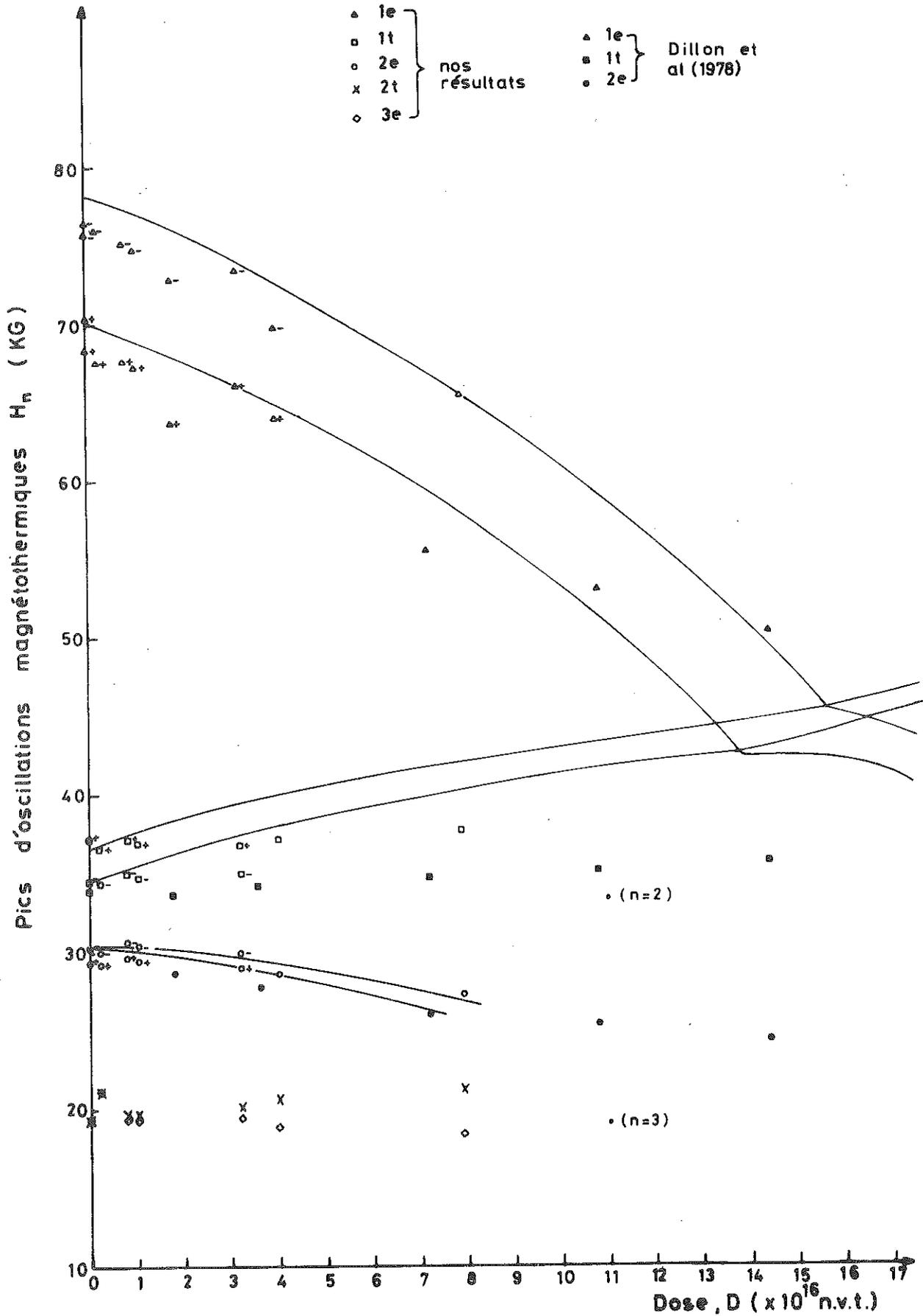


Figure 39. Variation des pics H_n avec la dose
(Comparaison avec Dillon et al, 1978)

