



HAL
open science

Contributions à l'étude expérimentale de l'hélium-3 liquide polarisé

Bérengère Villard

► **To cite this version:**

Bérengère Villard. Contributions à l'étude expérimentale de l'hélium-3 liquide polarisé. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1999. Français. NNT: . tel-00011770

HAL Id: tel-00011770

<https://theses.hal.science/tel-00011770>

Submitted on 7 Mar 2006

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

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

**DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE**

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL



**THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI
spécialité : Physique Quantique**

**présentée par
Bérengère VILLARD**

**pour obtenir le titre de
Docteur de l'Université Paris VI**

Sujet de la thèse :

**CONTRIBUTIONS A L'ETUDE EXPERIMENTALE DE
L'HELIUM-3 LIQUIDE POLARISE**

Soutenue le 06 juillet 1999 devant le jury composé de :

Mme	C. LHUILLIER	Présidente
M.	M. CHAPPELLIER	Rapporteur
M.	P.E. WOLF	Rapporteur
M.	P. LABASTIE	Examineur
M.	P.J. NACHER	Directeur de Thèse

**DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE**

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL



**THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI
spécialité : Physique Quantique**

**présentée par
Bérengère VILLARD**

**pour obtenir le titre de
Docteur de l'Université Paris VI**

Sujet de la thèse :

**CONTRIBUTIONS A L'ETUDE EXPERIMENTALE DE
L'HELIUM-3 LIQUIDE POLARISE**

Soutenue le 06 juillet 1999 devant le jury composé de :

Mme	C. LHUILLIER	Présidente
M.	M. CHAPELLIER	Rapporteur
M.	P.E. WOLF	Rapporteur
M.	P. LABASTIE	Examineur
M.	P.J. NACHER	Directeur de Thèse

REMERCIEMENTS

Le travail présenté dans ce mémoire a été mené au laboratoire Kastler-Brossel de l'Ecole Normale Supérieure. Je remercie Michèle Leduc de m'y avoir accueillie, me permettant ainsi de bénéficier d'un environnement scientifique exceptionnel.

Je tiens à remercier ici tous les membres du groupe hélium ; passés, Eric Stoltz, Benoît Demolder et Peter Grüter, et présents, Jacques Dupont-Roc, Xavier Müller, Emmanuel Courtade, Nathalie Piegay, Karen Sauer, Geneviève Tastevin qui a guidé mes premiers pas dans la recherche, et Pierre-Jean Nacher, mon directeur de thèse, dont j'ai pu apprécier la très grande culture scientifique et la profonde compréhension de la physique.

Je remercie particulièrement le professeur Jean Brossel pour l'intérêt qu'il a manifesté pour mes travaux.

La réalisation des expériences doit beaucoup à la compétence de tous les ingénieurs et techniciens du laboratoire ; je ne peux citer tout le monde tant est longue la liste de celles et ceux sans lesquels ce travail n'aurait pas été possible. Les cellules expérimentales ont été réalisées par Guy Flory à qui je rends hommage ici pour sa gentillesse, sa minutie et son savoir-faire. Le cryostat et de nombreuses pièces "vitales" ont été réalisés à l'atelier de mécanique du laboratoire, particulièrement par Jean Outrequin et Jean-Claude Guillaume, que je tiens à remercier pour leur patience à m'enseigner l'utilisation du tour et de la fraiseuse...

Je remercie également Claire Lhuillier, Maurice Chapellier, Pierre-Etienne Wolf et Pierre Labastie pour l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de cette thèse en acceptant de participer au jury de soutenance.

Enfin, merci à Pierre pour ses dessins et tant d'autres choses...

Table des Matières

1 Montage expérimental	7
1.1 Préparation d'un gaz d'hélium-3 polarisé	7
1.1.1 Pompage optique de l'hélium-3	7
1.1.1.1 Principe	7
1.1.1.2 Conditions expérimentales optimales	9
1.1.1.3 Source laser	10
1.1.1.4 Détection optique de la polarisation	13
1.1.2 Les doubles cellules	15
1.1.2.1 Caractéristiques géométriques	16
1.1.2.2 De l'intérêt du gros réservoir	17
1.1.2.3 Remplissage des cellules	18
1.1.2.4 L'enduit de césium	20
1.2 Description du réfrigérateur à hélium-3	20
1.2.1 La partie hélium-4/azote	21
1.2.1.1 Vase cryogénique	21
1.2.1.2 La boîte à vide	22
1.2.1.3 Le pot à hélium-4	24
1.2.2 Le réfrigérateur à hélium-3	25
1.2.3 Dispositif de thermalisation de la cellule en verre	28
1.2.4 Mesures des températures	28
1.3 Détection radioélectrique de l'aimantation	31
1.3.1 Le champ magnétique statique B_0	31
1.3.1.1 Production d'un champ magnétique statique	31
1.3.1.2 Bobines de gradient de champ	34

1.3.2	Le dispositif RMN	35
1.3.2.1	Procédure	35
1.3.2.2	Les bobines inductrices	35
1.3.2.3	Le circuit de détection	37
1.3.2.4	Le dispositif électronique	38
1.4	Caractérisation du montage expérimental	39
1.4.1	Caractérisation du nouveau cryostat	39
1.4.1.1	Température limite	39
1.4.1.2	Inertie thermique	39
1.4.1.3	Stabilisation en température	40
1.4.2	Caractérisation du liquide par résonance magnétique nucléaire	40
1.4.2.1	Principe de mesure de la polarisation du liquide	40
1.4.2.2	Résultats d'une expérience typique	43
1.4.3	Conclusion	49
2	Etude expérimentale de l'équilibre liquide-vapeur de l'hélium-3 liquide polarisé	50
2.1	Etude de l'hélium-3 polarisé	51
2.1.1	L'hélium-3 gazeux à basse température	51
2.1.2	L'hélium-3 liquide	52
2.2	Pression de vapeur saturante de l'hélium-3 liquide polarisé	54
2.2.1	Formalisme	55
2.2.2	Résultats : détermination des diagrammes d'équilibre $P_{sat}(T,M)$	55
2.3	Mise en oeuvre expérimentale	58
2.3.1	Evolution temporelle de la pression de vapeur saturante	58
2.3.2	Mesure de la pression de vapeur saturante "point par point"	60
2.4	La jauge de pression	62
2.4.1	Principe de fonctionnement	63
2.4.2	Réalisation de la jauge de pression	65
2.4.3	Influence du bouchon	71
2.4.4	Etalonnage du capteur	74
2.5	Cellules d'hélium-3 avec capteur à 4 K. Description. Premières expériences	77
2.5.1	Préparation	77
2.5.2	Première cellule	77
2.5.3	Deuxième cellule	78
2.5.4	Troisième cellule	78

2.5.5	Cellule à robinet et à capteur	80
2.6	Cellules d'hélium-3 munies d'un robinet, avec capteur à 300 K	80
2.6.1	Cellule seule	80
2.6.2	Modification des capteurs de pression	81
2.6.3	Mesure de pression à température ambiante	83
2.6.4	Procédure expérimentale	84
2.7	Résultats expérimentaux	90
2.7.1	Variation de pression lors de la destruction de l'aimantation	92
2.7.2	Caractéristiques du signal mesuré	93
2.7.3	Comparaison aux résultats antérieurs	95
2.8	Interprétation en termes de transformation adiabatique	96
2.8.1	Variation de pression isotherme dans le cas d'un liquide peu polarisé	98
2.8.2	La transformation adiabatique	99
2.9	Retour sur les résultats expérimentaux : effet isotherme	104
2.10	Une nouvelle configuration pour tester cette interprétation	104
2.10.1	Description de la nouvelle cellule expérimentale	105
2.10.2	Résultats expérimentaux préliminaires	106
2.10.3	Mélange hélium-3/hélium-4	108
2.11	Conclusion	110
3	Etude d'un mélange	112
3.1	Introduction	112
3.1.1	Motivations	112
3.1.2	Prédictions théoriques	113
3.2	Description - Cellule à mélange	114
3.2.1	Proportions en hélium-3/hélium-4	114
3.2.2	Quantités d'hélium	115
3.3	Mesure du temps de relaxation longitudinal T_1	115
3.4	Détermination de x_{liq}	116
3.4.1	Principe	117
3.4.2	Géométrie de la cellule. Volumes effectifs	117
3.4.3	Carte de température. Hystérésis	118
3.4.4	Modèle numérique. Première approche	119
3.5	Caractérisation de la vapeur. Mesures optiques à température ambiante	122
3.5.1	Mesure de la pression	126

3.5.2	Mesure de la proportion x d'hélium-3 dans la vapeur	130
3.6	Effet HEVAC	140
3.6.1	L'effet HEVAC dans les mélanges hélium-3/hélium-4	140
3.6.2	L'effet HEVAC et la carte de température	140
3.7	Détermination de x_{liq} . Modèle "amélioré"	141
3.8	Analyse des résultats	144
3.9	Conclusion	144
4	Instabilités RMN dans l'hélium-3 liquide fortement polarisé	148
4.1	Introduction	148
4.2	Rappel du montage expérimental	149
4.3	Etude qualitative du spectre de Fourier	150
4.4	Effets du couplage au circuit de détection	152
4.5	Résultats expérimentaux	153
4.5.1	Analyse des données expérimentales	153
4.5.1.1	Mesure de l'angle de basculement de l'aimantation	153
4.5.1.2	Caractérisation du taux d'amortissement $1/T_2^*$	154
4.5.2	Dépendance en aimantation	154
4.5.3	Dépendance en angle	161
4.5.3.1	remarques	162
4.5.4	Influence des gradients de champ magnétique	162
4.5.5	Echos de spins	164
4.6	Tentative d'interprétation des résultats	165
4.6.1	Rappel : échantillon remplissant un tube cylindrique	167
4.6.1.1	Modèle simple du tube cylindrique droit et infini	167
4.6.1.2	Modèle du tube cylindrique long et étroit en forme de U	168
4.6.2	Echantillon étalé en film mince	168
4.6.2.1	Modèle simple de la nappe plane et infinie	168
4.6.2.2	Comparaison aux expériences	170
4.6.2.3	Un modèle plus raffiné	170
4.6.2.4	Evolution après un grand angle de basculement	173
4.6.2.5	Evolution après un petit angle de basculement	174

INTRODUCTION

Ce travail s'inscrit dans le cadre de recherches sur les fluides quantiques polarisés et plus particulièrement sur l'hélium-3 polarisé à basse température.

Les deux isotopes de l'hélium ont des propriétés macroscopiques très particulières à basse température, en particulier l'absence de solidification à 0 K et basse pression. Cette possibilité de disposer, à basse température, de fluide d'hélium dont la pureté est exceptionnelle permet de réaliser des études reproductibles et significatives. De plus, l'hélium est constitué d'atomes particulièrement simples, dont les interactions sont connues et les propriétés bien documentées, tant au niveau théorique qu'expérimental. Enfin, les deux isotopes de l'hélium obéissent à des statistiques quantiques différentes (l'hélium-4 est un boson, alors que l'hélium-3 est un fermion). Un fluide dense d'hélium-3 se comporte en particulier comme un système de Fermi dégénéré, obéissant au principe de Pauli.

La possibilité de faire varier la polarisation nucléaire de l'hélium-3 (qui peut alors être considérée comme un nouveau paramètre thermodynamique), conjointement à l'obtention de basses températures (qui rendent la longueur d'onde thermique de de Broglie de l'ordre de la distance entre atomes ou de la portée des interactions entre atomes), doit permettre l'observation expérimentale d'effets liés à l'indiscernabilité des atomes.

En effet, à l'équilibre thermodynamique et en l'absence de champ magnétique, les spins des atomes d'hélium-3 sont orientés de façon aléatoire. Si l'on aligne ces spins entre eux, on peut tester l'influence du principe de Pauli sur les propriétés macroscopiques du fluide d'hélium-3. Citons par exemple la modification des propriétés de transport du fluide (étude de la viscosité de l'hélium-3 polarisé...), l'effet de la polarisation nucléaire sur les propriétés du gaz d'hélium-3 (observation d'ondes de spin, conduction de la chaleur...) ou sur les diagrammes d'équilibre liquide/vapeur (mesure de la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 polarisé, présentée dans ce mémoire).

Reste qu'il faut être capables de produire expérimentalement de fortes polarisations nucléaires (de l'ordre de 50 %) dans l'hélium-3 liquide. Une technique de pompage optique dans le gaz suivi d'une liquéfaction de l'échantillon polarisé a été mise au point au laboratoire. Elle permet

l'obtention de forts taux de polarisation (jusqu'à 80 %) dans le gaz d'hélium-3 à température ambiante, puis dans le liquide à basse température et faible pression. Il convient toutefois de mentionner les méthodes couramment utilisées pour polariser l'hélium-3, dont la méthode dite de "brute force" qui requiert l'action conjuguée de très basses températures et de forts champs magnétiques. Ce procédé n'est efficace que pour l'hélium-3 solide ou en solution dans l'hélium-4 (pour de très faibles concentrations). Son domaine d'application reste donc limité. La méthode de fusion rapide, quant à elle, permet de fabriquer transitoirement, à partir d'un solide d'hélium-3 polarisé, de l'hélium-3 liquide polarisé. Dans tous les cas, il s'agit de méthodes nécessitant l'emploi de basses températures et de fortes pressions, qui donnent par conséquent des informations complémentaires des nôtres.

Notre travail a porté principalement sur l'étude de l'équilibre liquide/vapeur de l'hélium-3 polarisé (chapitre 2). Nous nous sommes intéressés en fait à l'étude expérimentale de la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 polarisé, quantité qui dépend fortement de la température. Il fallait donc un bon contrôle de la température de l'échantillon, ce qui nous a amenés à utiliser un cryostat à hélium-3 (décrit dans le chapitre 1) spécialement construit à cet effet. Nous commençons d'ailleurs par décrire la méthode d'obtention d'hélium-3 liquide polarisé dans ce même chapitre 1.

Parallèlement à cette étude thermodynamique de l'hélium-3 pur polarisé, nous nous sommes intéressés aux solutions d'hélium-3 dans l'hélium-4 (chapitre 3). Il s'agissait en fait d'une étude préliminaire du temps de relaxation longitudinale T_1 dans les mélanges .

Enfin, l'obtention, dans l'hélium-3 pur, de signaux RMN d'une grande richesse nous a amenés à nous intéresser de plus près aux effets d'affinement spectral observés. Les résultats expérimentaux sont présentés dans le chapitre 4. de même qu'une première tentative d'interprétation.

Chapitre 1

Montage expérimental

1.1 Préparation d'un gaz d'hélium-3 polarisé

1.1.1 Pompage optique de l'hélium-3

1.1.1.1 Principe

Il existe plusieurs méthodes qui permettent de polariser nucléairement l'hélium-3 en phase gazeuse. La plus simple dans son principe est probablement celle qui consiste à refroidir le gaz dans un champ magnétique élevé ; cependant, dans un champ de 10 Tesla et à une température de 1 K, la polarisation nucléaire d'équilibre n'est que de 1.55 %. Il existe heureusement des méthodes plus efficaces qui ne requièrent pas un champ magnétique élevé.

Dans l'ensemble de nos expériences, la méthode retenue est celle du pompage optique "indirect" via le niveau métastable 2^3S , mise au point par F.D. Colegrove, L.D. Schearer et G.K. Walters [Colegrove 63], dont le principe est le suivant : dans la cellule qui contient les atomes d'hélium-3, on entretient une faible décharge haute fréquence qui peuple divers états excités de l'atome d'hélium-3, dont le niveau métastable 2^3S . Le faisceau polarisé circulairement d'un laser est envoyé sur le gaz, parallèlement au champ magnétique de quelques Gauss dans lequel il est plongé (voir figure 1.1).

La longueur d'onde du laser choisi est $\lambda = 1.08 \mu\text{m}$ qui correspond à la transition entre le niveau 2^3S et le niveau 2^3P (voir figure 1.2).

On crée ainsi une orientation électronique de ces états excités. Par couplage hyperfin au sein de chaque atome, il en découle une orientation nucléaire. Celle-ci est finalement transmise aux

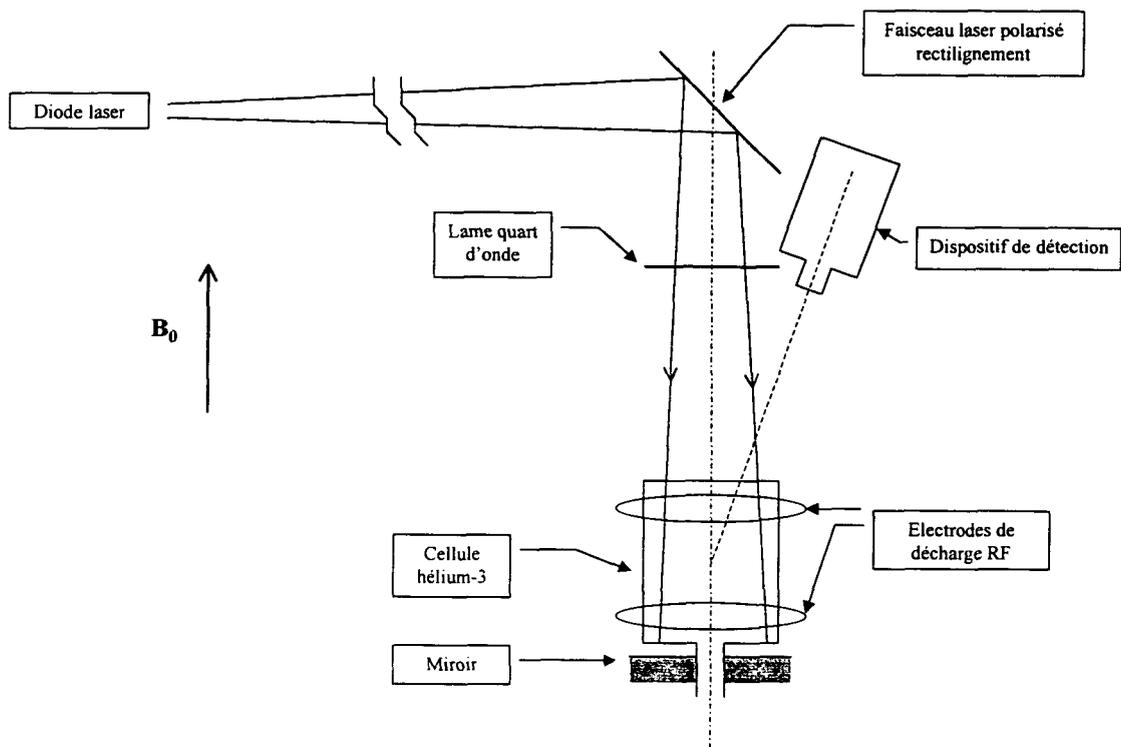


Figure 1.1: Vue schématique du dispositif de pompage optique. La cellule de verre contient de l'hélium-3. Une faible décharge RF est créée grâce à une haute tension appliquée aux électrodes externes. La lumière du faisceau laser incident ($\lambda = 1.083\mu m$) est polarisée circulairement par la lame quart d'onde. La polarisation de la lumière émise par la décharge est analysée par un polarimètre situé à un petit angle par rapport à la verticale (axe commun au faisceau laser et au champ magnétique). Le miroir placé sous la cellule permet d'augmenter l'absorption du faisceau laser par le gaz hélium-3.

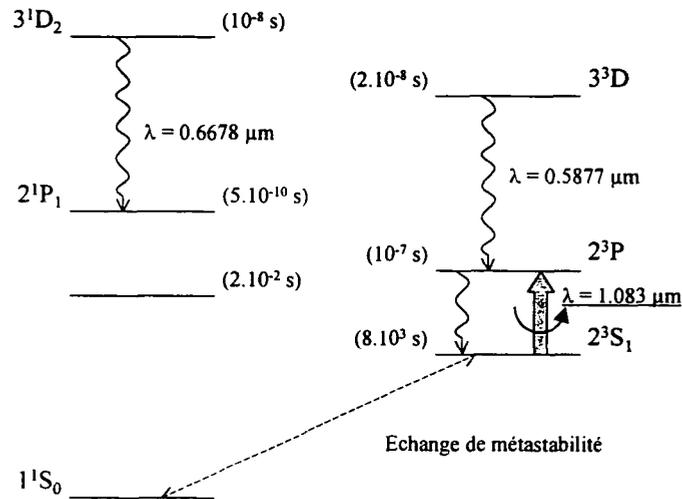


Figure 1.2: Schéma des premiers niveaux de l'hélium-3. On a indiqué leur durée de vie ainsi que la longueur d'onde de certaines transition.

atomes dans l'état fondamental 1^1S_0 lors des collisions d'échange de métastabilité (collisions entre les atomes respectivement dans les états métastable et fondamental).

1.1.1.2 Conditions expérimentales optimales

Intensité de la décharge Il y a compétition entre 2 processus : d'une part, plus la décharge radio-fréquence est intense, plus le niveau métastable 2^3S est peuplé ; mais d'autre part, une décharge intense génère une grande densité de sous-produits (électrons, ions...), ce qui augmente le nombre de collisions avec perte d'orientation nucléaire (une collision entre un de ces sous-produits et un atome dans l'état fondamental peut entraîner la perte de l'orientation nucléaire de ce dernier).

Il faut donc trouver un compromis entre une forte densité d'atomes métastables et une faible densité de produits de décharge. En pratique, le pompage optique est plus efficace pour une décharge faible, à la limite d'extinction.

Température Elle influence principalement le taux de collisions d'échange de métastabilité. En effet, l'ordre de grandeur de la section efficace de ces collisions diminue de plus de 2 ordres de grandeur entre 300 K et 4.2 K [Nacher 85]. Pour des raisons pratiques, le pompage optique sera réalisé à température ambiante et non à température plus élevée (où il a été démontré qu'il serait encore plus efficace [Nacher 87]) : il est déjà très performant à 300 K.

Taux d'impuretés dans la cellule Le temps de vie radiative des atomes métastables ($\sim 8.10^3$ s) peut être considérablement raccourci par les collisions contre les impuretés contenues dans la cellule. Pour limiter ce phénomène, toutes nos cellules sont soigneusement nettoyées et étuvées ce qui permet d'avoir un taux d'impureté inférieur à 10^{-6} .

En outre, toutes les impuretés résiduelles condensables sont en principe absentes du volume de pompage optique : nous verrons par la suite que nos cellules s'étendent jusqu'à des zones de très basse température, où les impuretés sont piégées.

Densité d'hélium-3 Plus la densité d'hélium-3 est faible, plus le temps caractéristique de diffusion vers les parois est rapide, et par conséquent, plus le taux de destruction des atomes métastables sur les bords de la cellule est important. A forte pression, au contraire, ce problème n'est plus essentiel mais, pour maintenir une proportion élevée de métastables, il faut une décharge RF énergique, donc plus relaxante qu'à faible ou moyenne pression. Il faut en fait un compromis entre un peuplement efficace du niveau métastable et une relaxation faible, d'où une pression moyenne.

En définitive, il a été montré [Nacher 87] que le pompage optique en bas champ magnétique était efficace pour une densité d'hélium-3 comprise entre 3.10^{15} et 3.10^{17} atomes par cm^3 , ce qui correspond pour une température de 300 K à une pression comprise entre 0.1 et 10 Torr. L'optimum d'efficacité se situe aux alentours de quelques 10^{16} atomes par cm^3 , c'est-à-dire une pression de l'ordre de 1 Torr à 300 K.

1.1.1.3 Source laser

Contraintes Compte tenu de la structure hyperfine des niveaux 2^3S et 2^3P de l'hélium-3, et des règles de sélection sur les nombres quantiques, le pompage optique sur l'hélium-3 peut être réalisé via 9 transitions possibles, nommées C_1, C_2, \dots, C_9 par ordre d'énergies croissantes (cf figure 1.3).

Des études théoriques et expérimentales antérieures ont montré que l'aimantation maximale du gaz était obtenue avec les raies C_8 et C_9 [Nacher 87]. Il convient donc d'avoir à notre disposition une source laser dont la fréquence puisse s'accorder avec les raies C_8 et C_9 .

Laser LNA Une telle source a été mise au point au laboratoire [Larat 91]. Il s'agit d'un laser solide LNA (LNA = $\text{La MgAl}_{11}\text{O}_{19}$ dopé au Néodyme) pompé par des lampes au krypton, qui délivre une puissance de l'ordre de quelques Watt sur tout le spectre de l'hélium. Sans élément sélectif interne (c'est-à-dire le barreau de LNA seul étant inséré dans une cavité courte entre miroirs plans), le laser émet un faisceau de longueur d'onde voisine de $1.08 \mu\text{m}$, et de largeur spectrale 100 GHz. Il s'agit donc en premier lieu de réduire cette largeur à la largeur Doppler des niveaux (~ 1 GHz), puis de régler la fréquence à une valeur choisie (fréquence correspondant aux raies C_8

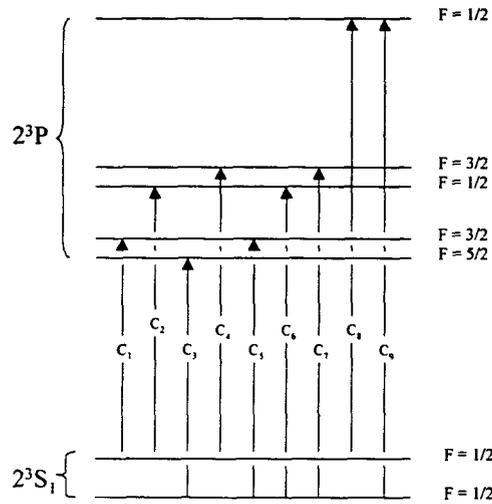


Figure 1.3: Niveaux 2^3S_1 et 2^3P de l'hélium-3. Structure hyperfine et transitions C_1 à C_9 pour l'hélium-3.

et C_9). Ceci est réalisé grâce à l'introduction de deux étalons de silice dans la cavité optique (un étalon dit "épais" d'épaisseur 1 mm, et un étalon dit "mince" d'épaisseur 0.25 mm (cf figure 1.4)). L'effet Fabry-Pérot des étalons, malgré le faible coefficient de réflexion de leurs faces ($R \approx 4\%$), est suffisant pour affiner la raie. Une légère inclinaison permet aux étalons d'agir comme éléments sélectifs. L'accord en fréquence est réalisé par contrôle de la température de chaque étalon.

Mais l'utilisation du laser LNA manque de souplesse et nécessite de fréquents réglages. En effet, l'étalon mince utilisé précédemment étant cassé, nous n'avons pas réussi à bien stabiliser le laser au moyen d'un nouvel étalon mince : il se produit systématiquement un saut de mode aux alentours de la longueur d'onde cherchée. C'est pourquoi nous avons largement utilisé les diodes lasers étudiées récemment au laboratoire dans le cadre du pompage optique pour réaliser la plupart de nos expériences ; ceci à chaque fois qu'une forte puissance n'était pas nécessaire.

Diodes laser Des diodes laser adaptées au pompage optique de l'hélium ont été récemment développées par Spectra Diode Laboratories [Major 93] ; elles peuvent délivrer une puissance maximale de 50 mW à la longueur d'onde de $1.083 \mu\text{m}$, avec une monochromaticité correcte (de l'ordre de quelques MHz) grâce à la technologie DBR (Distributed Bragg Reflection).

La fréquence d'une diode laser peut être continûment accordée sur toute la structure hyperfine des raies $2^3S \rightarrow 2^3P$ de l'hélium-3 ; cet accord sélectif est obtenu simplement en contrôlant la

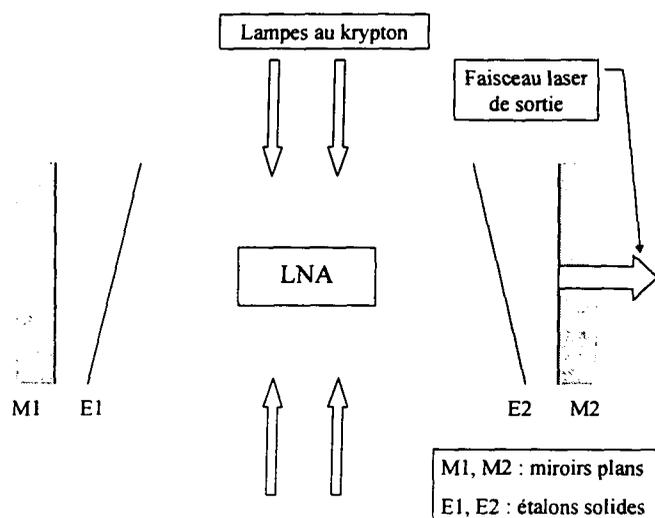


Figure 1.4: Schéma de principe du laser.

température de la diode grâce à un module à effet Peltier. On contrôle alors la température du milieu amplificateur (que constitue le matériau semi-conducteur) en même temps que celle de la cavité optique (formée par le réseau de Bragg situé à l'arrière de l'échantillon et la face avant de ce même échantillon) ; on peut ainsi continûment accorder la longueur d'onde de la diode, sans saut de mode, au rythme moyen de $0.8 \text{ \AA}/\text{K}$. Le faisceau émis est très divergent ; il est collimaté au moyen d'un objectif de focale 8 mm afin d'obtenir un faisceau presque parallèle, couvrant une assez grande surface de la cellule de pompage optique (faisceau elliptique de $0.7 \times 2 \text{ cm}^2$). Le faisceau de sortie étant linéairement polarisé, on utilise une lame quart d'onde pour obtenir une lumière circulairement polarisée.

Une étude des performances du pompage optique par diode laser, réalisée au laboratoire [Stoltz 96c], a montré que cette technique est très efficace bien que la puissance lumineuse soit modeste : des polarisations nucléaires de l'ordre de 50 % peuvent être atteintes dans l'hélium-3 pur (pour des pressions comprises entre 0.4 et 1.6 Torr). En effet, le pompage optique via l'état métastable 2^3S est un processus fortement non linéaire, et des puissances de l'ordre du milliwatt peuvent donner des polarisations significatives. La simplicité d'utilisation de ces diodes laser, par ailleurs peu encombrantes, disponibles commercialement, et peu chères en comparaison d'un laser LNA, nous a amenés à les utiliser à chaque fois qu'une forte puissance laser (et donc une forte aimantation) n'était pas nécessaire.

Amplificateur à fibre Dans le cadre de l'Imagerie par Résonance Magnétique développée au laboratoire, et afin d'améliorer les performances de pompage optique avec diode laser, un amplificateur à fibre (IRE-POLUS YAM 1083-500) a été acheté. Il s'agit d'une fibre de silice dopée à l'Ytterbium, qui sert de milieu amplificateur. Elle est injectée par une diode laser DBR communément utilisée au laboratoire ; ceci permet à la fois de profiter de la finesse d'accord en fréquence de la diode et en même temps d'obtenir de plus grandes puissances de sortie. La diode laser est couplée à la fibre au moyen d'un collimateur. Puis, après amplification, le faisceau est à nouveau collimaté. Pour obtenir une polarisation circulaire, on fait précéder la lame quart d'onde d'un cube polariseur.

L'ensemble utilisé est compact ($250 \times 150 \text{ mm}^2$) et ne nécessite qu'une alimentation 9 V/ 1.5 A, ce qui est une amélioration appréciable en comparaison du laser LNA encombrant, qui nécessite une alimentation 380V triphasé/ 20A et un circuit de refroidissement.

Cette nouvelle technique a permis d'obtenir facilement une puissance disponible de 0.5 W pour le pompage optique, et donc d'augmenter nettement la polarisation nucléaire ($\sim 45\%$ dans l'hélium-3 gazeux à 300 K, contre 20 % avec une diode laser seule ; ces résultats, plus faibles que ceux annoncés plus hauts, ont été obtenus dans la cellule expérimentale, qui contient bien plus de gaz que les petites cellules cylindriques antérieurement étudiées) [Chernikov 97].

1.1.1.4 Détection optique de la polarisation

La mesure de la polarisation nucléaire obtenue par pompage optique dans un gaz d'hélium-3 peut être réalisée en utilisant des méthodes optiques [Bigelow 92]. La plus simple de ces méthodes consiste à mesurer le taux de polarisation circulaire de la lumière émise par le gaz (voir figure 1.1). En effet, une décharge étant utilisée pour peupler l'état métastable 2^3S sur lequel opère le pompage optique, différents niveaux excités sont peuplés eux aussi et diverses raies spectrales de l'hélium sont émises par le gaz.

La polarisation circulaire de la lumière émise par la décharge est analysée au moyen d'un nouveau dispositif qui se substitue à l'ancien, qui était constitué d'un photomultiplicateur et d'un polarimètre tournant continûment [Laloë 70]. Le dispositif actuel (cf figure 1.5), amagnétique, plus compact, et qui ne nécessite pas d'air comprimé, consiste en une lame quart d'onde suivie d'un cube séparateur C. La lame quart d'onde est tournée d'un angle 45° par rapport aux cotés du cube polariseur, de sorte que toute la lumière incidente polarisée circulairement est soit transmise, soit réfléchi à 90° par le cube [Stoltz 96b].

La lumière provenant de la région centrale de la cellule à décharge est focalisée sur 2 photodiodes D_t et D_r . Un filtre interférentiel, disposé avant la lentille de focalisation, sélectionne une raie de fluorescence (le plus couramment, la raie rouge à 667.8 nm de l'hélium-3 : $3^1D \rightarrow 2^1P$ (cf

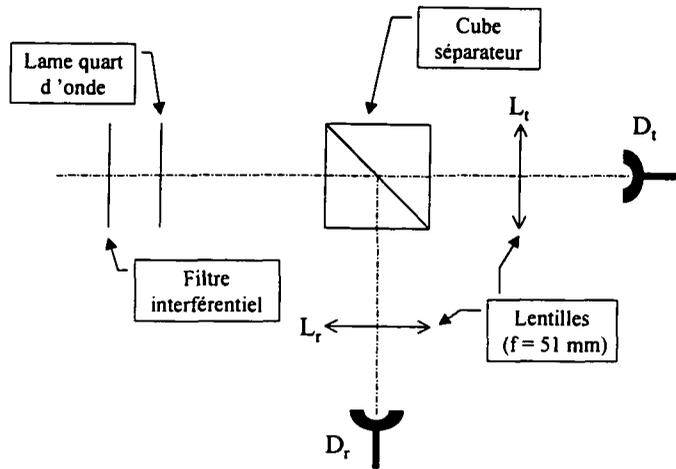


Figure 1.5: Principe de la détection optique : les lentilles L_t et L_r focalisent l'image du centre sur les photodiodes D_t et D_r .

figure 1.2)). Les deux photodiodes détectent donc respectivement les composantes de polarisation σ_+ et σ_- de la raie sélectionnée.

Le taux de polarisation lumineuse P que nous souhaitons mesurer est :

$$P = \frac{I(\sigma_+) - I(\sigma_-)}{I(\sigma_+) + I(\sigma_-)} \quad (1.1)$$

où $I(\sigma_+)$ (respectivement $I(\sigma_-)$) est l'intensité de la lumière polarisée σ_+ (respectivement σ_-) émise par la décharge. Un circuit électronique simple permet de mesurer directement des signaux proportionnels à la somme (Σ) et à la différence (Δ) des courants des 2 photodiodes. Dans le cas idéal de composants électroniques et optiques parfaits, le taux de polarisation P serait simplement donné par : $P = \frac{\Delta}{\Sigma}$.

En pratique, divers défauts, qui ont été étudiés dans la thèse d'Eric Stoltz, interviennent. Nous en tiendrons compte en appliquant un facteur ε variant entre 0.93 et 0.96 [Stoltz 96a] tel que : $\varepsilon(P) \times P = \frac{\Delta}{\Sigma}$. On en déduit alors le taux de polarisation nucléaire M de l'état fondamental par la formule suivante : $M = a(P) \times P$, où $a(P)$ est un facteur dépendant de la pression d'hélium-3 [Bigelow 92].

1.1.2 Les doubles cellules

Notre méthode de préparation d'un échantillon liquide d'hélium-3 polarisé repose sur l'action successive du pompage optique de l'hélium-3 en phase gazeuse, qui permet d'accumuler des noyaux d'hélium-3 dans un état de spin déterminé, et d'un refroidissement, dont l'effet est de provoquer la liquéfaction d'une partie de l'échantillon.

Nous venons de voir que pour plus d'efficacité, le pompage optique doit être effectué à 300 K. Il n'est pas possible dans ces conditions de refroidir la cellule de 300 K à 0.5 K en un temps inférieur au temps de relaxation de l'aimantation !

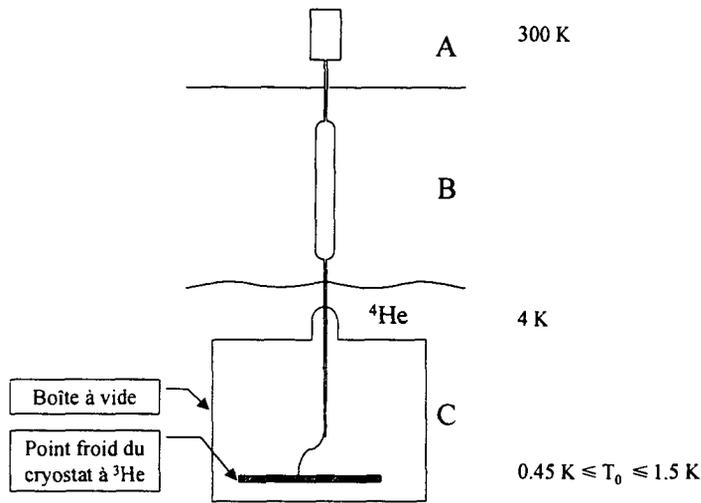


Figure 1.6: Schéma simplifié de l'ensemble expérimental.

C'est pourquoi la méthode mise au point de longue date au laboratoire pour préparer l'échantillon d'hélium-3 liquide polarisé utilise une longue cellule scellée (cf figure 1.6) [Tastevin 88]. Dans la partie supérieure de la cellule (volume A) que nous appellerons la "tête", et qui est située à 300 K, les atomes d'hélium-3 sont soumis au pompage optique. Ils diffusent à travers un long tube de verre via un gros réservoir (volume B) (sur lequel nous reviendrons plus loin) vers le bas de la cellule scellée (volume C), volume destiné à contenir l'hélium-3 liquide polarisé. Le bas de la cellule est ancré thermiquement au point froid du cryostat à hélium-3. C'est ce volume que nous désignerons par la suite sous le nom de "cellule expérimentale".

1.1.2.1 Caractéristiques géométriques

Les premières expériences portant sur la mesure de la pression de vapeur saturante ont été effectuées dans des cellules scellées (cellules n°1, 2 et 3). Puis, devant les problèmes de contamination du gaz auxquels nous avons été confrontés, ces cellules ont été légèrement modifiées pour permettre le changement du gaz d'hélium-3 ; nous avons muni leur tête d'un robinet en pyrex graissé à l'apiezon H dont nous savions par expérience qu'il ne gênait pas le pompage optique (cellules n° 4 et 5).

Quant aux expériences portant sur le mélange hélium-3/hélium-4, antérieures aux connaissances acquises sur les cellules à robinet, elles ont été réalisées dans une cellule scellée.

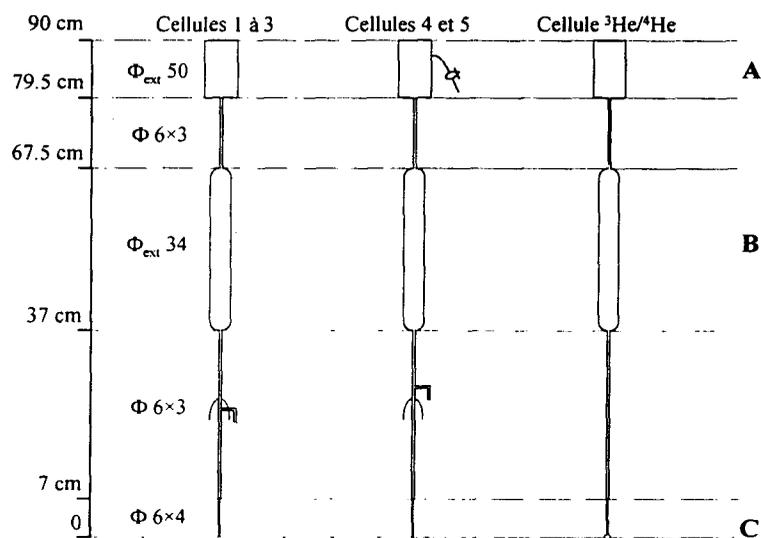


Figure 1.7: Schéma des doubles cellules utilisées.

Toutes ces cellules ont été fabriquées en pyrex (cf figure 1.7) ; elles comportent un volume de pompage optique à température ambiante de forme cylindrique de 5 cm de diamètre et 10.5 cm de hauteur, un gros réservoir cylindrique lui aussi, de diamètre 3.4 cm et de hauteur 30 cm connecté à la tête par un tube de diamètre intérieur 0.3 cm et de longueur 12 cm .

Sous le réservoir, la cellule se termine par un long tube scellé, de diamètre intérieur 3 mm sur les 30 premiers centimètres, puis 4 mm sur les 7 derniers centimètres ; cette augmentation du diamètre intérieur, le diamètre extérieur restant constant, permet, en affinant la paroi de verre, d'améliorer le contact thermique entre l'hélium-3 contenu dans la cellule et le cryostat. La longueur totale de la cellule est de 90 cm.

Les quatre premières cellules destinées à mesurer la pression de vapeur saturante de l'hélium-3, comportent en plus sous le réservoir un coude en pyrex qui relie un capteur de pression (voir partie

2) à la cellule expérimentale.

Nous verrons plus tard (partie 2 toujours) que les problèmes de contamination du césium et du gaz d'hélium-3 ont été contournés en ne laissant plus le capteur de pression dans la partie basse de la cellule (où la présence du bain d'hélium-4 le maintenait à température constante), mais en le reliant au "bec" formé sur la "tête" de la cellule par le robinet, ce qui présente l'avantage de ne le laisser en contact avec le gaz d'hélium-3 que lors des quelques minutes que dure une expérience de mesure de pression de vapeur saturante.

Enfin, la cellule scellée contenant le mélange d'hélium-3/hélium-4 possède une cellule expérimentale en forme de boule de diamètre 6 mm et non pas un simple cylindre scellé.

1.1.2.2 De l'intérêt du gros réservoir

On peut envisager de polariser le liquide par échange diffusif avec le gaz orienté optiquement à température ambiante. Mais le déséquilibre entre les nombres d'atomes concernés est grand : d'une part, le gaz soumis au pompage optique à 300 K sous une pression de l'ordre du Torr a une densité égale à 10^{16} at/cm³ ; d'autre part, les atomes situés dans la cellule expérimentale à 0.5 K, ont une densité de vapeur voisine de $5.2 \cdot 10^{18}$ at/cm³ et une densité liquide de $1.7 \cdot 10^{22}$ at/cm³. Quelle que soit l'efficacité des transferts entre les différentes parties de la cellule et entre liquide et gaz, on voit qu'il sera impossible de polariser une quantité suffisante de liquide, compte tenu de son T_1 ($T_1 \sim 5$ min pour de l'hélium-3 pur liquide autour de 500 mK et ~ 20 min pour notre mélange hélium-3/hélium-4. dans cette même gamme de température). Il suffit pour s'en convaincre d'estimer le temps de diffusion à travers un tube de longueur 30 cm et de faible diamètre (4 mm) situé à basse température (1 K pour sa partie basse à 20 K pour sa partie haute) : ce temps est de l'ordre de quelques 50 minutes !

On choisit donc de polariser le gaz en maintenant tout l'hélium-3 sous forme de vapeur (c'est-à-dire en maintenant le volume C à environ 1 K), afin d'augmenter le nombre d'atomes dans les volumes utiles au pompage optique et à la construction de l'aimantation dans le gaz (c'est-à-dire A et B), puis de le refroidir rapidement pour obtenir la condensation de l'hélium-3 là où on veut étudier le liquide polarisé (volume C).

Pour augmenter la proportion d'hélium-3 polarisé, il faudrait soit maintenir la cellule expérimentale à une température bien supérieure à 1 K (mais ce n'est pas réalisable si l'on veut refroidir rapidement l'hélium-3 à 0.5 K par la suite), soit avoir un volume susceptible de contenir des atomes d'hélium-3 polarisés plus grand. C'est dans cette optique que nos cellules contiennent un grand réservoir (B) de gaz fortement polarisé ; il n'est en effet pas possible d'augmenter la taille de la tête de la cellule pour des raisons d'encombrement.

Les atomes d'hélium-3 diffusent de la "tête" A vers B (dont la température est comprise entre 20 K pour sa partie basse et 150 K pour sa partie haute) en 2 minutes seulement. D'autre part, le gros réservoir est un cylindre de 3.4 cm de diamètre, dans lequel le temps de relaxation longitudinal T_1 vaut plusieurs dizaines de minutes. Ces conditions permettent d'accumuler du gaz d'hélium-3 polarisé dans le réservoir B, lui-même très mal "connecté" à la cellule expérimentale C : les temps caractéristiques de diffusion entre B et C (le tube situé entre B et C ayant une température comprise entre 1 K et 20 K), de l'ordre de 50 min, sont suffisamment longs pour que la construction de l'orientation nucléaire dans B ne soit pas gênée par la présence de C.

On voit qu'on dispose ainsi d'une grande réserve d'hélium-3 polarisé. Il suffit alors de refroidir rapidement C jusqu'à 0.5 K pour liquéfier ces atomes d'hélium-3. Après les mesures, il suffira de réchauffer C pour évaporer le liquide condensé dans la cellule et préparer un nouvel échantillon.

P.J. Nacher et G. Tastevin ont montré l'efficacité de cette technique de préparation d'hélium-3 liquide polarisé [Tastevin 92a]: ils ont pu obtenir du liquide pur à 450 mK, aimanté à 50 %.

Remarques :

(i) Les temps de diffusion sont calculés en tenant compte des caractéristiques géométriques d'une cellule type et de la carte des températures le long de cette cellule, mesurée expérimentalement.

(ii) Cette même carte de température nous permet de calculer la proportion d'atomes situés sous le ventre, et donc non polarisés avant le refroidissement : elle est typiquement de l'ordre de 10 % pour une cellule à hélium-3 pur et 20 % pour la cellule hélium-3/hélium-4. Ceci veut dire que l'aimantation maximale dans le liquide sera de 90 % (respectivement 80 %) celle obtenue initialement dans le gaz. Ces pertes incontournables de l'aimantation lors du processus de liquéfaction sont tout à fait raisonnables.

1.1.2.3 Remplissage des cellules

De nombreuses précautions sont prises au moment du soufflage, nettoyage et remplissage des cellules, car il est nécessaire que la surface interne de la cellule soit initialement aussi propre que possible : en effet, les impuretés de type magnétique contenues dans le pyrex peuvent conduire à la perte de l'orientation d'un atome lorsque celui-ci rencontre une paroi.

Toutes les cellules scellées ont été remplies par J. Brossel, après plusieurs jours d'étuvage dans un four à 200 °C sous vide poussé ($P \leq 10^{-6}$ mbar). C'est la température maximale que nous pouvons nous permettre à cause de la présence d'un réservoir de césium en verre connecté à la cellule (le réservoir permettra d'introduire une petite quantité de césium dans la cellule après nettoyage de celle-ci ; son rôle sera décrit dans un paragraphe spécifique(1.1.2.4)). Dans le cas des cellules contenant un capteur, la partie basse de la cellule n'a pas été étuvée afin de ne pas

soumettre le capteur à de trop hautes températures. Après étuvage, la cellule est remplie d'hélium-3 (autour d'1 mbar), soumise à des décharges hautes fréquences (GHz) intenses, et vidée. Cette dernière procédure est répétée plusieurs fois ; puis le césium est introduit dans la cellule, suivi de l'échantillon gazeux d'hélium-3. La cellule est alors scellée.

Quant aux cellules à robinet, elles ont été étuvées et remplies dans le laboratoire même : des fils chauffants répartis autour de la cellule et entourés de papier aluminium maintiennent la cellule à une température de l'ordre de 200 °C (plutôt plus au niveau de la tête, et moins au niveau du réservoir à césium, du capteur de pression et du robinet), sous vide. Après 3 à 4 jours, la pression de la pompe étant inférieure à 10^{-6} mbar, la cellule est remplie d'hélium-3 (autour d'1 mbar), soumise à des décharges hautes fréquences intenses et vidée plusieurs fois ; puis le césium est introduit dans la cellule, suivi de l'hélium-3. Le robinet de la cellule est alors fermé, et la cellule détachée du banc de remplissage.

Les quantités introduites répondent à 2 exigences principales : d'une part, comme on l'a vu, le pompage optique dans l'hélium-3 pur est optimal pour des pressions inférieures au mbar ; d'autre part, la gamme de températures disponibles pour l'étude de l'hélium-3 liquide polarisé et la quantité d'atomes d'hélium-3 dans la phase liquide sont d'autant plus grands que le nombre d'atomes d'hélium-3 présents dans la cellule est grand. C'est pourquoi nous avons choisi de remplir nos cellules d'hélium-3 pur sous 4 Torr (cellules n° 3 à 5) ou sous 3 Torr (cellules n° 1 et 2) à 300K, c'est-à-dire d'introduire respectivement 100 μmol ou 75 μmol .

Les quantités d'hélium-3 introduites au moment du remplissage à température ambiante sont telles qu'elles donnent, lorsque la cellule est placée dans le cryostat et que tout l'hélium-3 est maintenu sous forme de gaz (la température de la cellule expérimentale étant alors de 1 K), de bonnes conditions pour le pompage optique : une pression de remplissage de 4 Torr correspond dans nos conditions expérimentales (compte tenu de la carte des températures le long de la cellule) à une pression de 0.9 Torr lors du pompage optique, ce qui est un bon compromis. La liquéfaction interviendra alors pour une température du bas de la cellule de l'ordre de 630 mK, ce qui correspond à une pression de vapeur saturante de 0.72 Torr (égale à la pression de vapeur sèche pour la température considérée). Le volume de l'échantillon liquide sera de quelques mm^3 (environ 3 mm^3) à 500 mK.

En ce qui concerne la cellule à mélange hélium-3/hélium-4, dans laquelle nous avons seulement cherché à mesurer le temps de relaxation longitudinal T_1 et pour laquelle le pompage optique n'était pas crucial, 270 μmol , dont 20 % d'hélium-3 ont été introduites. Ce qui correspond à une pression totale acceptable, de l'ordre de 2 Torr, pour le pompage optique, en même temps qu'à une quantité d'hélium-3 polarisé suffisante pour nos mesures de RMN.

1.1.2.4 L'enduit de césium

Les interactions de Van der Waals attractives entre l'hélium et la paroi induisent des temps de séjour en phase adsorbée d'autant plus longs que la température est basse. La relaxation sur les parois devient alors très forte à basse température. Afin de diminuer les interactions de Van der Waals, et en raison de son caractère faiblement liant, un film de césium est déposé sur les parois. Le césium se substitue maintenant à l'hydrogène moléculaire précédemment employé dans ce but [Tastevin 87][Lefevre 85] (les deux techniques utilisées sont très efficaces pour inhiber la relaxation des spins nucléaires sur les parois de la cellule, mais l'utilisation d'hydrogène moléculaire est plus délicate à mettre en oeuvre).

Comme nous l'avons vu précédemment, la cellule est scellée (ou son robinet fermé) après qu'on ait introduit la quantité déterminée d'hélium-3 ou d'hélium-3/hélium-4, ainsi qu'une petite quantité de césium. Le césium est fondu et mis en contact avec toutes les parois intérieures de la cellule (hormis la "tête" de la cellule qui sera maintenue à 300 K et où on ne craint donc pas la relaxation sur les parois), avant d'être "rangé" dans son petit réservoir situé sur le côté du gros réservoir B. Ce traitement permet le dépôt d'un film très mince de césium sur les parois de la cellule qui demeure transparente.

Un film très mince de césium est ainsi déposé sur les parois de la cellule ; l'échantillon gazeux à basse température n'est alors plus en contact qu'avec des parois traitées au césium. L'expérience a montré que ce type de surface provoque de faibles taux de relaxation de surface de l'aimantation [Tastevin 92b].

1.2 Description du réfrigérateur à hélium-3

Des mesures préliminaires de pression de vapeur saturante [Tastevin 94] ont montré la nécessité de disposer d'un réfrigérateur suffisamment stable en température pour des températures voisines de 0.5 K. En effet, il s'agit de mesurer la pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation, à température donnée ; comme la pression de vapeur saturante du liquide varie très vite en fonction de la température, celle-ci doit être parfaitement stable (à une température T de 480 mK, un écart de 1 mK, soit 0.2 %, correspond à un écart relatif en pression de 2 %). C'est pourquoi la construction d'un nouveau réfrigérateur à hélium-3 a été entreprise au laboratoire.

La principale modification de principe apportée concerne la connexion thermique de la cellule : alors qu'auparavant [Tastevin 87] la cellule trempait directement dans un bain de liquide cryogénique (hélium-3), ce sont des fils de cuivre qui vont maintenant assurer l'ancrage thermique de la cellule à la partie la plus froide du réfrigérateur (à savoir une plaque de cuivre). La température

limite de l'échantillon risque d'être plus élevée à cause du moins bon contact thermique, mais nous n'avons plus de problème de gradient thermique (dans le cas d'un bain d'hélium-3 dans lequel trempeait la cellule, le volume de liquide cryogénique était nécessairement assez important et, comme l'on pompait à la surface du liquide pour le refroidir, il se créait de la convection au sein du liquide : la température n'était pas uniforme). De plus, du fait que nous avons un plus petit volume de liquide cryogénique à refroidir, l'inertie thermique est nécessairement meilleure.

Une contrainte majeure à respecter lors de la conception de l'ensemble expérimental est qu'il soit aussi peu magnétique que possible pour ne pas déformer la carte de champ B_0 régnant sur la cellule (voir paragraphe 1.3.1). Cette contrainte imposait une réalisation "sur mesure" au laboratoire, car les réfrigérateurs commerciaux font un large usage de matériaux magnétiques.

Dans la mesure du possible, nous n'avons utilisé que des matériaux peu magnétiques (cuivre, laiton, verre, dural, inox mince (beaucoup moins magnétique que l'inox massif), cupro-nickel, plastiques...). Lorsque l'utilisation de matériaux magnétiques (en particulier pour les soudures indispensables, telle la boîte à vide en inox mince, soudée sur toute sa longueur et brasée sur un anneau de cuivre) ne peut être évitée, ceux-ci sont éloignés au maximum de la cellule.

D'autre part, l'utilisation de cellules de verre scellées demande que l'ensemble du dispositif soit démontable. En particulier, le réfrigérateur comportera nécessairement une partie en verre et un raccord verre/métal, sur le modèle de l'ancien réfrigérateur.

Enfin, étant donnée la constante de temps de relaxation longitudinale de l'aimantation ($T_1 \sim 5$ min), le réfrigérateur doit posséder une forte puissance frigorifique et une faible inertie thermique (pour atteindre en un temps inférieur à T_1 la température requise), mais une faible quantité d'hélium doit suffire pour une expérience d'assez courte durée (quelques T_1 typiquement).

1.2.1 La partie hélium-4/azote

1.2.1.1 Vase cryogénique

Le vase est nouveau : nous avons substitué aux anciens vases à liquide cryogénique en verre un vase fabriqué par Precision Cryogenics Systems, qui est totalement amagnétique puisque réalisé en aluminium et fibre de verre. Il est en fait constitué de deux vases : la vase à azote et celui à hélium-4, les deux compartiments étant isolés par du vide. La garde d'azote permet une grande économie d'hélium-4 lors du refroidissement de l'expérience. L'autonomie entre 2 transferts d'hélium successifs, lorsque le cryostat est en route, atteint 72 heures.

La mesure du niveau d'hélium-4 est réalisée au moyen d'un fil supraconducteur en nobium-titane [Cornut 93]. Ce fil, introduit dans une fente réalisée dans une baguette d'altuglas, est fixé verticalement dans le vase à hélium-4. A 4.2 K, le nobium-titane est supraconducteur. Aussi, la

portion de fil immergé dans l'hélium-4 ne présentera aucune résistance électrique. La mesure de la résistance du fil, qui varie par conséquent avec le niveau d'hélium-4, permet de connaître ce niveau (cf figure 1.8).

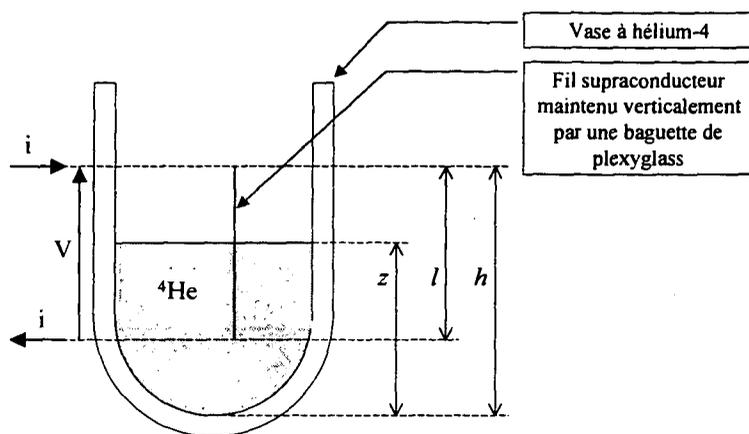


Figure 1.8: Principe de la mesure du niveau d'hélium-4 cryogénique : $V = (h-z).i.R/l$, avec R résistance totale du fil supraconducteur et l sa longueur totale.

En pratique, $i = 80$ mA. La mesure de V donne z , niveau d'hélium-4.

1.2.1.2 La boîte à vide

Elle est indispensable pour isoler thermiquement le cryostat à helium-3 du bain d'hélium-4 environnant ; elle permet en outre que le niveau du bain d'hélium-4 n'influe pas sur la carte de température à l'intérieur de la boîte à vide, où se situe la cellule expérimentale (cf figure 1.9).

Elle consiste en un cylindre d'inox à fond bombé (de hauteur 127 mm et de diamètre 110 mm), brasée sur un large anneau en cuivre. Un joint d'indium inséré entre la partie supérieure de cet anneau et un couvercle également en cuivre assure l'étanchéité entre l'intérieur de la boîte à vide et l'hélium-4 cryogénique environnant.

Le passage de la cellule en verre dans la boîte à vide métallique requiert inévitablement un raccord verre-métal ; pour des raisons d'amagnétisme, et de jonction avec le couvercle en cuivre de la boîte à vide, un raccord verre-cuivre de diamètre 34 mm, collé au stycast 1266, est utilisé. Le rôdage de la cellule s'emboîte dans la partie en verre du raccord. L'étanchéité est assurée grâce à un gel glycérine-savon (mélange composé de 15 % en masse de savon de la marque Ivory). Cette

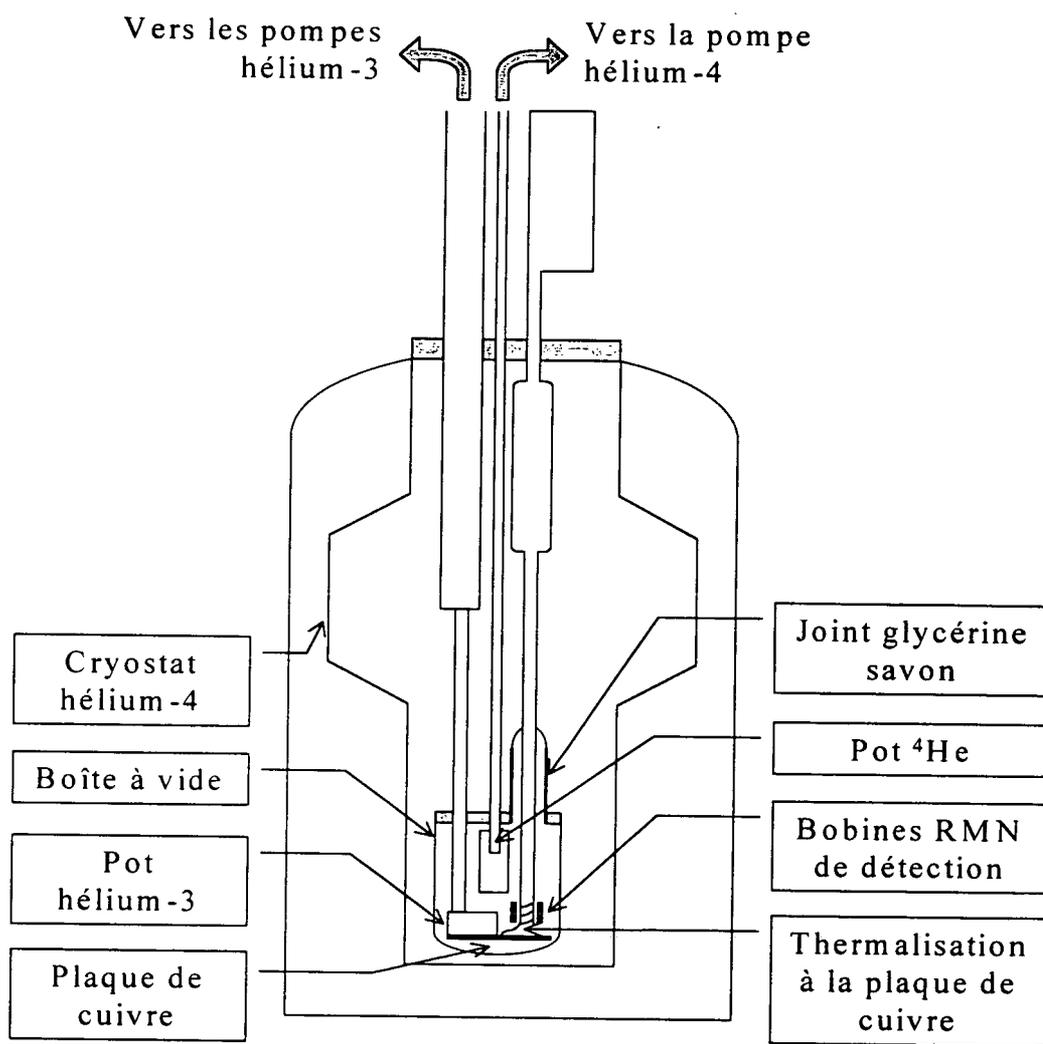


Figure 1.9: Vue d'ensemble des vases cryogéniques et de la boîte à vide.

double technique (joint d'indium et collage glycérine-savon) permet l'ouverture de la boîte à vide et un changement facile de la cellule en verre (cf figure 1.10).

