



**HAL**  
open science

# L'hélium-3 polarisé gazeux en-dessous d'un kelvin: orientation par pompage optique, relaxation sur une paroi recouverte d'hélium-4

Marc Himbert

► **To cite this version:**

Marc Himbert. L'hélium-3 polarisé gazeux en-dessous d'un kelvin: orientation par pompage optique, relaxation sur une paroi recouverte d'hélium-4. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1987. Français. NNT : . tel-00011860

**HAL Id: tel-00011860**

**<https://theses.hal.science/tel-00011860>**

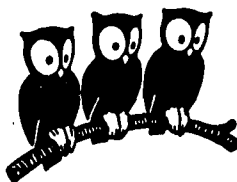
Submitted on 9 Mar 2006

**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.

UNIVERSITÉ DE PARIS

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE  
DE L'ÉCOLE NORMALE  
SUPÉRIEURE



THÈSE DE DOCTORAT D'ÉTAT  
ès Sciences Physiques  
présentée  
à l'Université Pierre et Marie Curie  
(Paris VI)

par

Marc HIMBERT

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse :

"L'HELIUM-TROIS POLARISE GAZEUX EN DESSOUS D'UN KELVIN :  
■ ORIENTATION PAR POMPAGE OPTIQUE,  
■ RELAXATION SUR UNE PAROI RECOUVERTE D'HELIUM-QUATRE."

Soutenue le 4 Juin 1987 devant le jury composé de :

M. J. BROSSEL	)	Président
M. B. CAGNAC	)	
M. J. DUPONT-ROC	)	
M. J.-P. LAHEURTE	)	Examineurs
M. F. LALOE	)	
M. A. LANDESMAN	)	
M. M. PAPOULAR	)	

Mots-clés :

hélium-trois polarisé  
surface  
spin nucléaire  
pompage optique  
film d'hélium-quatre  
relaxation magnétique  
Résonance Magnétique Nucléaire  
basse température

T H E S E   D E   D O C T O R A T   D ' E T A T

ès Sciences Physiques

présentée

à l'Université Pierre et Marie Curie  
(Paris VI)

par

Marc HIMBERT

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse :

"L'hélium-trois polarisé gazeux en-dessous d'un kelvin :  
■ orientation par pompage optique,  
■ relaxation sur une paroi recouverte d'hélium-quatre".

Soutenue le 4 Juin 1987 devant le jury composé de :

M. J. BROSSEL	)	Président
M. J. DUPONT-ROC	)	Directeur de thèse
M. B. CAGNAC	)	
M. J.-P. LAHEURTE	)	
M. F. LALOE	)	Examineurs
M. A. LANDESMAN	)	
M. M. PAPOULAR	)	

*Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale  
Supérieure, 24 rue Lhomond, 75231 PARIS Cedex 05, France.*

“ — On ne connaît que les choses que  
l'on apprivoise , dit le renard ... ”

*Antoine de Saint-Exupéry,  
" Le Petit Prince "*

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué pendant les années 1982 → 1986 au laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure (\*) .

C'est à Jacques DUPONT-ROC que je dois l'essentiel de l'enrichissement que m'apporta cette thèse . Malgré ses responsabilités croissantes, il a guidé pas à pas nos expériences sur la voie des résultats positifs , orienté peu à peu nos réflexions vers une interprétation cohérente ; il m'a enseigné par l'exemple les vertus de la méthode, de l'esprit critique, du sens de la mesure ; il m'a révélé l'efficacité et les limites de l'obstination comme de l'enthousiasme.

Je lui suis tout particulièrement reconnaissant pour son infinie patience à mon égard, et pour la bienveillance que dans tous les domaines il m'a jour après jour témoignée .

Je souhaite également évoquer dans ces lignes la mémoire de mon père Jean HIMBERT : ingénieur à Bellevue, puis à Villetaneuse, il assista au cours de sa carrière à bien des soutenances... Combien j'aurais aimé qu'il pût voir aujourd'hui l'achèvement de ma propre thèse.

---

(\*) Unité de Recherche associée au Centre National de la Recherche Scientifique : UA n° 18.

J'ai choisi de ne pas mentionner d'autre nom hors du texte scientifique. En toute simplicité, j'exprime ma très sincère reconnaissance :

- à ceux auxquels revient l'initiative de ces recherches, à celles et ceux qui les ont défrichées et soutenues sans relâche ;

- aux "héliumistes" français et étrangers qui m'ont initié aux mystères du "bulk" et des films d'hélium ;

- à toutes celles et tous ceux qui, au cours des discussions quotidiennes comme à l'occasion de la rédaction ou de l'examen de ce mémoire, m'ont fait bénéficier de leur expérience, leurs critiques, leurs conseils avisés ;

- à celles et ceux qui, par leur compétence, leur efficacité, leur disponibilité et leur gentillesse rendent possible et agréable au sein du Laboratoire et du Département de Physique de l'Ecole ce qui de prime abord paraît irréaliste ou trop contraignant ;

- à celles enfin dont j'ai, pendant ces années, partagé la vie ou l'éveil à la vie, les projets, les renoncements, mais aussi les joies .

Que chacun, malgré l'anonymat, veuille bien lire dans cet avant-propos l'expression d'une gratitude aussi vive que l'est l'émotion qui m'étreint en rédigeant ces quelques lignes à son intention .

## INTRODUCTION

Depuis une dizaine d'années, les gaz atomiques légers polarisés à basse température ont suscité un grand intérêt [SPOQS, 1980]. Parmi eux,  $^3\text{He}\uparrow$  a la particularité de se comporter comme un vrai fermion, contrairement à H ou D dont la statistique dépend de l'évolution des spins électroniques et nucléaires dans le processus étudié.

Le comportement macroscopique de ces "fluides quantiques" est influencé par l'indiscernabilité totale des atomes, qui survient lorsque leurs spins sont alignés. Pour l'hélium 3, les modifications des caractéristiques des collisions binaires dues à l'application du principe de Pauli entre atomes polarisés provoquent même en phase gazeuse diluée l'apparition d'effets quantiques affectant notablement certaines propriétés macroscopiques du gaz (la viscosité, la conduction de la chaleur, la diffusion de spin...) [Lhuillier et Laloë, 1979]. Ces effets sont particulièrement spectaculaires à basse température : la longueur d'onde de de Broglie et la portée du potentiel d'interaction de paire entre deux atomes sont alors du même ordre de grandeur. Certains d'entre eux ont déjà été mis en évidence expérimentalement [Nacher et al., 1984] ou le seront très prochainement [Leduc et al., 1987].

Leur étude expérimentale requiert la préparation préalable du gaz froid polarisé. Deux techniques ont été mises en oeuvre pour conférer aux atomes  $^3\text{He}$  des moments magnétiques nucléaires parallèles : l'alignement forcé dans la direction d'un champ magnétique intense à très basse température (ce procédé convient mieux à  $^3\text{He}$  solide) ; le pompage optique de la vapeur [Colegrove et al., 1963] réalisé directement à basse température, ou bien réalisé à 300K et accompagné du transfert à basse température des atomes orientés. Ce dernier procédé place le gaz dans



une situation hors d'équilibre. Il est alors nécessaire, pour conserver l'orientation obtenue pendant un temps suffisamment long, de s'affranchir autant que possible des processus de relaxation qui tendent à ramener le système orienté vers sa situation d'équilibre pour laquelle la polarisation est quasi-nulle. Ces mécanismes de relaxation limitent bien sûr l'efficacité du processus d'orientation, de sorte que les deux problèmes posés (orientation, conservation du système orienté) sont étroitement liés.

Dans un échantillon gazeux dilué, c'est au voisinage de la paroi du récipient contenant les atomes que la relaxation est la plus efficace : un atome donné, en effet, y subit un champ magnétique local dont les inhomogénéités spatiales ou temporelles désorientent son moment magnétique nucléaire. Il peut être piégé au voisinage immédiat de la paroi dans le puits de potentiel associé aux forces dipolaires d'interaction entre un  $^3\text{He}$  et les constituants du récipient, c'est-à-dire aux forces de Van der Waals ; l'effet des inhomogénéités du champ magnétique s'exerce alors plus efficacement. L'équilibre dynamique entre les atomes de la phase gazeuse et les atomes adsorbés sur la paroi, qui seuls subissent le processus de désorientation, se traduit par un échange rapide entre phases provoquant la relaxation de l'ensemble de l'échantillon. Or la densité d'atomes adsorbés dépend exponentiellement de la température. Le temps de séjour moyen d'un atome sur la paroi varie de même, en suivant une loi de Frenkel. Pour un substrat peu liant, le paramètre caractéristique est l'énergie d'adsorption  $E_{\text{ads}}$  d'un atome : plus  $|E_{\text{ads}}|$  est faible, moins l'adsorption est efficace et plus on peut espérer atteindre, avec une polarisation nucléaire élevée, de basses températures.

Pour diminuer l'énergie d'adsorption, on intercale entre le substrat constituant la paroi et le gaz un enduit composé d'un corps peu attractif pour l'hélium ; il convient évidemment que ce corps soit non magnétique. En fait, les composants atomiques ou moléculaires peu attractifs pour l'hélium sont également peu attractifs pour eux-mêmes ; ce sont les

éléments de masse molaire très faible. L'enduit correspondant ne se forme généralement lui-même qu'à basse température : la mise en oeuvre de cette technique d'utilisation d' "enduits cryogéniques" a été faite avec succès dans différentes gammes de température, associées chacune à un enduit particulier, pour les gaz rares solidifiés (Argon, Néon), puis l'hydrogène solide [Barbé et al., 1975] [Chapman et Bloom, 1976]. V. Lefevre [1984] a ainsi pu conserver à 1,5K un échantillon orienté pendant plusieurs minutes dans une cellule aux parois recouvertes d'un enduit d'hydrogène.

Parmi les corps stables moins attractifs pour l'hélium que  $H_2$ , il ne reste guère que l'hélium lui-même. Nous décrivons dans ce mémoire comment l'utilisation d'un film de  $^4He$  déposé sur la paroi a permis d'étendre les résultats précédents à plus basse température, et d'obtenir dans une cellule un gaz de  $^3He$  orienté à 0,5K. L'utilisation de tels films s'était avérée efficace pour l'étude d'un autre système polarisé,  $H\uparrow$  [Silvera et Walraven, 1980 ; Morrow et al., 1981 ; Cline et al., 1981]. L'isotope  $^4He$ , plus lourd que l'isotope  $^3He$ , se condense à plus haute température. On peut donc réaliser pour  $^3He$  gazeux un enduit de  $^4He$ . Néanmoins, aux faibles pressions, la situation s'écarte des enduits cryogéniques solides habituels, car le film obtenu reste liquide même aux plus basses températures.

L'emploi d'un enduit liquide superfluide comme  $^4He$  pour diminuer la relaxation sur la paroi présente a priori de nombreux avantages : le film mouille (au moins en principe) le substrat ; il présente aux atomes du gaz une surface lisse et régulière, exempte de défauts et d'impuretés, sur laquelle on possède de nombreux renseignements. Cette surface est peu affectée par les agressions variées qu'elle peut subir, par exemple du fait de l'entretien dans le gaz d'une décharge pendant le cycle de pompage optique, dans la mesure où elle est autoréparatrice. En revanche, l'approche des atomes  $^3He$  du voisinage de la paroi lorsque le film liquide est présent ne peut être analysée aussi simplement que dans le cas d'un enduit solide. Un atome  $^3He$  peut, certes, être adsorbé à la surface du film ; mais il peut aussi être dissous à l'intérieur même du liquide. Il n'est en fait

repoussé que des toutes premières couches du film, au sein desquelles la pression, à cause de l'attraction par le substrat, est plus élevée. La valeur de l'énergie d'adsorption n'est donc pas le seul paramètre pertinent à considérer.

La physique des mélanges  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  doit être prise en compte. Elle est complexe, mais assez bien connue [Ebner et Edwards, 1970] lorsqu'il s'agit de phases massives. D'ailleurs des expériences portant sur l'orientation nucléaire des atomes  $^3\text{He}$  dissous dans  $^4\text{He}$  liquide massif ont été effectuées [Taber, 1978]. Pour les films de mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ , de très nombreuses études expérimentales sont actuellement en cours. Elles portent sur la structure des mélanges [Ellis et Hallock, 1984 ; Laheurte et al., 1981], les propriétés de la phase de  $^3\text{He}$  adsorbée en surface [Bhattacharyya et Gasparini, 1982 et ref. in], etc. Ces études s'accompagnent de descriptions théoriques de plus en plus élaborées de la situation individuelle d'un atome  $^3\text{He}$  vis-à-vis d'un film de  $^4\text{He}$  [Sherrill et Edwards, 1985 ; Krotschek, 1985].

A cet égard, les mesures des taux de relaxation constituent une expérience sensible aux caractéristiques statiques et dynamiques de la situation des atomes  $^3\text{He}$  en présence d'un film de  $^4\text{He}$ . Les mesures concernant les mélanges très dilués en  $^3\text{He}$  -- notre cas expérimental -- sont rares.  $^3\text{He}$  orienté apparaît alors comme une sonde nouvelle des propriétés structurales des films de mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ . De plus, un prolongement de nos expériences à plus basse température, dans une situation où les interactions entre atomes adsorbés dans ou sur le film jouent un rôle, pourraient constituer un voie d'accès aux propriétés de  $^3\text{He}$  dans le film  $^4\text{He}$  complémentaire des approches précédemment citées. Mais il est nécessaire pour cela que les mécanismes précis pilotant la relaxation de l'orientation soient au préalable compris et contrôlés.

Le plan de ce mémoire correspond aux deux motivations que nous venons d'évoquer : préparer et conserver  $^3\text{He}\uparrow$  à 0,5K ; préciser la situation de  $^3\text{He}$  en phase adsorbée et les mécanismes de relaxation.

■ Le chapitre I présente la technique expérimentale employée et les résultats caractéristiques obtenus, en ce qui concerne le taux d'orientation réalisé et le temps de relaxation de l'orientation. Ceux-ci montrent que le dépôt de quelques couches atomiques de  $^4\text{He}$  sur les parois de nos cellules permet d'obtenir un échantillon gazeux de densité  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  orienté à quelques pour cent et de le conserver pendant plusieurs dizaines de minutes entre 1,1K et 0,5K (la limitation vers les basses températures semble provenir seulement des contraintes cryogéniques de nos expériences). Ce chapitre peut être lu de façon autonome et indépendante.

■ Le chapitre II est consacré à l'étude du temps de relaxation  $T_2$  de l'orientation transversale.  $T_2$  est lié à l'inhomogénéité du champ magnétique statique appliqué sur la cellule ; sa détermination donne accès au coefficient de diffusion de l'orientation dans la phase gazeuse. Son étude apporte ainsi quelques précisions expérimentales concernant l'évolution de la phase gazeuse de nos échantillons avec la température ; elle permet en particulier de suivre la condensation de l'enduit de  $^4\text{He}$ . Elle a également permis la mesure des coefficients de diffusion du spin dans  $^3\text{He}$  et de  $^3\text{He}$  dans  $^4\text{He}$  gazeux, entre 1K et 0,6K, domaine de température inexploré jusqu'à présent.

■ Le but du chapitre III est de rassembler les éléments relatifs à l'interaction entre le film de  $^4\text{He}$  et la paroi de la cellule. Différents modèles décrivant la constitution progressive de ce film lorsqu'on abaisse la température y sont présentés et discutés.

■ Au chapitre IV, on considère la situation d'un atome  $^3\text{He}$  dans le film précédent ; on étudie la densité et la dynamique des  $^3\text{He}$  aux divers endroits accessibles du film, à partir des résultats expérimentaux obtenus par d'autres auteurs et de

différents modèles théoriques.

■ On dispose ainsi des éléments nécessaires pour, au chapitre V, discuter l'ensemble de nos résultats expérimentaux et proposer quelques modèles explicatifs des processus de relaxation de l'orientation.

CHAPITRE I

REALISATION EXPERIMENTALE DU POMPAGE OPTIQUE

DE  $^3\text{He}$  EN-DESSOUS DE 1K

Ce chapitre présente le dispositif expérimental avec lequel a été réalisée l'orientation nucléaire d'un gaz de  $^3\text{He}$  par pompage optique en-dessous de 1K, et les caractéristiques essentielles du comportement des enduits de  $^4\text{He}$  superfluide qui ont rendu cette expérience possible. Il peut être lu de façon autonome. Son but est de montrer que le dépôt de quelques couches de  $^4\text{He}$  sur la paroi des cellules permet effectivement de chasser la plus grande partie des atomes  $^3\text{He}$  du voisinage de celle-ci, et de diminuer notablement l'efficacité de la relaxation de l'orientation sur la paroi. Un tel enduit est assez résistant pour supporter une décharge faible dans le gaz, et une orientation nucléaire des atomes  $^3\text{He}$ , de l'ordre de quelques pour cent, peut alors être obtenue par pompage optique direct à basse température. Vers 0,5K cette orientation peut être conservée pendant plusieurs minutes.

Les principaux paramètres du système physique étudié, les conditions expérimentales, les performances de l'appareillage utilisé, sont décrits tout d'abord (I.A). Les mesures du temps de relaxation  $T_2$  de l'aimantation transverse de l'échantillon sont présentées au I.B. Ce temps est déterminé essentiellement par la diffusion dans le gaz, et son étude permet de suivre la condensation progressive de l'hélium-4 sur la paroi lorsque la température est abaissée. Cette condensation progressive est à la base de l'interprétation des mesures du temps de relaxation  $T_1$  de l'orientation nucléaire longitudinale, exposées au I.C.

## I.A - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL

## I.A.1 - La cellule et son revêtement interne

I.A.1.a - Préparation de l'échantillon

Pour obtenir une vapeur de  $^3\text{He}$  presque pur, tout en ayant condensé sur les parois du récipient contenant le gaz un film de  $^4\text{He}$ , il suffit de travailler à basse température, en-dessous de 0,8K. La tension de vapeur de  $^3\text{He}$ , atome plus léger, est alors notablement plus grande que celle de  $^4\text{He}$  : le rapport entre ces deux quantités dépasse deux ordres de grandeur (voir figure I-1).

Néanmoins, pour réaliser de façon efficace l'orientation du gaz  $^3\text{He}$  par pompage optique, il est nécessaire de travailler avec une densité gazeuse assez bien définie [Nacher et al., 1982] correspondant à une pression de quelques torr à 300K (\*) ; il est donc vain de refroidir en-dessous de 0,3K car la tension de vapeur de  $^3\text{He}$  devient trop faible.

La taille de la cellule contenant l'échantillon gazeux résulte d'un compromis : le temps  $T_2$  de relaxation transversale devient trop court lorsqu'on augmente celle-ci, à cause des inhomogénéités du champ magnétique ; mais il est difficile voire impossible d'entretenir une décharge faible dans une cellule de petite taille, à cause du rapport défavorable entre la surface et le volume. Nous avons utilisé des bulbes à peu près sphériques, soufflés dans du pyrex, de diamètre extérieur  $\simeq 3.10^{-2}\text{m}$ , d'épaisseur de paroi proche de  $7.10^{-4}\text{m}$ . Le volume du gaz étudié est donc environ  $11.10^{-6}\text{m}^3$  ( $11\text{ cm}^3$ ).

---

(\*) Le "torr à 300K" est une unité de densité volumique ; elle correspond à la densité qui est celle du gaz parfait, placé à 300K, dont la pression égale 1 torr, soit 133,3 Pa. Ainsi,  $1\text{ "torr à 300K"} = 3,22.10^{22}\text{ m}^{-3}$ .

---



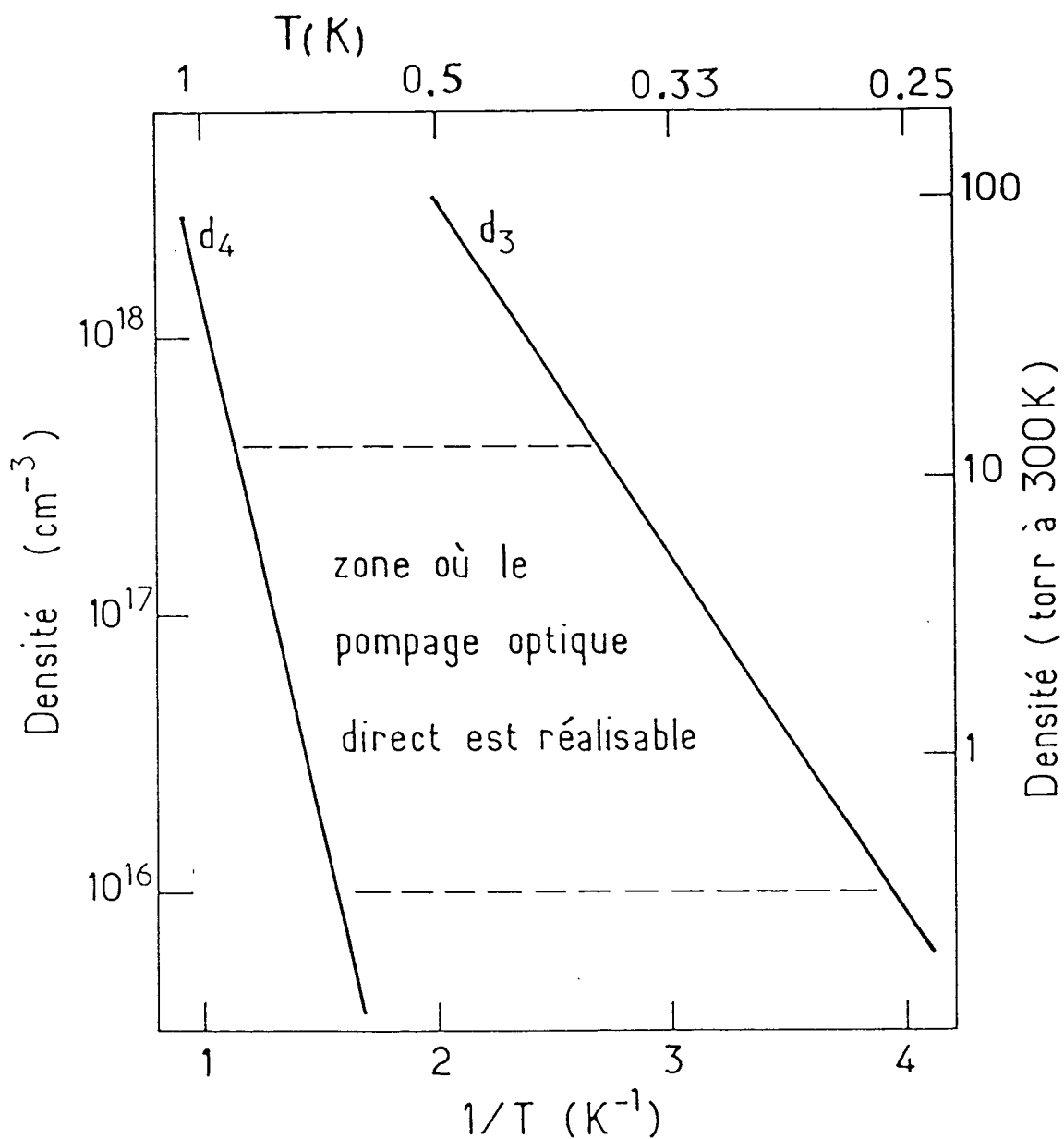


Figure I-1 : Densité de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  en-dessous de  $1\text{K}$  [d'après Durieux et Rusby, 1983].

Ces cellules sont remplies à température ambiante avec le gaz  $^3\text{He}$  et les gaz qui constitueront le revêtement intérieur à basse température, puis scellées. Après scellement, la quantité d'atomes de chaque espèce présente à l'intérieur demeure INVARIABLE. La pression  $p_3$  de remplissage en  $^3\text{He}$  est de quelques torrs (1 à 8 dans nos expériences) ; la pression  $p_4$  de remplissage en  $^4\text{He}$  également : une densité de 1 torr à 300K dans la cellule permet en effet de former sur la paroi un film de  $^4\text{He}$  épais d'environ 18 couches atomiques. Il est inutile d'augmenter cette quantité au-delà d'une certaine valeur : la gravité limite l'épaisseur du film de  $^4\text{He}$  sur la partie supérieure de la surface interne de la cellule à environ 50 couches ; l'hélium supplémentaire ne contribuerait qu'à former une flaque au fond du récipient (voir chapitre III). De plus, afin d'éloigner davantage les atomes  $^3\text{He}$  de la paroi de verre à basse température, on introduit quelques torrs d'hydrogène moléculaire au moment du remplissage. On montrera au chapitre V que la présence d'un sous-enduit d'hydrogène épais de quelques couches, condensé sous le film de  $^4\text{He}$ , n'est pas indispensable mais permet cependant d'allonger le temps  $T_1$  de relaxation longitudinale.

Les très soigneuses procédures de soufflage, nettoyage, remplissage et scellement des cellules, mises au point par J. Brossel et V. Lefevre au cours des expériences réalisées à plus haute température sur des échantillons analogues contenus dans des cellules revêtues d'enduits d'hydrogène solide, ont également été employées dans ce travail ; toutes les cellules étudiées ont été remplies par J. Brossel à une exception près : la cellule testée conjointement par nous-mêmes et par l'équipe de M.G. Richards [Lusher, 1985] a été préparée à l'Université de Sussex. Les procédures utilisées pour toutes les autres cellules ont été décrites en détail précédemment [Lefevre, 1984 ; Lefevre et al., 1985].

Il aurait pu sembler plus commode de changer à volonté la densité des gaz de l'échantillon étudié, en utilisant une géométrie ouverte : la cellule serait en permanence reliée à un banc de pompage et de remplissage. D'autre part, mettre en oeuvre la technique des cellules doubles scellées, inaugurée par Mac Adams

[1968], aurait pu nous affranchir des contraintes et de la médiocre efficacité du pompage optique à basse température : cette technique s'est avérée efficace pour obtenir une densité importante de gaz  $^3\text{He}$  polarisé, puisqu'elle permet de préparer un échantillon de gaz  $^3\text{He}$ , de densité  $10^{24}\text{m}^{-3}$ , polarisé nucléairement à 50% à une température de 2K [Leduc et al., 1984]. Mais pour chacun de ces deux types de cellules, l'existence inévitable de gradients de température, associée à une géométrie mal définie, empêche de connaître avec précision les conditions dans lesquelles se forment les enduits au voisinage des parois ; le contrôle de la densité des gaz est également difficile dans ces deux cas.

#### I.A.1.b - Un exemple caractéristique

La cellule typique choisie pour illustrer ce chapitre a été remplie avec les pressions suivantes à 300K :

$$\begin{aligned} \text{H}_2 &: p_2 = 1,50 \text{ torr} \\ ^3\text{He} &: p_3 = 1,95 \text{ torr} \\ ^4\text{He} &: p_4 = 2,02 \text{ torr} \end{aligned}$$

Il faut mentionner que la cellule contient vraisemblablement des traces d'autres gaz : azote, eau, néon, etc... Quand la température est abaissée, les impuretés plus lourdes que  $\text{H}_2$  se condensent sur la paroi ; vers 10K environ, c'est au tour de l'hydrogène : celui-ci forme sur la surface intérieure un enduit solide. Si on suppose, pour simplifier, que la paroi est parfaitement lisse et sphérique, et que la croissance est parfaitement régulière (\*), la valeur de  $p_2$  permet la formation d'un enduit de  $\text{H}_2$  d'une épaisseur  $e_2$  égale à 25 couches moléculaires, soit  $e_2 \simeq 80 \text{ \AA}$  environ.

---

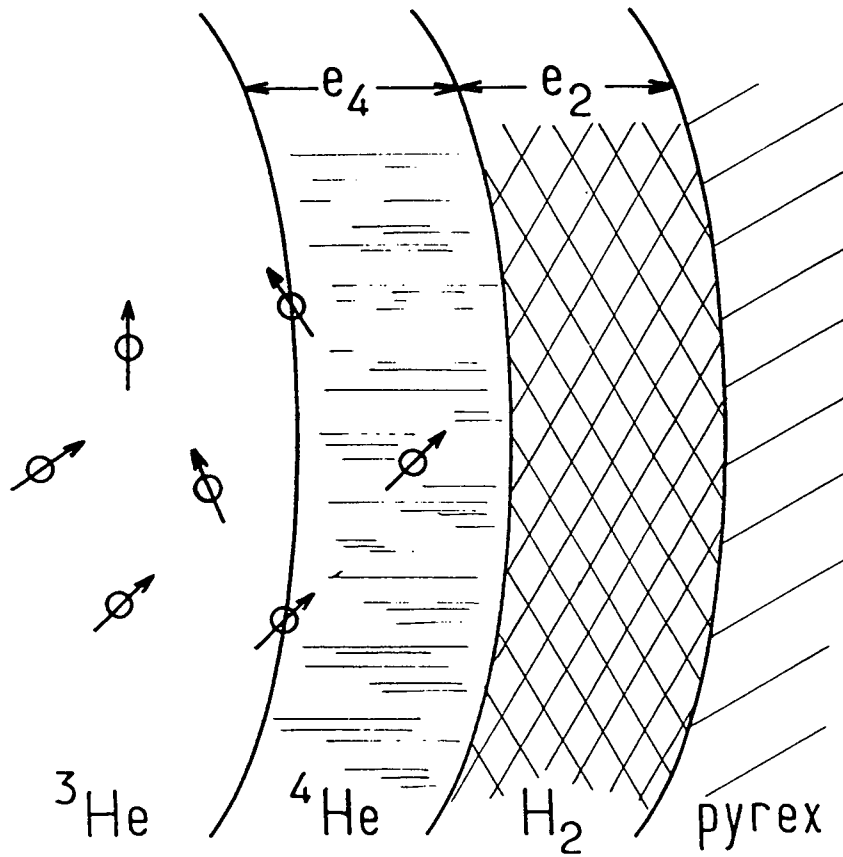
(\*) Cette hypothèse n'a d'autre but que de fixer quelques ordres de grandeur ; il est probable que l'enduit n'atteint pas cette épaisseur en tout point (voir § III.A.2.b).

---

La phase adsorbée de l'hélium sur l'enduit d'hydrogène, constituée à haute température de quelques atomes isolés, forme vers 1,35K une couche complète. Un paramètre important de l'enduit de  $^4\text{He}$  est la température  $T_0$  à laquelle la densité du gaz de  $^4\text{He}$  dans la cellule deviendrait saturante en l'absence d'adsorption. Il vaut ici  $T_0 = 0,75\text{K}$ . Lorsqu'on atteint le voisinage de  $T_0$ , le film adsorbé s'épaissit rapidement. A  $T = 0,5\text{K}$ , presque tout  $^4\text{He}$  est condensé (figure I-2), et forme au-dessus de l'enduit d'hydrogène un film liquide épais. Si ce film était uniforme, il aurait une épaisseur  $e_4$  de 37 couches atomiques, soit  $e_4 \simeq 130 \text{ \AA}$ . La phase gazeuse contient essentiellement tout le gaz  $^3\text{He}$  introduit au remplissage : à 0,5K, la densité de celui-ci ne représente que 2% de la densité de vapeur saturante ; la densité de  $^4\text{He}$  en phase vapeur est seulement  $10^{-2}$  torr à 300K ;  $^4\text{He}$  représente donc 0,5% de la phase gazeuse.

La situation au voisinage de la paroi, à basse température, est certainement assez différente de ce que suggère la figure I-2 : la surface, les enduits sont beaucoup moins réguliers. Toutefois la reproductibilité de nos mesures, d'une mise en oeuvre du pompage optique à l'autre, d'un jour sur l'autre, d'un refroidissement à l'autre, indique que le voisinage de la paroi change peu en ce qui concerne les éléments influant sur la relaxation des atomes  $^3\text{He}$ .

En fait, les atomes  $^3\text{He}$  ne sont pas tous en phase gazeuse. Une petite fraction d'entre eux peut occuper l'état lié que voit un  $^3\text{He}$  à la surface d'un film de  $^4\text{He}$ . En prenant  $-5\text{K}$  [Edwards et Saam, 1978] comme énergie de liaison dans cet état (c'est la valeur mesurée sur la surface libre du liquide), la fraction d'atomes adsorbés à la surface du film à 0,5K est  $6.10^{-3}$  : cela représente environ un quart de monocouche complète sur le film. D'autres atomes sont dissous à l'intérieur du film lui-même. En effet,  $^3\text{He}$  est soluble dans  $^4\text{He}$  massif, avec une énergie de liaison de  $-2,8\text{K}$  [Seligman et al., 1969]. Dans le cas particulier envisagé ici, en traitant le film comme un liquide massif, la fraction d'atomes  $^3\text{He}$  dissous peut être estimée à  $2.10^{-4}$  à 0,5K. Cela représente 30 fois moins d'atomes qu'à la surface du film. Mais cet ordre de grandeur grossier ne prend pas



*Figure I-2* : Représentation schématique des enduits au voisinage de la paroi vers  $T = 0,5\text{K}$ .

en compte les modifications qui peuvent se produire dans le film au voisinage immédiat de la paroi d'hydrogène ou de pyrex. L'attraction due au substrat tend à augmenter la densité locale de  $^4\text{He}$ , ce qui est défavorable à la dissolution de  $^3\text{He}$  [Ebner et Edwards, 1970]. Les atomes  $^3\text{He}$  sont donc en fait fortement défavorisés dans les toutes premières couches de  $^4\text{He}$ . L'équilibre entre les populations de  $^3\text{He}$  dans chacune de ces situations est fixé par la thermodynamique. La relaxation de l'orientation globale de l'échantillon résulte des interactions désorientatrices que subissent les atomes dans chacune de ces situations et des échanges permanents qui existent entre ces populations.

Nous reviendrons en détail sur ces différents points aux chapitres IV et V.

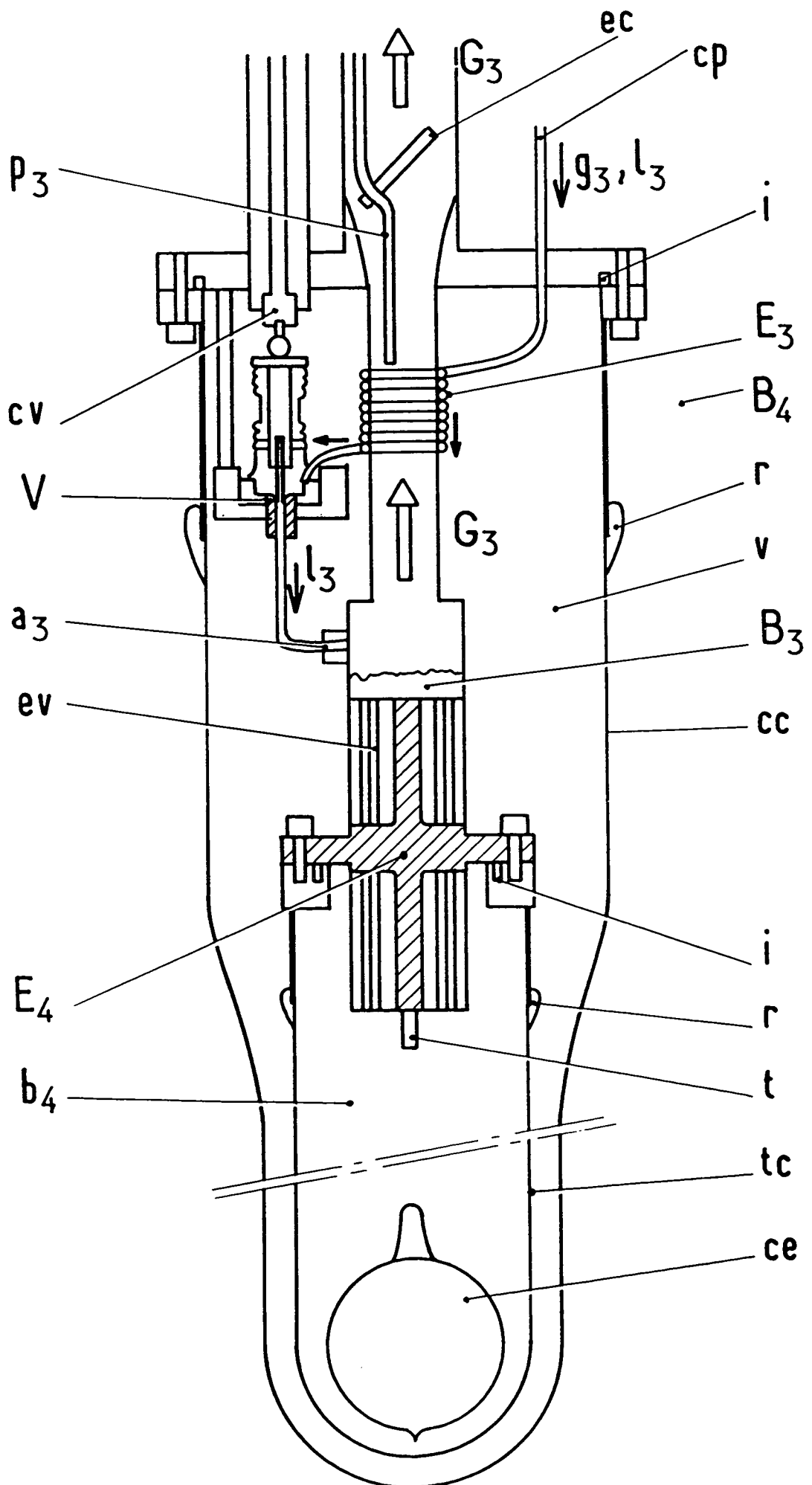
## I.A.2 - L'appareillage cryogénique

### I.A.2.a - Eléments du montage cryogénique

Le domaine de température considéré ( $0,8\text{K} \leftrightarrow 0,3\text{K}$ ) est accessible à l'aide des réfrigérateurs à  $^3\text{He}$ . Les contraintes propres à ces expériences imposent cependant la réalisation d'un appareillage cryogénique avec accès optique et exempt, dans le voisinage immédiat de l'échantillon, de matériaux magnétiques. De plus, le réfrigérateur doit pouvoir absorber la puissance dissipée par la décharge pendant la phase de pompage optique : celle-ci est de l'ordre de quelques milliwatts. Enfin, son inertie thermique ne doit pas être trop importante : il faut se placer à la température désirée, après la phase de pompage optique, en un temps court devant le temps de relaxation de l'orientation.

Le montage utilisé comprend un cryostat à  $^4\text{He}$  optique, en pyrex argenté, d'une contenance de 6 litres. Il est placé dans une garde d'azote liquide. Le bain de  $^4\text{He}$  peut être pompé, de manière à atteindre  $1,5\text{K}$ . Un réfrigérateur à  $^3\text{He}$ , autonome, est plongé dans le bain superfluide. Il s'agit d'un système métallique classique, issu d'un montage décrit et utilisé précédemment [Lezama, 1981, Himbert et al., 1985]. Il est doté d'une réinjec-

*Figure I-3 : Le réfrigérateur à  $^3\text{He}$  : schéma simplifié de la partie située à basse température (échelle 0,7). L'ensemble est plongé dans le bain ( $B_4$ ) du cryostat à  $^4\text{He}$  à 1,55K. Le gaz  $^3\text{He}$  ( $g_3$ ), liquéfié dans le capillaire ( $cp$ ) ayant serpenté dans ( $B_4$ ), est thermalisé aux gaz de pompage ( $G_3$ ) par l'échangeur ( $E_3$ ), puis détendu dans la vanne ( $V$ ). Le système de commande ( $cv$ ) assure le réglage fin de ( $V$ ) depuis l'extérieur du montage. Le liquide  $^3\text{He}$  froid ( $l_3$ ) parvient par l'accès ( $a_3$ ) au bain ( $B_3$ ) contenu dans l'évaporateur (év). La pression dans celui-ci est mesurée à l'extrémité chaude du capillaire ( $p_3$ ). L'échangeur thermique en cuivre ( $E_4$ ) assure le refroidissement du bain secondaire de  $^4\text{He}$  ( $b_4$ ), contenu dans le tour de cellule ( $tc$ ), qui thermalise la cellule ( $ce$ ). Le système de remplissage de ( $b_4$ ) n'est pas représenté. L'isolement d'avec le bain à 1,55K est assuré par la présence du vide ( $v$ ) que délimite le contre-cryostat ( $cc$ ). La température est mesurée par la sonde au Germanium ( $t$ ) immergée dans ( $b_4$ ). La partie inférieure de tous les vases cryogéniques est en pyrex (on a représenté la position ( $r$ ) des raccords verre-métal). L'étanchéité au montage sur les flasques est assurée par les joints d'indium ( $i$ ).*





tion de liquide à la partie froide, ce qui permet un fonctionnement continu. Il est représenté sur la figure I-3. De la partie inférieure ont été éliminés, autant que possible, tous les constituants magnétiques.

L'évaporateur de ce réfrigérateur est thermalisé à la cellule d'expérience ; le détail de cette thermalisation apparaît sur la figure I-3. La partie froide (évaporateur, vanne de détente, ...) est isolée du bain principal de  $^4\text{He}$  par un contre-cryostat en pyrex. Un compartiment intérieur, également en pyrex, renferme l'échantillon étudié. Ce "tour de cellule" est lui-même rempli de  $^4\text{He}$  très purifié à l'aide d'un capillaire indépendant qui le relie à un système de remplissage, placé à 300K, en traversant le bain principal. Le volume de liquide correspondant (environ  $70\text{ cm}^3$ ) assure la thermalisation de la cellule en pyrex et une bonne homogénéité de la température. La capacité calorifique de l'ensemble de la partie froide est essentiellement celle du liquide  $^3\text{He}$  contenu dans le réfrigérateur.

La température est repérée de deux façons :

- Soit on mesure, selon un dispositif à quatre fils, la conductance d'une sonde au Germanium immergée dans le compartiment central (pour améliorer la précision, la conductance est mesurée en alternatif à 27 Hz). L'indication de cette sonde a été étalonnée, au cours d'une descente en température spécifique, par comparaison avec la pression de vapeur de  $^3\text{He}$ .

- Soit on mesure la pression de vapeur de  $^3\text{He}$  au-dessus de l'évaporateur, par une sonde mécanique placée à 300K et reliée directement au bas du montage par un tuyau de  $1,5 \cdot 10^{-3}\text{ m}$  de diamètre. Même corrigée d'un éventuel effet thermocapillaire, cette indication n'est pas totalement fiable, dans la mesure où le flux de chaleur évacué par le réfrigérateur produit des différences de température entre le "tour de cellule" plein de  $^4\text{He}$  et le cuivre de l'échangeur d'une part, entre l'échangeur et le bain cryogénique de  $^3\text{He}$  d'autre part (résistances de Kapitza).

Dans l'ensemble, la mesure de température est effectuée

avec une précision meilleure que 0,020K.

#### I.A.2.b - Performances du montage cryogénique

La procédure de descente en température est la suivante :

- Six heures sont nécessaires pour passer de 300K à 77K (température de l'azote liquide), si on prend soin d'assurer les contacts thermiques des différentes parties du montage avec la garde d'azote : on emplit l'intérieur du cryostat de pyrex et le tour de cellule avec une faible quantité de  $^4\text{He}$  ; on "casse", à l'aide de néon purifié, les vides d'isolement du cryostat à  $^4\text{He}$  et du contre-cryostat.

- Le refroidissement à la température de l'hélium liquide est réalisé très progressivement, de manière à assurer la descente en température de la partie centrale contenant la cellule. Au-dessous de 16K, le Néon placé dans le contre-cryostat devient solide, et la thermalisation de la cellule ne se fait pratiquement plus. On emplit alors le cryostat à  $^4\text{He}$ , et l'on pompe sur le bain d'hélium. En une demi-heure, avec une pompe à palettes de débit  $25 \text{ m}^3/\text{h}$  jusqu'à 0,1 mbar, on atteint le point  $\lambda$  ( $T = 2,17\text{K}$ ) en ayant consommé la moitié du liquide initial. Le refroidissement du bain superfluide se poursuit jusqu'à  $T \approx 1,55\text{K}$ . La cellule est alors thermalisée par le gaz  $^3\text{He}$  injecté dans le réfrigérateur : celui-ci, en effet, se refroidit et se condense peu à peu au contact du bain de  $^4\text{He}$  ; tombant dans l'évaporateur, il refroidit ce dernier ainsi que le "tour de cellule" et la cellule. Une fois la température de 2K atteinte dans le tour de cellule, on emplit celui-ci de  $^4\text{He}$  très pur en condensant du liquide dans un capillaire serpentant dans le bain principal. Au bout d'une dizaine de minutes, la cellule plonge dans l'hélium superfluide ; elle est parfaitement thermalisée à l'évaporateur.

Le réfrigérateur à  $^3\text{He}$  fonctionne selon un processus classique : le gaz  $^3\text{He}$  est injecté dans le circuit de refroidissement après piégeage des impuretés. Il se condense dans le

bain de  $^4\text{He}$  pompé, qu'il traverse dans un tube capillaire. Pénétrant alors dans le contre-cryostat, il est thermalisé par contact avec les gaz froids du système de pompage de  $^3\text{He}$ , puis détendu à l'aide d'une microvanne mécanique dont le débit peut être ajusté manuellement depuis l'extérieur. Il parvient alors à l'évaporateur, où le bain de  $^3\text{He}$  liquide est pompé par une pompe étanche et recyclé (débit de l'ordre de  $25 \text{ m}^3/\text{h}$  jusqu'à  $0,1 \text{ mbar}$ ). Ce système permet d'atteindre, en fonctionnement continu, une température de  $0,5\text{K}$  dans le "tour de cellule". Les principales pertes, de l'ordre de  $1 \text{ mW}$ , proviennent de la conduction thermique par l'hélium superfluide contenu dans le capillaire de remplissage du "tour de cellule", et du rayonnement qui pénètre par les larges fenêtres annulaires qui ont été ménagées dans l'argenture des vases en pyrex de manière à permettre la mise en oeuvre du pompage optique. Le réglage et la stabilisation de la température font intervenir, d'une part le réglage de la réinjection de liquide, d'autre part le débit du système de pompage. Ce dernier est ajusté soit par laminage direct sur la canalisation, soit par l'intermédiaire d'un variateur installé sur l'alimentation du pompage. Le système employé doit être très versatile : il est nécessaire de maintenir la température constante à des valeurs variées alors que la puissance dissipée peut changer de façon importante suivant que le pompage optique est en cours ou non.

L'ensemble du système donne aux expériences une autonomie proche de la demi-journée en-dessous de  $1,5\text{K}$ , et illimitée vers  $2,5\text{K}$  en renouvelant le remplissage du cryostat à  $^4\text{He}$ . La régulation précise de la température s'est avérée possible dans toute la gamme  $1,2\text{K} \leftrightarrow 0,5\text{K}$ .

### I.A.3 - L'orientation nucléaire de $^3\text{He}$ : réalisation et mesure

#### I.A.3.a - Le pompage optique

L'orientation par pompage optique du gaz  $^3\text{He}$  est une technique éprouvée [Colegrove et al., 1963 ; Timsit et Daniels, 1971] et bien connue au laboratoire [Barbé et al., 1975 ; Nacher

et al., 1982] : on excite une partie des atomes dans l'état métastable  $2^3S$  à l'aide d'une faible décharge Hyper Fréquence ; on communique à ceux-ci une orientation électronique par pompage optique sur une composante hyperfine de la raie  $2^3S \leftrightarrow 2^3P$  (\*). Le couplage hyperfin des niveaux électroniques assure qu'une orientation nucléaire est créée simultanément ; les collisions d'échange de métastabilité au sein du gaz ou d'autres processus de collision transmettent cette orientation nucléaire aux atomes dans l'état fondamental.

#### *α) La décharge dans le gaz*

La réalisation à basse température de la décharge H.F. est une question délicate. Le système d'allumage finalement retenu est le suivant (figure I-4).

Deux électrodes de verre, peu pointues, recouvertes d'une fine couche d'argent, sont immergées dans le tour de cellule de part et d'autre de l'échantillon. Elles constituent avec le secondaire d'un transformateur élévateur de tension (40 tours de fil de Litz), lui-même contenu dans le tour de cellule, un circuit résonnant à une fréquence de 7 à 10 MHz. Ce circuit baigne entièrement dans l'hélium liquide de façon à éviter les claquages. Il est alimenté par une boucle immergée dans le bain principal de  $^4\text{He}$ , qui constitue le primaire du transformateur. Cette boucle est reliée par câble coaxial à un générateur de

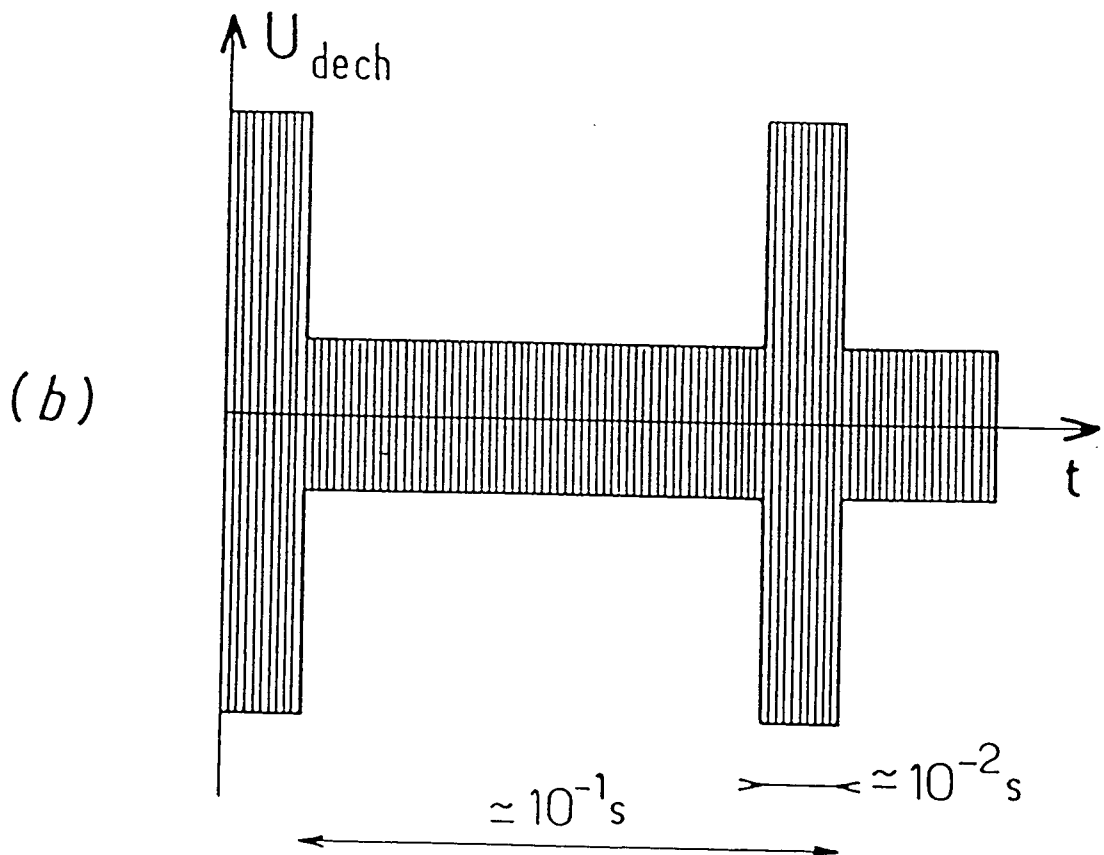
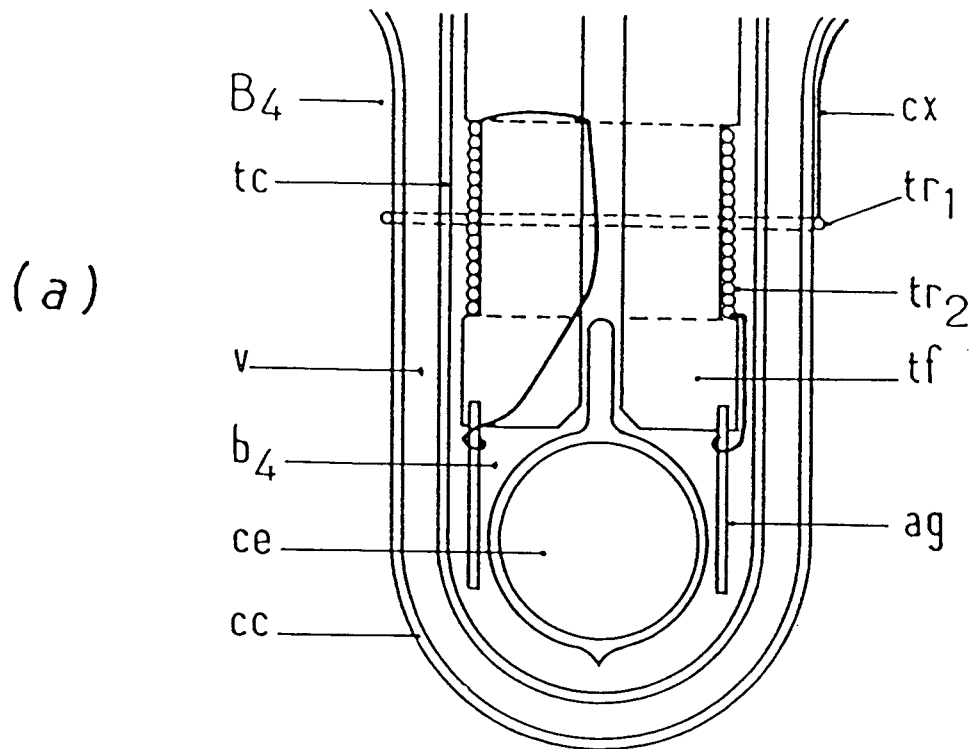
---

(\*) *En-dessous de 1K, les différentes composantes hyperfines de la raie sont bien séparées lorsqu'on utilise un laser. Nous avons utilisé les transitions entre sous-niveaux suivants :  $2^3S_1, F = 3/2$  vers  $2^3P_0, F' = 1/2$  (légèrement mélangé au niveau  $J = 1, F' = 1/2$ ), et surtout  $2^3S_1, F = 3/2$  vers  $2^3P_y, F' = 3/2$  (mélange 2/3, 1/3 des sous-niveaux  $F' = 3/2$  de  $J = 2$  et  $J = 1$  respectivement). Ces transitions sont repérées par  $C_9$  et  $C_7$  dans la nomenclature de Nacher [1985]. Nous avons vérifié qu'elles étaient les plus efficaces pour le pompage optique [Nacher et Leduc, 1985].*

---

Figure I-4a : Circuit d'entretien de la décharge H.F. dans la cellule. La tension H.F. " $U_{\text{déch.}}$ " est transmise par la ligne coaxiale (cx) au primaire ( $tr_1$ ) du transformateur d'alimentation du circuit de décharge. ( $tr_1$ ) est constitué d'une spire immergée dans le bain ( $B_4$ ) à 1,55K. Le secondaire ( $tr_2$ ) est constitué de 40 tours de fil de Litz bobinés sur un support de téflon (tf) qui assure également le maintien mécanique de la cellule (ce). La tension est transmise aux électrodes de verre recouvertes d'argent (ag), proches de l'échantillon. L'ensemble de ce circuit est immergé dans le bain cryogénique ( $b_4$ ) ; aucun fil ne traverse donc le vide d'isolement (v) qui sépare le contre-cryostat (cc) du tour de cellule (tc).

Figure I-4b : Allumage de la décharge H.F. : de brèves impulsions de tension (durée  $\leq 10^{-2}$  s) sont appliquées périodiquement (fréquence  $\leq 10$  Hz) en sus du signal d'entretien de la décharge (H.F.  $\simeq 10$  MHz).



signaux associé à un amplificateur de puissance H.F..

La décharge, en période de fonctionnement, est entretenue par un signal alternatif accordé d'amplitude constante ; pour l'allumage, on réalise de brèves impulsions périodiques, durant lesquelles l'amplitude du signal est augmentée. Ce procédé est tributaire de l'existence dans le système d'une première charge électrique libre créée par une source extérieure ; il n'a pas été mis en défaut. Toutefois, de nombreux essais infructueux précèdent en général le premier allumage : il faut quelquefois appliquer les impulsions pendant une heure à quelques hertz. Mais, une fois celui-ci réalisé, les rallumages sont très faciles même après plusieurs jours passés sans décharge à basse température.

Pour améliorer l'efficacité du pompage optique, la décharge est réglée à son niveau minimum d'entretien. Elle dissipe alors une puissance de 5 mW environ dans la partie froide, ce qui permet de travailler pendant tout le pompage à une température égale à 0,65K ; on peut d'autre part calculer que ce flux de chaleur, qui doit s'évacuer à travers le verre de la paroi de la cellule, provoque une élévation de température de l'ordre de 0,03K par rapport au bain de  $^4\text{He}$  thermalisant la cellule. Le film de  $^4\text{He}$  sur la paroi interne n'est donc pas évaporé par la présence de la décharge (ce calcul a été effectué avec les données suivantes : conductibilité thermique du verre =  $10^{-3} \text{W cm}^{-1} \text{K}^{-1}$  ; résistance de Kapitza =  $20 \text{K cm}^2 \text{W}^{-1}$  [Conte, 1970]).