oscillatoire ρ_{xx} (S.d.H.). La position de chaque $(H_n)_{O.M.T.}$ dépend du terme sinus de l'équation (3.5) et on peut écrire le coefficient magnétothermique dans une forme simplifiée comme :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_{O.M.T.} \propto \sum_{r=1}^{\infty} \sin \left[\frac{2\pi r F}{H} + \Phi_{O.M.T.}(r) \right] \quad (5.9)$$

où $\Phi_{O.M.T.}(r)$ est un facteur de phase.

Par analogie on peut écrire ρ_{xx} comme

$$(\rho_{xx})_{S.d.H.} \propto \sum_{r=1}^{\infty} \sin \left[\frac{2\pi r F}{H} + \Phi_{S.d.H.}(r) \right] \quad (5.10)$$

Une comparaison des résultats des figures 39 avec l'aide de l'équation $F/H = n + \nu - \frac{1}{8}$ montre que les pics H_n de ces deux figures seront en assez bon accord si :

$$\Phi_{S.d.H.}(r) \approx \Phi_{O.M.T.}(r) + \frac{1}{8}$$

E) Variation des phases ν de $\frac{F}{H} = n + \nu - \frac{1}{8}$ avec la dose.

Les valeurs de phases ν_e et ν_t du tableau 5 sont représentées dans la figure 40. On peut diviser la discussion suivante en deux parties : celle concernant la gamme de dose (i) $(0-3,2) \times 10^{16}$ n.v.t. et ensuite à la gamme de (ii) $(4,0-11) \times 10^{16}$ n.v.t. Sur la figure 40 on voit que les phases ont changé avec l'irradiation surtout pour les hautes doses ($> 4,0 \times 10^{16}$ n.v.t.). Pour la gamme (i) la différence entre les valeurs de ν_e et ν_t peut être de l'ordre de 20 % à $7,7 \times 10^{15}$ n.v.t. et de 71 % à $3,2 \times 10^{16}$ n.v.t. En première approximation on peut considérer que les phases sont constantes dans la gamme (i), leurs valeurs moyennes étant montrées, données par les lignes (en trait plein). La phase des électrons ν_e a énormément changé entre $3,2 \times 10^{16}$ et $4,0 \times 10^{16}$ n.v.t. (cf. figure 34). Il nous semble que, entre ces deux doses, il y a une grande variation dans certaines propriétés physiques du graphite irradié, au moins des propriétés liées avec la surface de Fermi d'électrons.

Dans la gamme (ii), on voit toujours une fréquence dominante (trous) avec les valeurs de phases inférieures à celles de la gamme (i). Bien que la détermination de ν_t dans la gamme (ii) soit plus difficile