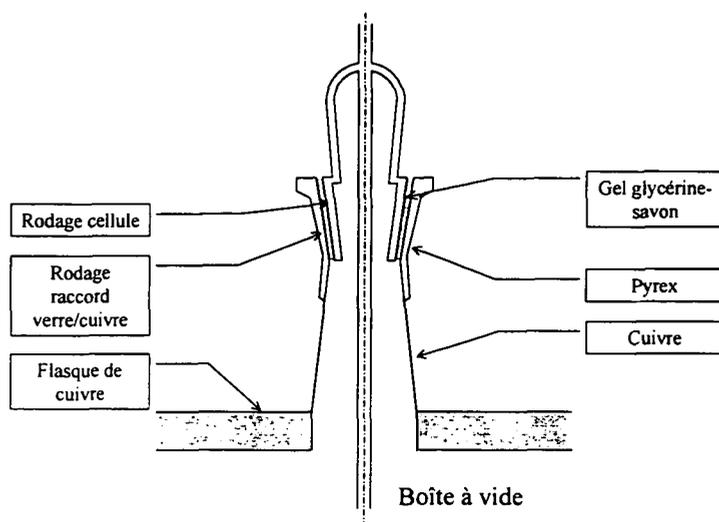


Figure 1.10: Détail du passage de la cellule entre le bain d'hélium-4 et la boîte à vide.

Pendant le transfert d'hélium-4 dans le vase cryogénique, la boîte à vide est remplie de quelques Torr d'hélium-4 afin d'assurer une meilleure conductivité thermique, donc de prérefroidir jusqu'à 4.2 K l'ensemble des matériaux contenus. Puis le vide est fait définitivement au moyen d'une pompe à diffusion. La présence de charbons (préalablement dégazés quelques minutes à 20 K) permet d'améliorer notablement ce vide, en absorbant les particules de gaz restant à ces basses températures.

Tous les tubes et fils électriques entrent dans la boîte à vide par le couvercle de celle-ci. Les fils électriques sont amenés dans des tubes qui partent du "chapeau" du cryostat (situé à température ambiante) où l'étanchéité est effectuée grâce à de la colle époxy (Stycast 2850 FT)(cf figure 1.11)

1.2.1.3 Le pot à hélium-4

Il consiste en un réservoir creusé dans un bloc de cuivre situé dans la boîte à vide (cylindre de hauteur 70 mm et de diamètre 11.5 mm), qui servira de thermalisation. L'injection d'hélium-4 liquide provenant du bain à 4.2 K environnant se fait par un tube capillaire en cupro-nickel. L'extrémité du capillaire est écrasée pour obtenir une impédance de détente optimale. Un compromis doit être choisi : un fort débit donne une grande puissance frigorifique, mais aussi une pression limite élevée, donc une température limite plus grande (Nous utilisons un capillaire écrasé dont le débit

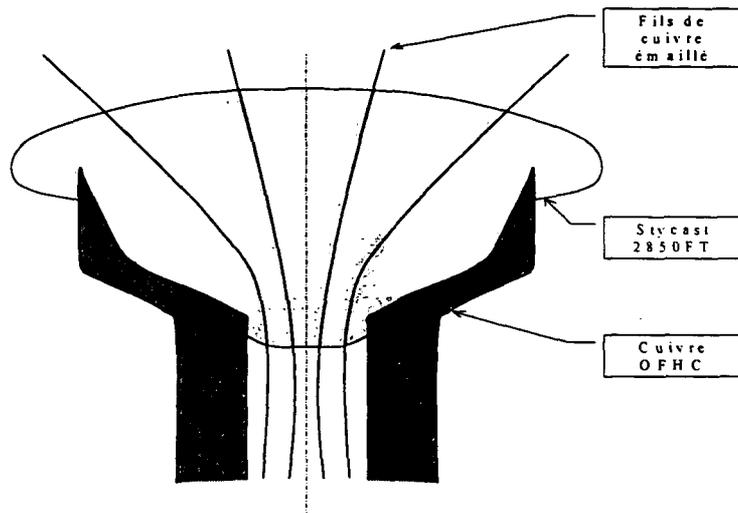


Figure 1.11: Passage de fils étanche pour le cryostat à hélium-3.

mesuré à température ambiante vaut 1.2 cm^3 d'air par minute pour une différence de pression $\Delta P = 500 \text{ mbar}$. A froid, la puissance frigorifique correspondante est égale à 10 mW).

L'hélium-4 est alors aspiré, ce qui diminue la température à une valeur de l'ordre de 1.2 K en régime permanent. Pour éviter que des impuretés provenant du bain principal d'hélium-4 ne bloquent le capillaire écrasé, nous avons placé un filtre (composé de cuivre fritté) en amont du capillaire (cf figure 1.12).

Le pot à hélium-4 sert d'étape intermédiaire pour le refroidissement : tous les fils menant au réfrigérateur à hélium-3 seront d'abord thermalisés à son contact, de même que les tubes contenant l'hélium-3.

1.2.2 Le réfrigérateur à hélium-3

L'hélium-3 gazeux (après avoir été prérefroidi dans le bain d'hélium-4, et débarrassé de ses impuretés dans des frittés de cuivre présents sur la ligne d'hélium-3) est tout d'abord refroidi et liquéfié au contact du pot à hélium-4 ($T = 1.2 \text{ K}$) ; puis il s'écoule jusqu'au pot à hélium-3, où il est pompé afin d'être refroidi entre 1.2 K et 0.4 K . Afin de pouvoir varier la température limite, on dispose de 2 lignes d'injection d'hélium-3 indépendantes qui aboutissent au pot à hélium-3. Elles consistent en 2 tubes de diamètres $1 \times 1.5 \text{ mm}$ et de diamètres $0.4 \times 0.7 \text{ mm}$.

Plutôt que de thermaliser le flux d'hélium-3 au pot à hélium-4 en enroulant les injections autour du pot, cette thermalisation se fait dans des réservoirs indépendants creusés dans le bloc de

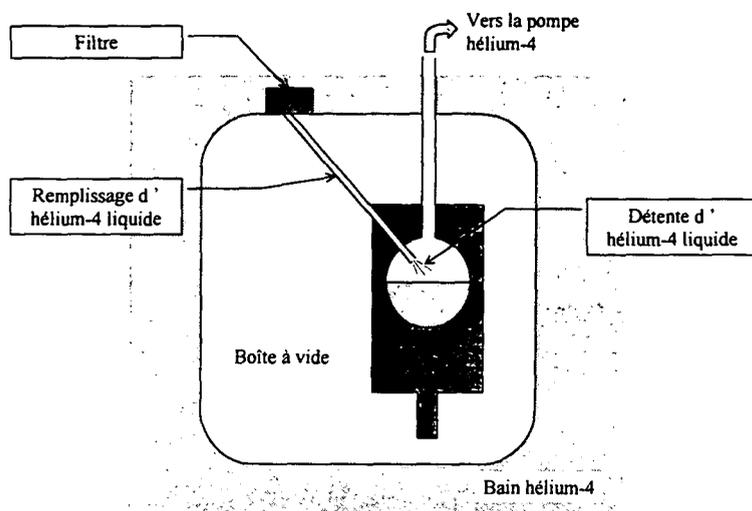


Figure 1.12: Pot à hélium-4.

cuivre qui constitue le pot à hélium-4 (cf figure 1.13). On augmente ainsi la surface de contact de thermalisation.

Les injections arrivent enfin au pot à hélium-3. Celui-ci est un cylindre de cuivre fermé, percé sur sa face supérieure par la ligne de pompage et les deux injections. Sa base est rainurée, ce qui forme des plots ou créneaux (de hauteur 3 mm et de surface 5 mm^2). Ceci permet d'augmenter la surface de contact du liquide d'hélium-3 avec le cuivre. Cette base est elle-même solidaire d'une plaque de cuivre d'épaisseur 2.5 mm et de diamètre total 87 mm, percée de trous de diamètre 3.2 mm sur lesquels viendront s'ancrer tous les éléments (la cellule expérimentale en particulier) maintenus au plus froid. La plaque de cuivre et tous les éléments de thermalisation au point froid ont été passivés par une dorure électrochimique (Dorure 50 de Dalic) afin d'éviter la formation d'oxydes qui gêneraient la thermalisation.

Le réfrigérateur à hélium-3 peut être utilisé en continu (en faisant recirculer l'hélium-3) ou en interrompant l'injection d'hélium-3 (ce qui permet d'atteindre des températures plus basses). Le circuit d'hélium-3 est en effet un circuit fermé (cf figure 1.14). La partie extérieure au cryostat comporte 2 pompes qui ont été légèrement modifiées afin de les rendre étanches à l'hélium-3 : une pompe Alcatel $60 \text{ m}^3/\text{h}$ (modèle 2063) et une pompe Alcatel $15 \text{ m}^3/\text{h}$ (modèle Pascal 15) placées en parallèle ; le choix de l'une ou l'autre (voire les 2 en même temps) de ces pompes permet de varier la puissance frigorifique. La puissance maximale obtenue est de l'ordre de 1 mW à 0.5 K.

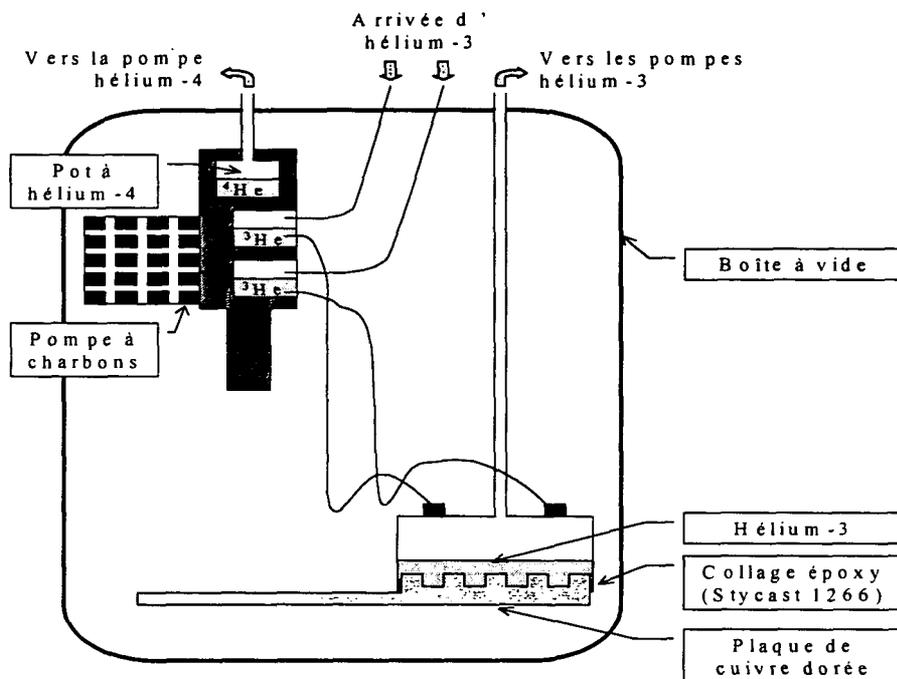


Figure 1.13: Thermalisation de l'hélium-3 au contact du pot à hélium-4 ; pot à hélium-3.

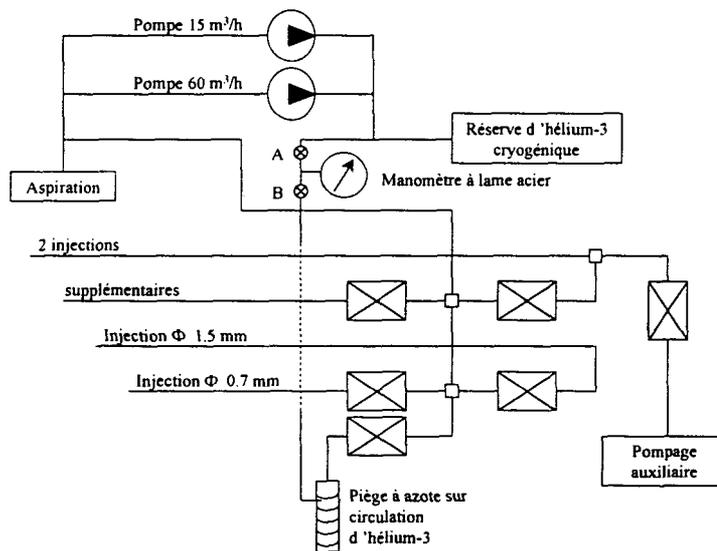


Figure 1.14: Circuit externe de circulation de l'hélium-3 cryogénique.

1.2.3 Dispositif de thermalisation de la cellule en verre

Les contacts thermiques dans la boîte à vide sont réalisés de la façon suivante : un faisceau de fils de cuivre (8 fils de cuivre de diamètre 1 mm chacun afin de garder assez de souplesse) brasés à l'autre extrémité sur un petit cylindre de cuivre doré entoure la cellule sur environ 1 cm. Un enduit de vernis GE 7031 (General Electric) améliore le contact thermique au niveau de la cellule. A l'autre bout, le cylindre de cuivre, percé pour sa fixation, est fortement vissé sur l'élément froid de référence (plaque de cuivre, pot à 1 K ou plaque à 4 K).

La cellule est tout d'abord reliée thermiquement (dès son entrée dans la boîte à vide) au flasque ($T = 4.2$ K), puis au pot à 1.2 K afin d'absorber une partie de la chaleur amenée par le pyrex vers la cellule expérimentale (cf figure 1.15). Ce contact favorise une plus faible température finale de l'échantillon liquide polarisé. Enfin, au niveau de la cellule expérimentale, un faisceau de fils de cuivre thermalise la zone d'étude à la plaque de cuivre (point froid du réfrigérateur à hélium-3).

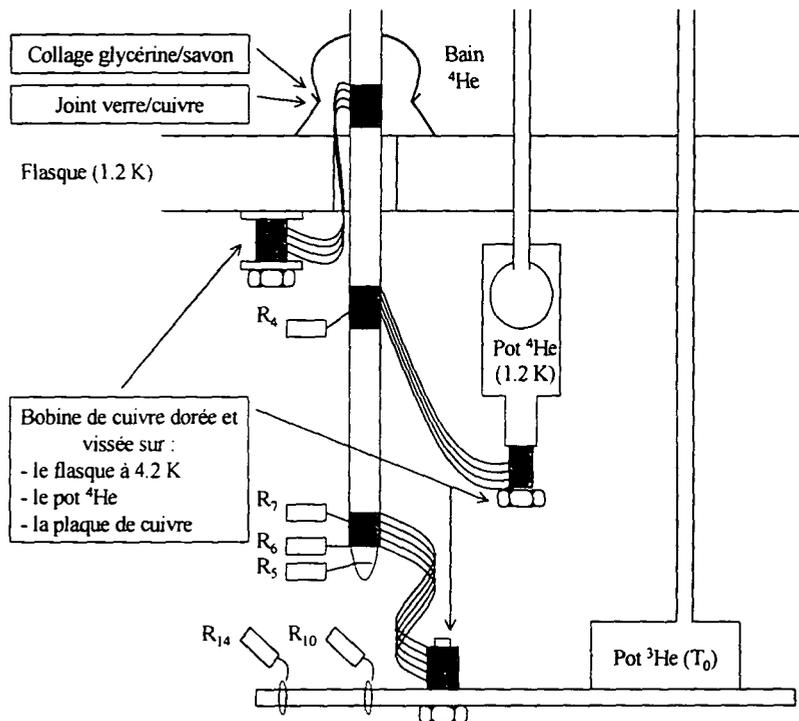


Figure 1.15: Thermalisation de la cellule en verre.

1.2.4 Mesures des températures

Toutes les mesures ont été effectuées au moyen de résistances au carbone :

- des résistances Allen-Bradley ($R = 100 \Omega$) sont disposées à différentes hauteurs dans le bain hélium-4 ; elles permettent de connaître en particulier la carte thermique au niveau du réservoir B,

- d'autres résistances Allen-Bradley ($R = 100 \Omega$), disposées dans la boîte à vide, permettent de vérifier le bon fonctionnement du pot à hélium-4, et de contrôler le dégazage de la pompe à charbons,

- enfin, pour les mesures de températures entre 0.4 K et 4 K, nous avons utilisé des résistances Allen-Bradley ($R = 22 \Omega$), étalonnées dans cette gamme de température. Ces résistances sont mesurées à l'aide d'un pont de mesure de résistances AVS 47 (RV-Elektroniikka), avec un montage "4 fils". En particulier, la puissance nécessairement introduite pour la mesure des résistances est de l'ordre de 1 nW et ne perturbe pas les mesures de température (ce que nous pouvons vérifier en faisant varier le courant envoyé par le pont : la variation du chauffage correspondant ne modifie pas la mesure de la température). Les mesures électriques sont effectuées au moyen de fils laiton ; des précautions ont été prises afin d'éviter les boucles de masse au niveau des connexions.

Ces résistances sont entourées d'un fil de cuivre servant à la connexion thermique et noyées dans une résine époxy (Stycast 1266). Le fil de cuivre est enroulé autour de la cellule expérimentale ou de la plaque de cuivre (point froid du réfrigérateur) et maintenu en place par du vernis GE 7031 (General Electrics).

Elles ont été préalablement calibrées contre la pression de vapeur saturante de l'hélium-3. Leur stabilité, lors des différents cyclages, s'est avérée largement suffisante, de même que leur sensibilité.

Remarquons que les thermomètres sont situés en dehors de la cellule (voir figure 1.16) : nous ne pouvons mesurer que la température des différentes parties du pyrex et non de l'échantillon lui-même. Cette limitation n'est pas gênante ici en raison de la faiblesse des courants de chaleur qui circulent dans la cellule au niveau de la cellule expérimentale d'une part [Stoltz 96a] et de la précision requise d'autre part : nos expériences sur l'hélium-3 liquide polarisé (de même que nos expériences sur les mélanges) ne nécessitent pas de connaître avec une précision absolue la température ; seule une bonne sensibilité importe.

En fait, il convient de pondérer cette affirmation : nous verrons en effet, lors de la partie 2, que le thermomètre n'est pas assez bien couplé au liquide pour permettre l'observation de la variation de température adiabatique attendue ...

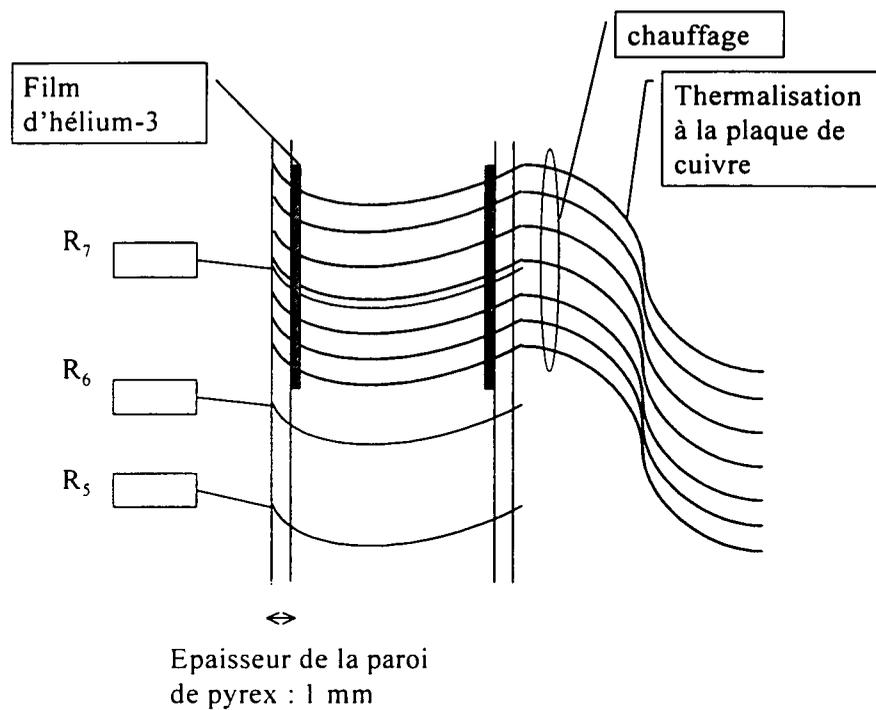


Figure 1.16: Mesure des températures. La température mesurée dans la suite est celle indiquée par la résistance R₆, car celle-ci est bien couplée à la nappe de liquide d'hélium-3 et suffisamment éloignée des fils de thermalisation à la plaque de cuivre.

1.3 Détection radioélectrique de l'aimantation

1.3.1 Le champ magnétique statique B_0

1.3.1.1 Production d'un champ magnétique statique

En l'absence de tout autre processus de relaxation nucléaire, l'interaction magnétique entre spins ne constitue pas un facteur limitatif à l'obtention de fortes polarisations dans le gaz, car les temps caractéristiques associés à ce processus sont très longs dans un milieu peu dense [Chapman 74].

Ce sont la relaxation sur les parois d'une part et la présence de gradients de champ magnétique d'autre part qui vont favoriser la destruction de l'aimantation dans le gaz d'hélium-3. Quant au liquide, son temps de relaxation longitudinale intrinsèque T_1 (de l'ordre de quelques minutes) ne doit pas être masqué par ces deux processus.

C'est pourquoi toutes nos cellules ont été intérieurement enduites de césium pour pallier la relaxation sur les parois (comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1.2.4) et aussi pourquoi toutes les expériences sur les solutions polarisées se déroulent en présence d'un champ magnétique statique B_0 , suffisamment uniforme, dans lequel s'effectuent à la fois le pompage optique, le transfert de polarisation à basse température et la détection par RMN.

Dans les doubles cellules présentées au paragraphe 1.1.2.1, le volume de pompage optique est distant d'environ 80 cm de la cellule d'étude où s'effectuent les mesures RMN. B_0 doit donc être homogène le long de l'axe défini par les tuyaux de jonction. En outre, de fortes contraintes sont imposées dans les régions occupées à la fois par le volume de pompage optique (A) et la cellule expérimentale (C) : dans le volume A, la relaxation nucléaire du niveau fondamental induite par les variations spatiales du champ doit rester faible devant celle due à la décharge pour que le pompage optique soit efficace ; dans la cellule expérimentale, il s'agit à la fois de minimiser la relaxation longitudinale et de faciliter la détection RMN grâce à des temps de relaxation transversale assez longs. Le champ magnétique doit donc être homogène sur les volumes A et C.

Or l'environnement magnétique du laboratoire provoque des inhomogénéités inférieures ou égales au mG/cm. Il faut donc réaliser des bobines de champ magnétique qui ne dégradent pas cette homogénéité, afin de ne pas détériorer le temps de relaxation transversale lors de l'étude RMN.

Pour produire le champ magnétique statique B_0 , nous avons utilisé un ensemble de bobines dont la géométrie et les courants ont été calculés et optimisés numériquement [Nacher 87] : il s'agit de 5 bobines octogonales, dans lesquelles est bobiné du fil de cuivre émaillé de 1.3 mm² de section (cf figure 1.17). La résistance totale est de l'ordre de 35 Ω , et une alimentation (modèle ASF 1000 de la marque Fontaine, stable à mieux que 10⁻³, et qui délivre au maximum 150 V sous 10 A) en série

fournit un champ magnétique de 13 Gauss sous 3 A, sans refroidissement nécessaire des bobines.

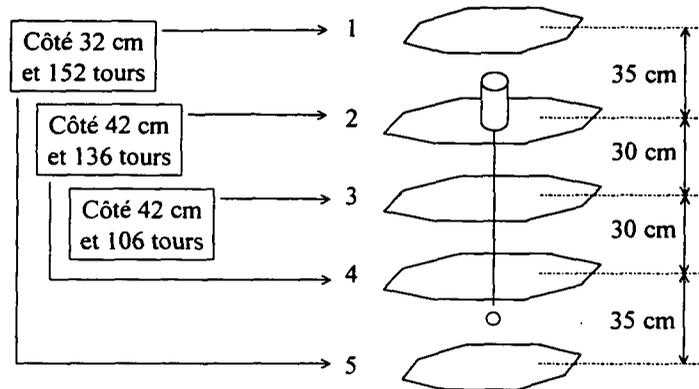


Figure 1.17: Ensemble de bobines octogonales fournissant un champ homogène sur une cellule double.

La figure 1.18 représente dans les conditions optimales de courant et de positionnement des bobines, la carte de champ calculée au niveau de l'axe des bobines (le long duquel se trouve la cellule) : la variation relative du champ magnétique est de l'ordre de quelques 10^{-4} sur la longueur de la cellule, et inférieure à 10^{-5} sur les dimensions de la cellule C (moins d'1 cm). Le dispositif est donc parfaitement adapté aux mesures RMN puisque, pour un champ magnétique de l'ordre de 13 Gauss, les variations de champ magnétique créées sont de l'ordre de 10^{-1} mG/cm.

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

En ce qui concerne le pompage optique (volume A), les variations de champ magnétique restent celles dues à l'environnement du laboratoire, et on a donc intérêt à choisir B_0 le plus grand possible.

En effet, on peut montrer [Abragam][Barbé 74] que la relaxation longitudinale due aux gradients de champ s'effectue sur un temps donné par :

$$T_{1m} = \frac{1 + (\gamma B_0 \tau_D)^2}{\gamma^2 \delta B_0^2 \tau_D} \quad (1.2)$$

où τ_D est le temps de diffusion d'un atome dans le volume considéré, B_0 la norme du champ magnétique moyen et δB_0 une mesure de ses variations spatiales sur la cellule. γ est le facteur

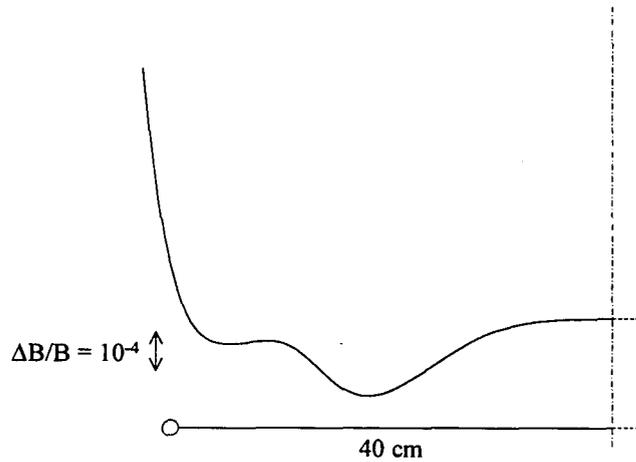


Figure 1.18: Carte de champ calculée pour l'ensemble de bobines ci-dessus (elle est symétrique et on n'a représenté que la moitié inférieure)

gyromagnétique d'un atome d'hélium-3 égal à -3.24×10^7 Hz/T.

Remarque : La formule 1.2 ne peut être appliquée que quand l'amplitude des variations du champ magnétique sur tout le volume reste faible de telle sorte que le moyennage par le mouvement peut avoir lieu pendant le temps de diffusion de spin τ_D (c'est l'hypothèse du rétrécissement par le mouvement que traduit l'inégalité $\gamma\delta B_0\tau_D \ll 1$, qui est valide pour du gaz à basse pression et à température ambiante).

Dans le volume de pompage optique à température ambiante, le temps de diffusion τ_D est de l'ordre de 1 ms. Aussi, dès que le champ magnétique B_0 excède 10^{-4} T, on peut écrire T_{1m} sous la forme simplifiée :

$$T_{1m} = \left(\frac{B_0}{\delta B_0} \right)^2 \tau_D \quad (1.3)$$

Un temps de relaxation T_{1m} supérieur à 1000 s dans la tête de la cellule requiert une homogénéité relative meilleure que 10^{-3} sur un cylindre de 11 cm de haut et 5 cm de diamètre ; il faut donc appliquer un champ magnétique supérieur à 10 Gauss compte-tenu des variations de champ δB_0 existant.

En pratique, nous travaillerons avec un champ magnétique de 13 Gauss, ce qui permet de vérifier à la fois les conditions requises par la RMN et par le pompage optique.

1.3.1.2 Bobines de gradient de champ

Afin d'améliorer localement, au niveau de la cellule expérimentale (volume C), l'homogénéité du champ magnétique statique, nous avons réalisé un ensemble de bobines situées autour de la région qui accueille la cellule d'étude et destinées à créer de purs gradients de champ longitudinal par rapport aux trois directions de l'espace.

Ces bobines sont représentées sur la figure 1.19: les bobines $\nabla_x B_0$ et $\nabla_y B_0$ sont identiques, de forme trapézoïdale (afin d'augmenter le gradient suivant z tout en tenant compte de l'encombrement du vase à azote), et constituées pour chaque direction de 2 enroulements de 200 tours de fils de cuivre de diamètre 0.35 mm. Les bobines $\nabla_z B_0$ sont, quant à elles, circulaires et comprennent 2 enroulements de 100 tours de fil de cuivre de diamètre 0.5 mm.

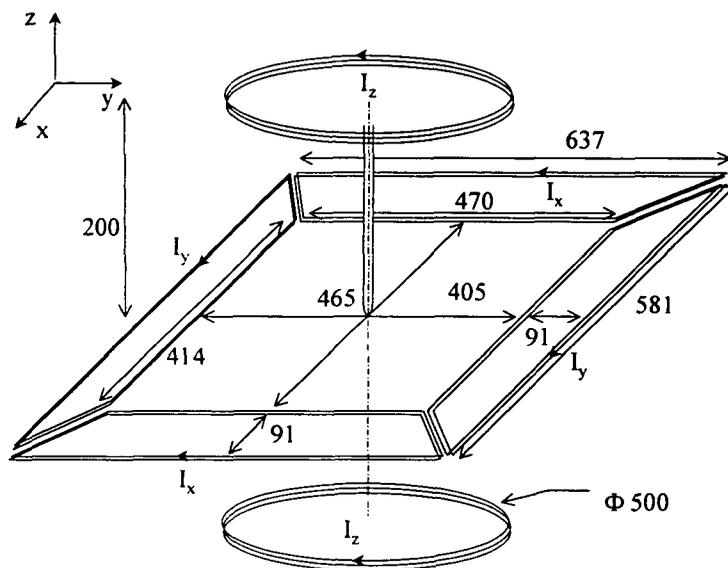


Figure 1.19: Vue de la cellule d'étude et des bobines de gradient.

Chaque paire de bobines, parcourue par un courant électrique I_x , I_y ou I_z , crée un champ à peu près vertical (et parallèle à B_0) dont la valeur ne dépend (linéairement au premier ordre) que de x , y ou z respectivement. Chaque courant permet donc de compenser indépendamment une composante de ∇B_{0z} , ou encore d'appliquer volontairement un gradient de champ magnétique.

On obtient ainsi des gradients de l'ordre de 0.5 mG/(cm A tour) dans les directions x et y et de l'ordre de 1.5 mG/(cm A tour) dans la direction z .

Ces enroulements permettent de compenser au premier ordre les inhomogénéités sur l'échantillon ; ils peuvent aussi être utilisés pour appliquer un gradient de champ magnétique linéaire connu. Nous reviendrons sur ce point dans la partie 4.

1.3.2 Le dispositif RMN

Pour créer et détecter une aimantation transversale dans le volume C de la cellule, nous utilisons une technique de résonance magnétique nucléaire (RMN) en impulsion.

1.3.2.1 Procédure

L'aimantation, initialement parallèle à \mathbf{B}_0 , est basculée d'un angle α par une impulsion de champ (\mathbf{B}_1) dont la fréquence est égale à la fréquence de Larmor ω_0 . On observe ensuite le signal de précession libre de l'aimantation transverse ainsi créée grâce à une paire de bobines détectrices placée au voisinage de la cellule expérimentale.

Nous avons employé un dispositif RMN classique à bobines croisées [Tastevin 87], schématisé sur la figure 1.20.

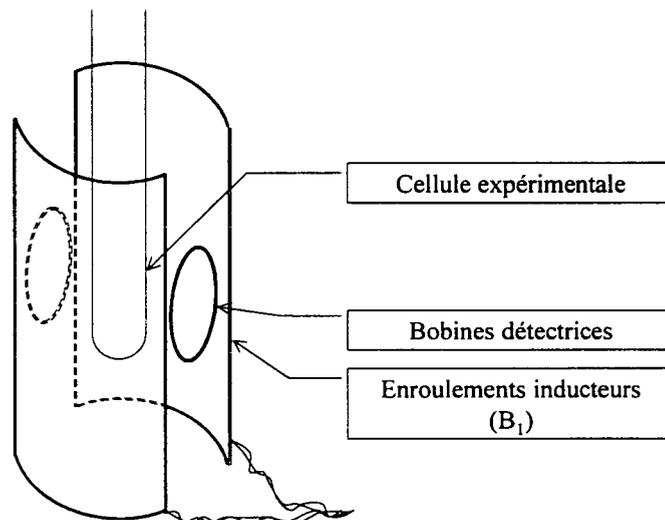


Figure 1.20: Vue d'ensemble du dispositif RMN accompagnant la cellule.

1.3.2.2 Les bobines inductrices

Le dispositif inducteur comporte 2 bobines en forme de "selles de cheval", d'une dizaine de tours chacune, qui ont été connectées en série dans nos expériences. Elles génèrent un champ radiofréquence (RF) \mathbf{B}_1 , qui est perpendiculaire au champ magnétique statique \mathbf{B}_0 .

Leur géométrie résulte d'un compromis entre deux exigences. Exigence d'encombrement d'une part, les bobines devant être logées à l'intérieur de la boîte à vide du réfrigérateur à hélium-3 qui

n'est ni particulièrement spacieuse ni particulièrement vide (elle renferme déjà les organes vitaux du réfrigérateur : son pot à hélium-4, son pot à hélium-3 et la plaque de cuivre attenante, mais aussi de nombreux thermomètres et la cellule expérimentale...) ; exigences d'homogénéité du champ radiofréquence au niveau du volume C d'autre part, afin que l'impulsion radiofréquence provoque un angle α de basculement de l'aimantation uniforme, et prépare ainsi une aimantation transversale homogène ($\alpha \leq \frac{\pi}{2}$), ou détruise entièrement l'aimantation ($\alpha = \frac{\pi}{2}$), ou enfin permette de retourner l'aimantation totale par rapport au champ \mathbf{B}_0 ($\alpha = \pi$) sans perte d'aimantation.

Nous avons employé des bobines qui s'inscrivent dans un rectangle de hauteur 64 mm et de largeur 30 mm pour la section verticale, et qui s'inscrivent dans un cercle de rayon 15 mm pour la section horizontale. Les caractéristiques géométriques des bobines d'induction ont été optimisées numériquement afin que les variations relatives du champ magnétique \mathbf{B}_1 sur la cellule expérimentale n'excèdent pas quelques %. Il est apparu que 2 formes de bobines sont à retenir :

- d'une part la forme en selles de cheval en respectant un angle de $\frac{2\pi}{3}$ pour les arcs de cercle que représentent les bobines vues de dessus (cf figure 1.21a).
- d'autre part la forme asymétrique, en selle de cheval toujours (cf figure 1.21b), avec une ouverture d'environ $\frac{2\pi}{3}$.

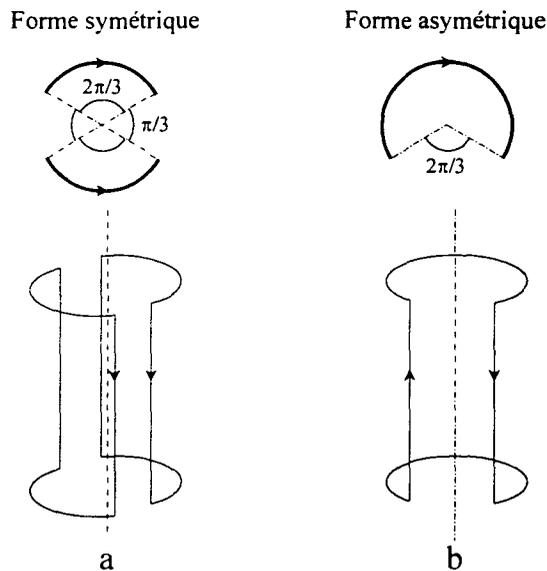


Figure 1.21: Allure des bobines d'induction correspondant au calcul

Dans les deux cas, la hauteur des bobines sera de l'ordre de deux fois leur diamètre.

En pratique, la présence de la boîte à vide (métallique, et à proximité des conducteurs) et des différents éléments qu'elle contient peut perturber les lignes de champ. Nous avons donc vérifié

expérimentalement que notre système répondait aux exigences formulées ci-dessus, en particulier en quantifiant les pertes d'aimantation lors des impulsions RMN : celles-ci restent très faibles (de l'ordre de 10 % pour un angle π).

1.3.2.3 Le circuit de détection

Les bobines de détection sont constituées de 2 enroulements de fils de cuivre émaillé, connectés en série, d'environ 200 tours chacun. Cette paire de bobines est placée à angle droit des enroulements inducteurs ; leur orthogonalité est ajustée, une fois en position, de façon à minimiser le signal parasite directement capté par les bobines détectrices lors d'une impulsion radiofréquence.

Cette précaution s'avère toutefois insuffisante ; le signal parasite capté par les bobines détectrices lors d'une impulsion RF sature en effet, pendant un laps de temps trop long, la chaîne de détection. Pour y remédier, nous avons utilisé un interrupteur rapide (circuit CMOS 4066) placé juste en amont de l'électronique de détection, piloté par la commande d'impulsions RF ; il met en court-circuit, pendant la durée d'une impulsion, les bobines détectrices et le circuit électronique de détection, tout en établissant entre ces 2 éléments un chemin de grande impédance ; inversement, en dehors d'une impulsion, il relie par une ligne de faible impédance les bobines détectrices au reste du circuit de détection, permettant ainsi au signal capté par les bobines d'être analysé.

Les bobines détectrices, de diamètre 15 mm, sont disposées le plus près possible de la cellule expérimentale afin de capter un signal généré par la précession des spins, d'amplitude maximale.

Un moyen commode (et classique) pour disposer de signaux électriques assez grands consiste à utiliser un circuit de détection résonant : un condensateur de capacité C , placé en parallèle avec les bobines de détection (inductance L) permet d'accorder le circuit à la fréquence de Larmor ω_L des spins. Il suffit pour cela que $LC\omega_L^2 = 1$. Nous avons en pratique utilisé une capacité de 10 nF ce qui nous a donné un facteur de qualité Q de 4.6 à 300 K et de 18 à froid.

Si l'intérêt d'un tel circuit résonant est indiscutable, puisqu'il amplifie le signal d'un facteur Q , il faut cependant rester vigilant quant aux effets secondaires que son utilisation implique. Il existe en effet des couplages entre l'aimantation transverse et un tel circuit de détection, couplages que G. Tastevin a étudiés en détail dans le cadre de ses expériences sur l'hélium-3 polarisé [Tastevin 87]. Ces couplages, lorsqu'ils restent faibles, produisent un déplacement $\delta\omega$ de la fréquence de précession de l'aimantation et une variation supplémentaire de son taux d'amortissement $\frac{1}{T}$. Ces effets parasites sont susceptibles d'entâcher d'erreur à la fois la mesure de la fréquence de précession de l'aimantation transverse (et par suite la mesure du taux de polarisation nucléaire dans la phase liquide, voir paragraphe 1.4.2) et celle de son taux d'amortissement. Nous reviendrons sur ces couplages lors de l'étude RMN de l'hélium-3 liquide polarisé (partie 4).

1.3.2.4 Le dispositif électronique

La procédure expérimentale employée pour exciter et détecter une aimantation est la suivante : nous envoyons sur les bobines inductrices une impulsion radiofréquence d'amplitude environ 3V, à une fréquence de l'ordre de 42 KHz, correspondant à la fréquence de Larmor d'un atome d'hélium-3 placé dans un champ magnétique statique B_0 de l'ordre de 1.3 mTesla. Le rôle de cette impulsion est de créer, à partir de l'aimantation longitudinale, une petite composante transverse. La durée Δt de cette impulsion et son intensité sont choisies pour que l'angle de basculement de l'aimantation soit assez faible (typiquement l'amplitude B_1 du champ oscillant est de $3 \cdot 10^{-2}$ mTesla et Δt de 0.1 ms pour un angle de basculement d'environ $\frac{\pi}{32}$) : la perte d'aimantation longitudinale résultante est alors négligeable (~ 0.5 % pour un tel angle).

Le signal de précession recueilli aux bornes des bobines de détection est de l'ordre de $10 \mu V$ initialement ; il décroît avec une constante de temps T_2 , de l'ordre de quelques centaines de millisecondes dans nos expériences. Ce signal est directement envoyé dans un amplificateur à détection synchrone où il est mélangé à un signal de référence (provenant en pratique du synthétiseur qui crée B_1), dont la fréquence ω_{ref} est proche de la fréquence de Larmor ω_L . Les amplitudes en phase et en quadrature de phase du signal résultant sont enregistrées de façon digitale dans un microordinateur, et un traitement numérique ultérieur (en particulier, nous aurons très souvent recours à la transformée de Fourier (FFT) de ce signal : celle-ci donne accès au spectre en fréquence, qui est le spectre réel, simplement translaté de la fréquence de référence ω_{ref}) permet d'en extraire la dépendance temporelle. C'est ce même microordinateur qui gère la commande de basculement de l'aimantation.

1.4 Caractérisation du montage expérimental

1.4.1 Caractérisation du nouveau cryostat

1.4.1.1 Température limite

La température limite accessible en continu est égale à 420 mK (température mesurée au niveau de la plaque de cuivre), ce qui correspond à une pression limite en helium-3 de 37 mTorr. Cette température est atteinte en ne conservant qu'une seule injection (la plus petite) ouverte. Le liquide cryogénique s'assèche alors en quelques minutes ; c'est pourquoi on travaille en général avec les deux injections, ce qui permet d'atteindre des températures de l'ordre de 440 mK. En pratique, la température mesurée au niveau de la cellule ne descend pas en dessous de 450 mK.

1.4.1.2 Inertie thermique

Si l'on part d'une température de 1.5 K (grâce à la thermalisation de la cellule sur le pot à hélium-4), le pot à hélium-3 étant vide et maintenu pompé, le temps requis pour le refroidissement du liquide cryogénique après ouverture des injections est de quelques dizaines de secondes (voir figure 1.22).

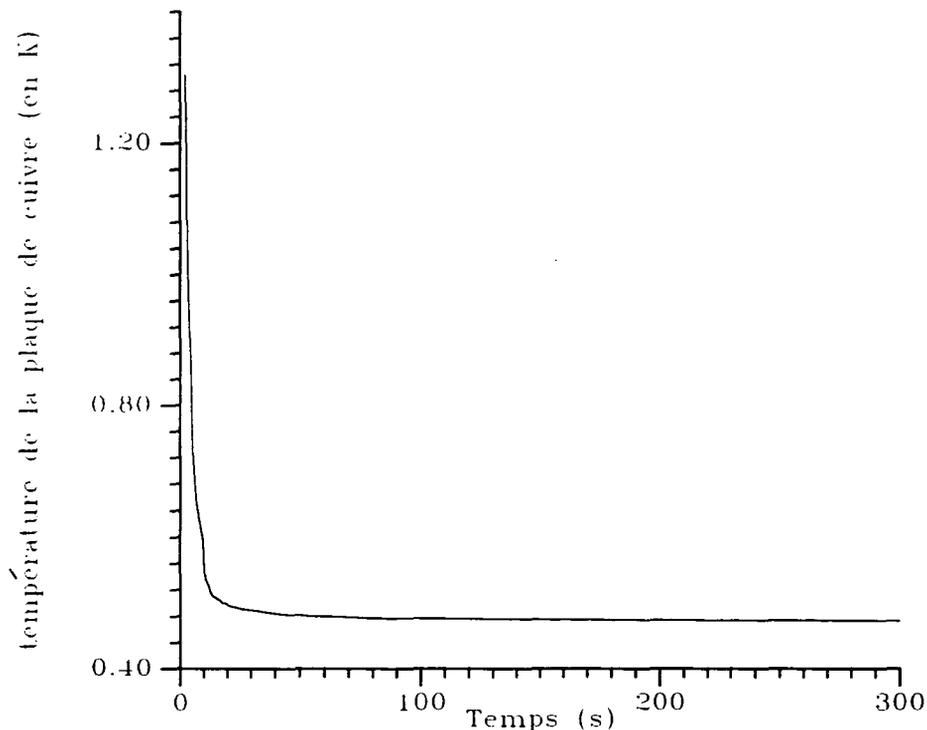


Figure 1.22: Evolution temporelle de la température de la plaque de cuivre du réfrigérateur à hélium-3. A $t=0$, les injections ont été ouvertes.

En fait, pour accélérer le processus de liquéfaction, on pompe en permanence sur le pot à helium-3 tout en laissant les injections ouvertes, et on procède comme suit :

Pendant la phase de pompage optique, on applique un chauffage de l'ordre de 1 mW sur les fils de connexion de la cellule à la plaque de cuivre, ce qui permet de maintenir la cellule à une température de l'ordre de 1 K, alors que le frigo à helium-3 reste à une température beaucoup plus froide, de l'ordre de 0.6 K.

Pour liquéfier, il ne reste alors qu'à éteindre le chauffage ; si le pot est presque vide (ce qui minimise son inertie thermique), le cryostat atteint sa température limite en quelques secondes à peine, tandis que la cellule atteint la sienne en quelques dizaines de secondes. En effet, l'impédance thermique du pyrex est plus élevée que celle des fils de cuivre qui relie la cellule à la plaque de cuivre (voir figure 1.15) : la cellule met plus longtemps à se thermaliser.

1.4.1.3 Stabilisation en température

Il ne s'agit pas dans nos expériences d'aller au plus froid, mais d'aller vite et de bien se stabiliser à la température choisie. L'ensemble de ces deux opérations ne doit pas prendre plus de 2 ou 3 minutes (c'est-à-dire moins que la constante de temps de relaxation T_1) si on veut disposer d'une forte aimantation pour nos mesures. C'est pourquoi, en pratique, nous avons choisi de ne pas descendre à des températures inférieures à 480 mK au niveau de la cellule expérimentale.

La stabilisation en température se fait en asservissant une résistance de mesure de température au niveau de la cellule (en général R_7 , voir figure 1.16) à une valeur préfixée, au moyen du chauffage agissant sur les fils de connexion de la cellule à la plaque de cuivre ; cet asservissement se fait au moyen d'un asservissement type PIDT (proportionnel-intégrateur-différentiel-hybride) réalisé au laboratoire (la partie hybride, qui allie les qualités des trois premières parties, est représentée sur la figure 1.23).

L'enregistrement suivant (figure 1.24) donne une allure de la stabilisation en température obtenue sur une autre résistance (R_6), a priori mieux couplée au liquide d'hélium-3, et qui servira dans toute la suite à la détermination de la température du liquide.

1.4.2 Caractérisation du liquide par résonance magnétique nucléaire

1.4.2.1 Principe de mesure de la polarisation du liquide

L'étude des effets du champ dipolaire sur l'équation de Bloch a permis de prévoir dans le passé les conséquences de ce champ dipolaire sur les fréquences de précession des spins, donc sur les signaux RMN de la solution polarisée, ce dans certaines géométries bien précises (géométrie plane, voir [Tastevin 87], ou géométrie cylindrique, voir [Cornut 93]). Nous avons utilisé cet effet pour

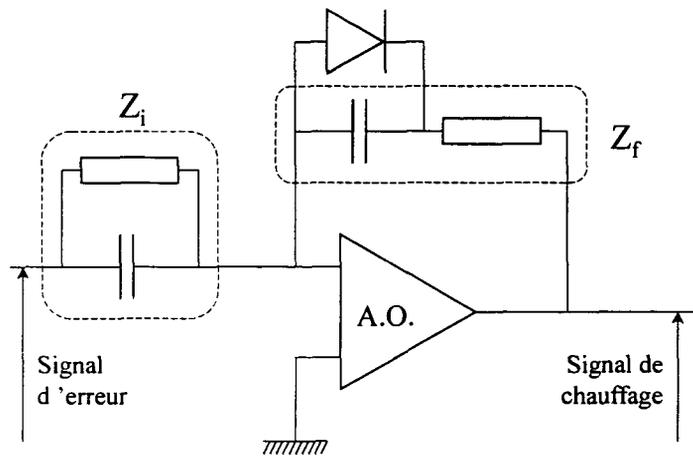


Figure 1.23: Schéma de la partie hybride (T) de l'asservissement PIDT. Les impédances d'entrée Z_i et Z_f ont pour valeurs : $R_i=1\text{ M}\Omega$ et $C_i=10\text{ nF}$; $R_f=220\text{ k}\Omega$ et $C_f=10\text{ }\mu\text{F}$.

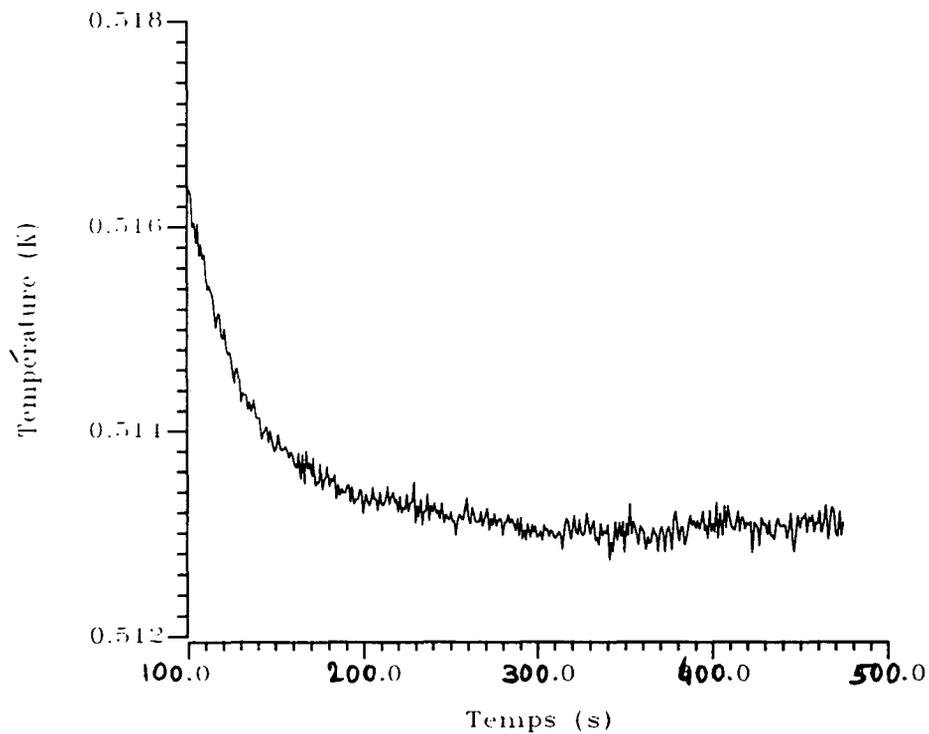


Figure 1.24: Evolution temporelle de la température mesurée sur la cellule expérimentale, en présence d'un asservissement type PIDT.

déterminer l'aimantation \mathcal{M} , puis la polarisation M , du liquide, sans avoir à calibrer en amplitude les signaux RMN. Le principe de cette méthode est le suivant :

Considérons un atome appartenant à un volume aimanté : il est soumis à un champ local \mathbf{B} différent du champ extérieur \mathbf{B}_0 . En effet, il faut ajouter à \mathbf{B}_0 le champ magnétique induit \mathbf{B}_i sur l'atome considéré par tous les autres atomes présents. Lorsque le volume présente une symétrie sphérique, \mathbf{B}_i est nul. En revanche, le liquide polarisé formé sur les parois de la cellule possède a priori une forme aplatie. On sait par conséquent que le champ \mathbf{B}_i n'est pas nul, et participe à l'évolution de l'aimantation. Plus précisément, la composante séculaire de \mathbf{B}_i , engendrée par la partie longitudinale de l'aimantation \mathcal{M}_z , fera que la fréquence de précession ω des spins dans le liquide sera différente de la fréquence de Larmor ω_L . En pratique, si on observe les signaux de précession provenant à la fois du liquide polarisé et de sa vapeur saturante (elle aussi polarisée), on observera un spectre en fréquence présentant deux raies centrées sur ω et ω_L . En effet, le gaz aimanté, en équilibre au dessus de l'hélium-3 liquide, a une densité faible, et l'effet du champ dipolaire sera donc très faible : dans le gaz, l'aimantation précesse à la fréquence de Larmor ω_L correspondant au champ \mathbf{B}_0 ($\omega_L = \gamma \mathbf{B}_0$, γ rapport gyromagnétique).

G.Tastevin a calculé la valeur de $\omega - \omega_L$ en fonction de l'aimantation du liquide [Tastevin 87]. Elle trouve que lorsque le liquide est étalé sur les parois verticales (c'est à dire sur les parois parallèles au champ magnétique \mathbf{B}_0) de la cellule, et lors de la précession suivant un basculement de petit angle ($\mathcal{M}_z \approx \mathcal{M}$), le déplacement de fréquence est donné par :

$$\omega_V - \omega_L = \frac{\mu_0}{2} |\gamma| n_0 \mu_n M \quad \text{en Hz} \quad (1.4)$$

μ_n est le moment magnétique de l'hélium-3 : $\mu_n = 1.08 \times 10^{-26}$ J/Tesla

γ est le facteur gyromagnétique : $|\gamma| = 3.24$ kHz/Gauss

n_0 est la densité atomique : $n_0 = 1.64 \times 10^{22}$ atomes/cm³ à 0.5 K

$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ (S.I.)

M est le taux de polarisation du liquide ($-1 \leq M \leq 1$).

Pour le liquide formant une flaque horizontale dans le fond de la cellule expérimentale :

$$\omega_H - \omega_L = -\mu_0 |\gamma| n_0 \mu_n M \quad \text{en Hz} \quad (1.5)$$

Remarque : dans la totalité de ce mémoire, ω est une fréquence (Hz) et non une pulsation (rad/s), contrairement à la terminologie habituelle.

En pratique, les parois verticales de la cellule sont mieux couplées thermiquement au réfrigérateur à hélium-3 que l'extrémité basse de la cellule. C'est pourquoi on détecte, au début tout au moins, le liquide condensé sur les parois verticales. Dans ce cas, le décalage en fréquence

par rapport à la fréquence de Larmor sera de l'ordre de 36 Hz par pour cent de polarisation. La différence sera mesurée après transformée de Fourier du signal temporel. Nous utilisons pour cela un algorithme numérique FFT (Fast Fourier Transform).

L'observation directe d'échantillons liquides polarisés à plus de 20 % est difficile puisque le déplacement en fréquence correspondant vaut 720Hz (ce qui est en dehors de la bande passante de la fenêtre de détection). Il faut donc centrer cette fenêtre de détection sur la fréquence du liquide fortement polarisé. La solution que nous avons adoptée consiste à appliquer un champ statique homogène δB_0 supplémentaire. A l'aide d'un courant continu envoyé dans les bobines annexes des bobines de champ statique B_0 (voir 3.1), nous déplaçons la fréquence de Larmor de manière à ramener le pic du liquide à l'intérieur de notre fenêtre de détection. Le courant I passant dans les bobines supplémentaires est préalablement calibré à partir du déplacement de fréquence observé sur le gaz polarisé ; nous connaissons alors exactement le rapport Hz/mA de notre dispositif.

Nous avons ainsi observé des signaux dont le déplacement en fréquence atteint 1.2 kHz, ce qui correspond à un taux de polarisation nucléaire de 33 %.

1.4.2.2 Résultats d'une expérience typique

La polarisation optique du gaz, mesurée par détection optique à 300K, est de 5.5 %, ce qui correspond, à la pression considérée, à une polarisation nucléaire de 45 % [Bigelow 92]. Cette polarisation a été obtenue avec l'amplificateur à fibre, après environ 10 minutes de pompage optique.

On éteint alors le chauffage qui maintenait la cellule à 1 K. En 1 minute, la cellule atteint, sur la paroi verticale dans sa partie basse, une température de 531 mK. On induit alors un petit angle de précession RMN ($\alpha \approx \frac{\pi}{64}$), qui, comme nous l'avons vu au 1.3.2.4, ne détruit pas l'aimantation du liquide et permet la mesure du taux de polarisation par le déplacement de fréquence de précession.

Après transformée de Fourier de ce signal (figure 1.25), on distingue deux fréquences de précession ω_1 et ω_2 . Ces deux fréquences correspondent aux fréquences de précession de l'aimantation en phases gazeuse et liquide respectivement. Les autres pics observés sont présents pendant tout l'enregistrement du signal (0.5 s), et ne correspondent en fait qu'à du bruit RF. Remarquons que la fréquence nulle correspond en fait à la fréquence de référence ω_{ref} (voir 1.3.2.4).

On recommence cette procédure 30 secondes après (la température mesurée dans la partie basse de la cellule étant alors de 522 mK), et on n'obtient plus alors qu'un seul pic en fréquence (qui ne soit pas du bruit RF), correspondant au pic de droite (ω_2) du premier signal expérimental mais légèrement décalé vers la gauche (voir figure 1.26).

Ce signal résulte de l'aimantation en phase liquide. L'absence de signal dû au gaz s'explique

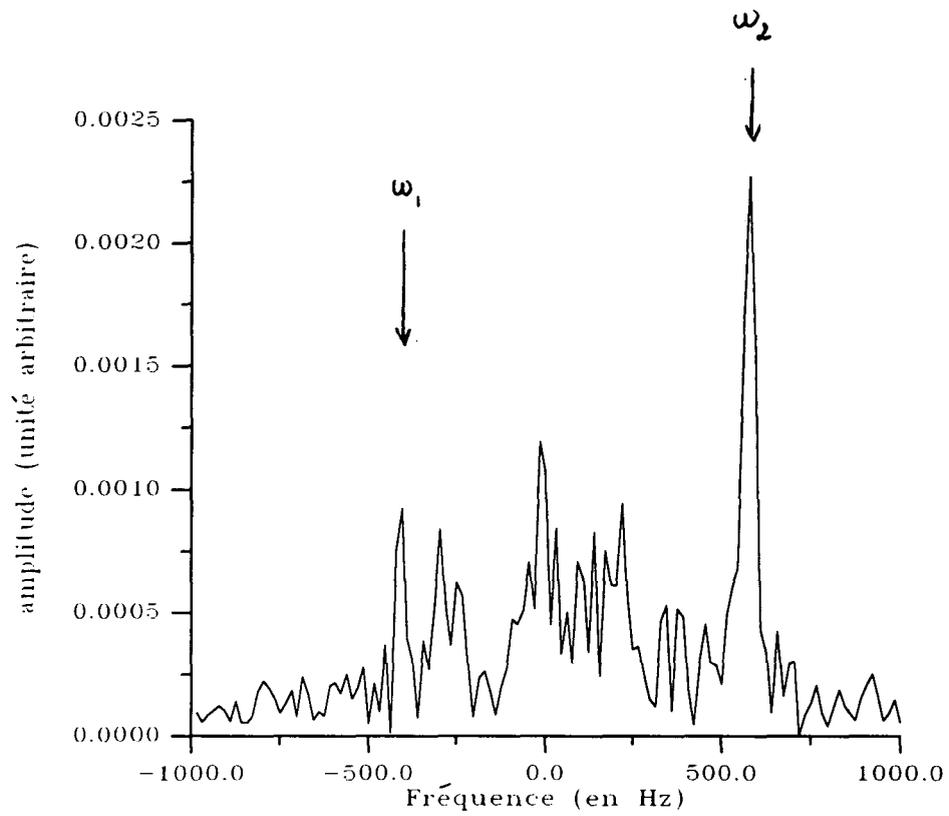


Figure 1.25: Spectre en fréquence du signal de précession libre de l'aimantation lors de la première mesure. Les fréquences ω_1 et ω_2 correspondent aux phases gazeuse et liquide respectivement.