### $\beta$ ) *Le laser*

Le pompage optique a été réalisé en utilisant la plupart du temps un laser opérant en continu à  $1,0830 \mu\text{m}$  construit au laboratoire et mis au point par G. Tréneç [Tréneç et al., 1982]. Un laser à  $\text{Kr}^+$  commercial pompe un laser à colorant H.I.T.C. oscillant vers  $8900 \text{ \AA}$ , qui pompe lui-même un laser constitué d'un cristal de NaF, contenant des centres colorés  $\text{F}_2^{+*}$ , placé dans une cavité en anneau. On dispose ainsi d'un faisceau monomode d'une puissance de plus de 100 mW, large d'une dizaine de MHz,

balayable continûment sur près de 30 GHz. Cet outil -- complexe -- se substitue très avantageusement aux lampes à  $^3\text{He}$  utilisées précédemment car il permet de disposer d'une puissance lumineuse résonnante élevée malgré la faible valeur de la largeur Döppler des transitions en dessous d'un kelvin. Transporté par fibre optique au voisinage du cryostat, le faisceau de pompage est rendu parallèle au champ magnétique imposé à l'échantillon, puis étendu au diamètre apparent de la cellule et polarisé circulairement. L'ajustement final de la fréquence infrarouge est réalisé en observant dans une direction transversale la fluorescence émise sur la raie  $2^3\text{P} \rightarrow 2^3\text{S}$  par les atomes excités.

### *$\gamma$ ) Le champ magnétique*

La polarisation nucléaire et la mesure de l'orientation sont effectuées dans un champ magnétique  $\vec{B}_0$  de l'ordre de 14 Gauss ( $1,4 \cdot 10^{-3}$  Tesla) qui fixe la direction de l'aimantation nucléaire. Pour étudier la relaxation sur la paroi, il est important d'éliminer toute relaxation imputable aux inhomogénéités du champ  $\vec{B}_0$ . De plus, la technique de détection radio-électrique employée exige une homogénéité relative aussi bonne que possible. Le champ  $\vec{B}_0$  est donc produit par une paire de bobines placées en position de Helmholtz, alimentées en série par un générateur de courant délivrant 0,66 A et stabilisé à mieux que  $10^{-5}$ .

Les éventuels gradients de champ magnétique existant sur la cellule sont compensés par un système de dix bobines créant au centre de l'échantillon un gradient pur de  $\vec{B}_0$  à l'ordre le plus bas. Enfin, les matériaux au voisinage immédiat de l'échantillon ont été choisis pour leur amagnétisme : visserie et capillaires en cuivre ou en alliage cuivre-nickel, exceptionnellement en acier inoxydable. Les matériaux supraconducteurs ont été également proscrits. Seuls un joint d'indium et une soudure au métal de Wood ont été conservés à une dizaine de centimètres du centre de la cellule, pour faciliter le démontage. La méthode de compensation des plus importantes inhomogénéités est décrite au § I.B. Après optimisation, il subsiste seulement des gradients de



champ inférieurs ou de l'ordre de  $0,2 \text{ mG cm}^{-1}$ , soit une homogénéité relative meilleure que  $4.10^{-5}$  sur tout le volume accessible au gaz polarisé.

### I.A.3.b - La détection de l'orientation

#### *α) Détection optique*

La mesure du taux de polarisation nucléaire peut être faite à partir de la détermination du taux de polarisation circulaire  $\mathcal{P}$  de la lumière émise par la décharge [Pavlovic et Laloë, 1970] : en effet, lorsqu'un atome fondamental est excité dans les états 3D par la décharge, son orientation nucléaire induit, par couplage hyperfin, une orientation électronique. La fluorescence visible à partir de ces états est polarisée proportionnellement à l'orientation nucléaire du niveau fondamental. Cette méthode a été utilisée lors des premières expériences en-dessous de 1K [Himbert et al., 1983]. Elle présente deux inconvénients majeurs. D'une part, le coefficient de proportionnalité entre  $\mathcal{P}$  et l'orientation nucléaire dépend des collisions dans l'état excité, donc de la pression ; ceci oblige à revenir à la même température pour faire des mesures cohérentes. D'autre part, si l'on s'intéresse à l'orientation subsistant après un temps plus ou moins long durant lequel se sont produits des processus de relaxation en l'absence de décharge, il est nécessaire de rallumer la décharge dans les mêmes conditions d'intensité qu'auparavant ; ce rallumage est délicat ; il a de surcroît un effet relaxant sur les atomes, susceptible de fausser la mesure d'un temps de relaxation. Enfin, la présence de la décharge détruit en quelques minutes l'orientation.

Ce procédé de détection n'a été conservé que comme un moyen de contrôle du réglage du pompage optique pendant son déroulement (la détection radioélectrique étant alors inappropriée).

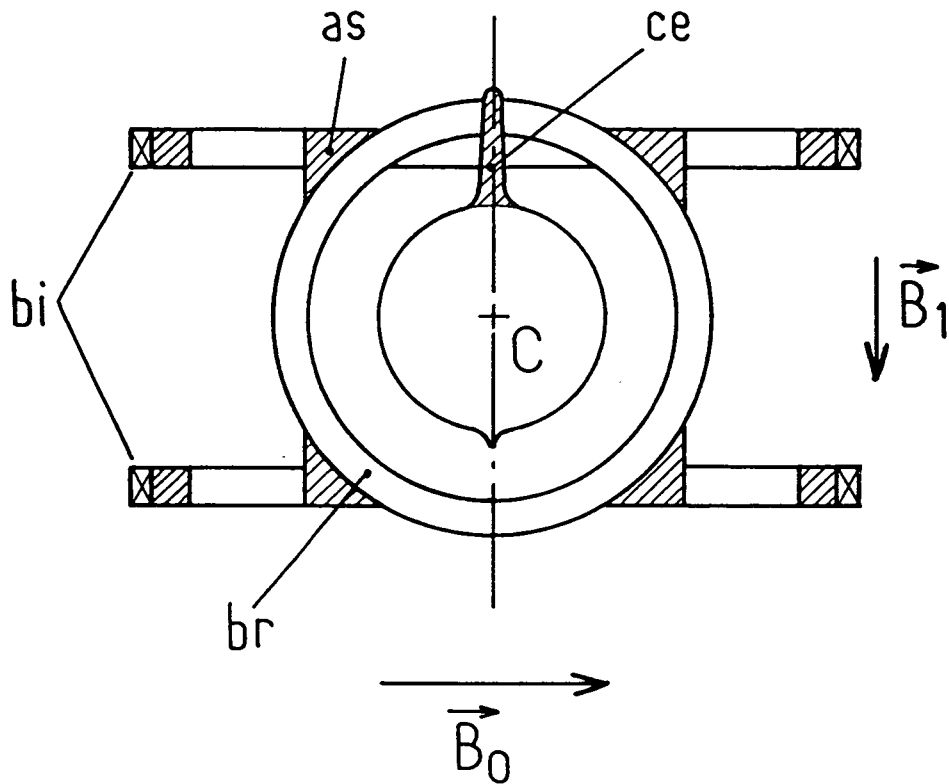
## β) Détection radioélectrique

### i) Principe :

La mesure directe de l'orientation nucléaire longitudinale des atomes de  $^3\text{He}$  dans l'état fondamental est possible : on effectue une détection radioélectrique d'un signal de Résonance Magnétique Nucléaire (R.M.N.). Nous avons employé la technique de *passage adiabatique rapide* sur la R.M.N. et de détection par un dispositif à bobines croisées [Abragam, 1961]. Une paire de bobines inductrices crée un champ de radiofréquence  $\vec{B}_1$ , orthogonal au champ statique  $\vec{B}_0$ , de fréquence presque égale à la fréquence de précession de Larmor des moments magnétiques nucléaires dans  $\vec{B}_0$ . Un balayage de  $\vec{B}_0$  d'amplitude faible, réalisé à l'aide d'une paire de bobines annexe, permet d'effectuer un passage adiabatique rapide sur la R.M.N. : l'orientation suit adiabatiquement le champ vu par les spires dans le référentiel de Larmor, et passe donc d'une direction de même sens que  $\vec{B}_0$  à la direction opposée ; il existe donc un instant intermédiaire auquel l'orientation est orthogonale à  $\vec{B}_0$ . Une paire de bobines réceptrices, d'axe orthogonal aux directions de  $\vec{B}_0$  et de  $\vec{B}_1$ , permet de mesurer directement l'amplitude du champ créé par les moments magnétiques nucléaires lors de leur basculement. La perte relative d'orientation à chaque passage reste faible. Elle peut être mesurée avec précision.

### ii) Dispositif utilisé :

Les caractéristiques particulières du système construit sont décrites sur la figure I-5. Les bobines réceptrices sont couplées à un condensateur qui ramène la fréquence de résonance du circuit de détection à une valeur proche de 44 kHz (fréquence de Larmor des spins nucléaires de  $^3\text{He}$  dans 14 Gauss). Le coefficient de surtension de cet ensemble vaut environ 70, en-dessous de 2K. On attend, dans ces conditions, une tension aux bornes de 2,1  $\mu\text{V}$  (valeur R.M.S.) pour un pour cent de polarisation nucléaire réalisé dans un échantillon gazeux de  $^3\text{He}$  de densité égale à un torr à 300K.



*Figure I-5 : Dispositif à bobines croisées : coupe dans le plan vertical contenant le centre C de la cellule (ce) et le champ statique  $\vec{B}_0$ . Les bobines inductrices (bi) sont horizontales, de diamètre 9,0 cm ; elles comprennent chacune 100 tours, et sont placées en position de Helmholtz. Les bobines réceptrices (br) sont verticales, de diamètre 4,9 cm ; elles comprennent chacune 200 tours, et leurs centres sont distants de 5,5 cm. La rigidité du montage est assurée par l'armature (as) en résine Stycast.*

iii) Performances :

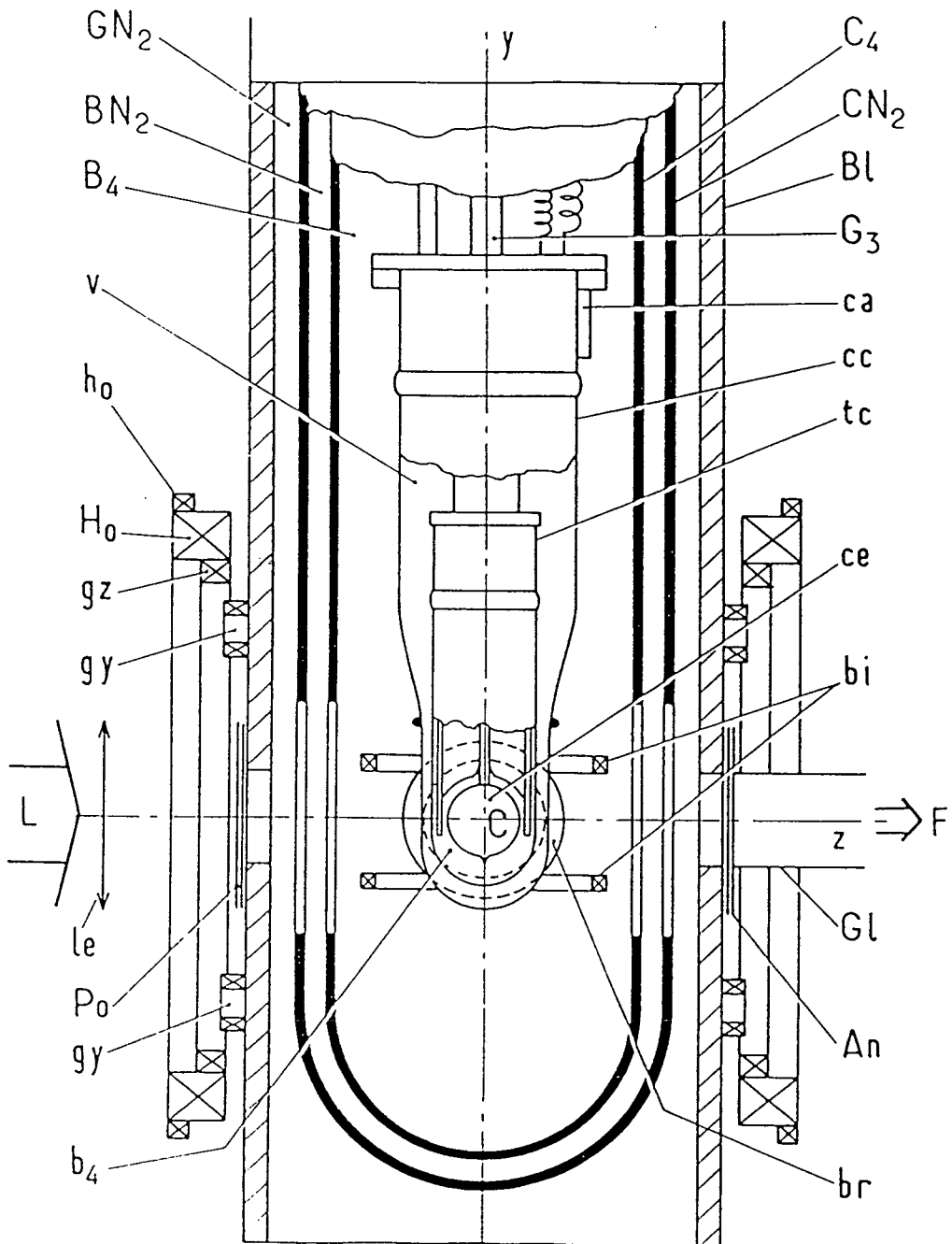
Divers parasites doivent être éliminés pour observer un signal aussi faible. Un schéma de l'ensemble du montage est présenté sur la figure I-6.

- L'orthogonalité imparfaite des bobines croisées induit dans les bobines réceptrices un signal parasite  $10^3$  fois supérieur. Un circuit placé sur l'alimentation des bobines inductrices prélève par un transformateur une faible fraction du courant d'alimentation ; après ajustement d'amplitude et de phase, ce signal prélevé est retranché, par l'intermédiaire d'un transformateur analogue, au signal reçu sur le circuit résonnant.

- Il faut aussi s'affranchir des couplages moins directs entre les circuits d'alimentation et de détection, introduits entre autres par les masses métalliques voisines. Le couplage entre les fils d'arrivée de la radiofréquence et les fils de transmission du signal est minimisé au montage. L'ensemble du dispositif R.M.N. possède une grande rigidité et une bonne stabilité mécanique : l'équipage de bobines croisées a été réalisé par moulage en résine Stycast 2850 FT adaptée aux basses températures ; il est mis en place dans le bain de  $^4\text{He}$  principal (pompé à 1,55K), et fixé au contre-cryostat de pyrex par une colle également adaptée (CAF 532). Ce montage a pu subir, sans aucun dommage interne, un grand nombre de cycles thermiques entre 1,5K et 300K. Le cryostat lui-même est relié aux différents systèmes de pompage par des liaisons souples qui minimisent les vibrations de l'équipage R.M.N., nécessairement placé en porte-à-faux à l'extrémité du réfrigérateur à  $^3\text{He}$ . Ces vibrations sont en effet extrêmement gênantes : elles font varier le couplage parasite entre les circuits inducteur et récepteur, engendrant ainsi un bruit important. Dans certains cas difficiles, il fut nécessaire de couper le pompage pendant les mesures.

- Les bobines réceptrices, enfin, doivent être protégées

Figure I-6 : Coupe verticale partielle du montage expérimental (échelle 0,35). On reconnaît la cellule (ce), thermalisée par le bain secondaire ( $b_4$ ) contenu dans le tour de cellule (tc) au réfrigérateur à  $^3\text{He}$  ( $G_3$ ) ; vers l'extérieur, on rencontre successivement le vide d'isolement (v), le contre-cryostat (cc), le bain ( $B_4$ ) à  $^4\text{He}$  à 1,55K, le cryostat à  $^4\text{He}$  ( $C_4$ ) à double paroi argentée, la garde d'azote liquide ( $BN_2$ ) contenu dans le vase à azote ( $CN_2$ ) (double-paroi argentée), enfin la boîte de blindage ( $B\ell$ ) emplie d'azote gazeux ( $GN_2$ ). Le montage R.M.N. est positionné autour de la cellule dans le bain ( $B_4$ ) : bobines inductrices (bi), bobines réceptrices (br) (hors du plan de coupe) et capacité d'accord (ca) dans son blindage. Le laser (L) est collimaté par la lentille ( $\ell e$ ), puis polarisé circulairement par le système (Po). Le taux de polarisation de la lumière de fluorescence optique (F) émise par la décharge et recueillie par le guide de lumière (G $\ell$ ) est déterminé grâce à l'analyseur (An). La direction Cz des faisceaux est parallèle au champ  $\vec{B}_0$  créé par les bobines principales ( $H_0$ ). Ont été également représentées les bobines permettant le balayage de  $\vec{B}_0$  ( $h_0$ ), et les jeux de bobines utilisées pour la compensation des gradients du champ par rapport au déplacement sur l'axe Cz (gz) et sur un des axes transverses (gy).



du bruit hertzien. La capacité d'accord a été placée dans un blindage, dans le bain de  $^4\text{He}$  du cryostat principal : la surface du circuit résonnant s'en trouve limitée, ce qui améliore sa stabilité géométrique ; la température de la source du bruit propre du montage est également abaissée. Le cryostat entier a été placé dans un blindage constitué d'une boîte en duralumin de 10 mm d'épaisseur, percée de quatre fenêtres. L'intérieur est légèrement pressurisé à l'azote, ce qui évite tout problème de condensation sur paroi froide à l'intérieur. Enfin, l'ensemble a été soigneusement isolé électriquement de la masse des autres appareils.

La chaîne de mesure de ce signal fait intervenir les éléments suivants. La tension délivrée par les bobines réceptrices est mesurée en mode différentiel ; la compensation du parasite est effectuée sur l'une des voies. Un amplificateur différentiel de gain 100, suivi d'un amplificateur sélectif, permettent de mettre en forme ce signal. Il est alors présenté à l'entrée d'une détection synchrone de type "phase et quadrature". Les signaux de sortie de celle-ci sont conservés dans un enregistreur digital de capacité 64 k octets, puis restitués à un rythme lent sur table traçante pour dépouillement manuel, ou transmis sur 10 bits pour traitement à un microordinateur Victor S1.

Dans les meilleures conditions, le niveau de bruit équivaut au signal de  $10^{14}$  spins orientés, la constante de temps de l'intégrateur de sortie de la détection synchrone étant choisie égale à 30 ms. Le rapport signal sur bruit obtenu dépend bien entendu du taux d'orientation réalisé. Dans les conditions habituelles de l'expérience, un faisceau laser de puissance 60 mW fournit en 150 s de pompage un gaz polarisé à 3%. Le montage radioélectrique mesure l'orientation obtenue avec un rapport signal sur bruit proche de 60, ce qui permet d'étudier, soit le temps de relaxation  $T_2$  de l'aimantation transverse (I.B), soit le temps de relaxation  $T_1$  de l'orientation longitudinale (I.C).

**I.B - LE TEMPS DE RELAXATION DE L'AIMANTATION TRANSVERSALE :  
INTERETS DE SA MESURE**

Le montage de détection radioélectrique de la R.M.N. permet de mesurer très simplement le temps de relaxation  $T_2$  de l'aimantation transverse, c'est-à-dire le temps caractéristique de décroissance du module de l'aimantation des atomes lorsque celle-ci est orthogonale au champ magnétique statique  $\vec{B}_0$ , soit :

$$\|\vec{M}_\perp(t)\| = \|\vec{M}_\perp(0)\| \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) \quad (\text{I-1})$$

Dans nos conditions expérimentales, la relaxation transverse est principalement due au gradient du champ magnétique macroscopique sur l'échantillon : plus les inhomogénéités de champ sont grandes, plus la relaxation est efficace. La mesure de  $T_2$  offre donc un moyen de contrôle direct, à basse température, de l'homogénéité magnétique effective à l'endroit où est située la cellule. Ce contrôle est essentiel pour vérifier que le processus dominant pour la relaxation longitudinale est le processus survenant sur la paroi. De plus, le courant d'alimentation de chacune des bobines de compensation des gradients de champ peut être ajusté pour rendre  $T_2$  aussi long que possible. La mesure de l'orientation par passage adiabatique rapide sur la R.M.N. est ainsi facilitée (voir § I.C.1) ; cette optimisation a été systématiquement effectuée.

Enfin, la mesure de  $T_2$  permet d'accéder au temps de diffusion des atomes  $^3\text{He}$  dans la cellule. En effet, ce temps de diffusion est court par rapport au temps de déphasage des spins entre différents points de la cellule. Il vaut typiquement 3 ms, alors que l'écart quadratique moyen  $\Delta\omega_0$  (\*) des fréquences de

---

(\*) Dans tout le mémoire, on repère par la notation  $\#$  la valeur de la grandeur repérée par  $A$ , divisée par  $2\pi$ . Ainsi, la "fréquence"  $\omega$  est associée à la "pulsation"  $\omega$ .

---



Larmor des spins dans la cellule est de quelques Hertz ; il y a donc, pour la relaxation magnétique, rétrécissement par le mouvement [Abragam, 1961]. A gradient de champ fixe,  $1/T_2$  est directement proportionnel au temps de diffusion des atomes dans la cellule, et les variations de  $T_2$  avec la température traduisent directement celles du coefficient de diffusion. Ce dernier dépend du contenu de la phase vapeur, et en particulier de la fraction d'hélium-4 non encore condensée. Si le coefficient  $D_{33}(T)$  de diffusion du spin dans  $^3\text{He}$  et le coefficient  $D_{34}(T)$  de diffusion d'un atome  $^3\text{He}$  dans un gaz dilué de  $^4\text{He}$  sont connus, la mesure de  $T_2$  devient un moyen de sonder la densité de la phase vapeur, et donc de contrôler l'avancement de la condensation de  $^4\text{He}$ .

### I.B.1 - La technique de mesure de $T_2$

On mesure  $T_2$  en enregistrant le signal induit dans les bobines réceptrices de l'équipage R.M.N. par la précession libre des spins autour du champ  $\vec{B}_0$ , après qu'une impulsion du champ de radiofréquence  $\vec{B}_1$ , calibrée en amplitude et en durée, a fait basculer l'aimantation d'un angle  $\frac{\pi}{2}$  par rapport à  $\vec{B}_0$ . L'amplitude du champ de radiofréquence  $\vec{B}_1$  est repérée par :

$$\omega_1 = \gamma B_1 \quad (\text{I-2})$$

où  $\gamma$  est la rapport gyromagnétique du spin nucléaire de  $^3\text{He}$ , en valeur absolue :

$$\gamma = 3.24 \text{ kHz/Gauss} \quad (\text{I-3})$$

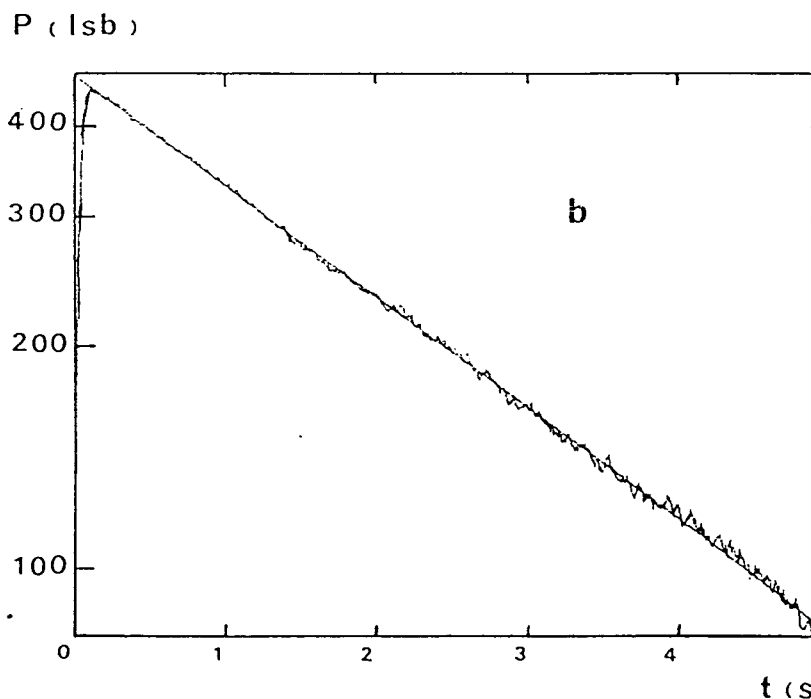
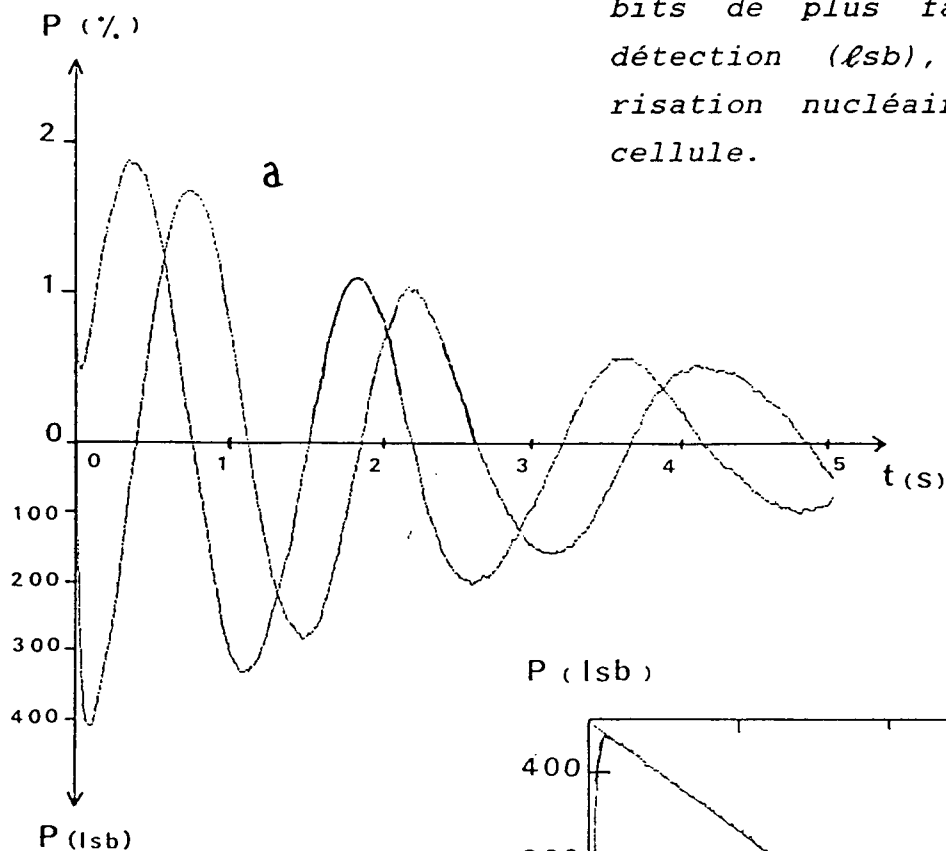
Les valeurs de  $\omega_1$  utilisables sont limitées : les inhomogénéités du champ de radiofréquences, proportionnelles en général à  $B_1$ , doivent rester suffisamment faibles pour ne pas produire une relaxation de l'orientation [Barbé et al., 1974] ; inversement, les fluctuations temporelles de  $\vec{B}_0$ , dues par exemple au déplacement, à proximité de l'expérience, de gros objets en matière magnétique (ascenseur, etc.) imposent que  $\omega_1$  soit suffisamment grande pour que la radiofréquence reste résonnante. La

durée  $\tau$  de l'impulsion doit rester petite devant  $T_2$  pour profiter du maximum de signal. La réalisation d'un basculement de  $\pi/2$  requiert, enfin,  $\omega_1 \tau = \pi/2$ . Les valeurs généralement retenues sont  $\omega_1 = 15,4$  Hz et  $\tau = 17,5$  ms. Néanmoins, faire varier ces paramètres sur près d'un ordre de grandeur n'a pas d'effet notable sur le signal.

Les fluctuations de  $\vec{B}_0$  font que la fréquence de précession des spins n'est jamais exactement égale à celle de la radiofréquence. Le signal obtenu aux sorties "phase" et "quadrature" de la détection synchrone réglée à la fréquence de la radiofréquence oscille lentement à une fréquence n'excédant pas une fraction de Hertz. Plusieurs méthodes ont été mises en oeuvre pour reconstruire, à partir de ces signaux, le module de l'aimantation transverse et effectuer la mesure de  $1/T_2$  : asservissement du champ sur la phase du signal, utilisation d'un circuit analogique, puis d'une table digitale pour la conversion  $(M_x, M_y) \rightarrow (|\vec{M}|, \varphi)$ . Le procédé le meilleur est un dépouillement numérique : les signaux sur les deux voies de sortie de la détection synchrone sont échantillonnés pendant une durée égale à quelques  $T_2$  ; mille points sont enregistrés sur 10 bits, puis saisis sur machine. On procède au calcul du module, d'une éventuelle correction de bande passante si la fréquence du signal de sortie est élevée ou bien variable. On recherche la meilleure approximation exponentielle du résultat par une méthode itérative et non linéaire. Le résultat des mesures est reproductible, à 5% près, quel que soit le niveau de l'orientation initiale. Il est obtenu en un temps inférieur à la durée de pompage optique nécessaire pour rétablir l'orientation. En-dessous de 1K, les valeurs mesurées varient entre 0,3 s et 10 s selon le contenu des cellules, dans les conditions optimales du réglage de l'homogénéité de  $\vec{B}_0$ .

La figure I-7 présente un résultat obtenu à  $T = 0,61$ K. L'enregistrement commence immédiatement (délai 5 ms) après la fin de l'impulsion de radiofréquence. L'amplitude du signal correspond à une aimantation de  $1,8 \times 10^{16} \hat{\mu}_3$ ,  $\hat{\mu}_3$  étant le moment magnétique nucléaire d'un atome  $^3\text{He}$ . Le taux de polarisation

**Figure I-7a** : Mesure de  $T_2$ . Enregistrement des sorties "phase" et "quadrature" de la détection synchrone à  $\omega$ , échantillonnées sur 1024 canaux de durée unitaire 5 ms. Le signal a été gradué en bits de plus faible poids à la détection (lsb), et en % de polarisation nucléaire totale dans la cellule.



**Figure I-7b** : Mesure de  $T_2$ .

En échelle logarithmique est porté le module de l'aimantation transverse calculé à partir des courbes (a). La droite correspond à la meilleure approximation exponentielle du signal, déterminée à partir des points situés entre  $t = 0,250$  s et  $t = 5,000$  s.

nucléaire est donc égal à 2,2%. La valeur mesurée de  $T_2$  est  $2,94 \pm 0,05$  s.

## I.B.2 - La valeur absolue de $T_2$ à basse température

### I.B.2.a - Relaxation par les gradients du champ $\vec{B}_0$

A température donnée, et donc à composition donnée de la phase gazeuse, la valeur absolue de  $T_2$  est déterminée par la qualité de l'uniformité du champ magnétique sur la cellule : au cours de son mouvement aléatoire dans le gaz, un atome donné "voit" un champ magnétique variable qui déphase son orientation par rapport à l'orientation nucléaire moyenne. A 0,5K, le libre parcours moyen  $\ell_c$  d'un atome  $^3\text{He}$  dans une phase gazeuse de densité  $d_3 = 2$  torr à 300K est de l'ordre de  $50 \mu\text{m}$

$\left[ \ell_c \simeq \frac{1}{\sqrt{2} d_3 \pi \sigma^2} \text{ avec } \sigma = 2,56 \text{ \AA} \right]$ . Dans nos conditions expérimentales, son mouvement est donc piloté par une équation de diffusion, et les temps caractéristiques des fluctuations de la fréquence de Larmor vue par le spin nucléaire sont donc les temps associés aux différents modes de diffusion dans la cellule [Barbé et al. 1974].

Dans le cas simple d'une cellule sphérique de centre C, chacun des modes de diffusion peut être caractérisé par les indices  $(n, \ell, m)$  habituels des harmoniques sphériques. Notons  $\tau_D^{n \ell m}$  le temps de diffusion associé au mode  $(n, \ell, m)$ . Lorsque le gradient de champ est faible, ou plus précisément, lorsque :

$$\Delta\omega_0 \tau_D^{n \ell m} \ll 1 \quad (\text{I-4-a})$$

$$\omega_0 \tau_D^{n \ell m} \gg 1 \quad (\text{I-4-b})$$

le taux de relaxation  $1/T_2$  résulte d'une somme de contributions

$\left( \frac{1}{T_2} \right)_{n \ell m}$  relatives à chacun des modes. Chacun ne contribue que

dans la mesure où il existe dans la carte du champ inhomogène une variation spatiale qui lui est adaptée.

Nous ne nous intéressons ici qu'à la contribution des variations linéaires de la composante  $B_{0z}$  du champ vis-à-vis des trois coordonnées (les gradients du champ). L'axe Cz est fixé par la direction de  $\vec{B}_0$  au centre C de la cellule.

$$B_{0z}(x,y,z) = B_0(C) + x \frac{\partial B_{0z}}{\partial x} + y \frac{\partial B_{0z}}{\partial y} + z \frac{\partial B_{0z}}{\partial z} \quad (\text{I-5})$$

Elles ne sont couplées qu'aux trois modes  $n = \ell = 1, m = 0, \pm 1$ . Notant  $\left(\frac{1}{T_2}\right)_{\text{autres}}$  la contribution de tous les autres modes, on peut écrire :

$$\frac{1}{T_2} = \sum_{m=0, \pm 1} \left(\frac{1}{T_2}\right)_{11m} + \left(\frac{1}{T_2}\right)_{\text{autres}} \quad (\text{I-6})$$

D'après [Lefevre et al., 1982] :

$$\sum_m \left(\frac{1}{T_2}\right)_{11m} = 0,046 \cdot \gamma^2 \cdot \frac{R^4}{D} \left[ \left(\frac{\partial B_{0z}}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial B_{0z}}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}\right)^2 \right] \quad (\text{I-7})$$

où R est la rayon de la cellule et D le coefficient de diffusion dans le gaz.

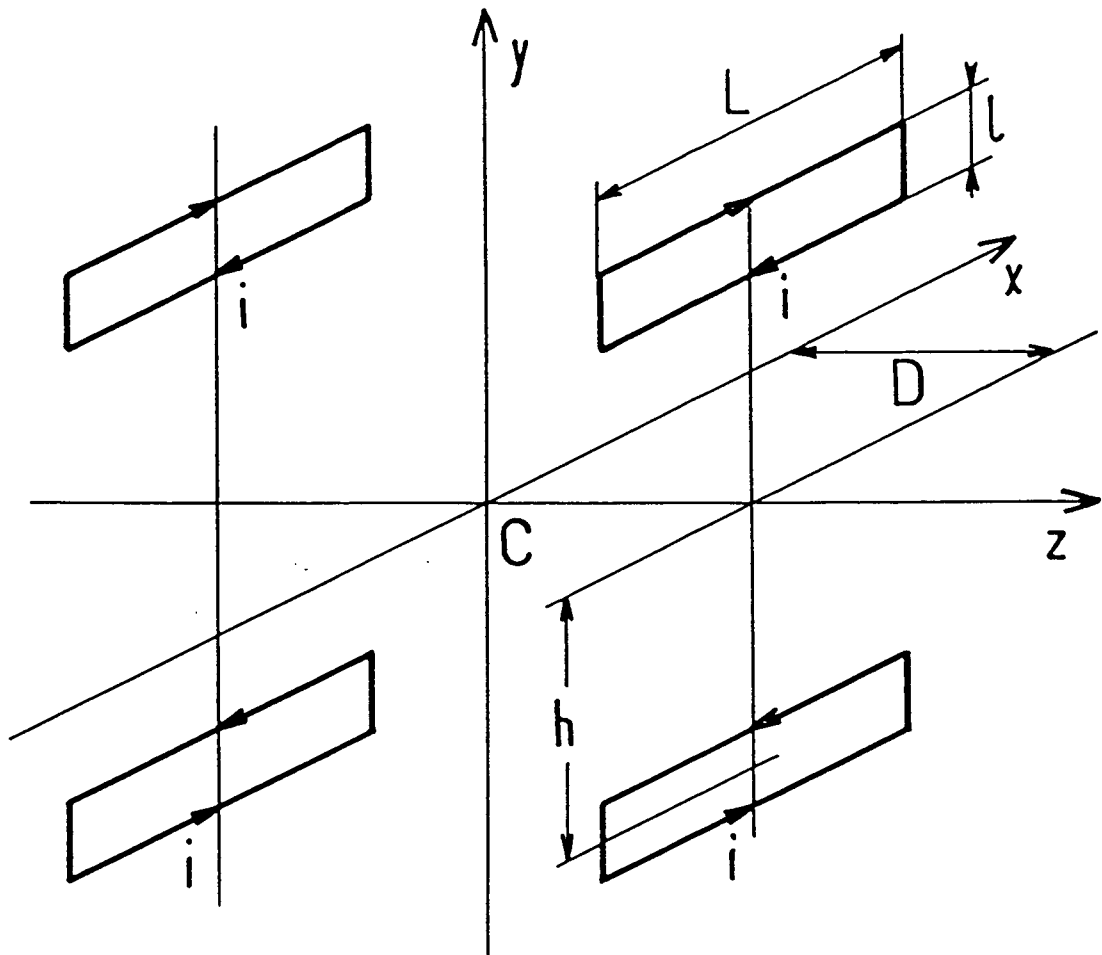
En outre, la contribution de chacun des modes à la relaxation est, comme dans (I-7), proportionnelle à  $\frac{1}{D}$ , de sorte qu'on peut écrire (I-6) sous la forme :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{\Lambda}{D} \quad (\text{I-8})$$

où le coefficient  $\Lambda$  ne dépend que de la carte du champ et de la forme géométrique de la cellule.

#### I.B.2.b - Compensation des gradients de champ

La contribution de chacune des composantes a été minimisée en utilisant un système de bobines de compensation de gra-



*Figure I-8* : Compensation du gradient de  $B_{0z}$  dans une direction transverse. Le système des quatre bobines identiques représenté ci-dessus crée au voisinage de C un champ de la forme  $B_{0z} = K.y$ . Avec  $h = 20$  cm,  $D = 16$  cm,  $L = 35$  cm,  $l = 2,5$  cm, et 40 tours de fil par bobine, le gradient réalisé est de 4,6 mG/cm pour un courant  $i = 1$ A.

dients. Par exemple, on a schématiquement représenté sur la figure I-8 les quatre bobines qui, tout en laissant disponible l'accès optique, créent au centre de la cellule un champ magnétique vérifiant  $B_0 = 0$ ,  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial x} = \frac{\partial B_{0z}}{\partial z} = 0$ , mais  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial y} \neq 0$ .

Un montage analogue a été réalisé pour  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial x}$ . Enfin, le gradient suivant  $z$  a été compensé à l'aide de deux bobines circulaires d'axe Cz, connectées en opposition. Toutes ces bobines sont placées à l'extérieur de la boîte contenant le cryostat ; elles créent sur la cellule des gradients assez homogènes, la compensation est donc efficace pour toutes les inhomogénéités dues à des sources de champ assez éloignées de la cellule. D'ailleurs, il a été observé que le réglage de la compensation ne dépend pas de la température en-dessous de 1,2K. La valeur minimale de  $1/T_2$  obtenue correspond à l'annulation des termes d'ordre 1 dans le développement des inhomogénéités de  $\vec{B}_0$  (équation I-5).

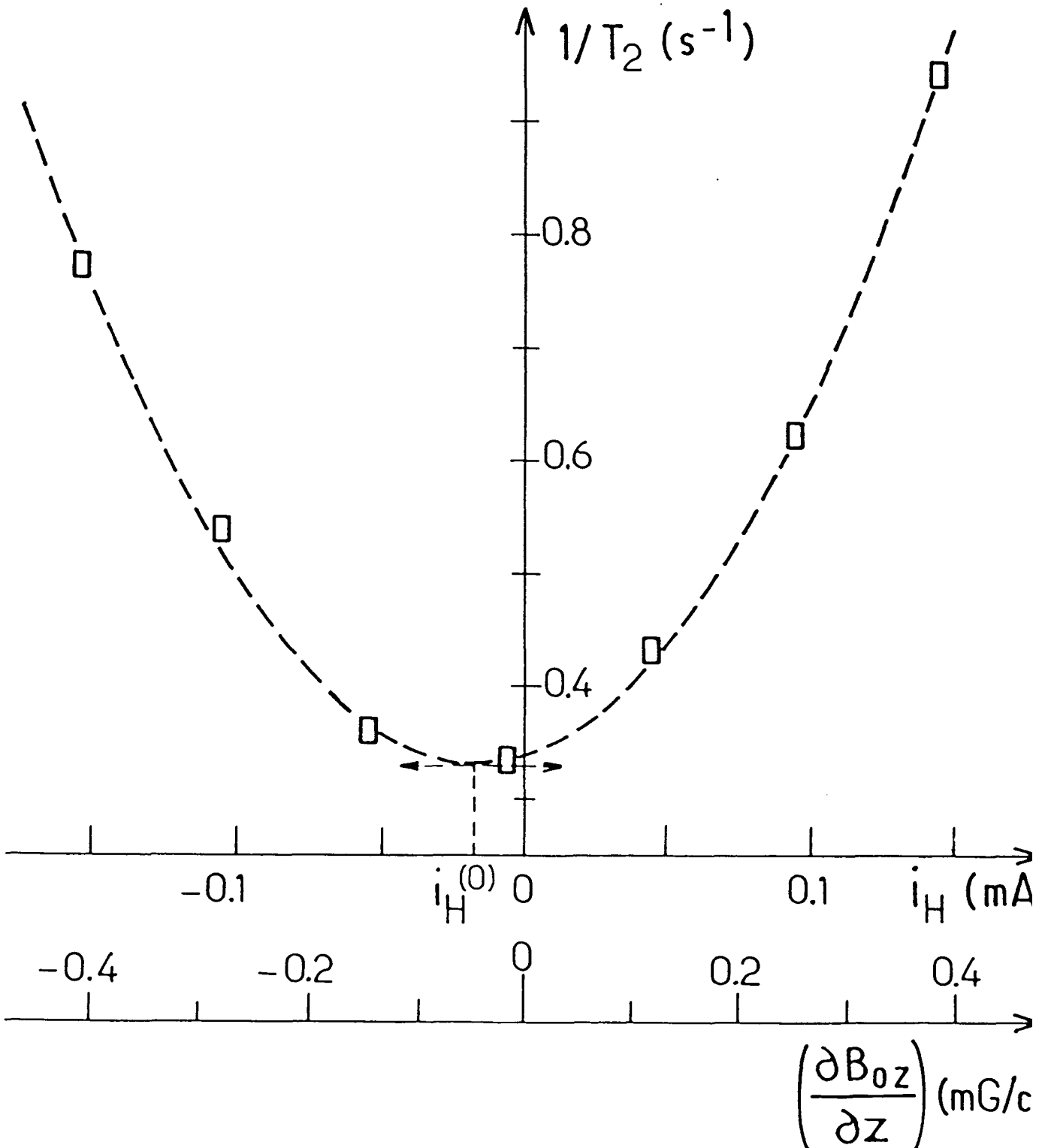
Au cours du réglage de la compensation, la dépendance quadratique de  $1/T_2$  en fonction du gradient et, partant, du courant alimentant les circuits a été vérifiée expérimentalement. La figure I-9 présente, à titre d'exemple, les résultats obtenus pour la composante  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}$  à la température  $T = 0,56$  K. ( $1/T_2$ ) est représenté en fonction du courant  $i_H$  traversant les bobines : c'est une parabole. La valeur du gradient a été étalonnée in situ, en connectant ces bobines en série et en mesurant le déplacement de la fréquence de Larmor  $\omega_0$  en fonction de  $i_H$ . Le résultat quantitatif est :

$$\frac{\partial B_{0z}}{\partial z} = 2,66 \pm 0,1 \text{ mG/cm pour } i_H = 1 \text{ mA} \quad (\text{I-9})$$

L'incertitude élevée provient principalement du peu de précision concernant la géométrie des bobines.

La détermination de l'approximation parabolique la meil-

Figure I-9 : Variations de  $(1/T_2)$  en fonction du gradient de champ  $\left(\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}\right)$  appliqué sur l'échantillon par les bobines de compensation. La courbe en trait interrompu est la meilleure approximation parabolique des points expérimentaux : le courant  $i_H^{(0)} = -0,017 \text{ mA}$  correspond à la compensation optimale.





leure qui est représentée figure I-9 conduit d'une part à la valeur optimale de  $T_2$ , soit 3,00 s, d'autre part au réglage optimal du courant de compensation, ici  $i_H^{(0)} = -17 \mu\text{A}$ , ce qui correspond à la compensation d'un gradient initial inférieur à  $10^{-5} B_0$  sur l'ensemble de la cellule ( $4,5 \times 10^{-5} \text{ G/cm}$ ), ce qui est en accord avec l'homogénéité précédemment annoncée.

### I.B.2.c - Coefficient de diffusion du spin

De plus, la parabole de la figure I-9 donne directement en fonction de  $\left(\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}\right)$ , soit, d'après l'équation (I-7), la valeur du rapport  $R^4/D$ . On peut donc mettre à profit ces mesures pour déterminer le coefficient de diffusion du spin dans  $^3\text{He}$  et d'un spin de  $^3\text{He}$  dans  $^4\text{He}$ . En-dessous de 1,7K ces grandeurs n'ont pas à notre connaissance fait l'objet de mesures expérimentales. Une partie du chapitre II est consacrée à cette détermination. Citons simplement ici le résultat extrait de la courbe I-9 exploitée isolément. Prenant  $R = 1,32 \pm 0,03 \text{ cm}$  pour rayon intérieur moyen de la cellule, on obtient :

$$\frac{1}{D} = 5,7 \times 10^{-2} \pm 0,9 \times 10^{-2} \text{ s cm}^{-2} \quad (\text{I-10})$$

### I.B.3 - Les variations de $T_2$ avec la température

Les variations de  $T_2$  avec la température sont dues, d'une part aux variations des inhomogénéités de champ magnétique sur la cellule, d'autre part aux variations du temps de diffusion  $\tau_D$  ( $= \tau_D^{110}$ ) -- ou du coefficient de diffusion de spin  $D$  -- d'un atome de  $^3\text{He}$  dans la phase gazeuse de la cellule.

Il a déjà été évoqué que le réglage des compensations de gradient, effectué à différentes températures en-dessous de 1,2K, ne dépend pas de la température. Des mesures ont également été effectuées à 4,2K, et à 77K et 300K lorsque c'est possible, c'est-à-dire lorsque la cellule ne contient pas de molécules d'hydrogène (la présence de celles-ci dans la phase gazeuse, en éliminant les atomes métastables [Barbé, 1977], rend inopérant le

processus de pompage optique). Les réglages de compensation sont quelquefois différents, mais les variations sont faibles et toujours compatibles avec les variations que l'on peut prévoir d'après le magnétisme de notre appareillage entre 300K et 1K, inférieur à  $0,3 \text{ mG cm}^{-1}$ .

A carte de champ magnétique inchangée, les variations de  $1/T_2$  avec  $T$  sont, conformément à l'équation (I-9), proportionnelles à  $1/D$ . Ces variations combinent deux facteurs qui changent avec la température :

- La densité de la phase vapeur, dont la dépendance en  $T$  est imputable principalement à la condensation de l'hélium-4.
- Les sections efficaces de diffusion He-He, dont la dépendance en  $T$  a été étudiée au-dessus de 2K [Bendt, 1958 ; du Bro, 1970 ; Barbé et al., 1974] et qui ont été calculées à plus basse température.

Les mesures effectuées à 4,2K, 77K et 300K sont en bon accord avec les résultats des expériences antérieures (voir chapitre II). Nous nous limiterons dans ce paragraphe à l'étude qualitative des variations de  $T_2$  avec  $T$  dans la gamme de températures 1K  $\leftrightarrow$  0,5K, c'est-à-dire au voisinage de la température  $T_0$  à laquelle la densité du gaz  $^4\text{He}$  fixée à 300K devient égale à la densité de vapeur saturante.

La courbe de la figure I-10 présente les résultats obtenus pour la cellule typique étudiée dans ce chapitre. Pour faciliter la comparaison avec les mesures de  $T_1$  (§ I.C),  $1/T$  a été porté en abscisses. L'ordonnée,  $1/T_2$ , est directement proportionnelle au temps de diffusion dans la cellule. A  $T = 1\text{K}$ ,  $T_2$  est de l'ordre de 1,64 s. Lorsque  $T$  diminue,  $1/T_2$  augmente lentement puis diminue rapidement lorsqu'on atteint le voisinage de la température de condensation  $T_0$  définie au § I.A.1 ( $1/T_0 = 1,33 \text{ K}^{-1}$ ) représentée par la droite verticale continue sur la figure I-10. Cette diminution correspond à la condensation de  $^4\text{He}$  dont on peut suivre la progression. Pour  $T \simeq 0,57\text{K}$  le

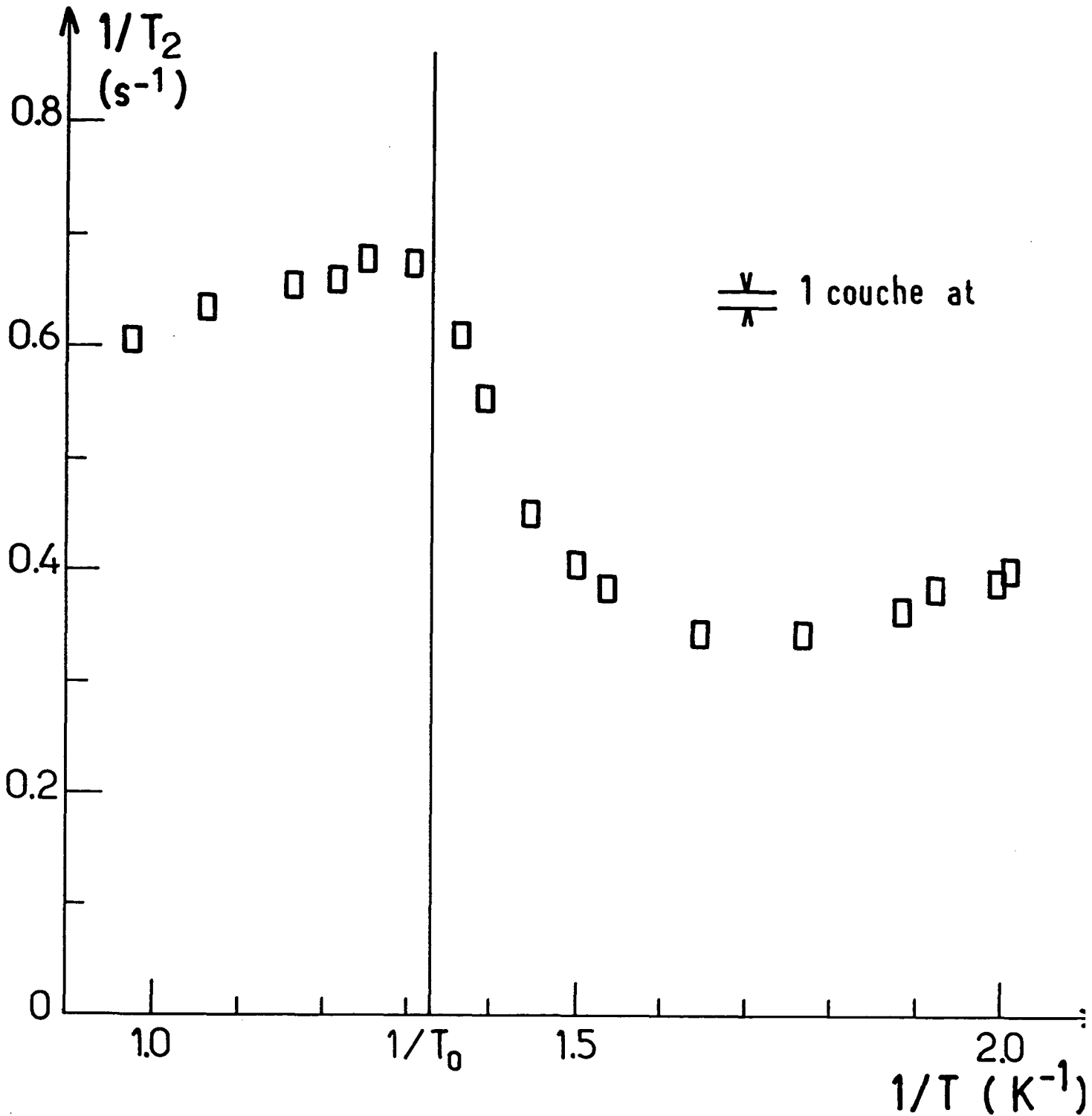


Figure I-10 : Variations de  $T_2$  avec la température.  $T_0$  correspond à la température de condensation définie au § I.A.1. On a indiqué sur la figure l'effet qu'aurait sur la valeur de  $T_2$ , au voisinage de  $T_0$ , la suppression dans la phase gazeuse du nombre d'atomes nécessaire pour déposer sur la paroi une couche atomique complète supplémentaire d'hélium-4.

minimum de  $1/T_2$  est atteint ( $T_2 \approx 3,00$  s). La phase vapeur est essentiellement composée de  $^3\text{He}$  et la densité ne varie plus. A des températures plus basses  $1/T_2$  augmente à nouveau lentement si  $T$  diminue.

Les variations de  $1/T_2$  pour  $T > 0,80\text{K}$  et  $T < 0,57\text{K}$  correspondent qualitativement aux variations du coefficient de diffusion : la densité gazeuse varie peu. Inversement, dans la zone  $0,57\text{K} < T < 0,80\text{K}$  la condensation de  $^4\text{He}$  est le phénomène dominant. Mais pour déterminer quantitativement les densités atomiques  $d_4(T)$  et  $d_3(T)$  de  $^4\text{He}$  et  $^3\text{He}$  en phase vapeur, à l'aide de la relation

$$\frac{1}{D(T)} = \frac{d_3(T)}{D_{33}(T)} + \frac{d_4(T)}{D_{34}(T)} \quad (\text{I-11})$$

il faut connaître les variations avec  $T$  de  $D_{33}$  et  $D_{34}$  à densité donnée. Les résultats des calculs théoriques [Monchick et al., 1965 ; Lhuillier, 1983] semblent très sensibles à l'allure à très longue distance du potentiel d'interaction entre atomes d'hélium : c'est le domaine des très faibles énergies d'interaction. On ne peut donc directement utiliser ces résultats théoriques pour déduire  $d_4(T)$  sans vérification ( $d_3(T)$  reste à peu près constant). Au contraire, on se propose au chapitre II de déterminer les sections efficaces de diffusion à partir des mesures de  $1/T_2$  effectuées sur différentes cellules.

Montrons néanmoins que la mesure de  $1/T_2$  est assez sensible pour détecter la condensation d'une faible quantité de  $^4\text{He}$  : dans l'exemple mentionné dans ce paragraphe, la quantité totale de  $^4\text{He}$  permet de former, sur la paroi, 37 couches atomiques complètes. Il apparaît sur la figure I-10 que la disparition totale de la phase gazeuse de  $^4\text{He}$  se traduit par une variation de  $1/T_2$  de l'ordre de  $0,4 \text{ s}^{-1}$ . La précision des mesures de  $T_2$  approche  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . La disparition de la phase gazeuse du continu d'une ou deux couches de  $^4\text{He}$  formées sur la paroi est donc en principe détectable.

I.C - MESURE DU TEMPS  $T_1$  DE RELAXATION LONGITUDINALE  
ENTRE 1K ET 0,5K

I.C.1 - La procédure de mesure de  $T_1$

I.C.1.a - Optimisation du montage R.M.N.

Le déroulement général de la procédure de mesure du temps  $T_1$  de relaxation longitudinale est le suivant : le pompage optique est effectué vers 0,6K pendant deux à trois minutes ; après extinction de la décharge la température est ajustée et stabilisée, avec une incertitude de 10 à 20 mK environ, à la valeur à laquelle on se propose de déterminer  $T_1$  ; l'aimantation du gaz est alors mesurée à intervalles de temps réguliers. On effectue de trois à six mesures, étalées dans le temps sur une durée totale de l'ordre de deux fois la valeur attendue pour  $T_1$ . Les résultats sont dépouillés en ajustant une loi exponentielle dont  $T_1$  est paramètre :

$$M_{\parallel}(t) = M_z(t) = M_z(0) \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right) \quad (\text{I-12})$$

L'aimantation est mesurée en effectuant un "passage adiabatique rapide" sur la résonance magnétique nucléaire comme il a été exposé au § I.A.3. Les bobines inductrices créent le champ de radiofréquence :

$$\vec{B}_1 = B_1 \vec{e}_y \cos(\omega t) \quad (\text{I-13})$$

perpendiculaire à  $\vec{B}_0$ . Les bobines réceptrices recueillent le signal électrique de pulsation  $\omega$  induit par le champ magnétique créé par les spins nucléaires lorsque, en balayant le champ  $\vec{B}_0$  autour de la valeur de résonance  $B_0^r$ , avec

$$B_0^r = \frac{\omega}{\gamma} \quad (\text{I-14})$$

on fait basculer leur orientation sur l'axe Cz.