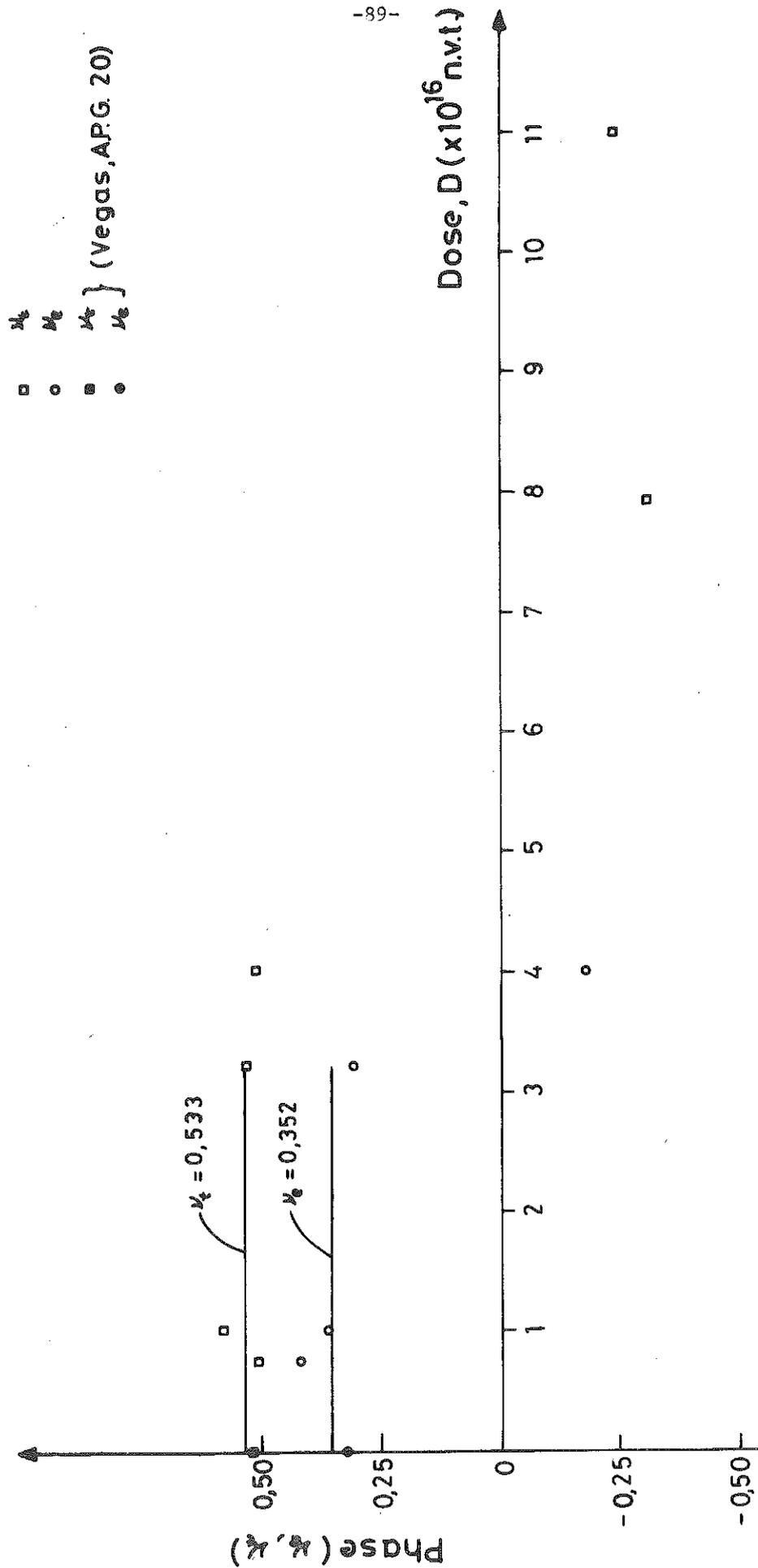


Figure 40. Variation des phases avec la dose

(à cause de moindre pics d'oscillations observés) surtout pour les échantillons 5 et 6, nous pouvons constater que les valeurs des phases pour ces deux échantillons correspondent à celle de trous.

Nos résultats de phases indiquent qu'il peut y avoir deux conséquences physiques dans les études du graphite irradié comme les nôtres. (a) D'abord la phase ν n'est pas constante mais varie avec l'irradiation ou le taux d'impuretés. Dans les équations (3.4) et (3.5) nous avons considéré que la phase ν est une constante ($= \frac{1}{2}$). Donc, si on veut calculer les valeurs des pics d'oscillations quantiques H_n à partir des expressions théoriques, par exemple (3.5), il est nécessaire de savoir la valeur de la phase pour un taux d'impuretés donné. Cependant l'introduction de ν comme une variable ne provoque pas une variation dans les amplitudes ou les fréquences d'oscillations puisque seulement le terme sinus de l'équation (3.5) est considéré. (b) Deuxièmement, en calculant théoriquement les oscillations quantiques il est nécessaire de tenir compte des différentes valeurs pour les électrons et les trous.