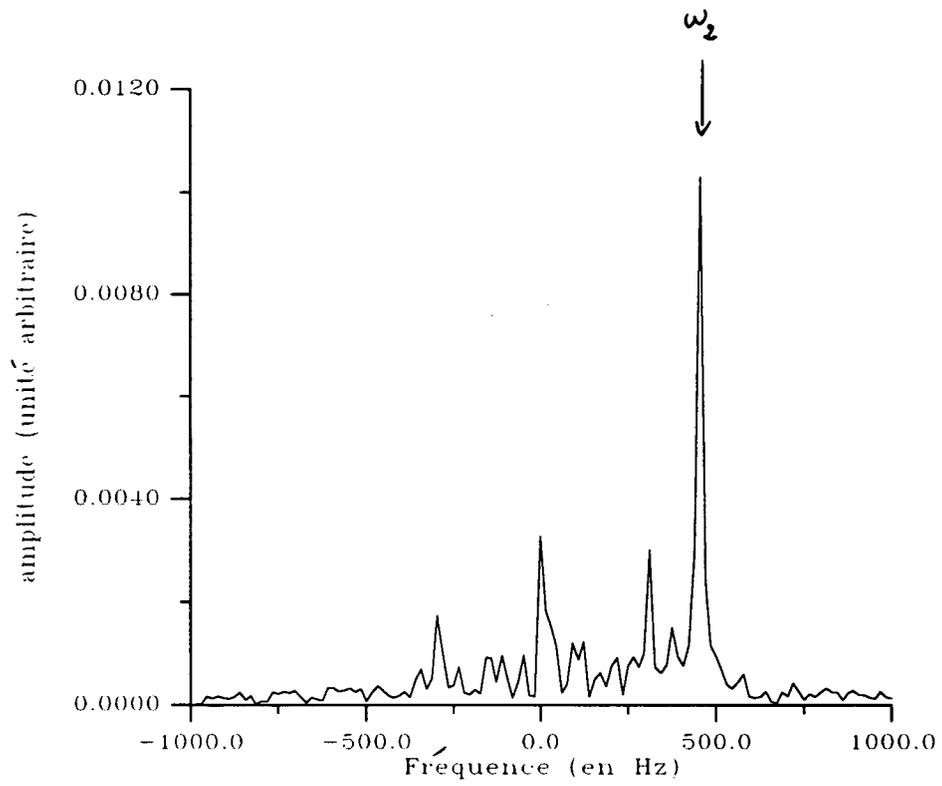


Figure 1.26: Spectre de fréquence du signal de précession libre de l'aimantation, enregistré lors de la deuxième mesure.

par le fait qu'il était déjà à la limite du signal sur bruit lors du premier enregistrement ; comme la quantité de gaz ne va qu'en diminuant avec la pression de vapeur saturante et la température (la pression de vapeur saturante à 522 mK est seulement de 209 mTorr), on ne peut plus maintenant distinguer le pic du bruit RF. Le signal temporel est représenté sur la figure 1.27.

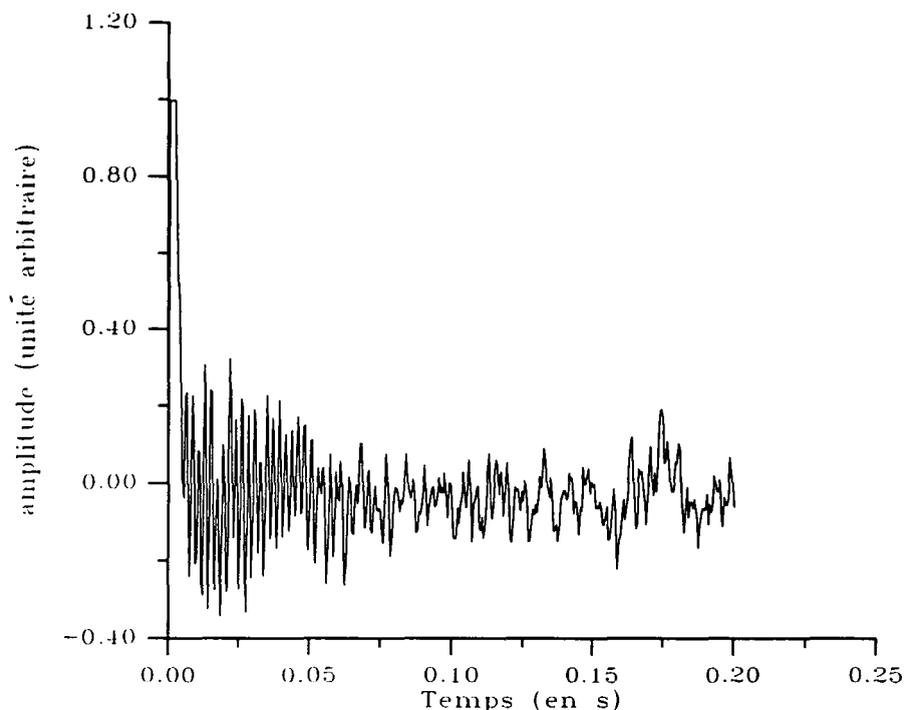


Figure 1.27: Signal temporel de précession libre de l'aimantation enregistré lors de la deuxième mesure.

Si l'on recommence régulièrement, on voit le pic se déplacer "vers la gauche" (c'est-à-dire vers les fréquences inférieures à $\omega_{réf}$ (voir 1.3.2.4)) en tendant progressivement vers la fréquence ω_1 , ce qui indique la perte de polarisation du liquide au cours du temps (figure 1.28).

Nous avons mesuré l'évolution temporelle de la différence entre la fréquence correspondant au liquide et celle du gaz (mesurée sur le premier spectre en fréquence, ou bien à la fin, quand le liquide a perdu toute son aimantation et précesse à la fréquence de Larmor). Les résultats sont reportés sur la figure 1.29. Nous pouvons remarquer une décroissance exponentielle de l'aimantation. La constante de temps associée, qui représente le temps de relaxation nucléaire longitudinale T_1 , dans le liquide, est d'environ 5 minutes.

Le premier signal que nous ayons observé montre un décalage entre la fréquence de précession des spins et la fréquence de Larmor de l'ordre de 1010 Hz. En fait, on voit sur la figure 1.29 que, lors de la deuxième mesure de l'aimantation, l'écart en fréquence a légèrement augmenté (1020

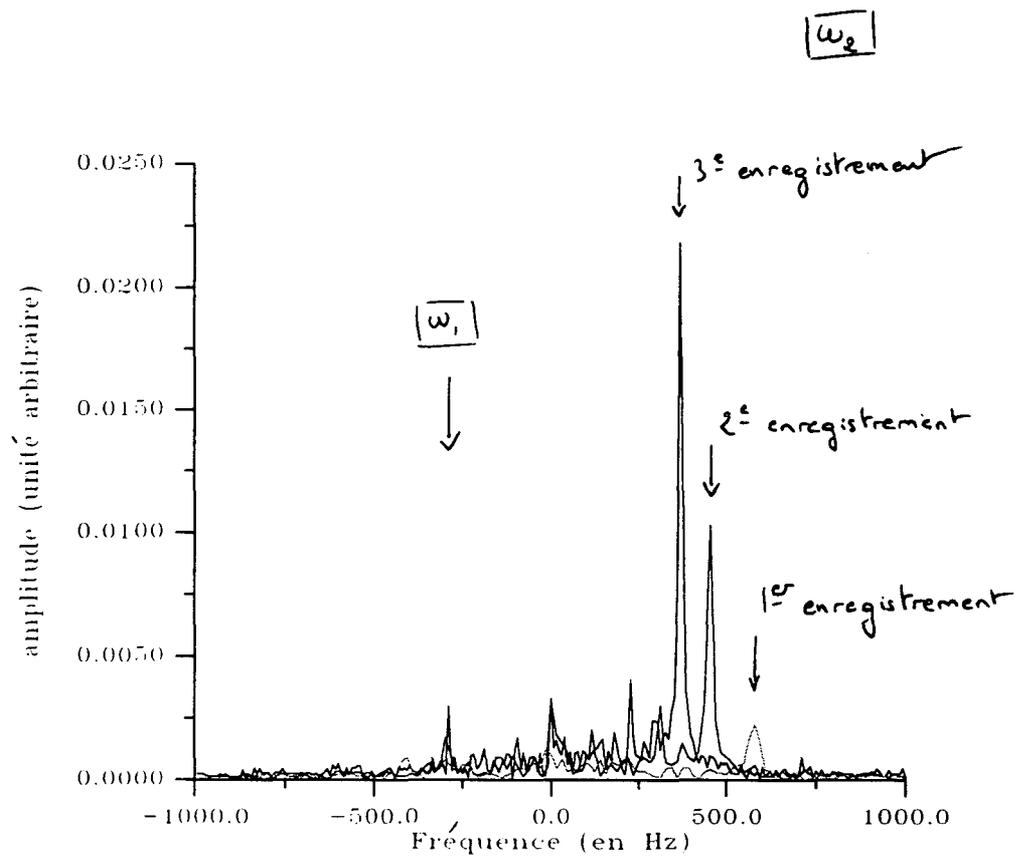


Figure 1.28: Spectres de fréquence du signal de précession libre de l'aimantation, enregistrés lors des trois premières mesures.

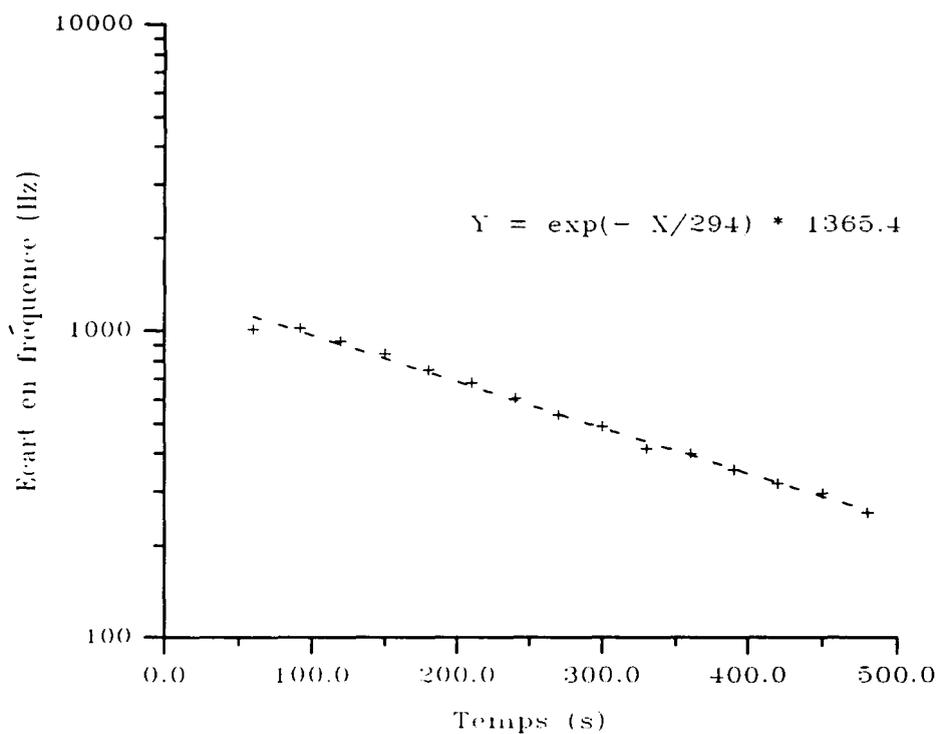


Figure 1.29: Evolution temporelle de la différence entre les fréquences de précession de l'aimantation en phase liquide et en phase gazeuse. On en déduit un temps de relaxation longitudinale T_1 de l'ordre de 5 minutes.

Hz), ce qui traduit le fait que la proportion d'atomes polarisés en phase liquide a augmenté (lors de la diminution de température, c'est du gaz polarisé qui arrive dans le volume C alors que le gaz présent initialement n'était pas polarisé). Le flux d'aimantation amené par le gaz qui se liquéfie est alors supérieur aux pertes par relaxation. En appliquant la formule 1.4, on déduit que le taux d'aimantation initial du liquide est de 28 %, pour une température de l'ordre de 520 mK. Trois minutes après le lancement de la liquéfaction, ce taux vaut encore 21 %.

1.4.3 Conclusion

C'est dans le cadre des expériences envisagées (voir partie 2) concernant les mesures de pression de vapeur saturante de l'hélium-3 liquide polarisé que nous avons développé ce montage expérimental. C'est donc dans ce cadre également qu'il faut considérer ses caractéristiques. Nous disposons maintenant d'un dispositif expérimental qui nous permet d'obtenir en environ 3 minutes, à partir d'un état favorable au pompage optique et à une polarisation du maximum d'atomes, un échantillon d'hélium-3 liquide assez fortement polarisé, à une température pouvant atteindre 480 mK. La stabilité en température obtenue est alors meilleure que 0.2 mK, soit moins de 0.1 % en valeur relative ; ce qui correspond à une stabilité en pression de l'ordre de 0.4 mTorr, soit 0.2 % (et ce sur quelques minutes).

Le taux d'aimantation obtenu dans le liquide n'est pas aussi grand que ce à quoi nous pouvions nous attendre initialement (des taux de l'ordre de 50 % étaient couramment atteints au laboratoire), mais compte-tenu de la présence d'un capteur de pression dans nos expériences à "forte polarisation", nous n'avons jamais réussi à bien polariser le gaz d'une part, ni à bien transmettre cette polarisation au liquide d'autre part. Il semble qu'il y ait, malgré toutes les précautions prises, contamination du gaz d'hélium-3 en présence du capteur.

Malgré ces limitations en termes de polarisation, nous avons cherché à mettre à profit les bonnes performances thermiques du système pour une première étude des effets recherchés de la polarisation nucléaire sur la pression de vapeur saturante.

Chapitre 2

Etude expérimentale de l'équilibre liquide-vapeur de l'hélium-3 liquide polarisé

Nous avons cherché à déterminer le potentiel chimique de l'hélium-3 liquide polarisé, par l'intermédiaire de la mesure de sa pression de vapeur saturante. Dans la gamme de températures accessibles, la vapeur se comporte en effet comme un gaz parfait, dont la pression P est très simplement reliée à son potentiel chimique. Or celui-ci est égal, à l'équilibre, à celui du liquide. La mesure de la pression dans le gaz donne donc directement accès à cette grandeur essentielle pour la description des propriétés du liquide. Elle a aussi l'avantage d'être techniquement plus simple à réaliser qu'un sondage de la phase liquide elle-même.

Enfin, cet effet de polarisation nucléaire faisant intervenir la statistique quantique (l'hélium-3, de spin nucléaire $I=1/2$, est un fermion, et toutes les différences entre le fluide ordinaire et le fluide polarisé proviennent du principe d'antisymétrisation de Pauli), cette étude expérimentale est un moyen de tester les quelques modèles théoriques existant. Nous allons commencer par présenter l'état des connaissances théoriques portant sur la thermodynamique de l'hélium-3 liquide polarisé, après nous être intéressés brièvement au cas d'un gaz d'hélium-3 où les effets de la polarisation sont mieux compris.

2.1 Etude de l'hélium-3 polarisé

2.1.1 L'hélium-3 gazeux à basse température

Les interactions entre atomes, dans le cas du gaz polarisé, sont fortement modifiées par la polarisation nucléaire. Si l'on suppose dans un premier temps le gaz dilué, on peut considérer que les interactions résultent uniquement de collisions à deux corps. Dans ce cas, en vertu du principe de Pauli, deux atomes ayant leurs spins nucléaires parallèles ne pourront entrer en collision (car la fonction d'onde orbitale qui les décrit est nulle lorsque les atomes sont au même point) : ils deviennent "transparents" l'un pour l'autre. De façon générale, on s'attend à ce que les interactions soient plus faibles dans le cas d'un gaz polarisé.

Les propriétés physiques du gaz font intervenir en fait trois échelles de longueur :

- la distance d entre atomes, fonction de la densité du fluide n .
- la portée du potentiel interatomique a_0 .
 - la longueur d'onde de de Broglie thermique des atomes $\lambda_T = \frac{h}{\sqrt{2\pi mkT}}$ (où m est la masse d'un atome d'hélium-3) qui correspond à l'étendue des "paquets d'onde thermiques". A 1 K, cette longueur d'onde est de l'ordre de 10 Å, alors que a_0 est de l'ordre de 3 Å.

Dans un gaz de fermions à basse température, ces échelles de longueur déterminent deux régimes :

1. Dans le domaine où $d \gg \lambda_T > a_0$, on a affaire à un gaz non dégénéré, et les propriétés d'équilibre du gaz sont parfaitement décrites dans le cadre d'une statistique classique. Toutefois, il faut tenir compte des corrélations statistiques introduites par le principe de Pauli lors des collisions entre particules. En particulier, l'antisymétrie de la fonction d'onde interdit toute collision entre deux atomes de même spin. Plus le gaz est polarisé, plus le nombre de particules indiscernables est grand. A basse température (lorsque la longueur d'onde de de Broglie est plus grande que la portée du potentiel atomique), polariser le gaz entraîne donc une diminution du nombre de collisions, et un allongement du libre parcours moyen. En conséquence, la viscosité et la conduction thermique du gaz d'hélium-3 sont des fonctions croissantes de M , la polarisation nucléaire : à très basse température, le gaz polarisé à 100 % devient donc un gaz parfait.

En fait, le gaz d'hélium-3 restera toujours dans ce domaine et ne s'approchera pas du régime dégénéré. En effet, lorsque la température approche de 1 K, la densité est limitée par la pression de vapeur saturante qui a un comportement d'exponentielle décroissante en température

T. Lorsque la température diminue, la distance d augmente donc de façon exponentielle, alors que la longueur d'onde thermique λ_T augmente seulement en fonction racine. La longueur d'onde thermique restera donc toujours plus faible que la distance moyenne entre particules. Néanmoins, il existe un système gazeux où l'on peut observer des effets de dégénérescence : il s'agit de solutions diluées d'hélium-3 dans l'hélium-4. En effet, l'hélium-3 se comportant comme un quasi-gaz (voir partie 3), il est possible, en variant les proportions d'hélium-3 dans l'hélium-4, de conserver au système une densité finie jusqu'à une température nulle.

2. Dans le domaine où $\lambda_T \approx d > a_0$, c'est-à-dire à plus faible température, les fonctions d'onde atomiques se recouvrent ; les effets quantiques d'indiscernabilité se manifestent alors pleinement sur les propriétés d'équilibre du gaz : propriétés thermodynamiques et coefficients de transport sont alors contrôlés par le principe de Pauli. Le gaz est dit faiblement dégénéré. Il reste cependant très proche d'un gaz parfait, et son équation d'état peut être décrite par un développement du viriel. Les coefficients de celui-ci ont deux origines physiques : d'une part l'existence des interactions physiques et, d'autre part, la présence des corrélations statistiques liées au principe de Pauli. Les résultats du calcul mené par C.Lhuillier et F.Laloë [Lhuillier 79] montrent que pour des températures intermédiaires ($1 \text{ K} < T < 2 \text{ K}$), l'effet du principe de Pauli dans l'hélium-3 se trouve minimisé par rapport à la situation dans le gaz de fermions libres. En revanche, à basse température ($T < 0.7 \text{ K}$), la contribution totale des interactions devient très petite devant ce que serait la contribution des interactions en absence de polarisation. L'hélium-3 polarisé a donc un caractère de gaz presque parfait à basse température. Ce calcul concerne l'hélium-3 gazeux dégénéré qui, nous l'avons vu, n'existe pas ; mais on peut dans un premier temps généraliser les résultats au quasi-gaz que constitue l'hélium-3 dans les mélanges.

Le système d'hélium-3 dilué dans l'hélium-4 a été en fait peu étudié pour des gammes de températures et de concentrations élevées ($T \approx 0.5\text{K}$ et $x \geq 10 \%$) ; il a cependant l'avantage de présenter pour l'essentiel les propriétés d'un gaz. De ce point de vue, l'effet de fortes polarisations nucléaires dans ce système est complémentaire de l'étude de l'hélium-3 liquide, système dégénéré bien plus dense.

2.1.2 L'hélium-3 liquide

Les effets de la statistique quantique sont plus complexes et moins bien connus dans la phase liquide que dans le gaz, car il s'agit alors d'étudier les effets du principe de Pauli dans un système dense, et non plus dans une phase diluée. L'effet de la polarisation nucléaire M est de confiner un peu plus les atomes d'hélium-3 (si le liquide est entièrement polarisé, les atomes ont pour voisins des

atomes de même spin, dont ils ne peuvent par conséquent s'approcher) et d'augmenter leur énergie cinétique, donc de diminuer (en valeur absolue) l'énergie de liaison des atomes dans le liquide. On s'attend alors, à basse température, à ce que l'hélium-3 liquide polarisé soit plus faiblement lié que le liquide non polarisé. Il est délicat d'estimer la différence entre ces énergies de liaison $\Delta E = E(^3He \uparrow) - E(^3He)$ car l'énergie de liaison de l'hélium-3 est le résultat d'une compétition entre deux grandeurs importantes (une énergie cinétique de l'ordre de 10 K par particule et une énergie potentielle de l'ordre de -12 K, qui donnent une énergie de liaison de -2.47 K). A faible aimantation et à température nulle, la modification de l'énergie de liaison est bien connue expérimentalement :

$$\Delta E = \frac{1}{2} \frac{\mu_n^2}{\chi} M^2 \quad (2.1)$$

où μ_n est le moment magnétique d'un atome d'hélium-3 et χ la susceptibilité magnétique du liquide. Si l'on extrapole à $M=1$ le comportement de l'énergie, on déduit de l'équation 2.1 que ΔE est de l'ordre de 0.2 K.

Examinons maintenant les effets d'une telle polarisation nucléaire sur l'équilibre liquide-vapeur de l'hélium-3 [Stringari 87], tout d'abord à très basse température. La pression de vapeur saturante du liquide ordinaire a la dépendance en température suivante (dérivée du potentiel chimique μ) :

$$P = 2AT^{5/2} \exp(E/kT) \quad (2.2)$$

où A est une constante et le coefficient 2 provient de l'entropie de spin. Dans le cas du liquide entièrement polarisé, la pression de vapeur saturante s'écrit :

$$P \uparrow = AT^{5/2} \exp(E \uparrow /kT) \quad (2.3)$$

Remarquons l'absence du facteur 2. car un gaz entièrement polarisé n'a pas d'entropie de spin. Il vient alors :

$$\frac{P \uparrow}{P} = \frac{1}{2} \exp\left(\frac{\Delta E}{kT}\right) \quad (2.4)$$

Il faut donc distinguer deux régimes : si la température est inférieure à une température T^* définie par

$$kT^* = \frac{\Delta E}{\ln 2} , \quad (2.5)$$

alors la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 polarisé est supérieure à celle de l'hélium-3 ordinaire. Dans le cas contraire, $P \uparrow < P$. Même si cette étude n'est valable qu'à faible température, la discussion reste qualitativement valable pour $T \geq T^*$. Cependant cette approche ne prévoit rien pour des polarisations intermédiaires (c'est-à-dire $|M| < 1$) et reste très qualitative.

Il n'existe pas de théorie analytique microscopique pour un liquide de Fermi dense permettant de quantifier le comportement prédit ; il faut donc recourir à des calculs numériques dans le

cadre d'un modèle approché ou utiliser les résultats d'une théorie phénoménologique. L'exemple le plus répandu d'une telle théorie est la théorie de Landau des liquides de Fermi : elle permet de comprendre de manière simple la physique de l'hélium-3, mais il n'est pas possible de calculer la valeur des paramètres phénoménologiques introduits. Quoiqu'il en soit, avec le modèle de Landau [Meyerovich], on s'attend dans l'hélium-3 liquide à un affaiblissement des interactions du liquide de Fermi, c'est-à-dire à une diminution de la masse effective des quasi-particules et à une augmentation de leur libre parcours moyen et de leur énergie cinétique. Ce qui est parfaitement en accord avec les arguments exposés en début de paragraphe.

D'autres théories phénoménologiques ont été mises en place, pour l'étude des phénomènes de transport dans les phases denses (dont le modèle presque ferromagnétique [Béal-Monod 68] et le modèle presque solide [Vollhardt 84]). Mais c'est l'étude de la thermodynamique dans les phases denses qui va nous intéresser ici.

2.2 Pression de vapeur saturante de l'hélium-3 liquide polarisé

L'étude de la thermodynamique de l'hélium-3 liquide polarisé est un sujet d'intérêt qui date de 1979, quand fut suggérée l'existence de nouvelles transitions de phases [Buu 98]. Car, même si les états d'équilibre de l'hélium-3 polarisé ne sont en fait que des états métastables (en bas champ, c'est-à-dire pour l'hélium-3 hyper-polarisé), la polarisation nucléaire M relaxant avec une constante de temps T_1 , on peut considérer M comme une variable au même titre que la densité, la pression ou la température, donc s'intéresser aux diagrammes de phase incluant la variable M .

A haute pression, les résultats obtenus semblaient indiquer la présence d'un régime "presque métamagnétique" [Wiegers 91], c'est-à-dire présentant une augmentation (proche d'une divergence) de la susceptibilité magnétique $\chi(M)$ pour certaines valeurs de la polarisation M . Mais ces résultats n'ont pas été confirmés par des mesures plus récentes [Buu 98].

Nous nous sommes intéressés quant à nous aux propriétés de l'hélium-3 liquide polarisé aux basses pressions, et en particulier à la pression de vapeur saturante. Le liquide étudié, moins dense, est en fait assez différent de celui considéré au début du paragraphe. Or il n'existait pas de résultats expérimentaux dans cette gamme, d'où l'intérêt d'effectuer une étude complémentaire par rapport aux hautes pressions.

2.2.1 Formalisme

La thermodynamique du système est décrite par la fonction énergie libre par unité de volume, qui s'écrit

$$f(\rho, M, T) = f_{ni}(\rho, M, T) + f_v(\rho, M, T) \quad (2.6)$$

où les variables sont la densité volumique ρ , la polarisation M ($-1 < M < 1$) et la température T . Dans cette expression, f_{ni} est la fonction énergie libre d'un gaz de Fermi sans interaction et f_v est la contribution due aux interactions. Cette dernière ne peut pas être calculée exactement, et un modèle phénoménologique est utilisé ici :

$$f_v = \frac{1}{2} [b_0 + b_1 M^2 + b_2 M^4] \rho^2 + \frac{1}{2} [c_0 + c_1 M^2 + c_2 M^4] \rho^{2+\sigma} \quad (2.7)$$

Ce modèle [Stringari 87] a été développé dans le cadre d'une théorie de champ moyen, dont le principe est emprunté à des méthodes d'approximation de la physique nucléaire. Les coefficients sont fixés dans la mesure du possible à partir des données expérimentales (connues surtout aux faibles polarisations) : les valeurs de b_0, c_0 et σ à température $T = 0$ K sont fixées de sorte à reproduire les valeurs expérimentales de l'énergie par particule E_0 , de la densité ρ_0 et de la compressibilité κ du liquide non polarisé. Parmi ces trois coefficients, il suffit de donner à b_0 une dépendance en température ; celle-ci est donnée par les valeurs expérimentales de la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 liquide non polarisé. Les valeurs de $b_1(T)$ et de $c_1(T)$ sont données par la connaissance expérimentale de la susceptibilité magnétique. Quant aux termes en M^4 , ils sont rendus nécessaires par des arguments théoriques : comme on s'attend à ce que pour certaines températures la pression de vapeur saturante du liquide entièrement polarisé $P_{sat}(T, 1)$ soit inférieure à celle du liquide non polarisé $P_{sat}(T, 0)$ (voir paragraphe 2.1.2), il est nécessaire d'introduire des termes supplémentaires pour permettre à la courbe $P_{sat}(T, M)$ de s'incurver (en effet, si l'on s'arrêtait aux termes en M^2 , la pression de vapeur saturante du liquide polarisé serait toujours supérieure à celle du liquide non polarisé (voir paragraphe 2.2.2)). A ce stade, et en l'absence de toute donnée expérimentale à très forte polarisation, cette forme très simple en M^4 a été choisie. En fait, les deux coefficients b_2 et c_2 vont être essentiellement déterminés par la donnée des quantités $E_0 \uparrow$ et $\rho_0 \uparrow$, valeurs par ailleurs inconnues expérimentalement, et qui seront donc des paramètres libres du modèle.

2.2.2 Résultats : détermination des diagrammes d'équilibre $P_{sat}(T, M)$

Les diagrammes $P_{sat}(T, M)$ calculés sont d'une grande richesse qualitative, car fortement dépendants en température T et aimantation M .

A faible polarisation ($M \ll 1$), on connaît l'allure des diagrammes d'équilibre, car ils sont donnés simplement par les constantes de susceptibilité magnétique χ . On sait qu'à l'équilibre liquide-vapeur,

$$\frac{M_G}{M_L} = \frac{\chi_G}{\chi_L} > 1 \quad (2.8)$$

et que la pression a un comportement parabolique (avec une courbure positive à l'origine) en champ magnétique B [Stringari 87]:

$$\frac{P(B) - P(0)}{P} = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_n B}{k_B T} \right)^2 \left(1 - \frac{\chi_L}{\chi_G} \right)$$

ce qui donne l'allure suivante (voir figure 2.1) pour le diagramme de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation M .

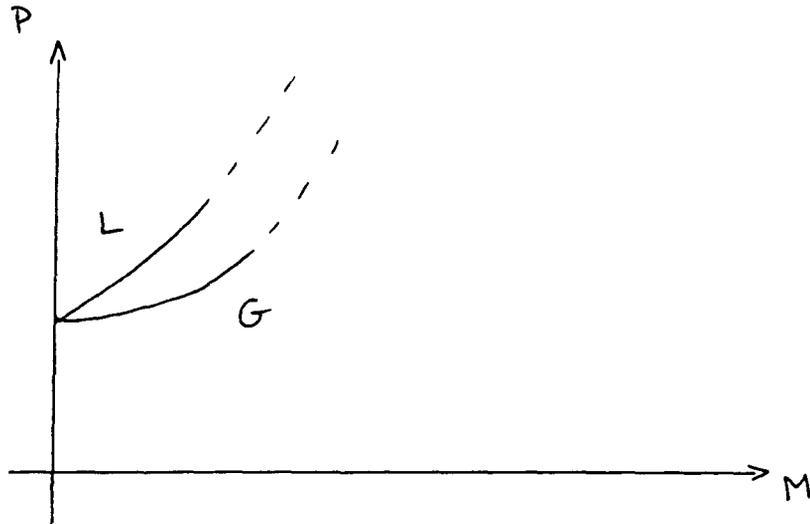


Figure 2.1: Diagramme de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation, pour les faibles valeurs de M .

En revanche, à forte polarisation, les questions sont ouvertes... et on s'attend à des allures très différentes. En particulier, les calculs de Stringari *et al* [Stringari 87] montrent le rôle clé joué par l'énergie par particule $E_0 \uparrow$ dans la thermodynamique de l'hélium-3 polarisé. Pour une valeur de cette énergie ($E_0 \uparrow = -2.4$ K) proche de celle de l'hélium-3 non polarisé (estimée à -2.47 K [Bouchaud 87]), on observe à basse température ($T=0.2$ K, figure 2.2) une instabilité correspondant à du métamagnétisme (c'est-à-dire à une divergence de la susceptibilité magnétique pour une certaine valeur de l'aimantation M , ce qui entraîne une séparation spontanée en deux phases liquides) : à haute pression, deux liquides de polarisations différentes sont en équilibre thermodynamique.

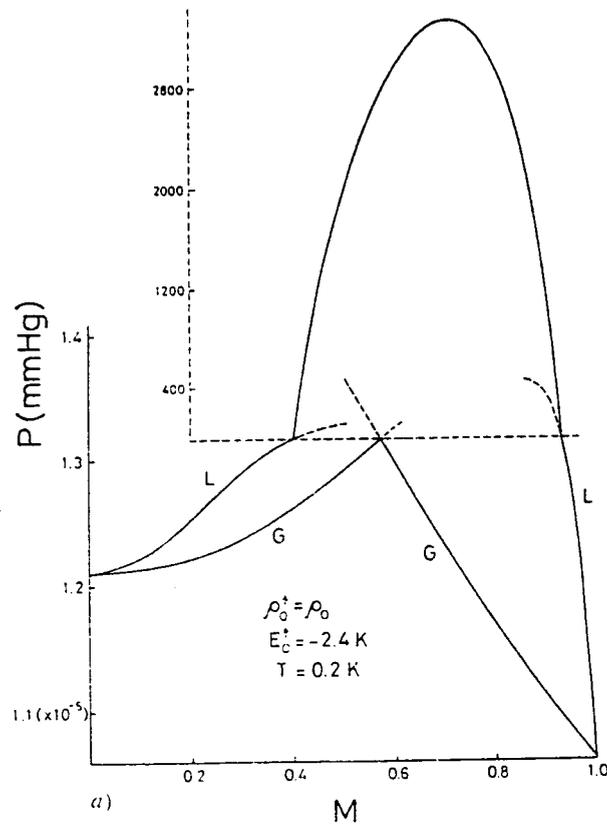


Figure 2.2: Diagramme de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation, lorsque $E_0 \uparrow = -2.4 \text{ K}$ et $T = 0.2 \text{ K}$. Les lignes de séparation du liquide (métamagnétisme) sont représentées dans la partie haute de la figure, à une échelle différente.

On n'observe pas, en revanche, de métamagnétisme si l'on suppose que l'énergie par particule du liquide polarisé est plus élevée ($E_0 \uparrow = -2.2$ K, figures 2.3a, b et c). Cependant, on voit que l'allure du diagramme de phase change considérablement lorsque la température augmente. En particulier, pour $T > 0.9$ K, et lorsque la polarisation est supérieure à 0.4 environ, le liquide est plus polarisé que la vapeur avec laquelle il est en équilibre :

$$\frac{M_G}{M_L} < 1 \quad (2.9)$$

C'est dans l'optique de déterminer de tels diagrammes de phase que nous avons mis au point notre montage expérimental. Nous avons en fait restreint notre étude à la mesure de la pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation dans le liquide seulement (ce qui ne nous donnera accès qu'à une des branches du diagramme).

Le modèle et l'application numérique de S. Stringari *et al* pourront fournir une grille d'analyses pour nos résultats expérimentaux. Mais leurs résultats laissent doré et déjà penser qu'il faut atteindre des polarisations supérieures à 0.4 pour trouver les effets les plus intéressants. Etant donnée l'expérience accumulée dans le groupe, il était raisonnable d'entreprendre des mesures de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation (et ce pour des valeurs allant jusqu'à 60 %).

2.3 Mise en oeuvre expérimentale

Il existe plusieurs méthodes pour mesurer expérimentalement la pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation, c'est à dire $P_{sat}(T, M)$.

2.3.1 Evolution temporelle de la pression de vapeur saturante

Comme l'aimantation d'un échantillon d'hélium-3 liquide polarisé relaxe avec une constante de temps T_1 (constante de temps de relaxation longitudinale, qui vaut 5 minutes dans le liquide pur), on peut imaginer d'enregistrer la pression de vapeur saturante en fonction du temps, lorsque M relaxe.

Si la température est fixe par ailleurs, on peut s'attendre à mesurer par exemple une évolution temporelle telle que représentée sur la figure 2.4a, que l'on sait traduire ensuite en une évolution de la pression en fonction de l'aimantation en appliquant la loi :

$$M \propto \exp\left[\frac{-t}{T_1}\right] \quad (2.10)$$

(figure 2.4b).

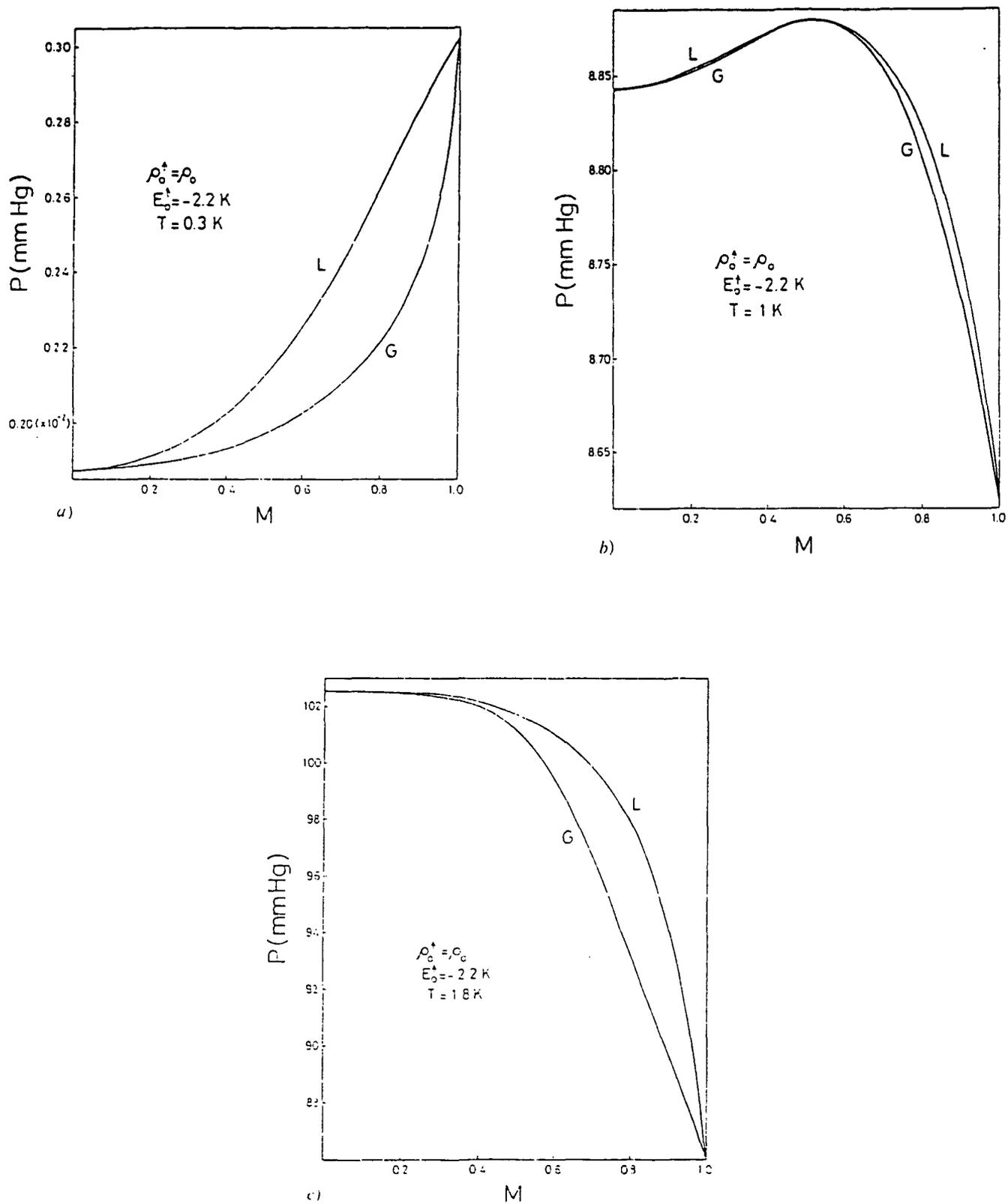


Figure 2.3: Diagrammes de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation, lorsque $E_0 \uparrow = -2.2$ K, pour différentes valeurs de la température.

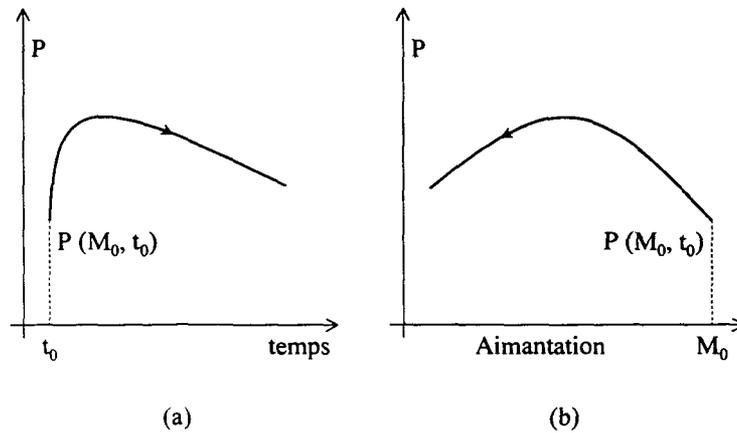


Figure 2.4: Exemple d'évolution attendue de la pression de vapeur saturante fonction du temps et de l'aimantation.

On voit qu'il y aura forcément une nette distorsion entre les courbes, car M varie rapidement en début de relaxation. Il faudra donc être capable de stabiliser très vite la température T du liquide pour avoir accès aux grandes valeurs de M .

De plus, une telle manipulation est très sensible aux dérives en température pendant le temps d'enregistrement (quelques T_1 , c'est-à-dire plusieurs minutes). Nous avons tout de même essayé de comparer $P(T, M)$ à $P(T, 0)$ en laissant relaxer l'aimantation : les résultats se sont avérés peu reproductibles, malgré les bonnes performances du cryostat.

Nous avons en fait envisagé une autre méthode de mesure de la pression de vapeur saturante : une mesure "point par point"...

2.3.2 Mesure de la pression de vapeur saturante "point par point"

Au lieu d'enregistrer l'évolution temporelle de P , nous allons mesurer une différence de pression $\Delta P = P_{sat}(T, M) - P_{sat}(T, 0)$, obtenue en quelques secondes par la destruction de l'aimantation. Cette mesure devra bien sûr être répétée autant de fois qu'on veut des mesures de la pression à T fixée et M donnée.

Cependant une telle méthode a l'inconvénient de provoquer un échauffement du liquide à chaque destruction : on mesure en fait à l'instant de la dépolarisation $\delta P = P_{sat}(T', M) - P_{sat}(T', 0)$, où $T' > T$... Cet effet a été observé lors de mesures préliminaires effectuées au laboratoire avec un cryostat peu

adapté à des mesures à température stable. Il a été interprété comme le résultat d'une transformation adiabatique, alors que la transformation isotherme recherchée ne pouvait être accessible avec un tel cryostat (d'où la construction d'un nouveau cryostat à hélium-3). L'exploitation de δP est complexe, car cette variation de pression dépend du volume effectif accessible à la vapeur. Les expériences préliminaires n'ont ainsi pu donner lieu à une comparaison avec les diagrammes adiabatiques (par manque de données expérimentales précises) ; nous chercherons, en revanche, à mener cette comparaison pour les expériences réalisées récemment (voir paragraphe 2.8).

Cet échauffement intervenait également dans la mesure envisagée au paragraphe précédent, mais il était alors progressif. Dans le cas présent, l'échauffement est moins bien évacué car il est instantané. En revanche, cette méthode présente le gros avantage de ne nécessiter une très bonne stabilisation thermique que pendant les quelques secondes que dure la mesure différentielle de la pression : il n'est pas nécessaire de stabiliser la température pendant plusieurs minutes...

Comme nous disposons maintenant d'une bonne stabilité thermique, nous devrions être capables de voir, après un échauffement transitoire, le retour en quelques secondes à la température initiale, et donc de mesurer ΔP .

On s'attend en définitive à une courbe expérimentale du type de celle représentée sur la figure suivante:

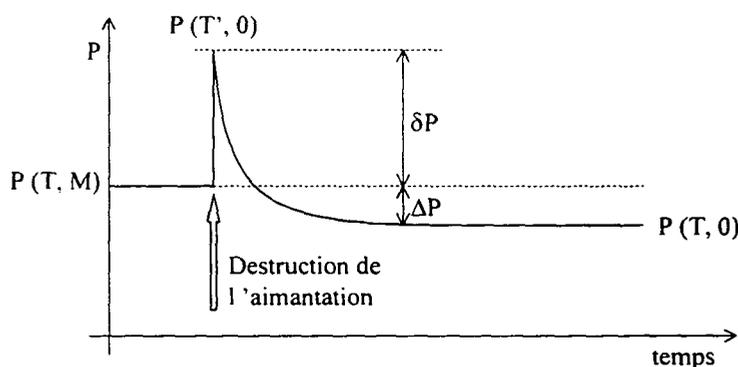


Figure 2.5: Courbe "idéale" attendue lors de la mesure de la pression en fonction du temps.

Sur le plan expérimental, une fois liquéfié l'hélium-3 polarisé, il va s'agir de stabiliser rapidement la température à la valeur choisie. Il faut être beaucoup plus rapide que le temps de relaxation

longitudinale de l'aimantation (typiquement 5 minutes)...

Il s'agit ensuite de mesurer l'aimantation de façon non destructive (par une petite impulsion RMN) avant de la détruire totalement par une impulsion RMN saturante.

2.4 La jauge de pression

La mesure précise de faibles pressions à basse température est une des grandes difficultés de cette expérience.

Les expériences sont en effet rendues délicates par la faiblesse du signal à mesurer d'une part, par les problèmes liés à la mise en oeuvre et au fonctionnement du capteur à basse température d'autre part (effectuées à température ambiante, les mesures deviennent imprécises à cause des corrections dues à l'effet thermomoléculaire), et enfin par des difficultés d'étalonnage et de reproductibilité.

A partir des travaux réalisés par divers groupes [Collaudin 86] [Landau 70], nous avons développé une jauge permettant de mesurer in situ les variations de pression dans notre cellule d'hélium-3 (variations attendues de l'ordre du mTorr). Sa haute sensibilité permet en théorie l'étude de l'effet de la destruction de l'aimantation sur la pression de vapeur saturante dans la gamme de températures qui nous intéresse (entre 0.45 K et 0.7 K en pratique).

Celle-ci devait répondre à certaines spécificités de notre expérience : en particulier l'amagnétisme, un faible encombrement et une parfaite étanchéité à basse température. Le principe de mesure retenu a été celui d'une jauge capacitive : une variation de pression pousse une membrane flexible métallisée, placée face à une électrode métallique fixe, ce qui induit une variation de la capacité C du condensateur ainsi formé.

La capacité C est mesurée au moyen d'un pont de capacité de haute résolution (Andeen Hagerling, modèle 2500A) qui permet une lecture du centième de fF. Nous verrons que nos capteurs de pression ont une sensibilité de l'ordre du pF/Torr : le pont de capacité utilisé permet donc de disposer d'une bonne résolution en pression.

La jauge de pression est immergée dans le bain d'hélium-4 du cryostat, à une température constante de 4,2 K, ce qui assure une bonne stabilité mécanique.

Pour des raisons d'encombrement et d'étanchéité, la jauge est constituée d'une membrane en-serrée entre une électrode percée reliée à la cellule et un "bouchon", assez profond pour ne pas influencer sur la valeur de la capacité (voir figure 2.6).

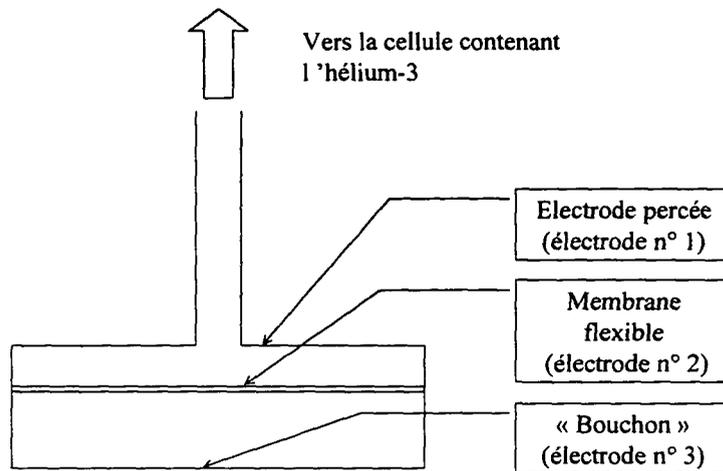


Figure 2.6: Principe de la jauge capacitive.

2.4.1 Principe de fonctionnement

Afin de dégager les paramètres déterminant la sensibilité, nous commençons par étudier ici le fonctionnement théorique du capteur capacitif.

On considère pour simplifier une électrode circulaire de forme plane et de rayon R_e , sur laquelle est fixée à une distance e la membrane flexible (voir figure 2.7). Celle-ci est métallisée sur un disque de rayon R . On notera $\Psi(r)$ l'écart de la membrane à l'électrode fixe, pour un point situé au rayon r ($r < R$) du centre. On ne tiendra pas compte du fait que l'électrode est percée (le diamètre du trou étant beaucoup plus petit que R) .

On définit alors la capacité C comme étant :

$$C = \varepsilon_0 \int_0^R \frac{2\pi r dr}{\Psi(r)} \quad (2.11)$$

Or, à la distance r du centre de la membrane, la condition d'équilibre entre les forces de tension et de pression s'écrit [Collaudin 86]:

$$\Delta P = \frac{2T}{r} \frac{d\Psi}{dr} \quad (2.12)$$

où la tension T est égale au produit de la contrainte de traction de la membrane σ par son épaisseur d . Cette contrainte est elle-même la somme d'une contrainte initiale constante σ_0 (provenant d'une part de la tension initiale de la membrane lors du montage à température

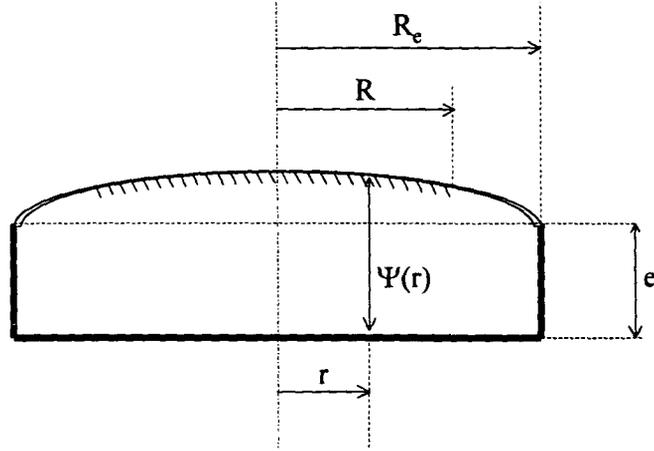


Figure 2.7: Notations pour le calcul de la capacité

ambiante, et, d'autre part, des contractions thermiques différentielles entre la membrane et son support lors du refroidissement de la cellule) et d'une contrainte $\delta\sigma$ (négligeable en pratique) due à la déformation de la membrane.

Doù :

$$\Psi(r) = e + \frac{\Delta P}{4T} (R_e^2 - r^2) \quad (2.13)$$

Ce qui correspond à une capacité C :

$$C = -\frac{\varepsilon_0 4\pi T}{\Delta P} \ln \left(1 - \frac{R^2}{R_e^2 + \frac{4Te}{\Delta P}} \right) \quad (2.14)$$

On note P_{max} la pression à partir de laquelle la membrane touche la surface :

$$P_{max} = -\frac{4Te}{R_e^2} \quad (2.15)$$

et C_0 la capacité à vide :

$$C_0 = \frac{\pi\varepsilon_0 R^2}{e} \quad (2.16)$$

On peut alors réécrire C sous la forme :

$$C = C_0 \frac{P_{\max}}{\Delta P} \ln \left(\frac{1 - \left(1 - \frac{R^2}{R_e^2}\right) \frac{\Delta P}{P_{\max}}}{1 - \frac{\Delta P}{P_{\max}}} \right) \quad (2.17)$$

et, en développant aux faibles pressions :

$$C = C_0 \frac{R^2}{R_e^2} \left[1 + \left(1 - \frac{1}{2} \frac{R^2}{R_e^2}\right) \frac{\Delta P}{P_{\max}} \right] \quad (2.18)$$

On définit la sensibilité S :

$$S = \frac{dC}{d\Delta P} \quad (2.19)$$

$$S = C_0 \frac{R^2}{R_e^2} \frac{1}{P_{\max}} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{R^2}{R_e^2}\right) \quad (2.20)$$

La sensibilité sera d'autant meilleure que le rayon de la surface de métallisation sera proche de celui de l'électrode qui lui fait face. A la limite où $R = R_e$, on voit que:

$$S = \frac{C_0}{2P_{\max}} \quad (2.21)$$

La sensibilité sera encore augmentée si on prend une grande capacité à vide C_0 (c'est à dire une grande surface et une faible distance e entre armatures) et une faible pression de contact P_{\max} . Cette dernière condition correspond aussi à e petit, mais encore à une membrane de faible épaisseur d et tendue faiblement (c'est-à-dire à une faible valeur de σ). Il faut donc appliquer une faible tension à la membrane au montage, mais aussi choisir des matériaux de coefficients de dilatation comparables pour la membrane et son support, afin de minimiser les contraintes thermiques différentielles (ce qui exclue en particulier les membranes plastiques) .

2.4.2 Réalisation de la jauge de pression

Choix des matériaux La membrane est réalisée en polyimide "kapton" de 13 μm d'épaisseur. Une face de la membrane est métallisée par pulvérisation cathodique d'or, après dépôt d'une couche d'accrochage en NiCr. L'épaisseur totale du dépôt est 4300 Å. La forme du dépôt (obtenue en interposant un masque lors de la pulvérisation) est celle d'un disque de diamètre 12 mm, avec une languette de largeur 1 mm et de longueur 8 mm qui permet d'assurer le contact électrique avec les fils de mesure (voir figure 2.8a).

Le contact électrique lui-même est assuré par un collage à la laque à l'argent, consolidé par du stycast 1266. Il s'est avéré un des éléments délicats de la réalisation de notre capteur : nombreux sont les capteurs dont le contact électrique sur la membrane n'a pas résisté aux cyclages thermiques !

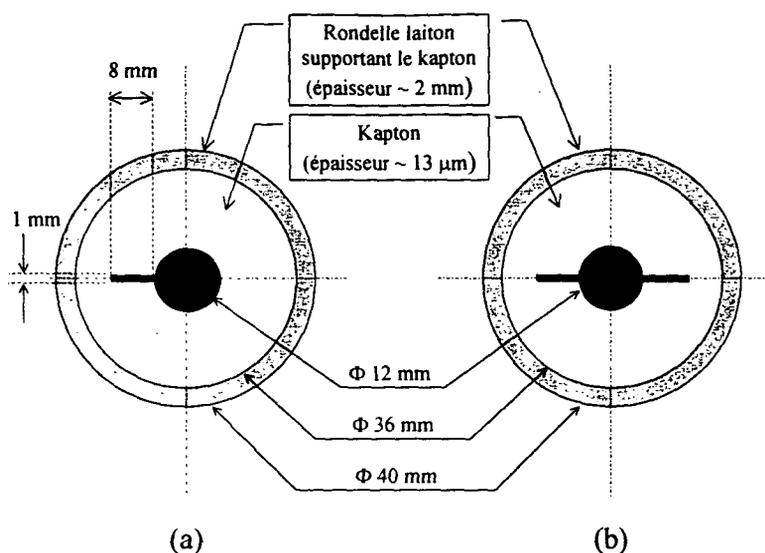


Figure 2.8: Dépôt d'or sur membranes de kapton

Un autre point délicat a été le dépôt lui-même, qui avait une fâcheuse tendance à se craqueler et se décoller par endroits, après quelques cyclages thermiques : les exemplaires de membrane métallisée dont nous disposions initialement, rarement couverts d'un dépôt uniforme, et ne disposant pas d'une couche d'accrochage, avaient malheureusement souvent cette caractéristique (d'autant plus gênante si la craquelure se formait sur la languette).

C'est pourquoi nous avons cherché d'une part à faire réaliser de façon industrielle (société ACM) nos dépôts d'or sur kapton, d'autre part à leur donner une autre forme : deux languettes diamétralement opposées permettant d'assurer une plus grande sécurité en cas de perte du contact électrique (voir figure 2.8b).

L'électrode fixe et le "bouchon" sont réalisés dans le même matériau, à savoir du cuivre ou de l'inox, ce qui permet de relier simplement (et sans crainte de fuite) le capteur à la cellule de verre contenant l'hélium-3, au moyen d'un joint verre-métal du type de ceux utilisés pour la réalisation du cryostat.

Enfin, l'assemblage entre membrane et électrodes est réalisé au moyen de stycast 1266, consolidé par la suite avec un gros ruban de stycast 2850 (moins fluide et donc moins apte à former une couche très fine entre électrodes) autour du capteur ainsi formé.

Un tel collage supporte très bien les cyclages thermiques car le coefficient de contraction thermique de la résine chargée (du type du stycast 2850) s'approche de celui des métaux utilisés, contrairement à la résine ordinaire qui possède un coefficient de contraction thermique trois fois

plus important que celui du métal.

Choix des dimensions Comme on l'a vu, l'écartement entre électrodes doit être le plus faible possible. Il sera assuré en pratique par la lèvre de l'électrode percée, dont la surface est en retrait d'environ $20\ \mu\text{m}$. La lèvre en question est un anneau de diamètre intérieur 16 mm et extérieur 18 mm, lui-même séparé de la surface plane (de diamètre 14 mm) par une petite gorge, dont la fonction est de garder prisonnier un éventuel excès de colle qui aurait "bavé" lors de l'assemblage (voir figure 2.9).

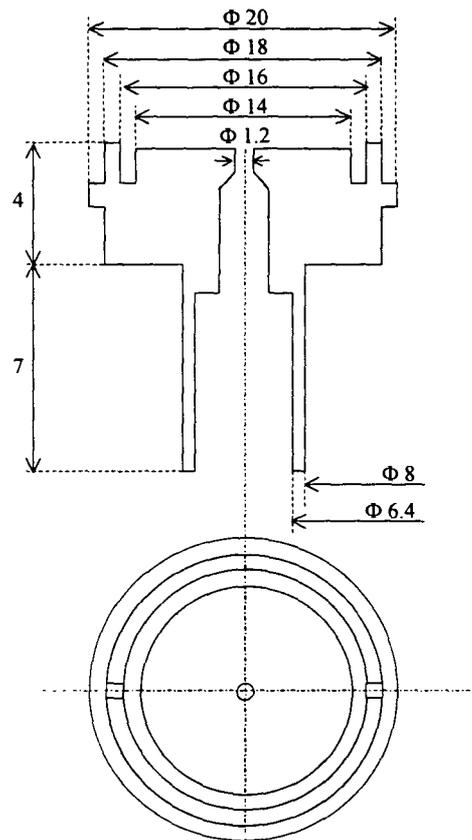


Figure 2.9: Dimensions de l'électrode percée (électrode 1)

La lèvre est fendue sur 1.7 mm de large afin de laisser passer la languette métallisée de l'électrode mobile (éventuellement en deux fentes diamétralement opposées si la membrane dispose de deux languettes).

Il faut faire bien attention lors de l'assemblage à la concentricité de la membrane et de l'électrode percée d'une part, au centrage de la languette sur la fente d'autre part, et ce afin de ne pas créer

de court-circuit entre les deux électrodes. Une épaisseur minimale de stycast 1266 est également requise.

L'électrode fixe est percée d'un trou de diamètre 1.2 mm sur une longueur de 1 mm, qui limite d'une part les déformations de la membrane lors d'une dépression dans la cellule (voir plus loin), tout en laissant facilement les pressions s'équilibrer de part et d'autre. Enfin, elle est collée (cas du cuivre) ou soudée à l'arc (cas de l'inox) sur un joint verre-métal de même nature, afin d'être reliée au choix à un banc d'étalonnage ou à la cellule expérimentale.

Comme on l'a vu, le capteur est fermé par un bouchon en métal, dont la fonction est multiple : il protège la membrane de toute agression extérieure, permet une plus grande consolidation du capteur, renforce l'étanchéité de l'ensemble (car le kapton n'est pas parfaitement étanche à l'hélium (surtout à température ambiante), or le capteur est relié en permanence à la cellule contenant de l'hélium-3)... Ce bouchon consiste en une surface plane considérablement éloignée de l'électrode mobile au moyen d'une lèvre de diamètres intérieur 16 mm et extérieur 18 mm, de profondeur 2 mm (voir figure 2.10). La lèvre vient parfaitement s'adapter sur la lèvre de l'électrode percée, afin d'enserrer la membrane de kapton. Sur l'extérieur, une couronne de diamètre 20 mm (qui existe également sur l'électrode fixe en regard) permettra une meilleure adhérence du ruban de stycast 2850 utilisé pour assurer l'étanchéité et consolider le capteur.

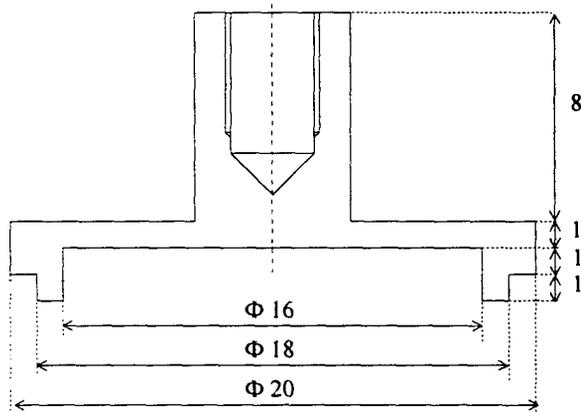


Figure 2.10: Dimensions du bouchon

Assemblage des différents éléments La contraction thermique du métal étant plus faible que celle du kapton, il n'est pas critique de tendre la membrane lors du collage à l'ambiante, mais on appliquera une tension suffisante pour que la membrane soit toujours tendue : on ne veut pas en

effet qu'elle gondole et provoque un court-circuit avec l'électrode en regard, en particulier lors des mesures à température ambiante.

On a également vu que la concentricité et l'orientation de la membrane et de l'électrode percée était d'une extrême importance. La concentricité avec le "bouchon" est moins critique; néanmoins, une bonne étanchéité et l'assurance de ne pas pincer la membrane au risque de la fragiliser nécessitent une grande attention lors de ce collage aussi.

Pour tendre la membrane d'une part, et bien aligner les pièces les unes par rapport aux autres d'autre part, nous avons conçu un banc d'assemblage qui permet une bonne reproductibilité des manipulations (voir figure 2.11).