On trouve dans Abragam [1961], par exemple, les conditions précises dans lesquelles doit s'effectuer cette opération. Une "perte d'orientation" à chaque passage est inévitable :

■ Lorsqu'on est proche de la résonance, c'est-à-dire lorsque

$$\left| B_0 - B_0^r \right| < B_1 \quad (\text{I-15})$$

le champ effectif vu par les spins dans le référentiel de Larmor associé à  $\vec{B}_0$  a une composante transverse. Si l'orientation a suivi le champ effectif, elle a également une composante transverse qui relaxe avec la constante de temps  $T_2$ , en général très courte devant  $T_1$ . Pour minimiser la perte d'orientation il faut que le temps passé "à résonance" soit court devant  $T_2$ , soit :

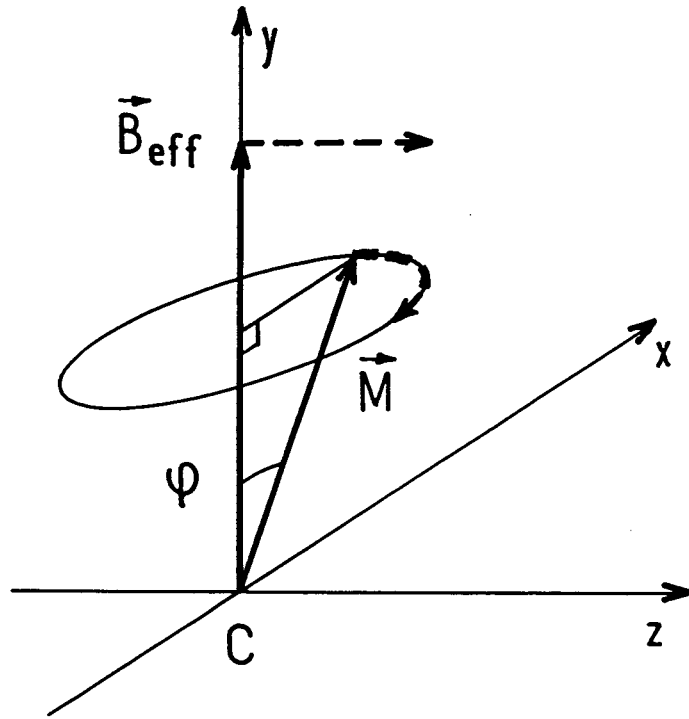
$$\frac{1}{T_2} \ll \frac{1}{B_1} \cdot \frac{dB_0}{dt} \quad (\text{I-16})$$

■ La variation de  $B_0$  doit d'autre part être suffisamment lente pour que l'orientation suive le champ effectif, c'est-à-dire que l'angle entre la direction de l'aimantation et celle du champ effectif reste constant au cours du processus. Si ce n'est pas le cas, cet angle, initialement nul lorsqu'on est loin de résonance, ne le sera plus pendant et après le basculement, ce qui fausse la mesure de l'amplitude au passage à résonance. Pour cela, il faut maintenir la vitesse angulaire de variation du champ effectif plus faible que la pulsation de précession des spins autour du champ effectif, ce qui, à résonance, conduit à l'inégalité :

$$\frac{1}{B_1} \cdot \frac{dB_0}{dt} \ll \gamma B_1 = \omega_1 \quad (\text{I-17})$$

■ De façon plus précise, il existe nécessairement, à résonance, un petit angle  $\varphi$  entre l'orientation et le champ effectif ; la valeur de  $\varphi$  peut être obtenue en exprimant que la vitesse de l'extrémité de l'aimantation qui est due à la précession autour du champ effectif  $B_{eff}$  doit être au moins égale à la vitesse de

Figure I-11 : La situation respective de  $\vec{B}_{eff}$  et  $\vec{M}$  au moment du passage à résonance. Pour un balayage en sens inverse,  $\vec{M}$  serait dans le demi-espace  $\{x \leq 0\}$ .



basculement nécessaire pour suivre le mouvement de  $B_{eff}$ . Cette inégalité s'écrit (figure I-11) :

$$M \cdot \varphi \cdot \omega_1 \geq M \cdot \frac{1}{B_{eff}} \cdot \frac{dB_0}{dt} \quad (I-18)$$

soit :

$$\varphi \geq \frac{1}{\gamma B_1^2} \frac{dB_0}{dt} \quad (I-19)$$

La perte minimum d'orientation est alors, en valeur relative :

$$1 - \cos\varphi \simeq \frac{\varphi^2}{2} \quad (I-20)$$

On ne peut hélas, augmenter indéfiniment  $B_1$  et  $\frac{dB_0}{dt}$  comme le suggèrent les inégalités précédentes. D'une part les inhomogénéités du champ de radiofréquence, qui croissent avec  $B_1$ , augmenteraient rapidement le taux de relaxation transverse  $1/T_2$ . D'autre part la variation de  $B_0$  autour de  $B_0^r$  est réalisée à l'aide de bobines sommaires ; une amplitude de balayage trop grande empêcherait de conserver la bonne homogénéité du champ statique qui est nécessaire pour que  $1/T_2$  reste faible.

#### I.C.1.b - Exemple de résultat expérimental

En pratique, les conditions suivantes ont été généralement retenues :

- amplitude de balayage du champ  $B_0$  :

$$\Delta B_0 = \pm 111 \text{ mG} \quad \text{soit} \quad \Delta \omega_0 = \pm 360 \text{ Hz}$$



- amplitude de la composante résonnante du champ  $\vec{B}_1$  (\*) :

$$B_1 = 4 \text{ mG} \quad \text{soit} \quad \omega_1 = 12,8 \text{ Hz}$$

- durée du balayage : 5 s.

La tension induite par l'orientation transverse dans le circuit résonnant de détection est, après compensation du parasite, amplification, filtrage, présentée aux bornes d'entrée de la détection synchrone fonctionnant à la fréquence  $\omega$  (fréquence de  $\vec{B}_1$ ). Le réglage de l'accord de phase est effectué en cherchant à rendre maximale l'amplitude du signal observé sur la sortie "phase". L'amplitude du signal détecté "en quadrature" mesure la non-adiabaticité du passage, il est donc lié à la perte d'orientation. Le comportement des signaux par inversion du sens de balayage est connu, et mis à profit pour le réglage : le signal en phase est pair, le signal en quadrature est impair (voir figure I-12).

La tension détectée  $U_{\text{dét.}}$  sur chaque voie est échantillonnée toutes les 5 millisecondes dans un enregistreur numérique, puis restituée à rythme lent sur une table traçante pour dépouillement manuel, ou transmise au microordinateur. Celui-ci recherche la meilleure approximation à la courbe enregistrée, selon la formule théorique

$$U_{\text{dét.}}(\omega_0) \propto \frac{M \omega_1}{\sqrt{\omega_1^2 + (\omega_0 - \omega)^2}} \quad (\text{I-21})$$

après avoir soustrait un parasite continu éventuel lentement variable avec  $\omega_0$ . Dans les conditions décrites précédemment, l'échantillonnage effectué assure que près de quatre cents points

---

(\*)  $\vec{B}_1$ , créé par des bobines inductrices en position de Helmholtz (figure I-5) possède, outre la composante (I-13), une composante anti-résonnante tournant dans l'autre sens dont on peut négliger l'effet.

---

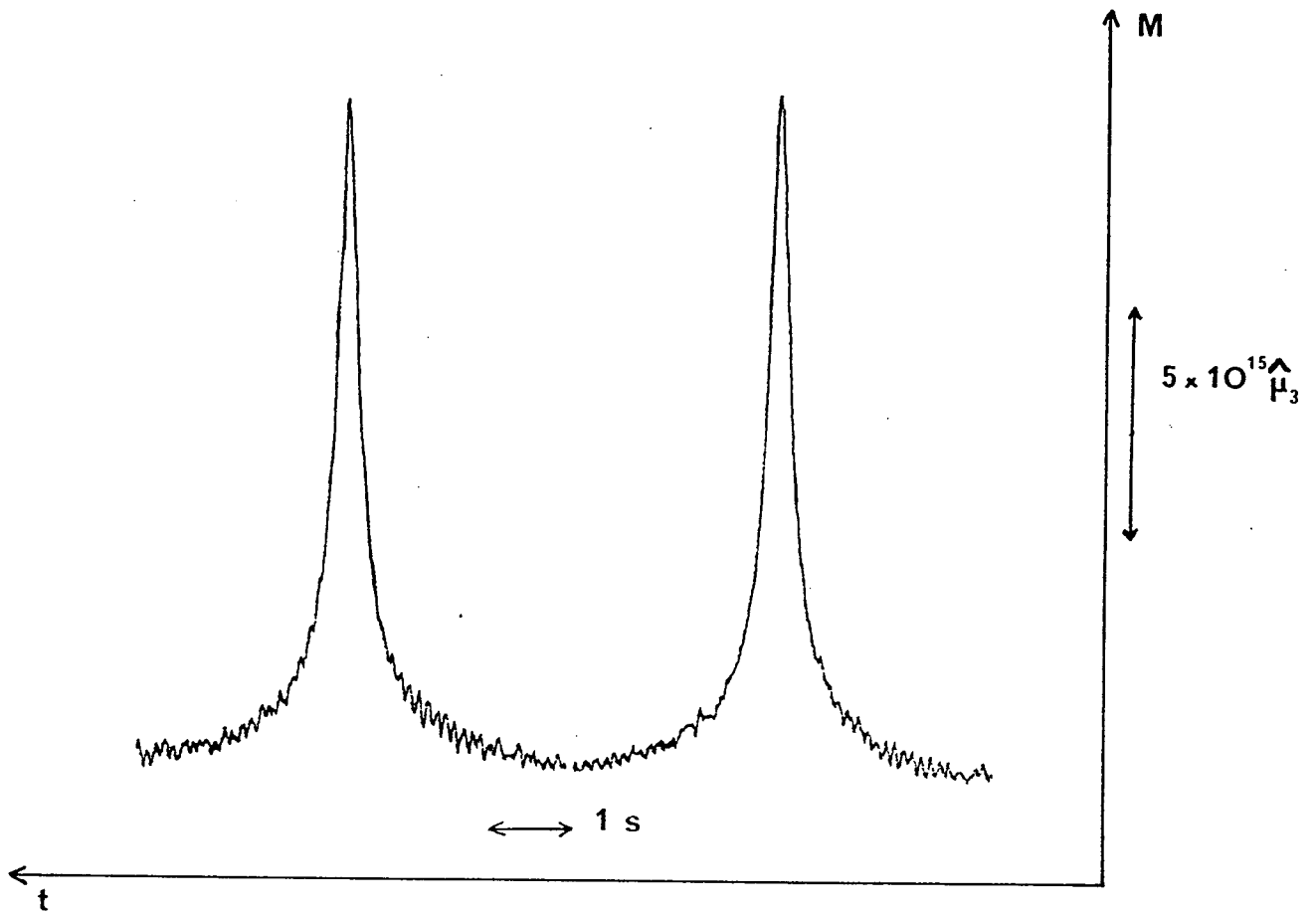


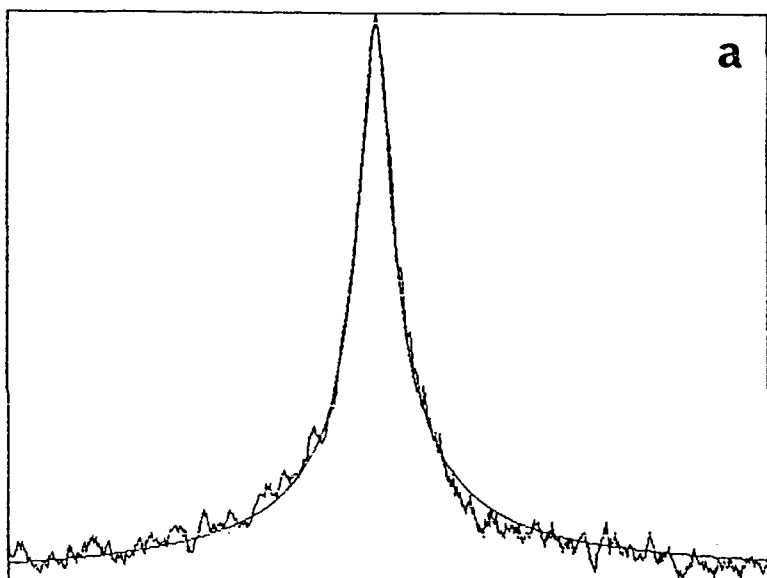
Figure I-12 : Enregistrement caractéristique d'un passage adiabatique rapide sur la R.M.N.. Le signal détecté correspond à un taux d'orientation de 1,6%.  $\hat{\mu}_3$  est la valeur du moment magnétique nucléaire d'un atome  ${}^3\text{He}$ , soit 2,128 fois le magnéton de Bohr nucléaire  $\mu_N$ . La constante de temps de l'intégrateur de sortie est  $\tau_{DS} = 30 \text{ ms}$ .

sont enregistrés lorsque le signal est compris entre  $M_{//}/10$  et  $M_{//}$ , alors qu'à l'extrémité du domaine de balayage, le signal est trente fois plus faible qu'à résonance. Un exemple de courbe obtenue sur table traçante pour un enregistrement caractéristique -- un passage aller  $\frac{dB_0}{dt} > 0$  suivi d'un passage retour  $\frac{dB_0}{dt} < 0$  -- est présenté sur la figure I-12. Une détection "aller" puis "retour" permet de s'affranchir d'une dissymétrie éventuelle des signaux consécutive à un mauvais réglage de phase ou à une dérive de celui-ci. La perte d'orientation par passage, mesurée par ailleurs en effectuant des passages successifs, dépend faiblement de  $T$  au travers de  $T_2$ . Dans les conditions évoquées ci-dessus elle est de 3,6% à 0,66K.

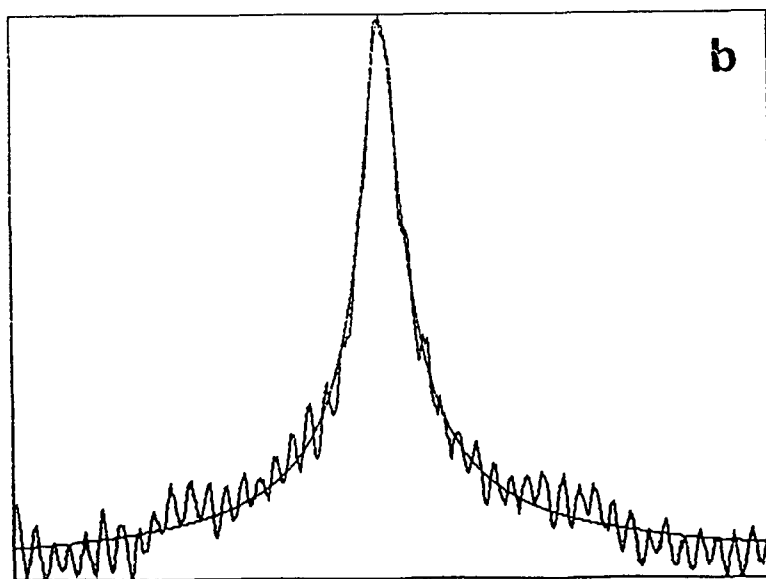
La courbe de la figure I-12 a été enregistrée en réglant à  $\tau_{Ds} = 30$  ms la constante de temps de l'intégrateur de sortie de la détection synchrone. Dans de telles conditions, le rapport signal sur bruit est proche de 80 ; le taux d'orientation des atomes est ici de 1,6%. La composante principale du "bruit" est une modulation irrégulière périodique du parasite résultant du couplage non-nul entre les paires de bobines croisées : cette modulation provient des vibrations transmises par la pompe de circulation du réfrigérateur à  $^3\text{He}$  à l'équipage des bobines. S'y superposent d'autres parasites électriques créés par les alimentations à découpage des lasers à gaz du laboratoire, en particulier le laser à  $\text{Kr}^+$  utilisé dans ce travail.

Il n'a pas toujours été possible de s'affranchir de ces parasites, en coupant la pompe, l'alimentation du laser, etc. Néanmoins, leur présence n'est pas très gênante lorsque leur fréquence est suffisamment grande pour permettre un bon moyennage. Sur la figure I-13 sont présentés deux exemples de dépouillement numérique selon la relation (I-21). Ils permettent d'apprécier, d'une part la bonne correspondance entre les signaux et leur forme théorique, d'autre part la qualité du moyennage des parasites effectué. L'écart quadratique moyen des points à la meilleure approximation algébrique du signal est double dans le cas de la courbe I-13b de l'écart correspondant à la courbe I-13a. Il en est bien sûr tenu compte dans l'appréciation de la

Figure I-13 : Dépouillement numérique des données. La courbe régulière superposée au signal correspond à la meilleure approximation des 1000 points expérimentaux suivant la formule (I-21) [on a autorisé, de plus, l'existence d'un fond continu lentement variable]. L'écart quadratique moyen des points à la courbe calculée vaut respectivement 6 et 10  $\ell.s.b.$  pour les enregistrements (a) et (b). L'amplitude



des deux signaux est identique (300  $\ell.s.b.$ ); elle correspond à la détection de  $2,3 \times 10^{16}$  moments magnétiques nucléaires  $\hat{\mu}_3$ , soit  $P = 2,9\%$ . La constante de temps est  $\tau_p = 30$  ms. L'origine de l'oscillation parasite présente sur la figure I-13-b est indiquée dans le texte.



barre d'erreur affectée au résultat.

Des enregistrements analogues à I-12 sont effectués à intervalles réguliers et permettent de suivre la décroissance de l'aimantation initiale. Le caractère exponentiel de la relaxation a été systématiquement vérifié ; pour déterminer  $T_1$  -- graphiquement ou numériquement -- on tient compte de la fraction d'aimantation perdue à chaque passage.

Pour la cellule particulière choisie pour illustrer ce chapitre, nous avons mesuré à 0,66K la valeur  $T_1 = 1220 \pm 70$  s. La barre d'erreur de  $\pm 6\%$  donnée ici concerne seulement l'incertitude de la mesure expérimentale associée à l'enregistrement particulier dont les premières courbes sont données sur la figure I-12. La reproductibilité des mesures sera évoquée plus en détail au chapitre V.

Le premier résultat important est donc que la présence de  $^4\text{He}$  permet d'obtenir des temps de relaxation  $T_1$  longs, de l'ordre de 20 minutes. Rappelons que sur l'hydrogène nu, une extrapolation des résultats de V. Lefevre [1984] à basse température, effectuée sans précautions, donnerait  $T_1 \approx 10^{-11}$  s ! En tenant compte de la saturation progressive de la couche de  $^3\text{He}$  adsorbée sur la paroi, telle qu'elle a été vue par C. Lusher [1985], on obtiendrait pour  $T_1$  une valeur de l'ordre d'une dizaine de secondes. La présence de  $^4\text{He}$  permet donc une amélioration significative. Cet effet peut être rapproché d'expériences effectuées sur le liquide  $^3\text{He}$  : l'introduction d'une petite quantité de  $^4\text{He}$  qui se localise entre la paroi et le liquide  $^3\text{He}$  a entraîné un allongement notable du  $T_1$  de l'échantillon [Godfrin et al., 1978, 1980 ; Hammel et Richardson, 1984 ; Chapellier et Schuhl, 1984].

## I.C.2 - Les variations de $T_1$ avec la température

### I.C.2.a - Résultats expérimentaux

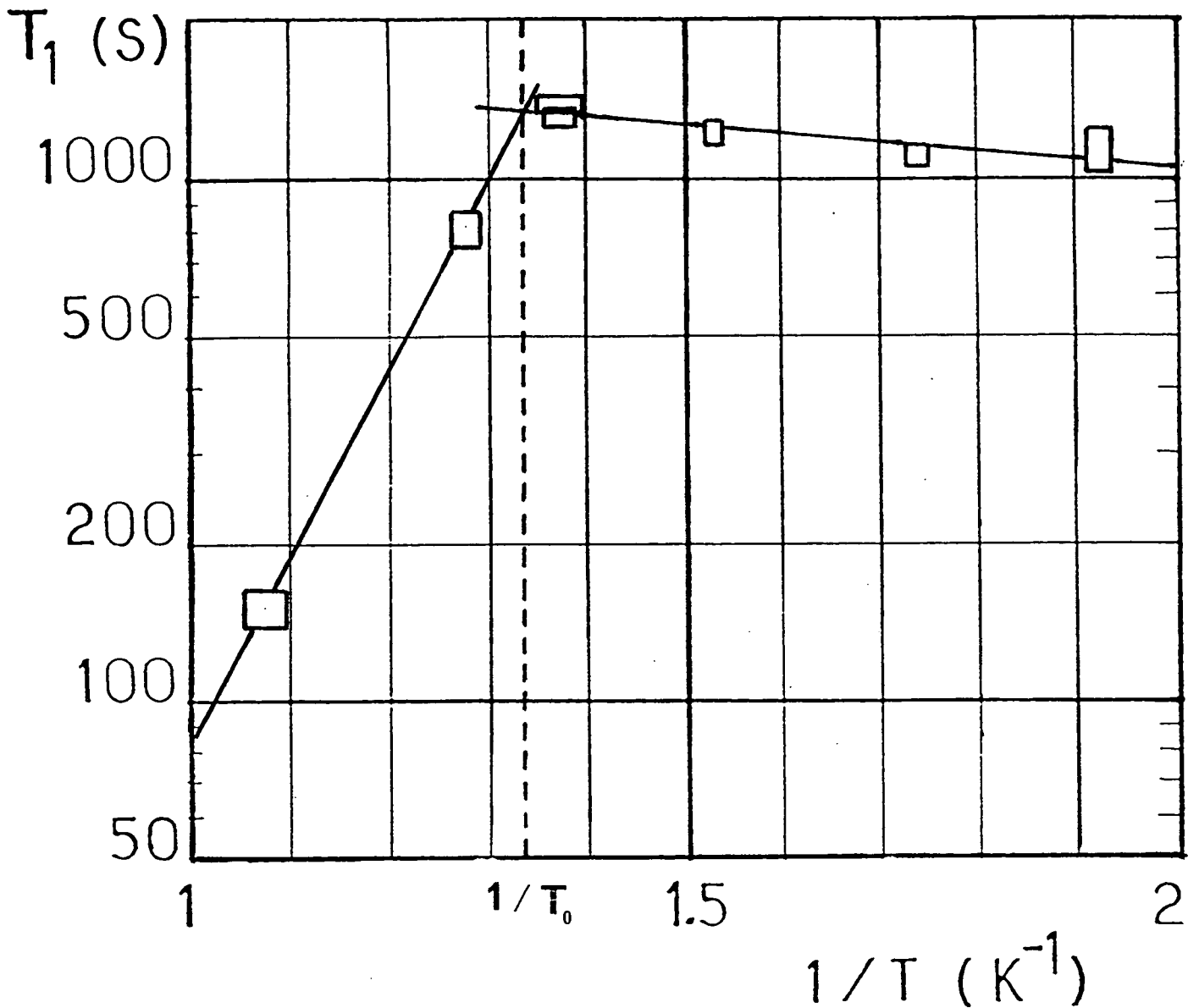
L'étude des variations de  $T_1$  avec la température  $T$  est intéressante à plusieurs titres. Tout d'abord, elle permet de

connaître le domaine de température dans lequel l'enduit de  $^4\text{He}$  est efficace pour conserver l'orientation de  $^3\text{He}$ . De plus, pour obtenir des temps de relaxation aussi longs que possible, il est souhaitable d'en comprendre l'origine. A cet égard, la variation de  $T_1$  avec  $T$  est un élément important à discuter.

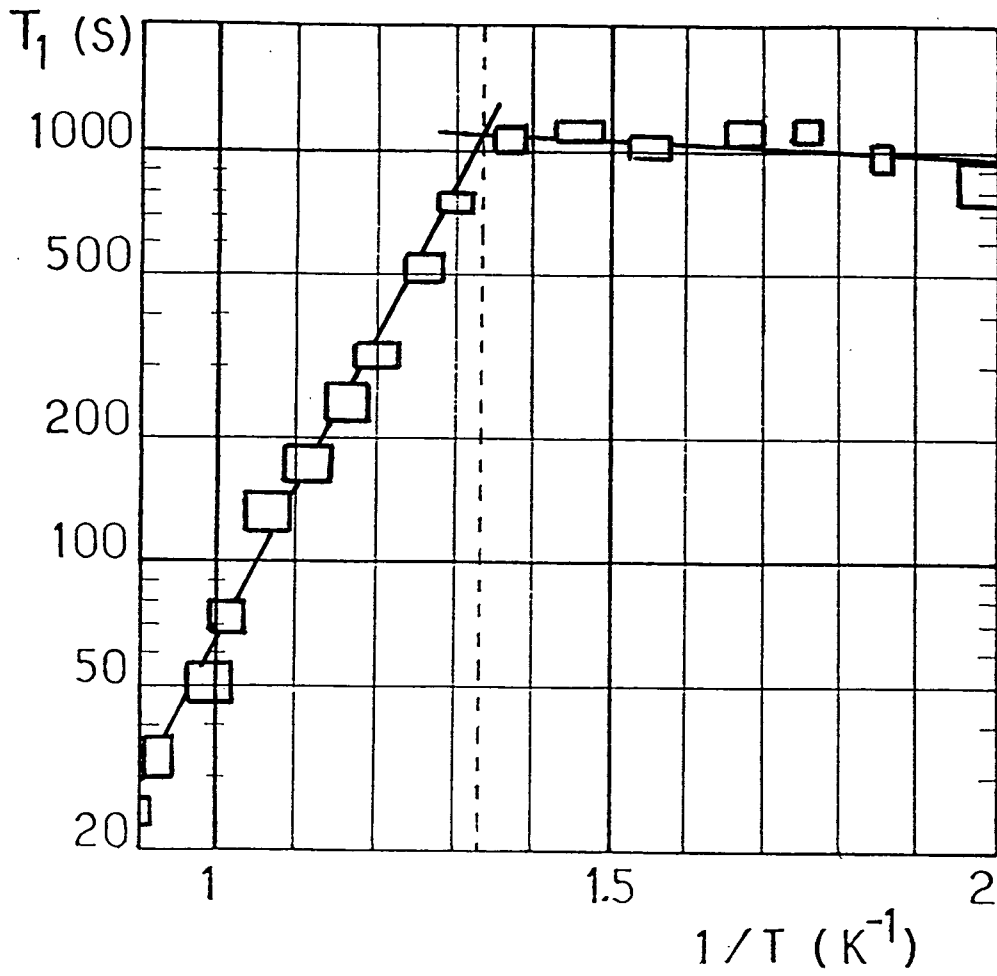
Pour présenter les résultats, nous porterons  $\ln(T_1)$  ou  $\log_{10}(T_1)$  en fonction de  $1/T$ . En effet, dans le cas où la relaxation des spins résulte d'une adsorption des atomes sur la paroi, on obtient alors une droite dont la pente donne accès à l'énergie d'adsorption [Lefevre, 1984].

La courbe de la figure I-14 réunit, entre 0,5K et 1K, les valeurs de  $T_1$  que nous avons mesurées pour la cellule contenant le mélange décrit au § I.A.1.b.  $T_1$  est de l'ordre d'une minute vers 1K, très court au-dessus de 1,1K.  $T_1$  augmente rapidement et régulièrement lorsqu'on abaisse la température jusqu'à 0,75K, atteignant 22 minutes (1300 s).  $T_1$  décroît ensuite lentement pour atteindre 1100 s à 0,5K (la plus basse température accessible à l'expérience). Le trait vertical interrompu limitant les deux parties de la courbe correspond à  $T = T_0 = 0,75\text{K}$  ;  $T_0$  est la température de condensation définie au § I.A.1.

Dans chacun des deux domaines "haute" et "basse" température ( $T \geq T_0$  et  $T \leq T_0$ ), les variations de  $\ln(T_1)$  avec  $1/T$  sont approximativement linéaires. Les valeurs des pentes des droites représentant sommairement les variations de  $T_1$  sont, dans ces deux régions, +8,7K et -0,3K. L'allure des variations de  $\ln(T_1)$  avec  $1/T$  est étudiée de façon plus détaillée au chapitre V ; la figure I-15 montre, à titre d'exemple, les résultats obtenus avec un échantillon de même teneur en  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$ , mais contenant moins d'hydrogène ( $p_2 = 0,34$  torr à 300K au lieu de 1,50). La faible valeur de la pente observée aux températures les plus basses est particulièrement intéressante : si elle se maintenait à un tel niveau au-delà de la zone que nous avons pu étudier, on pourrait obtenir à 0,3K des temps de relaxation aussi longs que 700 s. Cependant d'autres phénomènes comme la condensation de  $^3\text{He}$  sur la paroi invalident à coup sûr cette extrapolation.



*Figure I-14 : Variations de  $T_1$  avec la température : les valeurs de  $T_1$  ont été représentées, en échelle logarithmique, en fonction de  $1/T$ . La verticale en trait interrompu correspond à la température de condensation  $T_0$ . Les droites joignant les points expérimentaux dans les deux zones limitées par  $T_0$  ont des pentes respectivement égales à  $+8,7K$  et  $-0,3K$ .*



*Figure I-15 : Courbe analogue à la courbe de la figure I-14, pour une cellule de remplissage différent en hydrogène. Les pentes des droites joignant les points expérimentaux valent  $+8,6K$  et  $-0,25K$ .*



### I.C.2.b - Quelques éléments d'interprétation

Malgré sa simplicité apparente, le comportement de  $T_1$  en fonction de  $1/T$  n'est pas facile à interpréter. Le chapitre V est entièrement consacré à ce sujet, et le paragraphe qui suit ne doit être considéré que comme une présentation des principaux éléments de réflexion.

#### *α) Dans la zone "basse température"*

Pour  $1/T > 1/T_0$ , un film de  $^4\text{He}$ , de plus en plus épais lorsque  $T$  diminue, est condensé sur la paroi de la cellule. Dès  $T = 0,70\text{K}$  on peut affirmer que plus de la moitié des atomes est dans la phase condensée : d'une part la valeur de la densité de vapeur saturante à  $0,7\text{K}$  est de moitié inférieure à la densité de remplissage de la cellule en  $^4\text{He}$  ; d'autre part cela a été expérimentalement mis en évidence lors de l'étude des variations de  $1/T_2$  avec  $1/T$  (voir § I.B.3). La quantité d'hélium alors condensée peut former plus de 19 couches uniformes sur la paroi, ou une goutte sphérique de diamètre  $0,3\text{ mm}$ , c'est-à-dire un objet macroscopique. On peut donc parler de "film épais" en équilibre avec la vapeur saturante. Pourtant, la valeur trouvée pour la pente de la droite  $\text{Ln}(T_1) = f(1/T)$ , soit  $-0,3\text{K}$ , ne correspond ni à l'énergie d'adsorption d'un atome  $^3\text{He}$  à la surface de  $^4\text{He}$ , ni à l'énergie de liaison d'un atome  $^3\text{He}$  à l'intérieur du liquide  $^4\text{He}$ , puisque ces deux grandeurs valent respectivement  $-5\text{K}$  et  $-2,8\text{K}$  (voir § I.A.1).

#### *β) Dans la zone "haute température"*

Pour  $1/T \leq 1/T_0$ , on observe une augmentation rapide de  $T_1$  lorsque la température diminue et se rapproche de  $T_0$  ; on pourrait être tenté de voir là l'effet de la formation de l'enduit de  $^4\text{He}$ , qui conduirait à une diminution de l'efficacité de la relaxation sur la paroi. Or il est frappant de constater que, pour  $1/T = 1\text{K}^{-1}$ , un film de  $^4\text{He}$  existe déjà certainement sur la paroi ; son épaisseur est de l'ordre d'une seule couche atomique. A  $T = T_0$  l'épaisseur, comme on a pu le vérifier au

§ I.B, ne s'est accrue que de deux ou trois couches au plus. Pour cette faible variation d'épaisseur  $T_1$  augmente d'un facteur 15, alors que  $T_1$  reste pratiquement constant lorsque tout le reste de  ${}^4\text{He}$  (environ 34 couches) se condense à plus basse température. Ainsi, le phénomène observé ne peut être analysé simplement en termes de croissance du film de  ${}^4\text{He}$ .

Pour mieux comprendre ces comportements, il nous faut étudier plus en détail la structure du film de  ${}^4\text{He}$  et la variation de celle-ci avec la température. Il est aussi nécessaire de mieux connaître les caractéristiques de la dynamique des  ${}^3\text{He}$  *sur* et *dans* un tel film. Ces deux points font l'objet des chapitres III et IV.



CHAPITRE II

ETUDE DU TEMPS DE RELAXATION  $T_2$  DE L'AIMANTATION TRANSVERSE



Le temps de relaxation  $T_2$  de la composante transverse de l'aimantation a été mesuré à l'aide du montage de détection radio-électrique de la R.M.N., ainsi qu'il a été exposé au I.B. Dans nos conditions expérimentales, la relaxation de l'aimantation transverse de l'échantillon est due principalement aux processus survenant en phase vapeur ; elle se distingue nettement des processus de relaxation-paroi qui pilotent le comportement de l'aimantation longitudinale.

Le mouvement de diffusion d'un atome dans le gaz se produit en un temps caractéristique court devant  $T_2$ . Un atome donné voit, au cours de ce mouvement, un champ magnétique variable qui déphase son orientation par rapport à la moyenne. La valeur exacte de  $T_2$  dépend donc à la fois des paramètres relatifs à l'homogénéité magnétique sur toute la cellule, et des paramètres associés à la diffusion.

■ L'homogénéité magnétique sur la cellule, dans nos conditions expérimentales, intervient par l'intermédiaire du gradient de la composante  $B_{0z}$  du champ statique, ainsi qu'il a été précisé au I.B. Si on suppose que ce gradient est constant, la relation fondamentale est la relation (I-7), c'est-à-dire :

$$\sum_m \left( \frac{1}{T_2} \right)_{11m} = 0,0457 \gamma^2 \frac{R^4}{D} \left[ \overrightarrow{\text{grad}} (B_{0z}) \right]^2 \quad (\text{II-1})$$

■ Le coefficient de diffusion  $D$  dans le gaz fait intervenir les densités  $d_3(T)$  et  $d_4(T)$  en phase gazeuse de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$ , et les coefficients de diffusion  $D_{33}(T)$  et  $D_{34}(T)$  d'un atome  $^3\text{He}$  dans le gaz dilué  $^3\text{He}$  et dans le gaz dilué  $^4\text{He}$ , respectivement, selon la relation (I-11), soit :

$$\frac{1}{D(T)} = \frac{d_3(T)}{D_{33}(T)} + \frac{d_4(T)}{D_{34}(T)} \quad (\text{II-2})$$

valable dans le cadre d'un développement de Chapman-Enskog [Chapman et Cowling, 1952].

Dans ce chapitre, nous décrivons les mesures systématiques de  $T_2$  effectuées, et nous en déduisons les valeurs de  $D_{33}$  et  $D_{34}$  dans la gamme de température [1K  $\leftrightarrow$  0,6K]. A notre connaissance, ce sont les premières mesures de ces grandeurs dans cette gamme de température ; la confrontation de nos résultats aux prévisions théoriques est donc particulièrement intéressante. Le plan adopté est le suivant : au II.A, on s'intéresse à la situation simple où la phase gazeuse n'est composée que de  $^3\text{He}$  de densité à peu près connue avec exactitude ; on en déduit  $D_{33}(T)$ . Au II.B, on examine le cas complémentaire où presque toute la phase vapeur est constituée de  $^4\text{He}$  en quantité connue (conditions de vapeur saturante). Les résultats correspondants donnent des informations sur  $D_{34}(T)$ . On peut alors étudier le comportement général des variations de  $T_2$  avec la température dues à la présence de  $^4\text{He}$  et montrer qu'il est compatible avec le modèle de condensation du film présenté au chapitre III. Dans chacun des cas, les résultats sont confrontés aux calculs théoriques existants des coefficients de diffusion [Lhuillier, 1983 ; Monchick et al., 1965].

II.A - MESURE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION  ${}^3\text{He}-{}^3\text{He}$   
 A BASSE TEMPERATURE

II.A.1 - La détermination directe de  $D_{33}(T)$  par application d'un gradient calibré du champ magnétique

II.A.1.a - Echantillon de  ${}^3\text{He}$  gazeux presque pur

L'application d'un gradient calibré du champ statique sur l'échantillon refroidi permet, comme il a été exposé au § I.B.2, de déterminer directement le coefficient de diffusion  $D$  par la relation (II-1) si l'on connaît les caractéristiques géométriques du système. La densité en  ${}^3\text{He}$  de la phase gazeuse,  $d_3$ , permet alors d'accéder à  $D_{33}$  par la relation (II-2). En effet, si la température est suffisamment basse, la contribution à la diffusion des traces de  ${}^4\text{He}$  encore présentes en phase gazeuse reste faible. Plus précisément, à  $T = 0,525\text{K}$ , soit  $T^{-1} = 1,90\text{K}^{-1}$ , la densité de vapeur de  ${}^4\text{He}$  vaut  $d_4 = 0,027$  torr à 300K :  ${}^4\text{He}$  représente donc généralement moins de 3% de la phase gazeuse ; estimée à partir des calculs théoriques de  $D_{33}(T)$  et  $D_{34}(T)$  (voir II.A.3.), la contribution de  ${}^4\text{He}$  au ralentissement de la diffusion n'excède pas alors 5%.

Une mesure précise des variations de  $T_2$  avec le gradient appliqué a été effectuée pour différentes cellules, à basse température ; les paramètres et les résultats correspondants ont été reportés sur le tableau (II-1).

Détaillons le calcul de  $D_{33}^{-1}(T)$  dans le cas de l'échantillon correspondant à B1, qui est la cellule typique illustrant le chapitre I. Les résultats bruts ( $1/T_2$  en fonction du courant alimentant les bobines créant le gradient de champ  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}$ ) sont présentés sur la figure I-9. La recherche de la meilleure



Nom	Rayon intérieur (cm)	Contenu nominal (torr à 300K)			T (K)	Résultats (figure)	$D_{33}^{-1}$ ( $10^{-2} \text{ s cm}^{-2}$ )
		$p_2$	$p_3$	$p_4$			
B1	1,32	1,50	1,95	2,02	0,56	I.9	$2,8 \pm 0,6$
E	1,27	0,0	0,96	1,98	0,525	II.1.a	(*) $\begin{cases} >2,2 \\ <3,9 \end{cases}$
D	1,23	0,0	0,95	4,06	0,525	II.1.b	(*) $\begin{cases} >2,7 \\ <4,9 \end{cases}$
0	1,34	0,60	2,01	2,04	0,525	II.1.c	$3,3 \pm 0,7$

Tableau II-1 : Paramètres correspondant à des échantillons utilisés pour la détermination directe de  $D_{33}(T)$  à basse température. La colonne "résultats" renvoie à la figure décrivant les résultats expérimentaux. Un commentaire spécifique aux résultats marqués d'une (\*) (cellules E et D) est donné dans l'Appendice A. Les valeurs de  $D_{33}^{-1}$  indiquées ont été rapportées à une densité de 1 torr à 300K.

approximation parabolique par la méthode des moindres carrés conduit à une valeur du coefficient directeur C :

$$C = 23,1 \pm 0,3 \text{ s}^{-1} (\text{mA})^{-2}$$

L'écart quadratique moyen entre les points extrapolés et les mesures est, exprimé en fraction d'écart-type expérimental à chaque mesure, 1,85. On retient donc :  $\Delta C/C \approx 2,5\%$ .

La détermination du rayon intérieur de la cellule R n'est pas simple. Diverses méthodes ont été utilisées : remplissage de

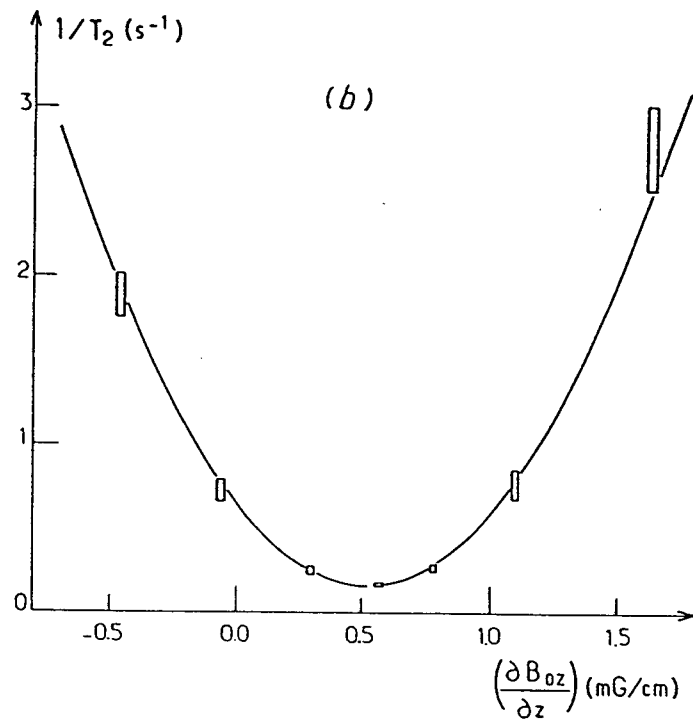
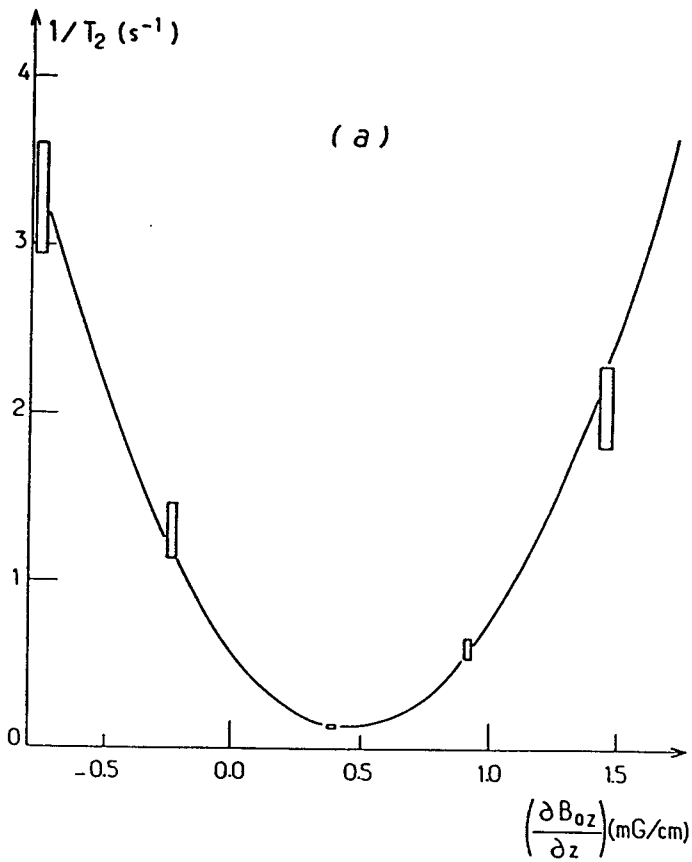
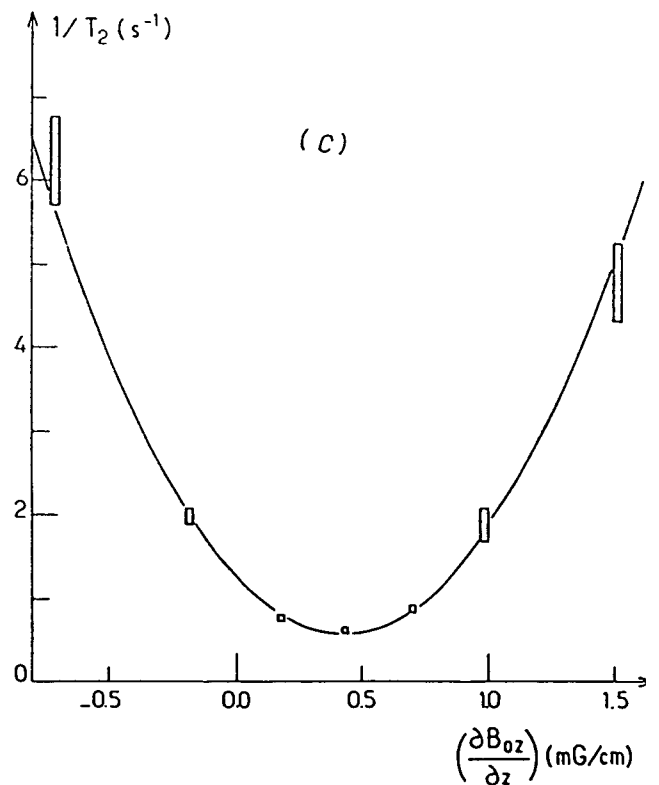


Figure II-1 : Valeurs mesurées de  $1/T_2$  pour les cellules D(a), E(b), O(c), en fonction du gradient  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}$  appliqué à l'échantillon. La meilleure approximation parabolique des résultats a été représentée en trait continu. Sa courbure au sommet donne accès au coefficient de diffusion à 0,525K.



liquide et pesage, pour déterminer le volume intérieur ; mesure de l'épaisseur à la loupe binoculaire, et mesure mécanique du diamètre extérieur ; sciage de la cellule après utilisation et mesure directe des diamètres intérieurs et de la profondeur. Des tests effectués sur des modèles soufflés avec les cellules permettent d'affirmer que ces différentes méthodes donnent des résultats compatibles entre eux à mieux que 3%. Pour les cellules du tableau II-1, le sciage des bulbes a été systématiquement effectué, alors qu'on s'est abstenu, dans tous les cas, de polluer la cellule avant remplissage pour mesurer le volume. Sauf écart manifeste à la sphéricité, on a retenu  $\Delta R/R \simeq 2,5\%$ , ce qui conduit dans le cas de B1 à  $R = 1,32 \pm 0,03$  cm. Le rapport  $\rho_1$

entre le courant  $i$  parcourant les bobines et le gradient  $\left( \frac{\partial B_{0z}}{\partial z} \right)$  créé a été mesuré (voir I-9) et vaut  $\rho_1 = 2,66 \pm 0,1$  mG cm<sup>-1</sup> mA<sup>-1</sup>. Utilisant cet étalonnage, on obtient  $1/D$  à partir de (II-1), soit :

$$\frac{1}{D} = C \times \frac{1}{0,0457} \times \frac{1}{(2\pi r)} \times \frac{1}{\rho_1^2} \times \frac{1}{R^4} \quad (\text{II-3})$$

qui donne pour la cellule B1 :  $D^{-1} = 5,7 \times 10^{-2}$  s cm<sup>-2</sup>.

La contribution de <sup>4</sup>He est estimée à partir de la valeur calculée de  $D_{34}(T)$  à 0,56K, soit  $D_{34}^{-1}(T) \simeq 5 \cdot 10^{-2}$  s cm<sup>-2</sup> pour 1 torr à 300K [Lhuillier, 1983], et de la valeur de la densité de vapeur de <sup>4</sup>He, ici  $d_4 \simeq 0,05$  torr à 300K. Cette contribution doit, selon (II-2), être ôtée à (II-3). Elle ne représente que 4,4% de  $D^{-1}$ . La densité  $d_3$  de <sup>3</sup>He est obtenue en corrigeant la valeur nominale de la pression de remplissage -- mesurée au manomètre -- de la quantité de <sup>3</sup>He supposée adsorbée sur et dans le film (ici  $\simeq 0,01$  torr à 300K) et des fuites éventuelles par diffusion à travers le pyrex entre la date de remplissage et la date d'utilisation [Conte, 1970] (ici négligeables). On obtient

$d_3 = 1,94$  torr à 300K, ce qui avec (II-2) conduit au résultat, pour 1 torr à 300K et  $T = 0,56$ K :

$$\frac{1}{D_{33}}(T) = 2,8 \times 10^{-2} \text{ s cm}^{-2} \quad (\text{II-4})$$

L'incertitude sur le résultat obtenu est déterminée à partir des expressions (II-3) et (II-2). On néglige l'imprécision liée à une mauvaise évaluation éventuelle de la contribution de  $^4\text{He}$  à la diffusion (une erreur de 20% modifie  $D^{-1}$  de moins de 1% !). On ne tient pas compte, d'autre part, des écarts à la sphéricité autrement que par le biais de l'incertitude sur  $R$  (\*). Alors :

$$\frac{\Delta D_{33}^{-1}}{D_{33}^{-1}} = \frac{\Delta d_3}{d_3} + \frac{\Delta C}{C} + \frac{2\Delta\rho_1}{\rho_1} + 4 \frac{\Delta R}{R} \quad (\text{II-5})$$

soit, dans le cas particulier de la cellule B1 :

$$\frac{\Delta D_{33}^{-1}}{D_{33}^{-1}} \simeq 4 + 2,5 + 2 \times 3,8 + 4 \times 2,3 \simeq 23\% \quad (\text{II-6})$$

Le terme  $\Delta d_3/d_3$  est évalué de façon quelque peu empirique. Au cours du remplissage, il est possible que la densité mesurée (avec une incertitude absolue faible) à l'extrémité des tubes menant au manomètre diffère, à l'instant du scellement, de la densité effective dans la cellule légèrement échauffée par le chalumeau.

---

(\*) Ces écarts introduisent dans la relation (II-12) des contributions supplémentaires, qui peuvent être associés aux modes de diffusion de  $n, \ell$ , plus élevés.

---

### II.A.1.b - Variation de D avec la densité gazeuse de $^3\text{He}$

La relation fondamentale (II-2) peut être exploitée, d'une manière analogue à celle utilisée au (§ a), à une température plus élevée que 0,5K. La densité de vapeur de  $^4\text{He}$  est alors plus élevée, et la contribution de  $^4\text{He}$  à la diffusion -- le terme  $d_4/D_{34}(T)$  -- n'est plus négligeable. Il est cependant difficile de l'estimer avec précision en raison de la méconnaissance de  $D_{34}(T)$ . Il est commode alors d'effectuer la mesure de D, à température donnée T, pour un groupe de cellules contenant une densité variable de  $^3\text{He}$ . Selon la relation (II-2), la courbe représentant  $D^{-1}$  en fonction de  $d_3$  doit être une droite ne passant pas par l'origine : le pente de cette droite conduit à  $D_{33}(T)$  ; l'ordonnée à l'origine donne  $D_{34}(T)$  -- la densité de vapeur  $d_4(T)$  étant supposée connue --.

Ces mesures ont été effectuées à  $T = 0,571\text{K}$  pour des cellules dont le contenu nominal est décrit sur le tableau (II-2).

Sur la figure (II-2) ont été portées, en fonction de  $d_3$ , les valeurs du coefficient  $D^{-1}$  mesuré pour chaque cellule ; cette grandeur a été ramenée à la valeur correspondant à une cellule de rayon constant et uniforme  $R = 1,30\text{ cm}$ . Les barres d'erreur indiquées pour chacun des points -- qui proviennent essentiellement des mesures du rayon -- ne tiennent pas compte de l'incertitude sur l'étalonnage des bobines, c'est-à-dire sur l'échelle verticale. On constate que les points expérimentaux peuvent être alignés sur une droite ne passant pas par l'origine. La pente de cette droite conduit, pour 1 torr à 300K, à la valeur :

$$D_{33}^{-1}(T) = 2,7 \pm 0,5 \times 10^{-2} \text{ s cm}^{-2} \quad (\text{II-7a})$$

l'incertitude chiffrée tenant compte, cette fois, de l'imprécision de l'étalonnage.

La valeur de l'ordonnée à l'origine ( $3,1 \times 10^{-3} \text{ s cm}^{-2}$ ) donne une estimation de  $D_{34}^{-1}(T)$  pour 1 torr à 300K ; la densité de vapeur  $d_4(T)$  vaut 0,07 torr à 300K, soit :

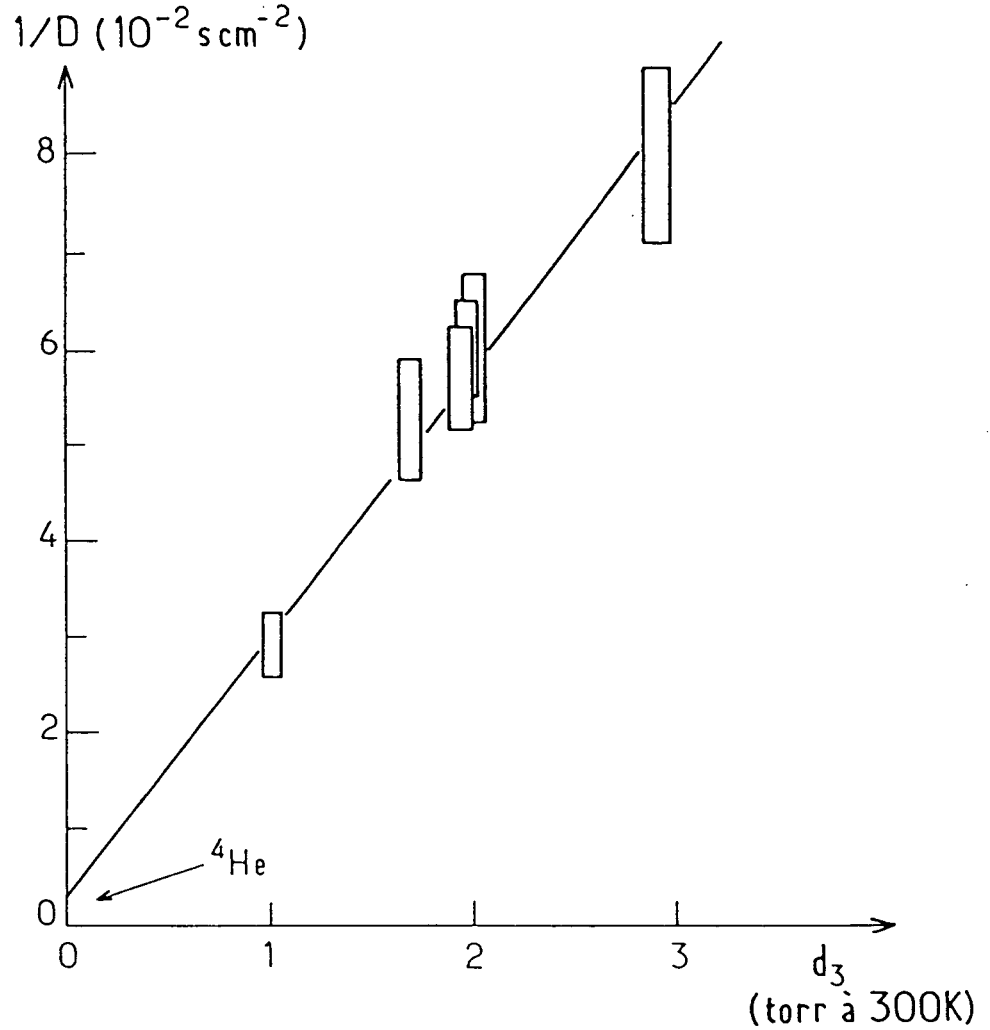
$$D_{34}^{-1}(T) \simeq 5 \times 10^{-2} \text{ s cm}^{-2} \quad (\text{II-7b})$$

Compte tenu de l'incertitude absolue sur l'ordonnée à l'origine de la droite, et de l'imprécision du repérage de la température  $T$ , la précision de cette estimation de  $D_{34}^{-1}(T)$  n'est pas meilleure que 40%.

Nom	Remplissage nominal (torr à 300K)			Rayon (cm)	Paramètre C ( $\text{s}^{-1} (\text{mA})^{-2}$ )
	$p_2$	$p_3$	$p_4$	R	
A2	0,59	2,94	1,96	1,30	30,5
0	0,63	2,01	2,04	1,34	25,9
A3	0,59	1,96	1,94	1,30	23,1
B1	1,50	1,95	2,02	1,32	23,1
C1	0,51	1,69	112 (*)	1,32	21,7
B	1,47	1,00	1,89	1,30	11,3

Tableau II-2 : Caractéristiques des cellules utilisées pour mesurer  $D_{33}^{-1}$  à  $T = 0,571\text{K}$ . Le paramètre C proportionnel à  $D^{-1}$  a été déterminé en appliquant un gradient de champ calibré à l'échantillon (voir S a).

(\*) La quantité de  $^4\text{He}$  dans cet échantillon est telle que, outre un film saturé sur les parois, existe à basse température une flaque de  $^4\text{He}$  au fond de la cellule ; le volume de cette flaque est de l'ordre de  $1 \text{ mm}^3$ .



*Figure II-2* : Valeurs de  $D^{-1}$  pour les différents échantillons du tableau II-2, en fonction de la densité  $d_3$  en  $^3\text{He}$  dans la cellule, à  $T^{-1} = 1,75\text{K}^{-1}$ . Les mesures ont toutes été ramenées au cas d'une cellule de rayon  $R = 1,30 \text{ cm}$ . L'incertitude liée à l'étalonnage des bobines créant le gradient de champ n'a pas été prise en compte pour déterminer les barres d'erreur. La droite en trait plein constitue la meilleure approximation affine des résultats. Sa pente permet de déterminer  $D_{33}(T)$  ; son ordonnée à l'origine donne accès à  $D_{34}(T)$ .