V - CONCLUSIONS

Les mesures de l'effet magnétothermique quantique sur les graphites purs et irradiés aux neutrons rapides nous permettent d'étudier la surface de Fermi du graphite en fonction du taux d'accepteurs (P-N). Afin d'observer les oscillations magnétothermiques nous avons utilisé un montage cryogénique produisant un champ magnétique jusqu'à 76 KG. Pour avoir une bonne précision sur le champ magnétique nous avons utilisé une sonde de R.M.N. Ceci nous permet d'étalonner le rapport de H/I de notre bobine supraconductrice pendant chaque expérience.

Nos résultats ont confirmé que l'énergie de Fermi ϵ_F est diminuée avec la dose D , ce qui est aussi trouvé par de nombreux auteurs. Donc, quand D augmente, la fréquence d'électrons F_e diminue et celle de trous F_t augmente (cela veut dire aussi que le paramètre de bande γ_2 est négatif). Cependant les fréquences que nous avons obtenues sont généralement plus grandes que celles de Cooper et al. Nous avons confirmé le résultat de Pereira car il y a seulement une fréquence dominante pour la dose $4,0 \times 10^{16}$ n.v.t. En même temps nous

avons trouvé une grande variation de F_e entre les doses de $3,2 \times 10^{16}$ et $4,0 \times 10^{16}$ n.v.t. Les formes de la surface de Fermi de deux échantillons ont été déterminées et leurs anisotropies sont de 12 (A.P.G. 20) et de 7 ($4,0 \times 10^{16}$ n.v.t.).

La grande incertitude de ces expériences se trouve dans la détermination du rapport entre la dose D et le taux d'accepteurs (P-N). Nous avons essayé d'estimer ce rapport à partir des valeurs des concentrations de porteurs. La valeur que nous avons obtenue, 10^{17} n.v.t. \equiv 3,1 p.p.m. ($E > 1$ MeV) est plus faible que les valeurs obtenues par d'autres auteurs. Cependant il nous semble qu'une grande imprécision est souvent impliquée dans la détermination de ce rapport. Donc il faut être prudent quand on utilise la valeur trouvée pour ce rapport si on ne sait pas de quelle façon il est déterminé ou l'énergie de neutrons utilisée pendant l'irradiation.

Jusqu'à maintenant, il y a peu de travail théorique sur les variations de fréquences et des paramètres de bandes en fonction du taux d'impuretés. L'étude théorique de Dillon et al. montre qu'avec un modèle de bande rigide, les variations calculées de certaines propriétés sont en assez bon accord avec les résultats expérimentaux. Une difficulté dans les calculs de ce type est que jusqu'à maintenant il n'y a pas de modèle pour expliquer quantitativement l'origine d'accepteurs dans le réseau graphitique pendant l'irradiation.

Nos résultats montrent que le facteur de phase ν peut jouer un rôle important dans l'interprétation de nos résultats. Nous avons trouvé que ν n'est pas constant mais varie avec le nombre d'accepteurs, surtout pour les hautes doses d'irradiation. Donc il est peut-être nécessaire de tenir compte de cette variation quand on fait des calculs théoriques des oscillations quantiques. Il serait souhaitable de refaire les calculs d'un modèle de bande rigide avec les valeurs de ν appropriées.

Expérimentalement, il sera intéressant de faire des mesures magnétothermiques quantiques sur les échantillons irradiés entre les doses de $3,2 \times 10^{16}$ et $7,9 \times 10^{16}$ n.v.t. Nous pensons que c'est dans cette gamme qu'il y a une grande variation dans certaines propriétés du graphite. Il est aussi utile de déterminer le facteur d'anisotropie pour d'autres échantillons, par exemple dans la gamme $(3,2 - 5,0) \times 10^{16}$ n.v.t. Finalement, il est intéressant d'étudier l'effet de l'irradiation sur les phases des fréquences d'oscillations dans la même gamme.