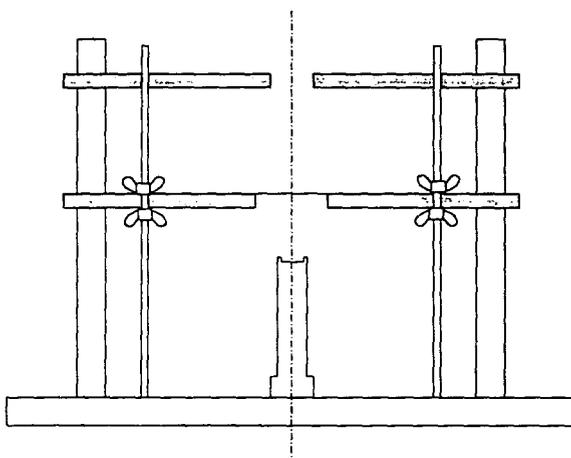


Figure 2.11: Banc d'assemblage du capteur de pression.

L'électrode percée est maintenue dans un support de dural qui assure le parallélisme entre les surfaces horizontales de l'ensemble du dispositif. Sa lèvre est couverte d'une fine couche de stycast 1266. La membrane, précollée sur un anneau de laiton de diamètres 36×40 mm, lui-même fixé à une plaque de dural asservie à descendre horizontalement par des guides verticaux, est approchée, face métallisée vers le bas. On peut réaliser cette opération une première fois "à vide" afin de vérifier orientation et position de la membrane par rapport à celle de l'électrode percée et de sa fente. La tension de la membrane est réalisée par le poids de la plaque dural, et limitée par la hauteur de cette même plaque (que l'on peut fixer par un système de vis). Il suffit de changer la hauteur de la plaque dural coulissante pour régler la tension de la membrane. Toute cette opération

est parfaitement reproductible.

Afin de s'assurer de l'absence de court-circuit lors du collage, on peut coller à la laque à l'argent un fil de cuivre provisoire qui permet de suivre les variations de capacité entre la membrane et l'électrode fixe.

On laisse alors sécher 24 h l'ensemble, à la chaleur d'une lampe dans un premier temps, ce qui présente l'avantage de fluidifier d'avantage la résine par rapport à la température ambiante (donc de s'assurer que le collage sera bien étanche, en particulier au niveau de la (ou des) fente(s) ménagée(s) dans l'électrode fixe).

Lorsque le premier collage est sec, on désolidarise la rondelle en laiton portant la membrane de la plaque de dural, qui se retire alors, et laisse place à une autre plaque dural qui porte le bouchon ; celui-ci est ainsi automatiquement centré, et sa surface de contact parallèle aux autres surfaces horizontales du banc. On l'approche alors, après avoir couvert sa lèvre d'une fine couche de stycast 1266, de la même manière qu'on a approché la membrane la veille. Et on le laisse sécher dans les mêmes conditions, avec un ressort comprimé sur le dessus afin de bien plaquer toutes ces surfaces en regard (voir figure 2.12)...

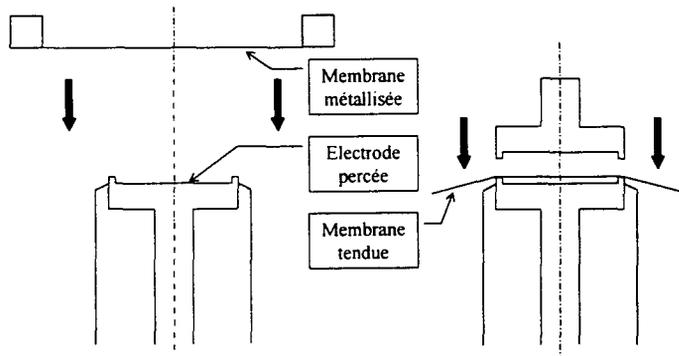


Figure 2.12: Mode d'assemblage du capteur de pression.

Le collage à la laque à l'argent d'un ou deux fils de cuivre assez fins pour ne pas imposer leur raideur à la membrane (un fil de cuivre émaillé de diamètre 0.1 mm convient bien en pratique), ceci assez près de l'électrode fixe pour lui être fixé également (mais sans contact électrique !) à l'aide de résine epoxy, donne un capteur parfaitement fonctionnel, mais qui en fait ne supporte pas bien

les cyclages thermiques. C'est pourquoi nous avons finalement recours à un dernier collage : un gros ruban de résine epoxy chargée, qui s'appuie sur les deux couronnes extérieures aux électrodes métalliques, vient assurer une bonne stabilité thermique à l'ensemble (voir figure 2.13).

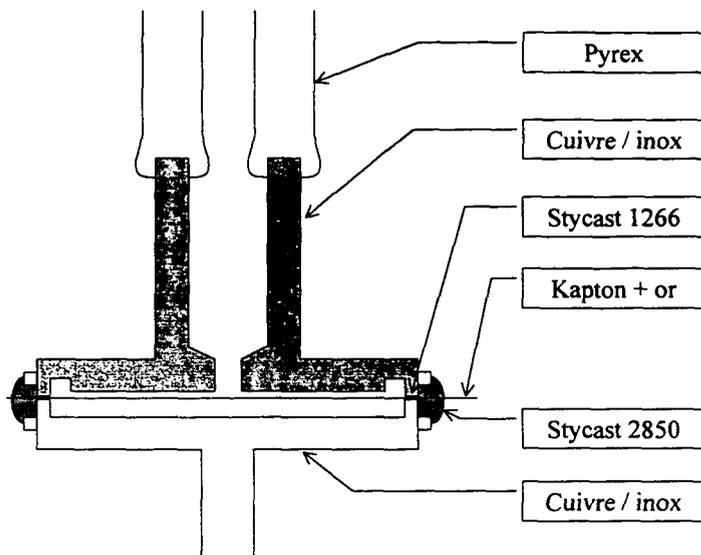


Figure 2.13: Allure générale de la jauge capacitive.

Reste que pour mettre au point les conditions précises d'assemblage, nous avons dû concevoir un système permettant de tester le capteur indépendamment du cryostat à hélium-3 : il s'agit en fait d'une canne coulissant dans un bouchon pneurop adaptable à un bidon d'hélium-4 commercial (voir figure 2.14), et permettant la mesure des capacités en jeu dans le capteur ainsi que la mesure approximative de la température au niveau du capteur (afin de ne pas causer de trop brusque refroidissement lors de la descente progressive du capteur dans le bidon...).

Mais avant de mentionner l'étalonnage du capteur, il faut revenir sur la conception à trois électrodes de ce dernier.

2.4.3 Influence du bouchon

Capacités équivalentes Nous ne disposons pas en fait d'une seule capacité, mais d'un ensemble de trois capacités répondant au schéma électrique représenté sur la figure 2.15. Si l'on veut retrouver les paramètres introduits dans le modèle théorique, il faut calculer la capacité intrinsèque aux électrodes considérées, à savoir γ_{12} .

On peut déduire les capacités intrinsèques γ_{ij} des mesures des trois capacités C_{ij} mesurées entre

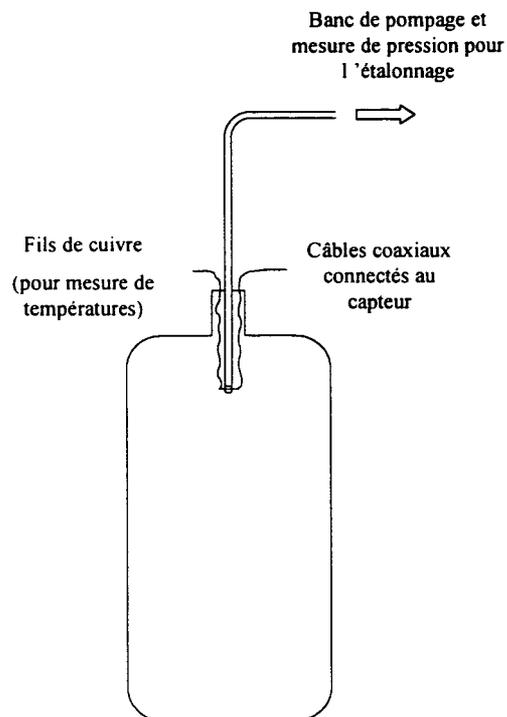


Figure 2.14: Montage permettant de tester le capteur de pression à 4 K.

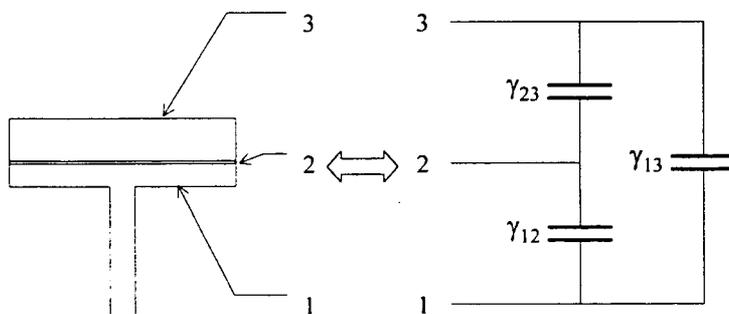


Figure 2.15: Schéma électrique équivalent.

deux électrodes i et j selon les formules suivantes :

$$C_{12} = \gamma_{12} + \frac{\gamma_{23}\gamma_{13}}{\gamma_{23} + \gamma_{13}} \quad (2.22)$$

$$C_{13} = \gamma_{13} + \frac{\gamma_{23}\gamma_{12}}{\gamma_{23} + \gamma_{12}} \quad (2.23)$$

$$C_{23} = \gamma_{23} + \frac{\gamma_{12}\gamma_{13}}{\gamma_{12} + \gamma_{13}} \quad (2.24)$$

Mais il est en fait plus simple de déduire γ_{ij} des capacités $C_{i,j=k}$ mesurées en portant deux électrodes j et k au même potentiel :

$$\gamma_{12} = \frac{1}{2}(C_{1,2=3} + C_{2,1=3} - C_{3,1=2}) \quad (2.25)$$

$$\gamma_{13} = \frac{1}{2}(C_{1,2=3} + C_{3,1=2} - C_{2,1=3}) \quad (2.26)$$

$$\gamma_{23} = \frac{1}{2}(C_{3,1=2} + C_{2,1=3} - C_{1,2=3}) \quad (2.27)$$

La mesure des trois dernières capacités à vide d'un des deux capteurs finalement retenus (il s'agit ici de celui en inox) donne :

$$C_{1,2=3} = 65.1 \text{ pF} \quad (2.28)$$

$$C_{2,1=3} = 31.3 \text{ pF} \quad (2.29)$$

$$C_{3,1=2} = 44.6 \text{ pF} \quad (2.30)$$

D'où on déduit la capacité qui nous intéresse :

$$\gamma_{12} = 26.0 \text{ pF} \quad (2.31)$$

ce qui correspond à une distance e entre électrodes à vide de l'ordre de 38 μm . Cette valeur n'a rien d'étonnant, vue la précision attendue sur la profondeur de la lèvre d'une part, et étant donné la présence d'une épaisseur de colle entre l'électrode fixe et la membrane.

Le calcul de la capacité γ_{23} mène à

$$\gamma_{23} = 5.4 \text{ pF} \quad (2.32)$$

Dans ces conditions, il est délicat de négliger les capacités apportées par les fils de mesure, et on ne peut bien sûr pas s'attendre à retrouver par un calcul simple un écartement de 2 mm entre bouchon et membrane.

Enfin, à partir du calcul des capacités intrinsèques, on peut retrouver les capacités C_{ij} et vérifier que ces valeurs sont cohérentes avec nos mesures (à la restriction émise précédemment près).

Contenu du bouchon Le bouchon ayant été assemblé à température ambiante, en présence d'air, nous nous attendons à ce qu'il renferme une pression égale à la pression atmosphérique (du jour du collage). Les mesures d'étalonnage à température ambiante se feront donc autour de la pression atmosphérique.

En revanche, à basse température, le capteur étant immergé dans un bain d'hélium-4, la pression à l'intérieur du bouchon sera celle de vapeur saturante de l'air à 4 K, c'est à dire totalement négligeable ! On aura donc accès à une mesure de pression différentielle autour de 0 mTorr, c'est à dire une mesure absolue de la pression.

En fait, la mesure de variation de pression, lors de la destruction de l'aimantation de l'hélium-3 liquide, se fera autour de la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 dans la gamme de température considérée, c'est à dire entre 0.1 et 1.3 Torr.

2.4.4 Etalonnage du capteur

Nous avons bien sûr commencé par caractériser les capteurs à température ambiante, avant de leur faire subir plusieurs cyclages à froid ; ceci nous a permis entre autres de vérifier la reproductibilité de nos mesures (et donc l'état de notre capteur) après cyclage.

La mesure de pression pour ces tests à température ambiante est effectuée par un baratron différentiel sensible à des pressions comprises entre 0 et 10 Torr autour de la pression atmosphérique (modèle 223 BD MKS Instruments).

La mesure de capacité est effectuée par un pont de capacité à haute résolution travaillant à 1 kHz. Chaque câble électrique menant au capteur est indépendamment écranté afin que le pont de capacité mesure la capacité du capteur seul. Il s'agit en pratique de câbles coaxiaux en inox, rendus étanches au niveau du passage par le bouchon du bidon d'hélium-4. Enfin, une boîte de commutation permet d'accéder par une manipulation simple aux six capacités mises en jeu, à savoir les C_{ij} et les $C_{i,j=k}$.

La capacité C_{12} d'un des capteurs (en l'occurrence le capteur en inox qui sera finalement retenu), mesurée sur une gamme de pression allant de 0 à +10 Torr au-delà de la pression atmosphérique, est représentée sur la figure 2.16.

La sensibilité autour de $\Delta P = 0$ est de 0.6 pF/Torr, ce qui donne au système une résolution d'environ 10^{-5} Torr avec notre pont de capacité. La reproductibilité de cette courbe, en dehors de tout cyclage thermique, est bonne, la sensibilité variant de moins de 5 %.

Après cyclage à froid, la sensibilité varie légèrement, en fonction des pressions différentielles maintenues de part et d'autre du capteur lors du cycle refroidissement/réchauffement. Nous nous sommes efforcés de maintenir ces conditions constantes en gardant la canne (et donc un côté du

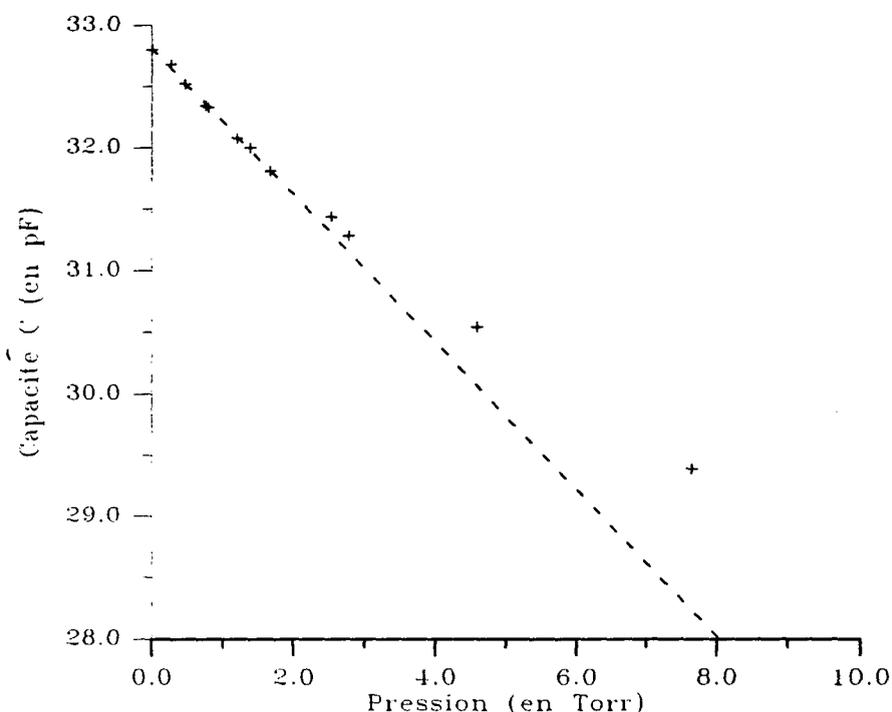


Figure 2.16: Courbe d'étalonnage du capteur en inox à température ambiante.

capteur) sous vide ; en revanche, la pression dans le bouchon est directement imposée par la température, et nous ne pouvons influer dessus.

Une fois le capteur parfaitement caractérisé à chaud, reste à en faire autant à froid. Le système que nous avons conçu permet de faire un étalonnage à la température de l'hélium-4 liquide, dans des conditions proches de celles de notre expérience future. Comme nous l'avons déjà mentionné, le capteur est descendu progressivement (pour ne pas créer de choc thermique) dans un bain d'hélium-4, tout en étant maintenu sous vide pour sa partie reliée à la canne. Très vite, la pression du côté du bouchon devient suffisamment faible pour que la membrane, jusque là plaquée contre l'électrode percée, reprenne une position plus naturelle, et que nous puissions suivre l'évolution de la capacité C_{12} . Une fois le capteur bien stabilisé thermiquement, nous pouvons procéder à un étalonnage. Nous disposons pour cela d'un volume mort qui permet de préparer une légère surpression, et d'un manomètre baratron absolu, sensible dans une gamme de pression allant de 0 à 10 Torr. Le manomètre n'est pas capable évidemment de mesurer des petits changements de pression, mais nous nous contentons d'extrapoler les mesures accessibles pour déterminer la sensibilité qui nous intéresse.

Lors de cet étalonnage à froid, nous n'avons pas tenu compte des corrections dues à l'effet

thermomoléculaire, une étude récente [Collaudin 86] nous ayant montré que la sensibilité de la jauge de pression n'était pas affectée par de telles corrections.

La courbe d'étalonnage sur le capteur en inox obtenue à 4 K est représentée sur la figure 2.17. La sensibilité a été largement augmentée : elle vaut maintenant 2.8 pF/Torr. Ce capteur pourra donc parfaitement être utilisé pour les mesures de variation de pression que nous envisageons : sa sensibilité dans les conditions expérimentales futures est suffisante pour détecter des variations de pression de l'ordre de 10^{-5} Torr.

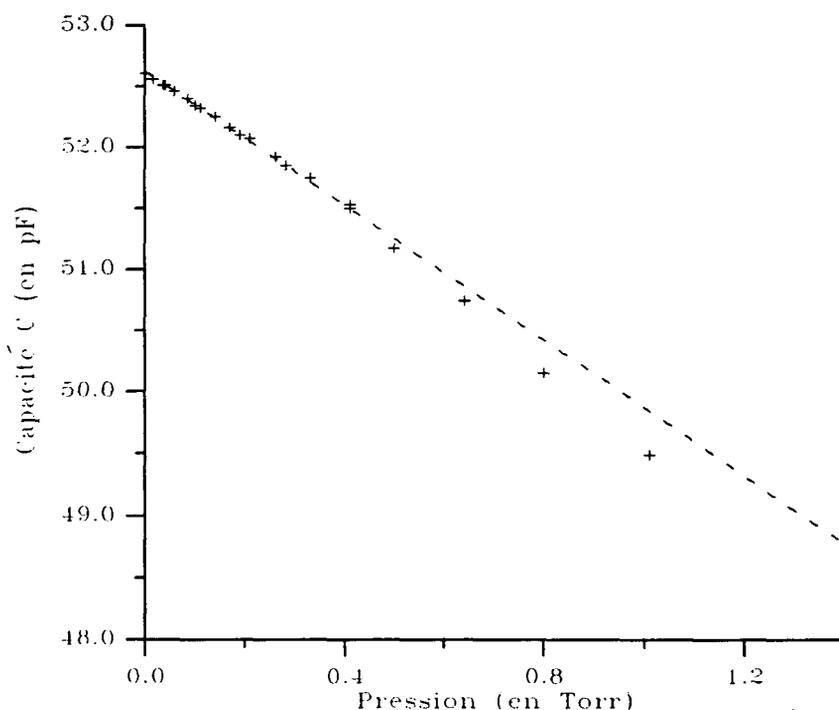


Figure 2.17: Courbe d'étalonnage du capteur en inox à 4 K.

Bien sûr, en pratique, rien n'est si simple, et il a fallu de nombreux essais avant de trouver la configuration qui permettait d'obtenir un capteur fonctionnel : choix des matériaux constituant les électrodes fixes (en particulier, des essais de collage entre une électrode en métal (cuivre ou inox) et une électrode en résine (araldite D ou stycast 1266), ce qui aurait permis de s'affranchir de l'influence électrique du bouchon sur la capacité, ont montré que ce choix n'était pas adapté aux cyclages thermiques), choix de la colle pour lier le kapton au métal (pour laquelle on nous avait conseillé de l'araldite D et mis en garde contre le stycast ! Des essais systématiques infructueux nous ont amenés à retourner ce conseil...ce qui s'est avéré payant), choix de la colle pour consolider l'ensemble (la résine chargée s'étant avérée beaucoup plus apte à supporter les cyclages thermiques que sa petite

soeur), méthode de fixation des fils de connexion électrique sur la membrane métallisée...sans oublier la tension initiale donnée au kapton et la fabrication du dépôt d'or dessus.

Enfin, après de nombreuses semaines de "collage", après avoir réalisé une dizaine de capteurs, nous disposons enfin de deux capteurs (l'un en cuivre et l'autre en inox) opérationnels à température ambiante comme à 4 K, prêts à être soudés sur une double cellule de verre...

2.5 Cellules d'hélium-3 avec capteur à 4 K. Description. Premières expériences

2.5.1 Préparation

Le capteur est soudé à la cellule expérimentale sur un coude aménagé au niveau du tube situé sous le gros réservoir (voir figure 1.7, cellules 1 à 3). Il doit en effet être situé de façon permanente dans le bain d'hélium-4 pour profiter d'une grande stabilité thermique. De plus, on ne peut déposer un film de césium sur la surface métallique du capteur, et on ne contrôle pas la relaxation de l'aimantation sur sa surface. Il vaut mieux par conséquent que celui-ci soit situé assez loin de la cellule expérimentale pour que la relaxation sur le capteur ait un effet négligeable sur l'aimantation de l'échantillon de liquide qui nous intéresse.

Cette soudure est effectuée avant étuvage et remplissage de la cellule. Ceux-ci ont été décrits dans la première partie de notre exposé. Je voudrais juste faire remarquer ici les conditions où se trouve le capteur pendant cette phase : du côté de l'électrode percée, la pression est très faible, alors que du côté du bouchon, il règne une pression proche d'1 Bar. La membrane se trouve donc plaquée contre l'électrode percée, et ce pendant quelques jours. Nous avons cherché à réduire la surchauffe due à la proximité de l'étuve (rappelons que seul le bas de la cellule ne pouvait y entrer, afin de ne pas chauffer le capteur, lui-même isolé thermiquement par de la laine de verre) en envoyant dessus un courant d'air froid en continu. Mais il est évident que ce traitement ne pouvait laisser la membrane indifférente (en particulier, on s'attend à des déformations de cette dernière) : seule une descente à froid de la cellule (et donc une forte dépression côté bouchon) nous permettant de vérifier les caractéristiques du capteur de pression.

2.5.2 Première cellule

En pratique, cette étape de préparation n'a pas posé de problème au premier capteur (en cuivre), qui a retrouvé une bonne sensibilité à froid (de l'ordre de 3.5 pF/Torr). Malheureusement, aucun signal RMN indiquant la présence de liquide polarisé dans la cellule expérimentale (à 0.5 K) n'a pu être détecté, alors que le gaz contenu dans la tête de la cellule avait une polarisation nucléaire

pouvant atteindre 60 %. Nous avons tout d'abord accusé une mauvaise répartition du césium sur la surface de la cellule, avons donc réchauffé celle-ci et refait l'enduit de césium. Ayant par la suite obtenu un petit signal RMN indiquant la présence de liquide très faiblement polarisé (moins de 1 %, mesuré par de grands angles de basculement), nous avons renouvelé cette manipulation, hélas sans grand effet !

Nous avons finalement renoncé à utiliser cette cellule, pensant à une contamination de la surface césiée : il est apparu en effet une légère couleur bleutée sur le césium, au niveau du coude menant de la cellule expérimentale au capteur. C'est pourquoi nous avons préparé une deuxième cellule expérimentale, à laquelle nous avons relié le capteur en inox.

2.5.3 Deuxième cellule

L'étape de préparation s'est cette fois avérée très préjudiciable au deuxième capteur (une résistance de quelques ohms entre les électrodes 1 et 2, c'est à dire entre les fils de cuivre menant à la membrane et à l'électrode percée, s'est maintenue malgré la descente à froid) , c'est pourquoi nous avons imaginé une modification utile : afin de s'assurer que de l'hélium-3 n'avait pas diffusé à travers la membrane de kapton et gênait le rééquilibrage des pressions de part et d'autre, nous avons percé *in situ* (c'est-à-dire le capteur étant toujours relié à la cellule) le bouchon et l'avons muni d'un capillaire en cupro-nickel de diamètres 0.4×0.7 mm, collé précautionneusement au stycast 2850 (il n'était pas question de laisser de la résine se glisser dans le bouchon, au risque de plaquer la membrane). Le cupro-nickel a été, à l'autre bout, relié à une ligne à vide du cryostat, ce qui nous permettait de pomper sur le bouchon et de forcer éventuellement le vide de ce côté de la membrane. A température ambiante, le capteur a retrouvé une sensibilité connue ; en revanche aucune amélioration notable n'est apparu à 4 K. L'échec de cette modification nous a amenés à accuser soit un décollement du revêtement or de la membrane, soit un problème de court-circuit au niveau du fil de connexion électrique à la membrane. Quoiqu'il en soit, nous avons dû envisager de modifier notre mode de préparation du capteur et de l'étuvage de la cellule.

Nous avons cependant vérifié la présence de liquide polarisé, avec des polarisations nucléaires atteignant 12 %, et des temps de relaxation longitudinale inférieurs à 4 minutes (à comparer aux 5 minutes attendues dans le liquide).

2.5.4 Troisième cellule

Avant d'assembler le capteur suivant (en cuivre), nous avons percé le bouchon et collé dedans un capillaire de cupro-nickel (ϕ 0.4×0.7 mm), ce qui nous a permis de nous assurer que le capillaire n'était pas bouché, et qu'il ne risquait pas de déchirer la membrane. Puis le capteur a été assemblé

de la même façon que les deux précédents. Le nouveau capteur, dont la membrane avait été un peu moins tendue au collage afin d'améliorer sa sensibilité, a ainsi une sensibilité de 2.2 pF/Torr à température ambiante et de 4.8 pF/Torr à la température de l'hélium-4 liquide. Pendant tout le processus d'étuvage de la nouvelle cellule à laquelle il a été soudé, le bouchon est maintenu sous vide, ce qui permet de laisser la membrane dans sa position d'équilibre et évite de piéger de l'air entre la membrane et le bord de l'électrode. Cette nouvelle méthode de préparation de la cellule expérimentale s'est avérée profitable au capteur ; celui-ci a un comportement tout à fait normal à froid, et retrouve une très bonne sensibilité (14 pF/Torr ; cette sensibilité, meilleure que celle obtenue lors des étalonnages précédents, correspond à une déformation de la membrane (la valeur de la capacité à vide a elle-aussi été modifiée) : le montage de nos capteurs capacitifs sur la cellule expérimentale et le traitement subis ne sont pas anodins...). Malheureusement, il n'a jamais été possible de détecter un signal RMN indiquant la présence de liquide polarisé, et ce malgré un nouvel enduit de césium à température ambiante.

Le fait qu'on observe des temps de relaxation longitudinale plus courts qu'attendus (4 minutes au lieu de 5) peut être attribué à des problèmes de relaxation dans la cellule expérimentale (due à un mauvais enduit de césium?). Mais le problème principal ici semble être la valeur maximale de l'aimantation obtenue (bien plus faible que les 40 à 50 % obtenus sans difficulté dans la partie haute de la cellule) : il semblerait qu'il y ait de fortes pertes d'aimantation sur le trajet des atomes (due également à une dégradation de l'enduit de césium, peut-être par du gaz pas assez pur) ...

C'est pourquoi nous avons décidé de modifier radicalement nos cellules : celles-ci ne seront plus des cellules fermées, dont on ne peut changer le gaz, mais disposeront maintenant d'un robinet, situé à température ambiante, sur la tête (voir cellule 4 de la figure 1.7). Cette nouvelle technique a été mise au point au laboratoire, et nous avons maintenant une assez grande expérience pour bien étuver et dégazer (à l'aide de cordons chauffant) la tête de la cellule sans mettre en danger la graisse du robinet. Le pompage optique est tout à fait comparable à ce que l'on obtient dans des cellules scellées, et des polarisations tout à fait correctes (de l'ordre de 50 %) ont déjà été obtenues dans le gaz. Pour ce qui est des parties froides, on sait que l'on peut obtenir de très longs temps de relaxation longitudinale dans les solutions diluées d'hélium-3 dans l'hélium-4 (voir thèse de Nathalie Piegay en cours), à défaut d'avoir jamais cherché à obtenir de fortes polarisations. Les conditions fournies par les cellules "ouvertes" sont donc tout à fait favorables à nos expériences.

C'est le capteur utilisé sur la troisième cellule qui a été monté sur la nouvelle cellule à robinet.

2.5.5 Cellule à robinet et à capteur

Malgré des changements de gaz intervenus dans la cellule à 300 K, la polarisation nucléaire obtenue dans la cellule à 0.5 K n'a jamais dépassé 5 %, avec des temps de relaxation longitudinale de 3 à 4 minutes (au lieu des 5 minutes attendues dans le liquide pur) indiquant des phénomènes de relaxation sur la paroi...

Un dernier réchauffement a été fatal à la cellule : malgré des changements de gaz, plus aucun signal RMN de polarisation de l'hélium-3 liquide n'a pu être obtenu dans cette cellule. Par des expériences de liquéfaction/évaporation, nous avons acquis la certitude que le gaz polarisé qui était aspiré vers la partie froide de la cellule, perdait toute son aimantation au contact des surfaces césiées.

A ce stade, un gros doute se posait : fallait-il accuser la présence de capteurs métalliques (avec leur membrane de kapton) susceptibles de dégazer (et d'abîmer l'enduit de césium, éventuellement en déposant des impuretés paramagnétiques dessus), et cependant en contact permanent avec la cellule expérimentale? Ou la méthode de fabrication et de préparation de nos cellules...? Le plus sûr moyen de répondre à cette question était d'essayer de retrouver de fortes polarisations dans l'hélium-3 liquide en absence de capteur. En outre, afin de pouvoir changer le contenu de la cellule et y connecter ultérieurement un capteur, nous avons choisi de faire cette vérification dans une cellule ouverte (c'est-à-dire à robinet).

2.6 Cellules d'hélium-3 munies d'un robinet, avec capteur à 300 K

2.6.1 Cellule seule

Comme nous l'avons dit, nous avons commencé par tester une cellule à robinet conçue sur le même modèle que la précédente, mais à laquelle nous n'avons relié aucun capteur de pression.

Cette cellule a été préparée de la même façon que la précédente (voir partie 1), et a été remplie de 3 Torr d'hélium-3. Dès la première descente à froid, nous avons obtenu sans difficulté des fortes polarisations (jusqu'à 30 %, alors que nous ne préparions, avec l'ampli à fibre, que des polarisations de 50 % dans la tête de la cellule), et des temps de relaxation longitudinale T_1 de l'ordre de 5 minutes.

Une fois la cellule mise hors de cause, il fallait donc chercher du côté du capteur... Nous avons alors décidé plusieurs modifications : d'une part la conception-même du capteur, d'autre part sa position dans la cellule et le risque qu'il contamine le gaz d'hélium-3.

2.6.2 Modification des capteurs de pression

Le cuivre a été définitivement abandonné en faveur de l'inox, étant donnés nos résultats précédents : de plus fortes aimantations ont été observées avec la deuxième cellule (reliée à un capteur en inox) qu'avec les autres (qui disposaient d'un capteur en cuivre). Le nouveau capteur disposera de deux demi-électrodes à peu près symétriques, ceci afin d'éviter que de fortes variations de pressions (qui peuvent avoir lieu accidentellement pendant des rinçages de la cellule) causent de trop fortes déformations de la membrane. Le bouchon est donc modifié, et sa lèvre réduite de 2 mm de profondeur à environ $20\ \mu\text{m}$. Afin d'éviter que l'excès de colle ne se répande sur toute la surface du bouchon et n'empêche la déformation de la membrane sous l'effet de la pression, une gorge semblable à celle de l'électrode percée est réalisée dans le bouchon (voir figure 2.18).

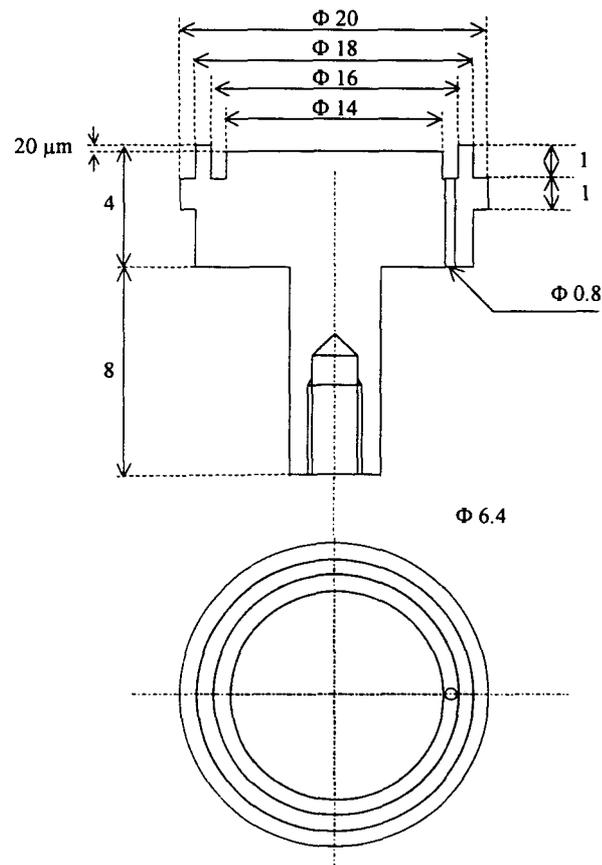


Figure 2.18: Schéma de la nouvelle électrode "bouchon" pour le capteur capacitif

Le capillaire en cupro-nickel est collé dans un trou de diamètre 0.8 mm effectué à l'intérieur de la gorge, afin que son extrémité, tranchante, ne puisse endommager la membrane.

Le capteur peut maintenant être assemblé dans les mêmes conditions que les capteurs précédents.

Une série d'étalonnages à température ambiante indique une sensibilité de 8 pF/Torr pour C_{12} autour d'un écart en pression ΔP nul. Comme le capteur est à peu près symétrique, on a pu l'étalonner dans une gamme de pression allant de -10 à +10 Torr. On voit d'une part sur la figure 2.19 le plaquage de la membrane sur l'électrode 1 pour une pression P_{\max} de 2.6 Torr, d'autre part une légère assymétrie entre les capacités C_{12} et C_{23} : on ne s'attend pas à une parfaite symétrie du système, la membrane n'étant métallisée que sur une face.

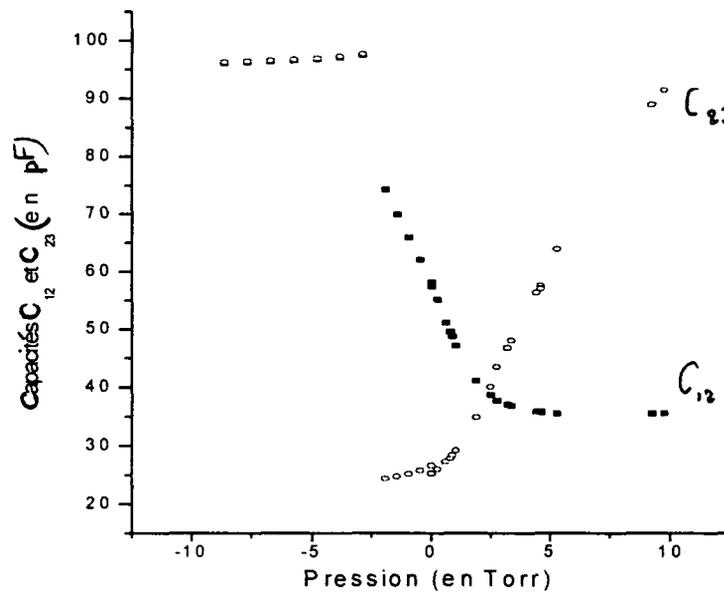


Figure 2.19: Sensibilité du nouveau capteur. Etalonnage des capacités.

La lecture de P_{\max} nous permet cette fois de tester notre modèle et de calculer la sensibilité attendue pour la capacité intrinsèque γ_{12} :

$$S_{12} = \frac{\gamma_{120}}{2P_{\max}} = 10 \text{ pF/Torr} \quad (2.33)$$

ce qui est en parfait accord avec la mesure de sensibilité (les capacités intrinsèques étant calculées à partir des mesures des $C_{i,j=k}$, et représentées sur la figure 2.20) :

$$S_{12}^{mes} = 9.6 \text{ pF/Torr} \quad (2.34)$$

Ce capteur pourra donc parfaitement être utilisé pour les mesures de variation de pression que nous envisageons de faire à température ambiante : sa sensibilité dans les conditions expérimentales futures est suffisante pour détecter des variations de pression de l'ordre de 10^{-6} Torr.

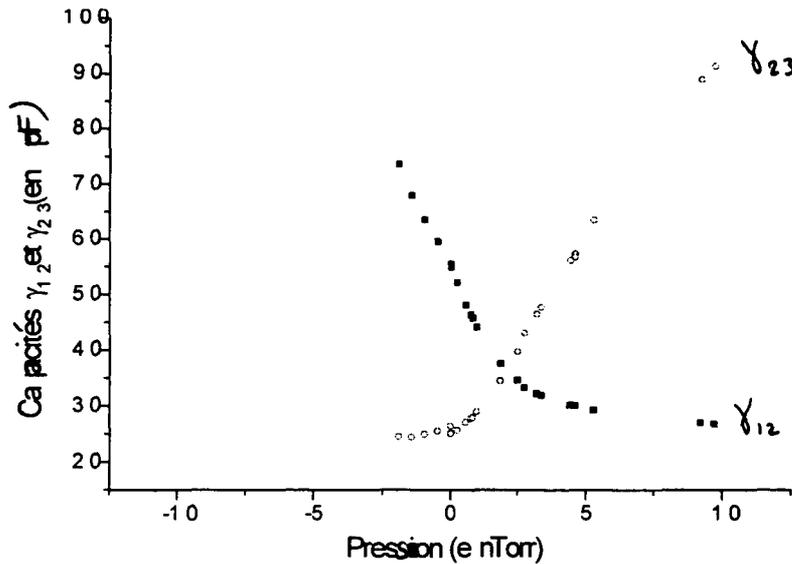


Figure 2.20: Sensibilité du nouveau capteur. Etalonnage des capacités intrinsèques.

2.6.3 Mesure de pression à température ambiante

Nous avons décidé de profiter de ce que nous disposons d'une cellule où de fortes polarisations étaient accessibles dans le liquide pour tenter des mesures de pression de vapeur saturante à chaud : nous avons en effet adapté le capteur de pression au robinet de la cellule (voir figure 2.21).

Pendant la préparation de l'échantillon liquide polarisé, la cellule est fermée et on maintient le vide de part et d'autre de la membrane du capteur. Le gaz contenu dans la cellule n'est mis en contact avec le capteur que pendant la mesure de pression proprement dite, c'est à dire 5 minutes environ. Puis la cellule est fermée et le gaz contenu dans le sas formé autour du capteur vidé, afin de limiter les risques de contamination de la cellule.

Nous avons estimé le temps d'écoulement du gaz et d'équilibrage de la pression entre le bas et la tête de la cellule, car c'est là que la pression sera mesurée maintenant. C'est a priori l'impédance à l'écoulement dans le tube de diamètres 6×3 , situé à chaud, qui va dominer le processus. Cet écoulement va équilibrer la pression dans la cellule de pompage optique (de volume V_A). On définit alors la conductance C sur cette portion de la cellule [Conte] par :

$$C = \frac{Q}{\Delta P}$$

où Q est le débit gazeux et ΔP la variation de pression. On peut alors écrire en régime visqueux l'expression de la conductance [Conte]:

$$C = 3.27 \frac{10^{-5} D^4 P}{l \eta}$$

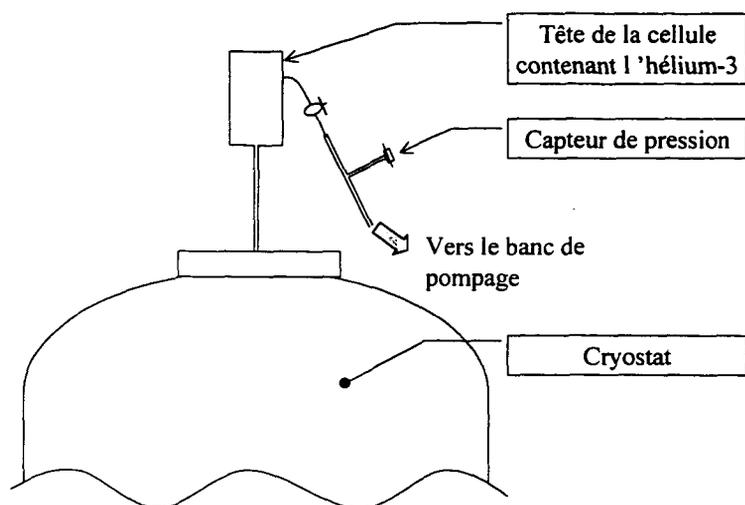


Figure 2.21: Position du capteur par rapport à la cellule expérimentale

où C est en l/s, D est le diamètre du tube (en cm), l sa longueur (en cm), η la viscosité (en Poise) et P la pression (en mTorr). On en déduit que

$$C = 4.4 \cdot 10^{-2} \text{ l/s}$$

dans nos conditions expérimentales, d'où un retard à l'équilibrage des pressions $\tau \sim \frac{V_A}{C}$ de 5 s. Il est donc tout à fait raisonnable d'espérer voir l'effet de la destruction de l'aimantation sur le capteur de pression placé à température ambiante, avec un léger retard (quelques secondes) sur l'opération de destruction elle-même.

2.6.4 Procédure expérimentale

Il s'agit, comme on l'a déjà vu, de liquéfier le gaz aimanté, d'ouvrir la cellule sur le capteur, de stabiliser en température la cellule, de mesurer l'aimantation M dans le liquide et enfin de détruire l'aimantation par une impulsion RMN de grand angle ($\frac{\pi}{2}$ idéalement). Tout ceci devant être réalisé en un temps minimal...

Liquéfaction de l'échantillon Celle-ci est réalisée comme nous l'avons indiqué dans la première partie de ce manuscrit : pour l'étape de pompage optique dans la vapeur, nous nous sommes contentés d'appliquer un chauffage sur la cellule elle-même et non sur le cryostat, ce qui permet de garder la température de la plaque de cuivre du cryostat à hélium-3 autour de 600 mK. Lorsque le

chauffage est éteint, le cryostat atteint très vite (une dizaine de secondes) sa température limite, et la cellule met environ 1 minute à atteindre la gamme de température voulue.

La pression qui règne alors dans la cellule est très faible et ne variera guère ; on peut ouvrir le robinet sur le capteur sans crainte de contaminer la cellule (l'écoulement se faisant dans le sens cellule-capteur). L'équilibre des pressions se fait très vite (quelques secondes).

Reste maintenant à stabiliser la température, étape critique si l'on veut être capable de détecter des variations de pression de l'ordre du mTorr...

Stabilisation en température On utilise pour cela une régulation en température de type PIDT, décrite dans la première partie du manuscrit. Celle-ci nous permet d'obtenir en des temps de l'ordre de 2 minutes, une stabilité en température meilleure que 3.10^{-3} mK/s, correspondant à une stabilité en pression, mesurée par le capteur, de 3.10^{-2} fF/s (voir figure 2.22).

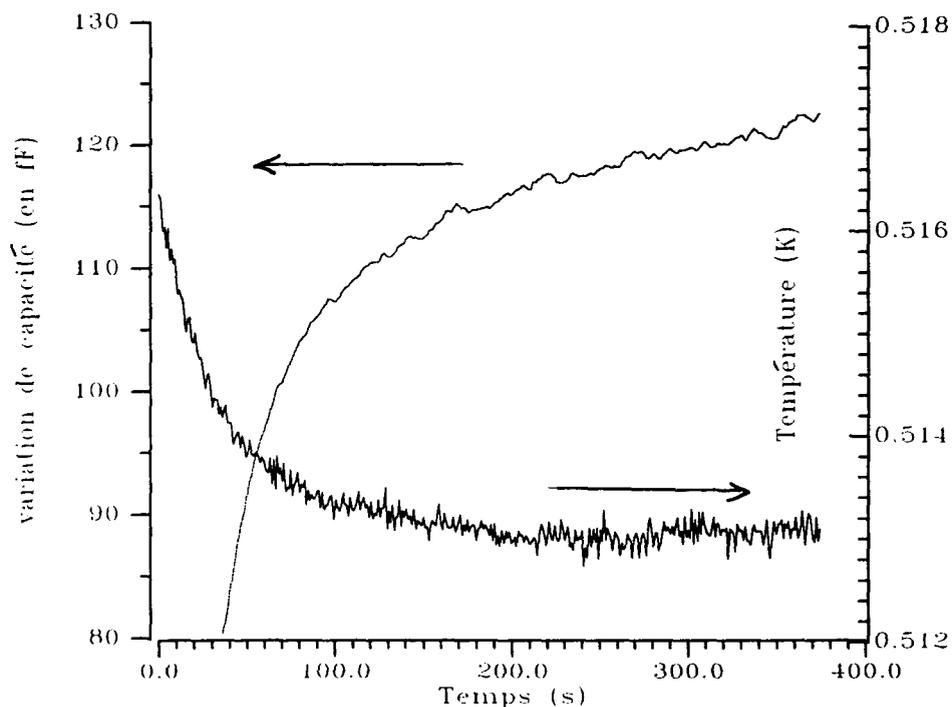


Figure 2.22: Evolution de la température et de la pression dans la cellule lors d'une liquéfaction de l'hélium-3.

Pendant toute la durée de cette expérience, on enregistre à la fois la capacité C_{12} mesurée entre les électrodes 1 et 2 du capteur de pression, et la résistance du thermomètre situé sous les fils de thermalisation au cryostat (résistance R_6 de la figure 1.15) : les signaux fournis par la jauge de pression et le thermomètre sont digitalisés simultanément, avec une cadence d'échantillonnage de 0.5

s, et enregistrées dans un microordinateur. Le thermomètre choisi comme référence est celui qui indique la température T la plus froide sur la cellule-même (nous avons choisi de ne pas considérer la température indiquée par le thermomètre situé au milieu des fils (résistance R_7 de la figure 1.15) car il est trop couplé aux fils de thermalisation et donne une idée fautive de la température du liquide ; c'est cependant là que les atomes d'hélium-3 viennent se condenser a priori).

Temps d'équilibrage thermique On cherche à savoir en combien de temps une variation de température dans le liquide pourra être évacuée, à travers la paroi de la cellule, vers le cryostat. Pour cela, nous avons arrêté de réguler la température de la cellule et avons laissé celle-ci se refroidir un peu, avant de remettre la régulation qui maintenait la température stable initialement. Pendant ce temps, nous avons enregistré simultanément la température indiquée par le thermomètre situé à l'extérieur de la cellule et la pression de vapeur saturante qui est une mesure indirecte de la température du liquide.

Nous avons ainsi déterminé expérimentalement (voir figure 2.23) la constante de temps de retour à l'équilibre, lors d'une variation de température, du thermomètre d'une part et du capteur de pression d'autre part. La différence entre ces temps de réponse donne directement accès au temps de transmission de l'équilibre thermique à travers le pyrex. Il faut cependant tenir compte de la constante de temps d'écoulement entre le bas de la cellule et le capteur de pression. Nous avons ainsi pu déterminer que le temps d'équilibre thermique à travers le pyrex est à peu près nul.

Un calcul des ordres de grandeur en jeu (voir [Cornut 93]) pour l'équilibre thermique de l'ensemble pyrex / hélium-3 liquide indique par ailleurs une constante de temps de l'ordre de la seconde, ce qui est compatible avec nos observations expérimentales.

On s'attend donc à ce que l'hélium-3 liquide retrouve sa température initiale (correspondant à la température imposée par le cryostat qui, elle, n'a pas dû varier lors de la destruction de l'aimantation) en 4 à 5 secondes.

Étalonnage du capteur sur la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 Nous avons procédé à un nouvel étalonnage du capteur, dans les conditions expérimentales cette fois, en enregistrant simultanément la capacité et la température T . En diminuant très progressivement la température, on laisse l'équilibre thermique s'établir entre le liquide et les parois extérieures de la cellule, ce qui permet de connaître la pression de vapeur saturante qui règne dans la cellule (via $P_{sat}(T)$). On en déduit la sensibilité S du capteur dans la gamme de pressions qui nous intéresse (voir figure 2.24) :

$$S^{mes} = -6.0 \text{ pF/Torr} \quad (2.35)$$

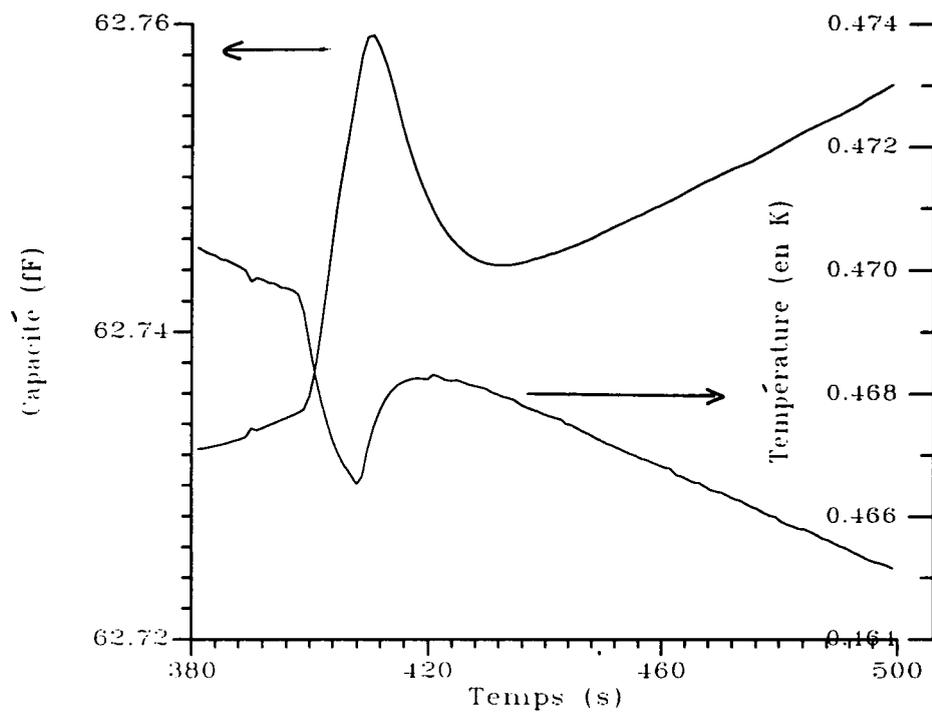


Figure 2.23: Retour à l'équilibre thermique (après reprise de la régulation thermique) mesuré sur le thermomètre extérieur à la cellule et sur la jauge capacitive. Les constantes de temps sont respectivement 4 s et 9 s.

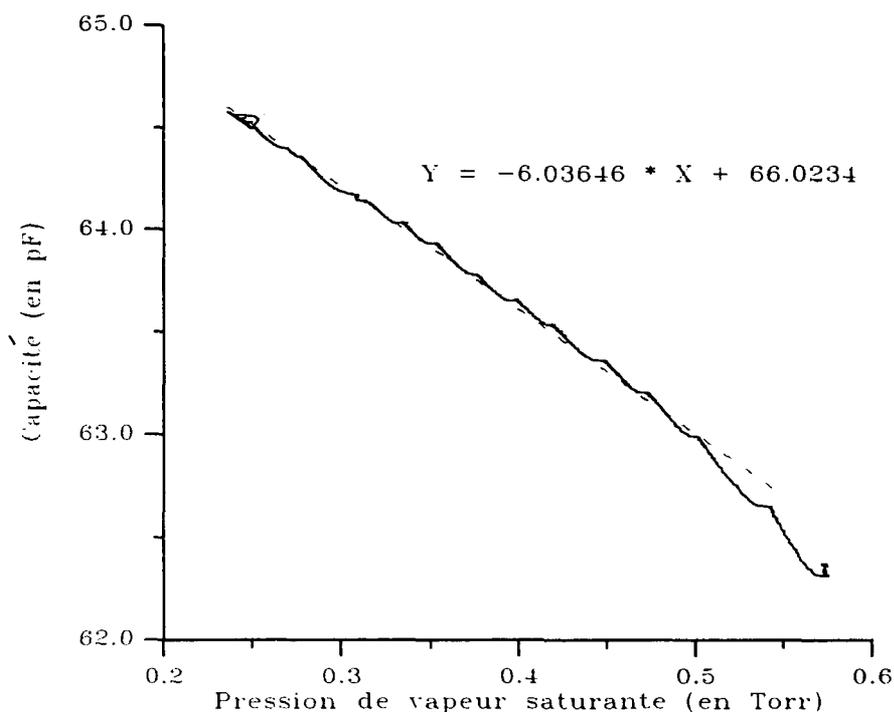


Figure 2.24: Mesure de la capacité en fonction de la pression de vapeur saturante de l'hélium-3.

Remarquons que la sensibilité mesurée n'est pas celle que nous avons déterminé précédemment ; il s'agit ici de la sensibilité de la capacité mesurée C_{12} , et non de la capacité intrinsèque γ_{12} .

On ne peut en revanche pas utiliser la valeur de la capacité comme une mesure absolue, car celle-ci varie beaucoup (jusqu'à quelques pF, avec une dérive typique de 1 fF/min) selon les conditions climatiques, l'environnement... Seule la sensibilité est une caractéristique constante de notre capteur (on comprend mieux ici l'intérêt qu'il y avait de placer notre capteur dans le bain d'hélium-4).

Destruction de l'aimantation dans le liquide Une fois la température stabilisée, il ne reste plus qu'à quantifier l'aimantation par un petit angle de basculement des spins (en utilisant la mesure de l'écart en fréquences $\Delta\omega$ entre fréquence de précession des spins et fréquence de Larmor (voir partie 1)).

Pour le détruire, nous provoquons le basculement des spins à l'aide d'une impulsion RF ajustée pour laisser le minimum de signal RMN derrière elle, et que nous baptisons $\frac{\pi}{2}$. Cette notion est en fait très délicate dans notre système hyper-polarisé, car le champ effectif autour duquel précessent les spins est loin d'être constant.

Si on se place dans le référentiel tournant à la fréquence de la RF (qui est choisie proche de la fréquence de Larmor des atomes d'hélium-3 isolés), le champ propre ne vaut pas 0, mais

$\Delta B_0 = \gamma \Delta \omega$, où $\Delta \omega$ est proportionnel à la valeur de l'aimantation longitudinale ($\Delta \omega$ est de l'ordre du kHz dans notre échantillon dense et très polarisé). Il faut donc que l'amplitude du champ radio-fréquence appliqué B_1 soit la plus grande possible, et donc la durée de l'impulsion la plus courte possible. En pratique, nous sommes limités par l'électronique qui fournit les impulsions RMN : la durée de basculement la plus petite possible est 0.1 ms, alors que le signal radio-fréquence se distord lorsque le signal de sortie de l'amplificateur est supérieur à 38 V. Nous avons dû choisir un compromis, et c'est un signal de durée 0.2 ms et d'amplitude 30 V qui est choisi pour s'approcher au mieux du $\frac{\pi}{2}$.

Le champ effectif B_{eff} autour duquel précessent les moments magnétiques n'est donc pas parfaitement aligné avec B_1 , puisque

$$\frac{\Delta B_0}{B_1} \simeq 0.125 \quad (2.36)$$

ce qui correspond à un angle de 7 degrés par rapport à l'horizontale (voir figure 2.25).

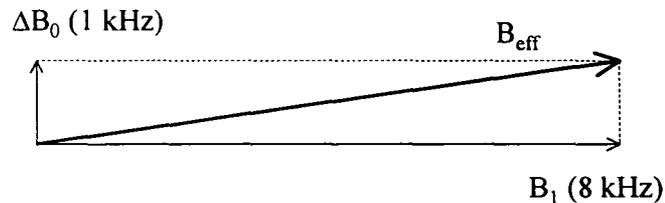


Figure 2.25: Champ magnétique effectif dans le référentiel de Larmor.

En fait, la situation est moins "catastrophique" qu'il n'y paraît car, au fur et à mesure du basculement de l'aimantation, l'aimantation longitudinale M_z varie de M_{max} (correspondant à 1 kHz de déplacement en fréquence) à 0, et donc le champ B_{eff} dans le référentiel de Larmor s'approche de l'horizontale.

En pratique, après un angle de basculement $\frac{\pi}{2}$, il reste moins de 1 % de polarisation (mesuré par le signal de précession après un petit angle de basculement consécutif au $\frac{\pi}{2}$). On peut donc affirmer que l'aimantation globale est correctement basculée dans le plan transverse par notre méthode. On

compte en fait sur les divers processus irréversibles responsables de la relaxation de l'aimantation transverse (en particulier les gradients de champ magnétique, associés à la diffusion) pour détruire l'aimantation (la constante de temps T_2 correspondant étant bien inférieure à T_1 en général).

2.7 Résultats expérimentaux

Les figures 2.26 et 2.27 montrent les signaux enregistrés lors d'une expérience typique. L'ouverture

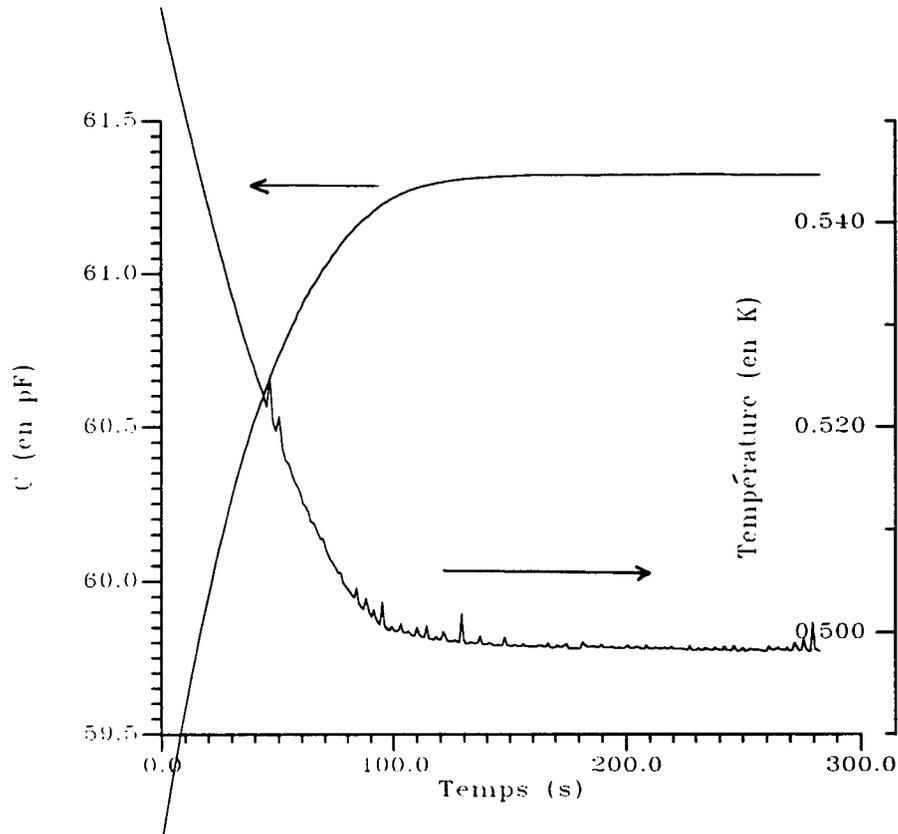


Figure 2.26: Evolutions de la température et de la capacité lors d'une expérience.

du capteur de pression sur la cellule a lieu au temps $t=0$ (le processus de liquéfaction étant entamé depuis 45 secondes) : la capacité augmente pour suivre la diminution de pression de vapeur saturante de l'hélium-3 à la température du liquide (typiquement quelques 0.1 Torr). Après un temps de l'ordre de 100 secondes, la température du liquide est presque stabilisée mais continue de dériver lentement ; la capacité dérive elle-aussi. C'est quand nous avons estimé que la dérive de la capacité avait une pente assez faible (rappelons que nous attendons ici un effet de l'ordre du mTorr et donc de qq fF) que nous avons procédé à une mesure de l'aimantation (au temps $t=145$ s), puis

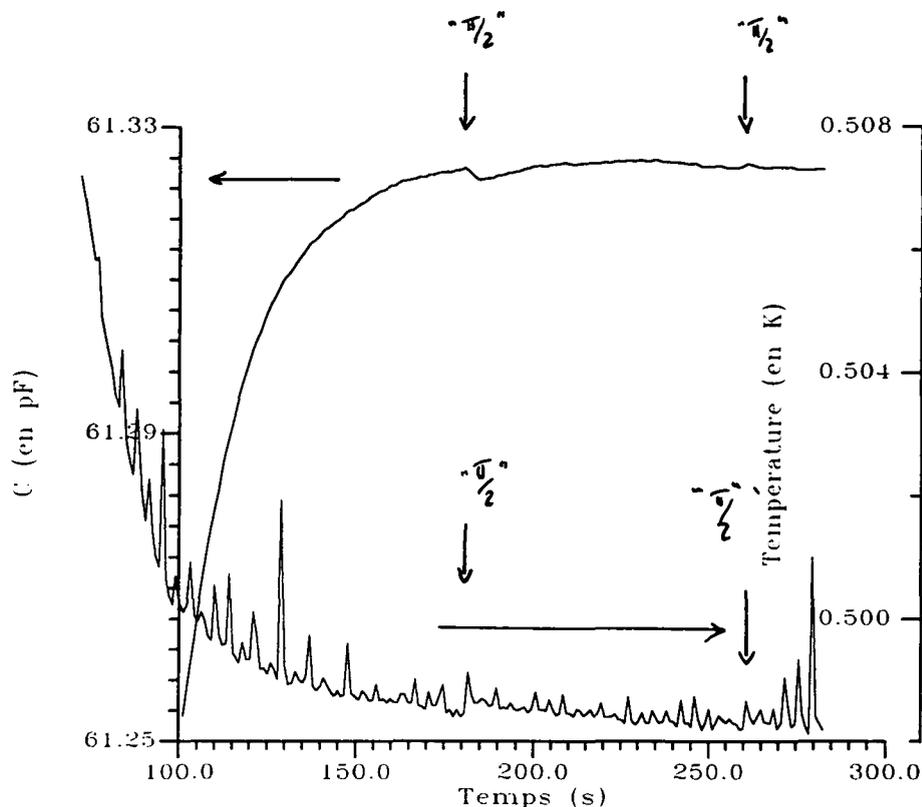


Figure 2.27: Agrandissement de la courbe précédente.