## II.A.2 - La détermination de $D_{33}(T)$ en-dessous de 1K par étalonnage à 0,57K

La répétition systématique, à toutes les températures, de la mesure du coefficient de diffusion  $D$  par application d'un gradient calibré du champ magnétique n'est pas nécessaire pour obtenir  $D_{33}(T)$ . Dans la plupart des cas, en effet, la relaxation transverse reste très largement dominée par la diffusion des atomes dans les inhomogénéités du champ statique, même après que la compensation des composantes linéaires de celles-ci a été effectuée. Les autres sources de relaxation transverse éventuelle sont peu efficaces : l'amortissement par rayonnement, la contribution des atomes adsorbés restent inférieurs à 1% du taux global de relaxation  $1/T_2$ . Dans la phase adsorbée de  $^3\text{He}$ , on peut supposer que les temps de relaxation longitudinale et transverse sont égaux. La présence de cette phase adsorbée ramène alors dans la phase gazeuse majoritaire une contribution au taux de relaxation transverse égale à  $1/2T_1$ , où  $T_1$  est le temps de relaxation longitudinale de l'échantillon [V. Lefevre, 1982] car, par hypothèse, la relaxation longitudinale n'a lieu que durant les séjours en phase adsorbée. Comme pour toutes les cellules  $T_1$  a été mesuré, cette correction toujours faible a systématiquement été effectuée avant le calcul de  $1/D$ .

Ainsi, par le biais de la relation (I-8) on peut déduire de  $1/T_2$  la valeur de  $1/D$  sans appliquer de gradient spécifique, à la double condition :

- que l'étalonnage des mesures ait été fait pour une température donnée,
- que la carte du champ magnétique sur la cellule ne dépende pas entre 1K et 0,5K de la température.

La valeur de  $D_{33}$  et l'estimation de  $D_{34}$  obtenues au § II.A.1.b pour  $T = 0,571\text{K}$  permettent d'effectuer l'étalonnage nécessaire ; la contribution de  $^4\text{He}$  reste faible ( $d_4 \approx 0,07$  torr à 300K). Par ailleurs, aucune modification importante de la carte du champ



entre 0,5K et 1K n'a été mise en évidence : les courants requis pour l'alimentation optimale des bobines de compensation ne dépendent pas, dans cette zone, de la température. A partir d'un enregistrement des variations de  $1/T_2$  en fonction de  $1/T$  analogue à celui présenté sur la figure I-7, on peut donc déterminer le coefficient de diffusion  $D(T)$  dans l'échantillon concerné à toute température.

Pour obtenir  $D_{33}(T)$ , on suit une démarche analogue à celle du § 1.b : la loi donnant  $D^{-1}(T)$  en fonction des densités  $d_3(T)$  et  $d_4(T)$  est une fonction affine de la densité gazeuse  $d_3(T)$  en  $^3\text{He}$  qui, pour un échantillon donné, est indépendante de  $T$ . On peut donc utiliser les mesures de  $D^{-1}$  correspondant à un jeu de cellules de même contenu en  $^4\text{He}$  gazeux mais de remplissage différent en  $^3\text{He}$  pour déterminer, en fonction de  $T$ , la pente de la droite "  $D^{-1}(T)$  fonction de  $d_3$  " obtenue. Les résultats ont été reportés sur la figure II-3 pour le jeu de cellules dont les paramètres sont décrits au tableau II-3. La mesure des pentes donne accès aux valeurs de  $D_{33}^{-1}(T)$  (pour une densité égale à 1 torr à 300K) inscrites au tableau II-4.

La précision obtenue pour  $D_{33}^{-1}(T)$  ne peut évidemment être meilleure que celle provenant du résultat de II.A.1 utilisé pour effectuer l'étalonnage à  $T^{-1} = 1,75\text{K}^{-1}$ .

Nom	Contenu nominal (torr à 300K)			Rayon (cm)	$1/T_2$ (T=0,571K) (s <sup>-1</sup> )
	P <sub>2</sub>	P <sub>3</sub>	P <sub>4</sub>	R	
B	1,47	1,00	1,89	1,30	0,165
B1	1,50	1,95	2,02	1,32	0,39
A1	0,59	3,91	1,94	1,30	0,82
K4	0,64	5,12	2,03	1,30	1,21
B3	0,61	8,05	2,00	1,32	1,80

*Tableau II-3 : Caractéristiques des cellules utilisées pour la détermination de  $D_{33}^{-1}(T)$  entre 0,5K et 1K par étalonnage sur la mesure effectuée à 0,571K. La valeur de  $1/T_2$  donnée ci-dessus permet de déterminer, pour chaque cellule, le facteur de proportionnalité  $\Lambda$  de la relation I-8.*

$T^{-1}$ (K <sup>-1</sup> )	1,00 <sup>(*)</sup>	1,15 <sup>(*)</sup>	1,30 <sup>(*)</sup>	1,37	1,45	1,60	1,75	1,90
$D_{33}^{-1}(T)$ (10 <sup>-2</sup> scm <sup>-2</sup> )	1,9	1,95	2,0	2,2	2,45	2,6	2,7	2,95

*Tableau II-4 : Valeurs mesurées de  $D_{33}^{-1}(T)$  pour une densité gazeuse de 1 torr à 300K. L'incertitude absolue sur les résultats est de l'ordre de  $0,5 \times 10^{-2} \text{ s cm}^{-2}$ .*

*(\*) Pour  $T^{-1} \leq 1,30\text{K}^{-1}$ , <sup>4</sup>He, dans les échantillons étudiés, est en situation de vapeur sèche ; il est alors nécessaire de tenir compte dans le calcul de  $D_{33}^{-1}$  des faibles variations du paramètre  $p_4$  d'une cellule à l'autre.*

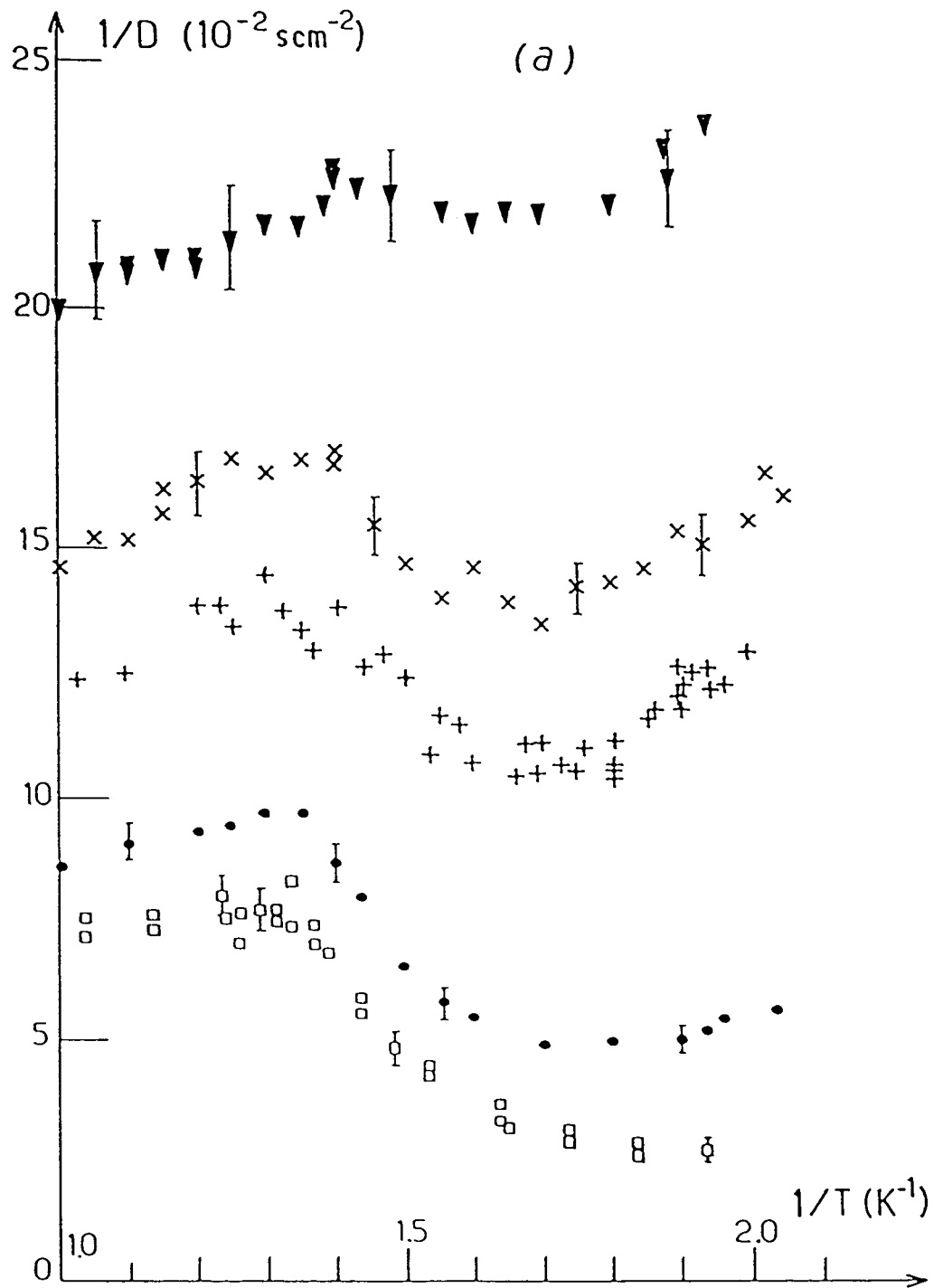
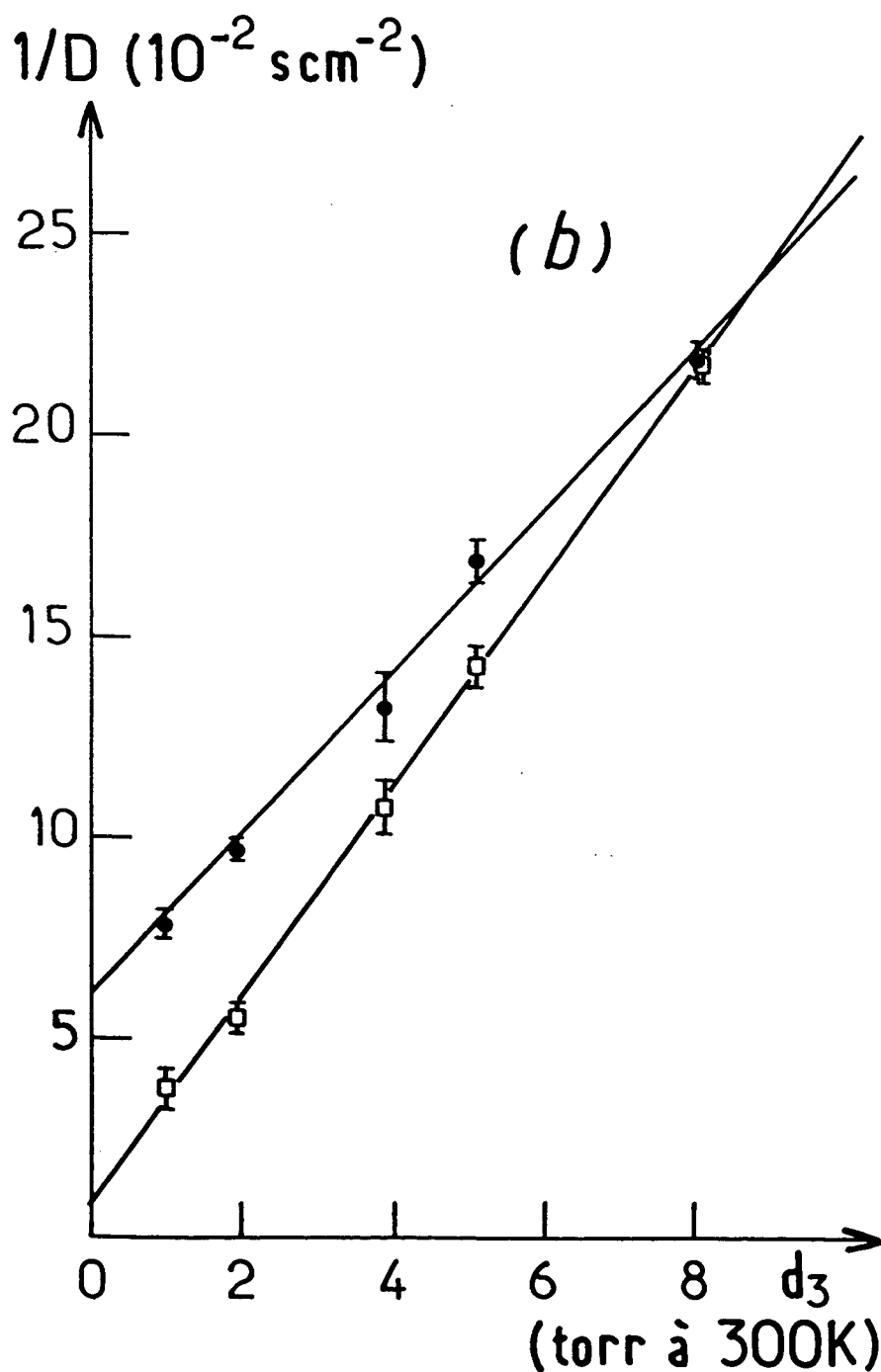


Figure II-3 : a) Variations de  $1/D$  avec  $1/T$  pour les cinq échantillons du tableau II-3, par ordre de densité croissante en  $^3\text{He}$ , en torr à 300K : 1,00( $\square$ ) ; 1,95( $\bullet$ ) ; 3,91( $+$ ) ; 5,12( $\times$ ) ; 8,05( $\nabla$ ). Les valeurs expérimentales de  $1/D$  ont été déterminées d'après l'étalonnage effectué à 0,57K. Elles sont, de plus, ramenées aux valeurs correspondant à une cellule de rayon  $R = 1,30$  cm.

b) Pour une valeur donnée de la température  $T$ , on extrait de la courbe (II-3-a) la dépendance de  $1/D$  vis-à-vis de la densité de  $^3\text{He}$   $d_3$ . La pente de la droite obtenue permet d'accéder à  $D_{33}^{-1}(T)$ . Les deux groupes de points représentés correspondent à  $T^{-1} = 1,60\text{K}^{-1}$  ( $\square$ ) et  $T^{-1} = 1,30\text{K}^{-1}$  ( $\bullet$ ).



### II.A.3 - Comparaison avec les prévisions numériques

#### II.A.3.a - Le calcul des valeurs théoriques

Dans les échantillons que nous utilisons, la phase gazeuse est une phase très diluée : on peut considérer que la simple connaissance du potentiel d'interaction de paire  $U(\vec{r}_2 - \vec{r}_1)$  entre deux atomes situés en  $\vec{r}_1, \vec{r}_2$ , suffit pour décrire les collisions entre atomes et le processus de diffusion. A basse température, l'énergie cinétique des particules diffusantes dans leur mouvement relatif devient faible devant la profondeur du puits attractif du potentiel  $U(\vec{r}_2 - \vec{r}_1)$ ; alors, les sections efficaces de diffusion dépendent de façon sensible de la forme des variations à "longue distance" du potentiel. C. Lhuillier [1983] a effectué un calcul entièrement quantique des sections efficaces différentielles associées à deux potentiels d'interaction He-He : le potentiel de type Lennard-Jones [1931] habituellement utilisé ( $\varepsilon = 10,22\text{K}$ ;  $\sigma = 2,556 \text{ \AA}$ )

$$U^{LJ}(r) = 4\varepsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r} \right)^6 \right] \quad (\text{II-8})$$

et le potentiel plus élaboré  $U^{A2}(r)$  proposé par Aziz et al. [1979]. Pour le potentiel  $U^{LJ}$ , les calculs de C. Lhuillier sont en accord avec les résultats antérieurs de Monchick et al. [1965].

L'étude de la diffusion de l'orientation est très délicate : Lhuillier et Laloë [1982] ont écrit et résolu, pour un gaz de polarisation nucléaire quelconque, une équation de Boltzmann tenant compte de la statistique des particules. A l'ordre de résolution le plus bas, un seul polynôme de Sonine est utilisé pour résoudre l'équation de transport considérée, elle-même issue d'un développement du type "Chapman-Enskog". Dans ces conditions, et à aimantation faible, la diffusion des composantes transverse

et longitudinale de l'aimantation fait intervenir le même coefficient de diffusion  $D$  :

$$D = \frac{3k_B T}{16m} \frac{1}{d} \frac{1}{\Omega^{11}} \quad (\text{II-9})$$

(équations (19) et (24) de Lhuillier [1983]), où  $d$  est la densité atomique du gaz,  $m$  la masse réduite du système des partenaires d'une collision à deux corps, et  $\Omega^{11}$  l'intégrale de collision

$$\Omega^{11} = \left( \frac{k_B T}{2\pi m} \right)^{1/2} \int_0^\infty e^{-g^2} g^5 Q_D \left[ \left( \frac{k_B T}{2m} \right)^{1/2} g \right] dg \quad (\text{II-10})$$

qui décrit la moyenne thermique de la section efficace totale  $Q_D(v)$  associée à une collision à deux corps de vitesse d'impact  $v$ . Cette dernière quantité est obtenue par une moyenne angulaire, à partir du calcul quantique des sections efficaces différentielles, et dépend donc du potentiel d'interaction hélium-hélium retenu.

### II.A.3.b - La confrontation théorie-expériences

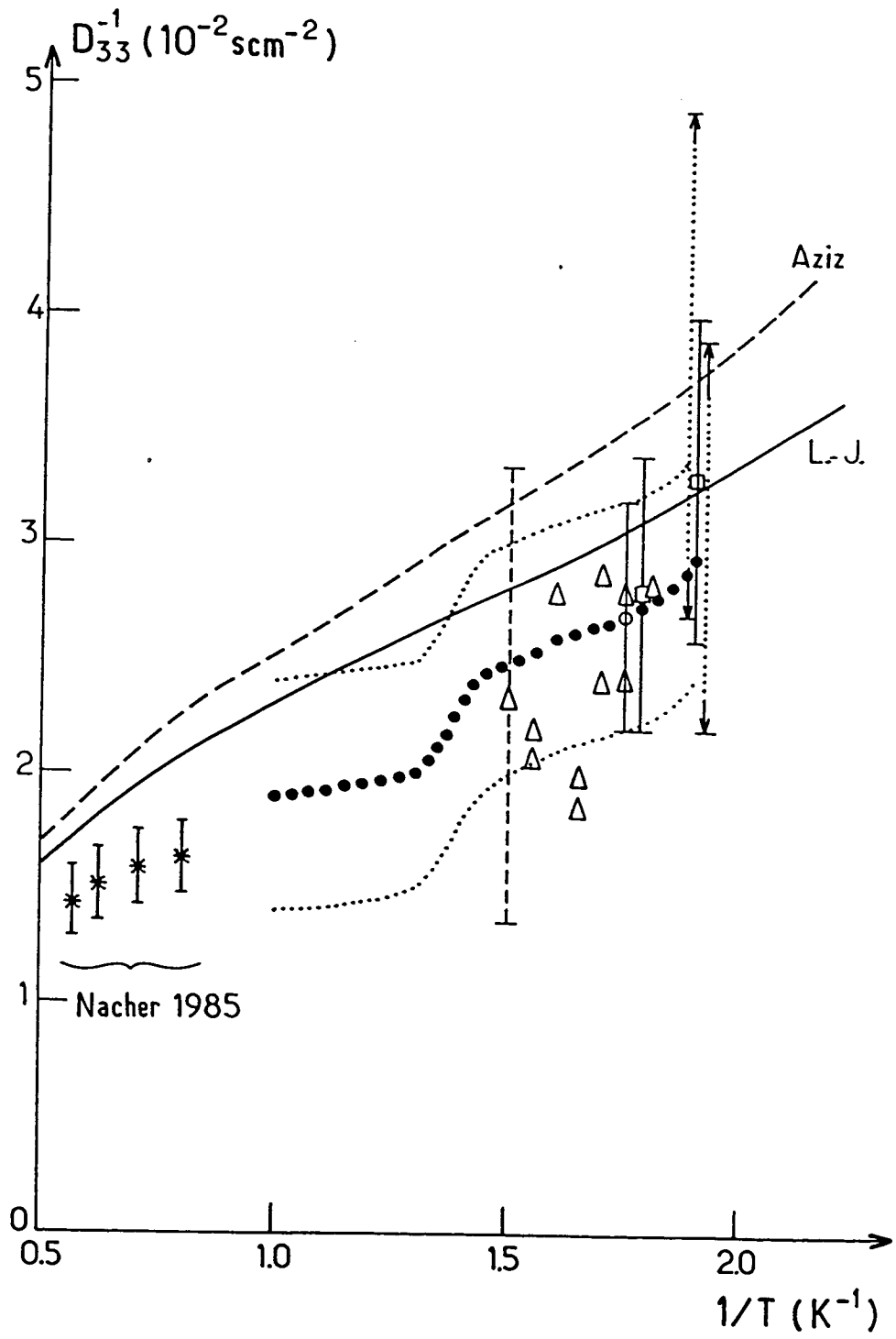
#### *α) Les résultats théoriques*

Les résultats extraits de C. Lhuillier [1983] et de Monchick et al. [1965] ont été rapportés à une densité atomique uniforme de 1 torr à 300K ( $3,2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ). Les valeurs correspondantes de  $D_{33}^{-1}$  ont été reportées, en fonction de  $T^{-1}$ , sur la figure II-4. Pour les deux potentiels d'interaction étudiés,  $D_{33}^{-1}(T)$  est, entre  $1\text{K}^{-1}$  et  $2\text{K}^{-1}$ , une fonction croissante presque affine de  $T^{-1}$ .

#### *β) Nos résultats expérimentaux*

Sur la figure II-4 ont été portés les résultats expérimentaux obtenus aux paragraphes précédents. La détermination effectuée en utilisant des mesures concernant chaque cellule isolément sont représentés à l'aide de  $\square$ . Dans le cas particulier

Figure II-4 : Variations de  $1/D_{33}$  avec l'inverse de la température en-dessous de 2K, pour un échantillon dont la densité vaut 1 torr à 300K. Les courbes donnent les résultats numériques de C. Lhuillier [1983] pour le potentiel d'interaction (II-8) du type Lennard-Jones (trait continu) et pour le potentiel d'Aziz et al. [1979] (trait interrompu). Les  $\square$  correspondent aux mesures effectuées (§ II-A.1.a) sur les cellules B1 et 0. Les barres d'erreur limitées par les flèches verticales, en pointillés, correspondent au cas particulier des cellules D et E (Appendice A). La détermination du § II.A.1.b à  $1,75K^{-1}$  a été représentée par le signe  $\circ$  ; elle a servi d'étalonnage à la courbe expérimentale  $\bullet\bullet\bullet$  donnant  $D_{33}^{-1}$  aux autres températures (les limites des barres d'erreur associées sont en pointillés). Quelques mesures spécifiques, effectuées à l'occasion de la compensation du gradient  $\left(\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}\right)$ , ont été reportées sur la figure ( $\Delta$ ) ; ces résultats sont peu précis (la barre en trait interrompu est identique pour tous les  $\Delta$ ), notamment à cause de la contribution mal connue de  $^4\text{He}$ . Enfin, on a reporté les résultats de Nacher [1985] à plus haute température (\*).





des deux cellules D et E (voir Appendice A), le résultat apparaît sous la forme de flèches interrompues. La mesure de  $D_{33}^{-1}(T)$  pour  $T^{-1} = 1,75K^{-1}$  du § II.A.1.b correspond au point o. Cet étalonnage a servi à la détermination de  $D_{33}^{-1}(T)$  effectuée au § II.A.2, qui correspond à la ligne de points. Pour plus de lisibilité, les extrémités des barres d'erreur correspondantes ont été reportées sous la forme de lignes pointillées.

Enfin, un ensemble d'estimations de  $D_{33}^{-1}(T)$ , effectué à partir des réglages de compensation des gradients pour diverses cellules selon la méthode du § II.A.1.a, a été également reporté ( $\Delta$ ). La précision de ces estimations, qui font généralement intervenir la prise en compte d'une contribution calculée de  ${}^4\text{He}$  tout à fait appréciable, est assez mauvaise : une barre d'erreur typique a été représentée.

#### *γ) Commentaires*

La précision de nos mesures est insuffisante pour conclure nettement à un désaccord avec les prévisions théoriques : nos mesures sont, en gros, compatibles avec les courbes calculées. Cependant, un effet systématique semble être établi : nos mesures de  $D_{33}^{-1}(T)$  sont inférieures d'environ 10 à 20% aux valeurs calculées pour le potentiel  $U^{LJ}$ , d'environ 30 à 35% aux valeurs correspondant au potentiel  $U^{A2}$  (respectivement représentés par les courbes en trait continu et en trait interrompu), en particulier au-dessus de 0,6K (\*). A cet égard, on peut rapprocher nos résultats des déterminations du coefficient  $D_{33}$  réalisées par Nacher [1985] à plus haute température à partir de mesures du

---

*(\*) Le désaccord semble même un peu plus grand encore avec les tout premiers résultats calculés par C. Lhuillier en utilisant la nouvelle version du potentiel He-He établie par Aziz et al. au printemps 1987.*

---

temps de diffusion du spin dans des échantillons de plus forte densité (points représentés par les \*) ; celles-ci sont également, entre 2K et 1,43K, inférieures de 20% aux résultats numériques. A plus haute température, vers 4,2K, ces mêmes calculs sont en accord avec les mesures expérimentales de Barbé [1977] et Nacher [1985].

Il y a donc à basse température une présomption de désaccord, et des expériences plus précises seraient nécessaires pour éclaircir ce point. En particulier une élimination de l'incertitude associée à la mesure du rayon des cellules et à leur non-sphéricité s'impose. Obtenir des résultats pour diverses cellules de rayon variant dans un facteur 3 à 4 constituerait à cet égard un progrès sensible. Un étalonnage direct sur des mesures à 4,2K (pour les cellules pourvues d'hydrogène) ou à 300K (pour celles qui en sont dépourvues) peut également être envisagé pour s'affranchir des incertitudes géométriques et d'une détermination éventuellement incorrecte du gradient de champ. Enfin, l'utilisation d'une technique différente de relaxation en champ de radiofréquence inhomogène analogue à celle mise en oeuvre par Barbé et al. [1974] peut également être envisagée.

II.B - LA CONTRIBUTION DE $^4\text{He}$ A LA DIFFUSION
--

Il est plus difficile de déterminer la contribution des atomes de  $^4\text{He}$  gazeux à la diffusion et d'avoir accès à des valeurs précises de  $D_{34}(T)$ . En effet, la grandeur accessible à l'expérience est le coefficient de diffusion du spin de  $^3\text{He}$ ,  $D$  : un bon niveau de signal requiert une densité de  $^3\text{He}$  importante. Si la contribution de  $^4\text{He}$  est plus faible que celle de  $^3\text{He}$ , la soustraction de la contribution de  $^3\text{He}$  est une source supplémentaire d'incertitude. En diminuant la proportion de  $^3\text{He}$  dans le gaz, on augmente la sensibilité à  $D_{34}(T)$ , mais on accroît également l'imprécision associée à l'étalonnage sur  $d_{33}(T)$ . Les résultats présentés au § II.B.1 correspondent à ces deux situations particulières. Au § II.B.2, on confronte ces résultats aux prévisions numériques.

### II.B.1 - Détermination de $D_{34}(T)$

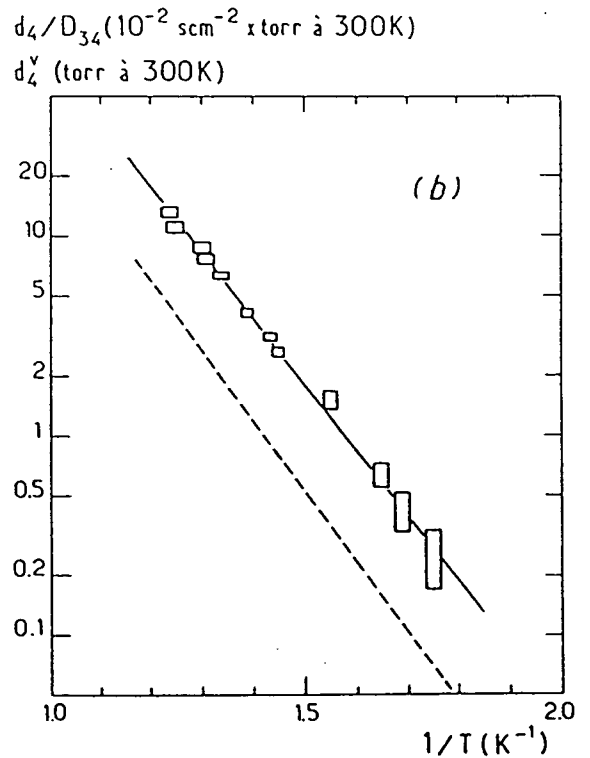
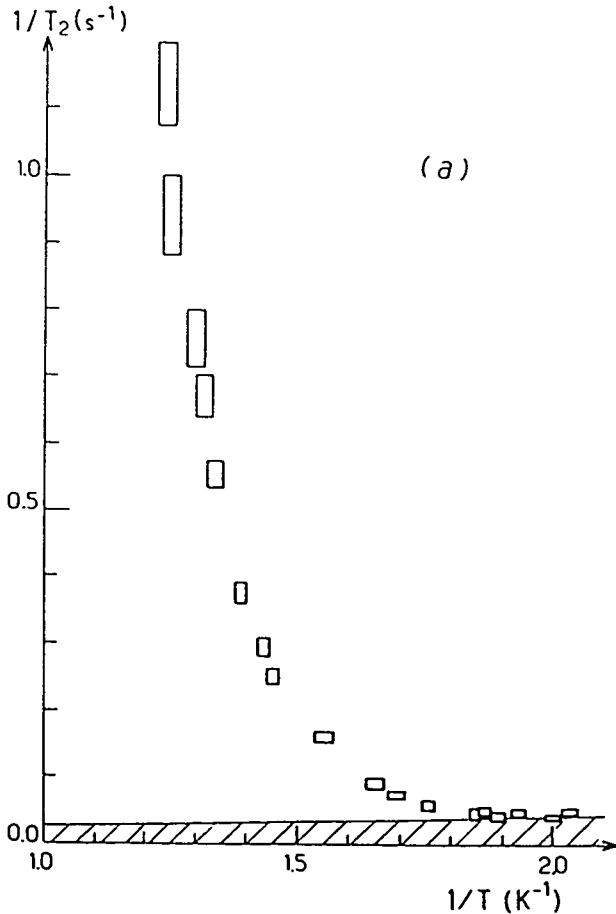
#### II.B.1.a - Diffusion dans un gaz presque pur de $^4\text{He}$

Un échantillon contenant une densité faible de  $^3\text{He}$  et une faible quantité importante de  $^4\text{He}$  ( $p_3 < 0,2$  torr à 300K ;  $p_4 = 190$  torr à 300K) a été préparé et étudié : dans toute la gamme 0,5K  $\leftrightarrow$  1K, le gaz  $^4\text{He}$  de cet échantillon est en condition de vapeur saturante ; la densité  $d_4(T)$  est donc en principe connue. Les résultats des mesures ( $1/T_2$  en fonction de  $1/T$ ) ont été reportés sur la figure II-5-a. La quantité de  $^3\text{He}$  présente dans la cellule a été déterminée expérimentalement en mesurant le coefficient de diffusion, à trois températures différentes, en appliquant un gradient calibré (voir § II.A.1.a). L'étalonnage de  $D_{33}^{-1}(T)$  du § II.A a été utilisé pour obtenir la valeur  $d_3 \simeq 0,14 \pm 0,02$  torr à 300K.

Connaissant  $d_3$  et  $D_{33}^{-1}(T)$ , on peut étalonner la courbe (II-5-a) en unité de  $1/D$ . De plus il est possible avec la relation (II-2) d'isoler la contribution ( $d_4/D_{34}(T)$ ) du gaz  $^4\text{He}$  à la diffusion. Cette contribution a été reportée sur la

*Figure II-5:*a) Variations de  $1/T_2$  avec  $1/T$  pour la cellule B4 ( $p_2 \simeq 0,30$  torr,  $p_3 \simeq 0,14$  torr,  $p_4 = 190$  torr). La zone hachurée délimite la contribution de  $^3\text{He}$ : elle a été déterminée à partir des résultats du § II-A et de la situation à basse température.

b) Variations de  $d_4/D_{34}$  avec  $1/T$  pour la cellule B4. Les points sont obtenus à partir des résultats de (a) en calculant le coefficient de diffusion par étalonnage à  $1,75\text{K}^{-1}$  sur le résultat du § II.A.1.b ( $D_{33}^{-1}(1,75\text{K}^{-1}) = 2,7 \cdot 10^{-2} \text{s cm}^{-2}$  pour 1 torr à 300K) et en isolant la contribution de  $^4\text{He}$ . La droite en trait continu correspond à l'exponentielle la plus proche des points, de pente  $-7,6\text{K}$ . En trait interrompu, on a rappelé les variations avec  $1/T$  de la densité de vapeur saturante  $d_4^v$  de  $^4\text{He}$ .



*Figure II-5c* : Variations de  $D_{34}^{-1}$  avec  $T^{-1}$  d'après les résultats de la courbe II-5-b. Les résultats des calculs numériques de C. Lhuillier [1983] pour un potentiel d'interaction du type Lennard-Jones (II-8) (trait continu) et du type Aziz et al. [1979] (trait interrompu) ont également été représentées. Les points ■ (représentés sans barre d'erreur pour plus de lisibilité) correspondent à la cellule C1.

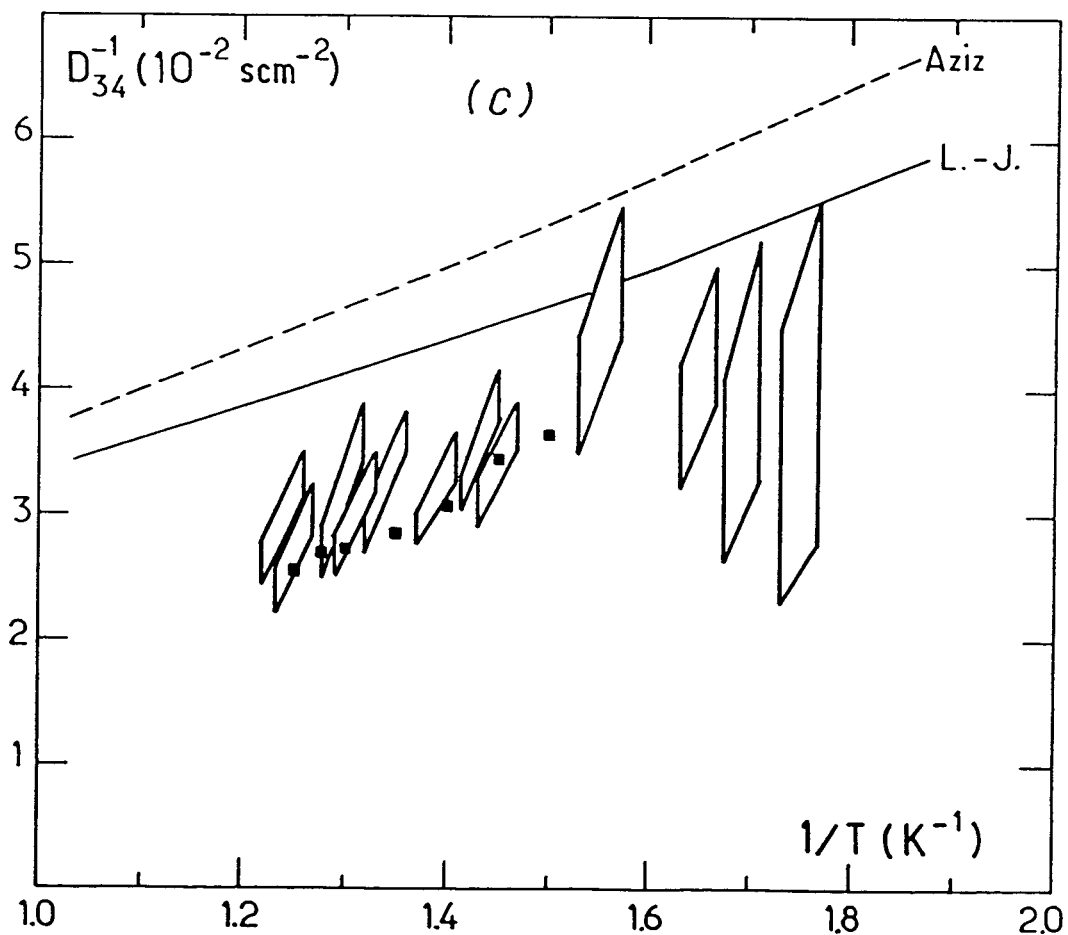


figure II-5-b, en fonction de la température et en échelle logarithmique. Les points s'alignent empiriquement sur une droite de pente  $-7,6K$ . Les variations rappellent bien entendu l'allure des variations de la densité de vapeur de  $^4\text{He}$  ; la courbe de la figure I-1 a été reportée ici en trait interrompu. Elle a une pente proche de  $-8,1K$ . La décroissance rapide de  $d_4(T)$  lorsque  $T$  est abaissée constitue donc le phénomène dominant. L'écart entre les pentes provient de la variation de  $D_{3,4}(T)$  avec  $T$ .

$D_{3,4}^{-1}(T)$  est obtenu par simple division ; ses variations ont été reportées sur la figure II-5c. L'incertitude indiquée tient compte des incertitudes expérimentales sur la mesure du taux de relaxation et sur le repérage de la température ; elle ne fait pas intervenir l'incertitude associée à l'étalonnage effectué sur la valeur de  $D_{3,3}^{-1}(T)$ , qui n'est pas connue avec précision. Une mauvaise mesure de  $d_3$  n'est également pas prise en compte ; des modifications de chacune de ces grandeurs n'affecteraient les résultats que par un décalage global en ordonnées (une affinité d'axe vertical). Aux plus basses températures, l'imprécision s'accroît, car le niveau du signal est plus faible. Il faut noter que, puisque l'un des paramètres très importants est la densité de vapeur  $d_4(T)$  qui varie vite avec  $T$ , une grande part de l'imprécision des mesures est imputable au manque de contrôle très fin de la température.

Cette expérience a été répétée pour une autre cellule contenant davantage de  $^3\text{He}$  ( $C1 : p_3 = 1,7$  torr,  $p_4 = 112$  torr à  $300K$ ). Dans de telles conditions,  $^4\text{He}$  est également en situation de vapeur saturante à toute température inférieure à  $1K$ . L'étalonnage a été effectué à une température un peu plus élevée (vers  $0,65K$ ) parce que les mesures à température plus basse sont affectées par une contribution de la phase adsorbée à la relaxation transverse qui sera discutée au § II.B.2.b. Les résultats obtenus pour  $D_{3,4}^{-1}(T)$  sont représentés par des ■ sur la figure II-5c. Pour plus de lisibilité, on s'est abstenu de faire figurer les barres d'erreurs, grossièrement identiques à celles relatives à l'autre cellule. Comme on le voit, les mesures obtenues à l'aide des deux échantillons sont compatibles entre

elles ; l'étalonnage par  $D_{33}^{-1}(T)$  sur la cellule C1 est néanmoins beaucoup plus fiable :  $d_3$  est connu avec précision et à 0,65K la contribution de  $^3\text{He}$  à la diffusion est dominante ; pour la cellule B4 à  $1,75\text{K}^{-1}$ , ce n'était pas aussi nettement le cas. La cohérence des deux mesures valide a posteriori la procédure d'étalonnage adoptée.

#### II.B.1.b - Utilisation d'un jeu de cellules de remplissage varié en $^3\text{He}$

Les variations du coefficient  $1/D$  avec les densités gazeuses  $d_3(T)$  et  $d_4(T)$  sont, dans le domaine de pression que nous étudions, décrites par la relation (II-2). Au § II-A-2, c'est en étudiant les variations de  $D^{-1}$  avec  $d_3$  qu'on avait pu s'affranchir pour mesurer  $D_{33}^{-1}(T)$  des autres sources de relaxation que celle due à la présence du gaz  $^3\text{He}$ . En particulier la contribution de  $^4\text{He}$  à la diffusion et donc à la relaxation avait été éliminée. Il avait été montré, à ce stade, comment l'ordonnée à l'origine de la droite " $D^{-1}$  en fonction de  $d_3$ " permet d'estimer  $D_{34}^{-1}(T)$  si l'on connaît  $d_4$ .

Or, toutes les cellules dont le contenu est décrit sur le tableau II-3 renferment la même quantité de  $^4\text{He}$  : la condensation du film sur la paroi se fait, dans chacun de ces cas de façon identique (\*). La contribution de  $^4\text{He}$  à la diffusion est donc, à température donnée, la même dans chacun des échantillons. Cela a été vérifié à partir des résultats présentés sur la figure II-3 : la contribution de  $^3\text{He}$  à  $D^{-1}(T)$  a été pour chacune des cellules évaluée puis ôtée de  $D^{-1}(T)$ . Cette contribution, proportionnelle à  $d_3$ , varie d'un facteur 8 sur l'ensemble du jeu d'échantillons. La contribution restante due au seul  $^4\text{He}$  est approximativement la même dans chaque cas. La valeur moyenne de celle-ci, soit donc  $d_4(T)/D_{34}(T)$ , a été reportée pour quelques températures caractéristiques sur le tableau II-5.

---

(\*) On montrera plus loin (chapitre III) que les variations de  $p_2$  n'ont ici pas d'importance.

---

Pour  $T^{-1} \leq 1,30K^{-1}$ ,  ${}^4\text{He}$  n'est plus a priori en situation de vapeur saturante, et les résultats ont été, avant moyennage, rapportés au contenu nominal exact correspondant à un remplissage de 2 torr à 300K.

$T^{-1}$	$d_4/D_{34} \pm \text{écart quadratique}$	$D_{34}^{-1} (T)$
( $K^{-1}$ )	( $10^{-2} \text{ s cm}^{-2} \times \text{torr à 300K}$ )	( $10^{-2} \text{ s cm}^{-2}$ )
1,60	$1,0 \pm 0,35$	$4,2 \pm 1,5$
1,45	$3,4 \pm 0,4$	$4,3 \pm 0,5$
1,37	$4,9 \pm 0,5$	$3,4 \pm 0,3$
1,30	$6,4 \pm 0,4$	$3,4^{(*)} \pm 0,2$
1,15	$5,8 \pm 0,3$	$3,1^{(*)} \pm 0,2$
1,00	$5,2 \pm 0,3$	$2,75^{(*)} \pm 0,2$

*Tableau II-5 : Variations de  $D_{34}^{-1}$  avec la température. Les résultats ont été rapportés à une densité de  ${}^4\text{He}$  égale à 1 torr à 300K.*

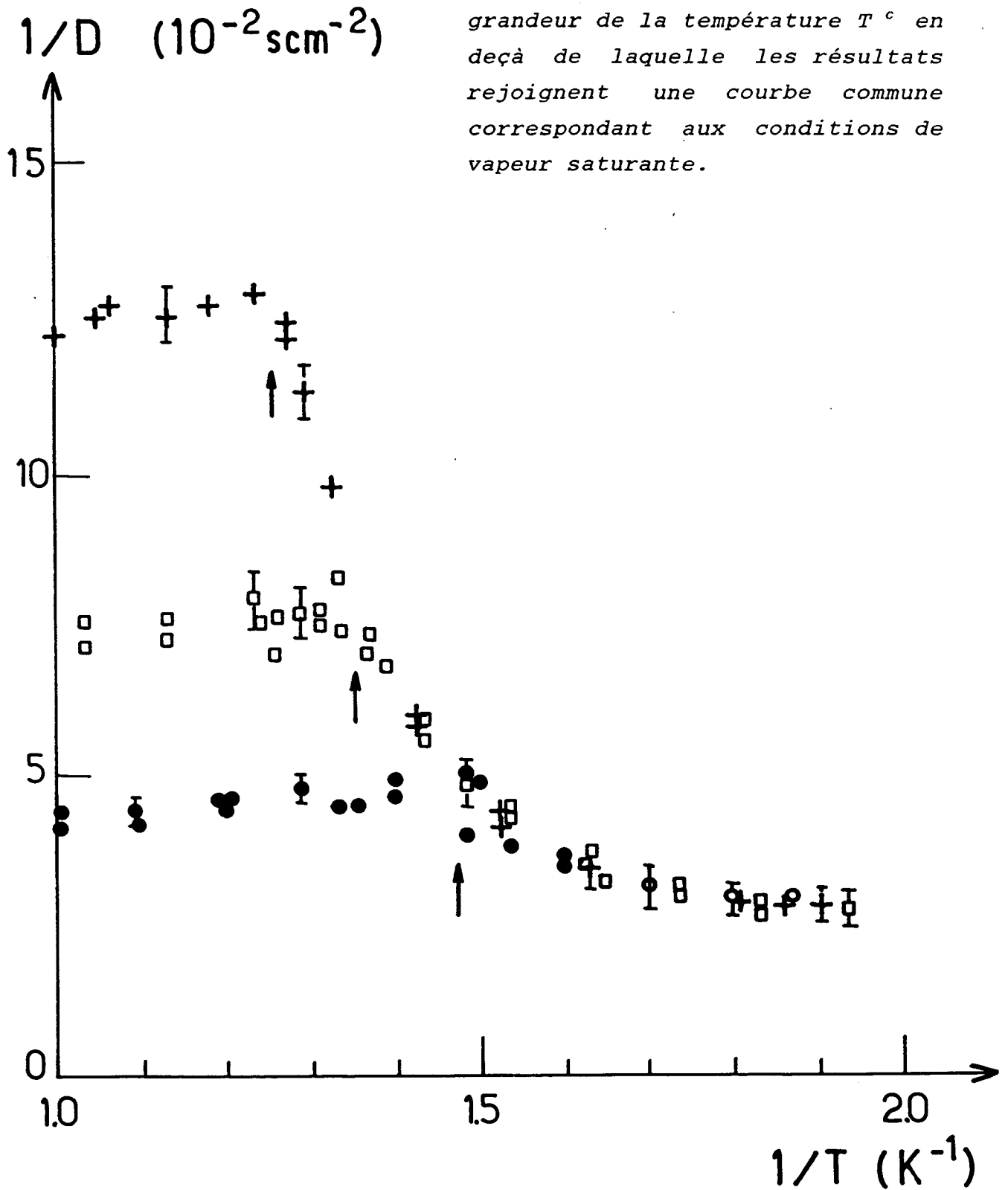
L'incertitude indiquée sur le tableau II-5 ne traduit que la dispersion des résultats pour les diverses cellules exploitées. Pour des raisons analogues à celles évoquées au paragraphe précédent, l'erreur éventuelle d'étalonnage associée à la valeur de  $D_{33}^{-1} (T^{-1} = 1,75K^{-1})$  qui a été utilisée pour tracer les courbes de la figure II-3a n'a pas été mentionnée. Pour les températures les plus élevées, il a été tenu compte du fait que quelques couches de  ${}^4\text{He}$  -- dont le nombre a été estimé d'après les résultats du chapitre III -- se condensent sur la paroi attractive à une température supérieure à la température de rosée. Un symbole (\*) a été, dans ce cas, portée sur la tableau II-5.

#### II.B.1.c - Variations de D avec le remplissage en ${}^4\text{He}$

Les variations de D avec la densité  $d_4$  ont été étudiées en utilisant trois cellules particulières dont les paramètres



*Figure II-6 : Variations de  $1/D$  avec  $1/T$  pour les trois cellules du tableau II-6. Les flèches indiquent, pour chacune des cellules de remplissage en  $^4\text{He}$   $p_4 = 1,00$  torr à  $300\text{K}$  ( $\bullet$ ),  $p_4 = 1,89$  torr ( $\square$ ) et  $p_4 = 4,01$  torr ( $+$ ), l'ordre de grandeur de la température  $T^\circ$  en deçà de laquelle les résultats rejoignent une courbe commune correspondant aux conditions de vapeur saturante.*

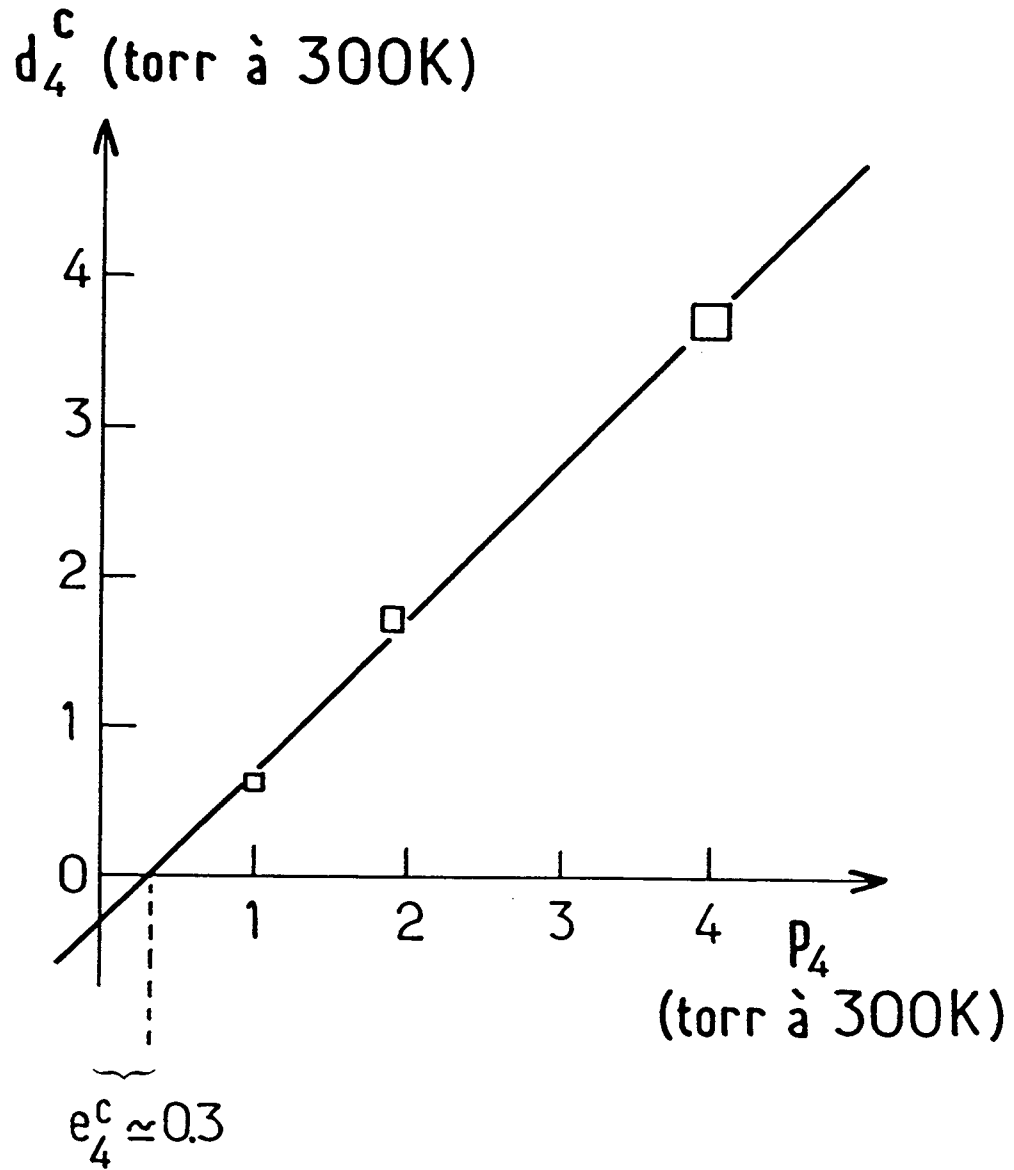


sont énumérés sur le tableau II-6 : les échantillons testés ont un contenu identique en  $^3\text{He}$  et  $\text{H}_2$ , mais renferment une densité croissante de  $^4\text{He}$ .

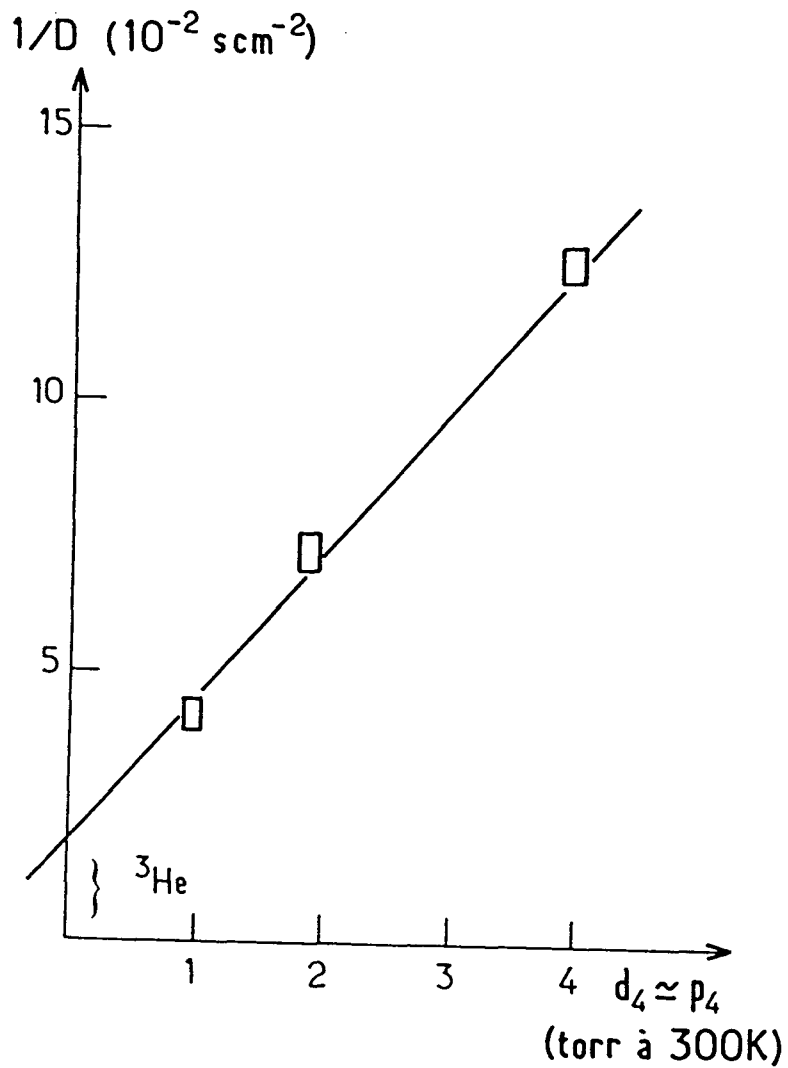
Nom	Remplissage nominal (torr à 300K)			Rayon (cm)
	$p_2$	$p_3$	$p_4$	
A	1,46	0,99	0,99	1,30
B	1,47	1,00	1,89	1,30
$\beta$	1,48	1,00	4,01	1,30

Tableau II-6 : Caractéristiques des cellules utilisées pour étudier les variations de  $1/D$  avec la densité  $d_4$  en  $^4\text{He}$ .

Les résultats des mesures, étalonnés comme au § II.A.1 avec la valeur de  $D_{33}^{-1}(T)$  à  $T^{-1} = 1,75\text{K}^{-1}$ , sont présentés sur la figure II-6. Ils rejoignent une courbe commune à basse température ; cette figure justifie le fait de dire que  $^4\text{He}$  est en situation de vapeur saturante : la densité gazeuse  $d_4$  apparaît bien expérimentalement indépendante de la quantité initiale de  $^4\text{He}$  introduite dans la cellule, dans toute la gamme de température située en deçà du point de rosée le plus froid. Pour une courbe donnée, le raccordement à ce comportement universel se fait progressivement, au fur et à mesure de l'épaississement du film. Néanmoins, on a repéré par une flèche, sur la figure II-6, l'ordre de grandeur de la température  $T^c$  en deçà de laquelle, dans chacun des cas, il n'est plus possible de distinguer les résultats de ceux correspondant aux conditions de vapeur saturante. Sur la figure II-7, on a porté, en fonction du remplissage nominal  $p_4$  en  $^4\text{He}$  dans chaque cellule, la valeur  $d_4^c$  de la densité de vapeur saturante théorique de  $^4\text{He}$  à la température  $T^c$ . Les points peuvent être alignés sur une droite de pente 1,0 mais un décalage entre  $d_4^c$  et  $p_4$  apparaît clairement et la droite joignant les points coupe l'axe horizontal au point d'abscisse  $e_4^c$  : cette valeur correspond grosso modo à la quantité de  $^4\text{He}$  déjà absente de la phase vapeur avant d'atteindre le point de rosée, à cause de l'attraction de Van der Waals par le



*Figure II-7* : Valeurs de la densité de vapeur saturante  $d_4^c$  à la température  $T^c$  repérée sur la figure II-6 pour chaque cellule, en fonction de la densité de remplissage en  $^4\text{He}$ . Les points s'alignent sur une droite de pente (+1) recoupant l'axe horizontal au point d'abscisse  $e_4^c$  :  $e_4^c$  est l'ordre de grandeur de la quantité d'hélium condensée sur la paroi avant que la vapeur puisse être considérée comme saturante.



*Figure II-8 : Variations de  $1/D$  à  $T = 1,0\text{K}$  pour les cellules A,B, $\beta$ , en fonction du contenu en  $^4\text{He}$   $d_4$  de la phase vapeur dans ces cellules. La condensation d'une faible fraction de l'hélium-4 sur la paroi à 1K a été prise en compte pour déterminer  $d_4$ , selon les résultats du chapitre III.*

substrat; la valeur  $e_4^c$  trouvée ( $\approx 0,3$  torr) permet de former sur la surface géométrique de la cellule cinq à six couches d'hélium. La dépendance, à température donnée, de  $1/D$  avec le contenu en  $^4\text{He}$  de la phase gazeuse est, d'après (II-2), représenté par une loi affine :

$$\frac{1}{D} = \frac{d_4}{D_{34}} + \frac{d_3}{D_{33}} \quad (\text{II-11})$$

puisque le contenu en  $^3\text{He}$  des différentes cellules est identique. Comme le montre la figure II-8 tracée pour  $T = 1,0\text{K}$ , les résultats sont compatibles avec une telle loi ; la pente de la droite donne  $D_{34}^{-1}(T)$  et son ordonnée à l'origine  $D_{33}^{-1}(T)$ . Les résultats numériques ont été regroupés sur le tableau II-7.