ANNEXE 1

RESULTATS DE L'ÉCHANTILLON A.P.G. 20

Avant de faire des expériences magnétothermiques sur les échantillons irradiés, nous avons fait une série de mesures sur un échantillon non-irradié, A.P.G. 20. Cet échantillon provient d'un lot de haute pureté et son rapport de résistivité est $\rho_{298K}/\rho_{4,2K} \approx 20$. Les mesures du tableau 13 ont été faites avec une bobine supraconductrice dont le rapport H/I a été déterminé avec la R.M.N. et vaut $H/I = 1,228 \text{ KG/A}$.

Nous avons fait des mesures entre les angles $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$ et 90° inclus. Les fréquences du d.H.v.A. obtenues de l'analyse de Fourier jusqu'à $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 80^\circ$ sont données dans le tableau 13.

TABLEAU 13

Fréquences d'oscillations dans le spectre du signal magnétothermique quantique (A.P.G. 20)

$\theta = (\vec{H}, \vec{C})$	F_1 (kG)	F_2 (kG)	$\Delta F/5$ (kG)
0°	63,44	45,54	0,88
10°	64,93	47,37	0,42
20°	68,67	50,20	0,37
30°	74,96	55,03	0,31
40°	84,19	61,74	0,37
45°	89,56	65,41	0,41
50°	100,17	73,33	0,37
55°	110,54	81,03	0,33
60°	130,62	94,03	0,37
65°	150,48	110,60	0,77
70°	189,65	137,97	1,52
75°	252,91	187,47	1,52
80°	357,29	255,33	5,11

Le tableau 14 représente les valeurs du champ magnétique correspondante aux pics d'oscillations magnétothermiques pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$.

La figure 41 montre la dépendance des fréquences des électrons et trous de A.P.G. 20 en fonction de l'orientation $\theta(\vec{H}, \vec{C})$ de 0° à 80° . Dans cette figure les résultats expérimentaux (croix et points) sont ceux du tableau 13. Nous avons fait des calculs pour déterminer l'anisotropie X comme dans le cas de l'échantillon 4 (chapitre V, section V.3.B.). Soule et al. (1964) ont trouvé que pour le graphite pur, les anisotropies pour la surface de Fermi des électrons et des trous sont respectivement 17 et $12,1 \pm 1,4$ (à cette époque, 1964, la plus grande fréquence a été assignée aux trous. Depuis 1968, cette fréquence est assignée aux électrons et la plus petite fréquence aux trous après les études de nombreux auteurs ; McClure, 1970 et Schroeder et al., 1968). L'anisotropie qui donne le meilleur ajustement par moindre carrés à nos résultats est de $X = 12$. Les courbes dans la figure 41 représentent les fréquences calculées avec $X = 12$.

Les concentrations de porteurs correspondent à $X = 12$ de l'équation (5.2) sont :

$$P \equiv n_t(\text{osc.}) = 2,72 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$$

$$N \equiv n_e(\text{osc.}) = 2,16 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$$

TABLEAU 14

Champs correspondant aux pics magnétothermiques H_n de A.P.G. 20 pour $\theta(\vec{H}, \vec{C}) = 0^\circ$. (T = 1,07 K)

Niveau de Landau	Electrons (KG)	Trous (KG)
n = 1*	72,08 *	35,58*
n = 2*	29,77 *	19,40
n = 3	19,40	13,85
n = 4	14,93	10,71
n = 5	12,16	8,69
n = 6	10,19	7,34
n = 7	8,69	6,21
n = 8	7,81	5,65
n = 9	6,88	5,21
n = 10	6,21	4,48
n = 11	5,65	4,18
n = 12	5,21	3,71
n = 13	4,83	3,50
n = 14	4,48	3,29
n = 15	4,18	3,02
n = 16	3,93	2,87
n = 17	3,71	2,74
n = 18	3,50	2,52

* niveau de Landau avec splitting de spin observé (deux pics). La valeur de H_n est une moyenne de ces deux pics.