à la “destruction” de l’aimantation ($t=180$ s).

L’enregistrement montre une pente d’environ 9.10^{-2} fF/s lors du basculement des spins : c’est largement suffisant pour voir un effet de l’ordre du fF. La température, quant à elle, est relativement stable : elle dérive de 7.10^{-2} mK en 10 s. On peut comparer les dérives en pression et en température en utilisant, en première approximation, la valeur $dP_{sat}/dT = 1.5$ mTorr / mK pour le liquide non polarisé à 0.5 K. La pression mesurée par le capteur a alors une pente un peu plus forte que la température, ce qui s’explique par le temps que met la température au niveau du liquide à s’équilibrer avec l’extérieur de la paroi de verre : en effet, nous n’avons pas attendu l’équilibre thermique complet afin d’avoir l’aimantation la plus élevée possible.

Afin de s’assurer que le signal RF de basculement de l’aimantation ne créait pas un trop fort échauffement, nous avons appliqué une seconde impulsion $\frac{\pi}{2}$ au temps $t=265$ s, alors que l’aimantation dans le liquide était nulle. On observe, de la même façon que lors de la première impulsion $\frac{\pi}{2}$, un léger échauffement de la température (de l’ordre de 0.1 mK), qui indique un chauffage du cryostat dû à l’impulsion RF. Mais la variation de pression de vapeur saturante du non polarisé correspondante est très faible (de l’ordre de 0.15 mTorr). Cet échauffement du cryostat ne peut être tenu pour responsable d’une diminution de capacité supérieure à 0.8 fF en valeur absolue (il s’agit d’une valeur supérieure, car le pyrex transmet plus mal la chaleur que le cuivre du cryostat ;

l'échauffement du liquide dû à l'impulsion RF seule sera donc plus faible que celui indiqué par le thermomètre). En pratique, aucune variation de capacité supérieure à 0.1 fF n'est visible lors de la deuxième impulsion $\frac{\pi}{2}$. Nous pouvons donc négliger cet effet lorsque nous étudions la variation de pression, suite à une destruction de l'aimantation, mesurée par la jauge capacitive.

2.7.1 Variation de pression lors de la destruction de l'aimantation

La figure 2.28 (qui n'est en fait rien d'autre qu'un agrandissement des deux figures précédentes (figures 2.26 et 2.27)) montre l'effet de la deuxième impulsion RMN, correspondant à un angle de basculement d'environ 90 degrés. Cette évolution temporelle a été obtenue à une température de 499 mK, pour une polarisation avant basculement des spins de 14 %.

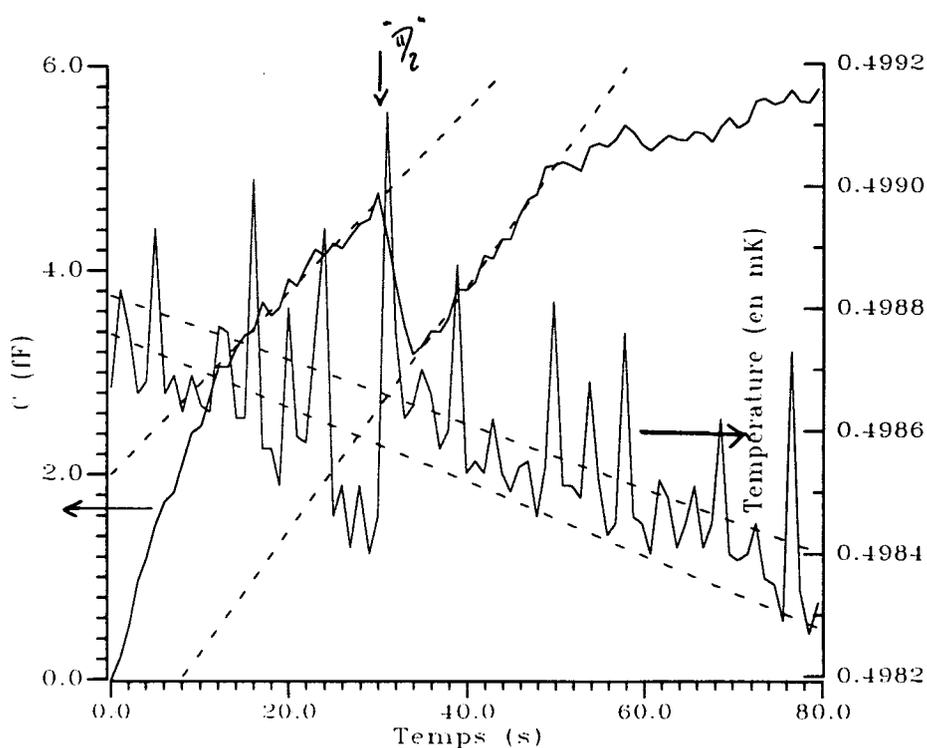


Figure 2.28: Evolution de la capacité lors d'une destruction de l'aimantation.

La capacité diminue tout d'abord de 2.1 fF, ce qui correspond à une augmentation de pression de 0.4 mTorr. Dans le même temps, la température moyenne mesurée augmente légèrement, d'environ 0.1 mK. La variation de capacité se fait en 5 secondes environ, alors qu'aucun retard n'est perceptible sur la mesure de température, ce qui correspond au délai calculé pour l'équilibrage des pressions entre le haut et le bas de la cellule.

La variation de température indiquée par le thermomètre correspond à une augmentation de

pression moindre que celle indiquée par la mesure directe de la pression du gaz d'hélium-3. Mais il faut tenir compte d'une part du fait que la température est mesurée sur la paroi extérieure de la cellule, qui est elle-même mieux couplée au cryostat (dont la température est stable) que l'intérieur de la cellule, et d'autre part du fait que c'est $P_{sat}(T,M)$ et non $P_{sat}(T,0)$ dont il faudrait tenir compte dans le calcul de variation de pression.

Après cet échauffement, on s'attend à ce que le liquide retrouve assez rapidement sa température initiale (en 5 s environ), et donc qu'on voie sur l'enregistrement le retour à l'isotherme, qui devrait correspondre à une pression inférieure à la pression initiale d'environ 1 mTorr, soit une augmentation de la capacité de 6 fF.

En fait, comme on le voit sur la figure 2.28, la capacité retrouve assez vite sa valeur initiale (correspondant à une courbe de dérive thermique assez proche), mais en aucun cas une courbe située quelques fF au dessus. Or, on sait expliquer le réchauffement du liquide en termes de transformation adiabatique (voir le paragraphe 2.8, consacré à l'interprétation de nos résultats expérimentaux), mais on n'a aucune raison de ne pas voir un retour aux conditions isothermes dans les quelques secondes suivantes...

Malgré l'accumulation des enregistrements, malgré quelques changements dans les conditions expérimentales, jamais nous n'avons réussi à observer la variation de pression attendue dans l'hélium-3 pur à température constante. La température a été variée sur la plus grande gamme accessible à nos expériences (soit presque 100 mK, déterminés par la présence de liquide polarisé d'une part, et par la rapidité de stabilisation à la température requise d'autre part) ; nous avons essayé, en vain, d'autres méthodes de destruction de l'aimantation (en particulier d'envoyer un faible signal rf dans les bobines inductrices pendant un temps long (une seconde environ), mais aussi d'appliquer un fort gradient vertical de champ magnétique après le basculement des spins (ceci afin de diminuer le temps de relaxation transversale de l'aimantation T_2 et de s'assurer qu'il ne reste pas une aimantation transverse qui contribuerait à la norme M ; cependant une étude plus approfondie de la précession de l'aimantation (voir partie 4) nous a appris depuis qu'un fort gradient appliqué ne changeait pas autant que prévu cette constante de temps)

2.7.2 Caractéristiques du signal mesuré

Nous avons regroupé nos résultats expérimentaux sur une seule courbe, afin de voir la dépendance de la diminution de capacité en fonction de l'aimantation M du liquide (voir figure 2.29). Rappelons que la variation de pression (en Torr) est simplement proportionnelle à la variation de capacité (en pF) avec un facteur de proportionnalité négatif :

$$dP = \frac{-1}{S} dC \quad (2.37)$$

où $S=6$ pF/Torr.

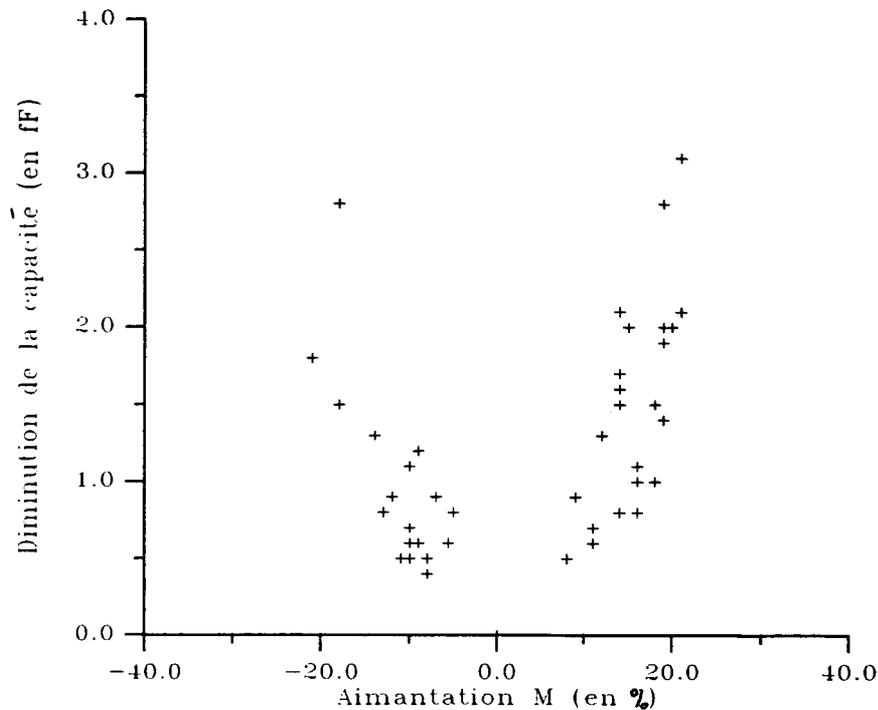


Figure 2.29: Dépendance de l'écart sur la capacité ΔC en fonction de l'aimantation M .

On observe tout d'abord qu'il s'agit d'une fonction paire ; en particulier, le signe de la variation de pression en fonction de l'aimantation ne change pas quand on change M en $-M$.

Dans la gamme de températures considérée (entre 0.48 K et 0.56 K) et pour la gamme de polarisations atteinte ($M \leq 21$ %), on peut également dire que cette variation est une fonction de M^2 . Etant donnée la dispersion de nos résultats, il n'est en tout cas pas possible de dire que l'on s'écarte d'une loi en M^2 (rappelons que la modélisation de Stringari *et al* prédit des déviations significatives pour de fortes polarisations, de l'ordre de 40 % ou plus).

Enfin, nous n'avons pas vraiment vu d'effet de la température sur la variation de pression. Nos données expérimentales sont trop dispersées pour cela.

Reste que l'allure des enregistrements est parfaitement reproductible, et qu'il s'agit d'interpréter maintenant les caractéristiques observées. En particulier, on cherchera à comprendre l'amplitude et le signe des variations de pression lors de la destruction de l'aimantation.

2.7.3 Comparaison aux résultats antérieurs

Il est temps à ce stade de revenir sur les résultats préliminaires obtenus au laboratoire en 1993 [Tastevin 94]. Rappelons que ceux-ci ont été obtenus sur une cellule disposant comme la notre d'un gros réservoir d'atomes (B) ; mais dans ces expériences, le capteur est relié par un coude au bas de la cellule, et trempe donc dans le bain d'hélium-4. Le capteur de pression repose sur les mêmes principes que le notre : c'est un capteur capacitif, formé d'une membrane flexible en kapton recouverte d'or et enserrée entre deux électrodes en inox. Les deux électrodes sont identiques, terminées par un joint verre/inox, ce qui permet de relier une branche du capteur à la cellule, et de faire le vide de l'autre côté avant de sceller la branche concernée. La capacité C est enregistrée sur le même pont de capacité de haute précision que lors de nos expériences. La méthode de destruction de l'aimantation repose ici sur une longue impulsion RF résonante (de l'ordre de la seconde).

La cellule a été enduite de césium, ce qui permet d'obtenir des temps de relaxation longitudinale de l'aimantation de l'ordre de 5 minutes dans le liquide. En revanche, la cellule trempe directement dans le bain d'hélium-3 cryogénique, et une telle méthode pose plusieurs problèmes : d'une part, il faut un temps relativement long pour stabiliser la température, ce qui ne permet pas de détruire l'aimantation pour de fortes polarisations dans le liquide ($M_{\max} \sim 15\%$) ; d'autre part, la stabilisation en température n'est jamais bonne, avec des dérives typiques de 12 fF/min. Enfin, la stabilité en température du cryostat ne permet pas de retrouver rapidement la température initiale, ce qui ne laissait aucune chance de voir la transformation isotherme, et a motivé en particulier la construction d'un nouveau cryostat à hélium-3 (décrit en partie 1).

Malgré ces restrictions, des variations de pression (dans le sens d'une augmentation de la pression) atteignant 0.8 mTorr pour une polarisation initiale M de 12.5 % et une température de 0.47 K ont été obtenues. De façon reproductible, G.Tastevin a observé des variations de pression ΔP , lors de la destruction de l'aimantation, indépendantes du sens de l'aimantation initiale, et qui semblent compatibles avec une dépendance en M^2 . Enfin, cette variation semble être plus grande à basse température (T variant entre 0.47 K et 0.60 K).

Comme on le voit ici, même si les effets obtenus lors des expériences préliminaires avaient qualitativement la même allure que les nôtres, l'amplitude de variation de la pression était plus importante (d'un facteur 4 ou 5). Or, les conditions expérimentales étaient sensiblement les mêmes (avec une quantité totale d'hélium-3 et un volume effectif (voir paragraphe 2.8 pour sa définition) plus faibles (73 μ moles au lieu de 109 μ moles, et 1500 cc au lieu de 2700 cc). Une étude qualitative avait alors été menée pour expliquer cet effet en terme d'évolution adiabatique (voir paragraphe 2.3.2), et une confirmation expérimentale de l'importance des distributions d'atomes entre phases liquide et vapeur (voir paragraphe suivant) était venue corroborer cette interprétation : lorsque

la température du gros réservoir (B) était changée (des écrans disposés autour permettaient alors de varier cette température entre 5 K et 200 K), des grandes variations de ΔP pouvaient être observées. Nos propres conditions expérimentales (en particulier une meilleure thermalisation de la cellule) ne nous ont pas permis de varier autant la température du volume B (entre 20 K et 60 K seulement), et donc la distribution d'atomes entre phases, mais aucun effet notable n'a pu être observé.

2.8 Interprétation en termes de transformation adiabatique

Comme nous l'avons dit, cette interprétation est délicate, car elle met en jeu des quantités extensives : il faudra donc tenir compte des quantités d'hélium-3 en phase liquide et en phase vapeur respectivement. Ces quantités vont bien sûr dépendre de la température de la cellule expérimentale, mais également des températures le long de toute la cellule. C'est pourquoi nous devons tout d'abord nous intéresser aux volumes effectifs de la cellule de verre. Nous allons pour cela définir la notion de volume effectif dans notre système :

$$V_{eff} = \int \frac{300K}{T} dV. \quad (2.38)$$

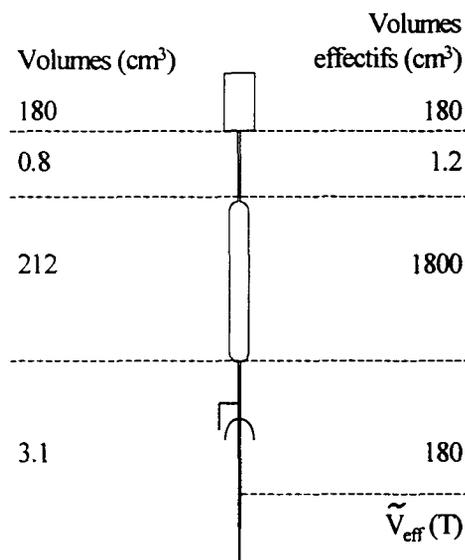


Figure 2.30: Volumes effectifs le long de la cellule expérimentale.

La figure 2.30 représente les volumes effectifs de différentes parties de la cellule. Les parties situées au dessus de la thermalisation au pot à 4 K ont une température fixe lors de nos expériences ; on peut donc considérer que leur volumes effectifs sont constants. En revanche, ce n'est pas le cas de la partie basse de la cellule, dont le volume effectif \tilde{V}_{eff} reste une fonction de la température T de la cellule expérimentale (que l'on supposera uniforme ici pour simplifier la détermination des quantités en phases liquide et vapeur). La figure 2.31 représente ce volume effectif en fonction de la température T.

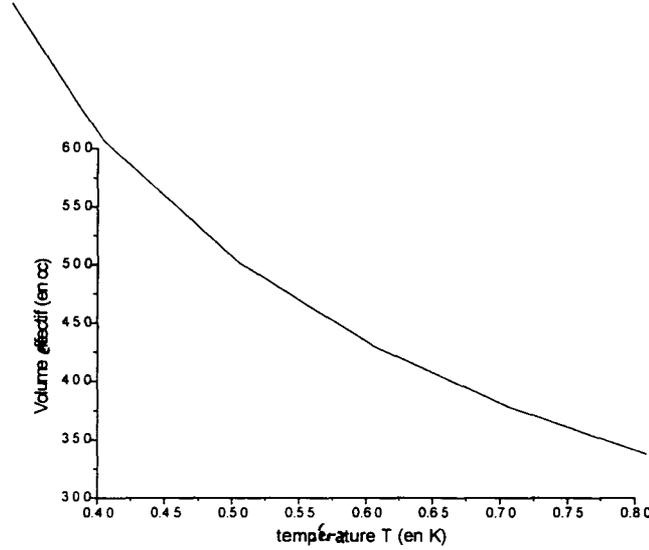


Figure 2.31: Evolution du volume effectif \tilde{V}_{eff} dans la cellule expérimentale en fonction de la température.

Si l'on considère que le volume du liquide est négligeable devant celui de la cellule expérimentale, on déduit directement du calcul des volumes effectifs la quantité d'hélium-3 en phases vapeur et liquide:

$$\begin{aligned}
 n_{vap} &= \left(\frac{V_{eff}}{300} \right) \frac{P_{sat}(T)}{k_B} \\
 n_{liq} &= N_0 - n_{vap}
 \end{aligned}
 \tag{2.39}$$

où N_0 est le nombre total d'atomes introduits initialement dans la cellule ($N_0 = 109 \mu moles$).

La figure 2.32 représente ces quantités d'atomes en fonction de la température T. On retrouve bien que la phase liquide domine largement à basse température ($T < 500$ mK). Celle-ci occupe cependant un volume de quelques mm^3 (3.4 mm^3 à 480 mK) seulement, ce qui justifie notre hypothèse concernant le volume occupé par la vapeur.

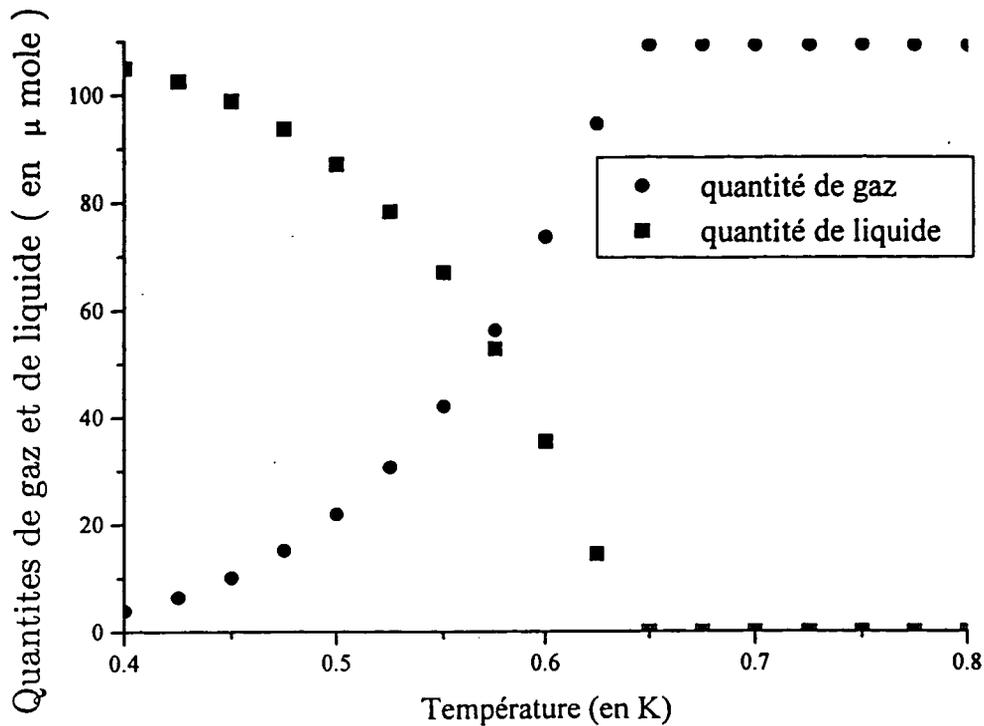


Figure 2.32: Quantités d'atomes en phases respectivement gazeuse et liquide.

Pour la suite de nos calculs, nous aurons également besoin de connaître le volume occupé (et le nombre de moles correspondant) par la vapeur directement en équilibre thermique avec le liquide. Nous choisirons pour cela le cylindre de hauteur 1 cm entouré des fils de thermalisation au cryostat, en bas de la cellule expérimentale ; le volume correspondant V_M vaut 0.13 cm^3 .

2.8.1 Variation de pression isotherme dans le cas d'un liquide peu polarisé

Afin de fixer les ordres de grandeur, nous allons dans un premier temps calculer la valeur de ΔP que l'on pourrait attendre si la transformation était isotherme, avec une polarisation initiale M assez faible pour qu'on puisse ne s'intéresser qu'au premier ordre en M^2 .

$$\frac{\Delta P}{P} = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_n^2}{kT} \right)^2 \left(1 - \frac{\chi_l}{\chi_g} \right) \frac{M^2}{\chi_l^2} \quad (2.40)$$

où $\chi_g = \frac{\mu_n^2}{kT}$, et la susceptibilité magnétique par atome dans le liquide χ_l est donné dans l'article de Thompson *et al* [Thompson 70] en fonction de la température, à l'ordre 0 en aimantation ; M représente la polarisation du système ($|M| \leq 1$).

Dans toute la suite, nous nous sommes intéressés à deux températures particulières correspondant à des résultats expérimentaux caractéristiques : $T=550 \text{ mK}$ et $T=480 \text{ mK}$.

Dans le premier cas, la formule 2.40 donne :

$$\frac{\Delta P}{P} = 0.116 M^2 \quad (2.41)$$

et, dans le deuxième cas :

$$\frac{\Delta P}{P} = 0.164M^2 \quad (2.42)$$

Pour une aimantation initiale de 20 %, on attend donc une variation de pression de 1.5 mTorr à 550 mK et de 0.8 mTorr à 480 mK.

2.8.2 La transformation adiabatique

Il s'agit maintenant d'étudier la transformation adiabatique qui mène de l'état (T, M) à l'état final $(T', 0)$. Comme on considère des fonctions d'état, on peut s'intéresser à un chemin quelconque qui mène au résultat final : en particulier, nous n'avons pas cherché à tenir compte ici de la dynamique du système, c'est à dire des cinétiques des différents effets (équilibre des pressions dans l'ensemble du gaz, entre liquide et vapeur...). Nous avons choisi de considérer d'abord la transformation adiabatique qui, à pression P constante, fait passer le liquide de l'état (T, M) à l'état $(T'_{liq}, 0)$. En parallèle, la vapeur contenue dans le volume V_M subit elle aussi une perte d'aimantation qui la fait passer de l'état (T, M) à l'état $(T'_{vap}, 0)$. Après cette étape où liquide et gaz "évoluent" indépendamment, nous allons autoriser les échanges de chaleur d'abord, puis les échanges d'atomes d'une phase à l'autre.

Bien entendu, cette décomposition de la transformation adiabatique est artificielle et nous ne prétendons pas qu'elle corresponde à des étapes successives réelles. Elle permet cependant de comparer les ordres de grandeur relatifs de ces différents processus.

Effet de la perte d'aimantation du liquide seul Au cours du processus irréversible de relaxation de l'aimantation, qu'elle soit progressive avec une constante de temps T_1 ou très rapide à la suite du basculement d'un angle $\pi/2$ (il faut noter que le simple basculement, qui conserve la norme de M , est a priori sans effet sur l'état thermodynamique du système), de la chaleur est libérée. La puissance libérée localement au cours de ce processus est proportionnelle au "champ magnétique effectif" H_T (champ magnétique H_m qu'il faudrait appliquer à l'équilibre pour obtenir la polarisation mesurée, diminué d'une correction entropique) [Wiegers 91] :

$$H_T = H_m - T \left[\frac{\partial H_m}{\partial T} \right]_M \quad (2.43)$$

En négligeant le champ magnétique appliqué (de quelques mTesla seulement), la puissance libérée par atome s'écrit [Wiegers 91] :

$$\dot{Q} = -\mu_n H_T \frac{dM}{dt} \quad (2.44)$$

où μ_n est le moment magnétique d'un atome d'hélium-3 en phase liquide et M la polarisation ($0 \leq M \leq 1$).

Dans le régime où l'aimantation est proportionnelle au champ (ce qui est une bonne approximation à l'ordre le plus bas en M^2), l'énergie totale libérée lorsque l'aimantation passe de M à 0 devient :

$$Q = \frac{\mu_n^2 M^2}{2\chi_{eff}} \quad (2.45)$$

où :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\chi_{eff}} &= \frac{H_T}{(\mu_n M)} \\ &= \frac{1}{\chi} - T \frac{\partial \frac{1}{\chi}}{\partial T} \end{aligned} \quad (2.46)$$

où χ est la susceptibilité magnétique par atome.

Si l'on suppose que la désaimantation s'effectue adiabatiquement (c'est à dire sans échange de chaleur avec l'extérieur), cette énergie crée simplement un échauffement du liquide :

$$\Delta T = \frac{QN}{C_3} \quad (2.47)$$

où C_3 est la chaleur spécifique molaire de l'hélium-3 liquide et \mathcal{N} le nombre d'Avogadro.

Afin de fixer des valeurs numériques à cette transformation (ainsi qu'aux suivantes), nous allons dans toute la suite nous intéresser à deux valeurs particulières de la température : $T=0.48$ K et $T=0.55$ K, valeurs extrêmes pour les expériences effectuées.

La susceptibilité magnétique et ses dérivées proviennent des valeurs tabulées par Thompson *et al* [Thompson 70] ; les coefficients thermodynamiques sont dérivés des travaux de Greywall *et al* [Greywall 83] et de Kerr *et al* [Kerr 62]. On trouve dans les deux conditions de température des valeurs croissantes de la température quand on détruit l'aimantation :

$\delta T=11.6$ mK pour une température initiale de 480 mK et une aimantation initiale de 20 % ; et $\delta T=10.5$ mK pour une température initiale de 550 mK et la même aimantation initiale.

Effet de la perte d'aimantation du gaz seul La vapeur peut être sans difficulté assimilée à un gaz parfait, ce qui donne une dépendance en $1/T$ à la susceptibilité magnétique χ . Dans ces conditions, l'inverse de la susceptibilité effective est nulle, et la désaimantation adiabatique du gaz ne crée aucun échauffement : on en déduit que $T'_{vap}=T$. Remarquons que ceci n'est vrai que pour une transformation irréversible ; dans le cas d'une désaimantation adiabatique et réversible, le gaz se refroidirait (c'est d'ailleurs une technique de réfrigération aux très basses températures).

Laissons maintenant les échanges de chaleur se produire entre les deux "réservoirs".

Echange de chaleur entre liquide et gaz On s'attend à ce que la température finale T' soit intermédiaire entre les deux températures T'_{liq} et T'_{vap} trouvées. La valeur de cette température

dépendra bien sûr des proportions de liquide et de gaz en contact thermique, et donc de la température initiale T .

Nous considérons ici le gaz situé dans un volume proche du liquide. Il sera ainsi susceptible d'échanger de la chaleur avec le liquide, de préférence aux parois de pyrex. Nous avons déjà défini un tel volume V_M au début de la partie 2.8. A ce volume correspond un nombre d'atomes n_{Mvap} dans la vapeur. Mais ce volume, fixe, joue le rôle d'un volume de contrôle : c'est un volume ouvert, qui permet l'échange d'atomes de gaz avec le reste de la cellule. En particulier, puisqu'on s'attend à un échauffement du gaz, la pression dans V_M va augmenter, ce qui va conduire à un écoulement d'atomes hors de ce volume de contrôle, afin d'équilibrer la pression en phase vapeur dans toute la cellule. On supposera que les atomes qui s'écoulent dans le reste de la cellule se thermalisent avec les parois de pyrex sans modification de la carte de température locale.

Dans ces conditions, la variation d'énergie du système constitué du gaz contenu dans le volume V_M (nombre d'atomes n_{Mvap}) s'écrit :

$$\begin{aligned} dU &= \delta Q_{liq} + (udn + pvdn) \\ &= \delta Q_{liq} + hdn \end{aligned} \quad (2.48)$$

où on néglige l'énergie cinétique des dn atomes qui s'écoulent ; u et h représentent respectivement l'énergie et l'enthalpie atomiques ; δQ_{liq} est la chaleur fournie au gaz par le refroidissement du liquide ($T'_{liq} > T$).

La variation d'énergie du système peut encore s'écrire :

$$\begin{aligned} dU &= d(nu) \\ &= n_{Mvap}du + udn \end{aligned} \quad (2.49)$$

avec :

$$du = C_v dT \quad (2.50)$$

où $C_v = \frac{3}{2}k_B$ est la capacité calorifique atomique du gaz, considéré comme un gaz parfait, k_B désignant la constante de Boltzmann..

On en déduit que le système est décrit par l'équation suivante :

$$n_{Mvap}C_v dT = \delta Q_{liq} + k_B T dn \quad (2.51)$$

Si l'on considère le liquide incompressible, alors, lors de la transformation complète :

$$\delta Q_{liq} = -n_{liq}C_3(T' - T'_{liq}) \quad (2.52)$$

et l'équation 2.51 devient :

$$n_{Mvap}C_v(T' - T) = -n_{liq}C_3(T' - T_{liq}') + k_B T \delta n \quad (2.53)$$

(en supposant les écarts en température et en nombre d'atomes petits devant T et n_{Mvap}).

Le nombre d'atomes qui s'écoulent est entièrement déterminé par l'uniformité de la pression finale P' dans le gaz, dans le volume V_M et dans le reste de la cellule :

$$\begin{aligned} P' &= \frac{n'_{Mvap} k_B T'}{V_M} \\ &= \frac{(n_{vap} - n'_{Mvap}) k_B T_0}{V_{res}(T')} \end{aligned} \quad (2.54)$$

où $T_0 = 300$ K et $V_{res}(T')$ est le volume effectif total de la cellule diminué du volume effectif de V_M :

$$V_{res}(T') = V_{eff}(T') - V_M \frac{T_0}{T'} \quad (2.55)$$

On peut écrire de même l'égalité des pressions dans le gaz avant la transformation. On en déduit le nombre d'atomes écoulés lorsque la température du gaz passe de T à T' :

$$\delta n = n_{Mvap} \left(\frac{T V_{res}(T)}{T' V_{res}(T')} - 1 \right) \frac{1}{1 + \frac{T_0 V_M}{T' V_{res}(T')}} \quad (2.56)$$

En résolvant les équations 2.53 et 2.56, on trouve finalement que $T'=559$ mK pour $T=550$ mK et $T'=491$ mK pour $T=480$ mK. Comme on le voit, l'influence du gaz n'est pas prépondérante : c'est la présence du liquide qui domine l'évolution adiabatique. Dans ces conditions, le choix du volume V_M n'est pas critique (le choix d'un volume double du précédent conduit encore aux mêmes températures T' , à 0.1 % près). Mais un tel échauffement va conduire à une évaporation d'atomes de la phase liquide vers la phase vapeur. En effet, la pression finale du gaz dans ces conditions est nettement inférieure à la pression de vapeur saturante du liquide à la température finale considérée.

Echange de matière entre les deux phases L'état final correspondra à une température T'' dans le volume V_M et à une pression $P''=P_{sat}(T'')$ dans toute la cellule. On notera n''_{liq} et n''_{Mvap} le nombre d'atomes respectivement en phases liquide et vapeur dans cet état final. Rappelons que l'état initial de cette transformation adiabatique est un état de température T' , de pression P' , et de quantités d'atomes n'_{liq} et n'_{Mvap} . On considère cette fois le système constitué du liquide et du gaz contenu dans le volume V_M . C'est toujours un système ouvert : des atomes (dn) vont s'écouler de V_M vers le reste de la cellule quand la pression va augmenter dans V_M .

Si on écrit la conservation de l'énergie dans ce système :

$$dU = h dn \quad (2.57)$$

car il n'y a pas d'échange de chaleur ni de travail avec l'extérieur. Le système évolue donc selon l'équation suivante :

$$L_v dn_{liq} + n_{liq} C_3 dT + n_{Mvap} C_V dT = k_B T dn \quad (2.58)$$

où :

$$\begin{aligned} dn_{liq} &= n'_{liq} - n''_{liq} = n''_{vap} - n'_{vap} \\ dn &= (n'_{vap} - n'_{Mvap}) - (n''_{vap} - n''_{Mvap}) \end{aligned} \quad (2.59)$$

ou encore, en écrivant l'équilibre des pressions dans la cellule :

$$\begin{aligned} dn_{liq} &= \frac{1}{k_B T_0} (P_{sat}(T'') V_{eff}(T'') - P' V_{eff}(T')) \\ dn &= \frac{1}{k_B T_0} (P' V_{res}(T') - P_{sat}(T'') V_{res}(T'')) \end{aligned} \quad (2.60)$$

On trouve finalement que la température T'' qui correspond à une telle transformation adiabatique est $T'' \simeq 550,4$ mK pour une température initiale de 550 mK, et $T'' \simeq 480,7$ mK pour $T=480$ mK. L'effet de la transformation adiabatique complète qui correspond à la destruction de l'aimantation est donc d'augmenter légèrement la température (moins d'1 mK), ce qui provoque une augmentation de la pression de vapeur saturante en parallèle à une diminution de la pression attendue par perte de l'aimantation :

$$\begin{aligned} \delta P &= P_{sat}(T, M) - P_{sat}(T'', 0) \\ &= (P_{sat}(T, M) - P_{sat}(T, 0)) - (P_{sat}(T'', 0) - P_{sat}(T, 0)) \end{aligned} \quad (2.61)$$

Les deux effets de sens contraires s'annihilant partiellement, il vient :

$$\begin{aligned} \delta P &\approx -0,2 \text{ mTorr pour } T=550 \text{ mK} \\ \delta P &\approx -0,4 \text{ mTorr pour } T=480 \text{ mK} \end{aligned}$$

ce qui correspond à une variation de capacité de l'ordre d'environ 2 fF. On retrouve ici l'ordre de grandeur de nos résultats expérimentaux. Ce résultat dépend peu du choix de V_M (tant que V_M reste inférieur à quelques fractions de cm^3). En revanche, la détermination du volume effectif dépend de la carte de température, qui n'est pas connue avec une assez grande précision ; on ne peut donc attendre de notre calcul rien d'autre qu'une confirmation de l'ordre de grandeur de l'effet obtenu expérimentalement. Il n'est pas question ici d'être quantitatif, mais seulement d'interpréter nos résultats expérimentaux, sachant qu'il est très délicat de raisonner sur des grandeurs extensives.

Conclusion Comme on l'a vu, une transformation adiabatique d'un état de polarisation M donné vers un état de polarisation nulle conduit à une augmentation de la température. Cet échauffement est responsable d'une augmentation de la pression compensant pour l'essentiel la diminution de pression isotherme correspondant à l'effet statistique attendu. Pour la situation modélisée ici, la combinaison des effets provoque en fait une faible augmentation de pression et donc une faible diminution de la capacité enregistrée. Les ordres de grandeur obtenus sont parfaitement compatibles avec nos résultats expérimentaux, où l'effet principal observé est une faible augmentation de pression (voir figure 2.28).

Remarquons que l'augmentation de température mesurée est plus faible que celle attendue pour l'effet adiabatique (entre 0.1 et 0.3 mK seulement suivant les conditions expérimentales) : le thermomètre n'est peut-être pas si bien couplé au liquide que la courbe 2.23 le laissait croire...

2.9 Retour sur les résultats expérimentaux : effet isotherme

Nous avons pu interpréter nos résultats à la lumière d'une interprétation adiabatique. Reste qu'on s'attendrait à ce que le système retrouve, après un certain délai, sa température initiale (grâce aux très bonnes performances du réfrigérateur à hélium-3). Dans ces conditions, l'effet isotherme recherché initialement devrait apparaître. Or, nous avons vu au paragraphe 2.7.1 que tel n'est pas le cas : nous n'avons jamais observé une variation de pression comparable à ce que nous attendions, et ce malgré d'assez fortes polarisations initiales (plus de 20 %).

Afin de résumer ce résultat expérimental clé, nous avons tracé sur une même courbe l'effet théorique attendu aux faibles polarisations pour deux valeurs de température (550 mK et 480 mK) et l'écart en pression isotherme mesuré. Nous avons pour cela procédé de diverses façons : en extrapolant la valeur de la capacité avant l'impulsion RMN et comparant celle-ci à la capacité mesurée 15 s après cette même impulsion (+), en extrapolant la valeur de la capacité mesurée 15 s après l'impulsion RMN et la comparant à la capacité avant l'impulsion (Δ), ou en la comparant à la capacité 15 s avant l'impulsion (o).

La barre d'erreur due au choix du dépouillement est importante, comme on peut le voir sur la figure, et ce d'autant plus que la polarisation est grande (points obtenus après un délai plus court et donc présentant une plus forte dérive thermique). On voit cependant que l'effet isotherme mesuré reste bien plus faible que ce qu'on attendait.

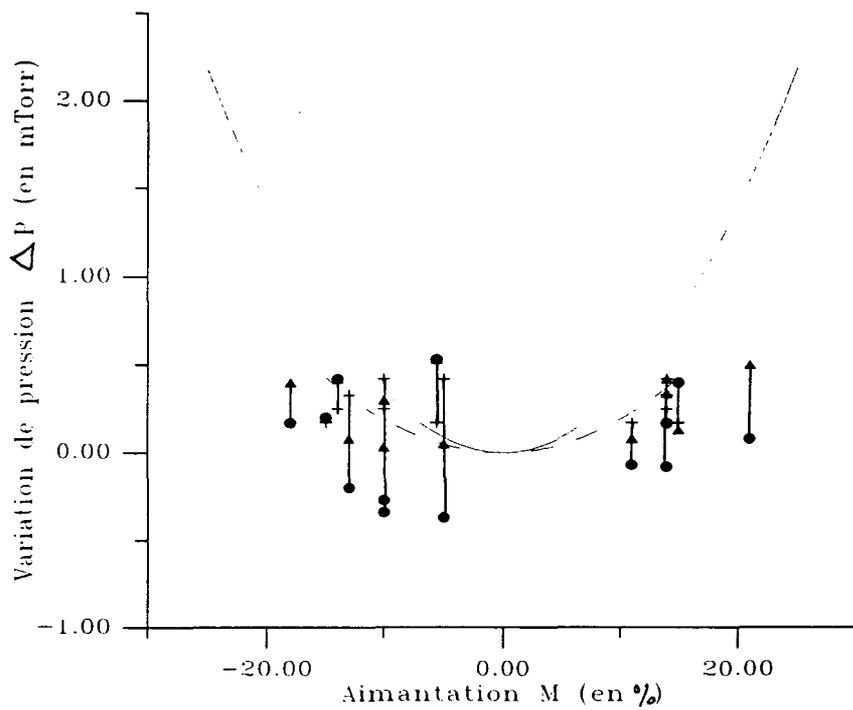


Figure 2.33: Variation de pression isotherme, indépendamment de l'effet adiabatique. Les croix, triangles et ronds correspondent à trois façons différentes de dépouiller cet effet isotherme.

2.10 Une nouvelle configuration pour tester cette interprétation

Comme on le voit, une interprétation en termes d'adiabaticité fait intervenir les proportions d'atomes entre phase liquide et phase gazeuse, et donc en particulier le volume effectif accessible à la vapeur. Si le volume accessible au gaz est beaucoup plus faible, on s'attend à ce que presque tout l'hélium-3 soit sous forme liquide, et donc que l'équilibre à l'issue d'une transformation adiabatique soit presque entièrement déterminé par le liquide.

2.10.1 Description de la nouvelle cellule expérimentale

Afin de diminuer le volume accessible au gaz, la première modification à apporter est de supprimer le gros réservoir. De même, le volume situé à basse température est un volume qui contribue beaucoup au volume effectif, et donc à la quantité d'atomes en phase vapeur. C'est pourquoi nous avons décidé de relier la cellule expérimentale (qui consiste toujours en un tube fermé de diamètre intérieur 4 mm, mais de longueur 20 mm seulement) à la tête par un long tube de diamètre intérieur 1 mm seulement. Seule la partie haute du tube a un diamètre intérieur de 3 mm, afin de faciliter la répartition du césium dans toute la cellule.

Enfin, nous avons ajouté un robinet sous la tête de la cellule, à température ambiante. Lors de la destruction de l'aimantation, le volume de pompage optique pourra donc être isolé de la cellule expérimentale, ce qui diminue encore nettement son volume effectif, et permet de minimiser le rôle des atomes en phase gazeuse. Ce robinet présente un autre avantage : on pourra ainsi réchauffer la cellule expérimentale, jusqu'à 4 K si nécessaire, afin de recueillir le maximum d'atomes dans le volume de pompage optique, fermer ce volume, et pré-refroidir la cellule à la température souhaitée pendant la phase de pompage optique. Cette procédure permet de compenser en partie le fait que cette nouvelle configuration de cellule diminue beaucoup le nombre d'atomes susceptibles d'être polarisés, et permet en principe d'atteindre plus rapidement la température finale.

Il s'agit d'un robinet à 3 voies, qui permet de relier la cellule expérimentale à la tête afin de liquéfier un maximum d'atomes polarisés, puis d'isoler la tête et de relier la cellule expérimentale au capteur de pression. Il va sans dire que le contenu du capteur doit pouvoir être vidé après chaque mesure de pression de vapeur saturante.

Pour terminer, nous ne saurions dégazer correctement la cellule sans l'ajout d'un robinet simple sur la tête de la cellule, ce qui permet de pomper en même temps tout le contenu de la cellule ; ce robinet a en outre l'avantage de permettre de changer le gaz ou d'en modifier les quantités sans passer par le capteur de pression. La nouvelle cellule, telle que conçue ci dessus, a donc l'allure indiquée sur la figure 2.34.

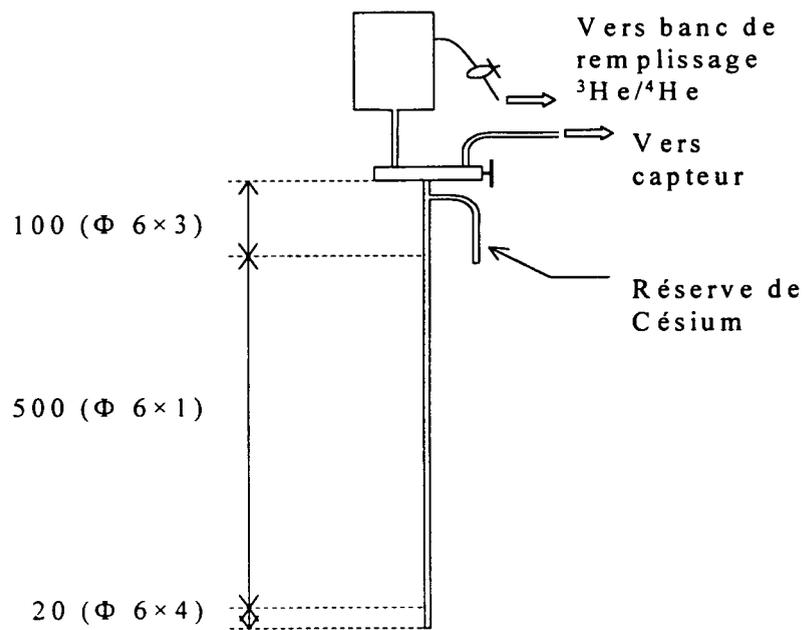


Figure 2.34: Nouvelle cellule expérimentale (les dimensions sont en mm).

2.10.2 Résultats expérimentaux préliminaires

Nous avons en fait, et contre toute attente, été confrontés à nouveau à des problèmes de relaxation de l'aimantation.

Dans les conditions d'utilisation prévues, à savoir une pression de remplissage de la tête de 1.4 Torr (et donc une quantité d'atomes d'hélium-3 de 14 μ moles, dont 77 % en phase liquide à 500 mK), l'aimantation en phase liquide s'est avérée assez faible (inférieure à 10 % au maximum, alors que l'on obtenait couramment des polarisations de 50 % en phase gazeuse), mais, surtout, nous avons mesuré un temps de relaxation longitudinale de l'ordre de la minute, au lieu des 5 minutes attendues.

Notre première réaction a été d'accuser l'enduit de césium ; nous avons donc refait celui-ci. Mais aucun effet n'en a été retiré : nous obtenions toujours des temps de relaxation longitudinale de l'ordre de la minute. Nous avons alors introduit une plus grande quantité d'hélium-3. Pour une pression de remplissage de la tête de 3.3 Torr, nous avons observé une aimantation maximale de seulement 10 % mais un T_1 de 3 minutes. Une faible polarisation du liquide peut s'expliquer en partie par un pompage optique moins efficace dans les conditions de forte pression (la polarisation nucléaire dans la tête de la cellule ne dépassait pas en effet 30 %). En augmentant encore la pression dans la tête de la cellule ($P \simeq 6.7$ Torr), nous avons obtenu un T_1 de 5 minutes, et une aimantation maximale de 9 % (pour 20 % dans le gaz polarisé dans le volume de pompage optique).

Les problèmes de relaxation dans notre cellule semblent pouvoir être attribués à la relaxation sur les parois de la cellule : lorsqu'on dispose d'une goutte de liquide de quelques mm^3 (comparable à ce que nous avons dans la cellule précédente), le temps de relaxation est le temps de relaxation intrinsèque (à savoir 5 minutes) ; en revanche, lorsque la goutte de liquide devient plus petite (de l'ordre de la fraction de mm^3), les effets de relaxation sur la paroi deviennent très gênant. L'échange rapide d'atomes entre le liquide et la vapeur maintient leurs polarisations en équilibre, et c'est l'ensemble de la paroi froide qui contribue à la relaxation du liquide. Un modèle simple permet d'estimer ce phénomène : la relaxation (constante de temps T_1) est causée à la fois par la relaxation sur la paroi (constante de temps $T_{1\text{paroi}}$) et par la relaxation intrinsèque (constante de temps $T_{1\text{bulk}}$). On peut alors écrire :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_{1\text{bulk}}} + \frac{1}{T_{1\text{paroi}}}$$

Si on exprime le temps de relaxation sur la paroi, il vient :

$$\frac{1}{T_{1\text{paroi}}} = \frac{1}{N} \left(\frac{n_{\text{pvap}}}{\tau_{\text{pvap}}} + \frac{n_{\text{pliq}}}{\tau_{\text{pliq}}} \right)$$

où N est le nombre total d'atomes, n_{pvap} le nombre d'atomes en phase vapeur sur la paroi et n_{pliq} le nombre d'atomes en phase liquide sur la paroi ; τ_{pvap} (ou τ_{pliq}) est simplement le temps

de relaxation sur la paroi propre au gaz (respectivement au liquide). Lorsqu'on varie le nombre total d'atomes contenus dans la cellule, c'est-à-dire l'épaisseur du film liquide, ces deux derniers coefficients sont des constantes ; il en est de même du nombre d'atomes en phase gaz (qui n'est fonction que de la température) et du nombre d'atomes en phase liquide sur la paroi, si l'on suppose que le liquide se forme sur toute la surface définie par les fils de cuivre.

Finalement, la constante de temps de relaxation longitudinale T_1 est reliée à N , et donc à la pression de remplissage de la cellule, de façon assez simple. Nous avons vérifié que cette loi était compatible avec nos mesures de T_1 pour les trois pressions indiquées.

Quoiqu'il en soit, nos chances de voir un effet de la polarisation nucléaire sur la pression de vapeur saturante dans ces conditions sont assez faibles. Nous avons tout de même tenté l'expérience en partant d'un gaz peu polarisé à forte pression, ce qui nous a permis d'avoir un temps de relaxation longitudinale suffisant pour l'expérience, mais ne nous a pas permis d'avoir une forte polarisation dans le liquide d'hélium-3. L'enregistrement de la pression de vapeur saturante ne montre aucun effet lors du basculement de l'aimantation d'un angle $\frac{\pi}{2}$.

Afin de tenter d'élucider les raisons de cette absence de variation, nous avons voulu étudier un mélange d'hélium-3/hélium-4 dans cette même cellule et dans les mêmes conditions.

2.10.3 Mélange hélium-3/hélium-4

En ce qui concerne l'aimantation, nous pouvons espérer atteindre des polarisations correctes (de l'ordre de 30 %), avec des temps de relaxation longitudinale beaucoup plus longs que dans l'hélium-3 pur. En revanche, comme il ne s'agit plus d'hélium-3 pur mais d'un quasi-gaz, les susceptibilités magnétiques sont différentes ; on attend donc toujours une variation de la pression de vapeur saturante, mais celle-ci sera bien sûr différente de celle attendue pour le liquide pur.

Nous avons donc rempli la cellule de 15 Torr d'hélium-4, que nous avons préliquéfié dans la cellule expérimentale ; puis, nous avons introduit 1.9 Torr d'hélium-3 dans le volume de pompage optique. Celui-ci a acquis en quelques dizaines de secondes une polarisation d'environ 40 %. Enfin, nous avons liquéfié cet hélium-3 polarisé et surveillé par des petits angles de basculement l'évolution de l'aimantation dans le liquide.

Il n'est pas possible ici de déterminer la polarisation dans le liquide par le décalage en fréquence, car, étant donné le gros volume de liquide, celui-ci ne va pas former un film vertical, mais remplir le bas de la cellule pour donner un échantillon assez isotrope dans lequel le décalage en fréquence est quasiment nul. Nous avons donc suivi l'évolution temporelle de l'amplitude initiale du signal de précession, obtenue après filtrage du bruit contenu dans le signal enregistré. Dans ces conditions, nous avons mesuré un temps de relaxation longitudinale de l'aimantation de l'ordre de 17 minutes.

Nous avons donc largement le temps d'effectuer nos mesures de pression de vapeur saturante dans ce système...En revanche, cette méthode de mesure de l'aimantation ne donne pas la valeur absolue de la polarisation : il faudrait calibrer la sensibilité du dispositif de détection RMN. Nous nous sommes contentés de comparer l'amplitude du signal de détection à celle obtenue dans l'hélium-3 pur pour les mêmes conditions de basculement de l'aimantation et la même quantité totale d'hélium-3. Il suffit alors de déduire l'aimantation dans l'hélium-3 pur de la mesure du décalage en fréquence entre fréquence de précession des spins et fréquence de Larmor. Nous avons ainsi pu déterminer que l'aimantation dans le mélange atteignait environ 25 %.

Pour la mesure de pression de vapeur saturante, nous avons procédé comme pour l'hélium-3 pur, à la différence près que nous n'étions pas pressés par le temps, étant donnée la longueur du T_1 ! Sur l'enregistrement de la capacité lors de la destruction de l'aimantation par un angle de basculement de 90 degrés (figure 2.35), nous voyons toujours une baisse d'environ 1.5 fF, mais suivie cette fois d'une forte augmentation de capacité (de l'ordre de 10 fF). Ce qui correspond parfaitement à l'évolution que nous avons prédite lors de l'expérience de pensée représentée sur la figure 2.5. Nous pensons donc avoir enfin vu le retour à l'isotherme, après le bref réchauffement imposé par la perte d'aimantation. On peut remarquer que la mesure de pression semble suivre la température extérieure avec un retard de quelques 2 à 3 secondes lors de la baisse de capacité, ce qui correspond tout à fait au calcul de temps d'équilibrage des pressions à travers le long tube (calcul qui donne 2 s de constante de temps). Il semble donc que ce délai ne soit pas dû au temps de perte de l'aimantation transverse (T_2).

Nous avons cherché à comparer cette baisse de pression à l'effet isotherme attendu dans un mélange. La susceptibilité magnétique utilisée dans notre estimation provient des calculs effectués pour un système idéal d'hélium-3 pur de même température de Fermi [Goldstein 64]. En effet, la susceptibilité magnétique des mélanges ayant été expérimentalement mesurée sur une gamme suffisante de températures et de concentrations [Husa 66], il a été observé que la solution diluée se comporte comme un gaz de Fermi idéal. Dans ces conditions, l'application de la formule 2.40 indique que :

$$\frac{\Delta P}{P} \approx 0.192 M^2 \quad (2.62)$$

ce qui correspond à une variation relative de pression de 1.2 % dans notre cas ($M=25$ %). Expérimentalement, on observe une variation de 0.9 %, ce qui est en accord raisonnable compte tenu du manque de précision sur l'aimantation.

Nous avons bien sûr vérifié la reproductibilité de cette observation, en variant en particulier la pression de remplissage, à proportion d'hélium-3 fixée. Il ne s'agit cependant que de résultats préliminaires, et nous n'avons pas encore eu le temps de faire une étude systématique de la variation

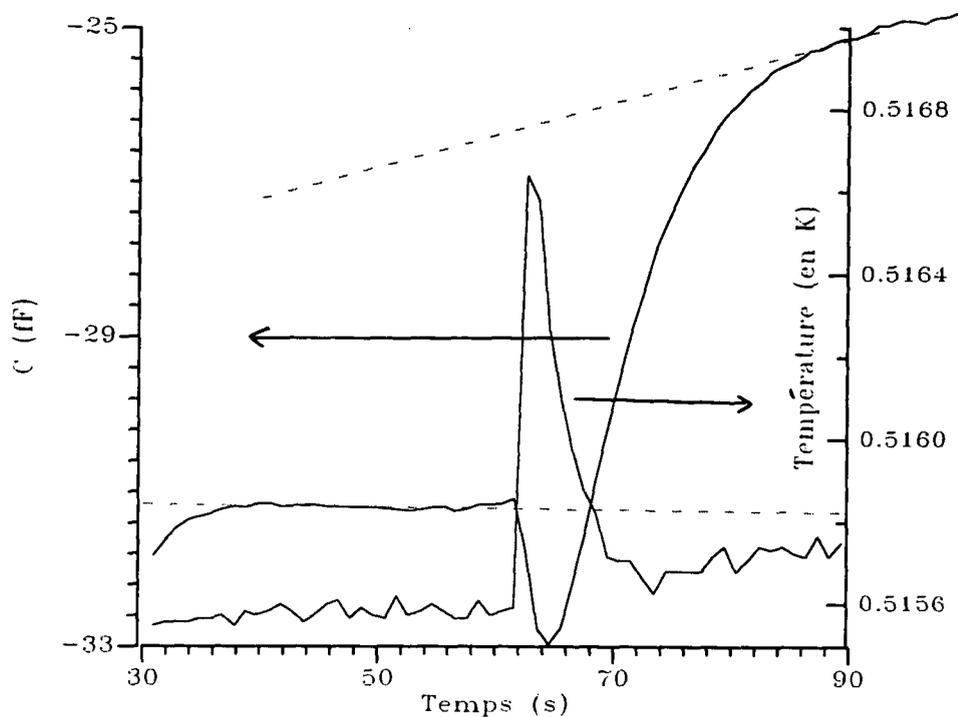


Figure 2.35: Evolution de la capacité et de la température lors d'une destruction de l'aimantation.

de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation, à température constante. Cependant, ces premiers résultats ouvrent de nouvelles perspectives à notre expérience, qui avait jusque-là subi de nombreux et désespérants échecs...

2.11 Conclusion

Nous avons observé dans un mélange hélium-3/hélium-4 l'effet de la destruction de l'aimantation à température constante. Cet effet a bien l'ordre de grandeur et le sens attendus. Mais il ne s'agit ici que de résultats préliminaires. Nous avons dû interrompre l'expérience pour des raisons techniques, mais celle-ci devrait reprendre bientôt pour permettre d'étudier l'effet sur les mélanges de façon plus systématique et quantitative.

En revanche, tous nos efforts pour observer cet effet dans l'hélium-3 pur étaient restés vains. Seule une variation de pression dans le sens opposé aux prédictions théoriques, et d'un ordre de grandeur plus faible qu'attendu, a pu être observée. Remarquons que ce même effet a été observé dans le cas du mélange, avant un retour à la température initiale et une nette diminution de la pression.

Nous avons, dans le cas de l'hélium-3 pur, interprété cette augmentation de pression (correspon-

dant à un échauffement) en termes de transformation adiabatique : on peut en effet comprendre qu'avant de retrouver son équilibre thermique avec le cryostat (qui, par ailleurs, s'est avéré tout à fait performant pour cette expérience, avec une bonne stabilité), le liquide commence par évoluer brutalement (et donc de façon adiabatique).

Reste à interpréter l'absence de variation de pression, lors du retour à la température initiale (ou presque), dans le cas de l'hélium-3 pur. Une première idée est d'accuser l'efficacité de la méthode de destruction de l'aimantation. Dans le liquide pur, dense, il est possible que nous ne détruisions que l'aimantation globale, mais pas locale : peut-être reste-t-il différentes zones de forte aimantation dont l'effet global serait nul. En fait, il est très difficile de comprendre ce qui se passe lors du pulse $\frac{\pi}{2}$, et ce d'autant plus que lors d'une étude RMN systématique réalisée sur la cellule à gros réservoir et à capteur à 300K (voir paragraphe 2.6), d'autres particularités ont été observées (voir partie 4) : une forte dépendance du temps de relaxation transverse T_2^* en M et en angle de basculement α , une quasi-absence d'effets d'un gradient de champ magnétique... A la lumière de ces observations (qui restent malheureusement inexplicables à ce stade), on peut penser que nous ne maîtrisons pas très bien l'étape de destruction de l'aimantation. Il reste cependant que l'effet observé s'interprète bien en termes de transformation adiabatique, ce qui laisse penser que nous détruisons bien une partie de l'aimantation au moins...

Dans l'avenir, il faudra considérer les solutions diluées d'hélium-3 dans l'hélium-4 comme un outil indispensable à l'observation d'effets intermédiaires. En particulier, en augmentant la proportion d'hélium-3 (la démixion n'intervient pas avant 25 % à 0.5 K), on doit pouvoir se rapprocher du cas du liquide pur. Comme une forte aimantation (de l'ordre de 40 %) est alors envisageable, on attend des effets intéressants sur les mélanges.

Chapitre 3

Etude d'un mélange

3.1 Introduction

3.1.1 Motivations

Nous décrivons dans cette partie une expérience en fait antérieure aux mesures de la pression de vapeur saturante, dont l'objectif était d'une part de mesurer la constante de temps de relaxation longitudinale T_1 en fonction de la température T et de la concentration en hélium-3 dans le liquide, d'autre part de mesurer cette concentration x_{liq} . Il s'agissait essentiellement de se placer dans une situation expérimentale bien connue, avant de chercher à améliorer la souplesse du dispositif expérimental visant à mesurer $T_1(x_{liq}, T)$. Il s'agissait d'autre part de tester la résolution et la précision de notre détermination de la concentration, dans une situation où on ne pouvait guère la faire varier.