$T^{-1}$ ( $\text{K}^{-1}$ )	$D_{34}^{-1}(T)$ ( $10^{-2} \text{s cm}^{-2}$ )	$D_{33}^{-1}(T)$ ( $10^{-2} \text{s cm}^{-2}$ )
1,0	2,7	1,9
1,1	2,8	1,9
1,2	2,8	2,05
1,3 <sup>(*)</sup>	2,9	2,0

Tableau II-7 : Détermination expérimentale de  $D_{34}^{-1}(T)$  et  $D_{33}^{-1}(T)$ , à partir des résultats présentés sur la figure II-7, pour  $0,77\text{K} \leq T \leq 1,0\text{K}$ .

(\*) Résultat obtenu à partir des cellules A et B seulement.

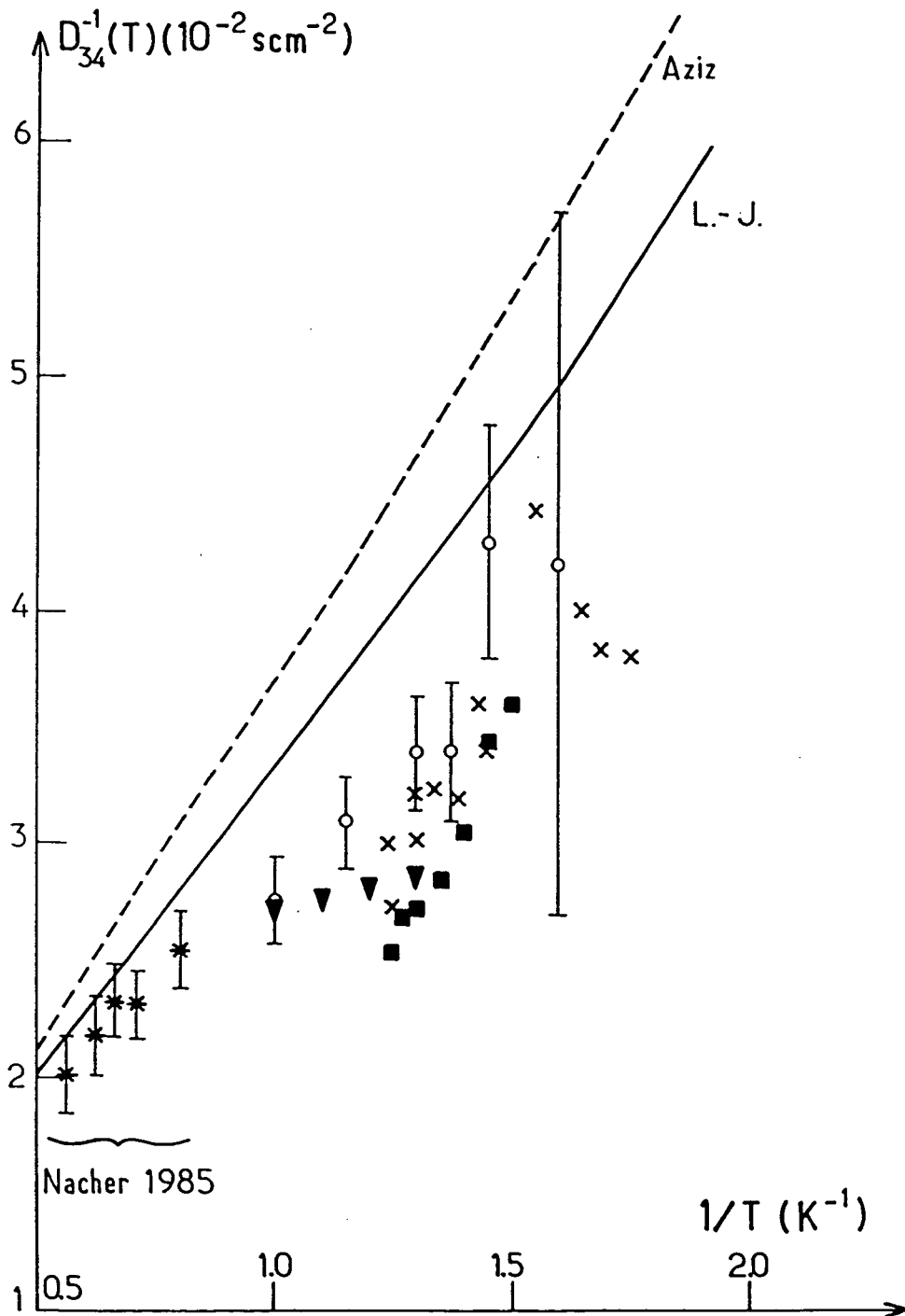
## II.B.2 - Confrontation avec les calculs théoriques

### II.B.2.a - Comparaison directe avec les résultats numériques

Les valeurs de  $D_{34}^{-1}(T)$  ont été calculées par Monchick et al. [1965] et par C. Lhuillier [1983] par une méthode tout à fait analogue à la méthode employée pour  $D_{33}^{-1}(T)$ . Les résultats de ces calculs, qui ont déjà été reportés sur la figure II-5c, sont rappelés sur la figure II-9 pour les deux potentiels d'interaction hélium-hélium étudiés.

Tous les résultats précédents ont été regroupés sur la figure II-9 : résultats obtenus à partir de la diffusion dans un gaz  $^4\text{He}$  presque pur (les x sont les centres des quadrilatères de la figure II-5c), ou d'un mélange  $^3\text{He}-^4\text{He}$  avec  $^4\text{He}$  toujours en vapeur saturante (les ■ de II-5c) ; résultats moyens obtenus à partir du jeu de cellules du tableau II-3 de remplissage  $p_3$  varié en  $^3\text{He}$  (les o avec l'écart moyen indiqué au tableau II-5) ; résultats obtenus à partir des trois cellules du tableau II-6 de remplissage  $p_4$  varié (les ▼ correspondant au tableau II-7). On a représenté également les résultats antérieurement obtenus à une température plus élevée par Nacher [1985].

Compte tenu des incertitudes expérimentales, nos conclusions doivent rester prudentes : nos mesures de  $D_{34}^{-1}(T)$  entre  $1,0\text{K}^{-1}$  (1K) et  $1,6\text{K}^{-1}$  (0,625K) sont toujours inférieures aux valeurs calculées, indiquant que la diffusion se fait donc plus vite, c'est-à-dire que les sections efficaces de collision semblent plus faibles que les sections efficaces calculées. La tendance déjà indiquée à plus haute température par les résultats de Nacher [1985] est confirmée. Les variations de  $D_{34}^{-1}(T)$  avec la température sont assez semblables aux variations des coefficients calculés. Il est difficile toutefois de conclure de façon nette à une invalidation définitive du potentiel  $U^{A2}$  : en effet, nos mesures absolues de  $D_{34}^{-1}(T)$  font intervenir un étalonnage du rapport de  $1/T_2$  à  $1/D$  qui utilise la valeur de  $D_{33}^{-1}(T)$  déterminée au § II.A pour  $T^{-1} = 1,75\text{K}^{-1}$  avec une précision assez médiocre. L'incertitude correspondant à cet étalonnage nécessaire n'a pas été reportée sur la figure II-9. De, plus, le calcul des valeurs théoriques de  $D_{33}$  et  $D_{34}$  à partir des potentiels n'est pas un calcul rigoureusement exact (on se restreint à un certain type d'écart à la distribution d'équilibre pour étudier la diffusion) ; les incertitudes correspondantes devraient être évaluées.



### II.B.2.b - Etude du rapport $D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1}$

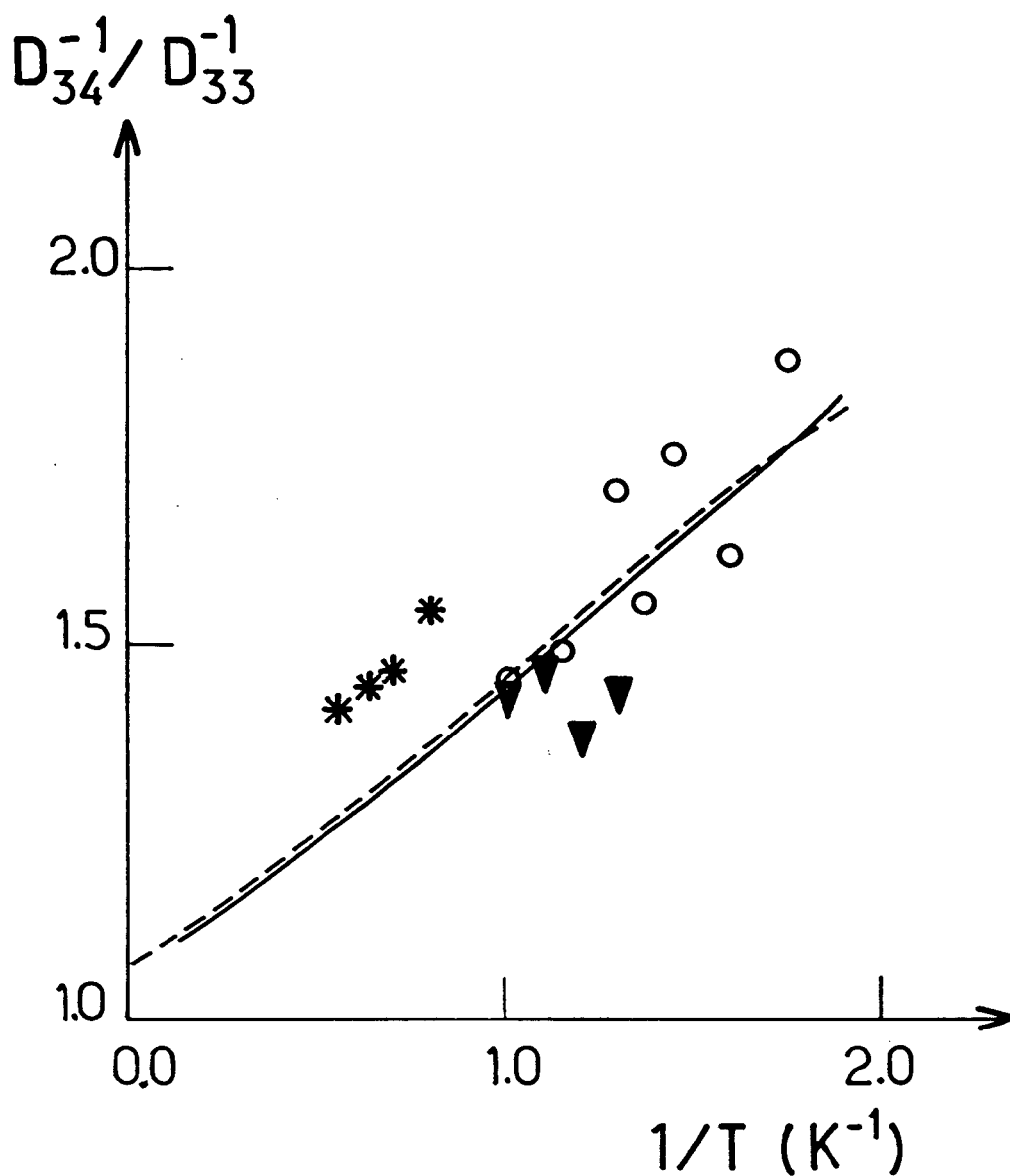
Aux paragraphes II.A.2 et II.B.1.c.β, on met à profit la dépendance linéaire de  $D^{-1}(T)$  avec  $d_3$  (à  $d_4$  constante) et avec  $d_4$  (à  $d_3$  constante) à une température fixée, pour déterminer  $D_{34}^{-1}$  et  $D_{33}^{-1}$ . Le rapport  $D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1}$  calculé à partir de ces mesures peut dans ce cas être obtenu d'une manière tout à fait indépendante de l'étalonnage, qui n'intervient que par un facteur multiplicatif portant sur  $D$ .

Sur la figure II-10, on a représenté, en fonction de  $1/T$ , la valeur de ce rapport pour les deux séries de mesures mentionnées ci-dessus : étude à  $d_4$  constante (o) et à  $d_3$  constante (∇). Les prévisions des calculs numériques de C. Lhuillier sont reportées en trait continu (lorsque le potentiel  $U^{LJ}$  a été utilisé) et en trait interrompu (lorsque c'est  $U^{A2}$ ). On a également représenté sur la figure II-10 les résultats expérimentaux de Nacher [1985] par des symboles \*.

Les résultats numériques pour les deux potentiels testés sont très proches l'un de l'autre. L'effet principal dans la substitution du système  ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$  au système  ${}^3\text{He}-{}^3\text{He}$  provient vraisemblablement davantage de la modification de la statistique à prendre en compte, de la variation de masse réduite (qui intervient, comme d'autres facteurs, dans (II-9) et (II-10)), que

*Figure II-9 : Confrontation des valeurs de  $D_{34}^{-1}(T)$  aux prévisions numériques de C. Lhuillier [1983]. Les courbes en traits continu et interrompu représentent les résultats numériques pour, respectivement, un potentiel d'interaction He-He du type Lennard-Jones (II-8) et du type Aziz et al. [1979]. Les ■ et x sont les résultats obtenus par dépouillement direct des résultats des cellules contenant une forte densité de  ${}^4\text{He}$  (§ II.B.1.a). Les o correspondent aux valeurs du tableau II-5 (cellules de remplissage varié en  ${}^3\text{He}$ ) : les ▼ sont associés au dépouillement des résultats obtenus à partir des trois cellules du tableau II-6 (remplissage varié en  ${}^4\text{He}$ ). On a également représenté les mesures effectuées par Nacher [1985] à plus haute température.*





*Figure II-10 : Variations du rapport  $D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1}$  avec la température. Prévisions numériques : trait continu, potentiel Lennard-Jones [C. Lhuillier, 1983] ; trait interrompu, potentiel d'Aziz et al. [1979]. Points expérimentaux : ▼ obtenus en analysant les résultats sur un jeu de cellules de même contenu en  $^3\text{He}$  ; ○ obtenus à partir de cellules de même contenu en  $^4\text{He}$  ; \* résultats de Nacher [1985].*

du détail du potentiel d'interaction. Les mesures expérimentales sont tout à fait compatibles avec les résultats numériques, et aucune déviation systématique n'apparaît. Le fait que les potentiels  $U^{A2}$  et  $U^{LJ}$  donnent des résultats très voisins indique toutefois que le rapport  $D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1}$  est peu sensible au potentiel : on ne peut guère tirer de conclusions du bon accord théorie-expérience obtenu ici quant au potentiel d'interaction He  $\leftrightarrow$  He à privilégier .

### II.B.2.c - Contribution à $T_2$ de l'hélium-3 adsorbé sur la paroi vers 0,5K

En étudiant les variations de  $1/T_2$  avec la température pour des densités croissantes de  $^3\text{He}$  dans les cellules, nous avons constaté qu'une anomalie apparaissait aux plus basses températures ( $1,8\text{K}^{-1} \leq 1/T$ ) pour les plus fortes densités de  $^3\text{He}$ .

■ Sur la figure II-11 sont représentés ces résultats, obtenus dans des conditions telles que  $^4\text{He}$  est en pression de vapeur saturante (pour toutes ces cellules, la pression de remplissage en  $^4\text{He}$  est proche de 2 torr à 300K). Les courbes en trait continu ont été calculées de la façon suivante : le rapport  $D_{34}^{-1}(T)/D_{33}^{-1}(T)$  a été pris égal au rapport théorique apparaissant sur la figure II-10 ; les sections efficaces  $^3\text{He}-^3\text{He}$  ont été choisies égales aux sections efficaces  $^3\text{He}-^3\text{He}$  calculées à partir de  $U^{LJ}$ , à un facteur multiplicatif uniforme près :  $D_{33}^{-1}(T)$  pour  $U^{LJ}$  a été multiplié par 0,91. A basse densité de  $^3\text{He}$  ( $d_3 = 1$  et 2 torr à 300K), l'accord des prévisions et des résultats est globalement satisfaisant : les écarts systématiques observés pour certaines cellules peuvent être expliqués facilement (par les incertitudes de l'étalonnage et la forme géométrique des cellules, par exemple...). Pour les densités plus élevées le taux de relaxation s'accroît notablement vers 0,5K, ce qui, sur la figure II-11, se traduit par une augmentation apparente de  $1/D$ .

■ De plus, une variation du taux de relaxation transverse avec l'aimantation longitudinale subsistant dans la cellule a été observée, pour les échantillons concernés, à très basse température. Les résultats dont sont issus les points représentés sur

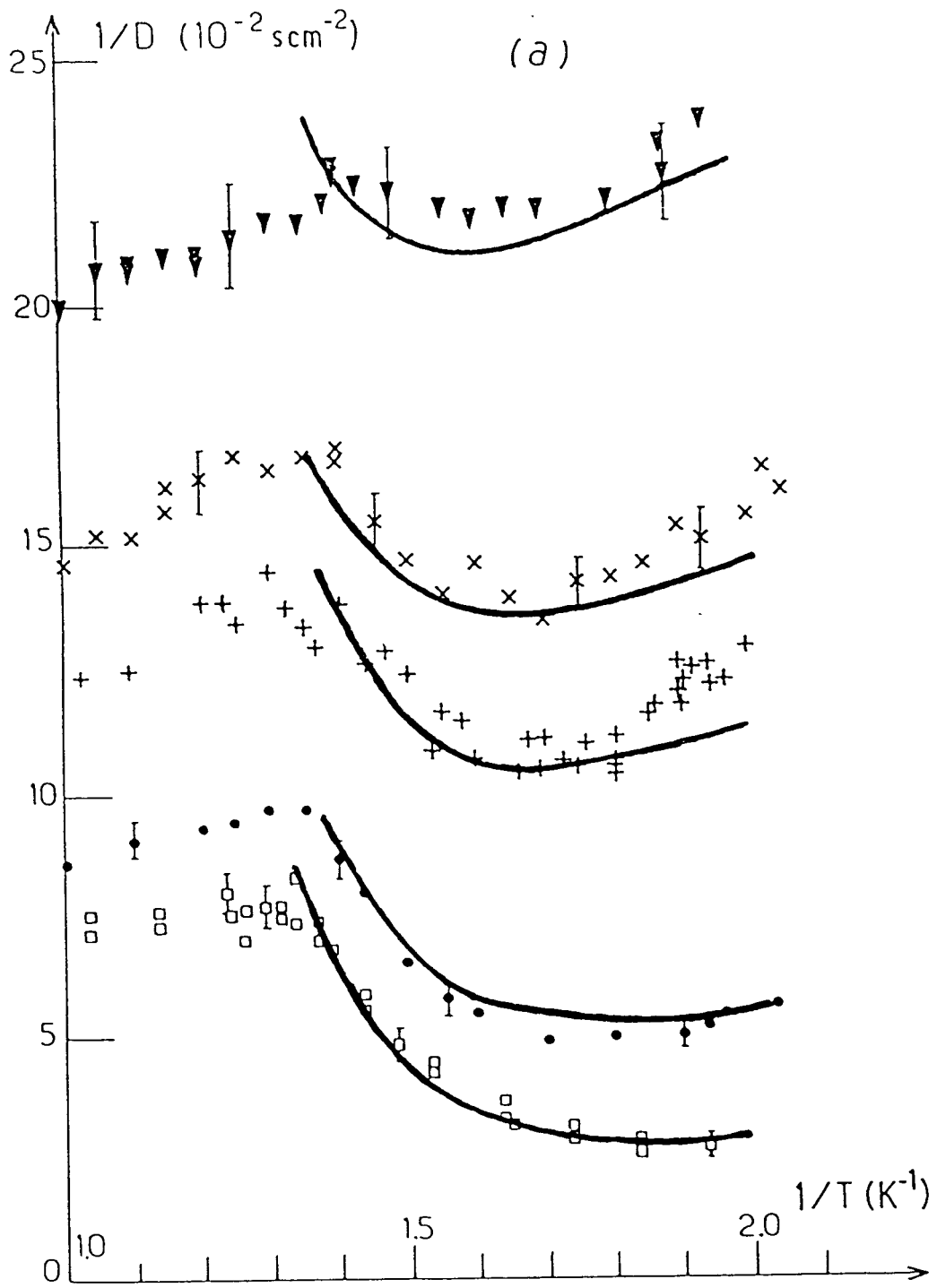


Figure II-11 : Confrontation des résultats à des prévisions numériques dans la zone de température où  $^4\text{He}$  est en vapeur saturante. Pour chacun des ensembles de points expérimentaux repris sur la figure II-3-a, qui correspondent à des échantillons de contenu en  $^3\text{He}$  différent, on a représenté les variations de  $1/D$  calculés à partir des valeurs numériques données par C. Lhuillier pour le potentiel d'interaction  $U^{LJ}$ . Un coefficient multiplicatif commun (facteur d'échelle) égal à 0,91 a été appliqué. Si l'accord avec les résultats expérimentaux est bon aux faibles densités de  $^3\text{He}$  ( $\square$  : 1,00 ;  $\bullet$  : 1,95), les courbes numériques s'écartent des points, notamment à basse température, pour les valeurs plus élevées de la densité en  $^3\text{He}$  ( $+$  = 3,91,  $\times$  : 5,12,  $\blacktriangledown$  : 8,05). La phase adsorbée de  $^3\text{He}$  contribue alors à la relaxation transverse.

les figures de ce chapitre correspondent tous à des mesures de relaxation transverse après basculement d'un angle  $\pi/2$  de l'aimantation, donc à aimantation longitudinale rémanente nulle. Mais lorsque par exemple à la suite d'un basculement d'un angle  $\pi/4$  une part de l'aimantation longitudinale a été conservée, nous avons observé des variations du taux de relaxation atteignant près de 20% de  $1/T_2$  pour 2% d'orientation totale de l'échantillon (résultats à 0,5K pour la cellule B3 contenant 8,05 torr à 300K). Des effets analogues avaient également été vus par P.-J.Nacher, G.Tastevin et M.Leduc au cours de leurs mesures de relaxation transverse de  $^3\text{He}$  vers 1,5K sur un substrat d'hydrogène nu ; la densité de  $^3\text{He}$  était telle que les atomes  $^3\text{He}$  adsorbés sur l'hydrogène formaient, vers 1,5K, une fraction appréciable de monocouche.

■ Le processus responsable de ce comportement n'a pas été étudié en détail. Néanmoins, les résultats expérimentaux suggèrent que cet effet est lié à la présence d'une phase de  $^3\text{He}$  de densité plus importante : adsorption sur le film, dissolution dans le film.

L'amplitude des effets mentionnés dans ce paragraphe a été étudiée en fonction de la température, entre  $1,7\text{K}^{-1}$  (0,59K) et  $2,05\text{K}^{-1}$  (0,49K), seul intervalle de température intéressant accessible à notre appareillage. Les variations sont compatibles avec une loi exponentielle, l'amplitude du phénomène croissant avec  $1/T$  en faisant intervenir une énergie d'"activation" comprise entre -4K et -6K. Or, l'énergie d'adsorption individuelle d'un atome  $^3\text{He}$  sur un film épais de  $^4\text{He}$  est -5K.

Un effet analogue a été observé sur une cellule ne contenant que 2 torr de  $^3\text{He}$ , mais une grande quantité de  $^4\text{He}$  ; à cette température,  $^4\text{He}$  forme vraisemblablement une flaque dans le bas de la cellule. Dans ce cas, l'énergie d'"activation" obtenue est plus faible, de l'ordre de -2K : cette valeur doit être rapprochée de l'énergie de liaison d'un atome de  $^3\text{He}$  à l'intérieur du liquide  $^4\text{He}$  massif, soit -2,8K .

Cet effet est vraisemblablement provoqué par le champ magnétique inhomogène associé à la présence d'atomes  $^3\text{He}$  polarisés adsorbés sur la paroi. Mais pour approfondir cette interprétation des mesures systématiques couvrant une plus large gamme de température sont indispensables.

CHAPITRE III

LA CONDENSATION DE L'HELIUM-4 SUR UN ENDUIT D'HYDROGENE



Le dépôt progressif d'atomes d'hélium-4 sur une paroi qui exerce sur eux des forces de Van der Waals attractives a été largement étudié sur le plan expérimental. Le mécanisme de la croissance du film réalisé, la structure des couches successives, les propriétés thermodynamiques du fluide ont été précisées pour des substrats très divers : le graphite, préparé de différentes manières [Wiechert et al., 1982 ; Campbell et Bretz, 1985], recouvert ou non d'un enduit de gaz rare [Lerner et Daunt, 1972] ; le quartz [Webster et al., 1980 ; Chester et al., 1972] ; des verres de composition et de surface effective variées [Ellis et Hallock, 1984 ; Sabisky et Anderson, 1973 ; Laheurte et al., 1981] ; des systèmes en poudre, des verres de géométrie complexe [Lie-Zhao et al., 1986 ; Bhattacharyya et Gasparini, 1982] ; des substrats métalliques ou à composantes métalliques, comme le mylar [Mac Queeney et al., 1984], l'or et l'argent [Hess et Muirhead, 1982 ; Migone et al., 1985], etc. Les études de ces divers substrats ont été conduites en utilisant des techniques également variées : calorimétrie, oscillateurs à torsion, mesure de vitesse du son à l'aide de résonateurs acoustiques, diffraction d'un faisceau de neutrons...

Cette double énumération, évidemment non exhaustive, souligne la très grande richesse de la bibliographie disponible dans ce domaine mais elle révèle aussi ses limites : les substrats étudiés sont spécifiques, les techniques de mesure particulières sont indirectes et choisies pour répondre à une interrogation particulière ; par exemple, la structure de la première couche solide sur le grafoil est aujourd'hui bien connue [Wiechert et al., 1982], de même que l'épaisseur minimale permettant l'apparition de la superfluidité [Hess et Muirhead, 1982]. Enfin, sur toutes les expériences recensées, une seule -- récente -- utilise l'hydrogène solide comme substrat et nous



intéresse donc directement puisque c'est celui dont nous avons surtout fait usage. Les renseignements fournis par cette expérience [Paalanen et Iye, 1985] restent néanmoins fragmentaires. (\*)

Il est donc nécessaire de faire appel à des modèles théoriques pour connaître l'épaisseur et la structure du film formé dans notre cas expérimental. Ceux-ci ont été développés, soit par une approche considérant le film comme un système à deux dimensions [Bruch et al., 1986], puis comme un système à géométrie réduite faisant appel à la notion de "couche atomique" bien appropriée aux films minces, soit en adaptant les modèles utilisés pour décrire les phases massives ; ces dernières descriptions prennent en compte la structure atomique de l'hélium [Krotschek, 1985], ou bien considèrent le film comme un fluide continu [Sherril et Edwards, 1985].

On se propose dans ce chapitre de rassembler les différents éléments pertinents qui permettent de décrire la croissance progressive du film sur la paroi (§ III.B) et de prévoir la structure des différentes composantes de celui-ci (§ III.C). Ces prévisions sont confrontées aux expériences antérieurement effectuées sur d'autres substrats, dans la mesure où les forces attractives exercées par la paroi sur le film peuvent être comparées. Il est évidemment nécessaire de déterminer préalablement le potentiel attractif créé par la paroi dans notre cas expérimental (§ III.A).

---

(\*) Une expérience du même type donnant des résultats complémentaires est en cours à l'Université de Mayence (RFA) [Cieslikowski et al., 1987].

---

## III.A - LE POTENTIEL ATTRACTIF CREE PAR LA PAROI

Dans la plupart des expériences décrites dans ce mémoire, la paroi de pyrex des cellules est recouverte d'un enduit d'hydrogène solide. Pour déterminer l'énergie potentielle  $V_p(\vec{r})$  d'un atome d'hélium-4 en  $\vec{r}$  au voisinage de la paroi, il convient donc de prendre en compte la contribution des couches d'hydrogène condensé (III.A.1) et l'effet du verre qui porte cet enduit d'épaisseur finie (III.A.2). Au (III.A.3), le potentiel  $V_p$  calculé est comparé aux potentiels que créent d'autres substrats.

### III.A.1 - Attraction entre un mur d'hydrogène et un atome d'hélium

#### III.A.1.a - Potentiel d'interaction entre la molécule d'hydrogène et l'atome d'hélium

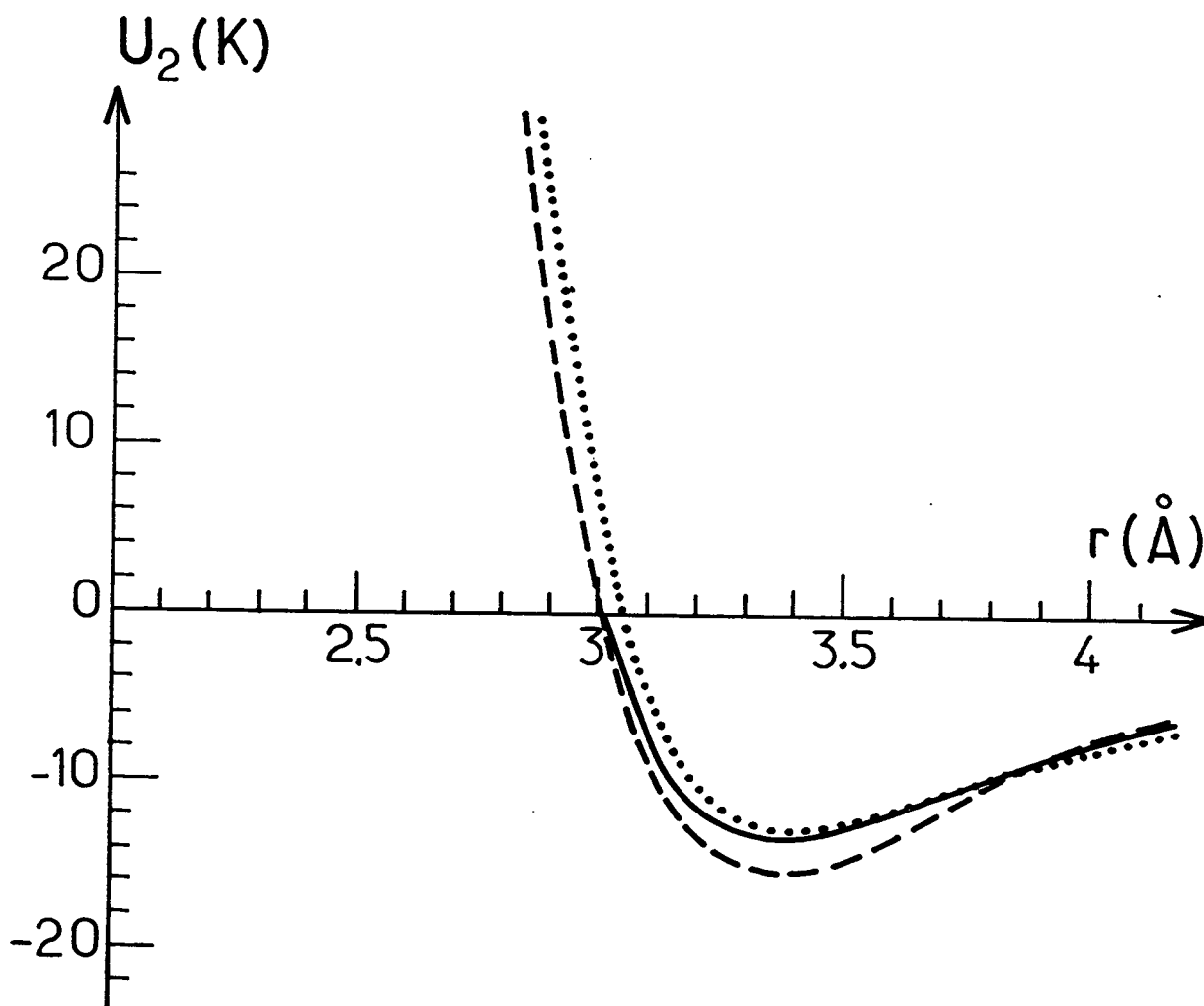
La partie isotrope de l'interaction entre un atome d'hélium et une molécule d'hydrogène  $H_2$  a été calculée par Meyer et al. [1980]. Ce potentiel est représenté sur la figure III-1 ; il présente vers  $r = 3,5 \text{ \AA}$  (distance entre le noyau de He et le centre de masse de  $H_2$ ) un puits attractif profond de 14K ; il est assez proche d'une détermination expérimentale de Gengenbach et Hahn [1972] dans la zone du puits de potentiel, et peut d'ailleurs y être convenablement représenté par le potentiel de type Lennard-Jones (6-12) :

$$U_2^{LJ}(r) = 4 \varepsilon_2 \left( \left( \frac{\sigma_2}{r} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma_2}{r} \right)^6 \right) \quad (\text{III-1})$$

avec  $\sigma_2 = 3,05 \text{ \AA}$  et  $\varepsilon_2 = 13\text{K}$ .

La partie anisotrope de l'interaction à deux corps (dans l'état "ortho", la molécule d'hydrogène crée autour d'elle des effets qui n'ont pas la symétrie sphérique) n'est jamais supérieure à 15% et n'a pas été prise en compte ici.

Figure III-1 : Partie isotrope du potentiel d'interaction entre un atome d'hélium et une molécule d'hydrogène ; en trait continu, détermination théorique de Meyer et al. [1980] ; en trait interrompu, détermination expérimentale de Gengenbach et Hahn [1972] ; en trait pointillé, approximation du type Lennard-Jones (6-12) (équation III-1).



L'interaction dipôle-dipôle entre  $H_2$  et He, qui ont tous les deux une faible polarisabilité, introduit dans le potentiel d'interaction une partie non nulle à longue distance ; celle-ci a été déterminée théoriquement par un développement multipolaire de l'interaction [Meyer, 1976 ; Tang et Tonnies, 1982]. Un fit analytique regroupant ces divers résultats est donné par Pierre et al. [1985]. L'expression simple  $U_2^{LJ}$  donnée en (III-1) est commode pour les calculs, mais elle présente l'inconvénient d'avoir une dépendance longue distance fautive : le coefficient de  $r^{-6}$  correspondant vaut en effet :

$$C_6^{LJ} = 19,9K (\text{couche})^3 \quad (\text{III-2})$$

au lieu de la valeur correcte :

$$C_6^{MHK} = 13,2K (\text{couche})^3 \quad (\text{III-3})$$

L'unité de longueur choisie, la "couche atomique" d'hélium, vaut  $\ell_0 = 3,58 \text{ \AA}$ , et vérifie simplement  $\ell_0^3 d_4^{(0)} = 1$  où  $d_4^{(0)}$  est la densité atomique du liquide  $^4\text{He}$  à  $T = 0K$  et  $p = 0 \text{ bar}$ .

### III.A.1.b - Potentiel d'interaction entre l'enduit d'hydrogène et un atome d'hélium

Pour déterminer ce potentiel, il est nécessaire de connaître la structure de l'enduit d'hydrogène. Pierre et al. [1985] ont déterminé le potentiel d'interaction et les caractéristiques de l'état lié d'un atome d'hélium sur  $H_2$  dans le cadre du modèle suivant : l'enduit d'hydrogène est un réseau solide semi-infini f.c.c. (i.e. cubique à faces centrées) parfait, limité par un plan coïncidant avec un plan 111 ou 100 du réseau cristallin ; chaque atome est supposé délocalisé autour du site qui lui est affecté dans le réseau. Le potentiel d'interaction dépend alors de la position dans un plan parallèle à la surface, mais cette rugosité disparaît vite lorsqu'on s'éloigne de l'enduit. Les caractéristiques de l'état individuel le plus lié pour un atome d'hélium-4 dans ce potentiel sont les suivantes : l'atome est

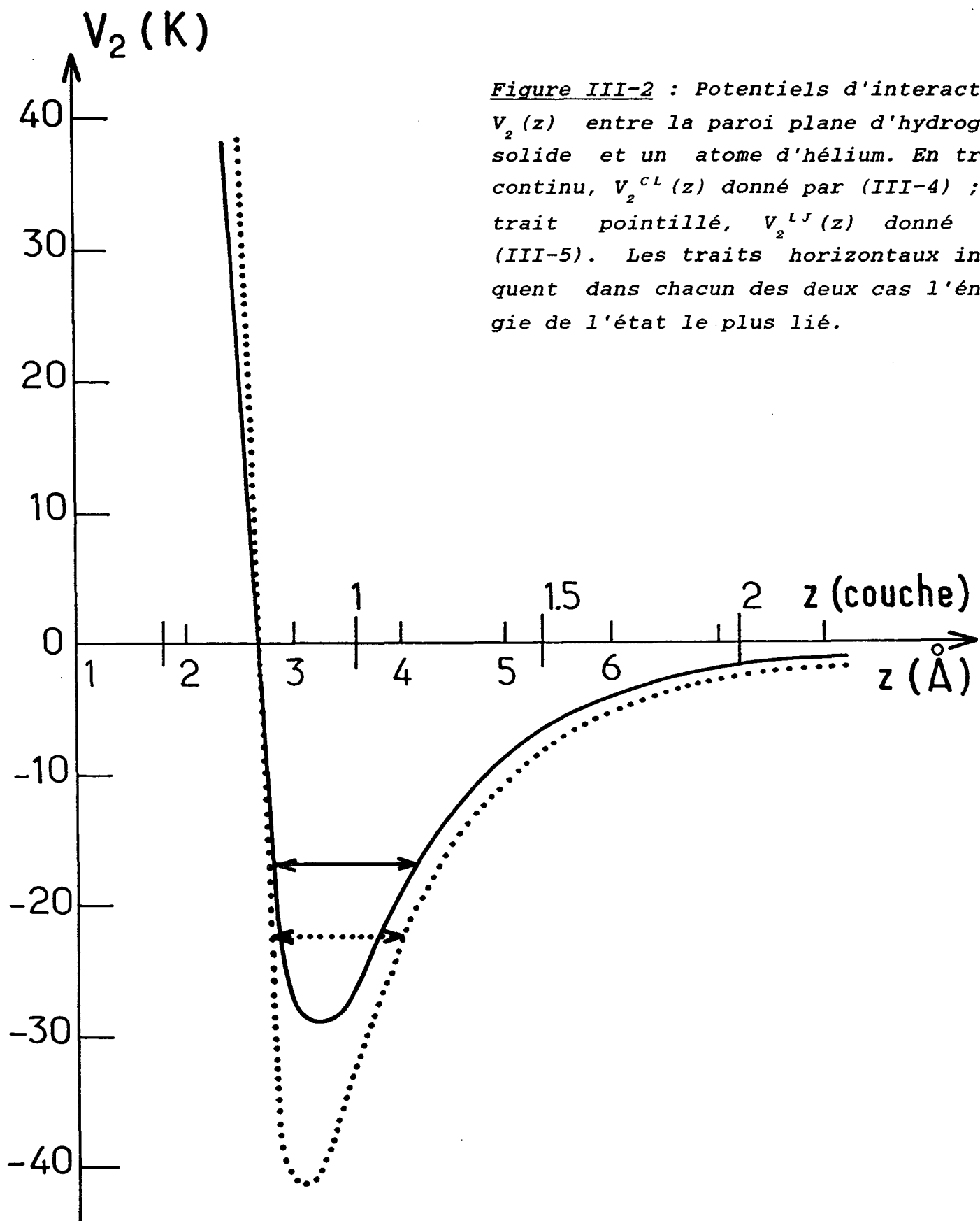
adsorbé avec une énergie  $E_a$  égale à  $-15,6K$ . Sa fonction d'onde est centrée à  $3,6 \text{ \AA}$  du premier plan de la paroi. La rugosité du potentiel joue un rôle faible : la part de l'énergie cinétique associée à la modulation transversale de la fonction d'onde est inférieure à 10%, alors que dans le premier état excité l'énergie vaut  $-2,4K$ , ce qui correspond à une excitation dix fois plus grande par rapport à l'état le plus lié. En conséquence, les atomes de  $^4\text{He}$  se comportent sur la paroi comme s'ils étaient piégés dans un gaz parfait à deux dimensions. L'énergie d'adsorption ainsi calculée à partir du potentiel à deux corps évoqué au III.A.1.a est compatible avec les résultats expérimentaux obtenus pour  $^3\text{He}$  [V. Lefevre et al., 1985], mais s'écarte sensiblement ( $-20\%$ ) des résultats disponibles pour  $^4\text{He}$  sur  $\text{H}_2$  [Paalanen et Iye, 1985].

Compte tenu du peu d'importance de la modulation du potentiel le long du plan  $(x,y)$  parallèle à la paroi, il est raisonnable de simplifier le problème en ignorant cette modulation et en considérant que l'hydrogène solide crée un potentiel  $V_2$  ne dépendant que de la coordonnée  $z$  perpendiculaire à la surface du solide. Ainsi, nous avons utilisé comme potentiel "moyen" l'un des potentiels calculés par C. Lhuillier au-dessus d'un site particulier de la surface 100 ; ce site (le site B de Pierre et al., [1985]) est intermédiaire entre le site le plus attractif et le site le moins attractif sur un plan cristallin 100. Les états liés dans ce potentiel sont très voisins des états de bas de bande calculés dans le potentiel exact à 3 dimensions. Une approximation analytique est donnée par :

$$V_2^{cL}(z) = -\frac{9,48}{z^3} - \frac{25,5}{z^5} + \frac{9,32}{z^9} \quad (\text{III-4})$$

formule dans laquelle  $z$  s'exprime en "couche atomique" et  $V_2^{cL}$  en  $K$ .

On peut également construire, à partir du potentiel  $U_2^{LJ}(r)$  de (III-1), une autre forme analytique de  $V_2(z)$  en moyennant sur la position des molécules de  $\text{H}_2$  dans les plans du réseau cristallin parallèles à la surface. On obtient ainsi (voir



*Figure III-2 : Potentiels d'interaction  $V_2(z)$  entre la paroi plane d'hydrogène solide et un atome d'hélium. En trait continu,  $V_2^{cL}(z)$  donné par (III-4) ; en trait pointillé,  $V_2^{LJ}(z)$  donné par (III-5). Les traits horizontaux indiquent dans chacun des deux cas l'énergie de l'état le plus lié.*

Appendice B) :

$$V_2^{LJ}(z) = 8\pi \varepsilon_2 d_s \sigma_2^2 \sum_{p=0}^{\infty} \left\{ \frac{1}{10} \left( \frac{\sigma_2}{z+p \frac{d_0}{\ell_0}} \right)^{10} - \frac{1}{4} \left( \frac{\sigma_2}{z+p \frac{d_0}{\ell_0}} \right)^4 \right\} \quad (\text{III-5})$$

où  $d_s = 8.10^{-2} \text{A}^{-2}$  est la densité moléculaire à deux dimensions dans un plan cristallin de l'hydrogène solide et où  $d_0/\ell_0$  est la distance entre deux plans cristallins consécutifs exprimée en couches atomiques d'hélium ( $d_0/\ell_0 = 0,86$ ).

Ces deux potentiels  $V_2^{CL}$  et  $V_2^{LJ}$  ont été représentés sur la figure III-2. Les caractéristiques des états liés associés ont été rassemblées sur le tableau III-1.

*Tableau III-1 : Caractéristiques des états liés d'un atome  $^4\text{He}$  dans les potentiels à une dimension  $V_2^{CL}(z)$  et  $V_2^{LJ}(z)$ .*

Potentiel	$V_2^{CL}(z)$	$V_2^{LJ}(z)$
Energie de l'état fondamental (K)	- 16,8	- 22,5
Energie potentielle dans l'état fondamental (K)	- 23,3	- 30,1
Position moyenne du noyau (couches $^4\text{He}$ )	1,02	0,99
Energie du premier état excité (K)	- 2,7	- 4,9

## II.A.2 - L'enduit d'hydrogène réel dans nos expériences

La paroi vue par un atome d'hélium ne ressemble concrètement que d'assez loin au cristal infini parfait utilisé ci-dessus pour calculer  $V_2$ . D'une part l'enduit présente des imperfections ; d'autre part son épaisseur est limitée, de sorte que l'attraction par le verre sous-jacent peut se faire sentir.

### III.A.2.a - Les irrégularités de l'enduit de $H_2$

Des irrégularités sont créées par défaut de cristallisation lorsque l'enduit est condensé sur la paroi de pyrex : marches, coins, dislocations. L'énergie d'adsorption peut avoir en certains sites privilégiés une valeur très supérieure,  $2E_a$  ou davantage... En outre, la mobilité des atomes adsorbés dans la phase à deux dimensions est limitée par la taille finie des faces cristallines qui a été estimée à environ 100 Å [Edel'man et Faley, 1983] ; dans cette hypothèse, la fraction de "sites" d'adsorption privilégiée sur l'enduit ne serait que de 1% à 1%.

### III.A.2.b - L'épaisseur de l'enduit de $H_2$

La croissance de l'enduit d'hydrogène ne se fait pas de façon régulière. En effet, la procédure expérimentale oblige le système à suivre, dans un diagramme d'équilibre entre phases en coordonnées  $(T,p)$ , une courbe de solidification qui passe au-dessous du point triple. On s'attend dans ces conditions à ce que le processus de croissance soit de classe II [Dash, 1975] : après une phase de croissance uniforme sur toute la surface d'un solide dont la structure est fortement influencée par le substrat sous-jacent et qui est donc vraisemblablement mal ordonné, il se produit une seconde phase de croissance selon l'état cristallin massif, qui minimise la surface libre et donne naissance à des cristallites isolées ; la croissance du film n'est alors plus uniforme mais localisée aux endroits où sont présentes les cristallites. Ailleurs, l'épaisseur de l'enduit n'augmente plus.



Un ordre de grandeur de l'épaisseur limite  $e_\ell$  de la couche régulière peut être évalué en suivant le modèle de Krim et al. [1984] ; les idées dominantes de celui-ci sont les suivantes :

- les couches les plus proches de la paroi, qui recouvrent uniformément la surface, forment une première phase mal ordonnée ou en tout cas ordonnée suivant un schéma différent de celui du solide massif. Le potentiel chimique dans cette phase est plus élevé que celui du solide ; on suppose qu'une description convenable de cet état peut être faite en extrapolant, en-dessous du point triple, les caractéristiques de la phase liquide ;

- cette première phase est néanmoins favorisée par rapport au solide par l'attraction de Van der Waals du substrat. Mais à l'épaisseur  $e_\ell$ , cette dernière devient trop faible, et une croissance localisée sur les cristallites l'emporte.

Soit  $\mu_2$  le potentiel chimique par molécule de  $H_2$  dans la cellule à la température  $T$ . L'épaisseur maximale de la couche uniforme satisfait donc à l'équation :

$$\mu_2^{\text{solide}}(T) = \mu_2^{\text{liquide}}(T) + V_{\text{Py-H}_2}(e_\ell) \quad (\text{III-6})$$

où  $\mu_2^{\text{liquide}}(T)$  est le potentiel chimique de la phase liquide, extrapolé en-dessous du point triple, et  $V_{\text{Py-H}_2}(z')$  le potentiel d'interaction entre une molécule de  $H_2$  et la paroi de pyrex. En supposant  $e_\ell$  assez grand pour que seule la partie attractive à longue distance intervienne (\*),

$$V_{\text{Py-H}_2}(z') = - \frac{C_3^{\text{Py-H}_2}}{z'^3} \quad (\text{III-7})$$

---

(\*) L'origine  $z'$  est prise à la surface du pyrex, considéré comme un milieu continu homogène occupant tout le demi-espace  $z' < 0$ .

---

on obtient :

$$e_{\ell} = \left[ \frac{C_3^{Py-H_2}}{\mu_2^{liquide}(T) - \mu_2^{solide}(T)} \right]^{1/3} \quad (III-8)$$

A basse température, les valeurs du potentiel chimique sont connues [Gray et al., 1982]. Il est d'autre part possible d'estimer la valeur du coefficient du terme en  $z'^{-3}$  dans l'interaction de Van der Waals entre un demi-espace de pyrex et une molécule d'hydrogène : Hoinkes [1980] a montré que ce coefficient est proportionnel à la polarisabilité statique électrique de l'élément subissant l'interaction ; celle-ci a été déterminée par Rosenkrantz et Krauss [1985] pour  $H_2$  et He. De la valeur mesurée de  $C_3^{Py-H_2}$  qui sera discutée plus loin, on peut déduire :

$$C_3^{Py-H_2} \simeq 90K (\text{couche de } H_2)^3 \quad (III-9)$$

où l'unité de longueur, la "couche de  $H_2$ ", vaut 3,4 Å. La relation (III-8) donne ainsi  $e_{\ell} \simeq 3,5$  couches.

Cette épaisseur limite correspond à une densité initiale  $p_2$  de remplissage en  $H_2$  égale à 0,2 torr à 300K, si l'on prend pour surface de la paroi la surface géométrique des cellules. La faible valeur de cette épaisseur limite de croissance régulière peut surprendre : d'autres auteurs [Morrow et al., 1981 ; Crampton et al., 1982 ; Paalanen et Iye, 1985] ont pu construire des enduits réguliers plus épais, mais dans des conditions différentes : ils utilisent une grande quantité d'hydrogène. En revanche, l'estimation obtenue à partir des variations avec l'épaisseur de l'énergie d'adsorption sur  $H_2$  mesurées par V. Lefevre [1984] est encore plus faible (1,5 couches).

### III.A.2.c - Correction due au substrat sous-jacent

Compte tenu de la limitation que lui-même impose à l'épaisseur  $e_2$  de l'enduit d'hydrogène, le substrat peut exercer directement une attraction supplémentaire non négligeable sur les atomes d'hélium.

#### *α) Il existe un enduit d'hydrogène*

S'il y a au moins une ou deux couches de  $H_2$ , cette attraction peut être entièrement décrite par le terme de Van der Waals en  $1/z^3$  : tout se passe comme si, dans le demi-espace  $\{z \leq -e_2 + 1/2\}$ , du pyrex était substitué à  $H_2$ . Le potentiel attractif peut donc s'écrire :

$$V_p(z) = V_2(z) - \frac{C_3^{Py-He}}{(z+e_2 - \frac{1}{2})^3} + \frac{C_3^{H_2-He}}{(z+e_2 - \frac{1}{2})^3} \quad (\text{III-10})$$

où l'origine de  $z$  reste située sur le dernier plan cristallin de l'hydrogène. Dans cette relation,  $e_2$  est l'épaisseur d'hydrogène, exprimée en couches moléculaires de  $H_2$  (peu différentes des couches liquides d'hélium qui servent d'unité à  $z$ ). L'origine du facteur  $(1/2)$  au dénominateur, détaillée dans l'Appendice B, est la non-coïncidence entre l'origine des  $z$  et la surface du demi-espace continu homogène auquel, en général, on assimile le substrat pour calculer  $C_3$  à partir de la valeur du coefficient  $C_6$  du terme en  $z^{-6}$  de l'interaction de paire du type Van der Waals pour les individus correspondants.

Le coefficient  $C_3^{H_2-He}$  est obtenu en intégrant  $C_6^{MHK}$  de (III-3), ce qui donne :

$$C_3^{H_2-He} = C_3^{MHK} = 8,3K (\text{couche})^3 \quad (\text{III-11})$$

Le coefficient  $C_3^{Py-He}$  est déterminé comme suit : Sabisky et Anderson [1973], Webster et al. [1980] ont mesuré, en étudiant la croissance des films d'hélium, la différence ( $C_3^{verre-He} - C_3^{He-He}$ ) par une méthode sur laquelle nous reviendrons au (III.B). Le coefficient  $C_3^{He-He}$  a été calculé par Vidali [1979], et mesuré par Mantz et Edwards [1979], Cole et al. [1981]. Nous avons retenu :

$$C_3^{He-He} \simeq 2,6K (\text{couche})^3 \quad (\text{III-12})$$

soit :

$$C_3^{Py-He} \simeq 28,6K (\text{couche})^3 \quad (\text{III-13})$$

Aux faibles épaisseurs d'hydrogène, le terme complémentaire introduit en (III-10) apporte des corrections non négligeables. Sa variation numérique avec  $z$  apparaît au tableau III-2 pour  $e_2 = 3$  ou 5 couches.

$z$ (couches)	$V_2(z) - V_p(z)$ si $e_2 = 3$ (K)	$V_2(z) - V_p(z)$ si $e_2 = 5$ (K)
1	0,47	0,12
2	0,22	0,07
3	0,12	0,05
5	0,05	0,02
10	0,01	0,01

*Tableau III-2 : Influence de l'épaisseur finie de l'enduit d'hydrogène. Pour les différentes valeurs de la distance  $z$  de l'hélium à la surface de l'hydrogène, on a calculé la contribution au potentiel créé par la paroi due au pyrex, dans le cas d'un enduit d'hydrogène épais de 3 (2<sup>ème</sup> colonne) ou 5 (3<sup>ème</sup> colonne) couches, d'après la formule III-10.*

*β) Il n'y a pas d'hydrogène dans la cellule*

Quand il n'y a pas d'hydrogène du tout, les gaz résiduels dans la cellule au moment du remplissage peuvent former un enduit séparant le pyrex de l'hélium. On peut supposer que, dans la situation la plus défavorable, c'est sur le pyrex nu que se dépose l'hélium. Le potentiel d'attraction pyrex-He est mal connu à courte distance ; il présente en tout état de cause un puits attractif beaucoup plus profond que celui de  $V_2(z)$  (formule (III-4)). L'énergie d'adsorption individuelle d'un atome de He sur le pyrex a été mesurée par Fitzsimmons et al. [1969] et Barbé [1977] : elle vaut de l'ordre de -150K à -180K.

Remarque :

Le potentiel  $V_p(z)$  d'interaction entre un atome d'hélium et la paroi déterminé dans ce paragraphe permet d'étudier la condensation, atome après atome, de  $^4\text{He}$  sur l'hydrogène ou le pyrex. Mais lorsque, dans les paragraphes suivants, nous tiendrons compte des interactions entre atomes d'hélium pour calculer l'épaisseur d'un film épais ou étudier la structure du film,  $V_p(z)$  n'interviendra pas directement, mais par l'intermédiaire de la différence

$$V_\Delta(z) = V_p(z) - V_4(z) \quad (\text{III-14})$$

entre  $V_p$  et le potentiel auquel serait soumis l'atome si tout le demi-espace constitué par la paroi était constitué d'hélium condensé.

### III.A.3 - Comparaison avec d'autres substrats

Compte tenu du caractère très incomplet des informations expérimentales que nous possédons sur l'état d'un film de  $^4\text{He}$  sur l'hydrogène solide, il est intéressant de faire des comparaisons avec des substrats plus fréquemment étudiés, à partir des potentiels théoriques qui les caractérisent. Ainsi, sur une

surface bien définie et reproductible comme le grafoil, de nombreux résultats expérimentaux ont été obtenus [Wiechert et al., 1982 ; Polanco et Bretz, 1978 ; Elgin et Goodstein, 1974] : le potentiel d'interaction hélium-substrat, les énergies des divers états liés, la structure des premières couches ont été étudiées.

Les résultats principaux notamment issus de Wiechert et al. [1982] sont les suivants : lorsqu'un film est condensé sur le grafoil et est en équilibre avec sa vapeur non comprimée, la première couche déposée constitue un réseau solide triangulaire à deux dimensions de maille 3,16 Å, ce qui correspond à une densité atomique de  $0,1156 \text{ \AA}^{-2}$  ; la deuxième couche est également solide, de maille 3,59 Å et de densité  $0,0896 \text{ \AA}^{-2}$  ; la troisième couche n'est jamais solide si l'on ne comprime pas. A titre de comparaison, la maille et la densité dans les plans du solide massif d'hélium sur la courbe de fusion à basse température valent 3,66 Å et  $0,0862 \text{ \AA}^{-2}$ . Le potentiel  $V_g^{(1)}(z)$  au voisinage d'une paroi de grafoil [Carlos et Cole, 1980] présente un état lié vers -140K. La situation sur le substrat est donc comparable à la situation sur du pyrex nu. La partie longue distance est cependant plus attractive : Yugama [1982] a mesuré :

$$C_3^{Gr-He} = 50 \pm 7K (\text{couche})^3 \quad (\text{III-15})$$

en accord avec les prévisions numériques de Vidali et Cole [1980]. Bien entendu, la condensation des couches d'hélium ne se fait pas de façon discontinue : la densité atomique à deux dimensions dans chacune des couches varie au fur et à mesure de l'épaississement du film. Il est cependant possible, connaissant les densités des diverses couches solides une fois un film épais formé, de calculer a posteriori quel est le potentiel exercé sur un atome d'hélium donné par la paroi et les couches plus profondes du film. On note  $V_g^{(2)}(z)$  et  $V_g^{(3)}(z)$  les potentiels respectivement créés par le grafoil et la première couche solide et par le grafoil et les deux premières couches solides. Ce sont

les potentiels respectivement exercés sur un atome de la 2<sup>e</sup><sup>m</sup>e et de la 3<sup>e</sup><sup>m</sup>e couches. L'origine de z est, pour chacun d'eux, prise dans le dernier plan atomique de la paroi. Nous allons montrer que la situation de la première couche d'hélium sur l'hydrogène est probablement intermédiaire entre celle de la deuxième et de la troisième couche condensées sur le grafoil lorsque le film est épais.