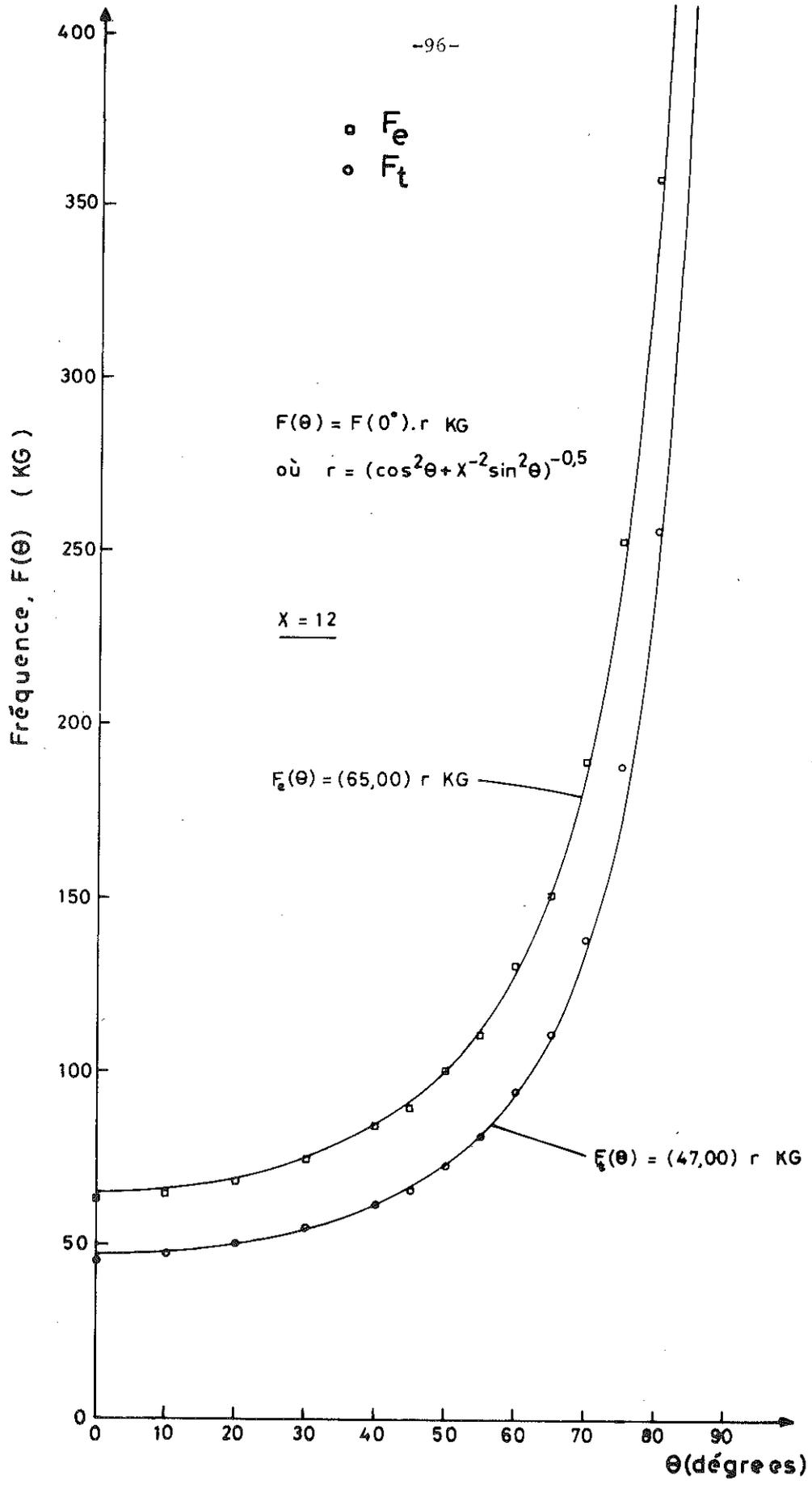


Figure 41. Fréquences des électrons $F_e(\theta)$ et trous $F_h(\theta)$ et leurs anisotropies (A.P.G. 20)