Cette expérience préliminaire a donné suite à toute une série d'expériences où la cellule testée a laissé place à une cellule "ouverte", munie d'un robinet au niveau de la tête, ce qui permet de varier beaucoup plus librement x_{liq} [Tastevin 96].

Nos difficultés à déterminer à l'aide d'un modèle simple la valeur de x_{liq} ont amené à modifier la forme de la cellule, en supprimant en particulier le "gros réservoir". Celui-ci n'est d'ailleurs plus nécessaire dans une cellule ouverte, car le gaz polarisé est liquéfié au fur et à mesure qu'il subit le pompage optique : il n'est donc plus nécessaire d'accumuler du gaz polarisé dans un gros réservoir. Nous verrons que dans de telles conditions, la détermination de x_{liq} présente nettement moins d'incertitude.

3.1.2 Prédiction théorique

Le temps de relaxation longitudinale T_1 pour un gaz de Fermi (spin 1/2) polarisé a été calculé dans certaines conditions par Mullin, Laloë et Richards [Mullin 79]. Les auteurs prédisent d'une part que T_1 est indépendant de la polarisation du gaz, d'autre part que le produit de la densité du gaz par T_1 est une fonction de la température seule : $T_1 n \sim T^{-1/2}$; ceci pour un gaz suffisamment dilué.

Nous ne rentrerons pas dans les détails de cette théorie, car il n'était pas dans nos objectifs de la vérifier, mais seulement d'étudier les conditions expérimentales qui permettraient ultérieurement cette vérification.

On voit cependant l'importance de deux paramètres dans notre étude : d'une part la température, d'autre part la densité de gaz de Fermi. On pourrait vouloir faire cette étude sur de l'hélium-3 pur ; mais, dans le liquide, la densité est à peu près fixée, on ne peut donc pas jouer dessus (et, de toutes façons, nous sommes loin des conditions requises par la théorie, à savoir un gaz dilué). Quant à la vapeur, sa densité peut être variée facilement, mais elle reste bornée par le fait que la pression reste inférieure à la pression de vapeur saturante, ce qui ne permet pas d'explorer des densités assez grandes ; de plus, les temps de relaxation longitudinale dans ces conditions sont gigantesques, ce qui rend l'étude peu réaliste. C'est la raison de notre travail sur un mélange d'hélium-3 dans l'hélium-4. On sait en effet que la densité en hélium-3 dans l'hélium-4 peut être variée indépendamment de la température : nous pouvons agir ainsi sur 2 paramètres indépendants.

L'intérêt de ce système physique est qu'il présente beaucoup d'analogies avec un système gazeux. En effet, l'hélium-4 superfluide constitue pour les atomes d'hélium-3 un "pseudo-vide". Les atomes d'hélium-3 s'y propagent pratiquement comme des atomes libres (à ceci près qu'ils ont une inertie augmentée, ce que traduit une masse effective $m^* \approx 2.3 m$, où m est la masse de l'atome "nu"). L'avantage de ces solutions sur l'hélium-3 gazeux est qu'on peut les porter jusqu'à une température aussi faible que possible sans condensation de l'hélium-3, à condition que la concentration isotopique reste inférieure à 6 % environ (concentration seuil au-delà de laquelle la démixion se produit, à $T = 0$ K).

On voit également qu'il ne s'agit pas seulement ici de mesurer le temps de relaxation longitudinale T_1 pour différentes températures, mais aussi d'être capable de déterminer la densité en hélium-3 lors de la mesure. C'est en fait cette dernière détermination qui va occuper la plus grosse partie de notre étude.

3.2 Description - Cellule à mélange

Notre cellule à mélange a été remplie, comme toutes les cellules réalisées jusque là au laboratoire, par J. Brossel, après étuvage à 200°C (Cf partie 1) pendant plusieurs jours. Une petite quantité de césium a été introduite, puis, une fois le gaz d'hélium-3/hélium-4 introduit à son tour dans la cellule, celle-ci a été scellée. Le césium a été, par la suite, fondu et déposé sur toute la surface interne de la cellule, comme nous l'avons vu dans la partie 1 (paragraphe 1.1.2.4).

3.2.1 Proportions en hélium-3/hélium-4

Il est bien connu que dans un mélange liquide d'hélium-3 dans de l'hélium-4 porté à une température T , la concentration en hélium-3 ne peut être augmentée indéfiniment ; en effet, il arrive un point où une séparation de phase survient dans le liquide, produisant une solution très riche en hélium-3 qui flotte, parce qu'elle est plus légère, au-dessus d'une solution diluée d'hélium-3 dans l'hélium-4.

Le diagramme donnant la dépendance en température des concentrations des deux phases qui peuvent coexister est représenté sur la figure 3.1.

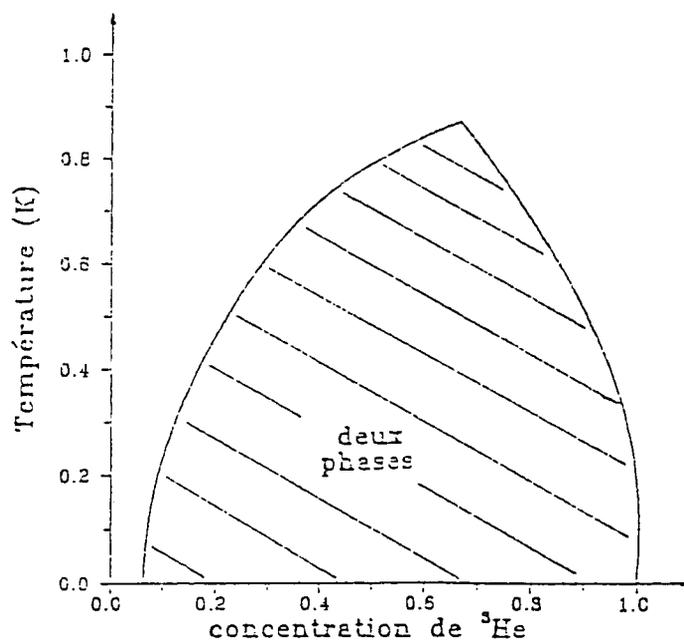


Figure 3.1: Diagramme de phase des mélanges hélium-3 / hélium-4

Nous avons donc choisi de remplir notre cellule de telle sorte que, pour nos températures ($T_{min} \sim 450$ mK), cette démixion ne se produise jamais. Ce qui revient à choisir les proportions en hélium-3 dans l'hélium-4 telles que $x_{liq}(T = 450 \text{ mK}) \leq 0.2$.

En pratique, la cellule à mélange a été remplie de 0.27 mmole, dont 20 % d'hélium-3. Comme la pression de vapeur saturante de l'hélium-4 est toujours inférieure à celle de l'hélium-3, la vapeur

sera plus riche en hélium-3 que le liquide. La proportion en hélium-3 dans le liquide n'atteindra donc jamais une proportion supérieure à celle de l'hélium-3 présent initialement dans la cellule à 300 K. Puisque la proportion initiale d'hélium-3 est de l'ordre de 20 %, on est donc assuré de ne jamais voir de séparation de phase dans notre système (où T ne descend pas en dessous de 450 mK).

3.2.2 Quantités d'hélium

Le choix du nombre total d'atomes, quant à lui, a été guidé par la contrainte de se placer dans des conditions favorables au pompage optique. La phase de préparation de la polarisation par pompage optique se fait en portant le volume froid à 1 K, température qui permet à la fois d'atteindre rapidement (quelques dizaines de secondes) la température souhaitée pour nos mesures, et également d'augmenter la quantité de gaz polarisé.

On s'attend à ce que la pression partielle en hélium-3 à cette température soit de l'ordre de 0.4 Torr, et la pression totale de 2 Torr, ce qui est une bonne condition de pompage optique dans un mélange.

3.3 Mesure du temps de relaxation longitudinal T_1

Compte-tenu de la géométrie scellée de notre cellule, nous avons mesuré T_1 dans une gamme restreinte de températures. En effet, nous étions limités, du côté des basses températures, par la température limite de notre cryostat, et du côté des hautes températures, par l'évaporation de l'hélium-3 liquide polarisé dont nous pouvions déterminer l'aimantation par RMN. En pratique, lors des mesures de T_1 , la température T variait d'environ 100 mK autour de 650 mK. Sur un tel écart en température, nous n'avons pas cherché à voir une dépendance de T_1 en température, ni cherché en particulier à tenir compte des corrections dues à la relaxation différente dans la vapeur.

Afin de déterminer l'aimantation M dans le liquide, nous avons utilisé la méthode décrite dans la première partie de ce manuscrit, à savoir l'écart en fréquences entre fréquence de Larmor et fréquence de précession des spins. En revanche, nous ne pouvons connaître la valeur absolue de l'aimantation, car il s'agit d'un mélange et nous ne connaissons pas la proportion d'hélium-3 dans le liquide à ce stade.

Nous avons observé une décroissance exponentielle de l'aimantation, et avons déterminé les constantes de temps T_1 de décroissance dans les différentes expériences. Nos mesures ont montré que T_1 était de l'ordre de 20 minutes (soit 1200 s) pour la gamme de températures considérées. La figure 3.2 montre l'évolution de l'aimantation de la solution en fonction du temps pour une température de 610 mK : il s'agit bien d'une décroissance exponentielle de temps de relaxation 17

minutes.

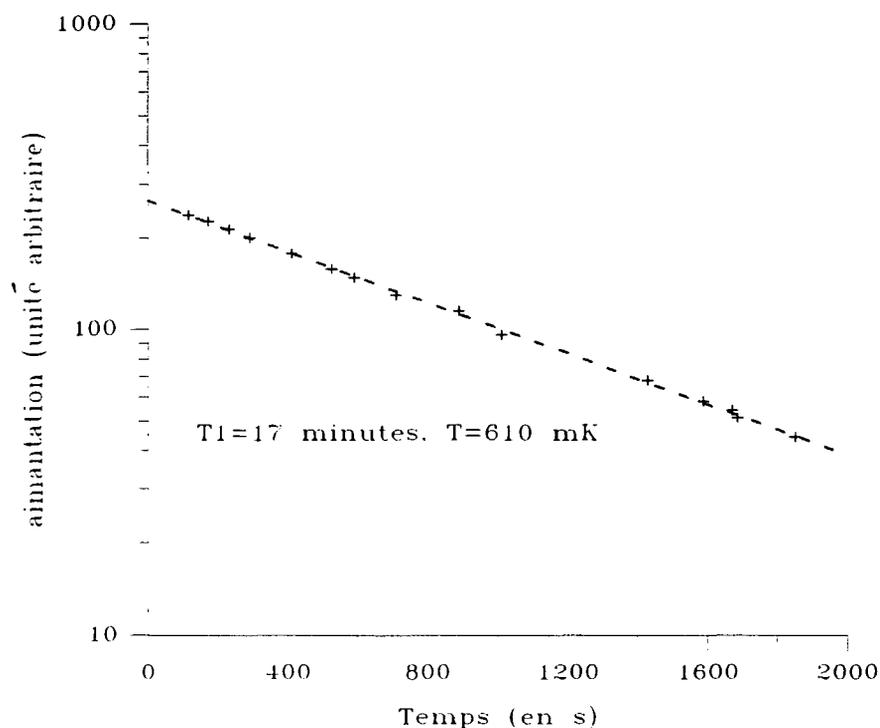


Figure 3.2: Evolution temporelle de l'aimantation, pour une température $T=610$ mK.

Nous avons cherché à savoir à quel point le temps de relaxation longitudinale T_1 était indépendant de l'aimantation. Pour cela, nous avons écrit T_1 sous la forme d'un développement limité de la forme :

$$T_1 = T_1^0 \left(1 + \alpha \frac{M^2}{M_{\max}^2} \right) \quad (3.1)$$

où M_{\max} est la polarisation maximale mesurée. Cette loi en M^2 traduit le fait qu'on ne s'attend pas à des effets impairs en M .

Nous déduisons de nos expériences que $\alpha \approx 0.15$ à ± 0.15 près. Comme l'incertitude sur α est du même ordre que la valeur de α , il est délicat de conclure ici sur la dépendance de T_1 en aimantation.

Reste à déterminer la densité en hélium-3 dans nos expériences. Nous allons voir que, étant données nos conditions expérimentales, ce n'est pas si simple.

3.4 Détermination de x_{liq}

Il nous faut pour cela déterminer la distribution des atomes entre les phases liquide et gazeuse.

L'hélium-4 dont la température de liquéfaction est plus élevée que celle de l'hélium-3, sera présent en grande majorité dans le liquide pour des températures relativement élevées.

En revanche, aux faibles températures ($T < 0.4$ K), on s'attend à ce que tous les atomes soient en phase liquide ; dans ces conditions, la concentration en hélium-3 dans le liquide est simplement la concentration nominale en hélium-3 (lors du remplissage).

Dans les situations intermédiaires, la concentration en hélium-3 dans le liquide x_{liq} est beaucoup plus délicate à déterminer, car elle dépend beaucoup de la température.

3.4.1 Principe

Nous avons développé un modèle numérique assez simple qui s'appuie sur la géométrie de la cellule et la carte de température d'une part, sur les quantités initiales d'hélium-3 et d'hélium-4 d'autre part, pour calculer les différentes caractéristiques du mélange hélium-3/hélium-4 : proportion x_{liq} d'hélium-3 dans le liquide, proportion x_{vap} d'hélium-3 dans la vapeur, pression totale et volume de liquide.

Ce modèle numérique fait appel au calcul des pressions partielles en hélium-3 et en hélium-4 en fonction de la température et de la concentration dans le liquide. Ce calcul repose sur l'article de de Bruyn Ouboter et al. [de Bruyn Ouboter 59], qui exprime la pression partielle en hélium-3 dans un modèle de solution régulière sous la forme :

$$P_3 = x_{liq} P_{3pur} \exp \left[(1 - x_{liq})^2 \frac{W}{RT} \right] \quad (3.2)$$

Et la pression partielle en hélium-4 :

$$P_4 = (1 - x_{liq}) P_{4pur} \exp \left[x_{liq}^2 \frac{W}{RT} \right] \quad (3.3)$$

Les pressions en hélium-3 pur, P_{3pur} , et en hélium-4 pur, P_{4pur} , sont calculées par Rusby et Durieux [Rusby 84]. Le facteur $\frac{W}{RT}$ a été introduite en considérant que les mélanges d'hélium sont des solutions régulières, caractérisées par une énergie de mélange $\frac{W}{R} = 1.54$ K. Cette valeur, ajustée sur un ensemble de mesures à assez hautes températures ($T \geq 0.9$ K), n'est d'ailleurs pas forcément adaptée à nos expériences. Nous l'utiliserons néanmoins dans un premier temps avant de revenir sur ce point par la suite.

3.4.2 Géométrie de la cellule. Volumes effectifs

Etant donnée la longueur de notre cellule (de l'ordre de 80 cm), les gradients thermiques sont très importants : en particulier, la tête de la cellule est située hors du cryostat, c'est-à-dire à 300 K,

alors que la cellule expérimentale qui est reliée au point froid du cryostat affiche une température de l'ordre de 0.6 K. Pour connaître la répartition des atomes dans la cellule il convient donc d'avoir une bonne idée de la carte de température le long de celle-ci. Des thermomètres placés à divers endroits de la cellule permettent de la déterminer.

On définit alors $V_{eff} = \int \frac{300K}{T} dV$ sur différents volumes. Comme la pression est uniforme dans la cellule, la quantité d'atomes présents dans un volume donné est directement proportionnelle au volume effectif de ce volume.

La figure 3.3 illustre d'une part les volumes des différentes parties de la cellule expérimentale, d'autre part les volumes effectifs correspondants. On voit l'importance du "gros réservoir", situé aux alentours de 50 K, et dont le volume effectif domine nettement.

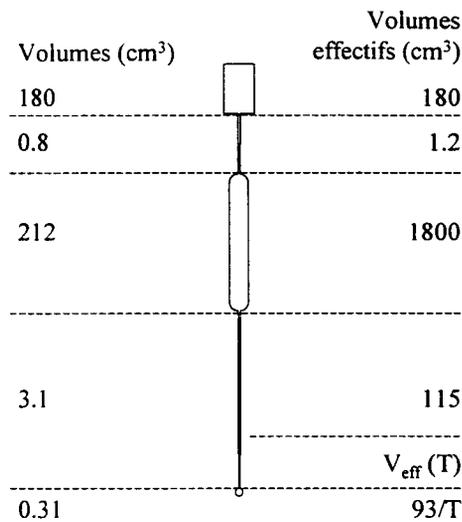


Figure 3.3: Températures le long de la cellule expérimentale et volumes effectifs

3.4.3 Carte de température. Hystérésis

Les volumes effectifs indiqués précédemment sont indépendants de la température de la cellule expérimentale, car situés suffisamment loin pour être thermiquement stables. Ce n'est en revanche pas le cas du volume de la cellule expérimentale, dont on varie la température lors des expériences. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés tout particulièrement, lors de ces expériences, essentiellement à la température en bas de la cellule, à savoir au niveau de la boule (point froid de la cellule) mais aussi un peu au-dessus, dans le tube de diamètre intérieur 4 mm et de hauteur 9 cm (dont le volume effectif est noté $V_{eff}(T)$ sur la figure précédente). En effet, même si les

volumes accessibles à la vapeur sont assez faibles, ce sont des régions de très faible température (températures de l'ordre de 1 K) et donc d'assez grand volume effectif. Il importait d'être capables de quantifier ces volumes effectifs de façon assez précise, en fonction de la température retenue.

Pour différentes températures mesurées au niveau de la boule (de température uniforme T_6), nous avons donc noté (figure 3.4) les températures le long du tube, ceci en 3 positions (T_4, T_5 et T_7). Nous avons observé que lors d'un cycle de refroidissement-réchauffement, les courbes

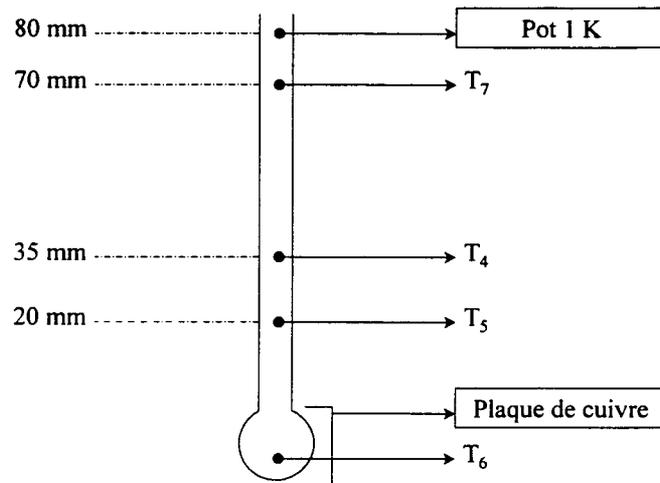


Figure 3.4: Mesure des températures le long de la partie basse de la cellule.

$T_i(T_6)$ présentent une hystérésis entre 600 mK et 900 mK (cf figure 3.5). A ces hystérésis sur les températures correspond une hystérésis sur le volume effectif du tube. On voit en effet sur les variations de ce volume effectif en fonction de la température du point froid de la cellule (T_6) (cf figure 3.6), que les points correspondant au refroidissement sont en-dessous de points correspondant au réchauffement, et ce pour des températures comprises entre 600 mK et 900 mK.

3.4.4 Modèle numérique. Première approche

Maintenant que nous voyons un peu mieux comment les atomes vont se répartir le long de la cellule, grâce au calcul des volumes effectifs, nous allons présenter le modèle numérique développé dans un premier temps pour déterminer les distributions d'atomes entre phases. Il s'agit d'un modèle simple où l'on suppose les homogénéités des pressions et des concentrations, ce qui revient à représenter la cellule par deux grands volumes : un volume chaud d'une part, et un volume froid où vont se liquéfier les atomes d'autre part. En pratique, on prend pour le volume chaud tout le volume

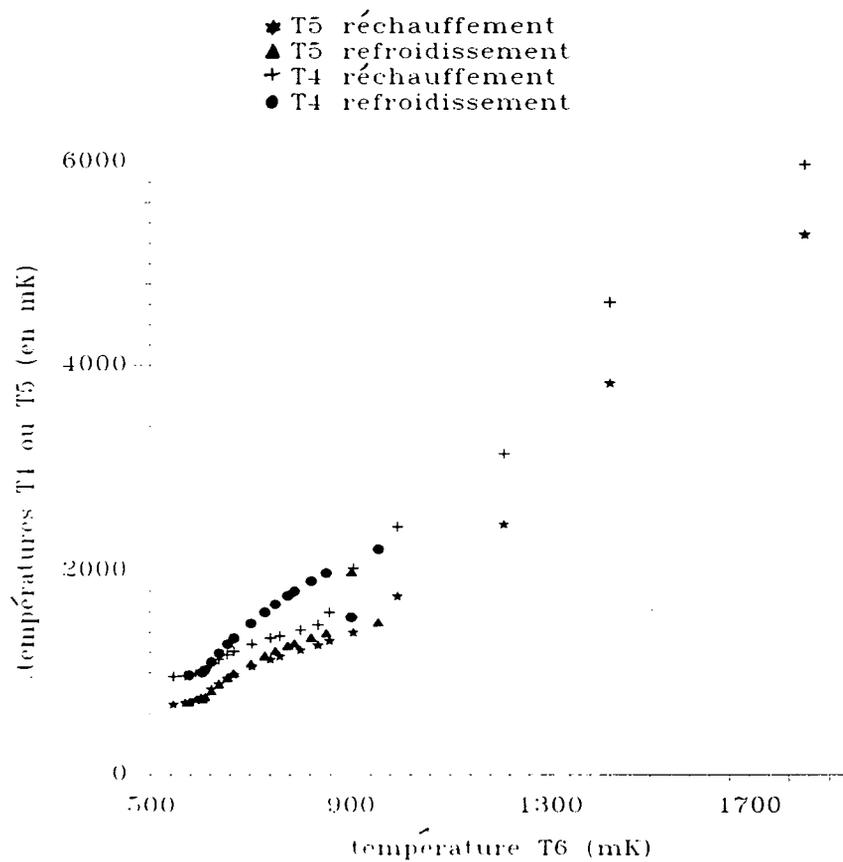


Figure 3.5: Températures le long du tube situé au dessus de la cellule expérimentale

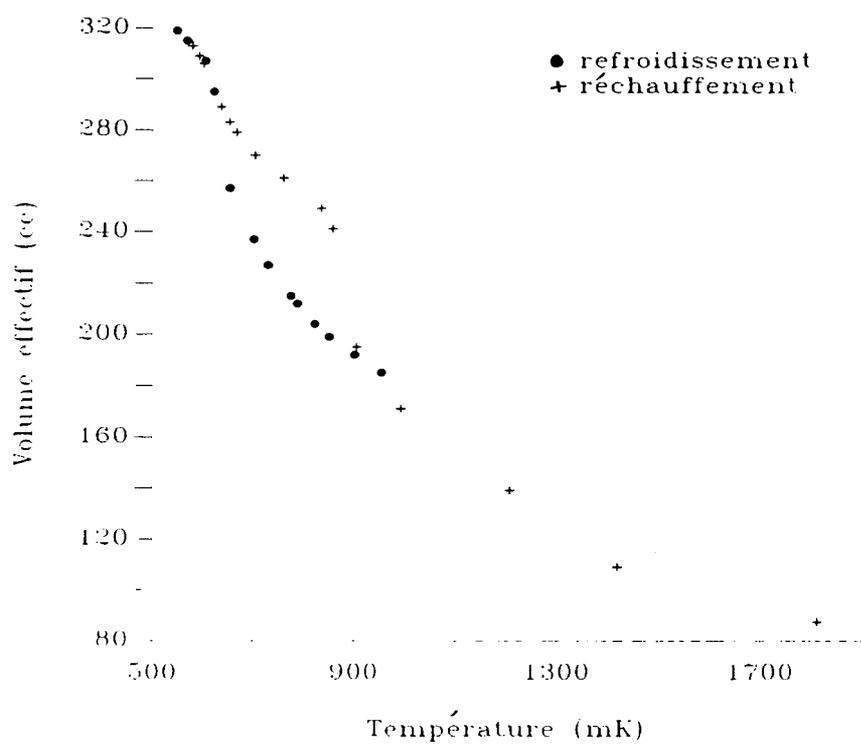


Figure 3.6: Volume effectif de la partie basse du tube reliant les volumes B et C, en fonction de la température mesurée sur la cellule expérimentale

effectif situé au-dessus du tube de diamètre intérieur 4 mm, et qu'on peut considérer comme fixe quand la température varie ; le volume froid sera constitué alors de la boule et du tube, où l'on a calculé les volumes effectifs en fonction de la température (voir figure 3.7).

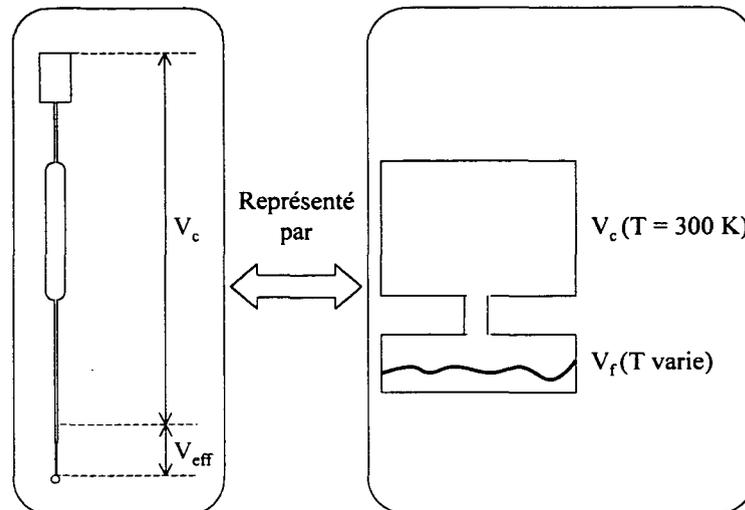


Figure 3.7: Répartition des volumes effectifs entre parties chaude et froide du modèle numérique.

Dans ces conditions, on obtient les courbes $P_{tot}(T)$, $x_{vap}(T)$ et $x_{liq}(T)$ suivantes (cf figures 3.8, 3.9, 3.10). On remarquera en particulier que l'hystérésis expérimentale sur la carte de températures a des conséquences à peine visibles sur la pression et les concentrations représentées sur ces courbes. Nous avons alors cherché à tester expérimentalement ce modèle en mesurant par des méthodes optiques au niveau de la tête de la cellule (donc hors du cryostat) deux quantités : la pression totale et la proportion d'hélium-3 dans la vapeur.

3.5 Caractérisation de la vapeur. Mesures optiques à température ambiante

Comme nous disposons d'une cellule scellée, il n'est pas question de mesurer ces grandeurs par les méthodes traditionnelles : nous n'avons pas, en particulier, de capteur de pression relié à la cellule. C'est pourquoi nous avons utilisé des méthodes optiques, plus adaptées à notre configuration.

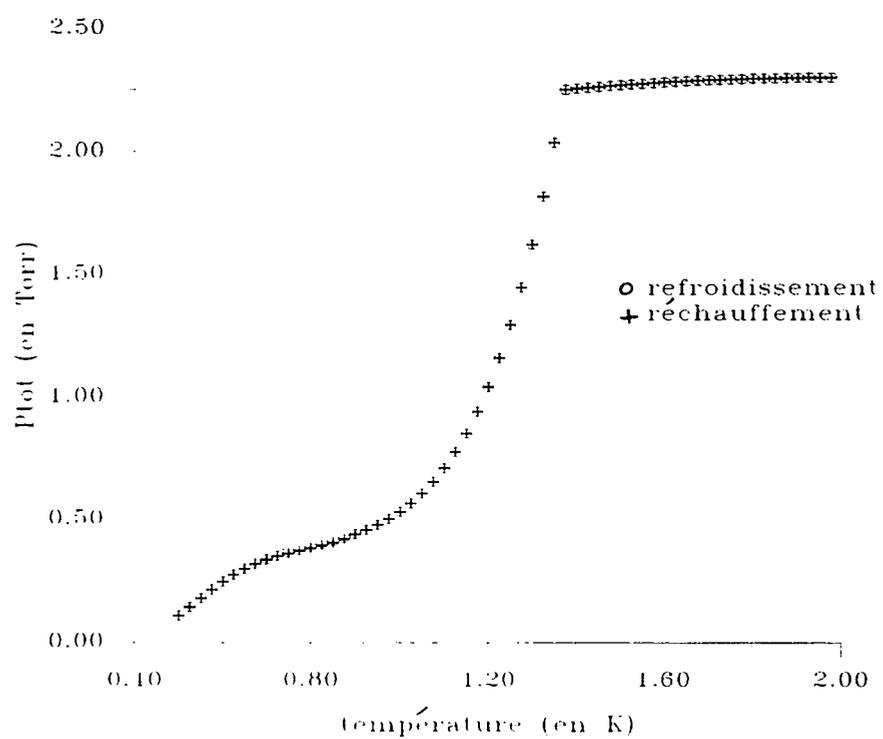


Figure 3.8: Pression calculée dans la cellule en fonction de la température de la cellule expérimentale.

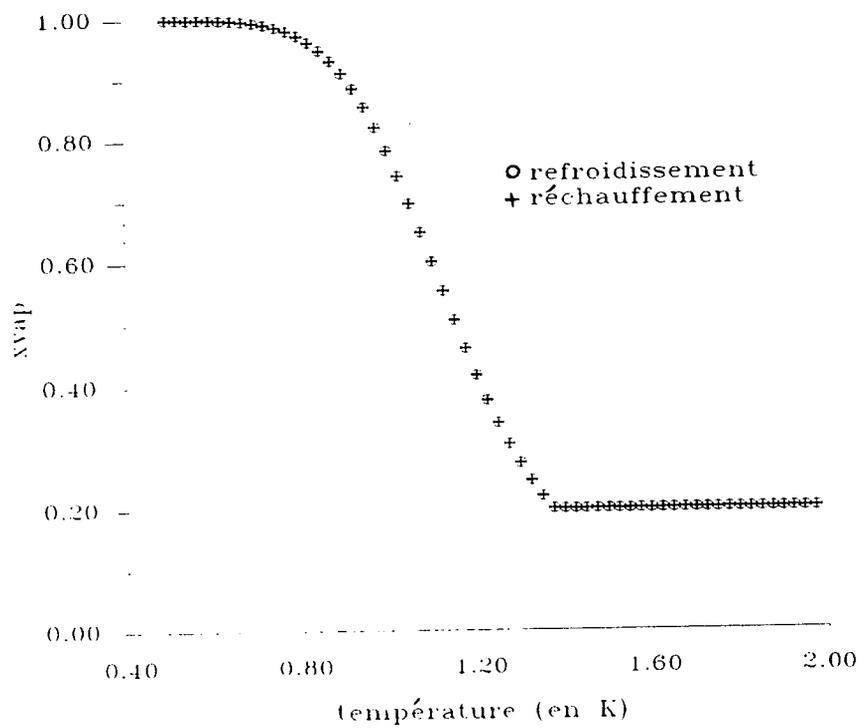


Figure 3.9: Proportion en hélium-3 dans le gaz calculée en fonction de la température de la cellule expérimentale.

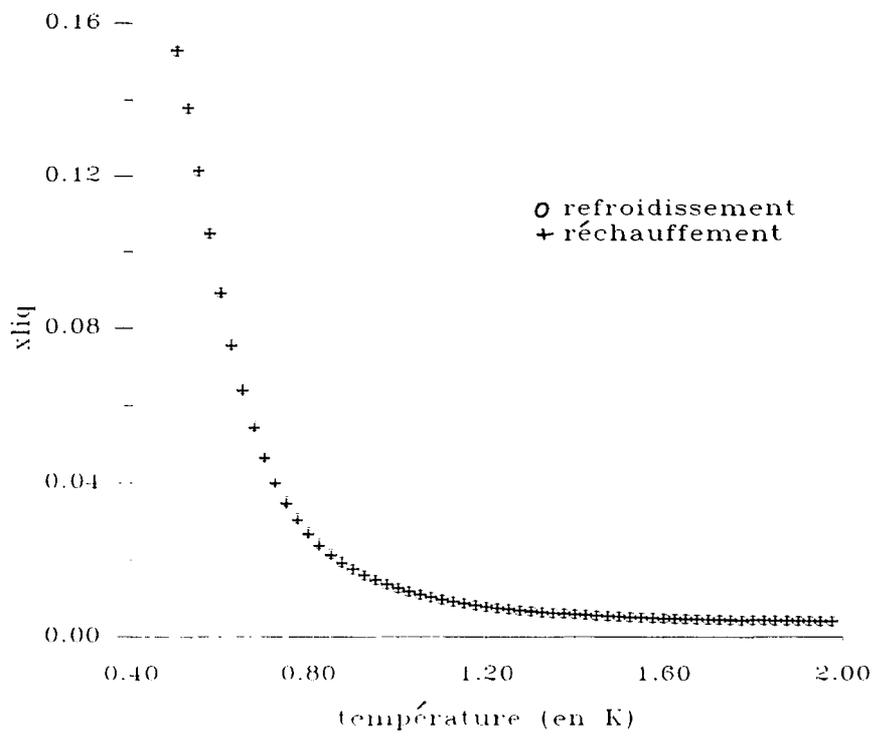


Figure 3.10: Proportion en hélium-3 dans le liquide calculée en fonction de la température de la cellule expérimentale.

3.5.1 Mesure de la pression

Principe Pour mesurer la pression dans la “tête” de la cellule, nous déterminons le temps de vie des métastables dans un plasma tel que celui entretenu par le pompage optique. Celui-ci est directement relié à la pression du gaz. En effet, si l’on considère les modes de diffusion, solutions de l’équation de diffusion usuelle, et qui satisfont à la condition aux limites de densité nulle de métastables sur les bords de la cellule (ce qui correspond simplement à une désexcitation des atomes au contact de la paroi), pour une cellule cylindrique de rayon R et de longueur $2L$, le temps de diffusion le plus long τ_D est donné par :

$$\frac{1}{\tau_D} = D \left(\frac{\alpha_0}{R} \right)^2 \left[1 + \left(\frac{\pi R}{2L\alpha_0} \right)^2 \right] \quad (3.4)$$

où α_0 désigne le premier zéro de la fonction de Bessel cylindrique d’ordre zéro ($\alpha_0 = 2.405$), et D le coefficient de diffusion de l’atome métastable [Tastevin 87]. Ce coefficient dépend directement de la pression : à température constante, D est inversement proportionnel à la pression. On en déduit que τ_D est directement proportionnel à la pression avec un facteur multiplicatif qui dépend à la fois de la température et des conditions géométriques.

Expérience En pratique, on mesure l’absorption d’un faisceau laser par les atomes d’hélium-3 métastables contenus dans la “tête” de la cellule. Cette mesure est effectuée au moyen d’une photodiode. On utilise une diode laser à la longueur d’onde de $1.08 \mu\text{m}$ (sur la raie C_9 de l’hélium-3), dont l’intensité est atténuée pour ne pas saturer la transition et modifier ainsi la population par pompage optique. Le signal est lu directement à l’oscilloscope à mémoire, qui permet en particulier l’analyse directe des données.

La décharge radio-fréquence qui sert à peupler le niveau métastable 2^3S est modulée par un signal carré de fréquence proche de quelques centaines de Hertz. Lorsque la décharge s’éteint, la population de l’état métastable décroît : la durée de vie de ces atomes métastables est déterminée par le phénomène de diffusion vers la paroi, où il se produit une désexcitation immédiate de l’atome. Dans ces conditions, le comportement aux temps longs du signal transmis et détecté correspond à une croissance exponentielle “pure”, dont la constante de temps est celle du mode de diffusion le plus lent, c’est-à-dire τ_D .

Quand la décharge radio-fréquence se rallume, la population d’atomes métastables croît à nouveau et le faisceau laser est absorbé dans la cellule, d’où une diminution du signal transmis et mesuré par la photodiode.

La figure 3.11 indique l’allure des signaux observés.

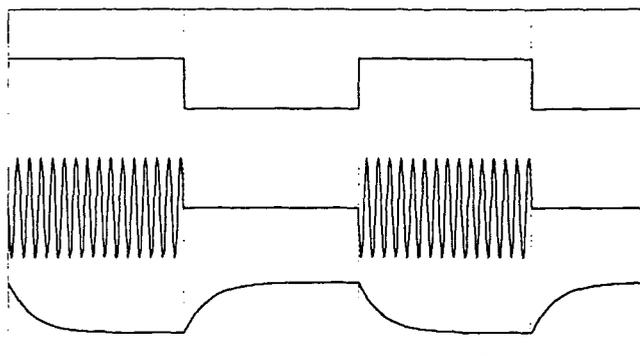


Figure 3.11: Allure des signaux observés à l'oscilloscope : signal carré modulant la décharge, décharge radio-fréquence et signal laser transmis sur la photodiode

Limites de cette méthode Cette méthode de mesure optique a l'avantage d'être simple à mettre en oeuvre. Cependant, la précision atteinte souffre de quelques limites : détermination des dimensions géométriques internes de la cellule d'une part, connaissance du coefficient de diffusion de l'hélium-3 métastable dans un gaz d'hélium-3/hélium-4 d'autre part.

En effet, à notre connaissance, seul le coefficient de diffusion de l'hélium-3 métastable dans l'hélium-3 pur a été mesuré [Fitzsimmons 68] : nous savons que $D = 550 \text{ cm}^2/\text{s}$ pour une densité correspondant à une pression de 1 Torr à 300 K. A défaut de connaître le coefficient de diffusion de l'hélium-3 métastable dans un gaz d'hélium-3/hélium-4, nous l'avons multiplié par la racine du rapport des masses réduites, ce qui tient compte des effets de vitesse thermique, mais suppose l'égalité des sections efficaces (hypothèse raisonnable). On trouve ainsi $D=476 \text{ cm}^2/\text{s}$ pour un mélange de concentration faible (ce qui correspond en fait au coefficient de diffusion de l'hélium-3 métastable dans l'hélium-4). C'est cette valeur que nous avons retenue ici.

La formule analytique donnant la pression P en fonction du temps de diffusion s'écrit alors dans nos conditions expérimentales :

$$P = 550 \times \tau_D \quad (3.5)$$

où P est en Torr et τ_D en secondes.

Remarquons tout de même que cette méthode optique n'est valable que pour des pressions relativement faibles (de l'ordre du Torr), où on peut négliger en particulier les collisions sur des

impuretés. En effet, la proportion d'impuretés contenues dans le gaz, même faible, contribue à la disparition des métastables. Lorsque la pression est plus élevée, le temps de diffusion est plus important, et la quantité d'impuretés aussi, ce qui augmente d'autant plus la probabilité pour un atome métastable d'être perdu par collisions sur des impuretés.

Une dernière imprécision vient de ce que l'on n'a pas tenu compte ici de l'existence des autres modes de diffusion : leur amortissement est certes plus rapide, mais le rapport des constantes de temps n'est pas vraiment négligeable pour les 2 modes suivants (il s'agit d'un rapport égal à 0.6 et 0.1 respectivement [Tastevin 87]).

Avant d'appliquer cette méthode optique à notre expérience, nous avons quantifié l'erreur commise, en considérant des cellules scellées où les conditions sont parfaitement contrôlées. Comme il s'agit de petites cellules, les caractéristiques géométriques ne sont pas tout à fait les mêmes (typiquement, la hauteur du cylindre est deux fois plus faible que pour notre cellule à mélange), et la loi de variation de la pression en fonction de τ_D n'est pas la même : on attend plutôt

$$P = 731 \times \tau_D \text{ pour un mélange} \quad (3.6)$$

$$= 844 \times \tau_D \text{ pour l'hélium-3 pur} \quad (3.7)$$

Dans la gamme de pressions allant jusqu'à 1 Torr, cette relation est correctement vérifiée (avec une erreur de 20% tout de même), puis l'erreur augmente pour atteindre environ 30 % avant 2 Torr. Au delà, c'est nettement pire, et la méthode optique semble totalement inadaptée.

Heureusement, la gamme de pressions qui nous intéresse se situe entre 0 et 2 Torr. Néanmoins, on voit qu'on ne peut atteindre une bonne précision avec cette méthode optique, surtout pour des températures supérieures à 1 K (c'est à dire en absence de liquéfaction). Elle doit cependant nous donner une bonne idée du comportement de la pression dans la cellule lors de la liquéfaction de notre échantillon (c'est-à-dire lorsque la pression diminue).

Résultats expérimentaux On peut voir sur la figure 3.12 les valeurs de τ_D mesurées lors d'une descente en température (●) d'une part, et lors de la remontée en température (+) qui a suivi d'autre part. On voit apparaître une hystérésis lors de ce cycle de liquéfaction. Ce comportement hystérétique est parfaitement reproductible : nous l'avons observé lors de toutes nos mesures.

Afin de laisser au système le temps de s'équilibrer thermiquement, il s'écoule environ 10 minutes entre deux points de mesure. Par ailleurs, si on part de la situation où T est supérieure à 1 K (absence de liquide), et qu'on diminue brusquement la température vers 0.6 K, on retrouve la même valeur du temps de diffusion qu'en avançant "pas à pas".

Cette hystérésis a les mêmes températures limites que celle de la carte de température de la cellule lors d'un cycle liquéfaction/évaporation.

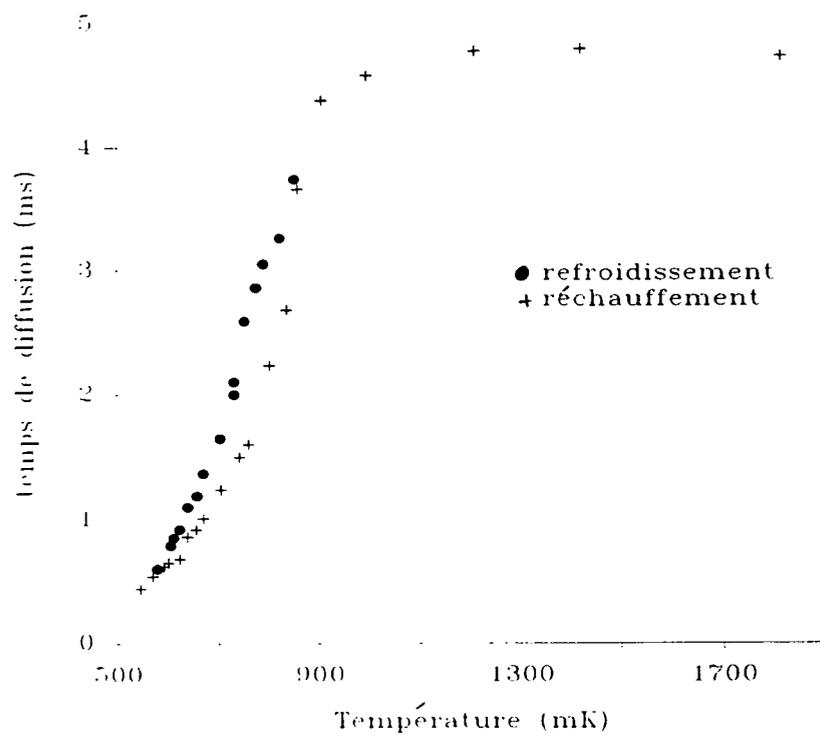


Figure 3.12: mesure du temps de diffusion à 300 K en fonction de la température de la cellule expérimentale.

3.5.2 Mesure de la proportion x d'hélium-3 dans la vapeur

Principe La pression partielle d'hélium-3 (respectivement d'hélium-4) est proportionnelle à la densité d'atomes d'hélium-3 (respectivement d'hélium-4). Or on sait déterminer expérimentalement, par mesure de l'absorption d'un faisceau laser sonde monomode accordé sur la transition C_8 de l'hélium-3 (respectivement D_0 dans le cas de l'hélium-4), la densité de métastables. Il suffira donc de relier densité de métastables à densité d'atomes pour en déduire la pression partielle.

Calcul de la relation entre densité de métastables et absorption du faisceau sonde

Nous rappelons ici brièvement le calcul du taux d'absorption d'un faisceau laser monomode résonnant avec un gaz d'atomes de densité n et appliquons le résultat au cas des atomes métastables d'hélium-3 (transition C_8 ou C_9) et d'hélium-4 (transition D_0) [Larat 91].

L'intensité d'un faisceau lumineux se propageant suivant l'axe Oz dans un milieu absorbant décroît exponentiellement suivant la relation [Cagnac]:

$$I(z) = I(z=0)e^{-Kz} \quad (3.8)$$

$$\text{où } K = n\sqrt{\pi} \frac{\alpha\hbar}{mD} f_t \quad (3.9)$$

où α est la constante de structure fine, \hbar la constante de Planck, m la masse de l'électron, D la largeur Doppler et f_t la force d'oscillateur de la transition.

D'où l'expression de la densité d'atomes n en fonction de l'intensité laser transmise :

$$n = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{mD}{\alpha\hbar L} \frac{1}{f_t} \ell n \left[\frac{I(z=0)}{I(z=L)} \right] \quad (3.10)$$

où L est la distance de propagation du faisceau dans le milieu absorbant.

Pour un gaz d'atomes métastables d'hélium-3 (respectivement d'hélium-4), il faut également tenir compte de la structure du niveau métastable de l'hélium qui est composé de $Z_4=3$ sous-niveaux pour l'hélium-4 ($m_J = 0, \pm 1$) et de $Z_3=6$ sous-niveaux pour l'hélium-3 ($F = 1/2 ; m = \pm 1/2$ et $F = 3/2 ; m = \pm 1/2, \pm 3/2$) ; pour un gaz d'hélium non polarisé, les populations de ces sous-niveaux sont égales.

On obtient ainsi pour la densité de métastables :

$$n_i^* = \frac{1}{\beta_i} \ell n \frac{I(0)}{I_t} \quad (3.11)$$

où :

$$\beta_i = \frac{\sqrt{\pi} \alpha \hbar L f_{ti}}{Z_i m D_i} \quad (3.12)$$

et I_i désigne l'intensité du faisceau laser transmise.

Dans le cas des transitions C_8 de l'hélium-3 et D_0 de l'hélium-4, les rapports $\frac{D_3}{D_4}$, $\frac{f_{t3}}{f_{t4}}$ et $\frac{Z_3}{Z_4}$ valent ([Nacher 85],[Larat 91]):

$$\begin{aligned} \frac{D_3}{D_4} &= \sqrt{\frac{m_4}{m_3}} = \sqrt{\frac{4}{3}} = 1.15 \\ \frac{f_{t3}}{f_{t4}} &= \frac{0.2931}{0.3333} = 0.88 \\ \frac{Z_3}{Z_4} &= \frac{6}{3} = 2 \end{aligned}$$

On en déduit que :

$$\frac{n_3^*}{n_4^*} = 2.629 \frac{\ell n \frac{I_{t3}}{I_0}}{\ell n \frac{I_{t4}}{I_0}}. \quad (3.13)$$

Pour réduire le bruit de la mesure, on module la densité de métastables à la fréquence Ω autour d'une valeur moyenne, ce qui revient, en pratique, à moduler partiellement la décharge RF à la fréquence Ω ($\Omega \approx 1$ KHz). On peut alors analyser l'intensité transmise à cette fréquence.

Le nombre d'atomes métastables est alors modulé :

$$n_i^* = \bar{n}_i^* + \Delta n_i^* \sin \Omega t \quad (3.14)$$

Dans ces conditions, l'intensité du faisceau laser transmise vaut :

$$I_{t_i} = I_0 \exp(-\beta_i n_i^*) \quad (3.15)$$

$$= I_0 \exp(-\beta_i \bar{n}_i^*) \exp(-\beta_i \Delta n_i^* \sin \Omega t) \quad (3.16)$$

$$= I_0 \exp(-\beta_i \bar{n}_i^*) (1 - \beta_i \Delta n_i^* \sin \Omega t \dots) \quad (3.17)$$

Si l'on regarde la composante à la fréquence Ω de l'intensité transmise,

$$I_{t_i}(\Omega) = I_0 \exp(-\beta_i \bar{n}_i^*) \times (-\beta_i \Delta n_i^*) \quad (3.18)$$

$$= \langle I_{t_i} \rangle \times (-\beta_i \Delta n_i^*) \quad (3.19)$$

où $\langle I_{t_i} \rangle = I_0 \exp(-\beta_i \bar{n}_i^*)$ est la valeur moyenne de l'intensité transmise, ou encore l'intensité transmise en absence de modulation. Notons qu'il ne suffit pas de diviser l'intensité modulée

transmise par l'intensité incidente si l'on veut tenir compte de l'effet d'absorption finie sur les différentes raies ; il faudra considérer en fait le rapport de la partie modulée de la lumière transmise par sa valeur moyenne, noté S_i .

Comme le rapport des populations et de leurs variations relatives sont égales ($\frac{\Delta n_3^*}{\Delta n_4^*} = \frac{n_3^*}{n_4^*}$) d'une part, et que le rapport entre nombre d'atomes et nombre de métastables est sensiblement le même d'autre part ($\frac{n_3^*}{n_4^*} = 1.034 \times \frac{n_3}{n_4}$, voir [Nacher 87]) :

$$\frac{P_3}{P_4} = \frac{1}{1.034} \frac{\Delta n_3^*}{\Delta n_4^*} \quad (3.20)$$

$$= \frac{1}{1.034} \frac{I_{t3}(\Omega)}{\beta_3 \langle I_{t3} \rangle} \times \frac{\beta_4 \langle I_{t4} \rangle}{I_{t4}(\Omega)} \quad (3.21)$$

$$= 2.54 \times \frac{I_{t3}(\Omega)}{\langle I_{t3} \rangle} \times \frac{\langle I_{t4} \rangle}{I_{t4}(\Omega)} \quad (3.22)$$

La proportion d'hélium-3 dans l'hélium-4 en phase gazeuse vaut alors :

$$x = \frac{P_3}{P_3 + P_4} = \frac{r_v}{r_v + 0.39} \quad (3.23)$$

où $r_v = \frac{S_3}{S_4}$ est le rapport des signaux mesurés optiquement pour chaque isotope.

Expérience Le principe de la détermination de la densité de métastables est de mesurer la puissance du laser sonde transmise à la fréquence de modulation de la décharge, ainsi que celle transmise en absence de modulation.

Les mesures doivent utiliser un faisceau laser peu puissant pour éviter de perturber l'équilibre des populations de métastables. Nous avons donc utilisé le même montage que pour les mesures de pression décrites au paragraphe précédent : photodiode, diode laser dont le faisceau est atténué..., mais cette fois la décharge RF est modulée de 30 % à une fréquence Ω de l'ordre du kHz par un signal sinusoïdal. Le signal de la photodiode est analysé grâce à une détection synchrone dont la référence est la commande de modulation de la décharge ; la valeur moyenne de ce signal est simplement mesurée au voltmètre.

On mesure alternativement le signal transmis sur la raie D_0 de l'hélium-4 et le signal transmis sur la raie C_8 de l'hélium-3.

Limites de cette méthode De même que nous avons cherché à voir les limites de la méthode optique de mesure de pression sur des cellules scellées, nous avons étudié cette méthode de mesure des proportions d'hélium-3 dans l'hélium-4 en phase vapeur, dans une configuration connue. Des erreurs d'environ 10% pour des pressions totales de moins de 2 Torr ont été obtenues ; pour les cellules à plus forte pression, le taux d'erreur atteignait plutôt 15%.

Comme on le voit, cette méthode optique est moins entâchée d'erreurs que celle de mesure de pression. Elle n'est cependant pas d'une extrême précision.

Résultats expérimentaux La figure 3.13 montre l'évolution du rapport des absorptions relatives aux raies C_8 et D_0 lors d'une descente en température, puis d'une remontée consécutive.

On observe à nouveau une hystérésis lors de ce cycle de liquéfaction. Les températures limites (0.6 K et 0.9 K) sont les mêmes que lors de la mesure de τ_D ou des mesures de températures le long du tube situé au-dessus de la cellule expérimentale.

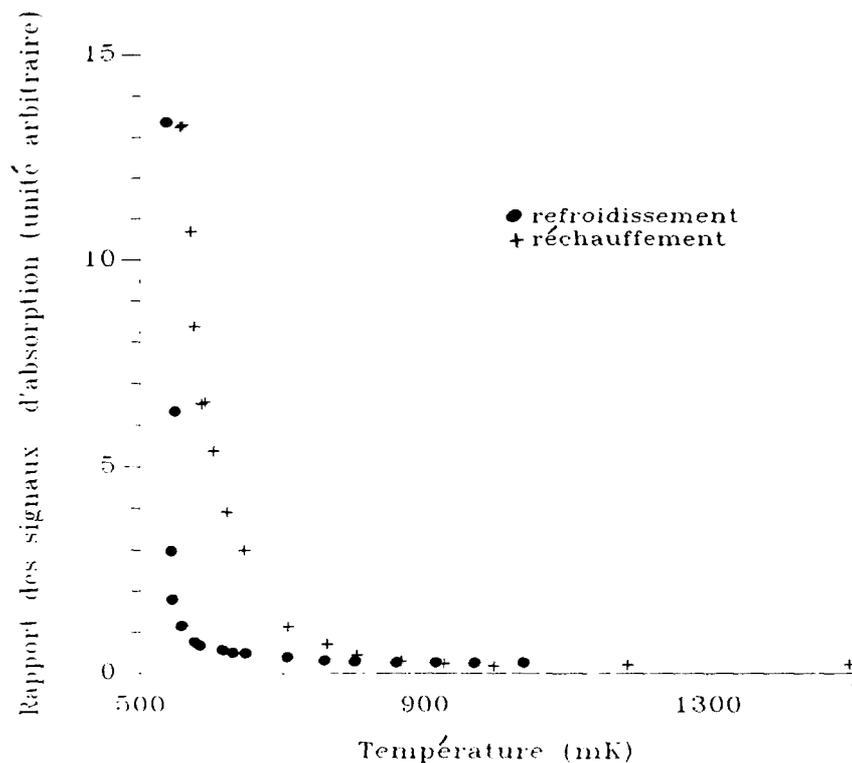


Figure 3.13: Mesure du rapport des absorptions sur les raies C_8 de l'hélium-3 et D_0 de l'hélium-4, en fonction de la température de la cellule expérimentale.

Interprétation : retard à la diffusion On peut vouloir lier cette hystérésis à la carte de température. Mais, nous avons vu qu'un modèle numérique simple, qui prend en compte l'hystérésis sur la carte de température, ne prédit qu'une très faible hystérésis sur la proportion d'hélium-3 dans la vapeur. Pour interpréter cette hystérésis, nous avons pensé à la lenteur de la diffusion entre haut et bas de la cellule expérimentale, et ce à cause de l'étroitesse des tubes situés à basse température.

C'est pourquoi nous avons mis au point une modélisation assez grossière du système pour essayer

d'y voir plus clair : on modélise la cellule par un volume froid et un volume chaud, connectés entre eux par un tube et on suppose qu'il n'y a pas diffusion entre ces 2 volumes à l'échelle de temps qui nous intéresse (c'est-à-dire moins de 10 minutes).

Le volume froid représente expérimentalement le volume de gaz situé directement au-dessus du liquide et en équilibre rapide avec ce liquide. En pratique, il s'agit grossièrement de la boule, connectée au point froid du cryostat, et du tube de diamètre intérieur 4 mm situé au dessus. Le volume chaud sert quant à lui à modéliser tout le gaz contenu dans la cellule (en particulier dans les volumes A et B), loin de la boule et pas forcément en équilibre de concentration avec le liquide. C'est en effet le tube reliant la boule au gros réservoir qui présente le temps de diffusion le plus long (~ 50 minutes) car il est situé à basse température ($T \sim 4.2$ K) et contient un gaz de forte densité. Nous avons artificiellement placé la frontière au-dessus du tube de diamètre 4 mm, ce qui revient à supposer la concentration uniforme en dessous (cf figure 3.14). Lorsque la température de la partie basse de la cellule (volume froid) varie, il y a transfert d'atomes à la concentration du compartiment d'origine vers le compartiment destinataire pour maintenir la pression uniforme dans toute la cellule.

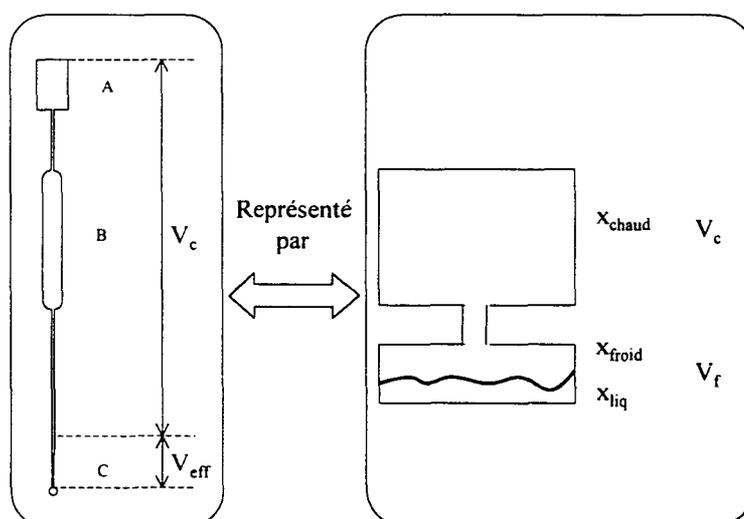


Figure 3.14: Répartition des volumes effectifs entre parties chaude et froide du modèle numérique. On ne suppose plus l'uniformité des concentrations entre les deux parties.

Le calcul numérique utilisant ces "ingrédients" fait bien apparaître des comportements hystérétiques, aussi bien sur la pression totale P_{tot} que sur la proportion d'hélium-3 dans la vapeur à 300 K. Nous avons représenté sur les figures 3.15, 3.16 et 3.17 les résultats de ce calcul numérique

concernant la pression et la concentration dans la vapeur à 300 K (x_{chaud}), mais aussi la concentration dans la vapeur à basse température (x_{froid}) et celle dans le liquide (x_{liq}).

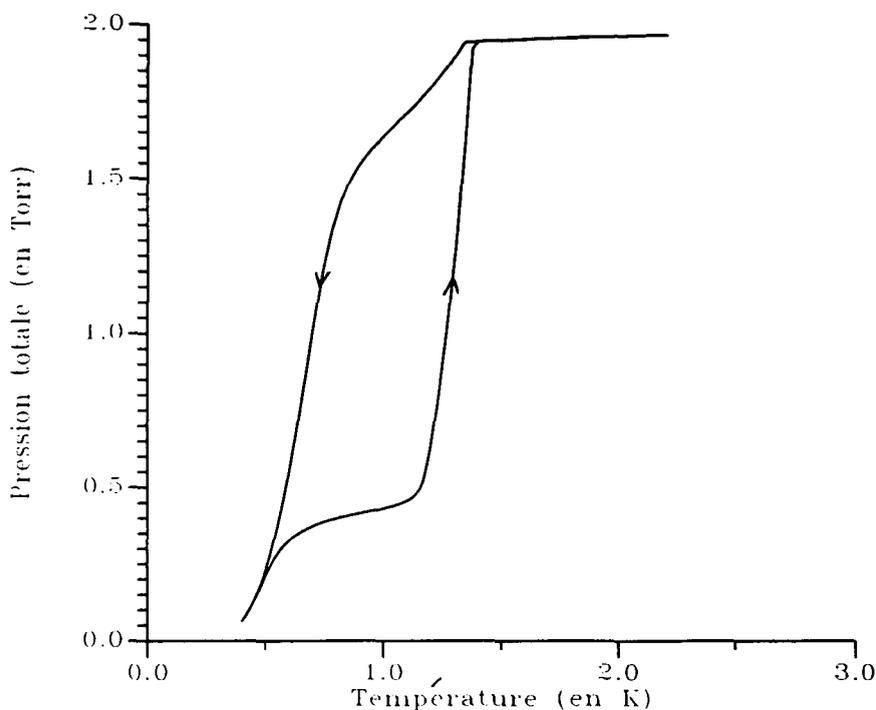


Figure 3.15: Evolution de la pression, calculée en l'absence de diffusion entre haut et bas de la cellule.

Essayons maintenant d'expliquer qualitativement les résultats de ce calcul numérique.

On part d'une situation où tout le mélange d'hélium-3/hélium-4 est sous forme gazeuse. La proportion d'atomes d'hélium-3 dans la vapeur, x , est alors égale à la valeur nominale, c'est-à-dire 0.2. Ceci est le cas à la fois dans le volume chaud et dans le volume froid.

Puis la température diminue, jusqu'à la température de liquéfaction de l'hélium-4. Il y a alors une brusque diminution de pression dans le volume froid, qui provoque un écoulement d'atomes venant du volume chaud. La proportion d'hélium-3 gazeux dans le volume chaud, x_{chaud} , est évidemment inchangée, mais elle augmente dans le volume froid où l'hélium-4 liquéfié est remplacé par un mélange nominal d'hélium-3 dans l'hélium-4.

Au fur et à mesure que la température diminue, on observe donc (et c'est ce que le calcul numérique nous montre) une proportion d'hélium-3 dans l'hélium-4 constante et égale à 0.2 dans le volume chaud, alors que x augmente dans le volume froid.