Si  $V_4^{Ds}(z)$  est le potentiel créé par une monocouche plane d'hélium solide de densité  $D_s$  à deux dimensions, on peut écrire :

$$V_G^{(2)}(z) = V_G^{(1)}(z+z_1) + V_4^{Ds(1)}(z) \quad (\text{III-16-a})$$

$$V_G^{(3)}(z) = V_G^{(2)}(z + (z_2 - z_1)) + V_4^{Ds(2)}(z) \quad (\text{III-16-b})$$

où  $z_1, z_2$  sont les positions moyennes des deux premières couches par rapport au dernier plan cristallin du grafoil, et  $D_s(1)$  et  $D_s(2)$  les densités atomiques à deux dimensions dans ces couches : ces paramètres ont été mesurés par Wiechert et al. [1982].

L'interaction  $V_4^{Ds}(z)$  est obtenue en intégrant le potentiel d'interaction de paire entre atomes d'hélium. Les calculs sont très simples lorsqu'on utilise l'approximation de type Lennard-Jones (6-12) donnée en (II-8) ; il vient alors :

$$V_4^{Ds}(z) = 8\pi \varepsilon_4 \sigma_4^2 \left( \frac{1}{10} \left( \frac{\sigma_4}{z} \right)^{10} - \frac{1}{4} \left( \frac{\sigma_4}{z} \right)^4 \right) \quad (\text{III-17})$$

où  $\varepsilon_4 = 10,22\text{K}$  et  $\sigma_4 = 2,556 \text{ \AA}$ .

On peut comparer directement  $V_G^{(2)}(z)$  et  $V_G^{(3)}(z)$  au potentiel  $V_P(z)$  obtenu sur un enduit d'hydrogène reposant sur du pyrex. Sur la figure III-3, cette comparaison a été effectuée

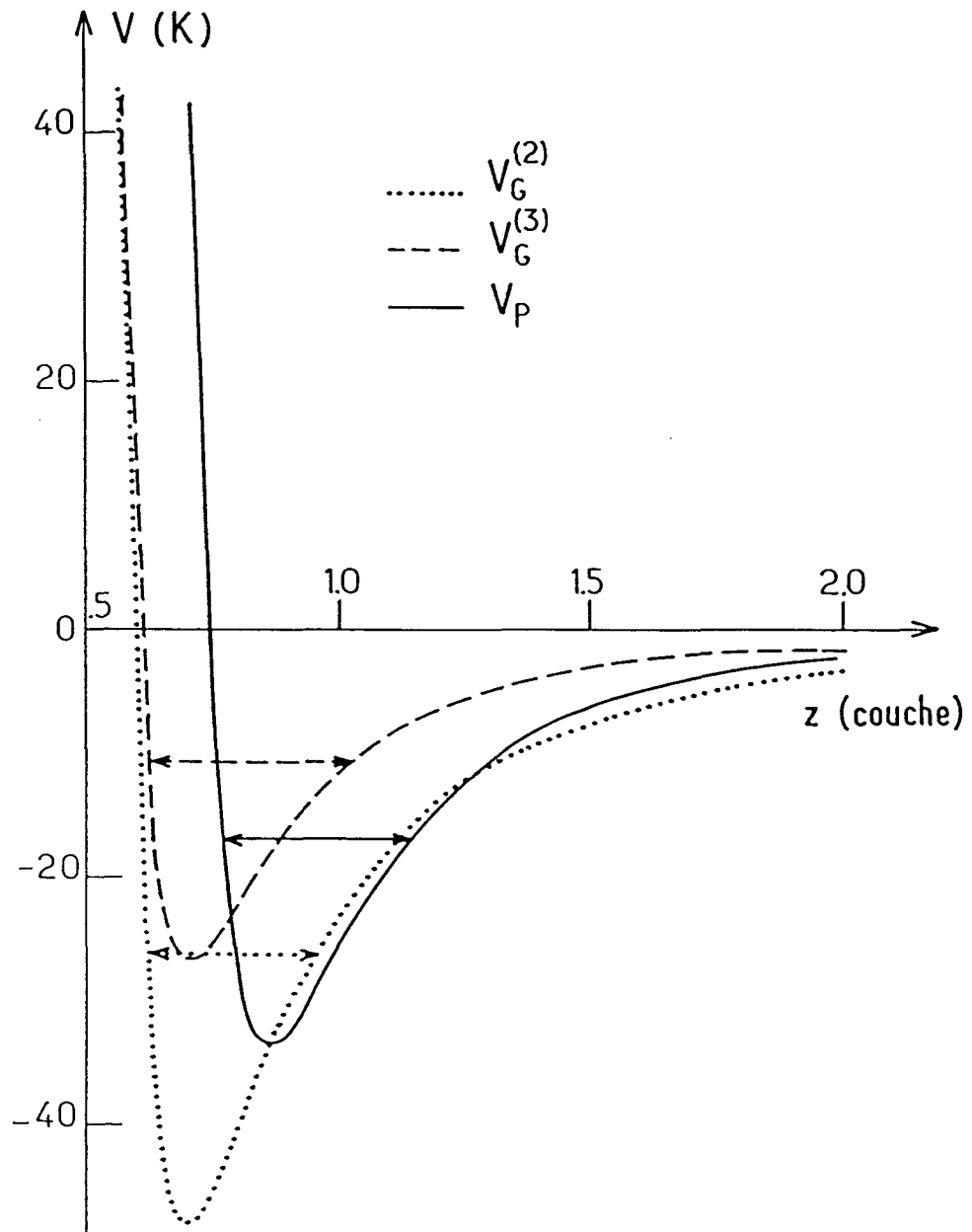


Figure III-3 : Comparaison des potentiels créés par divers substrats. La situation de  ${}^4\text{He}$  sur un enduit mince de  $\text{H}_2$  (trait continu) est intermédiaire entre la situation de He en deuxième (trait pointillé) et en troisième couche (trait interrompu) sur du grafoil. L'énergie de l'état le plus lié pour  ${}^4\text{He}$  (voir tableau III-3) est indiqué pour chaque potentiel par un trait horizontal.



dans le cas d'un enduit d'hydrogène épais de  $e_2 = 10 \text{ \AA}$ , utilisant alors, selon (III-10) et (III-4), la relation :

$$V_p(z) = V_2^{cL}(z) - \frac{19,9}{(z+2,8)^3} \quad (\text{III-18})$$

où  $z$  est en couches et  $V_p$  en K.

Les caractéristiques de l'état le plus lié pour ces trois potentiels ont été déterminées, et reportées sur le tableau III-3.

Potentiel	Energie de l'état le plus lié (K)	Energie potentielle dans cet état (K)
$V_p(z)$	- 16,8	- 23,3
$V_G^{(2)}(z)$	- 26,1	- 34,8
$V_G^{(3)}(z)$	- 10,5	- 16,1

*Tableau III-3 : Caractéristiques des états liés dans les divers potentiels calculés au § III.A.3.*

Notre situation expérimentale apparaît ainsi clairement, pour les premiers atomes de  $^4\text{He}$  condensés, comme étant intermédiaire entre les situations d'atomes de  $^4\text{He}$  adsorbés en deuxième et troisième couche sur le grafoil.

III.B - LA CROISSANCE DU FILM DE $^4\text{He}$
--

## III.B.1 - Généralités ; l'équilibre dans la cellule

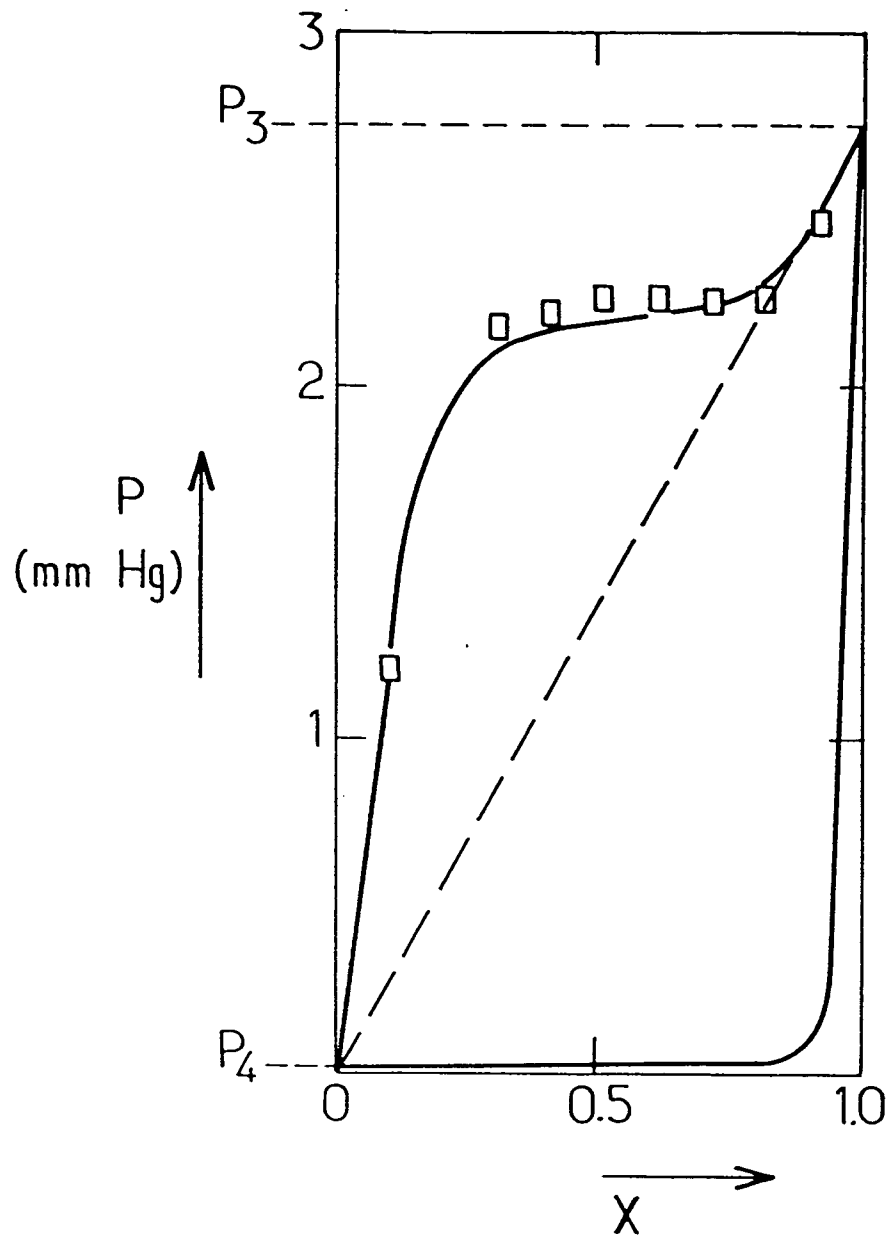
III.B.1.a - Le mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ *α) En-dessous de 1K*

Dans la phase vapeur comme dans la phase condensée sur la paroi en-dessous de 1K coexistent des atomes de  $^3\text{He}$  et de  $^4\text{He}$ . Nous avons jusqu'à présent implicitement supposé qu'on pouvait négliger l'existence des  $^3\text{He}$  en phase condensée. En fait, leur concentration dans le liquide peut être estimée à partir du diagramme d'équilibre binaire du mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  pour la transition liquide-gaz. De Bruyn-Ouboter et al. [1959] ont montré que, entre 1K et 0,6K, le mélange présente de très importants écarts à l'idéalité ; il peut au contraire être décrit comme une solution "régulière" de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  (\*). Le diagramme d'équilibre

-----

(\*) Pour une solution idéale, aussi bien dans la phase liquide que dans la phase gazeuse, on suppose qu'au cours du mélange des deux constituants les variables extensives sont additives : à  $p$  constant, cela revient à dire que la variation d'enthalpie due au mélange est nulle, et la variation d'entropie donnée par l'entropie de mélange de Gibbs. On montre alors simplement que la solution obéit à la loi de Raoult, et que la courbe d'ébullition est, en coordonnées  $(p, X_{11q})$ , une droite. Une solution régulière est une solution binaire dans laquelle, malgré une différence dans l'énergie d'interaction entre deux particules en phase condensée selon la nature des particules, le mélange se fait parfaitement. L'écart à l'idéalité est supposé caractérisé par un polynôme non nul d'ordre le plus bas dans l'expression de la variation d'enthalpie au cours du mélange, soit  $W \cdot X_{11q} \cdot (1 - X_{11q})$ , où  $W$  est une grandeur constante, tandis qu'on suppose que la variation d'entropie est identique à celle des mélanges idéaux. La valeur  $W = 1,54K$  convient vers 0,7K pour  $^4\text{He}$  d'après la figure III-4.

-----



*Figure III-4 : Allure du diagramme binaire d'équilibre pour le mélange  $^3\text{He}-^4\text{He}$  à  $0,8\text{K}$ .  $X$  est la fraction molaire de  $^3\text{He}$ . Les traits continus correspondent au cas d'une solution régulière avec  $W = 1,54\text{K}$  (d'après de Bruyn-Ouboter et al. [1959]) ; la droite en trait interrompu correspond à une solution idéale si  $X$  est le titre du liquide ; les  $\square$  sont les résultats expérimentaux de Roberts et Sydoriak [1957].*

est analogue à celui représenté sur la figure III-4, sur laquelle l'abscisse X représente la fraction molaire de  $^3\text{He}$ .

Quelle que soit la composition du mélange gazeux la concentration en  $^3\text{He}$  dans le liquide reste donc très faible : la courbe de rosée est presque horizontale. Plus précisément, la fraction molaire de  $^3\text{He}$  dans le liquide varie, pour une cellule au remplissage initial  $p_3 = p_4 = 2$  torr à 300K, de  $3 \cdot 10^{-4}$  à  $0,7\text{K}$  à  $10^{-3}$  vers  $0,5\text{K}$ . Cette faible fraction molaire représente également, à l'approximation des solutions régulières, la diminution relative de la pression partielle d'équilibre de  $^4\text{He}$  dans le mélange par rapport à la pression de vapeur saturante de  $^4\text{He}$  pur. Un aussi faible écart a été négligé tout au long de ce travail ; la condensation de  $^4\text{He}$  et celle de  $^3\text{He}$  surviennent successivement lorsqu'on abaisse la température. Pour décrire la formation progressive de l'enduit de  $^4\text{He}$  on peut supposer que tout se passe comme si  $^4\text{He}$  était seul en phase vapeur.

#### *β) Au-dessus de 1K*

Lorsqu'il y a peu d'atomes adsorbés sur la paroi, les considérations du paragraphe précédent ne sont plus pertinentes :  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  sont des atomes en compétition pour l'adsorption. La différence entre l'énergie d'adsorption de  $^3\text{He}$ , atome plus léger que  $^4\text{He}$  donc plus mobile et moins lié dans le potentiel  $V_p$ , et celle de  $^4\text{He}$  est de l'ordre de 2K sur l'hydrogène. Tant que cet écart est de l'ordre de l'énergie thermique d'un atome l'adsorption de  $^4\text{He}$  n'est pas fortement privilégiée. Ces considérations seront détaillées au chapitre IV et dans l'Appendice C.

#### III.B.1.b - L'équilibre de $^4\text{He}$ dans la cellule

Le potentiel d'interaction entre la paroi (ou son revêtement solide) et un atome d'hélium a été déterminé au § II.1. Pour étudier la croissance du film il est nécessaire de connaître la surface effective sur laquelle se dépose l'hélium. La valeur minimale correspond à la surface géométrique S de la cellule. Pour tenir compte des irrégularités, certains auteurs multiplient S par une constante empirique supérieure à un, éven-

tuellement grande ; c'est le cas notamment sur l'hydrogène [V. Lefevre, 1984]. D'autres ont constaté sur des substrats divers que la croissance du film suit une loi compatible avec la valeur  $S$  de la surface géométrique, à condition de prendre en compte une fraction de couche atomique supplémentaire susceptible de niveler les irrégularités de la surface réelle [Cole et al., 1981]. Le caractère empirique de ces résultats, leur spécificité et leur irréproductibilité conduisent à adopter dans ce chapitre descriptif le point de vue pragmatique suivant : toutes les estimations sont faites en supposant que la condensation se produit sur la surface géométrique  $S$ . Comme le rayon de la cellule est  $10^6$  fois supérieur à l'épaisseur maximale du film la surface peut être assimilée à un plan.

Lorsque le système est à l'équilibre thermique à la température uniforme  $T$ , la situation de l'hélium-4 est caractérisée par la valeur du potentiel chimique  $\tilde{\mu}_4$  d'un atome de ce constituant. Cette grandeur est par définition la quantité dont varie le potentiel thermodynamique du système lorsqu'on ajoute un atome de  ${}^4\text{He}$ . Elle est uniforme dans la cellule et peut être déterminée en rajoutant un atome fictif à n'importe quel endroit, quelle que soit la phase correspondante.  $\tilde{\mu}_4$  ne dépend donc pas de la valeur du potentiel  $V$  au sein duquel est plongé un atome situé au point  $M$  de la cellule. Notons  $C_4(M)$  le potentiel chimique de la phase macroscopique qui correspond à la situation locale existant au point  $M$  où  $V(M) \neq 0$  :  $C_4(M)$  est donc le potentiel chimique qui serait celui de  ${}^4\text{He}$ , en l'absence de potentiel extérieur  $V(M)$ , dans un milieu au sein duquel tous les paramètres d'état auraient la même valeur que celle qu'ils ont, localement, au point  $M$  de la cellule (\*). On peut alors écrire :

$$\tilde{\mu}_4 = \tilde{\mu}_4(M) = C_4(M) + V(M) \quad (\text{III-19})$$

---

(\*) Il s'agit en l'occurrence de la température, la pression, etc. On reviendra au § III.B.3 sur les conditions de validité de cette définition.

---

En particulier, si  $M$  est à l'interface entre la phase vapeur et la phase liquide condensée sur la paroi,  $C_4(M)$  est la valeur  $\mu_4^{L,v}$  du potentiel chimique du système liquide-vapeur à la température  $T$ , et donc :

$$\tilde{\mu}_4 = \mu_4^{L,v} + V(M_{\text{interface}}) \quad (\text{III-20})$$

Dans toute la suite de (III.B), nous utilisons les relations (III-19) et (III-20) pour étudier la condensation progressive de  $^4\text{He}$  sur la surface.

### III.B.2 - La formation des premières couches

#### III.B.2.a - Adsorption individuelle des atomes

Lorsque la densité à deux dimensions de  $N_a$  atomes adsorbés sur la paroi de  $\text{H}_2$  est faible, on peut considérer que ceux-ci, supposés parfaitement mobiles, se comportent comme les constituants d'un gaz parfait à deux dimensions. Dans l'approximation des faibles pressions, le potentiel chimique d'un tel gaz suit une loi de Boltzmann [Dash, 1975] :

$$\mu_4^{2D,g} = k_B T \ln \left( \frac{N_a}{S} \lambda^2 \right) \quad (\text{III-21})$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde de de Broglie. Lorsqu'ils sont piégés dans un état lié d'énergie  $E_a = -15,6\text{K}$ , l'équilibre de ces atomes avec les  $N_v$  atomes occupant le volume  $V$  de la phase gazeuse non adsorbée, s'écrit :

$$\tilde{\mu}_4 = \mu_4^{3D,g} = k_B T \ln \left( \frac{N_v}{V} \lambda^3 \right) = E_a + \mu_4^{2D,g} \quad (\text{III-22})$$

On en déduit :

$$\frac{N_a}{N_v} = \frac{S\lambda}{V} \exp \left( \frac{-E_a}{k_B T} \right) \quad (\text{III-23})$$

où encore, en exprimant la densité bidimensionnelle  $d_s = N_a / S$  en fonction de la densité  $\rho_g$  du gaz :

$$d_s = \lambda \rho_g \exp\left(\frac{-E_a}{k_B T}\right) \quad (\text{III-24})$$

Pour  $^4\text{He}$ , la longueur d'onde de de Broglie, en supposant d'après Pierre et al. [1985] la masse effective égale à la masse réelle  $m_4$ , vaut (T est en K) :

$$\lambda = \lambda_4 = \frac{h}{\sqrt{2\pi m_4 k_B T}} = \frac{8,7}{\sqrt{T}} \text{ \AA} \quad (\text{III-25})$$

L'expression (III-21) n'est valable que si l'on néglige les interactions entre particules et les effets de dégénérescence. La première correction linéaire en densité à  $\mu_4^{2D,g}$  s'écrit :

$$\mu_4^{2D,g} = k_B T \ln\left(\frac{N_a}{S} \lambda_4^2\right) + 2B_2(T) k_B T \frac{N_a}{S} + \dots \quad (\text{III-26})$$

où  $B_2$  est le premier coefficient du viriel. L'expression (III-24) devient alors :

$$d_s = \lambda_4 \rho_g \exp\left(\frac{-E_a}{k_B T}\right) (1 - 2B_2(T) d_s + \dots)$$

$$d_s \simeq \lambda_4 \rho_g \exp\left(\frac{-E_a}{k_B T}\right) \left(1 - 2B_2(T) \lambda_4 \rho_g \exp\left(\frac{-E_a}{k_B T}\right)\right) \quad (\text{III-27})$$

Le coefficient  $B_2$  a été calculé par Siddon et Schick [1974] en décrivant l'interaction entre les bosons à l'aide du potentiel Lennard-Jones (6-12) habituel. En-dessous de 6K,  $B_2(T)$  est constamment négatif. Le dépôt des atomes de la première couche sur la paroi se fait donc plus vite qu'avec la formule (III-24). Quelques applications numériques sont données plus loin ; elles

ont été effectuées en considérant que les interactions entre atomes adsorbés ne sont pas affectées par la présence de la paroi.

### III.B.2.b - Formation de la première couche

Des calculs numériques montrent qu'à  $T = 0$  l'hélium-4 pourrait posséder une phase condensée à deux dimensions qui serait l'équivalent à  $p = T = 0$  du liquide pour 3 dimensions. Sa densité d'équilibre est faible ( $0,03 \text{ \AA}^{-2}$  d'après Liu et al. [1976]). On peut extrapoler les formules (III-23) et (III-24) en-dehors de leur limite de validité pour obtenir un ordre de grandeur de la température de formation d'une telle monocouche. Dans une cellule de remplissage  $d_4 = 2$  torr à 300K, la densité  $d_s = 0,03 \text{ \AA}^{-2}$  est atteinte pour  $T \simeq 1,4\text{K}$ . Cette température est très supérieure à l'énergie de liaison dans le liquide à deux dimensions qui vaut  $0,5\text{K}$  d'après Novaco [1973] et  $0,65\text{K}$  d'après Liu et al. [1976] ; il est donc vraisemblable qu'il n'y a pas autocondensation du gaz à deux dimensions lorsqu'on abaisse la température, mais simplement augmentation continue de la densité de la couche : on passe, dans un diagramme  $(T,p)$ , au-dessus du point critique du système bidimensionnel.

### III.B.2.c - Au-delà d'une couche atomique...

Dans le même temps, d'autres atomes peuvent être adsorbés en deuxième couche sur la paroi ; ils sont piégés dans le puits de potentiel créé par le substrat et par la première couche lorsque cette dernière est suffisamment dense. Estimons l'énergie de l'état lié correspondant. Un ordre de grandeur de la densité d'une couche "complète" est  $D_s = 0,078 \text{ \AA}^{-2}$  (c'est la densité du liquide à 3 dimensions, ramenée à deux dimensions), valeur proche de celle de la transition liquide-solide pour une monocouche libre [Liu et al., 1976]. Si une telle couche est formée, un atome du gaz subit près de la paroi un potentiel proche de :

$$V_p(z) + V_4^{D_s}(z-z_0) \quad . \quad (\text{III-28})$$

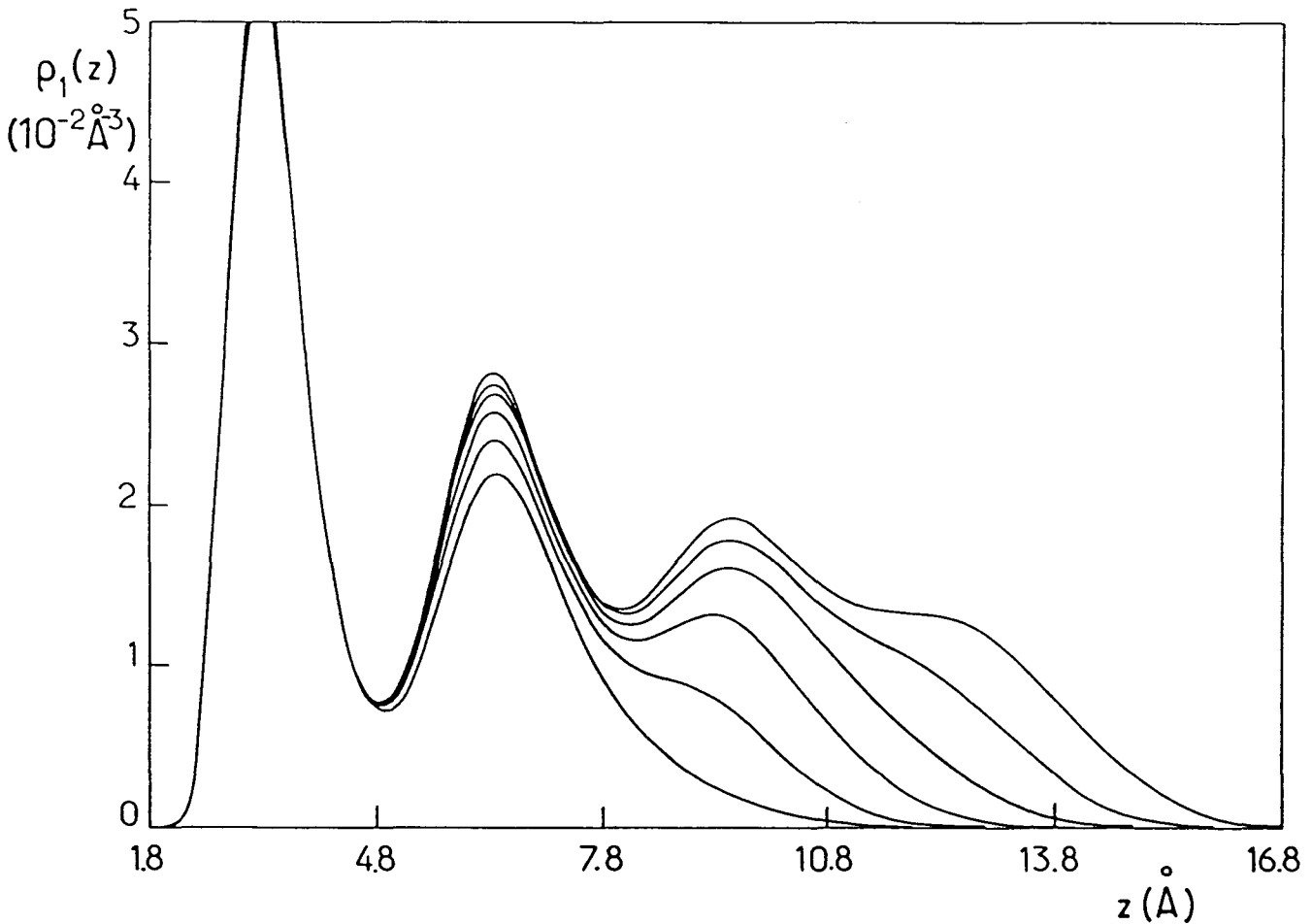


où  $V_4^{D_s}$  est donné par (III-17) et où  $z_0$  ( $\approx 3,5$  Å) repère la position de la première couche. Pour la position de la deuxième couche, soit  $z \approx 7 \pm 1$  Å,  $V_p$  varie peu autour de la valeur  $-2,2$ K (voir III-4 et III-10). L'énergie d'un atome dans l'état lié correspondant au potentiel à une dimension (III-28) a été calculée : elle est de l'ordre de  $-9$ K. Cette valeur peut être comparée à la valeur du potentiel chimique dans la première couche adsorbée de densité  $D_s = 0,078$  Å<sup>-2</sup>. D'après les calculs de Liu et al. [1976], on estime à  $+8$ K le potentiel chimique d'un atome <sup>4</sup>He dans une monocouche libre d'une telle densité. Pour la première couche, piégée dans un puits attractif d'énergie  $E_a = -15,6$ K, le potentiel chimique vaut donc  $-7,6$ K. L'équilibre entre une première couche ayant ces caractéristiques et la deuxième couche ne peut se faire que si la deuxième couche, bien moins liée, est déjà suffisamment dense. Avec (III-21), on peut estimer que sa densité doit être proche de  $0,05$  Å<sup>-2</sup>. Il ne faut donc pas parler, sur l'hydrogène, de condensation successive des premières couches : la densité de la première couche varie notablement pendant la condensation des couches suivantes.

La comparaison avec les expériences effectuées sur le grafoil est instructive : Wiechert et al. [1982] ont remarqué que si la formation des couches n°1 d'une part et suivantes d'autre part se produit effectivement en deux temps, ce n'est pas le cas pour la couche n°2 et les couches suivantes : seule la couche n°1 est suffisamment liée pour que sa densité varie peu lorsqu'elle est comprimée par la présence des couches supérieures. A fortiori sur l'hydrogène, moins liant que le système "grafoil + une couche d'hélium", ce phénomène de "mélange" entre la complétion de la première couche et le début de la formation de la seconde doit se produire, comme l'ont mentionnés Bruch et al. [1985]. Une description théorique de cet effet a été donnée par Krotschek [1985], qui a effectué ses calculs avec le potentiel  $V_p(z)$  donné par (III-18) : la figure III-5 illustre la croissance simultanée des premières couches lorsque la densité surfacique totale de <sup>4</sup>He sur la paroi est progressivement augmentée.

Figure III-5 : Pour le potentiel (III-18), E. Krotschek [1985] a calculé la densité locale de  ${}^4\text{He}$  à l'équilibre  $\rho_1(z)$  en fonction de la distance au dernier plan moléculaire de la paroi pour différentes valeurs de la couverture totale  $n_s$  de celle-ci en hélium.

Il utilise une description microscopique du film sur laquelle on reviendra au chapitre IV. La figure présente  $\rho_1(z)$  en  $\text{Å}^{-3}$  pour les densités de couverture croissantes  $n_s = 0,12 ; 0,14 ; 0,16 ; 0,18 ; 0,20 ; 0,22 \text{ Å}^{-2}$ . Les différentes "couches" successivement formées apparaissent nettement ; on constate également que la croissance du nombre de couches avec  $n_s$  s'accompagne d'un accroissement de la densité dans les couches déjà formées.



Néanmoins ces résultats, comme les résultats expérimentaux de Paalanen et Iye [1985], montrent que la notion de couche atomique conserve une signification au moins pour les trois premières. Ces derniers auteurs utilisent un autre indicateur de la croissance du film sur un cristal de  $H_2$  : la mobilité des électrons piégés à la surface du film de  $^4He$ . Des maxima successifs de la mobilité ont été détectés lorsque varie la pression  $p_4$  du gaz  $^4He$  de l'échantillon en équilibre avec le film. Ces maxima ont été interprétés en termes de complétion des couches successives du film. (\*)

### III.B.3 - L'épaisseur du film au-delà de quelques couches

#### III.B.3.a - Le modèle du fluide continu

Ce modèle est connu sous les initiales F.H.H., d'après Frenkel, Halsey, Hill [Frenkel 1946, Halsey 1951, Hill 1948, Dzyaloshinskii et al., 1961]. Si le film est épais de plusieurs couches atomiques, il est possible de le modéliser en utilisant des paramètres d'état locaux. Plus précisément, considérons le cas d'un film d'épaisseur  $e_4$  constante adsorbé sur une paroi plane exerçant un potentiel attractif  $V_p(z)$  sur un atome à la distance  $z$ . Supposons qu'il est possible de définir, à la distance  $z$  de la paroi, les paramètres d'état intensifs du système,  $p, T, \mu$ , qui prennent les valeurs  $p(z), T(z), \mu(z)$  ; une telle définition n'a de sens que si les variations de ces paramètres ne sont importantes que sur des distances grandes devant les dimensions interatomiques (une discussion approfondie des conditions d'application de ce modèle peut être trouvée dans [Webster, 1980]).

---

(\*) Cieslikowski et al. [1987] ont observé dans des conditions voisines 9 maxima successifs de la mobilité électronique.

---

L'interface entre le liquide et la vapeur à la cote  $e_4$  est caractérisée par un équilibre local entre les deux phases. Cet équilibre doit être le même que celui qui règne à l'interface de deux phases libres semi-infinies à la même température : cette situation est représentée schématiquement sur la figure III-6b ; elle peut être caractérisée par la pression de vapeur saturante  $p_{L_v}(T)$  ou par le potentiel chimique  $\mu_4^{L_v}(T)$  correspondant à  $p = p_{L_v}(T)$ . Dans la situation réelle au voisinage de la paroi, représentée sur la figure III-6a, on doit également vérifier, à l'interface situé en  $z = e_4 + 1/2$  :

$$p(z) = p_{L_v}(T) \quad (\text{III-29})$$

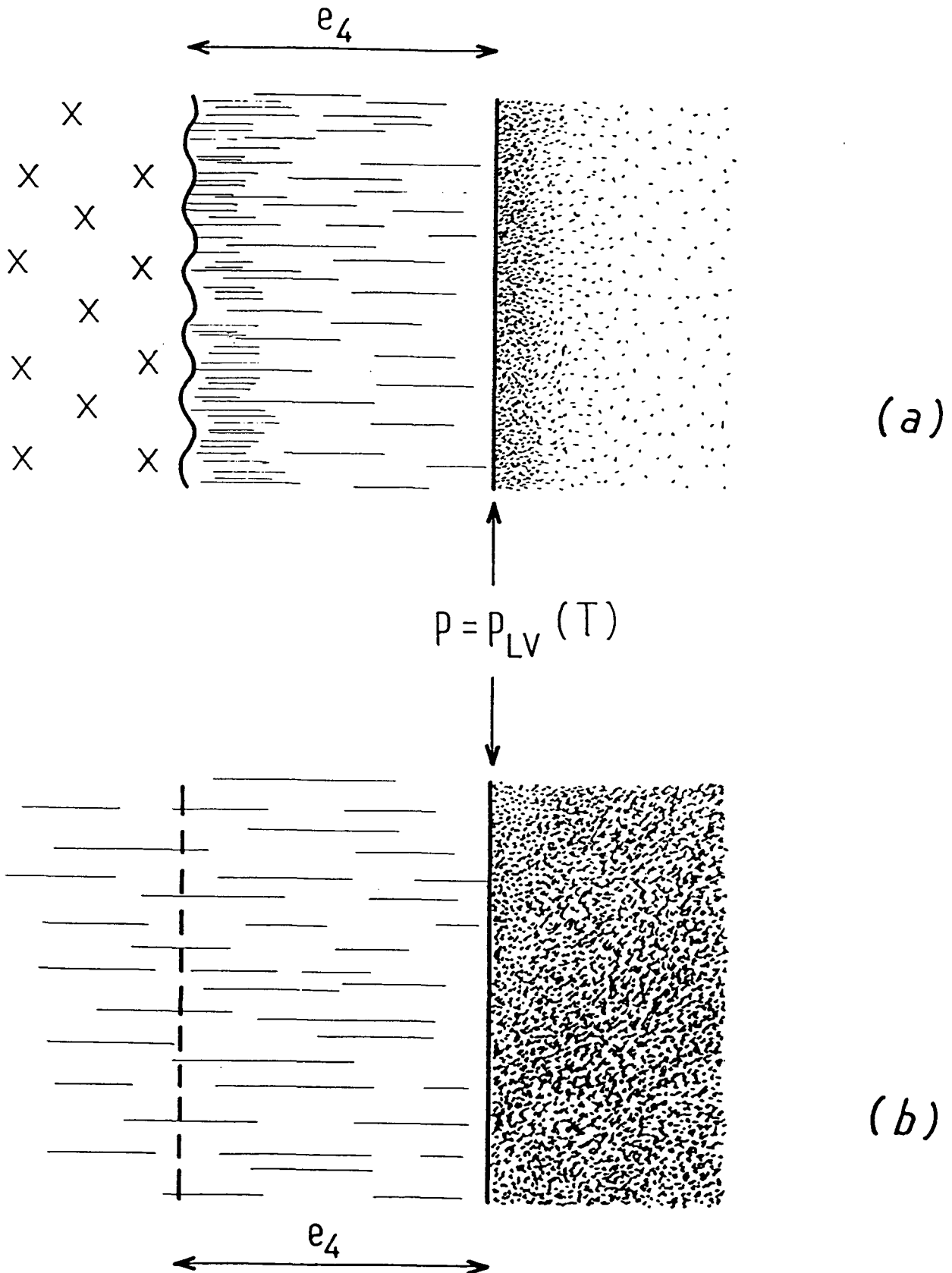
Si localement les interfaces dans les cas (a) et (b) sont semblables, les situations diffèrent sensiblement lorsqu'on s'en éloigne : à gauche sur la figure, le liquide dans le cas (a) est inhomogène, de densité croissante, puis une paroi lui est substitué ; à droite, la vapeur devient de moins en moins dense lorsqu'on sort du domaine dans lequel se manifeste l'attraction par la paroi. Soit  $V_\Delta(z)$  le potentiel supplémentaire créé par la substitution du cas (a) au cas (b).  $V_\Delta(z)$  n'a pas de sources au voisinage de l'interface puisque, par hypothèse, cette dernière est identique dans les deux cas. Par ailleurs la densité des vapeurs considérées est faible ( $T \leq 1K$ ) : leur contribution à  $V_\Delta(z)$  est négligeable. La contribution essentielle provient de l'attraction due à la paroi.

Si  $V_4(z)$  est le potentiel qui serait créé par le demi-espace d'hélium homogène occupant, dans le cas (b), la place de la paroi, on peut écrire :

$$V_\Delta(z) = V_p(z) - V_4(z) \quad (\text{III-30})$$

On peut établir alors le lien entre la pression dans le gaz loin de la paroi et celle de l'interface : assimilant la vapeur à un

*Figure III-6 : L'équilibre du film d'hélium et de la vapeur au voisinage de la paroi (a) est comparé à l'équilibre de deux phases massives homogènes d'hélium (b). A l'interface ( $z = e_4 + 1/2$ ) la situation locale est identique en (a) et (b).*



gaz parfait on a, avec (III-19) :

$$k_B T \ln(p(z)) + V_{\Delta}(z) = k_B T \ln(p_{\infty}) \quad (\text{III-31})$$

où  $p_{\infty} = p(+\infty)$  est la pression au centre de la cellule. L'équation déterminant  $e_4$  devient, avec (III-31) et (III-29) :

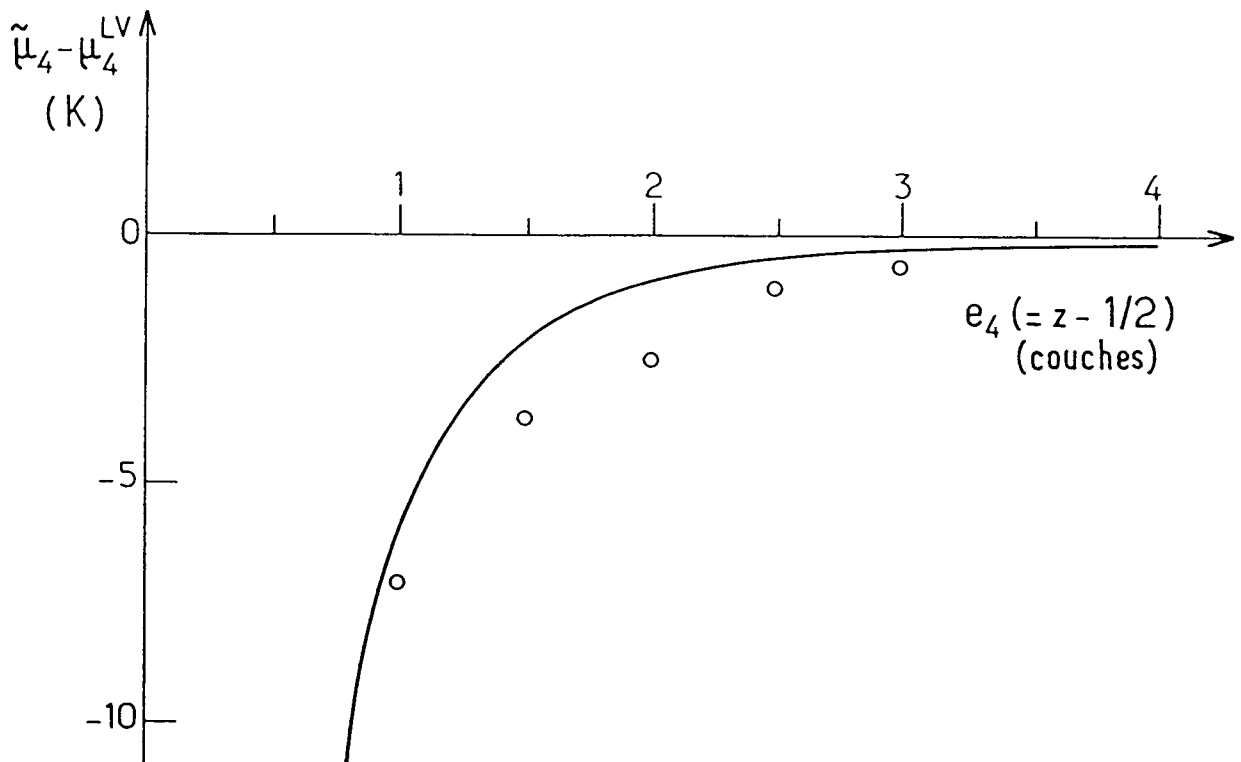
$$V_{\Delta} \left( e_4 + \frac{1}{2} \right) = k_B T \ln \left( \frac{p_{\infty}}{p_{Lv}(T)} \right) \quad (\text{III-32})$$

En se limitant à la partie "à longue distance" en  $\left( z + \frac{1}{2} \right)^{-3}$  de  $V_{\Delta}(z)$ , de coefficient  $C_3^{\Delta}$ , on obtient :

$$e_4 = \left( \frac{C_3^{\Delta}}{k_B T \ln \left( \frac{p_{Lv}(T)}{p_{\infty}} \right)} \right)^{1/3} \quad (\text{III-33})$$

Toute cette approche est une théorie de champ moyen qui néglige entièrement les fluctuations et les corrélations entre particules. Cette relation a été vérifiée expérimentalement sur plusieurs substrats [Webster 1980, Chester et al. 1976] ; elle semble applicable dès que  $e_4$  correspond à deux ou trois couches liquides. Il est intéressant de comparer la formule (III-32) à l'expérience utilisant l'hydrogène solide comme substrat [Paalanen et Iye, 1985]. Pour chacun des maxima et minima de la mobilité mesurée par ces auteurs pour les électrons à la surface du film -- extrema qui repèrent respectivement la complétion des couches et le demi-remplissage de chacune d'elles -- la valeur de  $k_B T \ln(p_{\infty}/p_{Lv}(T))$  (voir tableau III-4) a été reportée sur la courbe de la figure III-7 qui donne en outre le potentiel  $V_{\Delta}(z)$  calculé par (III-30) à partir de l'expression (III-18) de  $V_p(z)$  et du potentiel  $V_4(z)$  calculé à partir du potentiel d'interaction hélium-hélium du type Lennard-Jones (12-6) donné en (II-8). De façon générale, l'attraction obtenue est trop forte dès que

Figure III-7 : Confrontation des prévisions du modèle F.H.H. et des résultats de Paalanen et Iye [1985]. La courbe en trait continu représente, en fonction de  $e_4 = z - 1/2$ , l'allure du potentiel  $V_\Delta$  donné par (III-30), c'est-à-dire, avec (III-31) et (III-20), la valeur de la différence entre les potentiels chimiques ( $\tilde{\mu}_4 - \mu_4^{LV}$ ) qui doit exister d'après le modèle F.H.H.. Les o représentent les résultats de Paalanen et Iye à 1,45K, tels qu'ils sont déduits des extrema de la mobilité électronique correspondant aux valeurs entières et demi-entières de  $e_4$  : la quantité  $k_B T \ln \left( \frac{P_\infty}{P_{LV}(T)} \right) = \tilde{\mu}_4 - \mu_4^{LV}$  a été extraite du tableau III-4.



$e_4 \geq 1,5$  ; mais la validité de (III-32) est d'autant meilleure que le film est épais, alors que les résultats de Paalanen et Iye sont d'autant précis que le film est mince.

Numéro de couche	1	1,5	2	2,5	3
$k_B T \text{ Ln} \left[ \frac{p(\infty)}{p_{Lv}(T)} \right]$ (K)	-7,1	-3,8	-2,6	-1,1	-0,7

*Tableau III-4 : D'après Paalanen et Iye [1985], valeurs expérimentales à 1,45K des écarts en potentiel chimique correspondant à la complétion successive des couches de  $^4\text{He}$ .*

Dans le cas des cellules scellées, la pression  $p_\infty$  dépend de la température non seulement par la loi des gaz parfaits, mais aussi par le fait que la condensation d'une fraction des atomes fait varier la densité dans la phase gazeuse. La relation (III-32) doit être remplacée par la relation implicite suivante déterminant  $e_4$  :

$$V_\Delta(e_4) = k_B T \text{ Ln} \left[ \frac{d_4 - \frac{3}{R} d_\ell e_4}{d_{Lv}(T)} \right] \quad (\text{III-34})$$

où  $d_{Lv}(T)$  est la densité de vapeur saturante,  $d_4 (= p_4$  à 300K) la densité de remplissage,  $d_\ell$  la densité atomique du liquide homogène non comprimé. L'équation (III-34) se simplifie à la limite  $T \gg T_0$  (\*), donnant alors :

$$V_\Delta(e_4) = k_B T \text{ Ln} \left( \frac{d_4}{d_{Lv}(T)} \right) \quad (T \gg T_0) \quad (\text{III-35})$$

---

(\*) On rappelle que  $T_0$  est la température vérifiant  $d_{Lv}(T_0) = d_4$ .

---



Si  $T < T_0$ , (III-34) a une solution finie. Pour  $T \ll T_0$ , le film est épais,  $V_{\Delta}(e_4) \simeq 0$ ; la pression dans la cellule est très voisine de la pression de vapeur saturante, de sorte que :

$$e_4 \simeq \frac{(d_4 - d_{Lv})}{\frac{3}{R} d_{\ell}} \quad (T \ll T_0) \quad (\text{III-36})$$

### III.B.3.b - Limitations à l'épaississement du film

Plusieurs phénomènes dont le modèle ne tient pas compte limitent la croissance régulière du film telle qu'elle est décrite par (III-34) :

- la gravité provoque une déformation du film. La cellule sphérique contenant le gaz à une hauteur de 3 cm. Pour un atome d'hélium-4 la variation d'énergie potentielle de pesanteur entre le haut et le bas de la cellule est  $1,4 \cdot 10^{-4} K$ ; c'est la valeur du potentiel exercé par la paroi sur la 60<sup>e</sup> couche. Un calcul approché montre cependant que les écarts d'épaisseur induits par la gravité entre le haut et la bas de la cellule atteignent 50% dès 50 couches ;

- les phénomènes de capillarité n'ont pas été pris en compte. Etant donnée la forme probablement irrégulière de l'enduit d'hydrogène -- qui a crû sur le pyrex selon un processus de type II -- on peut penser qu'une certaine fraction de l'hélium est susceptible de servir à boucher des trous. Cet effet peut contribuer à modifier l'épaisseur du film par rapport au résultat de (III-34) et à produire des phénomènes d'hystérésis au cours des cycles " réchauffement - refroidissement " ;

- des inhomogénéités thermiques pourraient également modifier localement l'épaisseur du film.

### III.B.3.c - L'hypothèse du non-mouillage de $^4\text{He}$

La croissance de l' $^4\text{He}$  sur différents types de substrats a été étudiée par le groupe de J.G. Dash à Seattle (U.S.A.). Des mesures d'isothermes d'adsorption sur divers substrats [Bienfait et al., 1980] comme le graphite, Kr, MgO, le mylar, ont donné des résultats s'écartant du modèle F.H.H. et susceptibles de correspondre à un processus de croissance de type II pour l'hélium, l'épaisseur maximale du film (limite de condensation régulière) étant de quelques couches. En utilisant une microbalance à quartz, ce même groupe [Migone et al., 1985] a obtenu sur deux substrats métalliques, l'argent et l'or, des résultats suggérant un mouillage incomplet des films d'hélium. L'épaisseur limite de la partie régulière du film varie dans ces derniers cas, de 50 couches au point critique à 10 couches à 2,16K puis 8 à 2K. L'extrapolation à  $T = 0$  donne une limite de 6 couches atomiques.

Le mouillage -- et le non-mouillage -- des films sur les substrats dépend, semble-t-il, de la valeur de l'énergie d'attraction d'un atome par le substrat par rapport, d'une part, aux interactions entre atomes adsorbés, et d'autre part au désaccord de structure latérale pouvant exister entre la phase adsorbée et la phase identique du même adsorbé en l'absence d'attraction. La théorie élaborée par Muirhead, Dash, Krim [1984] ne s'applique pas à l'hélium ; les indications sur la croissance de type II d'un tel liquide quantique sont qualitatives, et semblent spécifiques aux substrats très liants (Au, Ag, Grafoil)...

Aucune des expériences n'a porté sur  $\text{H}_2$ . Pour ce substrat, l'énergie d'adsorption de  $^4\text{He}$  est du même ordre de grandeur que l'énergie d'interaction entre atomes  $^4\text{He}$  dans un film, et l'ordre cristallin est assez proche de celui de  $^4\text{He}$  solide. Ainsi, il n'existe pas d'éléments permettant de supposer a priori qu'un tel comportement se produit dans notre cas.



III.C - LA STRUCTURE DU FILM D'HELIUM-4
---

## III.C.1 - La première couche du film : une monocouche solide ?

La formation progressive de la première couche atomique d'hélium sur le substrat d'hydrogène a été décrite au III.B : formation d'une monocouche fluide, densification progressive de celle-ci lorsque les couches supérieures exercent une compression. La structure de la première couche adsorbée sur de l'hydrogène lorsque le film est complètement formé n'a pas fait, à notre connaissance, l'objet d'une étude expérimentale systématique du type de celle décrite par Wiechert et al. [1982] sur un enduit mieux défini comme le grafoil. En particulier, aucune expérience n'a démontré qu'il existait dans celle-ci un ordre transversal du type "ordre solide" ; une telle information est importante pour la compréhension de la relaxation de  $^3\text{He}$  près de la paroi.

Dans ce paragraphe ont été rassemblés des éléments de réponse quantitatifs à cette question. Ils sont parfois grossiers. Ils ont été obtenus, soit en caractérisant les propriétés de la première couche par des variables tridimensionnelles à valeurs locales (§ a), soit en considérant cette couche comme un système à deux dimensions (§ b), soit encore par comparaison avec l'effet -- connu -- d'autres substrats que celui qui revêt nos cellules (§ c).

III.C.1.a - La première couche décrite comme un élément d'un système massif

La structure de  $^4\text{He}$  à trois dimensions est bien connue (voir par exemple Wilks [1967]). Le liquide non comprimé a une densité d'équilibre de  $2,2 \cdot 10^{22}$  at.  $\text{cm}^{-3}$  ; son potentiel chimique  $\mu_4^L$  vaut  $-7,2\text{K}$ . Sur la courbe de solidification ( $p \simeq 25$  bars à basse température) la densité vaut  $2,6 \cdot 10^{22}$  at.  $\text{cm}^{-3}$  ; cela porte le potentiel chimique à  $\mu_4^S = +0,5\text{K}$ . Le solide forme un réseau hexagonal compact dont les plans sont distants de  $d_0 = 3,03 \text{ \AA}$  ; à

deux dimensions, la densité atomique dans les plans vaut  $d_s^{h.c.p} = 0,086 \text{ \AA}^{-2}$ . Cette structure cristalline est très proche de celle de l'hydrogène ( $H_2$  forme un réseau cubique compact à faces centrées où, pour le réseau de plans 111, les grandeurs ci-dessus valent respectivement 3,08 Å et 0,080 Å<sup>-2</sup>) ; il n'existe donc pas de désaccord net posant des problèmes de commensurabilité entre les deux structures.

Nous allons montrer que l'existence d'une interface liquide-solide entre la première et la deuxième couche n'est pas exclue. Pour cela, comparons la situation de la première couche d'hélium sur l'hydrogène à celle de la première couche d'un solide d'hélium en équilibre avec le liquide. Dans ce dernier cas, la première couche est soumise aux potentiels exercés sur elle par deux demi-espaces d'hélium, l'un solide  $\{z \leq 0\}$ , l'autre liquide  $\{z \geq 2\}$ . Dans le cas d'un film d'hélium adsorbé sur l'hydrogène, la première couche est dans une situation analogue, à ceci près que le demi-espace  $\{z \leq 0\}$  est constitué d'hydrogène solide. La différence entre les deux situations peut être grossièrement décrite par la différence :

$$V_{\Delta}^{(1)}(z) = V_p(z) - V_4^s(z) \quad (\text{III-37})$$

entre les deux potentiels attractifs créés, d'une part par la paroi d'hydrogène et le pyrex ( $V_p$  de III-18), d'autre part par un demi-espace homogène d'hélium solide (voir Appendice B). Ce faisant, on néglige la différence de densité entre le liquide semi-infini en équilibre avec le solide et la densité variable du film d'épaisseur finie ; l'approximation est d'autant plus licite que le film est plus épais et homogène. On peut alors évaluer la différence d'énergie potentielle entre les deux états liés individuels que peut occuper l'atome pour les potentiels  $V_p(z)$  et  $V_4^s(z)$  respectivement.

Pour  $V_4^s(z)$  nous avons utilisé, avec les paramètres rappelés ci-dessus, le potentiel de paire Lennard-Jones de (II-8) intégré conformément à (III-5). L'état de <sup>4</sup>He le plus lié a une énergie de -8,4K et l'atome dans cet état possède une énergie

potentielle égale à  $-13,6\text{K}$ . Pour  ${}^4\text{He}$  sur  $\text{H}_2$  les résultats correspondants sont, pour l'énergie de liaison,  $-15,6\text{K}$ , et pour l'énergie potentielle de  $-21\text{K}$  à  $-22\text{K}$  (en fait, cette énergie potentielle varie localement, suivant que l'on est situé sur tel ou tel site du plan limitant la paroi d'hydrogène, du simple au double). La différence entre les deux valeurs est de  $-8\text{K}$ . Ce gain en énergie potentielle est supérieur à la variation du potentiel chimique [ $-7,2 - (0,5) = -7,7\text{K}$ ] entre liquide et solide ; il peut provoquer la solidification de la première couche. Cependant, les quantités approchées que nous venons de calculer -- à partir d'une description très imparfaite du milieu -- conduisent à un résultat proche du seuil empêchant de conclure avec netteté.

La solidification reste une hypothèse, que confortent néanmoins plusieurs autres éléments :

- l'énergie cinétique dans les états liés des potentiels  $V_p$  et  $V_4^s$  est approximativement la même : l'état lié est à peine plus comprimé sur  $\text{H}_2$  ; la substitution  $\text{H}_2 \leftrightarrow {}^4\text{He}$  solide est donc convenable ;

- la détermination de l'état lié d'un atome d'hélium-3 sur un demi-espace solide d'hélium-4 a été effectuée par C. Lhuillier en utilisant le potentiel de paire d'Aziz et al. [1979]. Extrapolés à  ${}^4\text{He}$ , ces résultats conduisent à une valeur de l'énergie potentielle moins importante en module que celle utilisée ici ; une correction en ce sens est favorable à la solidification.