R E F E R E N C E S

1. ABRAGAM, A.,
Les Principes du Magnétisme Nucléaire (Bibliothèque des Sciences et Techniques) (1961a) p. 18 (1961b), p. 39, (1961c) p.111.
2. AZBEL, M.Ya, et LIFSHITZ, I.M.,
"Electron Resonances in Metals", Prog. Low Temp. Phys. 3, Amsterdam (1961) 288.
3. BEER, A.C.,
"Galvanomagnetic Effects in Semiconductors", Solid St. Physics, Supplément 4 (Academic Press, London) (1963) p. 301.
4. BERSOHN, R., et GUTOWSKY, H.S.,
J. Chem. Phys. 22 (1954) 651.
5. BLACKMAN, L.C.F., SAUNDERS, G., et UBBELOHDE, A.R.,
Proc. Phys. Soc. 78 (1961) 1048.
6. BLUMÉ, R.J.,
Rev. Sci. Instrum. 29 (1958) 574.
7. COOPER, J.D., SMITH, J.P., WOORE, J., et YOUNG, D.A.,
J. Phys. (London) C4 (1970) 442.
8. CRACKNELL, A.P., et WONG, K.C.,
"The Fermi Surface", (Clarendon Press, Oxford) (1973) p. 291.
9. DE HAAS, W.J., et VAN ALPHEN, P.M.,
Proc. Amsterdam, Acad. Sci. 34 (1931), 1249.
10. DILLON, R.O., SPAIN I.L., et McCLURE, J.W.,
J. Phys. Chem. Solids 38 (1977) 635.
11. DILLON, R.O., SPAIN, I.L., et McCLURE, J.W.,
J. Phys. Chem. Solids 39 (1978) 1071.
12. DINGLE, R.B.,
Proc. Roy. Soc. (London) A211 (1952) 517.
13. EBERHARD, A.,
IEEE Trans. on Audio and Electroacoustics, vol. AU-21, n° 1 (feb. 1973).
14. FREYMAN, R., et SOUTIF, M.,
La Spectroscopie Hertzienne Appliquée à la Chimie (Dunod, Paris) (1960) p. 93.

15. JAN, J.P.,
Solid St. Physics 5 (1957) 1.
16. JAN, J.P., et TEMPLETON, I.M.,
Phys. Rev. 116 (1964) 556.
17. JONES, H., et ZENER, C.,
Proc. Roy. Soc. A145 (1934) 268.
18. JUSTI, E., et KOHLER, M.,
Ann. Physik 36 (1939) 349.
19. KAHN, A.H. et FREDERIKSE, H.P.R.,
Solid St. Physics 9 (Academic Press, London) (1959) p. 257.
20. KINCHIN, G.H.,
Proc. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva, 7 (1956) 472.
21. KORN, A.G. et KOHN, T.M.,
"Mathematical Handbook for Scientists and Engineers" (Mc Graw Hill,
New York) (1961) p. 732.
22. KUNZLER, J.E., HSU, F.S.L., et BOYLE, W.S.,
Phys. Rev. 128 (1962) 1084.
23. LANDWEHR, G.,
"Physics of Solids in Intense Magnetic Fields" (Plenum Press, New
York) (1969) p. 417.
24. LAX, B., et MAVROIDES, J.G.,
"Cyclotron Resonance", Solid St. Physics 11 (1960) 261.
25. LIFSHITZ, I.M., et KOSEVITCH, M.,
Soviet Phys. JETP 2 (1956) 636.
26. MAXFIELD, B.W., et MERRILL, J.R.,
Rev. Sci. Instrum. 36 (1965) 1083.
27. McCLURE, J.W.,
Phys. Rev. 108 (1957) 612.
28. McCLURE, J.W.,
Proc. Intern. Conf. Phys. Semimetals and Narrow Gap Semiconductors,
Dallas, (1970) (Pergamon, London) (1971) p. 127.
29. McCOMBE, B., et SEIDEL, G.,
Phys. Rev. 155 (1967) 633.
30. MERCOUROFF, W.,
La Surface de Fermi des Métaux (Masson, Paris) (1967) p. 20.
31. NAGAYOSHI, H., NAKAO, K., et UEMURA, Y.,
J. Phys. Soc. Japan 41 (1976) 1480.