Si la température finale est suffisamment faible, on peut estimer que quasiment tous les atomes sont dans la phase condensée, donc que la concentration en hélium-3 du liquide x_{liq} vaut environ

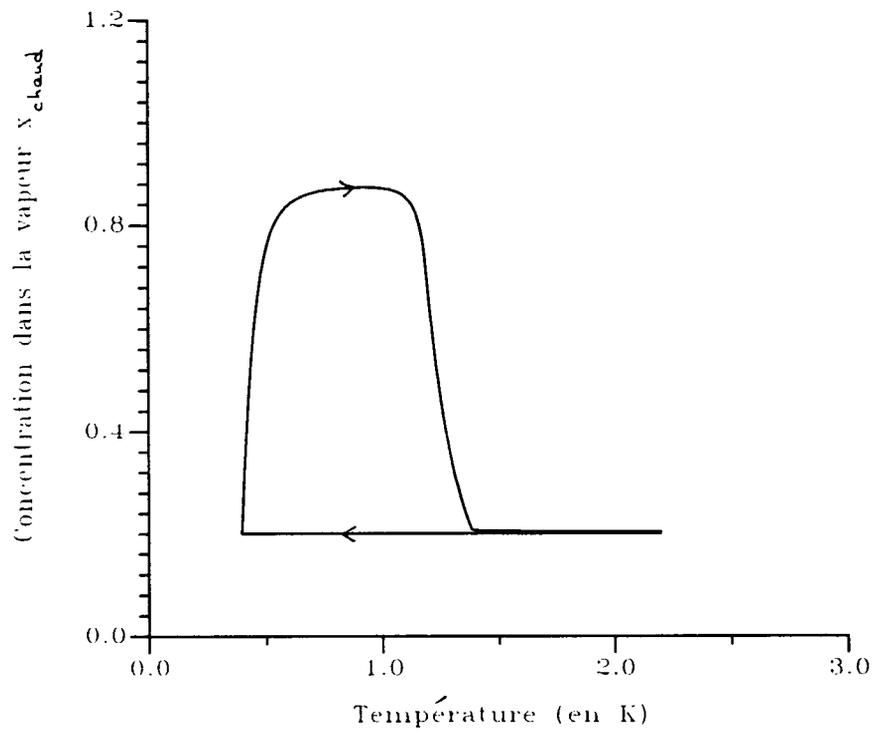


Figure 3.16: Evolution de la concentration dans le gaz situé à température ambiante, x_{chaud} , calculée en l'absence de diffusion entre haut et bas de la cellule.

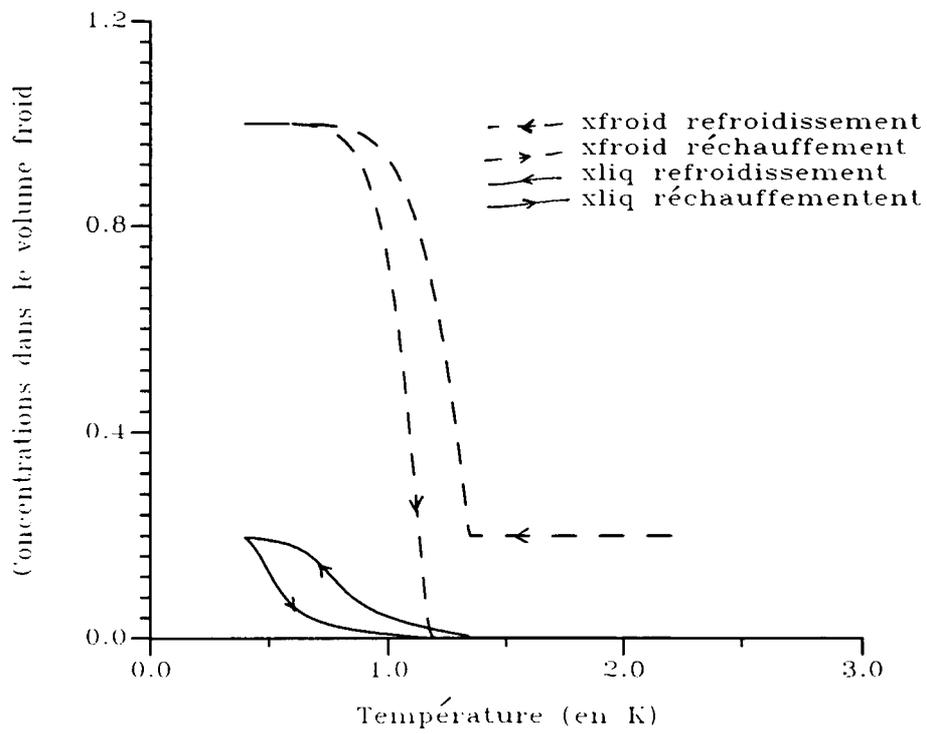


Figure 3.17: Evolution des concentrations dans la vapeur située à basse température et dans le liquide, calculée en l'absence de diffusion entre haut et bas de la cellule.

0.2. Dans ces conditions, $x_{froid} \simeq 1$ car la vapeur est toujours nettement plus riche en hélium-3 que le liquide.

Une descente en température correspond donc à une évolution des proportions de gaz telle que présentée ci-dessous :

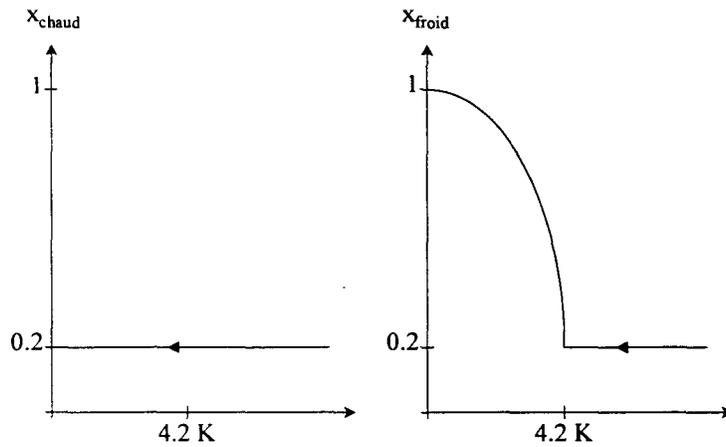


Figure 3.18: Evolution des proportions de gaz dans les volumes chaud et froid lors d'une descente en température.

Considérons maintenant une remontée en température, en partant du système précédemment obtenu (on tient compte dans ce modèle de l'histoire du système), c'est-à-dire $x_{chaud} = 0.2$ et $x_{froid} \simeq 1$.

Quand la température augmente, la pression de vapeur saturante du liquide augmente, et la vapeur en équilibre est toujours riche en hélium-3. Cette augmentation de pression dans le volume froid provoque le transfert d'atomes (essentiellement de l'hélium-3, car c'est le composant principal du gaz froid) vers le volume chaud. La proportion d'atomes d'hélium-3 dans le volume chaud augmente alors.

L'hélium-4 aussi est évaporé, d'où une diminution de x_{froid} . Mais l'hélium-3 reste dans un premier temps prépondérant dans le volume froid, et ce sont donc essentiellement des atomes d'hélium-3 qui arrivent dans le volume chaud pour équilibrer les pressions : x_{chaud} reste donc élevé.

C'est seulement quand x_{froid} diminue vraiment que l'effet s'en ressent sur x_{chaud} .

On retrouve évidemment la situation de départ pour une température assez élevée.

On voit sur les figures 3.15 et 3.16 qu'on retrouve qualitativement non seulement l'hystérésis

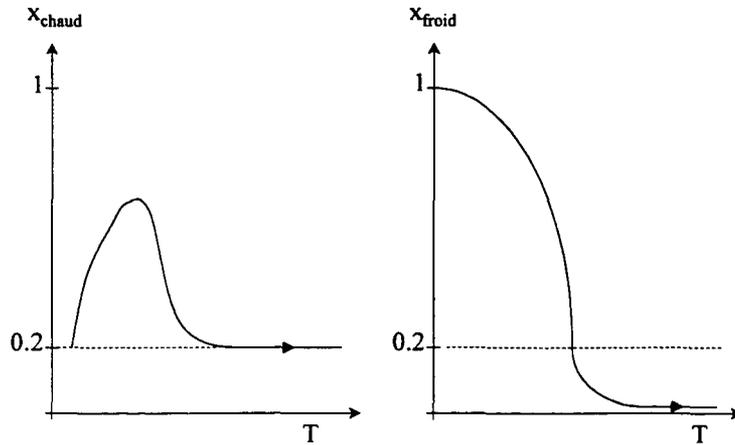


Figure 3.19: Evolution des proportions de gaz dans les volumes chaud et froid lors d'une remontée consécutive en température.

mesurée sur x_{vap} , mais aussi sur P_{tot} , ce qui confirme la validité de l'hypothèse faite selon laquelle le comportement hystérétique de notre système provient d'un retard à la diffusion entre le haut et le bas de la cellule. En revanche, quantitativement, l'allure de x_{vap} telle que mesurée par la méthode optique n'est pas bien rendue par ce calcul numérique ; sans doute le modèle qui interdit toute diffusion entre deux compartiments étanches est-il trop caricatural. La seule façon de prendre en compte réellement, lors du calcul de x_{liq} , l'état du système à une température donnée, avec son histoire (c'est à dire s'il s'agit d'un refroidissement ou d'un réchauffement), sera donc de prendre en compte une donnée expérimentale. En l'occurrence, la donnée de x_{vap} dans le volume chaud et l'équilibre liquide-vapeur doivent suffire à modéliser complètement le système.

De plus, il manque à ce calcul numérique une souplesse sur la carte de température : ici, les volumes V_{chaud} et V_{froid} sont fixes. On va voir plus loin qu'on peut aussi tenir compte de ce résultat expérimental dans notre modèle numérique.

Mais avant de revenir à la mesure de la proportion d'hélium-3 dans le liquide, il nous reste encore à expliquer l'hystérésis observée sur la carte de température (voir figure 3.5) : celle-ci peut-elle s'expliquer par l'hystérésis sur la concentration obtenue avec notre modèle ? Nous allons voir que c'est bien le cas, mais il nous faut commencer par examiner plus en détails l'effet HEVAC.

3.6 Effet HEVAC

3.6.1 L'effet HEVAC dans les mélanges hélium-3/hélium-4

Cet effet a la propriété de confiner l'hélium-3 dans la partie froide de la cellule [Cornut 93], [Nacher 94]. Il repose sur le principe suivant : un film d'hélium-4 superfluide, à condition qu'il mouille le substrat, s'écoule sans viscosité vers les parties les plus chaudes du récipient (c'est-à-dire remonte le long du tube dans notre configuration) qui le contient. L'évaporation de ce film dans les régions de plus haute température crée une différence de pressions entre celles-ci et les zones les plus froides. Il s'instaure alors un contre-flux d'hélium-4 gazeux. Ce processus de convection peut agir comme une pompe à diffusion en entraînant avec lui les atomes d'hélium-3. Ce qui aurait pour effet d'augmenter la densité en hélium-3 au cours du temps dans la zone la plus froide, et par là-même de la diminuer dans les parties chaudes.

Or, pour polariser l'hélium-3, il est impératif que ce phénomène de "pompe à diffusion" ne retienne pas les atomes d'hélium-3 dans la partie basse de la cellule. Les mesures optiques effectuées dans la tête de la cellule montrent une proportion importante d'hélium-3 à l'intérieur : nous ne sommes donc pas gênés par l'effet HEVAC. Nous allons voir qu'il peut en revanche expliquer l'hystérésis observée sur la carte de température.

3.6.2 L'effet HEVAC et la carte de température

Nous avons vu que l'évaporation sur les parties chaudes du film d'hélium-4 superfluide résultait en une différence de pression en rapport des parties froides, créant ainsi un contre-flux de vapeur. Un tel processus convectif est un mécanisme efficace de transfert de chaleur, à cause de la relativement grande chaleur latente de condensation de l'hélium.

Dans le cas d'un mélange d'hélium-3/hélium-4, il a été prédit et observé que la pression devient quasiment uniforme dans tout le système ; en revanche, les gradients de température se couplent à des gradients de concentration, causés par le confinement de l'hélium-3 annoncé plus tôt.

Il est possible d'écrire les équations locales de transport d'un système modèle [Nacher 94]. En négligeant en particulier toute conduction thermique le long des parois du tube reliant parties froide et chaude, et toute évaporation ou condensation d'atomes le long du tube (hormis en bas et en haut), la vapeur et le film sont en équilibre local. On peut alors résoudre les équations de transport, ce qui mène en particulier au résultat concernant l'impédance thermique dans un tube contenant un mélange d'hélium-3/hélium-4 : celle-ci peut-être plusieurs ordres de grandeur plus grande que dans le cas de l'hélium-4 pur. En particulier, comme indiqué par la figure 3.20, l'impédance thermique est une fonction croissante de la concentration x d'hélium-3 dans la vapeur.

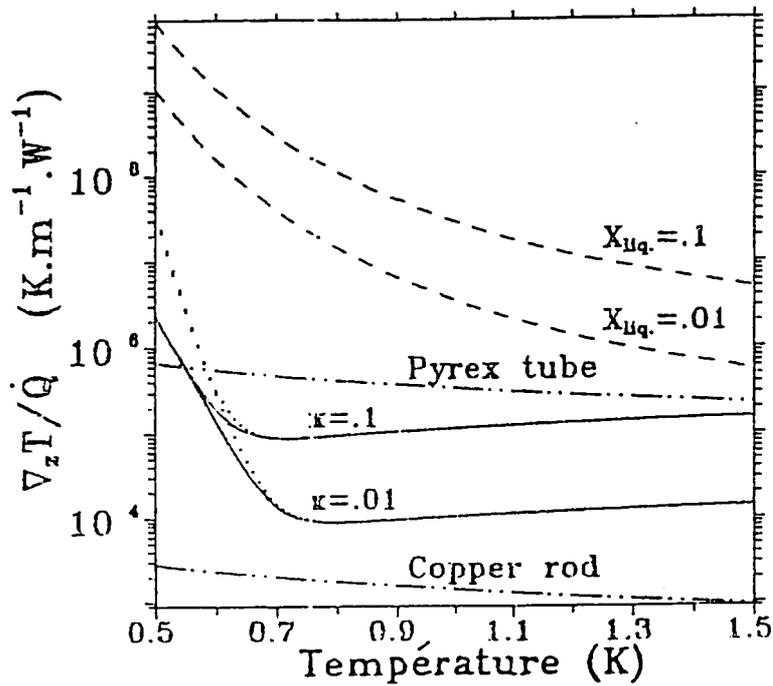


Figure 3.20: Impédance thermique $Z = \nabla_z T / Q$ dans un tube rempli d'un mélange hélium-3/hélium-4, en fonction de la température T et de la concentration x dans la vapeur. Ces données sont tirées de la référence [Cornut 93].

Or, nous avons vu que pour une même température de la partie froide de la cellule, la concentration d'équilibre dans la vapeur (dans les premiers cm du tube situé au-dessus de la boule) est plus élevée lors d'un refroidissement (car elle est plus faible dans la partie chaude, et le nombre total d'atomes d'hélium-3 est fixé) que lors du réchauffement consécutif. L'impédance thermique du tube sera donc plus importante, et les températures mesurées le long du tube plus élevées, pour une même température au point froid. On retrouve ainsi l'hystérésis observée sur la figure 3.5.

3.7 Détermination de x_{liq} . Modèle "amélioré"

Pour tenir compte du retard à la diffusion dans la cellule, nous avons choisi de considérer l'inhomogénéité en proportions isotopiques comme une donnée du problème. Nous avons donc utilisé, dans notre modèle numérique, les résultats expérimentaux concernant la proportion d'hélium-3 dans la vapeur à 300K.

Dans ce nouveau modèle, nous avons un volume froid et un volume chaud à la même pression, mais ne contenant pas les mêmes proportions x_{vap} d'hélium-3 dans l'hélium-4 (cf figure 3.14). Dans le volume chaud, x'_{vap} est donné par l'expérience ; dans le volume froid, en revanche, on ne préjuge en rien de sa valeur. C'est la principale modification apportée par rapport au premier modèle

numérique présenté au paragraphe 3.4.4.

Dans ces conditions, on obtient les courbes suivantes (figures 3.21 et 3.22) pour la pression totale P_{tot} et la proportion d'hélium-3 dans le liquide x_{liq} en fonction de la température :

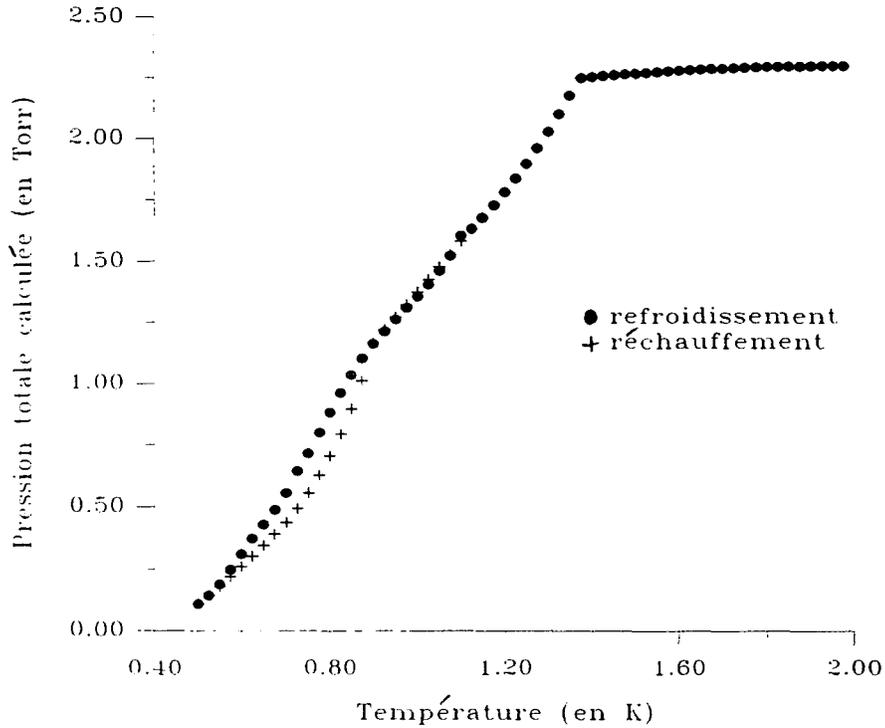


Figure 3.21: Evolution temporelle de la pression calculée en fonction de la température.

Le comportement hystérétique de τ_D et x'_{vap} , observé expérimentalement, est parfaitement reproduit dans les courbes représentant $P_{tot}(T)$, $x_{vap}(T)$ et $x_{liq}(T)$.

En revanche, P_{tot} atteint son palier à haute température, pour une valeur supérieure à celle déduite de la mesure de τ_D . En fait, la valeur du plateau obtenu numériquement (et donc sa température initiale) dépend fortement de la valeur de l'énergie de mélange $\frac{W}{R}$. Nous avons choisi de prendre dans notre modèle d'une part la valeur donnée par de Bruyn Ouboter (à savoir $\frac{W}{R} = 1.54$ K) lorsque la température est supérieure à 1 K [de Bruyn Ouboter 59], et, en deçà de 1K, une valeur de $\frac{W}{R}$ dépendant de la température ($\frac{W}{R} = -0.0609183 + 3.07885 \times T - 1.65909 \times T^2$: cette valeur a été obtenue à partir des résultats expérimentaux sur les mesures de potentiel chimique $\mu_4(T, x)$ effectuées au laboratoire par Eric Stoltz [Stoltz 96a]; il faut cependant être prudent lors de l'utilisation de ces données car les mesures ont été faites le long de la courbe de coexistence, et la dépendance en température de $\frac{W}{R}$ peut cacher une dépendance implicite en concentration ; ce sont néanmoins les données les plus fiables dont nous disposons à basse température).

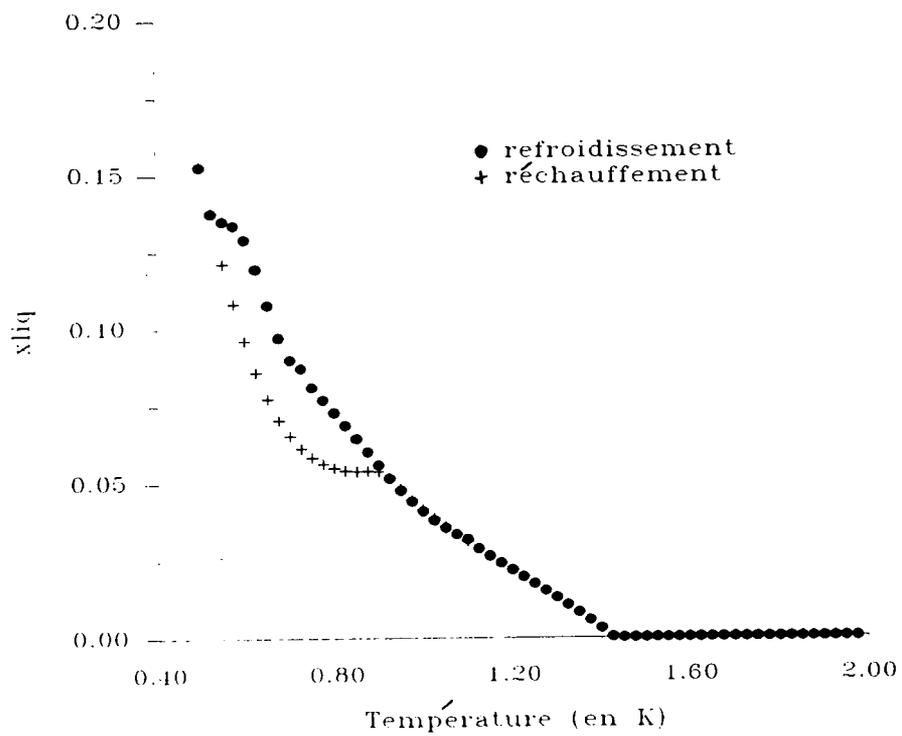


Figure 3.22: Evolution de la proportion d'hélium-3 dans la phase liquide calculée en fonction de la température.

Comme c'est le comportement autour de 0.6 K (température à laquelle nous avons mesuré les temps de relaxation longitudinale T_1) qui nous intéresse ici, nous nous sommes contentés de vérifier que ce choix n'était pas trop critique dans la gamme de température [0.5 K, 0.8 K].

3.8 Analyse des résultats

En utilisant ce dernier modèle, on obtient la valeur de la proportion d'hélium-3 dans le liquide (et donc la densité en hélium-3) lors de nos mesures de T_1 . Il s'agit de proportions de l'ordre de 0.1 ; on peut estimer l'erreur relative faite sur la mesure de x_{liq} à environ 5 %.

Le tableau suivant rassemble les résultats obtenus :

T (mK)	T_1 (s)	x_{liq}	n_3 (mol/l)	$T_1 n_3$ (smol/l)
585	1110	0.14	5.0	5550
610	1020	0.13	4.5	4590
630	1020	0.12	4.2	4284
650	1200	0.11	3.9	4680
760	1600	0.08	2.8	4480

Ils sont représentés également sur la courbe 3.23, en même temps que le temps de relaxation longitudinale de l'hélium-3 pur (300 s). La taille des rectangles correspond approximativement aux erreurs commises lors des différentes estimations.

Nous avons également représenté le produit $n_3 T_1$ en fonction de la température sur la courbe 3.24. On voit que $T_1 n_3$ n'est pas constante mais décroît avec la température, ce qui semble compatible avec une loi en T^σ , où σ est compris entre -1 et -0.5.

3.9 Conclusion

Nous avons donc observé des longs temps de relaxation longitudinale T_1 : de l'ordre de 20 minutes dans un mélange d'hélium-3/hélium-4 à 20 %, et de 5 minutes dans le liquide d'hélium-3 pur. Il s'agirait bien entendu de vérifier s'il y a ou non influence de la paroi (en particulier en variant les quantités, mais en gardant les mêmes proportions).

Nous avons d'autre part mis en évidence un phénomène d'hystérésis sur les cycles liquéfaction

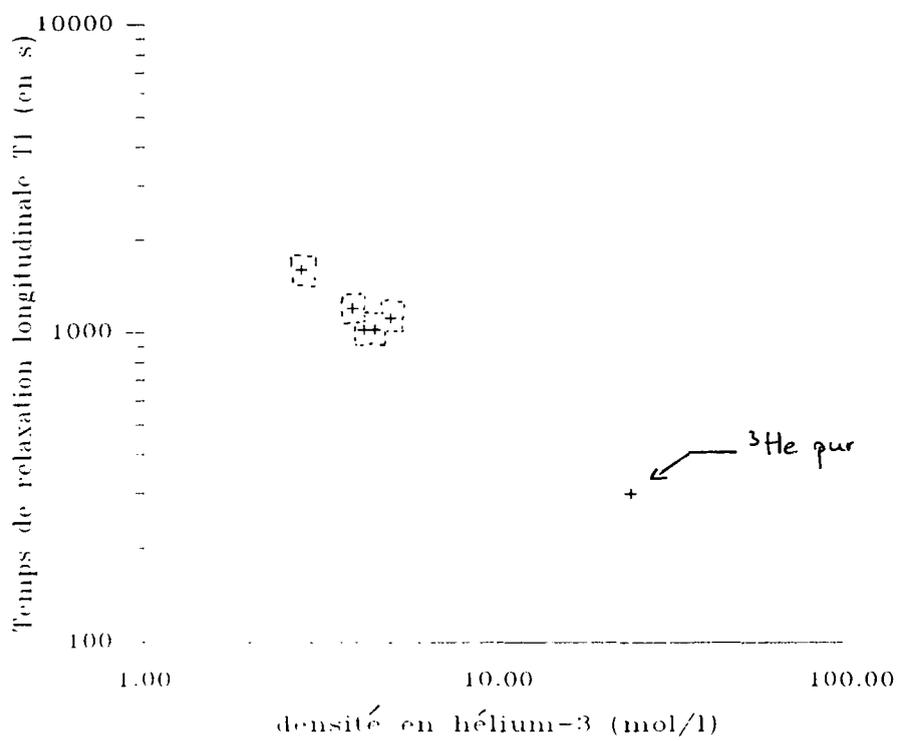


Figure 3.23: Temps de relaxation longitudinale T_1 dans un mélange hélium-3 / hélium-4.

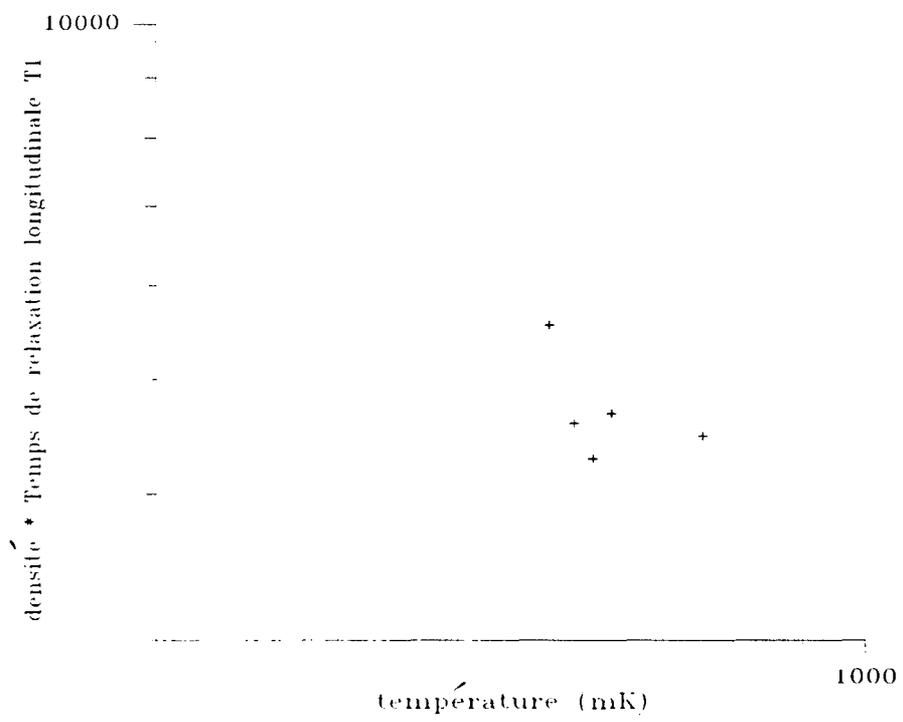


Figure 3.24: Produit du temps de relaxation longitudinale et de la densité en fonction de la température.

/évaporation dans notre cellule, phénomène que nous avons expliqué par un processus de compression et enrichissement cryogénique.

Enfin, nos résultats ont montré les limites des conditions expérimentales actuelles pour une mesure systématique du temps de relaxation longitudinale T_1 . D'une part, la gamme de températures accessibles à notre cellule scellée est relativement restreinte ; d'autre part, la valeur calculée de x_{liq} est entâchée d'une assez forte incertitude.

La première difficulté peut être contournée en utilisant une cellule ouverte, à savoir disposant d'un robinet sur la partie restant à température ambiante (la tête). Quant à la deuxième difficulté, l'absence de gros réservoir, et donc un faible volume accessible à la vapeur doit permettre de l'atténuer.

Il faut noter que la présence d'un robinet permet non seulement de changer à volonté les proportions d'hélium-3 dans l'hélium-4, mais également d'envoyer en continu des atomes d'hélium-3 polarisés afin d'augmenter la quantité liquéfiée d'atomes polarisés (ce qui compense en partie la perte du gros réservoir d'atomes polarisés) et donc le signal RMN mesuré.

C'est ce double choix qui a été fait au laboratoire pour la suite des expériences sur la mesure du temps de relaxation longitudinale T_1 . Des mesures sont actuellement en cours au laboratoire pour une mesure systématique de T_1 en fonction de la densité en hélium-3 et de la température (thèse en cours de N.Piegay).

Chapitre 4

Instabilités RMN dans l'hélium-3 liquide fortement polarisé

4.1 Introduction

Des manifestations inattendues de l'effet des interactions dipolaires magnétiques entre noyaux d'hélium-3 avaient été observées au laboratoire lors d'expériences antérieures de RMN pulsée sur des mélanges d'hélium-3/hélium-4 liquides très polarisés. L'échantillon, maintenu à des températures de l'ordre de 0.2 K, était contenu dans un tube capillaire de diamètre intérieur 0.6 mm en forme de U, avec un rayon de courbure de 8 mm. Le champ magnétique était appliqué verticalement, c'est-à-dire parallèlement aux branches verticales du U. Alors que dans une telle géométrie on pouvait s'attendre à un spectre en fréquences continu (correspondant à une variation continue de 0 à 90° de l'angle entre le tube et le champ magnétique, et donc à une variation continue du décalage entre fréquence de précession des spins et fréquence de Larmor (cf partie 1)), on observait en fait un ensemble de raies fines bien définies [Candela 94]. Dans la géométrie particulière de ces expériences, Eric Stoltz a modélisé le système de façon assez simple (en tenant compte des couplages dipolaires entre tranches du tube), ce qui lui a permis de comprendre la provenance de ces différents groupes de raies et d'interpréter leur position en termes d'aimantation du système [Stoltz 96a]. En outre, ce modèle reproduisait l'absence de sensibilité du système à l'application de gradients de champ magnétique (jusqu'à 1 μ T sur les dimensions de l'échantillon). En revanche, l'étude des largeurs des raies n'a pas trouvé d'interprétation. Il s'agissait en particulier d'expliquer une forte dépendance du taux d'amortissement $1/T_2^*$ de la précession en fonction de l'aimantation du système et de l'angle

de basculement des spins, et ce quelles que soient les température et concentration de l'échantillon [Nacher 95]. Le modèle utilisé, qui négligeait toute variation de l'aimantation transverse sur la section du tube, était probablement trop rudimentaire...

A la suite de cette thèse, Jean Jeener, de l'Université Libre de Bruxelles, a mené des modélisations numériques dans un tube en U [Jeener 99]. Ses résultats semblent indiquer que la dépendance en angle du temps de vie de la précession de l'aimantation est une manifestation d'instabilités générées par le champ dipolaire. Ces instabilités mènent à des mouvements turbulents de précession de l'aimantation, et ce pour des angles de basculement de l'aimantation suffisamment grands (typiquement au-delà de 45°).

Récemment, des effets de ce genre ont été observés dans notre système (hélium-3 pur liquide polarisé) : le taux d'amortissement de la précession dépend fortement de l'angle de basculement des spins. Mais cette similitude reste qualitative car il s'agit dans nos expériences d'angles de l'ordre de 5° . Ces observations nous ont amenés à étudier expérimentalement de façon plus systématique le taux d'amortissement de la précession.

4.2 Rappel du montage expérimental

Toutes les expériences ont lieu dans un champ magnétique vertical homogène de 1.3 mT. L'hélium-3 est contenu dans une double cellule de verre, composée d'un volume de pompage optique à température ambiante, d'un réservoir d'atomes polarisés à une température de quelques dizaines de degrés Kelvin, et d'une cellule d'étude à température T ($0.45 \text{ K} < T < 1 \text{ K}$), le tout relié par un tube de diamètre intérieur 3 mm. Cette cellule est par ailleurs représentée sur la figure 1.7 (cellule n° 4) : il s'agit de celle utilisée pour les mesures de pression de vapeur saturante sur l'hélium-3 pur et les mélanges ; bien qu'elle dispose d'un robinet sur la tête, la quantité de gaz d'hélium-3 ne sera pas variée durant toutes les expériences décrites dans cette partie.

Rappelons que la partie basse de la cellule consiste en un tube de diamètre intérieur 4 mm, relié thermiquement au cryostat à hélium-3 par des fils de cuivre enroulés autour de la paroi en verre sur une hauteur d'1 cm environ. Comme la cellule a été remplie à température ambiante de 3 Torr d'hélium-3, le volume de liquide obtenu pour une température de la cellule d'étude de 500 mK est d'environ 3 mm^3 . Celui-ci va se former préférentiellement sur les parties froides de la cellule, c'est-à-dire sur les parois intérieures du tube, au niveau des fils de thermalisation au cryostat (voir figure 4.1). On s'attend donc à ce que le liquide forme une nappe d'épaisseur $250 \mu\text{m}$ environ, étalée sur une extension verticale de 8 à 10 mm.

Les expériences de RMN pulsée sont effectuées à l'aide de bobines croisées (décrites au paragraphe 1.3.2). Les bobines d'induction permettent de préparer une aimantation transverse uniforme

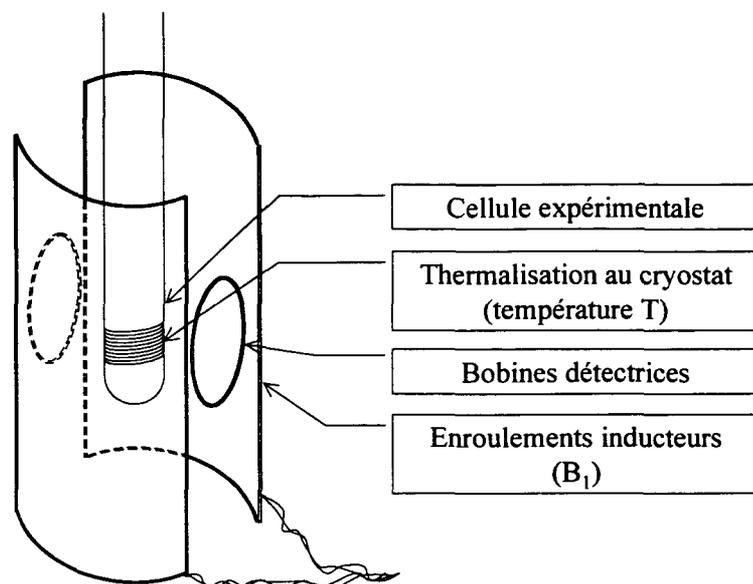


Figure 4.1: Allure de la cellule expérimentale et de l'équipage RMN.

dans l'échantillon, en créant un basculement de l'aimantation d'un angle α . Les petits angles sont effectués en 0.1 ms. Le signal de précession libre de l'aimantation transverse (signal FID) est recueilli aux bornes de bobines détectrices circulaires de diamètre 15 mm, couplées à l'ensemble de l'échantillon. Le signal obtenu est donc une moyenne sur tout l'échantillon du signal de précession de l'aimantation. Comme on l'a vu au paragraphe 1.3.2.4, il est alors amplifié puis mélangé, dans un amplificateur à détection synchrone, à un signal de référence dont la fréquence est proche de la fréquence de précession : le champ magnétique est ajusté lors des expériences afin de limiter le désaccord entre fréquence de précession et fréquence de référence à quelques 300 Hz, ce qui est bien plus faible que la bande passante du système.

4.3 Etude qualitative du spectre de Fourier

L'effet d'une impulsion RMN sur un noyau isolé est de basculer l'aimantation d'un angle α par rapport au champ magnétique et de créer ainsi une aimantation transverse ; celle-ci évolue alors d'après l'équation de Bloch :

$$\frac{\partial \mu}{\partial t} = -\gamma \mathbf{B}_0 \times \mu \quad (4.1)$$

Cette équation décrit la précession d'un spin isolé autour du champ magnétique \mathbf{B}_0 à la fréquence

$$\omega = -\gamma\mathbf{B}_0 \quad (4.2)$$

Quand il s'agit d'un ensemble de noyaux, il faut considérer l'aimantation locale $\vec{\mathcal{M}}(\mathbf{r}, t)$ par unité de volume. Les inhomogénéités locales du champ (appliquées délibérément ou non) rendent alors le champ magnétique \mathbf{B}_0 dépendant de la position \mathbf{r} . La fréquence de précession de l'aimantation n'est alors plus uniforme, et ce processus est responsable d'un étalement des spectres RMN. Pour des spins isolés et immobiles, le temps caractéristique de perte de l'aimantation locale dans le plan transverse, T_{2i} (comparable au temps de relaxation longitudinale T_1 et estimé à quelques minutes dans le cas de l'hélium-3 pur), dépend uniquement du processus de relaxation intrinsèque spin-spin de l'aimantation transverse.

Dans nos échantillons fortement aimantés, il faut aussi prendre en compte le champ dipolaire \mathbf{B}_{dip} créé par l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$. Finalement, l'équation de Bloch pour l'aimantation transverse locale $\vec{\mathcal{M}}_+(\mathbf{r}, t)$ s'écrit :

$$\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}_+(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\gamma(\mathbf{B}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{B}_{dip}) \times \vec{\mathcal{M}}_+(\mathbf{r}, t) - \frac{\vec{\mathcal{M}}_+(\mathbf{r}, t)}{T_{2i}} \quad (4.3)$$

Le signal enregistré est proportionnel à l'intégrale de l'aimantation transverse sur le volume de l'échantillon ; le taux d'amortissement du signal $1/T_2^*$ est donc en fait plus élevé que le taux intrinsèque $1/T_{2i}$. Il sera dominé en particulier par l'inhomogénéité du champ magnétique \mathbf{B}_0 , qui rend la fréquence de précession des spins inhomogène (le taux d'amortissement correspondant peut être estimé à quelques centaines de ms dans le cas d'inhomogénéités résiduelles de l'ordre du mGauss/cm). Le champ dipolaire, s'il est non uniforme, participera aussi à ce taux d'amortissement.

En ce qui concerne la fréquence de précession, et étant donnée l'anisotropie de notre échantillon, on peut s'attendre à des grands déplacements de fréquence dus au champ dipolaire. Nous avons déjà vu en effet dans la première partie de ce mémoire (paragraphe 1.4.2) que, pour un film étalé sur une paroi verticale, on attend un déplacement en fréquence proportionnel à l'aimantation longitudinale du liquide (qui reste très proche de l'aimantation totale tant que l'on utilise de petits angles de basculement de l'aimantation), valant 36 Hz par pour cent de polarisation.

On s'attend donc à observer, lors de l'étude du spectre RMN, une seule raie, de largeur $1/T_2^*$, correspondant à la précession de l'aimantation. En fait, nous verrons plus loin que ce n'est pas si évident, car notre film n'est pas une nappe plane infinie, mais une nappe cylindrique d'extension finie. Nous reviendrons sur ce point lors de notre tentative d'interprétation de certaines caractéristiques des spectres RMN observés.

Notons que cette étude a été faite pour des spins immobiles ; si on prend en compte la diffusion, il existe une nouvelle cause d'irréversibilité lors de la précession des spins dans un champ inhomogène, et la taux d'amortissement de l'aimantation transverse locale devient :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_{2i}} + \text{taux d'amortissement dû à la diffusion en champ inhomogène} \quad (4.4)$$

4.4 Effets du couplage au circuit de détection

Jusqu'ici, nous n'avons pris en compte aucun couplage avec l'extérieur du système, exceptée l'influence du champ magnétique B_0 et de ses gradients. Or, G.Tastevin a montré dans sa thèse [Tastevin 87] qu'un couplage faible de l'aimantation avec les bobines de détection RMN provoque à la fois un déplacement de la fréquence de précession de l'aimantation et une variation de son taux d'amortissement. Cet effet a été évoqué lors de la description du montage expérimental, mais nous allons maintenant chercher à le quantifier.

Lorsque la fréquence propre du circuit de détection est égale à la fréquence de Larmor des atomes d'hélium-3, et que son temps de réponse caractéristique est court devant le temps de relaxation transversale T_2 (conditions de fait réalisées dans nos expériences), les calculs menés par G.Tastevin mènent aux expressions suivantes pour $\delta\omega$ et $1/\tau$:

$$\delta\omega = -\frac{\alpha\beta}{2L}\mathcal{M}_0 \quad (4.5)$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\alpha\beta Q}{2L} \frac{\mathcal{M}_0}{2} \quad (4.6)$$

Dans ces formules, \mathcal{M}_0 désigne l'aimantation totale de l'échantillon, L est l'inductance du dispositif récepteur, Q sa surtension et α et β deux coefficients de couplage (dont la signification est largement explicitée dans le thèse de G.Tastevin). Dans le cas où le dispositif détecteur est constitué de deux bobines connectées en série, et disposées de part et d'autre de la cellule d'étude, on peut montrer que les coefficients α et β s'écrivent :

$$|\alpha| = n\mu_0\gamma \frac{R^2}{(R^2 + l^2)^{3/2}} \quad (4.7)$$

$$\beta = \frac{\alpha}{\gamma} \quad (4.8)$$

où n désigne le nombre de tours de chaque bobine, R leur rayon et l la moitié de la distance qui les sépare. Le tableau ci-dessous contient les valeurs numériques obtenues pour la paire de bobines détectrices que nous avons utilisée, le circuit électrique étant accordé sur la fréquence de Larmor des spins à 42.16 kHz.

capacité C	Inductance L	Surtension Q	$ \alpha $ (S.I.)	$ \beta $ (S.I.)	$ \alpha\beta /4L$
10 nF	1.5 mH	18	$2.3 \cdot 10^5$	$7.2 \cdot 10^{-3}$	$2.8 \cdot 10^5$

Le moment magnétique total de l'échantillon est égal à $\mathcal{M}_0 = \mu_n M V_{éch} n_0$. Le volume $V_{éch}$ est estimé dans notre échantillon à 3 mm^3 pour une température de 0.5 K. Pour une aimantation de l'ordre de 20%, le moment magnétique total est donc de l'ordre de $1.1 \cdot 10^{-7}$ (S.I.). Si nous utilisons l'ensemble de ces valeurs expérimentales pour estimer les effets de réaction du circuit constitué par la paire de bobines détectrices sur l'aimantation, nous obtenons typiquement pour le déplacement en fréquence et la variation du taux d'amortissement :

$$|\delta\omega| = 6.2 \cdot 10^{-2} \text{ Hz} \quad (4.9)$$

$$\left| \frac{1}{\tau} \right| = 5.5 \cdot 10^{-1} \text{ Hz} \quad (4.10)$$

Nous voyons que le déplacement en fréquence dû au couplage externe est négligeable devant les écarts en fréquence mesurés (de l'ordre de quelques centaines de Hz), alors que l'effet sur le taux d'amortissement (plus important car valant $Q/2$ fois le déplacement en fréquence) n'est pas toujours complètement négligeable devant la valeur mesurée du taux d'amortissement de l'aimantation transverse. Suivant les signes de \mathcal{M}_0 et B_0 , cette contribution sera positive ou négative, contribuant à allonger ou raccourcir la durée du signal de précession de l'aimantation.

Nous avons systématiquement comparé expérimentalement les deux situations (voir paragraphe 4.5.2).

4.5 Résultats expérimentaux

4.5.1 Analyse des données expérimentales

4.5.1.1 Mesure de l'angle de basculement de l'aimantation

Nous avons calibré les petits angles de basculement de l'aimantation à partir de la connaissance de l'angle $\pi/2$, en diminuant l'amplitude de l'impulsion RF. Nous avons également vérifié que les pertes d'aimantation après des angles intermédiaires (en particulier $\pi/4$ ou $\pi/8$) correspondaient bien à ce que l'on pouvait attendre.

Rappelons que l'intensité et la durée d'une impulsion rf correspondant à un basculement de $\pi/2$ de l'aimantation ont été déterminées lors des mesures de la pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation (partie 2.6.4). Elles ont été choisies telles que le signal de précession de l'aimantation après une deuxième impulsion rf soit minimal. Nous avons également vérifié qu'en doublant la durée de l'impulsion, l'aimantation longitudinale était conservée (à 10 % près) mais de

signe opposé. En pratique, un angle de basculement de $\pi/2$ est obtenu en 0.2 ms pour une amplitude RF crête-crête de 30V, et il faut une impulsion de même amplitude et de durée 0.4 ms pour un angle π .

Pour une telle amplitude et un écart à résonance $\Delta\omega=1$ kHz, on a vu que le champ effectif autour duquel tournaient les spins était incliné de 8° par rapport à l'horizontale (figure 2.25). Dans le cas de petits angles de basculement, le champ effectif pourra être plus incliné (car l'amplitude de l'impulsion RF sera plus faible, la durée minimale de l'impulsion étant limitée à 0.1 ms avec notre dispositif) ; si l'on prend soin de limiter l'écart à résonance $\Delta\omega$ à 300 Hz (voir paragraphe 1.4.2), on peut montrer que l'angle de basculement est suffisamment petit pour ne pas dépendre de $\Delta\omega$ (la différence entre l'angle estimé dans une première approche et l'angle réel de basculement de l'aimantation par rapport à la verticale est inférieure à 0.1 %).

Nous avons vérifié expérimentalement que les signaux RMN obtenus pour des petits angles ne dépendent que de la valeur calculée pour l'angle, en augmentant la durée des impulsions à 0.2 ms ou 0.4 ms et en diminuant leur intensité en proportion.

4.5.1.2 Caractérisation du taux d'amortissement $1/T_2^*$

Afin d'améliorer la précision de nos mesures, nous déterminons le temps d'amortissement de la précession libre de l'aimantation T_2^* après filtrage numérique des signaux ; nous choisissons pour cela une bande spectrale centrée sur la fréquence du signal, de largeur adaptée à la largeur spectrale du signal à analyser, et on rejette la partie du spectre située hors de cette bande d'analyse. Des exemples de signaux ainsi filtrés sont donnés par les figures 4.2 à 4.5. La détermination de T_2^* est en fait assez délicate car le signal est loin d'être parfaitement exponentiel. Lorsque le signal meurt vite (quelques ms, voir figure 4.2), on observe une décroissance brutale du signal de précession ; lorsque la précession dure quelques fractions de secondes (voir figure 4.5), la décroissance est assez bien décrite par une exponentielle. C'est pourquoi nous avons recours à deux méthodes de détermination de T_2^* : soit le temps pour le signal de précession de tomber à mi-hauteur T_{2man}^* , soit la constante de temps T_{2fit}^* d'une exponentielle approchée entre deux bornes raisonnables du signal de précession. Il est clair que ces deux méthodes ne peuvent donner le même résultat ; en particulier, lorsque le signal a un comportement à peu près exponentiel, $T_{2man}^* = T_{2fit}^* / \ln 2$, alors que pour les signaux de courte durée de vie, $T_{2fit}^* < T_{2man}^*$.

4.5.2 Dépendance en aimantation

Les figures 4.2 à 4.5 donnent un exemple de signaux RMN obtenus : ils correspondent à la composante du signal électrique en phase par rapport au signal de référence, ainsi qu'au module du sig-

nal après filtrage numérique du bruit. L'angle de basculement de l'aimantation, fixé par l'amplitude de l'impulsion radiofréquence, est de l'ordre de 4.5° . Ces enregistrements ont été effectués sur un même échantillon, maintenu à une température de 0.5 K, pendant la décroissance de l'aimantation.

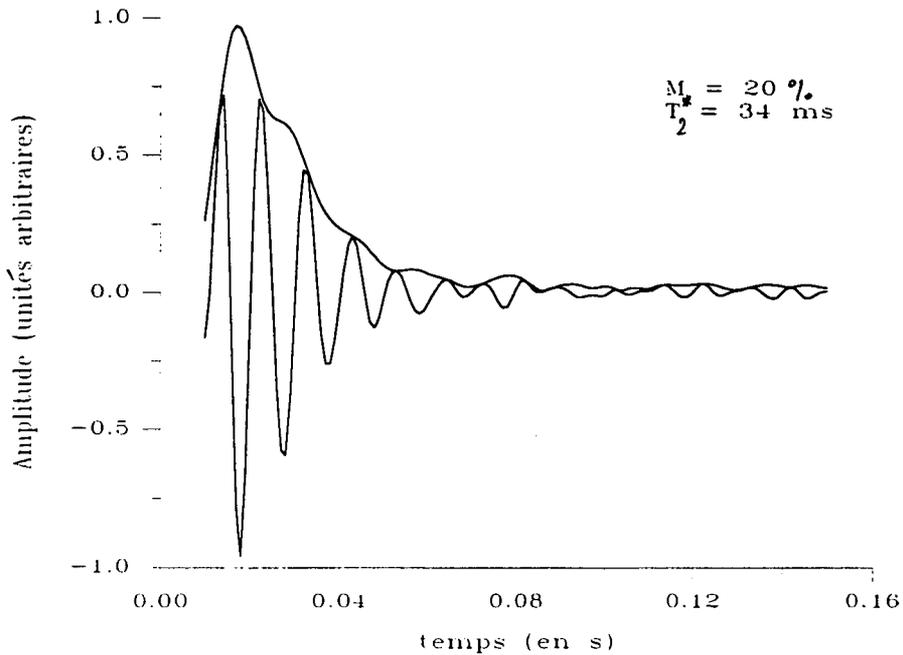


Figure 4.2: Signal électrique enregistré aux bornes des bobines détectrices au temps $t=2'20''$ puis filtré, correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans l'échantillon.

On remarquera en particulier que l'échelle de temps de précession de l'aimantation est très différente sur les différents signaux, allant de quelques dix ms à quelques secondes...

Les résultats complets de cette mesure du temps d'amortissement T_2^* lors de l'évolution de l'aimantation sont reportés sur la figure 4.6. Les croix correspondent à la mesure du temps de décroissance du module à mi-hauteur, alors que les cercles correspondent à la constante de temps de décroissance exponentielle. Nous avons choisi par la suite d'utiliser la méthode qui consiste à prendre le temps de passage à mi-hauteur du module du signal. Même si le temps mesuré n'est pas alors le temps de décroissance exponentielle dans les cas de temps longs (il manque un facteur $\ln 2$), ce critère est plus pertinent lorsque le signal meurt vite.

Nous avons profité de cette succession de petits angles de basculement (dont on sait, par le calcul des pertes par pulse, qu'ils n'affectent pas trop la valeur longitudinale M_z de l'aimantation (moins de 0.1 %)) pour mesurer la constante de temps de décroissance de M_z : $T_1=5$ minutes (voir figure 4.7).

Nous avons cherché à savoir si cette dépendance de T_2^* en aimantation était fonction du sens de

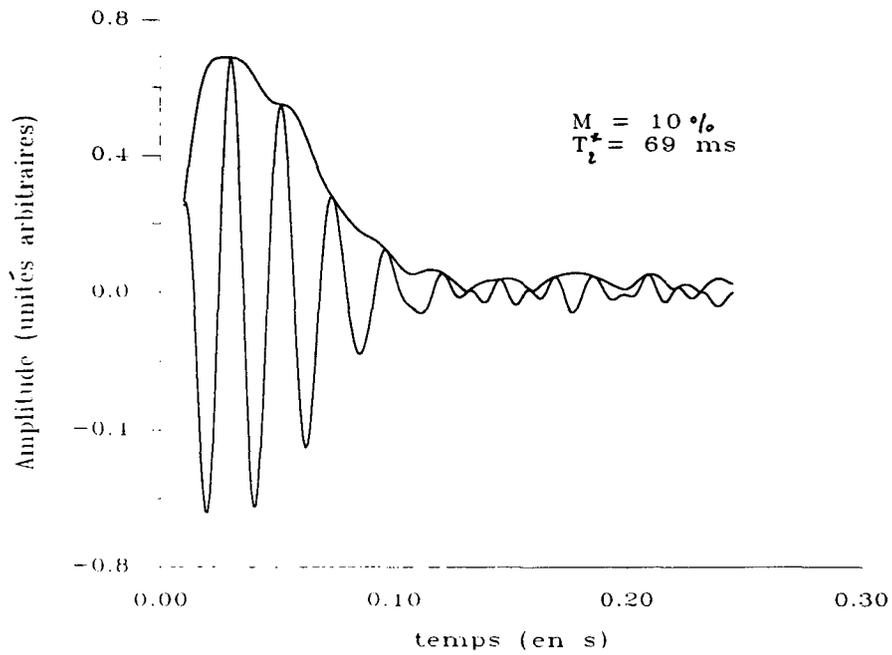


Figure 4.3: Signal électrique enregistré aux bornes des bobines détectrices au temps $t=6'$ puis filtré, correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans l'échantillon.

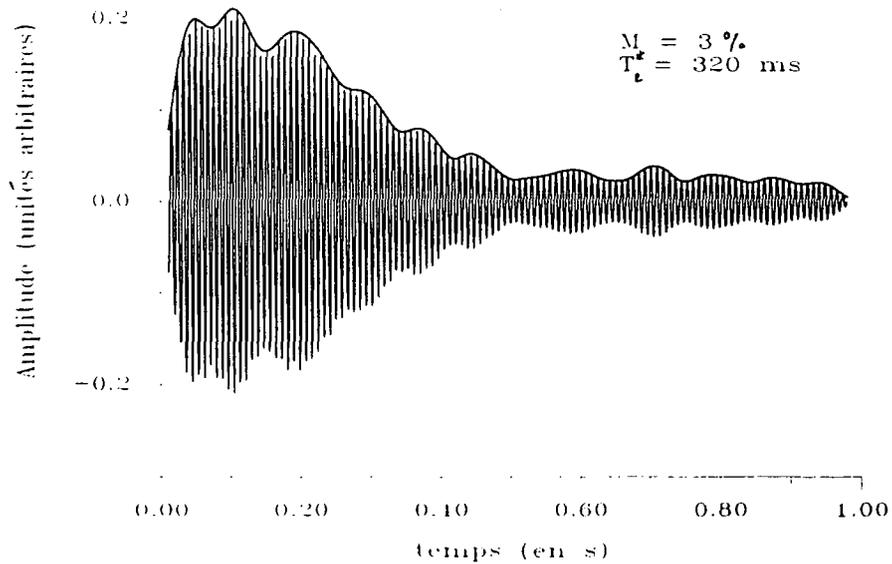


Figure 4.4: Signal électrique enregistré aux bornes des bobines détectrices au temps $t=12'30''$ puis filtré, correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans l'échantillon.

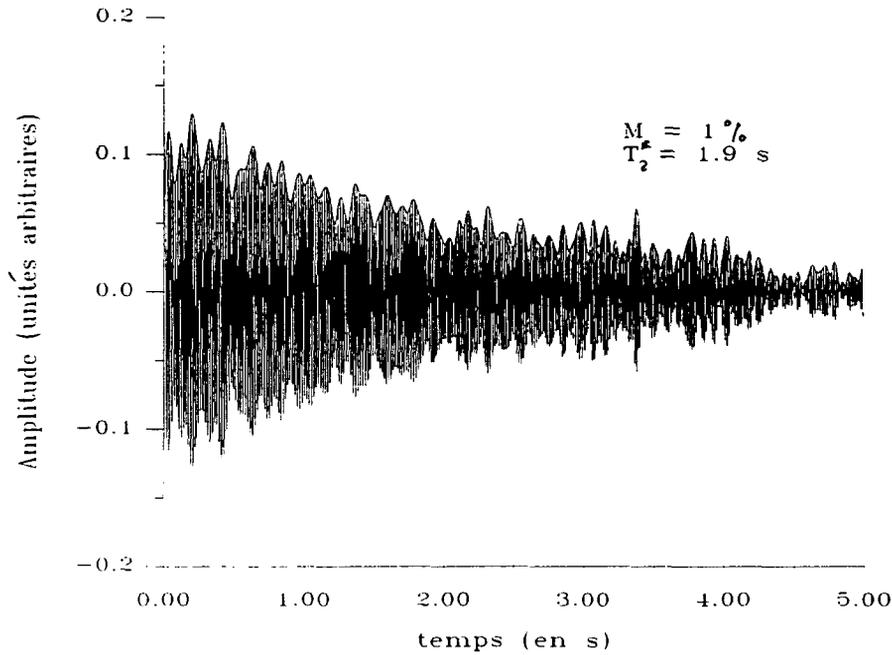


Figure 4.5: Signal électrique enregistré aux bornes des bobines détectrices au temps $t=17'$ puis filtré, correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans l'échantillon.

l'aimantation longitudinale : en tournant de 90° la lame quart d'onde qui polarise le faisceau laser de pompage optique, on peut changer cette polarisation de σ^+ en σ^- . Le sens de la polarisation nucléaire est alors inversé. On peut également appliquer après liquéfaction de l'échantillon polarisé une impulsion π , ce qui conduit au même résultat. Nous avons reporté sur la courbe 4.8 les valeurs des largeurs de raie obtenues pour un angle de 4.5° et les deux sens de polarisation. Il n'y a pas de nette asymétrie dans les comportements en $+$ et $-M$.

Or, d'après le paragraphe 4.4 sur l'effet du couplage aux bobines de détection, on attend un comportement différent suivant l'orientation de l'aimantation : allongement ou raccourcissement du temps de précession de l'aimantation transverse T_2^* . Nous allons voir que nos résultats expérimentaux sont parfaitement compatibles avec la présence de couplage ; en effet, si l'on s'intéresse dans un premier temps aux ordres de grandeur, on voit que l'effet du couplage sur le taux d'amortissement sera plus perceptible à faible aimantation M car T_2^* mesuré est alors plus long et le taux d'amortissement mesuré $1/T_2^*$ assez faible. Mais comme l'effet du couplage est proportionnel à M , cet effet ne sera pas énorme.

Pour $M \approx 2\%$, on attend un taux d'amortissement dû au couplage $\left(\frac{1}{\tau}\right)_{\text{coupl}} \approx 0.05 \text{ s}^{-1}$, ce qui correspond à un écart entre les taux d'amortissement mesurés dans les sens $+$ et $-M$ de 0.1 s^{-1} . Comme la mesure de T_2^* donne alors environ 1 s, l'effet n'est pas énorme ; cependant l'ordre de

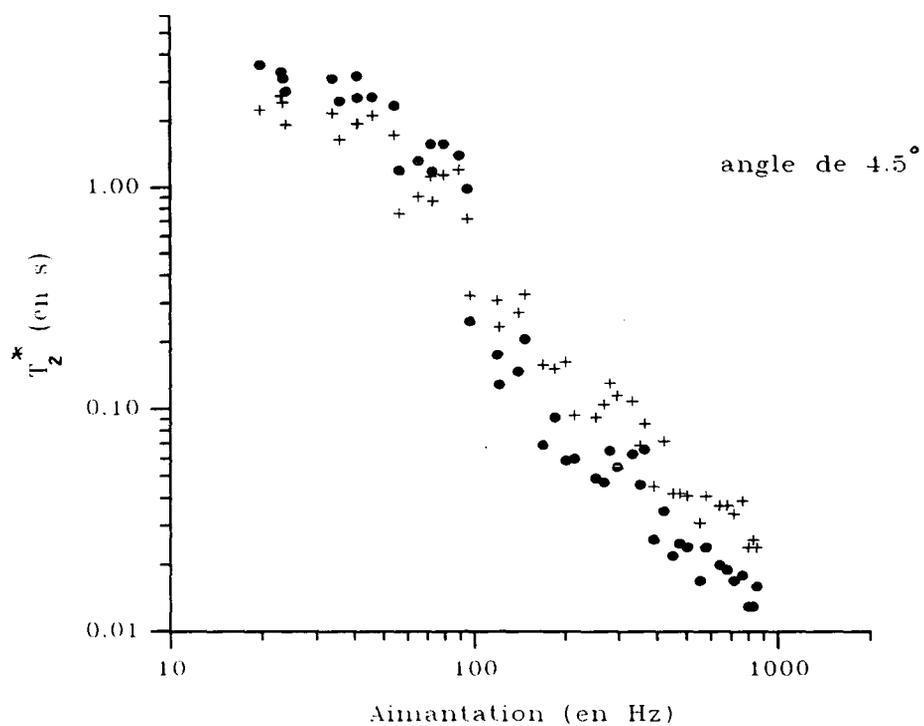


Figure 4.6: évolution du temps de relaxation transversale T_2^* en fonction de l'aimantation de l'échantillon. Les croix correspondent à la mesure du temps de décroissance du module à mi-hauteur, alors que les cercles correspondent à la constante de temps de décroissance exponentielle.