### III.C.1.b - Propriétés d'une monocouche de ${}^4\text{He}$ à la surface de $\text{H}_2$ solide

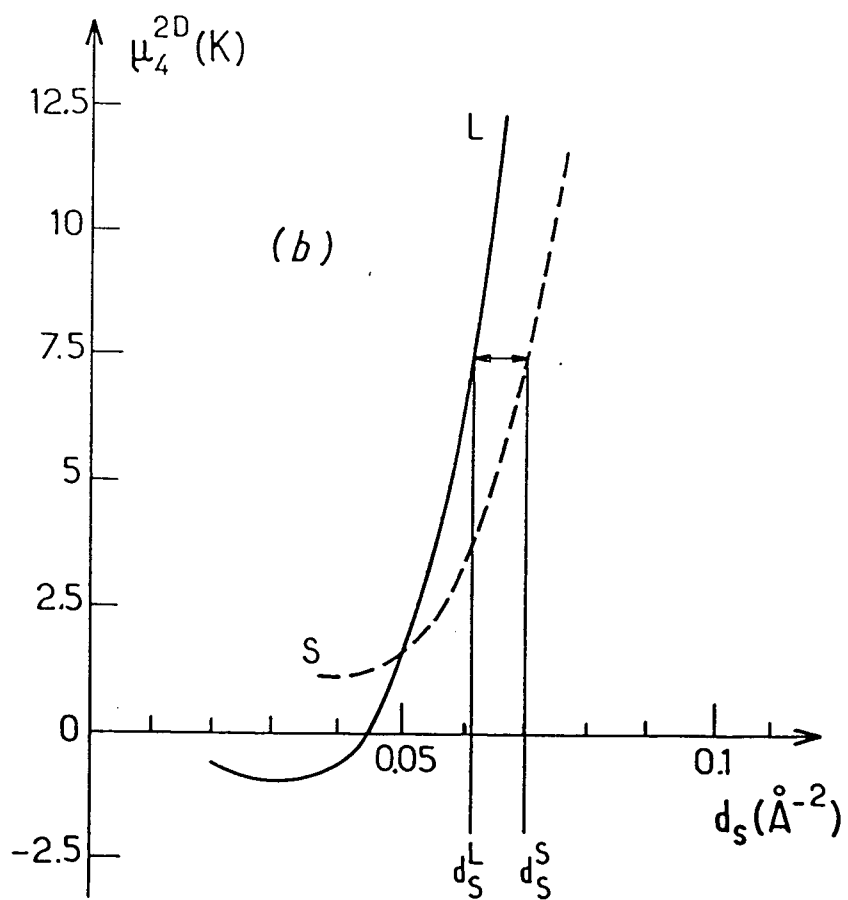
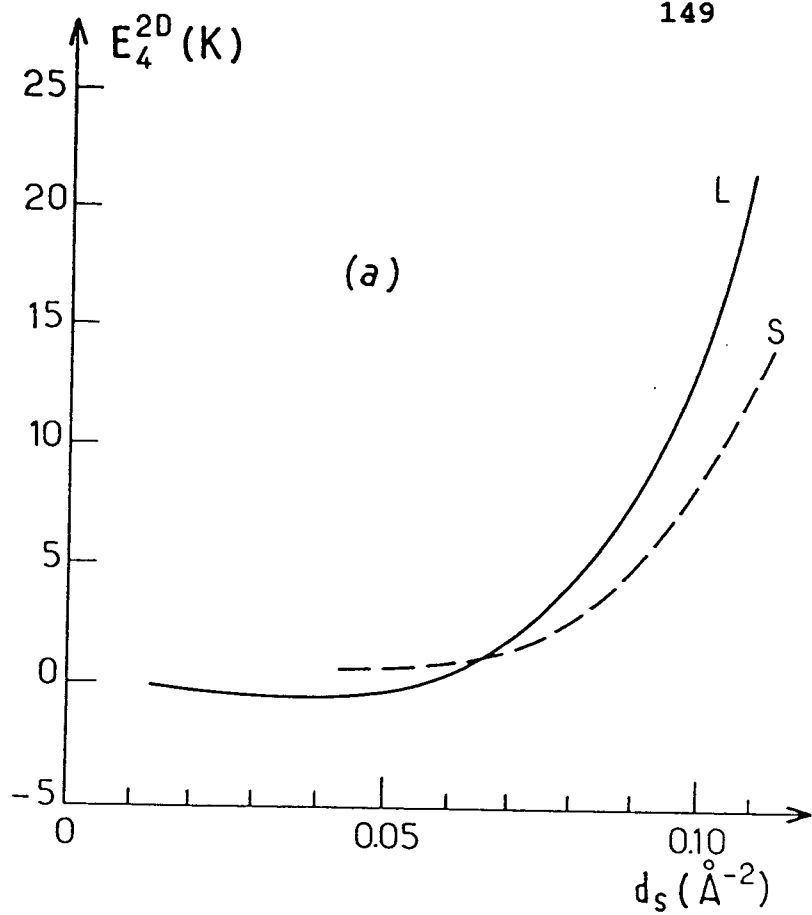
#### *α) Quelques paramètres*

Une monocouche d'hélium-4 constitue un système en interaction à deux dimensions qui a donné lieu à un certain nombre d'études théoriques [Liu et al. 1976, Novaco 1973, Ni et Bruch 1986, Woo 1976, Campbell et Bretz 1985]. Nous utiliserons

principalement les résultats de Liu, Kalos, Chester [1976,1978]. Ces auteurs ont effectué un calcul variationnel de l'énergie par atome  $E_4^{2D}$  à 0K dans une monocouche libre. Les interactions de paire sont décrites par le potentiel Lennard-Jones (12-6) (II-8) ; les fonctions variationnelles d'essai utilisées sont les analogues à deux dimensions de celles utilisées couramment pour décrire le liquide en volume ou le solide en volume. Les résultats obtenus (figure III-8a) permettent de calculer la variation du potentiel chimique de la monocouche  $\mu_4^{2D}$  avec la densité  $d_s$  lorsque la couche est liquide (L) ou solide (S), selon la relation :

$$\mu_4^{2D} = E_4^{2D} + d_s \frac{\partial}{\partial d_s} \left( E_4^{2D} \right) \quad (\text{III-38})$$

*Figure III-8 : D'après Liu, Kalos, Chester [Phys. Rev. B13,1971 [1976]]. Ces auteurs ont calculé, pour une monocouche libre de  $^4\text{He}$  de densité  $d_s$ , l'énergie par atome  $E_4^{2D}$  à 0K dans le cas où la monocouche est liquide (trait continu) ou possède un ordre solide (trait interrompu). Ces valeurs sont présentées sur la figure III-8a. Elles permettent de calculer, dans chacune de ces phases, le potentiel chimique  $\mu_4^{2D}$ , présenté sur la figure III-8b. Elles permettent également de déterminer les paramètres de la transition de phase solide-liquide, par exemple en utilisant la méthode de double-tangente de Maxwell sur les courbes «  $E_4^{2D}$  fonction de  $1/d_s$  » obtenues à partir de la figure III-8a. Ces paramètres ont été reportés sur la figure III-8b .*





Pour décrire l'ordre solide, un terme de localisation sur un réseau triangulaire est introduit dans la fonction d'onde, selon la méthode proposée par Nosanow [1966]. Les variations de  $\mu_4^{2D}$  dans chacun des cas sont reportées sur la figure III-8b. On trouve que la transition liquide-solide à deux dimensions se produit lorsque  $\mu_4^{2D} \simeq 7,5K$ . Les densités dans les phases liquide et solide à l'équilibre sont respectivement  $d_s^L = 0,061 \text{ \AA}^{-2}$  et  $d_s^S = 0,070 \text{ \AA}^{-2}$ .

*β) Adsorption sur l'hydrogène*

Considérons une monocouche plane dont les atomes sont par ailleurs liés dans la direction perpendiculaire au plan dans un état lié d'énergie  $E_a = -15,6K$  : c'est le cas de  $^4\text{He}$  sur  $\text{H}_2$ . Si on fait l'hypothèse que la présence du substrat ne modifie pas les interactions entre atomes, on peut supposer que les résultats ci-dessus s'appliquent. La relation (III-22) :

$$\tilde{\mu}_4 = E_a + \mu_4^{2D} \quad (\text{III-39})$$

doit de plus, être vérifiée. Ainsi, dès que  $\tilde{\mu}_4 > -8,1K$  ( $-15,6 + 7,5 = -8,1$ ), la monocouche doit être considérée comme solide. Or, à basse température, le potentiel chimique de  $^4\text{He}$  dans la cellule est celui du liquide ( $\tilde{\mu}_4 = \mu_4^L \simeq -7,2K$ ), qui est supérieur à cette valeur.

Dans cette approche bidimensionnelle la présence d'un film épais condensé sur la première couche n'est pas indispensable pour assurer la solidification de celle-ci ( $8,1 > 7,2$ ). Le mécanisme de croissance des premières couches décrit au (III.B) montre néanmoins que, lors de la solidification, le remplissage des couches plus éloignées de la paroi est déjà très avancé. La présence de ces atomes supplémentaires constitue en fait un élément favorable de plus.

Ainsi, l'approche bidimensionnelle, comme l'approche tridimensionnelle précédente qui supposait la présence d'un film épais, conduit à penser que la première couche est solide.

### III.C.1.c - Comparaison avec d'autres substrats

Les changements de phase d'une monocouche adsorbée sur du grafoil ont été étudiés récemment en détail [Wiechert et al. 1982, Campbell et Bretz 1985, Hurlbut et Dash 1984]. Les résultats, compatibles avec les données de Kalos et al., sont assez complexes ; l'existence d'une forte incommensurabilité entre les réseaux de  $^4\text{He}$  et du carbone complique et particularise le problème dans le domaine nous concernant. Des mesures calorimétriques plus anciennes [Elgin et Goodstein, 1974] effectuées à plus haute température permettent également de conforter les prévisions de Kalos pour le solide à haute densité. Enfin, les expériences de diffusion de neutrons de Wiechert et al. [1982] ont été décrites précédemment. Elles assurent que, tant que le film est en équilibre avec sa vapeur, deux couches et deux seulement sont solides. La comparaison du potentiel attractif exercé par la paroi et du potentiel vu sur le grafoil par un atome de la couche n° 2 ou n° 3 ne permet pas de conclure directement : la situation sur  $\text{H}_2$  est en effet intermédiaire ce qui établit que probablement la deuxième couche d'un film d'hélium déposé sur  $\text{H}_2$  n'est pas solidifiée.

Sur le pyrex, la valeur élevée de l'énergie d'adsorption assure qu'au moins une couche devient solide. Cependant, il peut y avoir un retard à la solidification des atomes adsorbés : Lie Zhao et al. [1986] ont, entre autres, détecté une phase non solide d'hélium à géométrie réduite avec une densité supérieure à la densité limite attendue [voir aussi Dash 1982].

Notre conclusion -- *la première couche est solide* -- demande donc à être vérifiée expérimentalement.

### III.C.2 - La superfluidité des films minces

L'apparition de la superfluidité dans les films minces d'hélium a été étudiée depuis plus de quinze ans. Des techniques

très diverses ont été employées : mesure des propriétés de transport de chaleur dans les films [Sabisky et Anderson 1973, Maps et Hallock 1983], étude du comportement dynamique d'un film adsorbé sur un quartz oscillant [Scholtz et al., 1974]. A une température  $T$  donnée, inférieure à  $T_\lambda$  (\*), de telles expériences ont mis en évidence une épaisseur minimale  $e_{\min}(T)$  au-delà de laquelle les propriétés du film sont modifiées (voir les références citées dans l'article de revue de Brewer [1976]). Un film plus épais que  $e_{\min}(T)$  se comporte comme un mélange de deux fluides, d'un superfluide et l'autre pas [van Beelen et Bannink, 1983]. La fraction superfluide croît avec l'épaisseur.

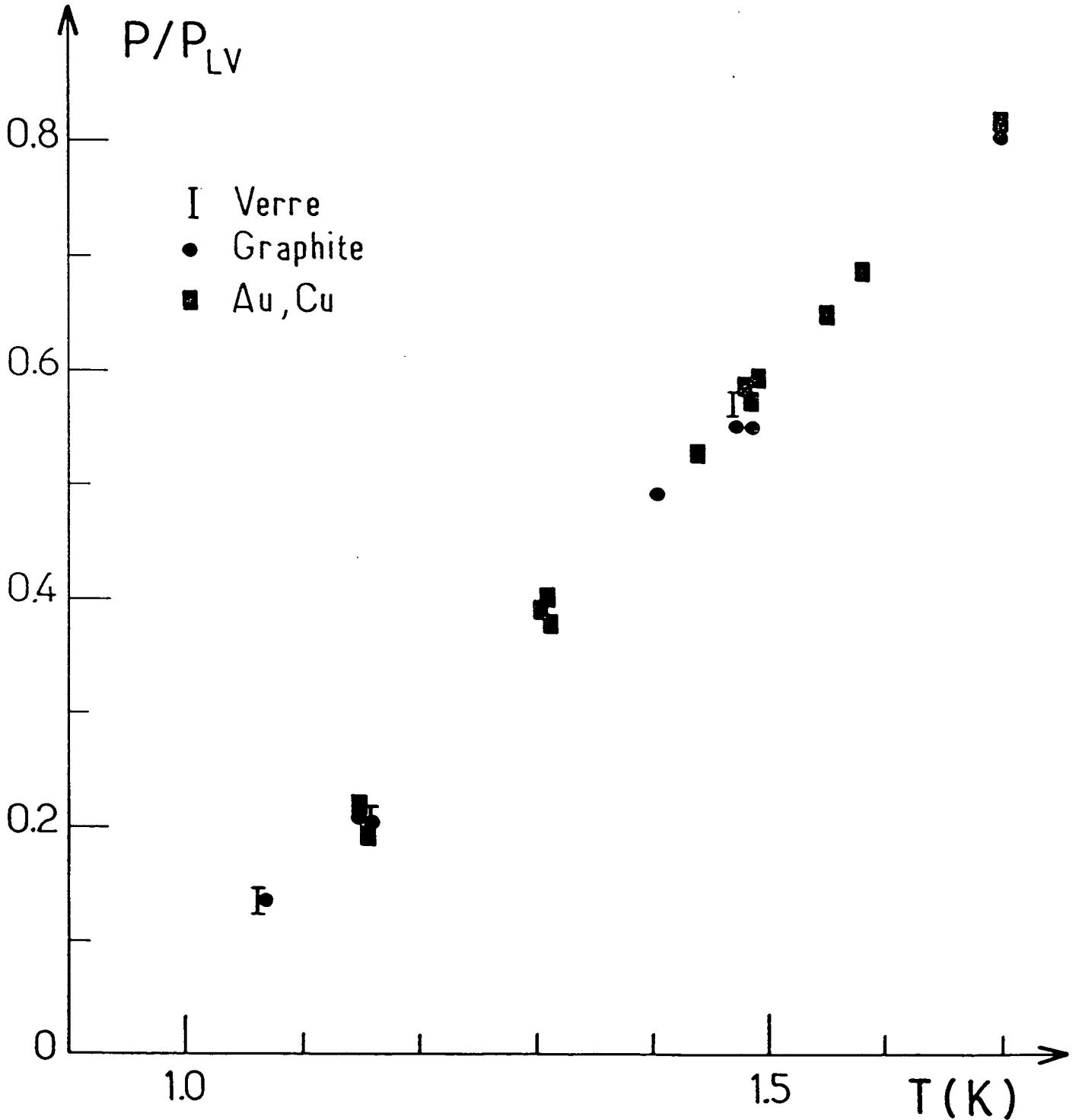
L'épaisseur critique  $e_{\min}(T)$ , seuil d'apparition de la superfluidité, dépend du substrat utilisé ; elle semble d'autant plus grande, à  $T$  fixé, que le substrat est plus attractif ; elle diminue lorsque la température est abaissée. Les résultats obtenus pour des substrats proches du verre (quartz, mylar,  $\text{SiO}_2$ , etc.), extrapolés à 1K, varient de 1,7 à 2,5 couches. Nous citerons simplement celui de Hess et Muirhead [1982], qui ont mesuré pour le verre 2,3 couches à 1,07K. Ces auteurs ont d'autre part indiqué que, pour leurs expériences sur quatre substrats de nature différente, la transition du film vers la superfluidité pouvait être décrite à l'aide d'une courbe unique en coordonnées  $(T, p(T)/p_{L_V}(T))$  ;  $p(T)$  est la pression du gaz en équilibre avec le film mince, mesurée loin de la paroi, au moment d'apparition de la superfluidité ;  $p_{L_V}(T)$  est la pression de vapeur saturante à  $T$  (figure III-9). [Nous utiliserons cette courbe au paragraphe III.D pour indiquer un seuil d'apparition de la superfluidité dans un cas particulier].

---

(\*)  $T_\lambda$  est la température d'apparition de la superfluidité dans le liquide tridimensionnel non comprimé.

---

**Figure III-9** : D'après Hess et Muirhead [*J. Low Temp. Phys.* **49**, 481 [1982]]. Seuil de superfluidité pour un film mince d'hélium, en coordonnées  $(T, p/p_{LV})$ . Les résultats des expériences qui ont porté sur divers types de substrat (graphite (●), verre (I), métaux (or et cuivre (■))) suggèrent qu'existe un comportement universel du film.



L'apparition de la superfluidité dans les mélanges hélium-3↔hélium-4 déposés en film mince sur les substrats a également fait l'objet de plusieurs travaux théoriques [Peliti et Leibler, 1984] ou expérimentaux [Ellis et al., 1984 ; Webster et al. 1980 ; Romagnan, 1977]. En effet, le diagramme de phase des solutions  $^3\text{He}-^4\text{He}$ , en particulier le seuil de démixtion, est modifié lorsqu'il s'agit d'un film [Romagnan et Noiray, 1984]. Ces modifications n'apparaissent cependant que lorsque la fraction molaire de  $^3\text{He}$  dans le film est suffisamment élevée. Pour nos cellules cette fraction molaire (voir chapitre IV) est en-dessous de 1K au maximum de l'ordre de  $10^{-3}$ .

III.D - APPLICATION : LA FORMATION DU FILM  
 DANS UNE CELLULE PARTICULIERE

## III.D.1 - L'épaisseur du film

La figure III-10 présente une compilation des prévisions relatives à une cellule particulière. Celles-ci ont été obtenues à partir des développements de ce chapitre. Elles concernent la cellule de rayon  $R = 1,34$  cm et de densité de remplissage  $d_4 = 2,015$  torr à 300K qui sert d'exemple caractéristique au chapitre I. Sur la figure a été portée, en échelle logarithmique, l'épaisseur prévue du film en fonction de l'inverse  $1/T$  de la température, entre 2K et 0,5K.

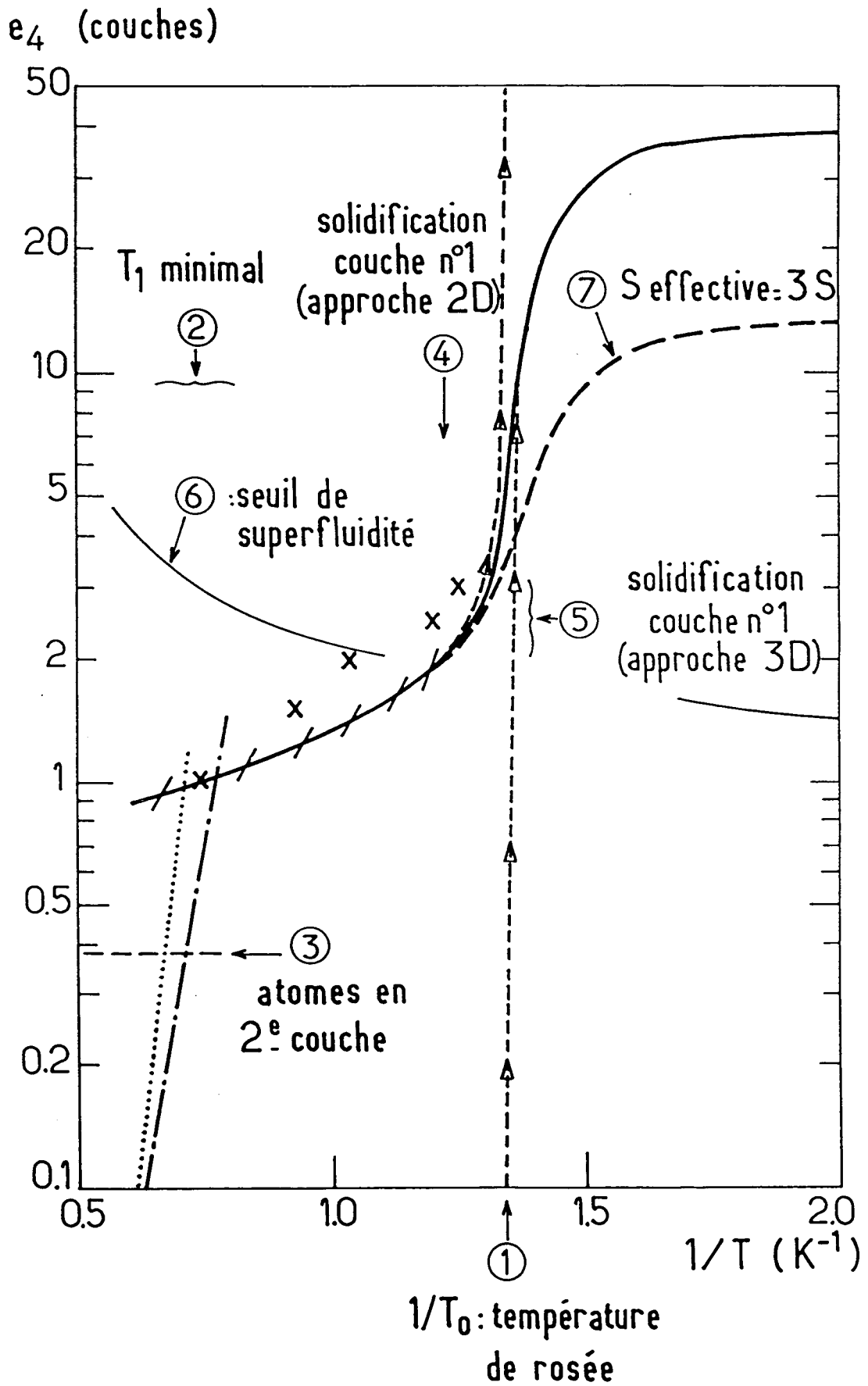
Le tracé des différentes courbes correspond aux hypothèses suivantes :

- l'épaisseur du film est homogène sur la paroi ;
- le nombre de couches  $e_4$  est défini comme suit :  $e_4$  est l'épaisseur -- en nombre de couches atomiques -- du film homogène, ayant la densité du liquide massif, que l'on pourrait former sur la surface de la cellule avec tous les atomes adsorbés ;
- sauf exception, la surface sur laquelle se dépose le film est la surface géométrique intérieure de la cellule.

La flèche (1) repère la température  $T_0$  pour laquelle la densité de vapeur correspond à la densité du remplissage initial en  $^4\text{He}$ . La courbe en trait continu correspond au modèle de croissance F.H.H. (III.B.3.a). Nous appellerons  $\tilde{e}_4(T)$  la fonction que représente cette courbe. Elle est obtenue à partir de la relation (III-34).

Figure III-10 : Estimations de l'épaisseur  $e_4$  du film en fonction de  $1/T$  ;  $e_4$  s'exprime en nombre de couches d'hélium liquide de densité  $0,078 \text{ \AA}^{-2}$  et d'épaisseur  $3,58 \text{ \AA}$ . Le cas particulier correspond à la cellule B1 ( $p_4 = 2,015$  torr à  $300\text{K}$ ). Les différentes estimations sont les suivantes :

- trait continu épais :  $\tilde{e}_4(T)$  donné par le modèle F.H.H. pour une surface effective de dépôt égale à  $S$ . Le trait est surchargé de barres obliques dans le domaine d'épaisseur où il n'a pas grand sens ;
  - trait épais interrompu : résultats du modèle F.H.H. lorsque la surface effective est choisie égale à  $3S$  ;
  - trait mixte épais : résultats du modèle d'adsorption individuelle dans un gaz parfait à deux dimensions ;
  - trait pointillé : résultats pour l'adsorption individuelle si l'on tient compte du premier coefficient du viriel ;
  - traits interrompus soulignés par des  $\Delta$  : résultats du modèle F.H.H. dans les approximations (III-35) et (III-36) ;
  - croix  $\times$  : résultats issus des mesures de Paalanen et Iye à  $1,45\text{K}$ , transposées en considérant que la complétion des différentes couches se fait, quelle que soit  $T$ , pour la valeur du potentiel chimique dans le gaz obtenue par ces auteurs.
- Les commentaires associés aux différentes flèches numérotées ont été insérés dans le corps du texte .





### III.D.1.a - Les premières couches

Pour  $T \geq 1,2K$ ,  $\tilde{e}_4(T)$  est inférieur à 1,5 couches : le modèle F.H.H. n'a pas de justification ; la courbe en trait continu a donc été surchargée de barres obliques. L'adsorption est mieux décrite en termes d'atomes individuels. La courbe en trait interrompu mixte correspond au modèle d'adsorption individuelle sur la paroi dans un gaz parfait classique à deux dimensions (formule III-24). La courbe en pointillés tient compte de la statistique et des interactions entre particules ; elle a été tracée à partir de (III-27) et des coefficients du viriel calculés par Siddon et Schick [1974]. L'intersection avec la droite  $e_4 = 1$  fixe l'ordre de grandeur de la température de "complétion" de la première couche, soit 1,39K.

C'est également entre 1,39K et 1,31K que se situe la "complétion" de première couche estimée d'après les valeurs du potentiel chimique mesurées par Paalanen (III.B.3), qui correspondent, dans notre cellule, aux croix (x) de la figure III-10. C'est aussi dans cette zone de température que se situe la valeur minimale du temps de relaxation  $T_1$ , observée sur une cellule de remplissage analogue en  $^4\text{He}$  par nous-même (voir chapitre V) et par le groupe de M.G. Richards à Sussex University, [C. Lusher, 1985]. Ce minimum correspond à la flèche (2). En fait, comme on l'a vu au § III.B.2.c, la description en termes de "nombre de couches" n'est pas tout à fait appropriée. Dès le trait interrompu horizontal marqué par la flèche (3), qui correspond à la densité d'équilibre d'une monocouche libre selon Liu et al. [1976], les couches croissent simultanément.  $\tilde{e}_4$  mesure plutôt un taux de couverture global du substrat en hélium ; l'unité correspond à une couverture surfacique en hélium de densité  $0,078 \text{ \AA}^{-2}$ .

Entre 1K et 0,82K, le désaccord entre les points obtenus à partir des résultats de Paalanen et  $\tilde{e}_4(T)$  n'est pas très important ; mais en fait, ni l'une ni l'autre de ces estimations ne sont fiables pour une épaisseur de deux à trois couches.

C'est vers 0,82K que se produit la solidification de la première couche : cette valeur de la température a été estimée à partir du potentiel chimique dans le gaz en équilibre avec elle par le raisonnement de III.C.1.b. Ce seuil est repéré par la flèche (4) ; il n'est pas incompatible avec la zone d'épaisseur indiquée par la flèche (5), qui correspond grossièrement à la couverture de la paroi nécessaire pour comprimer la première couche comme le ferait un film épais -- le potentiel créé par un film est faible au-delà de 7 Å -- assurant ainsi la solidification au sens de III.C.1.a. La courbe en trait fin pointée par (6), enfin, est issue des mesures de Hess et Muirhead donnant l'épaisseur de film nécessaire pour provoquer l'apparition de la superfluidité sur du verre, donc a fortiori sur un substrat moins liant comme "verre + H<sub>2</sub>". Extrapolée à la valeur de l'épaisseur de film restant non superfluide à 0,5K proposée par Scholtz et al. [1974], cette courbe croise  $\tilde{e}_4(T)$  vers 0,82K.

#### III.D.1.b - Au-delà de quelques couches

Pour  $T < 0,82K$ , la croissance de  $\tilde{e}_4(T)$  avec  $1/T$  s'accélère. La courbe en trait continu  $\tilde{e}_4(T)$  croise la verticale  $T = T_0$  vers 4,5 couches. C'est dans cette zone de température que se fait le raccordement entre les deux situations extrêmes suivantes :

- le modèle F.H.H. donné par (III-34), qui prévoit une croissance illimitée de l'épaisseur pour  $T = T_0$ , lorsqu'on dispose d'un réservoir infini d'atomes ;
- le cas où on ne tient pas compte de l'attraction par la paroi : la croissance ne commence que pour  $T < T_0$  ; le nombre d'atomes non condensés est fixé par la densité de vapeur.

Les résultats correspondants ont été marqués par des  $\Delta$  reliés par un trait interrompu ; ils encadrent  $\tilde{e}_4(T)$ . Au voisinage

de  $T_0$  la croissance du film est très rapide lorsque  $T$  diminue : on passe de 3 à 15 couches entre 0,76K et 0,72K.

La courbe repérée par la flèche (7) s'écarte notablement de  $\tilde{e}_4(T)$  pour  $T < T_0$ . Elle correspond aux résultats du modèle F.H.H. (III-34) lorsqu'on suppose que la surface effective sur laquelle se condense le film est le triple de la surface géométrique. Comme on le constate, aucun des résultats évoqués au III.D.1 n'est significativement modifié (solidification, superfluidité, zone de croissance rapide). Seule l'épaisseur maximale vers 0,5K correspond au tiers de  $\tilde{e}_4(0,5K)$ .

### III.D.1.c - Conclusion

La figure III-10 doit être rapprochée des variations de  $T_1$  mesurées pour une cellule de même remplissage en  $^4\text{He}$ , données par exemple sur la figure I. Comme on le voit, la température à laquelle semble se produire une modification du comportement de  $T_1$  avec  $T$  est  $T_0$ . A  $T_0$ , le modèle précédent donne une épaisseur du film de l'ordre de 4 à 5 couches de  $^4\text{He}$ . La prise en considération pour la condensation d'une surface effective pour l'enduit supérieure à la surface géométrique modifie cette quantité de façon assez faible : cela provoque surtout, outre une limitation de l'épaisseur maximale du film, un décalage de la zone de croissance rapide de celui-ci vers les températures un peu plus basses.

Nous trouvons d'autre part que  $T_0$  est bien inférieure aux températures auxquelles sont attendues des modifications structurales importantes du film : complétion de la première couche, solidification de celle-ci, apparition de la superfluidité et ce, quelle que soit l'approche utilisée. Partant, ces changements ne peuvent à eux seuls suffire à expliquer les variations de  $T_1$  observées. Il est néanmoins essentiel de les prendre en compte pour décrire quelle est la situation des atomes d'hélium-3 vis-à-vis du film dont nous avons étudié la croissance : cela fait l'objet du chapitre IV.

### III.D.2 - Evaluation expérimentale indirecte de l'épaisseur

L'épaisseur du film n'est pas, dans nos expériences, une grandeur directement accessible. En revanche, les mesures de coefficient de diffusion exposées au chapitre II sont sensibles à la densité en phase vapeur et donnent quelques indications sur la condensation de  $^4\text{He}$ . Nous nous proposons dans ce paragraphe de confronter le modèle de condensation élaboré précédemment aux résultats du chapitre II. Après avoir brièvement rappelé le principe du calcul du coefficient de diffusion dans le gaz que nous adoptons (§ III.D.2.a), nous montrons que l'accord entre les résultats et les prévisions associées au modèle précédent est bon (§ III.D.2.b) : à une température supérieure à la température de rosée, le modèle F.H.H. semble néanmoins sous-estimer l'épaisseur du film.

#### III.D.2.a - Principe du calcul de $1/D$

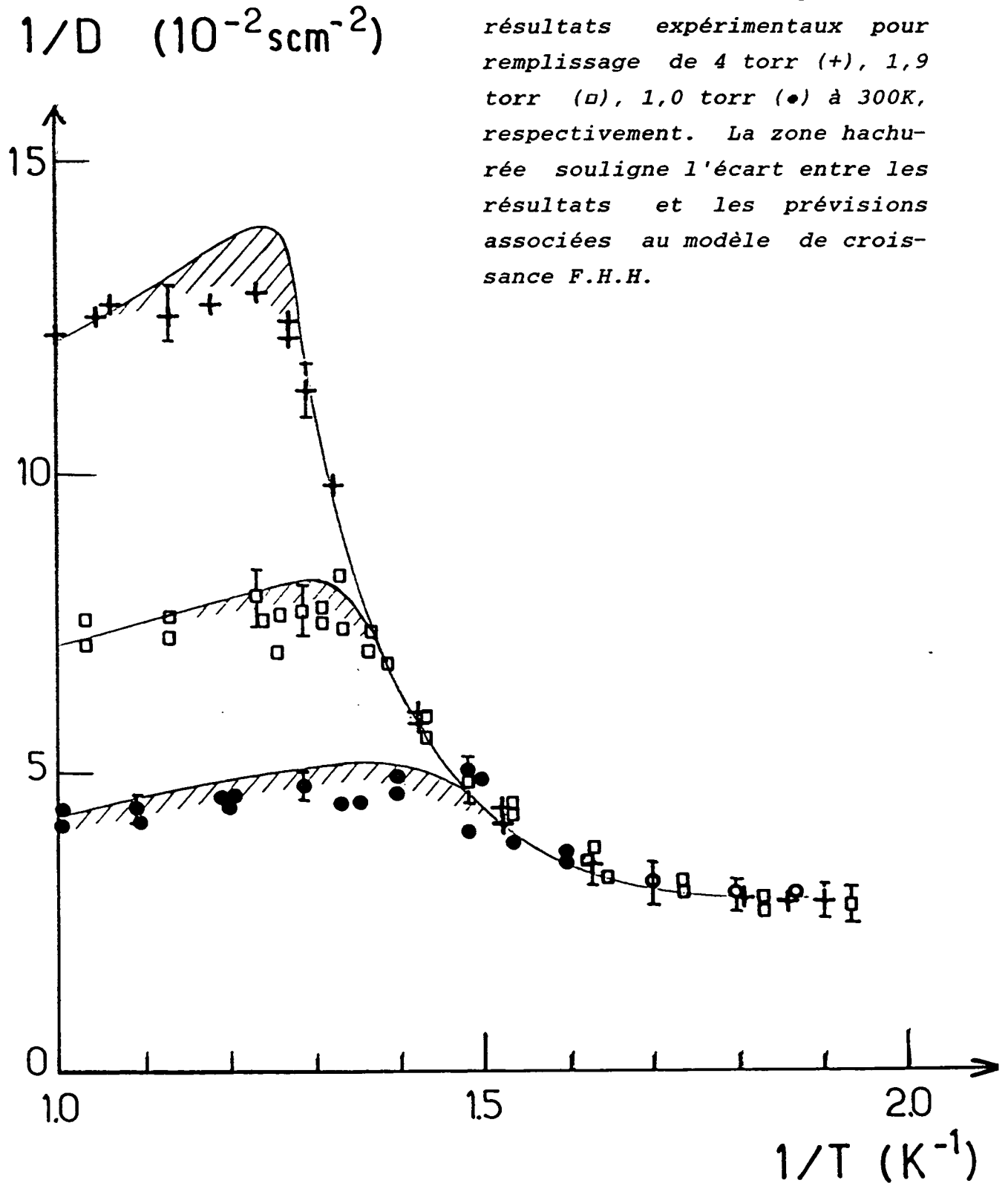
Au paragraphe II.B.2.b, la confrontation des résultats expérimentaux avec les calculs numériques de C. Lhuillier [1983] a montré que les mesures du rapport  $D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1} = \varrho$  semblent en bon accord avec les prévisions. Pour estimer à température donnée et dans une cellule donnée la valeur de  $1/D$  nous avons donc opéré de la façon suivante :

- l'épaisseur du film est  $\tilde{e}_4(T)$  ; elle est déterminée d'après les considérations du § III.B : on connaît donc les densités gazeuses  $d_4(T)$  et  $d_3(T)$  dans la cellule ;

- le rapport  $\varrho(T)$  entre  $D_{34}^{-1}$  et  $D_{33}^{-1}$  est supposé connu : c'est le rapport numérique donné sur la figure II-10. On calcule alors :

$$\frac{1}{D}(T) = \zeta (\varrho(T) d_4(T) + d_3(T)) \frac{1}{D_{33}^{LJ}}(T) \quad (\text{III-40})$$

Figure III-11 : Confrontation des estimations numériques aux résultats expérimentaux pour les trois cellules dont les paramètres sont décrits au tableau II-6 (remplissage croissant en  $^4\text{He}$ ). Les trois courbes en trait plein correspondent aux trois estimations adaptées aux résultats expérimentaux pour remplissage de 4 torr (+), 1,9 torr ( $\square$ ), 1,0 torr ( $\bullet$ ) à 300K, respectivement. La zone hachurée souligne l'écart entre les résultats et les prévisions associées au modèle de croissance F.H.H.



où  $\zeta$  est un coefficient numérique d'étalonnage indépendant de la température.

### III.D.2.b - Confrontation aux résultats expérimentaux

Les résultats pour les cellules dont les caractéristiques ont été décrites au tableau II-6 sont représentés sur la figure III-11. Les échantillons contiennent respectivement 1 ( $\bullet$ ), 1,9 ( $\square$ ), 4 (+) torr à 300K de  $^4\text{He}$ . Les courbes théoriques ont été ajustées aux résultats en utilisant pour les trois cellules un coefficient  $\zeta$  proche de 0,90 (à 3% près).

Dans l'ensemble l'accord est bon. On remarque toutefois que les résultats expérimentaux s'écartent des prévisions dans la zone de température immédiatement supérieure à la température de rosée ; en particulier, pour l'échantillon contenant initialement 4 torr à 300K de  $^4\text{He}$ , la phase vapeur semble contenir moins de  $^4\text{He}$  à la température de 0,82K que ne le prévoit le modèle de condensation adopté. L'écart observé correspond à près de trois couches supplémentaires déposées sur la surface géométrique interne de la cellule. Cet écart pourrait indiquer que la condensation des toutes premières couches de  $^4\text{He}$  est plus rapide que prévu, à cause par exemple d'un substrat plus attractif par endroits ou d'une surface effective de dépôt supérieure à la surface géométrique du pyrex.

Ce désaccord surgit dans un domaine où le modèle de condensation F.H.H. adopté cesse d'être précis. Les autres indicateurs de condensation (voir figure III-10) conduisent à une épaisseur supérieure. Néanmoins, ce désaccord a été observé pour l'échantillon possédant les plus forts taux de relaxation transverse, c'est-à-dire pour l'échantillon qui fit l'objet des mesures de  $T_2$  les moins précises.



CHAPITRE IV

LES ATOMES  $^3\text{He}$  ET LE FILM  $^4\text{He}$





L'épaisseur et la structure du film d'hélium-4 présent sur les parois de la cellule ont été étudiées au chapitre III pour chaque valeur de la température  $T$ . Nous examinons dans ce chapitre le comportement des atomes d'hélium-3 vis-à-vis d'un tel film ; ils peuvent être adsorbés en surface, être dissous dans le liquide, rester en phase gazeuse. Pour rendre compte de la relaxation nucléaire de l'échantillon total, il est nécessaire de connaître les caractéristiques de chacune de ces différentes phases accessibles aux atomes orientés, et les conditions de l'équilibre dynamique qui s'établit entre elles. L'un des paramètres essentiels est la valeur de l'énergie effective  $E_3$  d'un atome d'hélium-3 dans les différentes situations qu'il rencontre, définie de la façon suivante :  $E_3$  est la variation d'énergie libre du système constitué par un atome  ${}^3\text{He}$  et un film donné de  ${}^4\text{He}$ , entre les états (1) et (2) suivants :

Etat (1) :  ${}^3\text{He}$  est au repos, à une position infiniment éloignée du film qui est lui-même au repos ou dans un état peu excité.

Etat (2) :  ${}^3\text{He}$  est au repos, situé à un endroit particulier du film de  ${}^4\text{He}$ , qui est lui-même au repos ou dans un état peu excité.

$E_3$  dépend de la structure du film de  ${}^4\text{He}$ , donc du potentiel chimique  $\tilde{\mu}_4$  dans la cellule, qui caractérise la situation des atomes  ${}^4\text{He}$ . Au cours de nos expériences,  $\tilde{\mu}_4$  varie avec la température et, partant,  $E_3$ . On peut chercher à traduire les variations de  $E_3$  avec  $T$  au travers de la fonction  $\tilde{\mu}_4(T)$ , en déterminant tout d'abord  $E_3(\tilde{\mu}_4)$ .

La plupart des grandeurs pertinentes ont été calculées ou mesurées pour des phases massives : il s'agit par exemple de la mobilité des atomes d'hélium-3 dans le liquide, de leur masse effective, de leur énergie d'adsorption. Les solutions  ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$  ont également fait l'objet de nombreuses études, dépassant largement le cadre des concentrations faibles en hélium-3. Ce

chapitre rassemble, dans la limite de ce qui concerne directement la situation expérimentale de nos cellules, les différentes informations disponibles ou simples à établir qui décrivent la situation d'un  $^3\text{He}$  vis-à-vis du film.

Dans la première partie (IV.A), on suppose que l'épaisseur du film est assez grande pour qu'on puisse considérer celui-ci comme un fluide continu, massif ou décrit à l'aide de variables thermodynamiques macroscopiques locales. Dans la partie (IV.B), en revanche, sont abordées les questions relatives aux films très minces, aux toutes premières couches d'un film épais, à l'existence d'interfaces entre les constituants : dans chacun de ces cas, une approche microscopique nous a semblé plus appropriée.

IV.A -  $^3\text{He}$  VIS-A-VIS D'UN FILM EPAIS : FLUIDE CONTINUIV.A.1 -  $^3\text{He}$  vis-à-vis d'un film homogèneIV.A.1.a - Dissolution à l'intérieur du film

Même à température nulle,  $^3\text{He}$  en faible proportion reste miscible à  $^4\text{He}$  liquide [Edwards et Daunt 1961, Edwards et al. 1965]. Ainsi, le film d'hélium-4 qui recouvre la paroi des cellules que nous utilisons est fondamentalement différent des enduits cryogéniques solides habituels, puisque les atomes de  $^3\text{He}$  peuvent y être dissous. Nous nous limitons, dans ce paragraphe, à présenter les caractéristiques de cette dissolution lorsqu'on peut assimiler le film épais à du liquide massif non comprimé. Les modifications des propriétés du fluide dues à l'attraction du substrat qui se manifeste de façon importante dans les premières couches seront évoquées au paragraphe IV.A.2.

*α) Propriétés d'un atome dissous*

Les propriétés des solutions très diluées s'interprètent en considérant qu'un atome d'hélium-3 dans le liquide superfluide se comporte comme une particule quasi-libre. A  $T = 0\text{K}$ ,  $p = 0\text{bar}$ , son énergie vaut [Seligman et al., 1969] :

$$E_3^B = - (2,78 \pm 0,01)\text{K} \quad (\text{IV-1})$$

Une approche très simple due à Baym [1966], que nous appliquerons au § IV.B.2 pour un système à deux dimensions, permet de rendre compte de l'ordre de grandeur de  $E_3^B$ . Considérons  $N_4$  atomes d'hélium-4, formant un liquide de volume donné et de potentiel chimique  $\mu_4$ , et substituons, à volume constant, un atome d'hélium-3 au  $i$ -ème atome d'hélium-4. La variation d'énergie du système est  $-\mu_4 + E_3^B$ . Nous pouvons effectuer un calcul variationnel de cette quantité : lors de la transformation, le

hamiltonien du système a été modifié du terme  $\delta H$  :

$$\delta H = \left( \frac{1}{2m_3} - \frac{1}{2m_4} \right) p_1^2 \approx \frac{1}{3} \frac{p_1^2}{2m_4} \quad (\text{IV-2})$$

En traitant  $\delta H$  comme une perturbation, on calcule sa valeur moyenne dans l'état initial ( la fonction d'onde décrivant les  $N_4$  atomes d'hélium-4). Ainsi :

$$-\mu_4 + E_3^B = \frac{1}{3} \left\langle \frac{p_1^2}{2m_4} \right\rangle = \frac{1}{3} T_4 \quad (\text{IV-3})$$

où  $T_4$  est l'énergie cinétique moyenne d'un atome du liquide massif au potentiel  $\mu_4$  [Kürten et Ristig, 1983] . A température et pression nulle, (IV-3) conduit à :

$$-\mu_4 + E_3^B = 4,77K \quad (\text{IV-4})$$

qui donne  $E_3^B = -2,40K$  supérieur à (IV-1) puisqu'il s'agit d'un résultat variationnel. Une estimation plus précise peut cependant être faite [Woo et al. 1969, 1970]. Il apparaît clairement ici que  $E_3^B$  dépend de  $T_4, \mu_4$ , donc de l'état du liquide. Dans le liquide ces atomes dissous se comportent comme les constituants d'un gaz dilué ; néanmoins leur mouvement induit des mouvements du fluide, qu'on peut représenter en leur conférant une masse effective [Woo et al. 1969, Ebner et Edwards 1970] :

$$m_3^B = 2,3 m_3 \quad (\text{IV-5})$$

### *$\beta$ ) Densité des atomes dissous*

Lorsque la concentration en  $^3\text{He}$  est faible, on peut négliger les interactions entre atomes de  $^3\text{He}$  et considérer que ceux-ci sont les constituants d'un gaz parfait à 3 dimensions. Si  $e_4$  représente l'épaisseur du film qui leur est accessible, le potentiel chimique des  $N_3^B$  atomes de cette phase dissoute

s'écrit :

$$\tilde{\mu}_3^B = E_3^B + \mu_{3g.p.}^B = E_3^B + k_B T \operatorname{Ln} \left( \frac{N_3^B}{2Se_4} (\lambda_3^B)^3 \right) \quad (\text{IV-6})$$

avec :

$$\lambda_3^B = \lambda_3 \left( \frac{m_3}{m_3^B} \right)^{1/2} = \frac{h}{(2\pi m_3^B k_B T)^{1/2}} \quad (\text{IV-7})$$

Le facteur 2 dans (IV-6) provient des deux états possibles du spin 1/2 de l'atome de  $^3\text{He}$ . Ecrire l'équilibre avec les  $N_3^G$  atomes dans la phase gazeuse de volume  $V$ , dont le potentiel chimique  $\mu_3^G$  vaut

$$\mu_3^G = k_B T \operatorname{Ln} \left( \frac{N_3^G}{2V} \lambda_3^3 \right) \quad (\text{IV-8})$$

conduit à

$$\frac{\mu_3^B}{Se_4} = \frac{N_3^G}{V} \left( \frac{m_3^B}{m_3} \right)^{3/2} \exp \left[ - \frac{E_3^B}{k_B T} \right] \quad (\text{IV-9})$$

Prenant pour exemple numérique un remplissage  $p_3 = 2,00$  torr à 300K, on obtient une valeur de la densité de  $^3\text{He}$  dans le film liquide égale à  $1,45 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  à 0,67K et à  $5,9 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  à 0,50K ; les concentrations molaires respectives en  $^3\text{He}$  sont  $6,5 \cdot 10^{-4}$  et  $2,6 \cdot 10^{-3}$  : ce sont bien des solutions très diluées. Le nombre d'atomes d'hélium-3 concernés dépend de l'épaisseur  $e_4$  du film. Dans la plupart des cas celle-ci n'excède pas 40 couches atomiques, soit 140 Å, à basse température ; à 0,5K cela donne, pour une cellule de rayon  $R = 1,35$  cm,  $N_3^B = 2 \cdot 10^{15}$  atomes, tandis que la phase gazeuse comprend  $N_3^G = 6,5 \cdot 10^{17}$  atomes.

*γ) Le libre parcours moyen dans le film*

Un paramètre important pour décrire le comportement des atomes d'hélium-3 dans le liquide est le libre parcours moyen  $\ell_B$  de ceux-ci ;  $\ell_B$  est limité par les collisions des atomes avec :

- les bords du film,
- les excitations élémentaires du liquide, phonons, rotons,
- les autres atomes d'hélium-3 dissous.

Lorsque la température est abaissée, la densité des excitations élémentaires du liquide décroît.

- Il est possible, plus précisément, d'estimer la densité des phonons,  $n_{ph}$ . La vitesse de ceux-ci est la vitesse du son, soit :

$$c = 2,4 \cdot 10^2 \text{ mS}^{-1}$$

D'après Donnely[1967], on peut écrire :

$$n_{ph} \simeq \frac{1,2}{\pi^2} \left[ \left( \frac{k_B T}{\hbar} \right) \frac{1}{c} \right]^3 = 1,9 \cdot 10^{19} T^3 \quad (\text{en cm}^{-3}) \quad (\text{IV-10})$$

Cela représente environ le cube du vecteur d'onde thermique  $\hat{K}$  associé aux phonons. Leur contribution à la limitation du libre parcours moyen d'une impureté de taille typique a peut être estimée en utilisant la méthode développée par Schwarz pour les ions positifs piégés [Schwarz et Stark, 1969]. La section efficace de diffusion entre un phonon de vecteur d'onde  $K$  et l'impureté considérée comme une sphère dure classique est alors :

$$\sigma(K) \propto K^4 a^6 \quad (\text{IV-11})$$

La moyenne sur  $K$  fait intervenir la fonction de distribution des phonons, qui suit une loi de Bose-Einstein; elle permet de

déterminer le transfert moyen d'impulsion de l'impureté au fluide, et donc un ordre de grandeur du libre parcours moyen :

$$\ell_B^{ph} = \left(3m_3^B k_B T\right)^{1/2} \left(\frac{k_B T}{\hbar c}\right)^{-8} \frac{1,17 \cdot 10^{-2}}{\hbar} \quad (\text{IV-12})$$

$$\ell_B^{ph} \simeq 0,5 T^{-7,5} \mu\text{m} \quad (\text{IV-13})$$

■ Les rotons sont des excitations de vecteur d'onde  $k_0$  proche de  $1,9 \text{ \AA}^{-1}$ , dotés d'une masse  $m_0 = 0,16 m_4$ , de densité  $n_{\text{roton}}$  [Baym et Pethick, 1976] :

$$n_{\text{roton}} \simeq \frac{2}{\hbar} \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} (m_0 k_B T)^{1/2} k_0^2 \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right) \quad (\text{IV-14})$$

l'énergie d'activation  $\Delta$  valant 8,65K. Herzlinger et King [1972] ont mesuré la section efficace effective de collision  $^3\text{He}$ -roton, de l'ordre de  $1,5 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$  à 1,2K ; celle-ci diminue lentement lorsque T diminue. Tan et Woo [1973] ont proposé un calcul microscopique de coefficient de diffusion dans la gamme de température 1K  $\leftrightarrow$  2K, en bon accord avec l'expérience. En extrapolant à plus basse température, où la densité des excitations est plus faible, on prévoit  $\ell_B^{\text{roton}} \simeq 0,1 \mu\text{m}$  à 1K,  $10 \mu\text{m}$  à 0,67K,  $100 \mu\text{m}$  à 0,5K. Les limitations imposées par les rotons sont donc d'un ordre de grandeur analogue à celles associées aux phonons.

■ Enfin, les interactions entre quasi-particules dissoutes contribuent d'autant plus au libre parcours moyen que la concentration en  $^3\text{He}$  est élevée. Ces interactions ont fait l'objet d'études systématiques [Wilks, 1967]. Majorant à  $40 \text{ \AA}^2$  la section efficace de collision  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  on obtient, pour une cellule remplie initialement de 2 torr à 300K, une valeur du libre parcours moyen  $\ell_B^{3-3}$  égale à 1700  $\text{ \AA}$  à 0,67K et 425  $\text{ \AA}$  à 0,5K.

Cette dernière contribution semble dominer les deux précédentes. Néanmoins, à toute température supérieure à 0,5K, nous avons obtenu une valeur du libre parcours moyen supérieure



ou égale à l'épaisseur maximale du film. Les atomes d' $^3\text{He}$  dissous dans le liquide s'y déplacent donc en vol libre. Numériquement, pour un film épais de 140 Å, cela revient à dire que le temps mis par un  $^3\text{He}$  pour traverser dans son épaisseur le film à la vitesse thermique moyenne à 0,5K est  $3 \cdot 10^{-10}$  s.

#### IV.A.1.b - Piégeage à la surface d'un film épais

Nous considérons dans ce paragraphe que le film est suffisamment épais pour que l'effet du substrat sur lequel il est déposé soit négligeable. Ainsi, la situation que nous examinons est celle du piégeage d'un atome d'hélium-3 à la surface libre d'une phase massive de  $^4\text{He}$  liquide. On précisera au paragraphe IV.A.2 dans quelle mesure les résultats obtenus doivent être modifiés à cause du substrat.

##### *α) Caractéristiques de l'état lié*

L'adsorption des atomes d'hélium-3 à la surface libre de l'hélium-4 a fait l'objet de plusieurs études théoriques et expérimentales [Edwards et Saam, 1978]. Les caractéristiques de ce piégeage à la surface du liquide sont les suivantes :

- l'énergie de liaison d'un atome, rapportée à la situation de l'atome isolé, vaut :

$$E_3^S = - (5,00 \pm 0,03)K \quad (\text{IV-15})$$

- la fonction d'onde de l'état lié s'étend dans la direction perpendiculaire à la surface sur une distance comparable à la longueur sur laquelle varie la densité atomique d'hélium-4, soit 5 à 6 Å ;

- l'atome adsorbé est mobile dans le plan de surface ; bien entendu, son mouvement provoque des déplacements du fluide environnant ; ce phénomène peut être correctement décrit en faisant intervenir une masse effective pour l'atome adsorbé :

$$m_3^S = (1,4 \pm 0,1) m_3 \quad (\text{IV-16})$$

Cet atome de masse  $m_3^s$  se comporte comme le constituant d'un gaz de Fermi à deux dimensions.

*β) Nombre d'atomes piégés en surface*

Le nombre d'atomes adsorbés sur le film varie avec la température. Pour le déterminer, il faut -- comme cela a été fait précédemment pour l'hélium-4 -- traduire l'équilibre entre phases en écrivant l'égalité du potentiel chimique  $\tilde{\mu}_3^s$  des  $N_3^s$  atomes adsorbés dans l'état d'énergie  $E_3^s$  et du potentiel chimique  $\mu_3^g$  des  $N_3^g$  atomes de la vapeur. Celui-ci peut être pris égal au potentiel chimique du gaz parfait de spin 1/2 donné par la formule (IV-8) ; compte-tenu de la faible densité en phase vapeur et de la valeur de la longueur d'onde de de Broglie, donnée par :

$$\lambda_3 = \frac{h}{(2\pi m_3 k_B T)^{1/2}} \simeq \frac{10,0}{\sqrt{T}} \text{ (en \AA)} \quad (\text{IV-17})$$

les effets de statistique quantique n'interviennent pas dans le gaz. Pour une densité de 1 torr à 300K, le rapport  $(N_3^g \lambda_3^3 / V)$  vaut dans nos cellules  $10^{-4}$  à 0,50K.

Le gaz piégé à la surface de  $^4\text{He}$  a fait l'objet d'études expérimentales par l'intermédiaire de la mesure de la tension de surface. D'après Edwards et Saam [1978], il se comporte comme un gaz de Fermi à deux dimensions, sans interaction, jusqu'à une densité de l'ordre de deux tiers d'une monocouche ; cette unité est définie arbitrairement comme l'équivalent à deux dimensions de  $^3\text{He}$  liquide : elle correspond à une densité de  $0,064 \text{ \AA}^{-2}$ . Sur le plan théorique, il est possible d'écrire le potentiel chimique  $\mu_3$  du gaz de Fermi sans interaction piégé, à partir de  $E_3^s$  et  $m_3^s$  : on obtient [Ebner et Fu, 1974] :

$$\tilde{\mu}_3^s = E_3^s + \mu_{3\text{F.D.}}^s = E_3^s + k_B T \text{ Ln} \left[ \exp \left( \frac{N_3^s}{2S} (\lambda_3^s)^2 \right) - 1 \right] \quad (\text{IV-18})$$

où :

$$\lambda_3^S = \lambda_3 \left( \frac{m_3}{m_3^S} \right)^{1/2} \quad (\text{IV-19})$$

En comparant avec (IV-8), on exprime  $n_s = \frac{N_3^S}{S}$  en fonction de  $N_3^G$  et  $T$  :

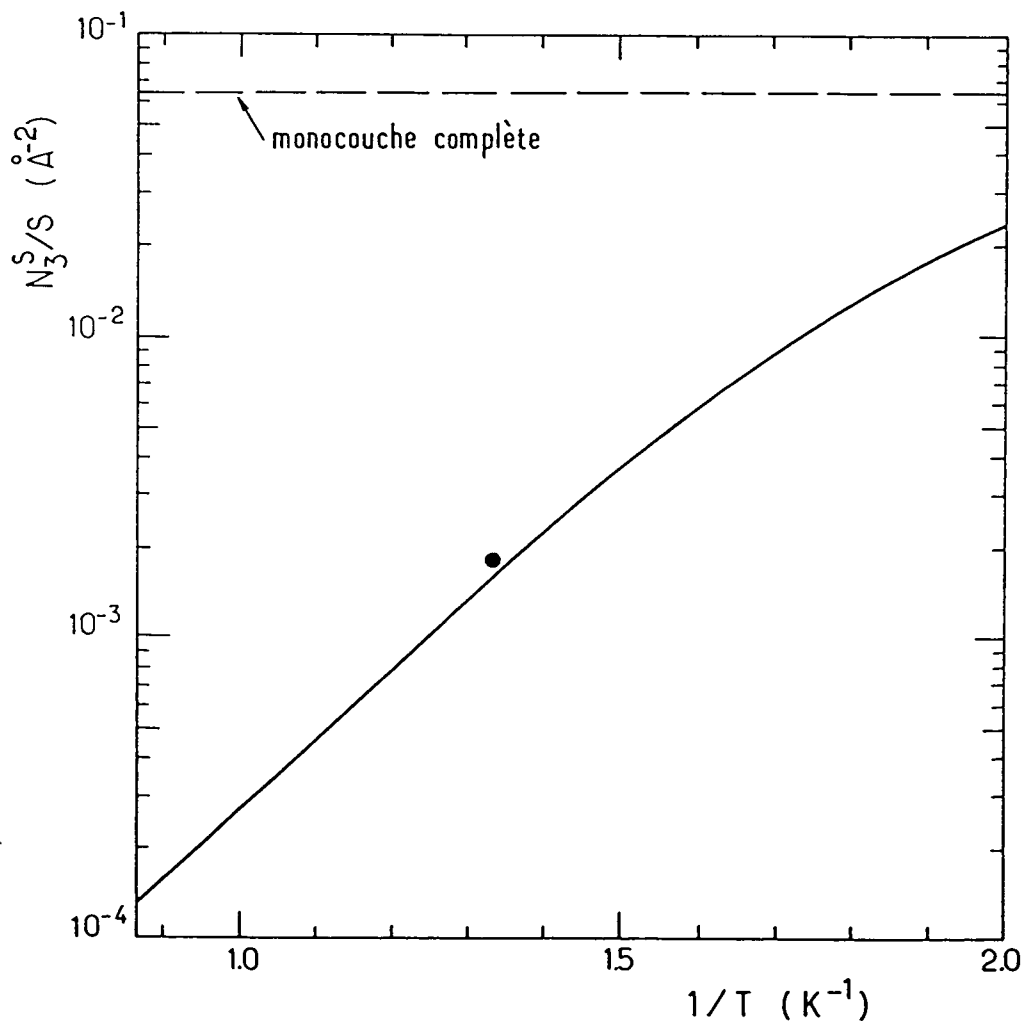
$$\frac{N_3^S}{S} = \frac{2}{(\lambda_3^S)^2} \text{Ln} \left[ 1 + \frac{N_3^G}{2V} \lambda_3^3 \exp \left( - \frac{E_3^S}{k_B T} \right) \right] \quad (\text{IV-20})$$

soit numériquement, avec  $T$  en K,  $p_3$  en "torr à 300K", et le résultat en  $\text{Å}^{-2}$  :

$$\left( \frac{N_3^S}{S} \right) = 2,9 \times 10^{-2} T \text{Ln} \left( 1 + \frac{3,22 \cdot 10^{-5}}{T^{3/2}} p_3 \exp \left( \frac{5}{T} \right) \right) \quad (\text{IV-21})$$

La figure IV-1 donne les variations de  $\left( \frac{N_3^S}{S} \right)$  pour une pression de remplissage  $p_3 = 2$  torr. Au-delà de  $0,04 \text{ Å}^{-2}$ , la courbe ne peut pas être considérée comme fiable. Les résultats principaux sont d'une part que la densité maximale reste faible, proche de 0,4 monocouche à 0,50K, et d'autre part que le nombre d'atomes  $^3\text{He}$  adsorbés sur la surface du film augmente d'un facteur 10 lorsque  $1/T$  passe de 1,40 à  $2\text{K}^{-1}$ , température à laquelle ils représentent moins de 6% du total des atomes  $^3\text{He}$  contenus dans la cellule. Ces atomes piégés sont cependant près de dix fois plus nombreux que les  $N_3^B$  atomes dissous dans le film.