32. ONSAGER, L.,
Phil. Mag. 43 (1952) 1006.
33. PACAULT, A., MARCHAND, A., AMIELL, J., DUPART, E., RAPPENEAU, J.,
MICAUD, G. et WLODARSKY, R.,
Carbon 10 (1972) 449.
34. PEREIRA, C.,
Thèse, Université de Grenoble (1974).
35. PIPPARD, A.B.,
Phil. Trans. R. Soc. A250 (1957) 325.
36. PIPPARD, A.B.,
"The Dynamics of Conduction Electrons" (Blackie, London) 1965.
37. POUND, R.V., et KNIGHT, W.D.,
Rev. Sci. Instrum. 21 (1950) 219.
38. RAPPENEAU, J., MICAUD, G., MARCHAND, A., PACAULT, A., et AMIELL, J.,
Carbon 14 (1976) 53.
39. REYNOLDS, W.N.,
"Physical Properties of Graphite" (Elsevier, Amsterdam) (1968a),
p. 135 (1968b) p. 158 (1968c) p. 155 (1968d) p. 2 (1968e) p. 161.
40. SCHOENBERG, D. et STILES, P.J.,
Proc. Roy. Soc. (Lond.) Ser. A 281 (1964) 62.
41. SCHROEDER, P.R., DRESSELHAUSS, M.S., et JAVAN, A.,
Phys. Rev. Letters 20 (1968) 1292.
42. SHEPHERD, J.P.G., LARSON, C.O., ROBERTS, D. et GORDON, W.L.,
L.T. 9, part B (1964) 752.
43. SLONCZEWSKI, J.C., et WEISS, P.R.,
Phys. Rev. 109 (1958) 272.
44. SOULE, D.E.,
Proc. Conf. Carbon, 5th, Univ. Park, Penna., 1961, vol. 1
(Pergamon, London) (1962) p. 13.
45. SOULE, D.E., McCLURE, J.W., SMITH, L.B.,
Phys. Rev. 134 (1964) A 453.
46. SPAIN, I.,
"Physics and Chemistry of Carbon", vol.8 (Marcel Dekker, New York)
(1973)p. 2.
47. SPRINGFORD, M.,
Adv. Phys. 20 (1971) 493
48. STOLZ, H.,
Phys. Status Solidi 3 (1963) 1153 et 1493.

49. Varian Associates,
"Nuclear Magnetic Resonance", Cinquième Edition.
50. VEGAS, J.M.,
Thèse, Université de Grenoble (1974) p. 64.
51. VEGAS, J.M. et BRIGGS, A.,
Proc. Fourth London Intern. Carbon and Graphite Conf. 23-27 Sept. 1974
(Society of Chemical Industry, London)(1976) p. 571.
52. WATKINS, G.D., et POUND, R.V.,
Phys. Rev. 82 (1951) 383.
53. WILSON, A.H.,
"The Theory of Metals", Deuxième Ed. (Cambridge Univ. Press, London)
(1953).

Dernière page d'une thèse

VU

Grenoble, le 5 Mars 1979

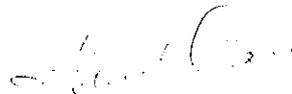
Le Président de la thèse



Vu, et permis d'imprimer,

Grenoble, le 5 mars 1979

Le Président de l'Université
Scientifique et Médicale



Dr G. CAU