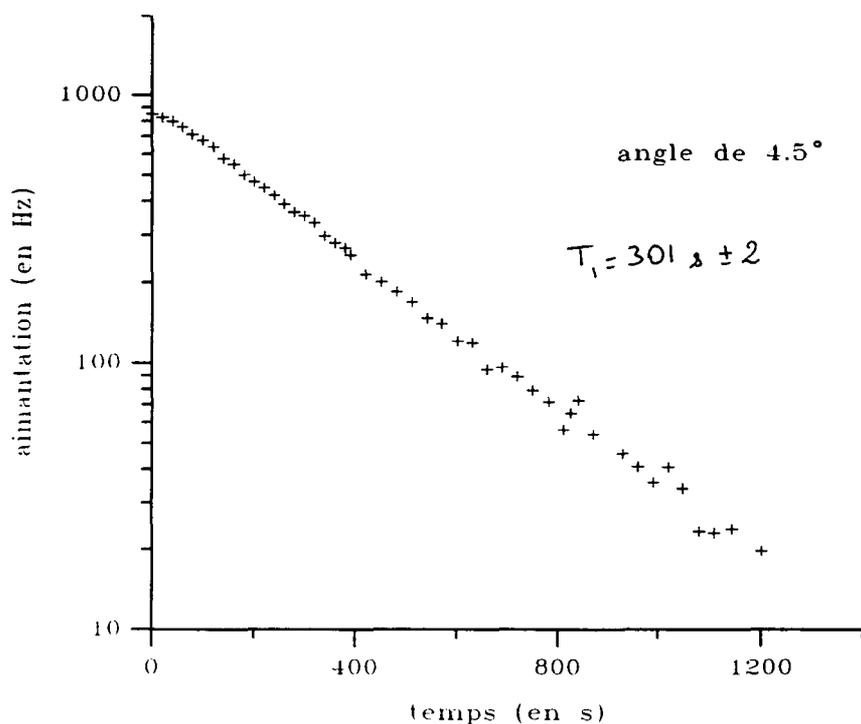


Figure 4.7: Evolution temporelle de l'aimantation de l'échantillon.

grandeur correspond bien à l'écart mesuré. A plus forte aimantation en revanche, on peut attendre un écart sur les taux d'amortissement de l'ordre de 0.5 s^{-1} mais alors le temps de relaxation mesuré vaut quelques 10 ms seulement ! L'effet du couplage sera donc négligeable...

Si l'on s'intéresse maintenant au sens de variation du taux de relaxation, il faut tout d'abord connaître le sens de l'aimantation créée par pompage optique. Dans ce but, nous avons repéré les orientations de la lame quart d'onde utilisée pour le pompage optique : nous avons ainsi pu associer à chaque position de lame un sens de polarisation. Nous avons enfin repéré le sens du champ magnétique B_0 . Nous pouvons alors affirmer que le sens noté - M sur la figure 4.8 correspond en fait au sens de la polarisation parallèle et de même sens que le champ magnétique. Ce sens correspond expérimentalement à un taux d'amortissement plus grand, et donc à une valeur du taux d'amortissement dû au couplage aux bobines positive. C'est ce qui avait été prédit au paragraphe 4.4.

Nous pouvons dire à ce stade que l'effet de couplage aux bobines détectrices est sans grande importance dans l'effet que nous étudions ici. La forte dépendance en aimantation du taux d'amortissement de la précession libre de l'aimantation ne traduit pas un effet de couplage externe, d'autant qu'un tel effet ne présente en principe, contrairement à ce que nous observons,

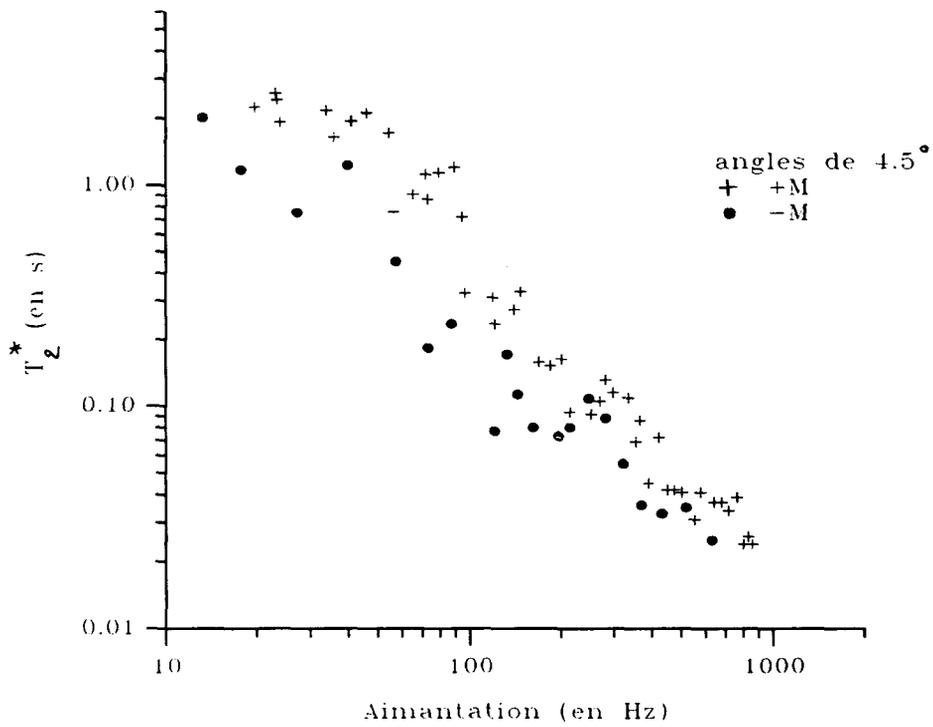


Figure 4.8: Comparaison entre les temps de relaxation transversale T_2^* pour les deux sens de polarisation.

aucune dépendance en angle de basculement.

4.5.3 Dépendance en angle

De telles séries de mesures ont été effectuées de façon systématique pour plusieurs valeurs de l'angle de basculement de l'aimantation. En pratique, nous avons étudié des angles compris entre 1.5° et 7° , car le signal enregistré pour des angles plus petits n'était pas assez grand pour être distingué du bruit, et la durée de la précession libre de l'aimantation était trop faible pour être analysée quantitativement dans le cas d'angles plus grands.

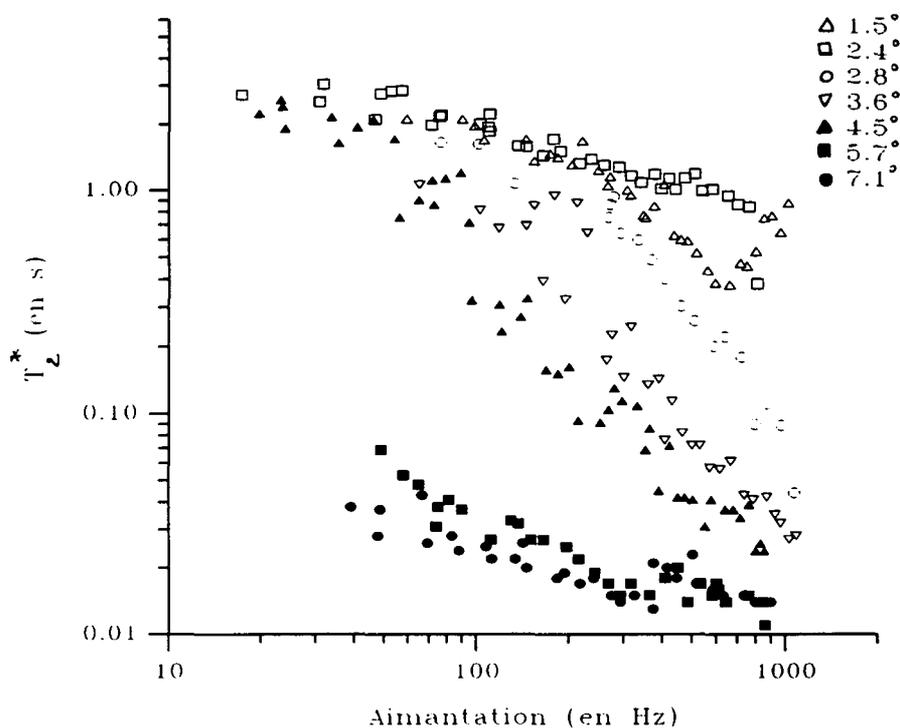


Figure 4.9: Temps caractéristique de décroissance de l'aimantation transverse T_2^* en fonction de l'aimantation longitudinale M_z , pour des angles compris entre 1.5° et 7.1° .

Nous voyons que pour des angles inférieurs à 2.5° , la durée de précession est toujours longue (quelques secondes), quelle que soit la valeur de l'aimantation ($0 < M < 30\%$), alors que pour des angles supérieurs à 5° , les durées de précession sont plutôt de l'ordre de 10 ms. Le premier cas correspond à des raies très fines si l'on s'intéresse au spectre RMN, et le second à des raies larges et plus difficilement analysables, et ce d'autant plus que l'aimantation est faible et le signal sur bruit mauvais (ce qui explique l'absence de points à petit M et grand angle sur la courbe expérimentale). Insistons sur le fait que cette transition brutale entre deux comportements très différents se produit

pour des angles très petits, de l'ordre de 5° !

4.5.3.1 remarques

1. Le comportement à forte aimantation et petit angle ne semble pas parfaitement reproductible ; on trouve, pour un même angle, soit une augmentation de T_2^* quand l'aimantation M diminue, soit d'abord une diminution de ce même T_2^* avant de rejoindre les valeurs obtenues en croissant directement. Cette légère irreproductibilité du système pourrait résulter du fait qu'on est en début de liquéfaction, et que la forme de l'échantillon n'est pas forcément encore stabilisée.
2. Pour les grands angles (de l'ordre de $\pi/2$), le temps de précession libre de l'aimantation est très court. Or, dans ces conditions, l'aimantation longitudinale est très faible ; on peut donc ajouter à la courbe 4.9 un point tout en bas en bas à gauche. Mais comme l'aimantation longitudinale est très faible pour un grand angle, la contribution du champ dipolaire au terme séculaire de précession de l'aimantation transverse est négligeable. Il s'agit donc peut-être d'un phénomène totalement différent de ce qu'on a pu voir pour les petits angles de basculement.

4.5.4 Influence des gradients de champ magnétique

Avec les inhomogénéités de champ magnétique du laboratoire (typiquement de l'ordre du mGauss/cm), le taux d'amortissement de l'aimantation est limité à quelques Hz, et donc le temps de précession de l'aimantation à quelques centaines de ms. Compte tenu des résultats expérimentaux précédents, on peut se demander si les gradients de champ magnétique ne sont pas responsables de la limitation des temps T_2^* les plus longs observés.

C'est pourquoi nous avons appliqué volontairement des forts gradients de champ magnétique. Dans le cas des "grands" angles de basculement de l'aimantation, nous ne pouvions pas attendre d'effet visible étant donnée l'importance du taux d'amortissement observé lorsque le champ magnétique était rendu aussi uniforme que possible. En revanche, dans le cas des raies RMN très fines, l'application d'un gradient de champ magnétique devrait provoquer un net élargissement.

Nous avons donc appliqué successivement des gradients longitudinaux $\nabla_z B_{0z}$ de 2mT/m , de 1mT/m et -2mT/m , et ce pour les mêmes conditions expérimentales et la même valeur d'angle de basculement ($\alpha=2.4^\circ$). Les résultats sont reportés sur la courbe 4.10. Des résultats similaires ont été observés pour $\nabla_x B_{0z}$.

Etant donnée la forte valeur du gradient appliqué et la taille de notre échantillon (environ 1 cm), on pouvait s'attendre à ce que la raie RMN soit élargie par inhomogénéité d'un peu moins d'1 kHz, ce qui limiterait la valeur de T_2^* à 1 ms environ. Comme on peut le voir sur la figure 4.10,

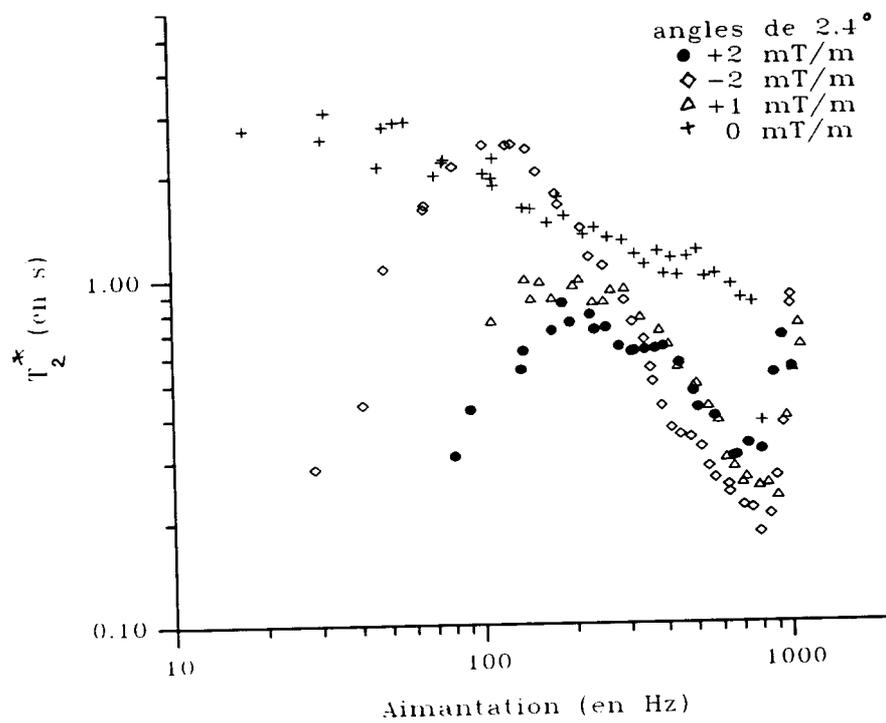


Figure 4.10: Temps de décroissance de l'aimantation transverse T_2^* en fonction de l'aimantation longitudinale M_z , pour différents gradients de champ magnétique appliqués.

ce n'est pas du tout le cas : l'effet, notable, du gradient de champ magnétique est bien plus faible qu'attendu.

Remarquons que nous n'avons pas tenu compte ici de l'influence de l'effet combiné des gradients de champ magnétique et de la diffusion sur le temps de relaxation T_2 des spins. Mais cet effet ne ferait que diminuer encore le temps de relaxation T_2^* mesuré.

4.5.5 Echos de spins

On peut être tenté d'attribuer une partie de la rapide atténuation à grand M (figure 4.8) à l'effet, peut-être inhomogène sur l'échantillon, de M_z . Un tel effet ne suffit certes pas à expliquer la dépendance en angle observée (figure 4.9) ; nous avons cependant cherché à mieux caractériser la précession après un angle $\pi/2$, situation dans laquelle $M_z = 0$, et qui présente un intérêt particulier pour les mesures de la partie 2.

C'est pourquoi nous avons cherché à quantifier le temps de relaxation locale T_2 par des mesures d'échos de spins. Rappelons en brièvement le principe : alors que l'aimantation transverse moyenne sur l'ensemble de l'échantillon s'annule en un temps caractéristique T_2^* , ce n'est pas le cas pour un atome d'hélium-3, qui, lui, voit son aimantation transverse décroître selon une loi exponentielle e^{-t/T_2} (où $T_2^* < T_2$, voir paragraphe 4.3). Afin de s'affranchir du problème d'inhomogénéités statiques de champs magnétiques qui cachent cet effet local, Hahn a proposé en 1950 une technique dite des "échos de spins" [Hahn 50].

A l'instant $t=0$, une impulsion $\pi/2$ bascule l'aimantation dans le plan horizontal. Sous l'effet des inhomogénéités de champ magnétique (dues aussi bien au champ magnétique extérieur qu'au champ dipolaire), les spins se déphasent les uns par rapport aux autres, et l'aimantation moyenne décroît avec un temps caractéristique T_2^* . A un instant t compris entre T_2^* et T_2 , une nouvelle impulsion d'angle π vient renverser la distribution des spins : les spins qui évoluaient à une fréquence inférieure à ω_0 (correspondant au champ moyen sur l'échantillon liquide) se trouvent maintenant en avance de phase par rapport à ceux dont la fréquence était supérieure à ω_0 . Au bout du temps $t_2=2t$, l'aimantation moyenne redevient maximum, mais diminuée d'un facteur e^{-2t/T_2} par rapport à sa valeur au temps $t=0$. Une nouvelle impulsion π appliquée au temps $t_3=3t$ sera également suivie d'un écho d'amplitude maximum pour $t_4=4t$. cette amplitude correspond alors à une atténuation d'un facteur e^{-4t/T_2} .

En effectuant ainsi une séquence bien déterminée d'impulsions RMN, on peut espérer mesurer un taux d'amortissement tenant compte en fait non seulement du temps de relaxation intrinsèque T_{2i} mais aussi de la diffusion de l'aimantation [Canet 94] :

$$\left(\frac{1}{T_2}\right)_{mes} = \frac{1}{T_{2i}} + D\gamma^2 g_0^2 \frac{(2t)^2}{3} \quad (4.11)$$

Comme D est de l'ordre de 10^{-3} cm²/s pour l'hélium-3 liquide pur, nous pouvons estimer que le temps que l'on cherche à déterminer est de l'ordre 0.1 s, si l'on prend un gradient $g_0 = 2$ mT/m et une période entre échos $2t = 0.04$ s. En revanche, si l'on prend un gradient de 1 mGauss/cm (c'est-à-dire le gradient résiduel du laboratoire), l'atténuation ramenée par diffusion devient de l'ordre de l'heure. Elle sera alors inobservable.

Afin d'augmenter le signal d'écho, on a intérêt à choisir t le plus petit possible. En pratique, nous avons réalisé des séquences d'échos de spins où le temps entre deux impulsions π (c'est-à-dire $2t$) était égal à 200 ou 400 ms, puis 20 ou 40 ms. Nous n'avons cependant jamais observé de signal d'écho de spins, même en appliquant diverses valeurs de gradients de champ magnétique (la plus faible étant le gradient résiduel du laboratoire, et la plus forte 2 mT/m).

Nous avons vérifié la validité de notre séquence RMN dans une autre cellule, sur une solution d'hélium-3 dans l'hélium-4, de concentration inférieure à 0.2% et de volume 300 mm³. Dans ces conditions, nous avons obtenu sans difficulté des signaux d'échos de spins, avec un T_2 de l'ordre de grandeur attendu, ce qui met hors de cause la technologie utilisée. Les signaux obtenus dans les deux configurations sont représentés sur les figures 4.11 (dans l'hélium-3 pur, en absence de gradient de champ magnétique, et pour une valeur de $2t = 0.04$ s) et 4.12 (dans le mélange, avec un gradient de champ magnétique de l'ordre de 20 mGauss/cm, et pour $2t = 0.4$ s).

Il faut donc chercher ailleurs la raison de cette différence... Il semble que l'évolution du système soit gouvernée par des processus non triviaux, et en tous cas non réversibles par une impulsion π ! Ceci pourrait sans doute être rapproché des modèles développés par J. Jeener qui prédisent une disparition de type chaotique de l'aimantation macroscopique.

Le modèle des échos de spin suppose que la seule cause d'atténuation est l'évolution dans des régions où la précession se fait à des fréquences différentes. En particulier, le champ dipolaire n'a plus ici la même action que pour des petits angles car l'aimantation longitudinale est nulle pendant la précession (il n'y a d'ailleurs pas de déplacement de la fréquence de Larmor). Il existe manifestement ici des processus autres que ceux causés par la présence des gradients (rappelons l'effet, décevant, des gradients sur le T_2^* qui a été vu au paragraphe précédent).

4.6 Tentative d'interprétation des résultats

Nous n'avons pas tenté ici de nous lancer dans de grands calculs afin d'interpréter l'instabilité en angle et en aimantation observés. Une approche possible pourrait être d'étendre les modélisations faites pour diverses situations par J. Jeener au cas d'un film déposé à l'intérieur des parois d'un cylindre.

Cependant, de même qu'Eric Stoltz avait pu interpréter par un modèle simple l'allure des

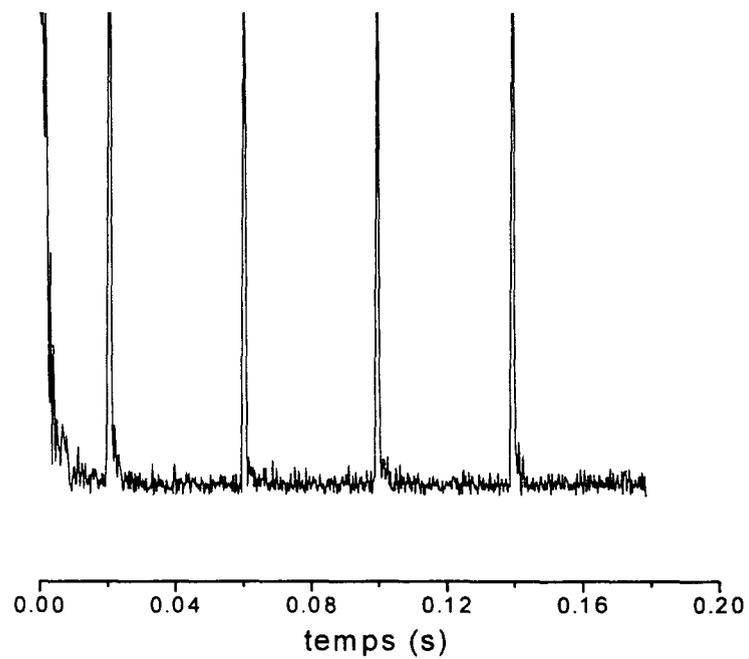


Figure 4.11: amplitude du signal de précession lors de la séquence d'échos de spins dans l'hélium-3 pur ; l'intervalle de temps entre deux impulsions est de 40 ms. Le signal décroissant à $t=0$ correspond à la précession libre suite à une impulsion $\pi/2$; les 4 pics suivants sont des artefacts RF dus aux impulsions π .

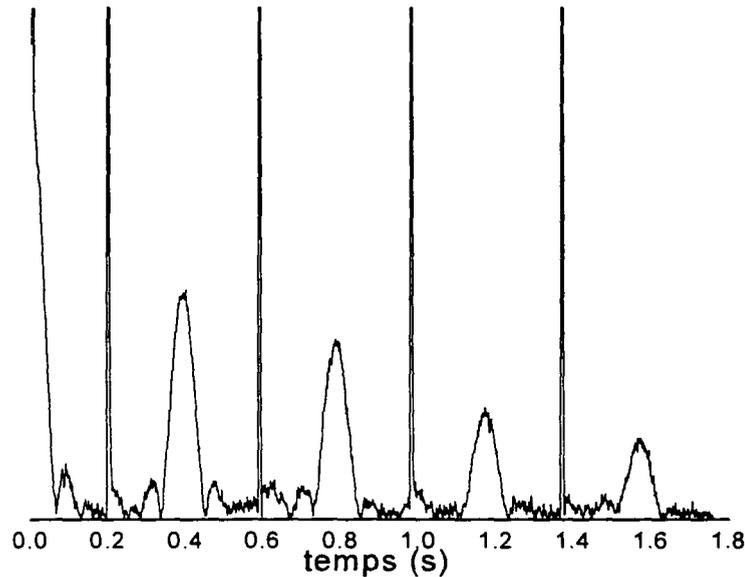


Figure 4.12: amplitude du signal de précession lors de la séquence d'échos de spins dans le mélange ; l'intervalle de temps entre deux impulsions est de 400 ms. Après la précession libre causée par l'impulsion $\pi/2$, on voit 4 échos successifs entre les impulsions π .

spectres RMN dans ses conditions expérimentales [Nacher 95], nous avons tenté d'expliquer par un modèle du même genre quelques unes des caractéristiques de nos spectres RMN : d'une part l'existence d'une seule raie (alors que le résultat théorique de G. Tastevin n'avait été obtenu que pour un échantillon infini de forme plane, sans courbure), d'autre part la forte résistance aux gradients de champ magnétique.

4.6.1 Rappel : échantillon remplissant un tube cylindrique

4.6.1.1 Modèle simple du tube cylindrique droit et infini

Un calcul détaillé du champ dipolaire créé dans le cas d'un cylindre plein droit et infini, pour une aimantation uniforme, est présenté dans la thèse de M. Cornut [Cornut 93]. Pour un cylindre vertical, on déduit de l'expression du champ dipolaire que l'aimantation transverse précesse à une fréquence ω_v , décalée de la fréquence de Larmor ω_L d'une quantité $\omega_v - \omega_L = -\gamma\mu_0 M_z/2$. Comme le décalage est fonction de l'angle entre le cylindre et le champ magnétique statique, on pourrait s'attendre à observer une dispersion des déplacements en fréquence dans un tube courbé, et donc un élargissement de la raie RMN. L'effet de gradients de champ magnétique doit être également d'étaler continûment le spectre en fréquence.

Or, expérimentalement, dans un tube en forme de U, on observe des spectres discrets, avec des raies fines qui ne dépendent pas des gradients de champ appliqués. C'est dans le but d'expliquer ces résultats expérimentaux qu'un modèle simple tenant compte de la courbure a été développé.

4.6.1.2 Modèle du tube cylindrique long et étroit en forme de U

Ce modèle, développé dans la thèse d'E. Stoltz [Stoltz 96a], a pour objet d'expliquer qualitativement les effets de couplage dipolaire dans un échantillon contenu dans un tube en forme de U de rayon intérieur a , de rayon de courbure R ($R \gg a$), et prolongé par de longues branches verticales. C'est un modèle discret, où l'échantillon est divisé en petits éléments cylindriques dans lesquels l'aimantation peut être supposée uniforme et parallèle au champ dipolaire créé. Seul le couplage aux premiers voisins est considéré dans ce modèle.

Un tel modèle simple, qui prend tout de même en compte la courbure et les effets dipolaires, conduit à des spectres discrets et résistants aux gradients de champ magnétique, mais ne permet pas d'expliquer les taux d'amortissement observés.

Remarquons que ce modèle néglige toute inhomogénéité transverse (on considère une succession de tubes minces) ; il s'agit d'un modèle à une dimension.

4.6.2 Echantillon étalé en film mince

4.6.2.1 Modèle simple de la nappe plane et infinie

De même que nous avons commencé par introduire le tube en U en considérant d'abord un cylindre droit et infini, nous allons ici nous intéresser dans un premier temps au cas simple d'une nappe verticale, plane et infinie, uniformément aimantée ; ce cas a déjà été traité dans la thèse de G. Tastevin [Tastevin 87]. Nous reportons ici les étapes importantes du calcul mené.

Le champ dipolaire En appelant \mathcal{M} l'aimantation par unité de volume de notre échantillon, le champ dipolaire en tout point d'une nappe plane s'écrit :

$$\mathbf{B}_{dip} = \frac{\mu_0}{3} (\mathcal{M} - 3(\mathcal{M} \cdot \mathbf{k})\mathbf{k}) \quad (4.12)$$

où \mathbf{k} est un vecteur unitaire perpendiculaire à la surface. On peut encore écrire le champ dipolaire en faisant intervenir le vecteur polarisation \mathbf{M} (avec $\|\mathbf{M}\| \leq 1$) :

$$\mathbf{B}_{dip} = \frac{\mu_0 \mu_n n_3}{3} (\mathbf{M} - 3(\mathbf{M} \cdot \mathbf{k})\mathbf{k}) \quad (4.13)$$

où μ_n et n_3 sont respectivement le moment magnétique de l'hélium-3 et la densité atomique.

Cette expression du champ dipolaire représente l'effet sur un atome donné des interactions magnétiques avec l'ensemble des autres atomes ; il exclut le terme local engendré par la présence d'un moment magnétique au point considéré.

Dans toute la suite, nous supposons que le champ dipolaire reste faible devant le champ magnétique appliqué ($B_0 \approx 10^{-3}$ T), mais qu'il domine les variations du champ magnétique provoquées par les gradients de champ statique sur l'échantillon (que l'on estime plus faibles que 10^{-6} T/cm, et qui s'exercent sur des longueurs de l'ordre du cm). En effet, on peut estimer à au plus 10^{-4} T le champ dipolaire dans un liquide d'hélium-3 complètement polarisé.

Evolution temporelle de l'aimantation L'évolution temporelle de la polarisation de l'échantillon est régie par l'équation de Bloch :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma(\mathbf{B}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{B}_{dip}) \times \mathbf{M} \quad (4.14)$$

si l'on ne s'intéresse pas aux termes de relaxation.

Dans le référentiel de Larmor local qui tourne autour de l'axe Oz à la fréquence de Larmor $\omega_L(\mathbf{r}) = -\gamma \mathbf{B}_0(\mathbf{r})$, l'équation d'évolution devient :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}_{Larmor} = -\gamma \mathbf{B}_{dip} \times \mathbf{M}, \quad (4.15)$$

équation que nous pouvons résoudre dans le cadre de l'approximation séculaire puisque

$$|\mathbf{B}_0| \gg |\mathbf{B}_{dip}|.$$

Cette approximation revient à remplacer le champ dipolaire par sa valeur moyenne temporelle sur un tour du référentiel de Larmor [Cohen-Tannoudji]. L'équation devient alors [Tastevin 87] :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}_{Larmor} = \gamma \mu_0 \mu_n n_3 \mathbf{M} \times \langle -(\mathbf{M} \cdot \mathbf{k}) \mathbf{k} \rangle_t \quad (4.16)$$

Comme le tube est vertical, le vecteur \mathbf{k} est dans le plan transverse et tourne dans le référentiel tournant ; l'équation devient par conséquent :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}_{Larmor} = -\gamma \mu_0 \mu_n n_3 \mathbf{M} \times \frac{1}{2}(\mathbf{M} - M_z \mathbf{z}) \quad (4.17)$$

Finalement, il apparaît que l'évolution libre de l'aimantation correspond à une précession autour du champ appliqué \mathbf{B}_0 à une fréquence

$$\omega = \omega_L(\mathbf{r}) + \frac{\gamma \mu_0 \mu_n n_3 M_z}{2}. \quad (4.18)$$

On retrouve l'expression annoncée au paragraphe 4.3.

4.6.2.2 Comparaison aux expériences

D'après le modèle simple que nous venons de décrire, l'effet des gradients devrait être d'étaler le spectre RMN (par l'intermédiaire de $\omega_L(\mathbf{r})$), et ce quelque soit la direction du gradient. En revanche, on n'attend a priori aucun effet de la courbure de la nappe autour de l'axe vertical (celui défini par le champ magnétique \mathbf{B}_0).

Or les résultats expérimentaux montrent que, pour des petits angles de basculement de l'aimantation, on n'obtient qu'un seul pic RMN fin, et ce malgré l'application de gradients de champ magnétique dans les trois directions de l'espace.

4.6.2.3 Un modèle plus raffiné

C'est pourquoi nous avons cherché à reprendre la démarche d'E. Stoltz en l'adaptant à notre configuration expérimentale, dans le but d'expliquer la stabilité de notre mode de précession de l'aimantation vis à vis des gradients de champ magnétique.

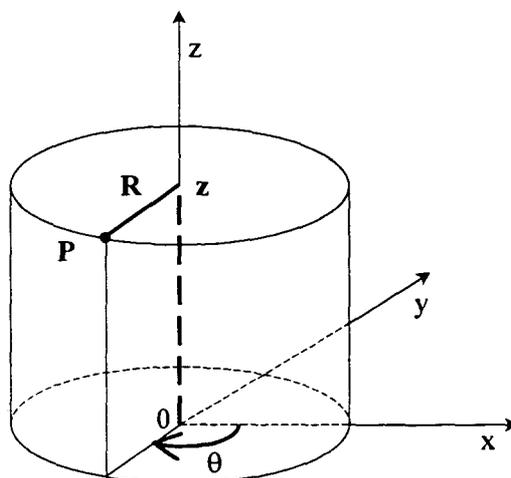


Figure 4.13: Nappe d'hélium-3 et géométrie cylindrique.

Notre modèle doit tenir compte de la géométrie cylindrique de la nappe d'hélium-3 (voir figure 4.13). Il reposera, de même que celui d'E. Stoltz, sur plusieurs hypothèses simplificatrices :

C'est un modèle discret : la surface courbée est décomposée en petits éléments de surface plane S (proches de cubes, d'arête a où a est l'épaisseur locale de la nappe ; a étant bien inférieur au

rayon de courbure R du cylindre) dans lesquels l'aimantation est uniforme. En effet, le champ dipolaire moyen dans un élément cubique étant parallèle à la direction moyenne de l'aimantation, cette décomposition a le mérite de simplifier le calcul. Chaque élément est ensuite remplacé dans le raisonnement par un moment magnétique ponctuel.

La seconde hypothèse suppose que le champ dipolaire créé dans l'élément repéré par les coordonnées cylindriques (z, θ) par le reste de l'échantillon ne dépend en fait que de l'aimantation des quatre premiers éléments voisins de l'élément considéré (voir figure 4.14). Il s'agit bien sûr d'une hypothèse très simplificatrice, dans la mesure où le champ dipolaire en $\frac{1}{r^3}$ induit des couplages à longue portée. Cependant cette approximation permet de prendre en compte, au moins en partie, les variations spatiales de l'aimantation autour du tube.

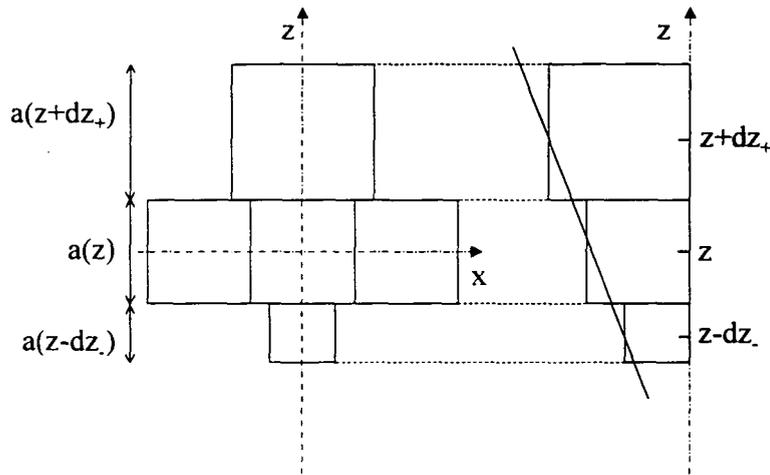


Figure 4.14: Schéma des éléments cubiques considérés lorsque l'épaisseur de la nappe varie en fonction de la hauteur du point considéré.

Enfin, nous supposons que le film d'hélium-3 n'a pas une épaisseur constante a , mais que celle-ci dépend de la hauteur z (voir figure 4.14). Chaque élément de surface a donc pour épaisseur et largeur une valeur $a(z)$.

Dans le cadre de ces hypothèses, nous pouvons écrire le champ dipolaire au niveau de l'élément repéré par la position (z, θ) sous la forme approchée suivante :

$$\mathbf{B}_{dip} = \alpha \mu_0 \mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) + 3\beta \mu_0 \mu_n n_3 \{[\mathbf{M}(z, \theta + d\theta) + \mathbf{M}(z, \theta - d\theta)] \cdot \mathbf{e}_x\} \mathbf{e}_x$$

$$\begin{aligned}
& + 3\beta\mu_0\mu_n n_3 \left\{ \left[\mathbf{M}(z + dz_+, \theta) \frac{a^3(z + dz_+)}{\left(\frac{a(z) + a(z + dz_+)}{2}\right)^3} + \mathbf{M}(z - dz_-, \theta) \frac{a^3(z - dz_-)}{\left(\frac{a(z) + a(z - dz_-)}{2}\right)^3} \right] \cdot \mathbf{e}_z \right\} \mathbf{e}_z \\
& - \beta\mu_0\mu_n n_3 [\mathbf{M}(z, \theta + d\theta) + \mathbf{M}(z, \theta - d\theta)] \\
& - \beta\mu_0\mu_n n_3 \left[\mathbf{M}(z + dz_+, \theta) \frac{a^3(z + dz_+)}{\left(\frac{a(z) + a(z + dz_+)}{2}\right)^3} + \mathbf{M}(z - dz_-, \theta) \frac{a^3(z - dz_-)}{\left(\frac{a(z) + a(z - dz_-)}{2}\right)^3} \right]
\end{aligned} \tag{4.19}$$

où α et β sont de simples coefficients numériques sans dimension de l'ordre de l'unité, \mathbf{e}_x et \mathbf{e}_z des vecteurs unitaires ; $dz_+ = \frac{a(z) + a(z + dz_+)}{2}$ représente la distance entre les centres du cube supérieur et du cube central et $dz_- = \frac{a(z) + a(z - dz_-)}{2}$ celle entre le cube central et le cube inférieur. Le retour à des variables continues s'opère en remplaçant $a(z + dz)$, $\mathbf{M}(z + dz, \theta)$ et $\mathbf{M}(z, \theta + d\theta)$ par :

$$\begin{aligned}
a(z + dz) & \approx a(z) + dz \frac{\partial a}{\partial z}(z) + \frac{dz^2}{2} \frac{\partial^2 a}{\partial z^2}(z) \\
\mathbf{M}(z + dz, \theta) & \approx \mathbf{M}(z, \theta) + dz \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial z}(z, \theta) + \frac{dz^2}{2} \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2}(z, \theta) \\
\mathbf{M}(z, \theta + d\theta) & \approx \mathbf{M}(z, \theta) + d\theta \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial \theta}(z, \theta) + \frac{d\theta^2}{2} \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial \theta^2}(z, \theta)
\end{aligned} \tag{4.20}$$

où $dz_{\pm} = a(z)(1 \pm \frac{a'(z)}{2})$ et $d\theta \approx \frac{a(z)}{R}$.

Le champ dipolaire s'écrit dans ces conditions :

$$\begin{aligned}
\mathbf{B}_{dip} & = \zeta\mu_0\mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) + \beta\mu_0\mu_n n_3 \left\{ \left[\eta(z)\mathbf{M}(z, \theta) + 12a(z)a'(z)\nabla_z \mathbf{M}(z, \theta) + 3a^2(z)\Delta_z \mathbf{M}(z, \theta) \right] \cdot \mathbf{e}_z \right\} \mathbf{e}_z \\
& + \beta\mu_0\mu_n n_3 \left\{ \left[6\mathbf{M}(z, \theta) + 3\frac{a^2(z)}{R^2}\Delta_{\theta} \mathbf{M}(z, \theta) \right] \cdot \mathbf{e}_x \right\} \mathbf{e}_x \\
& - \beta\mu_0\mu_n n_3 \left\{ 4a(z)a'(z)\nabla_z \mathbf{M}(z, \theta) + a(z)^2\Delta \mathbf{M}(z, \theta) \right\}
\end{aligned} \tag{4.21}$$

où le symbole Δ représente le laplacien ($\Delta = \Delta_z + \frac{1}{R^2}\Delta_{\theta}$, Δ_i étant la dérivée seconde par rapport à la i^{e} coordonnée) et ∇_z le gradient selon z ; $\eta(z) = 6 + \frac{9}{2}(a(z)a''(z) + a'(z)^2)$; ζ est un coefficient numérique sans importance pour la suite.

L'équation de Bloch, écrite dans le référentiel de Larmor et dans le cadre de l'approximation séculaire, conduit alors à :

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \right\rangle_{Larmor} & = \zeta\gamma\mu_0\mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times \langle \mathbf{M}(z, \theta) \rangle_t \\
& + \beta\gamma\mu_0\mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times \left\langle \left\{ \left[\eta(z)\mathbf{M}(z, \theta) + 12a(z)a'(z)\nabla_z \mathbf{M}(z, \theta) + 3a^2(z)\Delta_z \mathbf{M}(z, \theta) \right] \cdot \mathbf{e}_z \right\} \mathbf{e}_z \right\rangle_t \\
& + \beta\gamma\mu_0\mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times \left\langle \left\{ \left[6\mathbf{M}(z, \theta) + 3\frac{a^2(z)}{R^2}\Delta_{\theta} \mathbf{M}(z, \theta) \right] \cdot \mathbf{e}_x \right\} \mathbf{e}_x \right\rangle_t \\
& - \beta\gamma\mu_0\mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times \left\langle \left[4a(z)a'(z)\nabla_z \mathbf{M}(z, \theta) + a(z)^2\Delta \mathbf{M}(z, \theta) \right] \right\rangle_t
\end{aligned} \tag{4.2}$$

Ou encore à :

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \right\rangle_{Larmor} &= \beta \gamma \mu_0 \mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times \left\{ 12a(z)a'(z) \nabla_z M_z(z, \theta) + 3a^2(z) (\Delta_z M_z(z, \theta) - \frac{1}{2R^2} \Delta_\theta M_z(z, \theta)) \right\} \mathbf{e}_z \\
+ &\beta \gamma \mu_0 \mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times (\eta - 3) M_z(z, \theta) \mathbf{e}_z \\
+ &\beta \gamma \mu_0 \mu_n n_3 \mathbf{M}(z, \theta) \times \left\{ -4a(z)a'(z) \nabla_z \mathbf{M}(z, \theta) + \frac{1}{2} \frac{a^2(z)}{R^2} \Delta_\theta \mathbf{M}(z, \theta) - a(z)^2 \Delta_z \mathbf{M}(z, \theta) \right\}
\end{aligned} \tag{4.23}$$

4.6.2.4 Evolution après un grand angle de basculement

Après un angle de basculement de $\pi/2$, la projection sur z de l'aimantation est nulle. En absence de gradient de champ magnétique, les évolutions des composantes longitudinale M_z et transverse M_t sont découplées, et la précession de M_t se fait, de façon uniforme, à la fréquence de Larmor non déplacée. M_z reste nulle.

En présence de gradient, en revanche, il apparaît au cours du temps des termes non nuls dans l'équation d'évolution temporelle de M_z . En supposant pour simplifier que ces gradients sont linéaires, seul le terme en $\nabla_z \mathbf{M}(z, \theta)$ reste, et l'équation d'évolution de M_z devient :

$$\left\langle \frac{\partial M_z}{\partial t} \right\rangle_{Larmor} \propto -4a'(z) [a(z) \nabla_z M_t(z, \theta)] M_t(z, \theta) \tag{4.24}$$

La fréquence caractérisant l'évolution de M_z est donc comparable au déplacement en fréquence (de l'ordre du kHz) induit par le champ dipolaire lors de la précession après un petit angle de basculement, mais elle est réduite d'un facteur $a'(z) \ll 1$, et fait intervenir la différence d'aimantation entre proches voisins $a \nabla_z M_t$ au lieu de l'aimantation totale.

En présence d'un faible gradient, cette différence restera petite au bout du temps de diffusion de l'aimantation sur une distance a (typiquement 1 s). Dans les gradients résiduels du laboratoire (1 mGauss/cm), ce terme de croissance d'aimantation est en fait très faible et ne justifie pas une disparition rapide de l'aimantation transverse. La non régénérescence de M_z est compatible avec les observations expérimentales (après un angle de basculement de $\pi/2$, on sait que l'aimantation longitudinale est très fortement diminuée (voir partie 2.6.4)). En revanche, on n'a pas là un processus susceptible d'expliquer un court T_2^* .

En présence d'un fort gradient en revanche, la différence d'aimantation entre proches voisins pourra être bien plus important, mais ce modèle, qui suppose une aimantation quasi-homogène dans chaque élément de volume, n'est plus adapté à décrire la situation ; en outre, les effets de diffusion devront impérativement être pris en compte.

On ne peut pas, en particulier, expliquer l'absence d'échos de spins par ce modèle.

4.6.2.5 Evolution après un petit angle de basculement

Nous allons maintenant restreindre notre discussion à l'étude de l'évolution de l'aimantation après qu'une impulsion RMN de petit angle ait été appliquée. Dans ces conditions, le module de la composante transverse de la polarisation (représentée par la notation complexe $M_+(z, \theta)$) reste toujours inférieur au module de la composante longitudinale $M_z(z, \theta)$ de la polarisation. Si on s'intéresse au cas particulier où l'aimantation longitudinale est uniforme, alors la composante longitudinale est constante, et l'évolution de la composante transverse obéit à l'équation :

$$\frac{\partial M_+}{\partial t} \text{ Larmor} = i\omega(z) \left\{ M_+(z, \theta) + \frac{a^2(z)}{\eta - 3} (\Delta_z M_+(z, \theta) - \frac{1}{2R^2} \Delta_\theta M_+(z, \theta)) + \frac{4a(z)a'(z)}{\eta - 3} \nabla_z M_+(z, \theta) \right\} \quad (4.25)$$

où

$$\omega(z) = \beta\gamma\mu_0\mu_n n_3 M_z (3 - \eta(z)) \quad (4.26)$$

L'équation 4.25 peut être résolue en cherchant les solutions $M_+(z, \theta)$ sous la forme de modes stationnaires $M_n(z, \theta) \exp(i\Omega_n t)$. Si l'on suppose l'invariance par rotation, on peut séparer les dépendances de M_+ en z et θ , et écrire $M_n(z, \theta) = M_n(z) \Xi(\theta)$. Ces modes vérifient alors l'équation suivante :

$$\begin{aligned} & - a_0^2 \Delta_z M_n(z) + \frac{a_0^2}{a^2(z)} (\eta(z) - 3) \left(\frac{\Omega_n}{\omega(z)} - 1 \right) M_n(z) \\ & - 4a'(z) \frac{a_0^2}{a(z)} \nabla_z M_n(z) = 0 \end{aligned} \quad (4.27)$$

en tout point repéré par les coordonnées (z, θ) . Cette équation apparaît formellement semblable à une équation de Schrödinger à une dimension, où on noterait

$$V(z) = \frac{a_0^2}{a^2(z)} (\eta(z) - 3) \left(\frac{\Omega_n}{3\gamma\mu_0\mu_n n_3 M_z \eta(z)} - 1 \right) \quad (4.28)$$

le "potentiel réduit".

En absence de termes de gradients d'aimantation (ce qui est le cas en particulier si on suppose l'épaisseur de la nappe constante), l'équation se simplifie :

$$-a_0^2 \Delta_z M_n(z) + 3 \left(\frac{\Omega_n}{\omega} - 1 \right) M_n(z) = 0 \quad (4.29)$$

Cette équation est formellement semblable à une équation de Schrödinger où le potentiel serait une fonction constante. On voit qu'il n'y a alors aucun effet de confinement de modes. En particulier, lors de l'application d'un gradient de champ magnétique, le potentiel réduit va "pencher", ce qui aura pour effet de rejeter les modes à l'infini. Un tel modèle simple ne peut donc reproduire la robustesse de la précession vis à vis de l'application de gradients qui est obtenue expérimentalement.

La situation est plus complexe lorsque l'épaisseur de la nappe polarisée n'est plus constante. Il reste à mener une étude numérique détaillée pour divers profils d'épaisseur, mais des études préliminaires semblent montrer que les interactions dipolaires ainsi modélisées ne sont pas non plus susceptibles de stabiliser la précession en présence de gradient de champ magnétique.

Il s'agit là d'une différence significative par rapport à la géométrie quasi unidimensionnelle d'un liquide rempissant un tube en U. Il est probable qu'une modélisation plus élaborée soit requise pour reproduire même qualitativement les effets physiques observés dans notre géométrie expérimentale.

CONCLUSION

Nous avons décrit dans ce mémoire un certain nombre d'expériences, relatives à l'observation d'effets liés à la polarisation nucléaire dans l'hélium-3 liquide. La première de ces expériences, qui prend en compte l'aimantation comme variable thermodynamique supplémentaire dans l'étude des équilibres liquide gaz, a nécessité la mise au point de conditions expérimentales adaptées. Nous avons donc mis en oeuvre et caractérisé un nouveau montage expérimental remplissant les objectifs fixés : refroidir rapidement (moins d'une minute) l'échantillon d'hélium-3, préalablement polarisé par pompage optique à température ambiante, jusqu'à une température de l'ordre de 500 mK, puis stabiliser précisément cette température. Le nouveau cryostat à hélium-3, entièrement construit au laboratoire, remplit tout à fait ces conditions. Il permet de disposer d'échantillons liquides d'hélium-3 à la fois fortement polarisés (plus de 20 %) et stables en température (avec une dérive inférieure à 0.5 mK/min). De plus fortes polarisations (jusqu'à 40 %) devraient pouvoir être obtenues en améliorant les performances du pompage optique.

Pour étudier l'équilibre liquide gaz de l'hélium-3 polarisé, nous avons choisi de nous intéresser à la mesure de la pression de vapeur saturante du liquide. Nous avons donc mis au point et réalisé au laboratoire des jauges capacitives permettant une mesure de très faibles variations de pression (inférieures au mTorr). Ces jauges, prévues pour être utilisées à froid, provoquaient une lente contamination du gaz ; la solution que nous avons adoptée finalement consiste à ne laisser le gaz au contact du capteur de pression (situé à température ambiante) que pendant les mesures. Les conditions expérimentales étaient alors tout à fait adaptées aux mesures de pression de vapeur saturante en fonction de l'aimantation (encore que nous n'ayions pu obtenir, dans nos cellules disposant d'un capteur capacitif, des polarisations aussi élevées que souhaitées). En revanche, nous n'avons pu observer tous les effets attendus lors de la destruction de l'aimantation : la pression de vapeur saturante, qu'on attendait plus faible pour le liquide non polarisé, variait en réalité dans l'autre sens. Cette caractéristique, ainsi que l'ordre de grandeur de la variation (plus faible que celui attendu), ont pu être interprétés comme résultants d'une transformation adiabatique. Nous avons cherché à vérifier cette interprétation en modifiant les conditions expérimentales, mais nous

avons été confrontés à des problèmes de relaxation sur les parois.

Nous avons alors choisi d'explorer une autre voie : celle des solutions diluées d'hélium-3 dans l'hélium-4. Dans de tels échantillons, nous avons pu voir la transformation adiabatique observée dans l'hélium-3 pur, suivie cette fois du retour à l'isotherme. Une étude quantitative doit maintenant être menée afin de voir la dépendance en concentration et température de cette variation isotherme de pression de vapeur saturante, et la raison de cette différence de comportement doit être élucidée.

Une autre voie d'étude de l'hélium-3 liquide polarisé est l'étude des propriétés dynamiques du liquide, et en particulier de son taux de relaxation nucléaire. Une telle étude systématique est en cours au laboratoire sur les mélanges hélium-3/hélium-4. Notre travail, expérience préliminaire sur un tel mélange, a permis de montrer que la détermination précise des grandeurs en jeu (concentration en hélium-3 liquide en particulier) est particulièrement importante.

Enfin, ayant entrevu la grande richesse des spectres des signaux de précession libre qui font suite à une impulsion RMN de petit angle de basculement, nous avons choisi d'observer ces caractéristiques de façon plus systématique. Nous avons étudié l'influence de divers paramètres sur ce système où les couplages dipolaires jouent un rôle important. A l'inverse de systèmes de spins indépendants, l'application de gradients de champ magnétique joue un rôle marginal, tandis que le choix de l'angle de basculement, même très petit, a des conséquences spectaculaires sur la durée de vie des signaux. Un modèle simple, qui avait déjà fait ses preuves dans une cellule de caractéristiques géométriques différentes, ne permet pas d'interpréter nos résultats expérimentaux. Le problème ici semble plus subtil, et il faudra mettre en oeuvre des méthodes plus élaborées pour expliquer toutes ces données expérimentales.

Bibliographie

- [Abragam] A. Abragam, *Principles of Nuclear Magnetism*, Oxford Science Publications, 1961.
- [Aminoff 89] C.G. Aminoff, C. Larat, M. Leduc et F. Laloë, *Rev. Phys. Appl.* **24**, 827 (1989).
- [Barbé 74] R. Barbé, M. Leduc et F. Laloë, *J. Physique* **35**, 699 et 935 (1974).
- [Barranco 87] M. Barranco, A. Polls et S. Stringari, *J. Phys. France* **48**, 911 (1987).
- [Béal-Monod 68] M.T. Béal-Monod, S.A. Ma et D. Fredkin, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 929 (1968).
- [Bigelow 92] N.P. Bigelow, P.J. Nacher et M. Leduc, *J. Phys. France* **2**, 215 (1992).
- [Bonfait 86] G. Bonfait, L. Puech, B. Castaing et D. Thoulouze, *Europhys. Lett.* **1**, 521 (1986).
- [Bouchaud 87] J.P. Bouchaud et C. Lhuillier, *Europhys. Lett.* **3**, 1273 (1987).
- [Buu 98] O. Buu, A.C. Forbes, A.S. van Steenberger, S.A.J. Wieggers, G. Remenyi, L. Puech et P.E. Wolf, *J. Low Temp. Phys.* **110**, 311 (1998).
- [Cagnac] B. Cagnac et J.C. Pebay-Peyroulat, *Physique atomique*, Dunod, 1971.
- [Candela 94] D. Candela, M.E. Hayden et P.J. Nacher, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2587 (1994).
- [Canet 94] D. Canet, *La RMN Concepts et méthodes*, Masson, 1991.
- [Chapman 74] R. Chapman et M.G. Richards, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 18 (1974).
- [Chernikov 97] S.V. Chernikov, J.R. Taylor, N.S. Platonov, V.P. Gapontsev, P.J. Nacher, G. Tastevin, M. Leduc et M.J. Barlow, *Electronics Letters* **33**, 787 (1997).
- [Cohen-Tannoudji] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, *Mécanique Quantique*, Hermann, 1973.
- [Colegrove 63] F.D. Colegrove, L.D. Schearer et G.K. Walters, *Phys. Rev.* **132**, 2561 (1963).

- [Collaudin 86] B. Collaudin et B. Hebral, *Récents progrès en cryotechnique*, Ed. Institut International du froid, Coll. Science et Technique du froid (1986).
- [Conte] R.R. Conte, *Eléments de cryogénie*, Masson, 1970.
- [Cornut 93] M. Cornut, Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble I, 1993.
- [de Bruyn Ouboter 59] R. de Bruyn Ouboter, J.J.M. Beenaker et K.W. Taconis, *Physica* **25**, 1162 (1959).
- [Fitzsimmons 68] W.A. Fitzsimmons, N.F. Lane et G.K. Walters, *Phys. Rev.* **174**, 193 (1968).
- [Goldstein 64] L. Goldstein, *Phys. Rev.* **133**, A52 (1964).
- [Greywall 83] D.S. Greywall, *Phys. Rev. B* **27**, 2747 (1983).
- [Hahn 50] E.L. Hahn, *Phys. Rev.* **80**, 580 (1950).
- [Husa 66] D.L. Husa, D.O. Edwards et J.R. Gaines, *Phys. Lett.* **21**, 28 (1966).
- [Jeener 99] J. Jeener, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1772 (1999).
- [Kerr 62] E.C. Kerr et R.D. Taylor, *Ann. Phys.* **20**, 450 (1962).
- [Kierstead 76] H.A. Kierstead, *J. Low Temp. Phys.* **24**, 497 (1976).
- [Laloë 70] M. Pavlovic et F. Laloë, *J. Phys. France* **31**, 173 (1970); F. Laloë, Thèse de Doctorat d'Etat, Paris, *Ann. Phys. France* **6**, 5 (1971).
- [Landau 70] J. Landau, J.T. Tough, N.R. Brubaker et D.O. Edwards, *Rev. Scien. Instr.* **41**, 444 (1970).
- [Larat 91] C. Larat, Thèse de Doctorat de l'Université de Paris VI, 1991.
- [Lefevre 85] V. Lefevre-Seguin, P.J. Nacher, J. Brossel, W.N. Hardy et F. Laloë, *J. Phys. France* **46**, 1145 (1985).
- [Lhuillier 79] C. Lhuillier et F. Laloë, *J. Phys. France* **40**, 239 (1979).
- [Major 93] J.S. Major et D.F. Welch, *Electronics Letters* **29**, 2121 (1993).
- [Meyerovich] A.E. Meyerovich, *Helium Three Chapter 13*, Elsevier Science Publishers, 1990.
- [Mullin 79] W.J. Mullin, F. Laloë et M.G. Richards, *J. Low Temp. Phys.* **80**, 1 (1990).

- [Nacher 85] P.J. Nacher et M. Leduc, *J. Phys. France* **46**, 2057 (1985).
- [Nacher 87] P.J. Nacher, Thèse de Doctorat d'Etat, Paris, 1987.
- [Nacher 94] P.J. Nacher, M. Cornut et M.E. Hayden, *J. Low Temp. Phys.* **97**, 417 (1994).
- [Nacher 95] P.J. Nacher et E. Stoltz, *J. Low Temp. Phys.* **101**, 311 (1995).
- [Radebaugh 67] R. Radebaugh, NBS Technical Note **362** (1967).
- [Rusby 84] R.L. Rusby et M. Durieux, *Cryogenics* **24**, 363 (1984).
- [Stoltz 96a] E. Stoltz, Thèse de Doctorat de l'Université de Paris VI, 1996.
- [Stoltz 96b] E. Stoltz, B. Villard, M. Meyerhoff et P.J. Nacher, *Appl. Phys. B* **63**, 635 (1996).
- [Stoltz 96c] E. Stoltz, M. Meyerhoff, N. Bigelow, M. Leduc, P.J. Nacher et G. Tastevin, *Appl. Phys. B* **63**, 629 (1996).
- [Stringari 87] S. Stringari, M. Barranco, A. Polls, P.J. Nacher et F. Laloë, *J. Physique* **48**, 1337 (1987).
- [Tastevin 87] G. Tastevin, Thèse de Doctorat de l'Université de Paris VI, 1987.
- [Tastevin 88] G. Tastevin, P.J. Nacher, L. Wiesenfeld, M. Leduc et F. Laloë, *J. Phys. France* **49**, 1 (1988).
- [Tastevin 92a] G. Tastevin, *J. Low Temp. Phys.* , *AC* **89**, 317 (1992).
- [Tastevin 92b] G. Tastevin, *J. Low Temp. Phys.* **89**, 669 (1992).
- [Tastevin 94] G. Tastevin, *Physica B* **194**, 911 (1994).
- [Tastevin 96] G. Tastevin, B. Villard et P.J. Nacher, *Czech. J. Phys.* **46**, 237 (1996).
- [Thompson 70] J.R. Thompson, Jr., H. Ramm, J.F. Jarvis et H. Meyer, *J. Low Temp. Phys.* **2**, 521 (1970).
- [Vollhardt 84] D. Vollhardt, *Rev. Mod. Phys.* **56**, 99 (1984).
- [Wiegers 91] S.A.J. Wiegers, P.E. Wolf et L. Puech, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2895 (1991).

Resumé : L'hélium-3 liquide polarisé est préparé par pompage optique laser de l'hélium-3 pur dans un champ magnétique faible et à température ambiante, suivi d'une liquéfaction rapide de l'échantillon polarisé. La mise en oeuvre d'un nouveau cryostat à hélium-3 nous a permis d'obtenir des échantillons d'hélium-3 liquide dont le taux de polarisation atteint 25 %, à des températures de l'ordre de 0.5 K très bien stabilisées. Cette stabilité nous a permis d'étudier l'influence de la polarisation nucléaire sur l'équilibre liquide-vapeur, et en particulier sur la pression de vapeur saturante. Nous avons développé dans ce but des capteurs capacitifs très sensibles. Une estimation (limitée à l'ordre le plus bas en M^2) des effets attendus suite à une brutale destruction de l'aimantation M est menée. Ces effets sont expérimentalement observés dans les mélanges hélium-3/hélium-4 ; dans l'hélium-3 pur, seule une augmentation transitoire et faible de la pression a pu être observée. Nous décrivons ensuite une expérience préliminaire visant à déterminer le temps de relaxation longitudinale T_1 dans les mélanges isotopes. La relaxation sur les parois de la cellule est efficacement réduite par l'utilisation d'un enduit de césium et des temps de l'ordre de 20 minutes sont observés. Nous nous sommes intéressés plus particulièrement à la détermination de la concentration en hélium-3 en phase liquide. Enfin, nous étudions expérimentalement l'effet du champ dipolaire sur l'évolution de l'aimantation transverse dans nos échantillons liquides fortement aimantés. Nous observons la précession libre de l'aimantation après une impulsion RMN et analysons de façon détaillée son temps d'amortissement en fonction de divers paramètres. Ce temps varie de façon spectaculaire avec l'angle de basculement, effet qui pourrait être lié à des instabilités dynamiques de RMN.

Mots clés : basses températures, hélium-3 liquide polarisé, pression de vapeur saturante, capteur capacitif, temps de relaxation longitudinale, mélanges hélium-3/hélium-4, champ dipolaire, instabilités RMN.

Abstract : Spin-polarized liquid helium-3 is prepared by laser optical pumping in low magnetic field and at room temperature, prior to fast liquefaction of the polarized sample. The use of a new helium-3 cryostat enabled us to obtain liquid helium-3 with polarization rates up to 25 % at well-stabilized temperatures (around 0.5 K). We could thereby study the effect of nuclear polarization on liquid-vapour equilibrium, and particularly on the saturated vapour pressure. Very sensitive capacitive gauges were developed. We estimated (to first order in M^2) the expected effects when the polarization M is suddenly destroyed. These effects were experimentally observed in helium-3/helium-4 mixtures ; in pure helium-3, only a transient increase in pressure has been recorded. We then describe in a third part a preliminary experiment which aimed at determining the longitudinal relaxation time T_1 in mixtures. Relaxation on the walls is efficiently reduced by a cesium coating, and T_1 s of order 20 minutes were observed. A careful determination of the helium-3 concentration in the liquid phase was made. Finally, we studied the effects of dipolar field on transverse polarisation decay in our strongly polarized samples. We observed the free precession of polarization after a NMR pulse, and analysed in detail its decay time constant as a fonction of different parameters. This time constant drastically varied with the tipping angle, an effect which could be linked to NMR dynamical instabilities.