**Figure IV-1** : Variations de la densité à deux dimensions ( $N_3^s/3$ ) (en  $\text{\AA}^{-2}$ ) d'atomes piégés à la surface du film épais (d'après IV-21). ( $N_3^s/S$ ) (en  $\text{\AA}^{-2}$ ) est représentée en échelle logarithmique en fonction de l'inverse de la température. La densité gazeuse dans la cellule est  $p_3 = 2$  torr à 300K. Le point particulier à  $T^{-1} = 1,33\text{K}^{-1}$  (●) a été obtenu en tenant compte de l'épaisseur finie du film (voir § IV.A.3.b).



*γ) Mobilité des atomes piégés en surface*

La mobilité des atomes piégés est limitée par :

- les excitations thermiques de la surface du film de  $^4\text{He}$  : ce sont des ondes capillaires usuellement appelées ripplons ;
- les collisions entre  $^3\text{He}$  adsorbés ;

■ Le premier processus de limitation n'a pas, à notre connaissance, été étudié pour  $^3\text{He}$  sur  $^4\text{He}$ . En revanche, Zimmerman et Berlinsky [1984] l'ont décrit pour l'atome d'hydrogène H piégé sur  $^4\text{He}$ . Certes, les caractéristiques de l'état lié de H à la surface du film sont assez différentes de celles exposées au § IV.A.2.a pour  $^3\text{He}$ . Les figures IV-2-a-a' et IV-2-b-b', qui représentent le potentiel effectif vu par un atome et la fonction d'onde dans chacun de ces deux cas, l'attestent : H s'échappe avec plus de facilité vers le vide, alors que  $^3\text{He}$  est tenté de pénétrer dans le liquide. Mais les énergies mises en jeu dans ces processus d'évasion (1K et 2,2K respectivement) sont du même ordre de grandeur. Il n'y a pas lieu de supposer que les processus de couplage des excitations de surface avec les atomes piégés diffèrent qualitativement pour  $^3\text{He}$  et H. La figure IV-3 donne les variations du libre parcours moyen de H, établies par Zimmerman et Berlinsky [1984]. Celui-ci est limité principalement par l'émission et l'absorption de ripplons ; il varie rapidement avec la température.

■ La limitation introduite à la mobilité des atomes piégés par les collisions entre  $^3\text{He}$  adsorbés peut être estimée dans les deux limites suivantes :

A *très faible densité*  $n_s$ , les collisions successives subies par un atome donné sont bien séparées dans le temps. En admettant que la section efficace  $\tilde{a}$  est de l'ordre de 10 Å, on obtient, pour le libre parcours moyen  $\ell_s$  :

$$\ell_s^{3-3} \approx \frac{1}{\tilde{a} n_s} \quad (\text{IV-22})$$

**Figure IV-2 :**  $^3\text{He}$  et H à la surface libre de l'hélium-4.

■ Potentiel effectif (en K) vu à la surface ( $z=0$ ) d'un liquide homogène, par un atome  $^3\text{He}$  (a) et un atome d'hydrogène H (a') respectivement.

■ Variations du carré  $|\psi|^2$  du module de la fonction d'onde  $\psi$  de l'atome  $^3\text{He}$  (b) ou H (b') dans l'état le plus lié du puits de potentiel correspondant, représenté en (a) ou en (a').

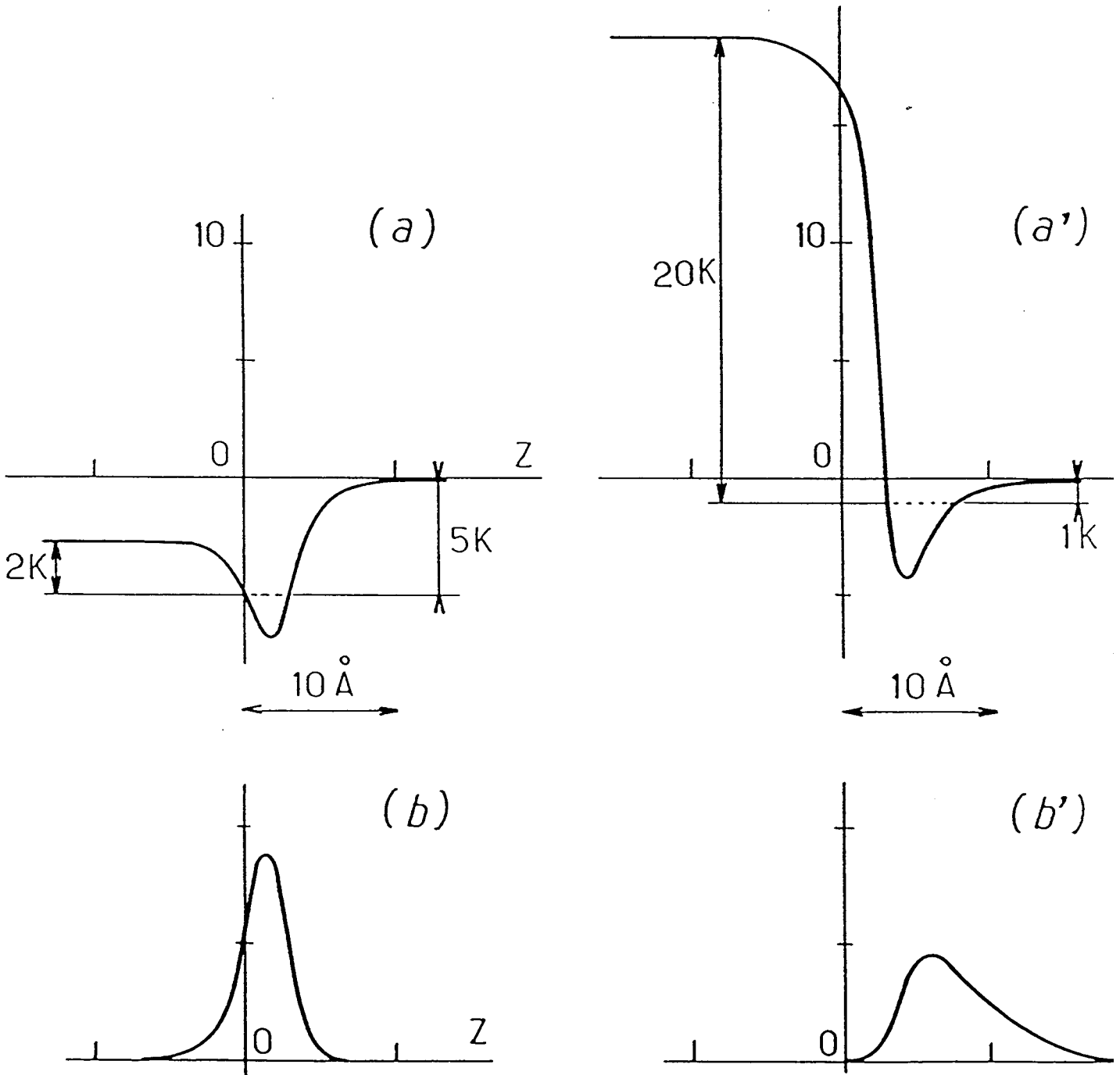
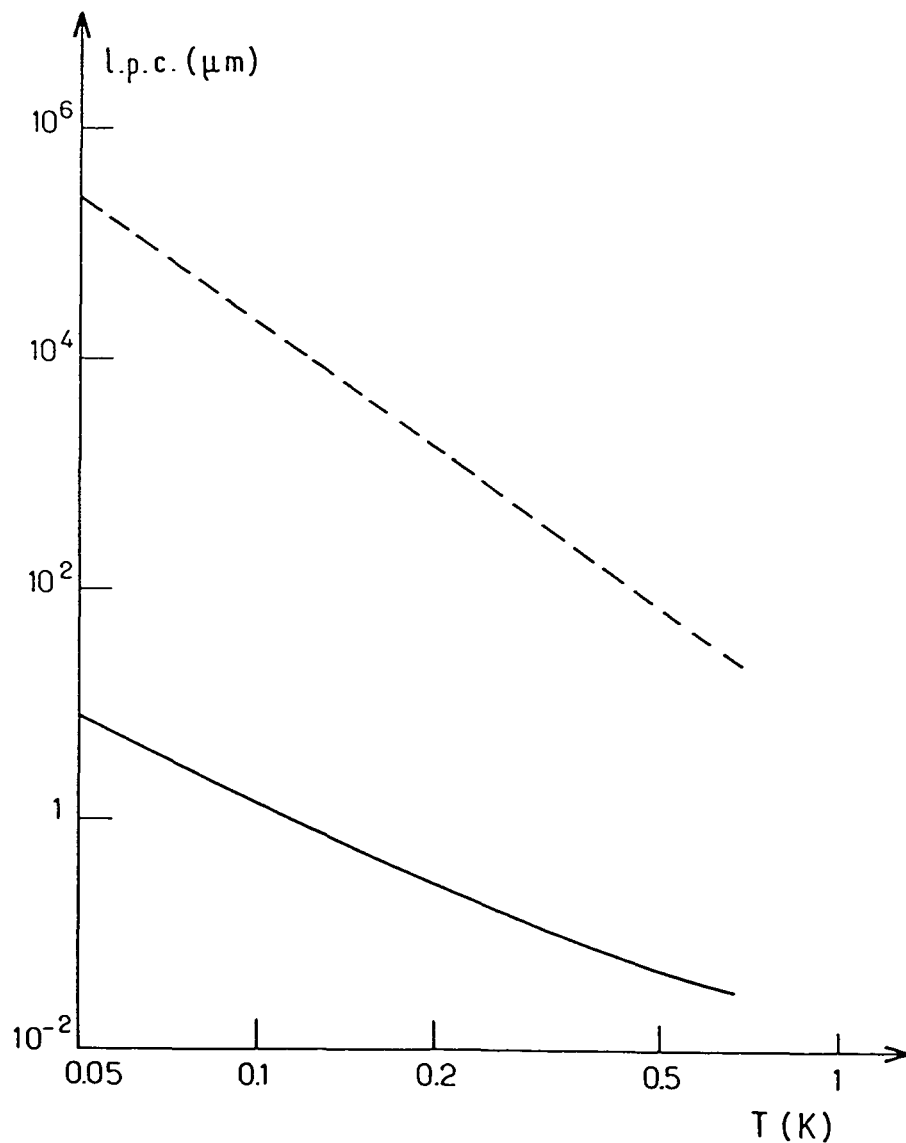


Figure IV-3 : Limitations au libre parcours moyen d'un atome H piégé à la surface de l'hélium liquide, en fonction de la température, d'après les calculs de Zimmerman et Berlinsky [1984, Can. J. Phys. 62, 590]. Les deux courbes représentent respectivement, en microns et en échelle logarithmique, la limitation associée à la diffusion atome-ripplon (trait interrompu) et la limitation associée à l'émission et l'absorption de ripplon (trait continu).



A forte densité et basse température, on peut appliquer la théorie des coefficients de transport dans les liquides de Fermi dégénérés. Ebner et Fu [1974] ont estimé le coefficient de diffusion du spin à deux dimensions dans ces conditions. Si  $X_s$  est la fraction de monocouche considérée (c'est  $n_s$  en unités de monocouche), ces auteurs prévoient :

$$D_s^{2 \cdot D} \simeq 6.10^{-2} \frac{X_s^2}{T^2 \operatorname{Ln} \left( \frac{21,4 X_s}{T} \right)} \quad (\text{en cm}^2 \text{ s}^{-1}) \quad (\text{IV-23})$$

On définit alors un libre parcours moyen par la relation :

$$l_s^{3-3} = \frac{D_s^{2 \cdot D}}{\bar{v}_F} \quad (\text{IV-24})$$

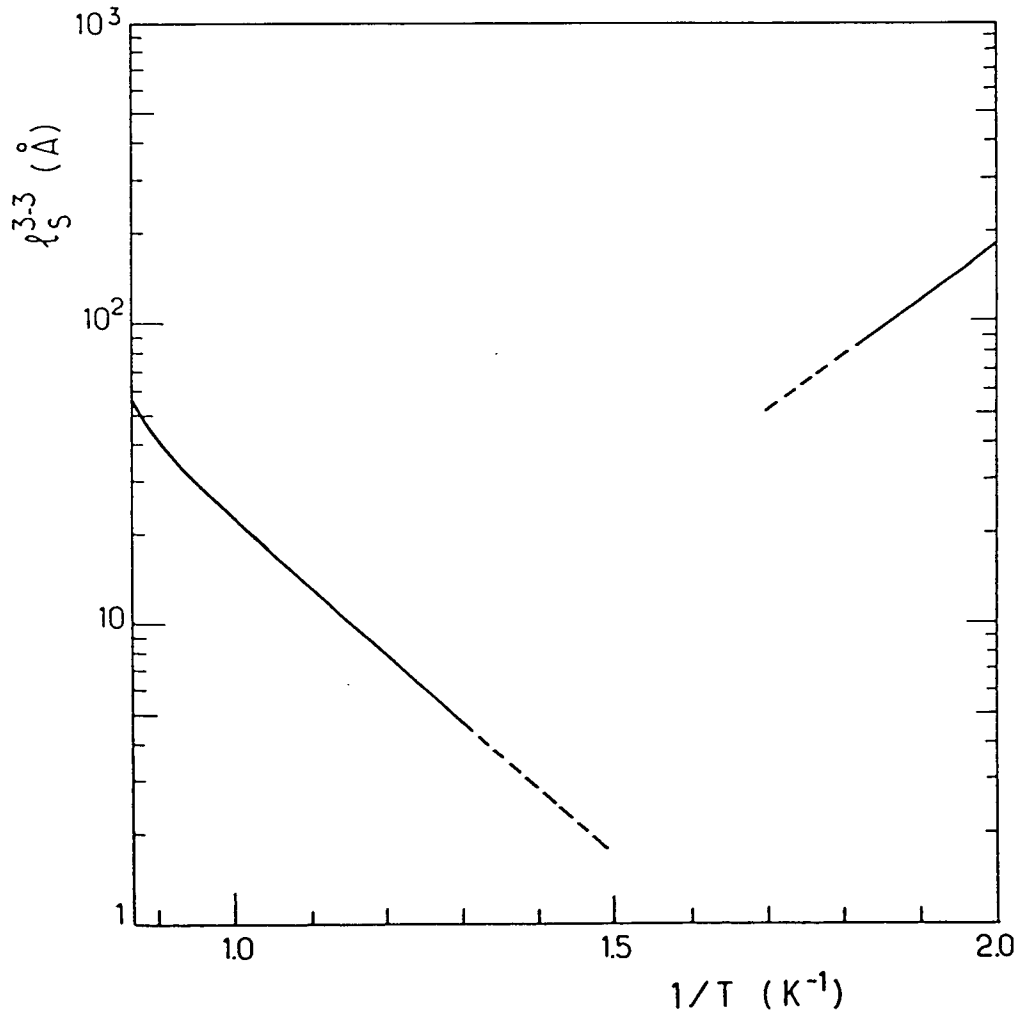
où  $\bar{v}_F = \frac{\hbar}{m_s^s} \sqrt{\frac{8\pi}{3} n_s}$  est la vitesse moyenne dans le gaz de Fermi à deux dimensions.

Les résultats numériques de (IV-24) et (IV-22) ont été représentés sur la figure IV-4. Bien entendu, (IV-23) et (IV-24) ne sont valables que lorsque le système bidimensionnel est dégénéré, c'est-à-dire lorsque  $T \ll T_F$ . La température de Fermi  $T_F$  dépend de la valeur de la densité  $n_s$  ; des résultats présentés sur la figure IV-1, nous déduisons que (IV-24) n'est valable que si  $T^{-1} \geq 1,85\text{K}^{-1}$ .

Notons enfin que le temps de séjour des atomes en surface introduit une limite supérieure au déplacement des atomes de  $^3\text{He}$ . Cette limitation sera précisée au paragraphe suivant.



Figure IV-4 : Limitation au libre parcours moyen introduite par l'interaction  $^3\text{He}-^3\text{He}$ . La figure représente la valeur du libre parcours moyen  $\ell_s^{3-3}$  dans le cas particulier  $p_3 = 2$  torr à 300K .  $\ell_s^{3-3}$  est donné par (IV-22) dans la zone "haute température" où, selon la figure IV-1,  $(N_3^s/S)$  est faible, et par (IV-24) dans la zone "basse température".



IV.A.1.c - Temps de séjour en phase adsorbée

Des échanges permanents existent entre les atomes du gaz ( $N_3^G$ ), les atomes piégés sur la surface ( $N_3^S$ ), les atomes dissous à l'intérieur du film ( $N_3^B$ ). Les seules expériences quantitatives que l'on puisse relier à l'échange entre ces phases sont celles de Edwards et Fatouros [1978] et de Goodman et Garcia [1986] qui ont mesuré le coefficient de réflexion d'atomes d'hélium à la surface du liquide  $^4\text{He}$ . Sauf à incidence rasante, les résultats montrent que ce coefficient reste faible : les atomes pénètrent dans le film, ou bien sont piégés en surface. Morrow et al. [1981] ont obtenu dans le cas de l'hydrogène atomique des résultats très différents (à plus basse température) : la nature répulsive du potentiel (figure IV-2-b-b') et la longueur d'onde plus grande conduisent à un coefficient de réflexion de H sur  $^4\text{He}$  proche de 1.

*α) Calcul du temps de séjour au voisinage de la paroi*

Calculons, sans distinguer entre atomes à l'intérieur du film et atomes en surface, le temps de séjour  $\tau_s$  au voisinage de la paroi. En régime permanent, le flux d'atomes entrant dans les phases adsorbées et le flux sortant sont égaux :

$$\frac{1}{\tau_s} \left( N_3^S + N_3^B \right) = \frac{1}{2} \bar{v}_G S \frac{N_3^G}{V} \quad (\text{IV-25})$$

où  $\bar{v}_G$  désigne la vitesse moyenne des atomes du gaz. En utilisant la relation (IV-9) donnant  $N_3^B$ , et la relation approchée, issue de (IV-21) :

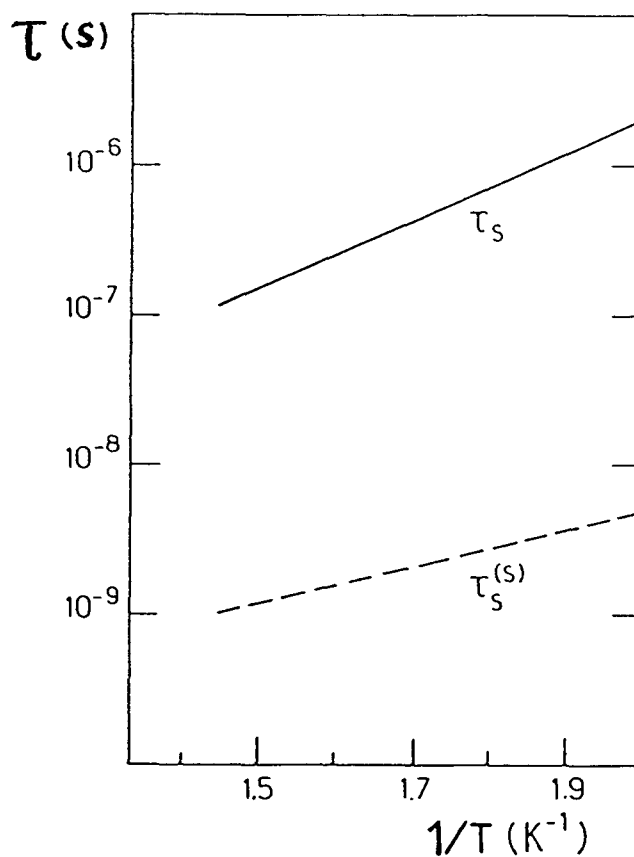
$$\frac{N_3^S}{S} = \frac{2}{(\lambda)_3^2} \frac{N_3^G}{2V} \lambda_3^3 \exp \left[ - \frac{E_3^S}{k_B T} \right] \quad (\text{IV-26})$$

On obtient :

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{\frac{\bar{v}_c}{2}}{e_4 \left(\frac{m^B}{m_3}\right)^{3/2} \exp\left[-\frac{E_3^B}{k_B T}\right] + \lambda_3 \left(\frac{m^S}{m_3}\right) \exp\left[-\frac{E_3^S}{k_B T}\right]} \quad (\text{IV-27})$$

Le résultat (IV-27) a été reporté, sur la figure IV-5, en fonction de  $1/T$  dans le cas particulier d'une cellule de remplissage  $p_4 (= p_3) = 2$  torr à 300K.

Figure IV-5 : Temps de séjour en phase adsorbée :  $\tau_s$  (trait continu) représente le temps de séjour global des atomes de  $^3\text{He}$  en phase adsorbée, déterminé à partir de (IV-27);  $\tau_s^{(s)}$  (trait interrompu) représente une estimation du temps de séjour des atomes à la surface du film d'hélium-4 d'après (IV-28).



*β) Calcul du temps de séjour à la surface du film*

Pour les températures inférieures à 1K, la densité d'atomes  $^3\text{He}$  à l'intérieur du film, donnée par (IV-9), est plus de quinze fois supérieure à celle du gaz. Près de 95% des atomes entrant en "collision" avec la surface du film proviennent de l'intérieur du film lui-même. La grande majorité d'entre eux possède une énergie qui n'est pas suffisante pour s'échapper dans le gaz : ils sont donc réfléchis vers l'intérieur, ou bien piégés à la surface. Soit  $\tilde{\alpha}$  la proportion des atomes, qui, venant du film, s'adsorbent à la surface. Le même calcul que ci-dessus (égalité des flux) conduit au temps de séjour  $\tau_s^{(s)}$  en surface :

$$\frac{1}{\tau_s^{(s)}} \simeq \frac{\tilde{\alpha}}{\lambda_3} \cdot \frac{m_3^B{}^{3/2}}{m_3^{1/2} m_3^S} \exp\left[-\frac{E_3^B - E_3^S}{k_B T}\right] \frac{\bar{v}_B}{2} \quad (\text{IV-28})$$

( $\bar{v}_B$  est la vitesse moyenne dans le gaz de  $^3\text{He}$  piégé dans le film). Or, la longueur d'onde de de Broglie  $\lambda_3$  ou  $\lambda_3^B$  n'est pas très grande devant la largeur du puits de potentiel que voient les atomes parvenant à la surface : le coefficient de réflexion des atomes venant de l'intérieur du film n'a pas, a priori, de raisons particulières d'être voisin de 1. Pour illustrer (IV-28) (en trait interrompu sur la figure IV-5) on a choisi arbitrairement la valeur  $\tilde{\alpha} = 1/2$ .

IV.A.2 -  $^3\text{He}$  dans les premières couches d'un film épais

IV.A.2.a - L'effet d'adsorption préférentielle

Lorsqu'il est dissous dans l'hélium-4, un atome d'hélium-3 se comporte comme les autres constituants du liquide, à ceci près -- si on exclut son spin nucléaire -- qu'il possède une masse différente. A environnement donné, son énergie cinétique moyenne de point zéro est plus grande ; c'est d'ailleurs à partir de cet argument que Baym a calculé  $E_3^B$  comme il a été exposé précédemment. L'équilibre au sein du fluide est donc atteint après un réarrangement des atomes du liquide autour

de "l'impureté  $^3\text{He}$ ", ce qui revient en moyenne à éloigner ceux-ci : plus léger que l'hélium-4, l'atome d'hélium-3 en solution est donc aussi "plus gros".

Ainsi, on comprend que dans le liquide comprimé, la présence d'hélium-3 soit énergétiquement moins favorisée. C'est ce qui se produit au voisinage d'une paroi dont le potentiel d'attraction est identique pour les deux atomes : le fluide est comprimé, donc plus dense ; le système a intérêt à chasser de la zone comprimée les "gros" atomes d'hélium-3, et à leur substituer de "petits" atomes d'hélium-4 en plus grand nombre, gagnant ainsi sur l'énergie d'attraction par le substrat. Cet effet "d'adsorption préférentielle" de l'hélium-4 a été mis en évidence expérimentalement [Thompson, 1978].

Dans la suite de ce paragraphe, on se propose de rendre compte quantitativement de ce processus d'adsorption préférentielle en décrivant le film d'hélium-4 à l'aide d'un modèle analogue à celui du § III.B.3 : on suppose que le film peut être caractérisé par des variables thermodynamiques locales ne dépendant que de la distance  $z$  au premier plan cristallin du solide constituant la paroi ; la pression, la densité dans l'hélium sont des fonctions de  $z$ . Les limites d'une telle représentation ont déjà été discutées au § III.B. Il est commode d'introduire le potentiel chimique  $c_4(z)$  du fluide homogène qui est dans le même état que le film à la distance  $z$ .  $c_4$  et  $T$  permettent de repérer l'état du fluide au même titre que  $(p, T)$ , avec l'avantage qu'il existe une relation simple entre ces paramètres et le potentiel  $V_\Delta(z)$  représentant l'énergie potentielle supplémentaire en  $z$  résultant de la présence de la paroi et de l'épaisseur finie du film : c'est la relation (III-19), soit :

$$c_4(z) + V_\Delta(z) = \tilde{\mu}_4 \quad (\text{IV-29})$$

où  $\tilde{\mu}_4$  désigne le potentiel chimique de  $^4\text{He}$  dans la cellule.

Par ailleurs, l'énergie  $E_3^B$  d'un atome de  $^3\text{He}$  dans un bain massif de  $^4\text{He}$  a été étudiée pour diverses situations, notamment diverses valeurs de la pression. On peut extraire de ces études la variation de  $E_3^B$  avec  $\mu_4$ , potentiel chimique caractérisant le bain, soit :

$$E_3^B = f(\mu_4) \quad (\text{IV-30a})$$

L'énergie potentielle  $V_3(z)$  vue par un atome de  $^3\text{He}$  au voisinage de la paroi est simplement la somme du potentiel  $V_\Delta(z)$  et de l'énergie effective :

$$E_3^B(z) = f(c_4(z)) \quad (\text{IV-30b})$$

soit, avec (IV-29) :

$$V_3(z) = V_\Delta(z) + f\left(\tilde{\mu}_4 - V_\Delta(z)\right) \quad (\text{IV-31})$$

La détermination de  $V_3$  passe donc en premier lieu par la détermination de la fonction  $E_3^B = f(\mu_4)$ .

#### IV.A.2.b - Relation entre $E_3^B$ et $\mu_4$ pour une phase homogène

##### *α) Phase liquide*

Il est habituel d'introduire le paramètre sans dimension  $\alpha$  qui mesure l'excès de volume relatif occupé par un atome  $^3\text{He}$  par rapport à un atome  $^4\text{He}$ . A température donnée,  $\alpha$  est une fonction de la pression  $p$  et, partant, de  $\mu_4$ .  $E_3^B$ ,  $\alpha$ , et  $\mu_4$  sont également liés par la relation thermodynamique simple [Baym et Pethick, 1976] :

$$\left(\frac{\partial E_3^B}{\partial \mu_4}\right)_T = 1 + \alpha(\mu_4) \quad (\text{IV-32})$$

Pour démontrer (IV-32), il faut d'abord remarquer que  $E_3^B$ , variation d'énergie libre  $F$  totale lorsqu'on introduit un  $^3\text{He}$  dans  $^4\text{He}$ , est aussi le potentiel chimique  $\mu_3$  de  $^3\text{He}$  dans un mélange  $^3\text{He}-^4\text{He}$  à la limite des très faibles concentrations. Ensuite, il est commode de décrire le mélange  $^3\text{He}-^4\text{He}$  considéré à l'aide des variables thermodynamiques  $\mu_4, N_3, T$ . Pour un volume  $V$  fixé de fluide, le potentiel thermodynamique correspondant s'écrit :

$$\Omega(N_3, \mu_4, T) = F - \mu_4 N_4 \quad (\text{IV-33})$$

A  $T$  fixée, la différentielle de (IV-33) s'écrit :

$$\begin{aligned} d\Omega &= \mu_3 dN_3 + \mu_4 dN_4 - (N_4 d\mu_4 + \mu_4 dN_4) \\ &= \mu_3 dN_3 - \mu_4 d\mu_4 \end{aligned} \quad (\text{IV-34})$$

assurant immédiatement :

$$\left( \frac{\partial \mu_3}{\partial \mu_4} \right)_{N_3, T} = \left( \frac{\partial N_4}{\partial N_3} \right)_{\mu_4, T} \quad (\text{IV-35})$$

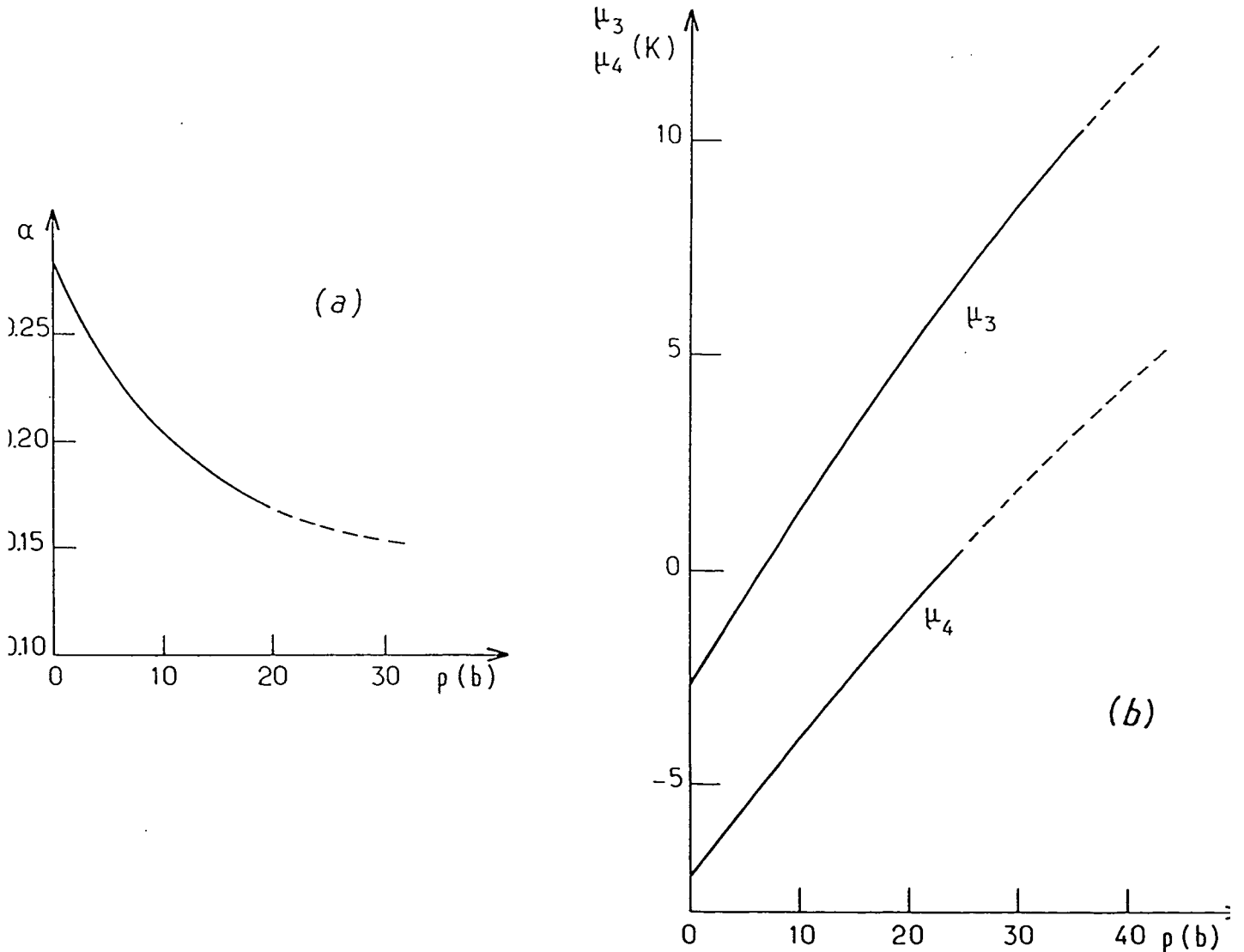
Pour  $N_3$  suffisamment faible, le premier membre est celui de (IV-32). Le second membre de (IV-35) représente physiquement le nombre d'atomes de  $^4\text{He}$  que chasse un atome  $^3\text{He}$  introduit dans le volume  $V$  à  $T$  et  $\mu_4$  constants. C'est par définition  $(1 + \alpha)$ , ce qui démontre (IV-32).

$\alpha(p)$  a été mesuré expérimentalement pour du liquide massif sous pression. La figure IV-6a rassemble les résultats énumérés par Ebner et Edwards [1970], complétés jusqu'au point de solidification d'après Wilks [1967]. Par ailleurs, la dépendance en  $p$  du potentiel chimique  $\mu_4$  est connue et reportée sur la figure IV-6b [Watson et al., 1969]. En éliminant  $p$ , on obtient  $\alpha(\mu_4)$  et, par intégration,  $E_3^B(\mu_4)$  (figure IV-6c). On constate que

**Figure IV-6 : Situation d'un atome  $^3\text{He}$  à l'intérieur d'une phase massive de  $^4\text{He}$ .**

a) Variation du coefficient  $\alpha$  défini par (IV-33) en fonction de la pression  $p$  (en bars).

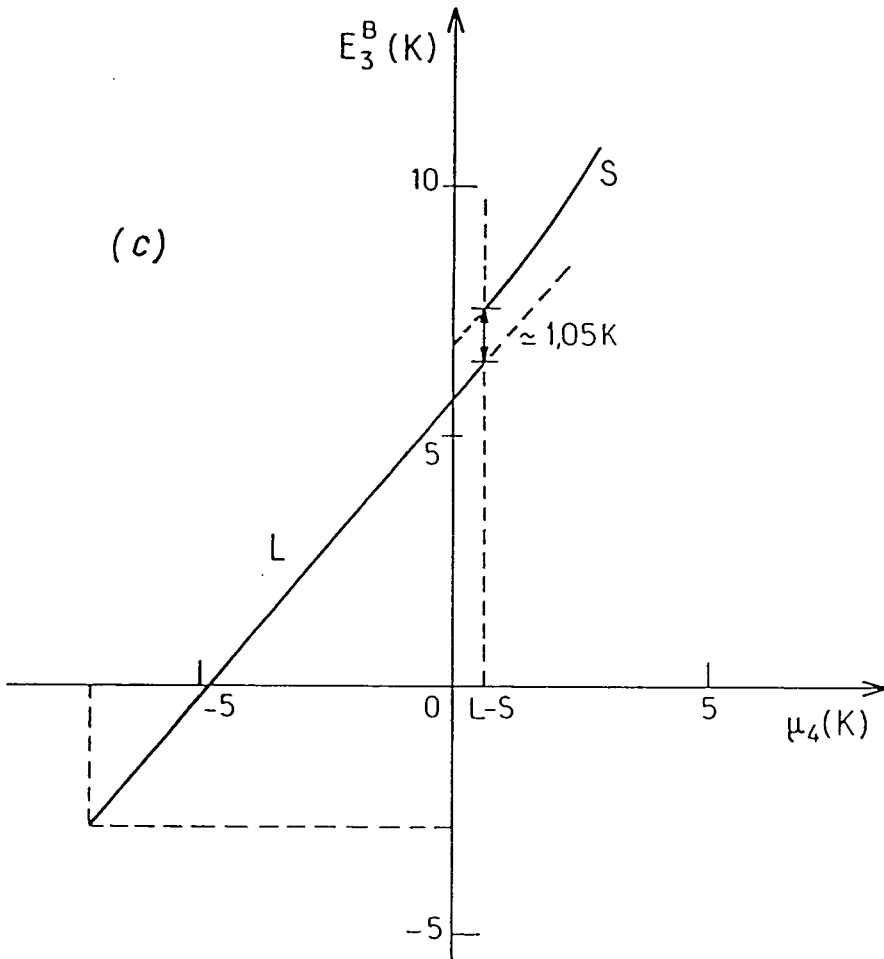
b) Variations des potentiels chimiques  $\mu_3$  et  $\mu_4$  des phases massives de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$ , respectivement, avec la pression  $p$  (en bars). Les parties des courbes en trait continu correspondent aux phases liquides, les parties en trait interrompu concernent les phases solides.





$E_3^B$  est presque une fonction affine de  $\mu_4$  : on peut la représenter sous la forme très simple suivante, où  $E_3^B$  et  $\mu_4$  sont exprimés en kelvin :

$$E_3^B = 5,75 + 1,19 \mu_4 \quad (\text{IV-36})$$



**Figure IV-6:** c) Valeurs de l'énergie  $E_3^B$  d'un atome  $^3\text{He}$  piégé en fonction du potentiel chimique  $\mu_4$  de la phase massive de  $^4\text{He}$ . Les deux portions de la courbe, repérées par L et S, correspondent au cas où l'hélium-4 est respectivement liquide ou bien solide. La discontinuité de  $E_3^B$  à la transition liquide-solide (repérée par l'abscisse L-S) est de l'ordre de 1K.

*β) Phase solide*

Au-delà de 25 bars, l'état d'équilibre à  $T = 0$  d'une phase homogène d'hélium-4 est une phase solide. On a vu au chapitre III que l'apparition dans la première couche du film d'un ordre solide ne devait pas être exclue dans le cas d'un substrat d'hydrogène. Il convient donc d'étendre aux solutions solides diluées les résultats ci-dessus.

Le mélange solide  ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$  présente, à basse température, un phénomène de démixtion en deux phases, l'une riche en  ${}^3\text{He}$ , l'autre riche en  ${}^4\text{He}$  : les mesures de chaleur spécifique du mélange solide présentent, à la température de transition, une discontinuité [Edwards et al. 1962]. Mullin [1968] a pu rendre compte de l'allure de la courbe de transition de phase ( $T$ ,  $X_3$  = fraction molaire de  ${}^3\text{He}$ ) obtenue pour diverses valeurs de la pression (\*). De ces résultats, on peut extraire :

$$E_3^B = \mu_3(p) + \Delta E(p) \quad (\text{IV-37})$$

où  $\mu_3(p)$  est le potentiel chimique de  ${}^3\text{He}$  pur sous la pression  $p$ , et  $\Delta E(p)$  une fonction de la pression valant 1,01K à 36 atm et variant peu avec  $p$ . Nous supposerons  $\Delta E$  constante, et calculerons  $\mu_3(p)$  à partir de sa valeur sur la courbe de solidification (9,7K à 34 atmosphères selon Bruch et al. [1985]) et la relation :

$$\mu_3(p) = \mu_3(p_0) + \int_{p_0}^p \nu(p) dp \quad (\text{IV-38})$$

---

(\*) L'approche de W. Mullin [1968] consiste à décrire la solution solide  ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$  comme une solution régulière.

---

où  $v(p)$  représente le volume occupé par un atome qui, pour une pression comprise entre 25 et 34 atmosphères, se déduit du volume molaire :  $v(\text{cm}^{-3}) \simeq 25,3 + 0,1444 (34 - p(\text{atm.}))$ . On connaît ainsi  $E_3^B(p)$  dans le solide  ${}^4\text{He}$ .

Sur la figure IV-6b ont été reportées les valeurs de  $\mu_3(p)$  calculées par la méthode ci-dessus, et les valeurs de  $\mu_4(p)$  sur la courbe de fusion dans le cas de  ${}^4\text{He}$  solide, d'après Dugdale et Franck [1964] et Edwards et Pandorf [1965]. L'élimination de  $p$  entre (IV-37) et  $\mu_4(p)$  donne  $E_3^B(\mu_4)$  pour la dissolution de  ${}^3\text{He}$  dans le "solide". Cette fonction a été portée en trait interrompu sur la figure IV-6c, en prolongement de la même relation concernant le liquide. A la transition de phase, la discontinuité de  $E_3^B$  est de l'ordre de 1K ( $\mu_4$  vaut alors 0,52K). La valeur de  $\alpha$ , qui est liée à la pente des courbes d'après (IV-32), est également discontinue, passant de 0,16 pour le liquide (figure IV-6a) à 0,26 pour le solide.

La courbe IV-6c représente donc la relation  $E_3^B = f(\mu_4)$  cherchée.

#### IV.A.2.c - Potentiel effectif vu par un ${}^3\text{He}$ au voisinage de la paroi

Connaissant la fonction  $f$ , on peut déterminer l'énergie potentielle effective  $V_3(z)$  ressentie par un atome  ${}^3\text{He}$  au voisinage de la paroi. Il suffit de reporter dans (IV-31) les valeurs de  $V_\Delta(z)$  déterminée au chapitre III, et représentées sur la figure III-7. Le résultat  $V_3(z)$  a été reporté sur la figure IV-7. Pour les faibles valeurs de  $z$ , on sort du domaine où l'approximation consistant à décrire le film comme un fluide continu est valable.

On peut d'autre part estimer l'énergie d'adsorption effective en première couche de la façon suivante : Pour l'hélium dans les conditions de vapeur saturante,  $\tilde{\mu}_4 = -7,2\text{K}$ . La moyenne

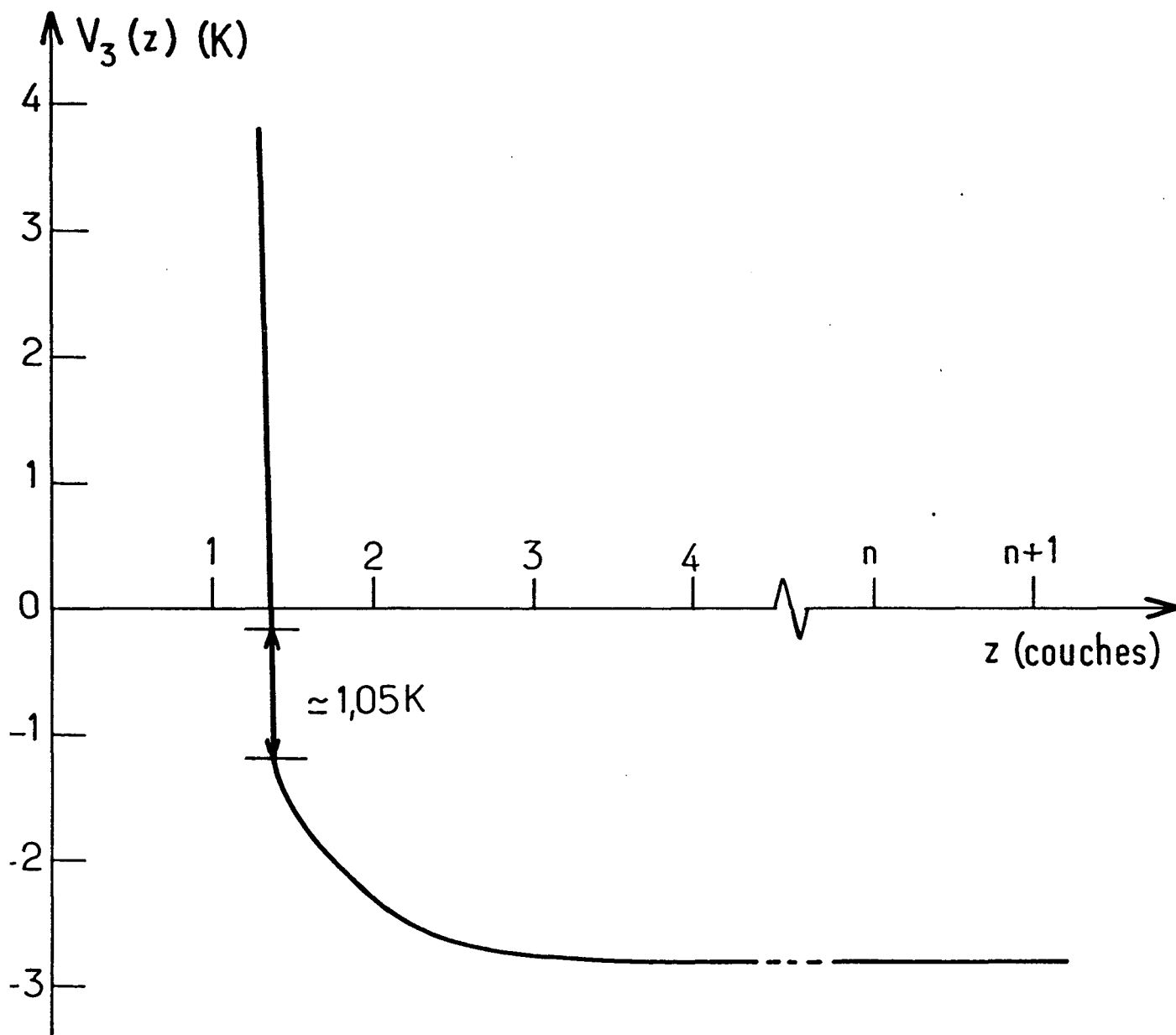


Figure IV-7 : Variations de l'énergie potentielle effective  $V_3(z)$  vue par un atome  $^3\text{He}$  dans un film  $^4\text{He}$  épais au voisinage de la paroi, calculée selon (IV-32). On retrouve sur cette courbe la discontinuité de 1K environ correspondant au passage d'un milieu massif liquide (pour  $z \geq 1,4c$ ) à un milieu massif solide ( $z < 1,4c$ ). Loin de la paroi ( $z \geq 4c$ ) on retrouve la valeur correspondant à la dilution de  $^3\text{He}$  dans le liquide  $^4\text{He}$  massif non comprimé ( $\approx -2,8K$ ).

du potentiel  $V_{\Delta}(z)$  sur l'état dans lequel sont liés les atomes de la première couche de  ${}^4\text{He}$  est de l'ordre de

$$(-23,3)^{(*)} - (-13,6)^{(*)} = -9,7\text{K}$$

Ainsi,  $\mu_4(z=1)$  vaut environ  $-(-9,7) + (-7,2) = 2,5\text{K}$ . Cela conduit localement à considérer que la phase est solide (approche tridimensionnelle) avec  $E_3^B = 10,3\text{K}$ . Pour comparer la situation d'un atome  ${}^3\text{He}$  dans cette couche à celle du gaz, il faut ajouter l'énergie potentielle moyenne supplémentaire dans l'état lié de  ${}^3\text{He}$  créé par la paroi par rapport à la situation "piégée dans  ${}^4\text{He}$  massif", soit

$$(-21,8)^{(*)} - (-12,2)^{(*)} = -9,6\text{K}.$$

L' énergie effective d'adsorption vaut donc  $0,7\text{K}$  ; cette valeur positive tend à exclure les atomes de  ${}^3\text{He}$  lorsque la température diminue.

#### IV.A.2.d - Mouvement des atomes piégés dans les premières couches

Dans la région où l'hélium-4 est un liquide comprimé, les paramètres caractérisant la dynamique des atomes dissous dépendent également de la pression dans le liquide : la masse effective est fonction croissante de  $p$ . Le coefficient de diffusion de l'hélium-3 dans l'hélium-4 sous pression a fait l'objet de mesures expérimentales [Garwin et Reich, 1959]. Toutefois, les conclusions dégagées au paragraphe précédent concernant le libre parcours moyen restent inchangées, les collisions  ${}^3\text{He}-{}^3\text{He}$  étant, à basse température, la limitation principale à la diffusion.

Dans l'hélium solide, en revanche, le mouvement est très différent. En effet, les atomes étant localisés aux noeuds d'un

---

(\*) Ces valeurs proviennent des calculs numériques effectués en déterminant l'état lié à une dimension de l'atome concerné dans le potentiel considéré, qui a été obtenu au § III.A.

---

réseau cristallin, le mouvement ne peut se faire que par échange. La fréquence d'échange dans l'hélium-3 solide -- qui donne sans doute un bon ordre de grandeur pour  $^3\text{He}$  dans  $^4\text{He}$  solide, étant donnée la similitude des réseaux -- a été déterminée à partir de l'évolution des propriétés magnétiques [Roger, 1984] et vaut environ  $10^7$  Hz. L'échange est donc rare, si on compare cette valeur aux  $3 \cdot 10^{11}$  Hz représentant la fréquence de Debye dans le solide. On remarquera, d'ailleurs, qu'un rapport de plusieurs milliers est également obtenu en comparant les coefficients de diffusion de spin d'une part dans le liquide  $^3\text{He}$  ( $7 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ ) et d'autre part dans le solide  $^3\text{He}$  (2 à  $3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  d'après Wilks [1967]). Le déplacement des atomes piégés dans le solide est donc beaucoup plus lent que celui des atomes piégés dans le liquide.

#### IV.A.3 - La limite des films minces

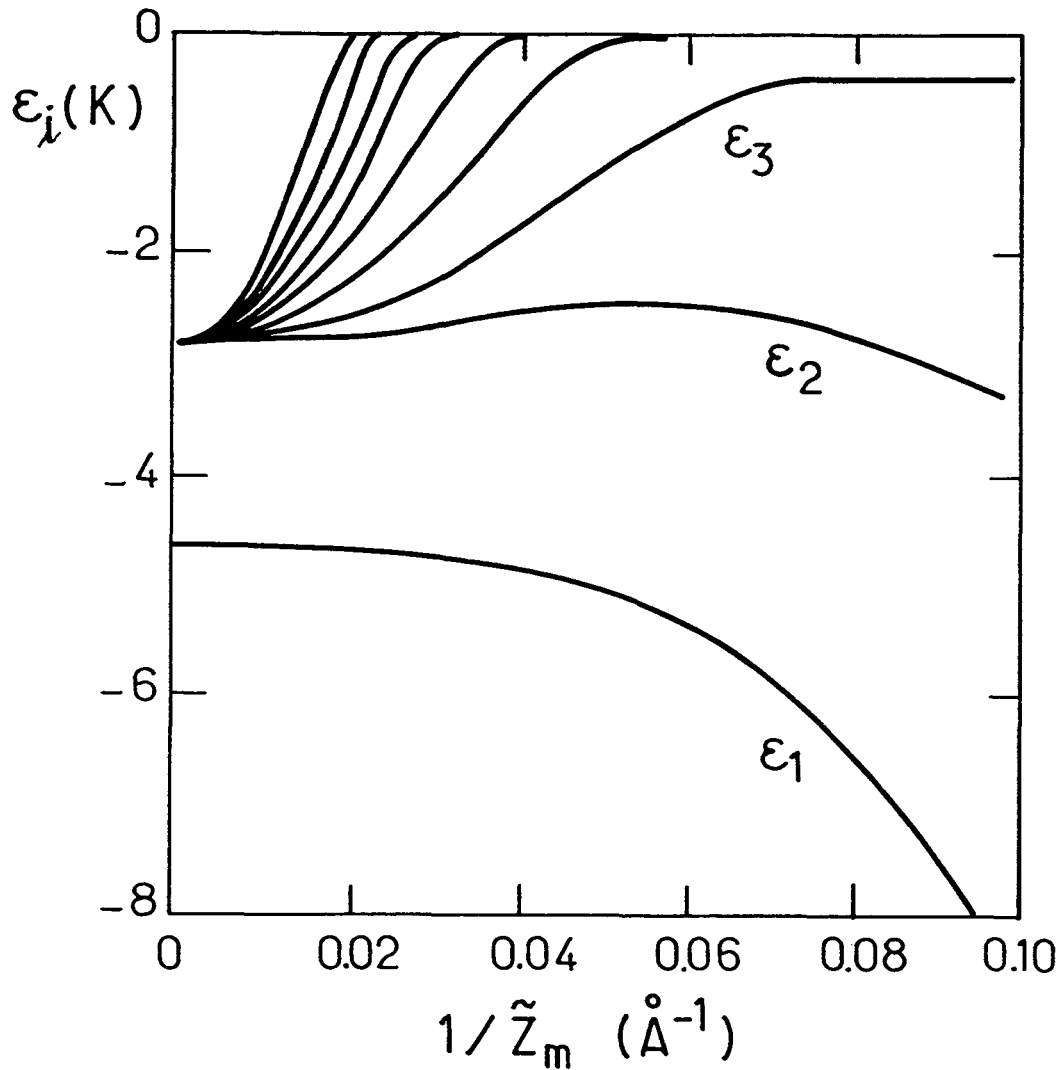
Dans le cas des films minces, la distinction entre le piégeage dans un état discret à la surface du film et le piégeage dans le continuum d'états de quasi-particule libre à l'intérieur du liquide perd toute signification : le diagramme de la figure IV-7 ne comporte plus de partie rectiligne horizontale avec  $V_3 = -2,78\text{K}$ . Gasparini et al. [1984], Sherril et Edwards [1985] ont proposé un calcul variationnel de l'énergie d'un atome d'hélium-3 dans un film mince, en étendant la théorie de Feynman au cas où existent simultanément une surface libre et une paroi fortement attractive.

##### IV.A.3.a - Energie de liaison de $^3\text{He}$

Les résultats obtenus par Sherril et Edwards [1985] sont représentés sur la figure IV-8. Le substrat considéré est un peu plus attractif que l'hydrogène moléculaire ; les caractéristiques principales des états liés de  $^3\text{He}$  sont les suivantes :

- l'état de plus basse énergie est d'autant plus lié que l'épaisseur est faible : sur le diagramme, l'énergie  $\varepsilon_1$  de cet

*Figure IV-8 : Valeurs de l'énergie des états les plus liés de  $^3\text{He}$  dans un film mince inhomogène d'hélium; l'énergie (en K) est représentée en fonction de l'inverse de l'épaisseur  $\tilde{z}_m$  qui serait celle du film si celui-ci était homogène. (d'après Sherril et Edwards [1985, Phys.Rev.B31, 1338]).*



état décroît lorsque l'épaisseur  $\tilde{z}_m$  décroît (\*). A forte épaisseur, on retrouve l'état en surface ; à faible épaisseur, on doit tendre vers l'état lié le plus profond d'un atome individuel sur le substrat nu ;

■ les états liés d'énergie élevée forment à la limite des épaisseurs fortes le continuum d'états de particule libre dans le liquide. A la limite des épaisseurs nulles, on retrouve les états liés dans le potentiel du substrat nu, qui sont en nombre fini. Ainsi, lorsque l'épaisseur diminue, la plupart des états représentant les atomes  $^3\text{He}$  dans le film disparaissent dans le continuum associé aux atomes du gaz.

Le comportement de l'état d'énergie  $\varepsilon_2$ , premier état excité dans le film, doit être examiné séparément.

■ Dans notre cas expérimental, la position du niveau  $\varepsilon_2$  dépend probablement peu de l'épaisseur ; à forte épaisseur, il se confond avec les états des atomes  $^3\text{He}$  piégés dans un film épais : l'énergie correspondante est  $-2,80\text{K}$  ; à faible épaisseur, il s'approche du premier état excité dans le puits de potentiel créé par le substrat nu : pour  $^3\text{He}$  dans le potentiel  $V_p(z)$  de (III-18), l'énergie correspondante est  $-2,7\text{K}$ . Mais, il n'est pas certain, bien entendu, que la variation de  $\varepsilon_2$  entre ces deux limites soit nécessairement monotone...

■ Dans le cas traité par Sherril et Edwards, l'énergie de cet état augmente tout d'abord lorsque l'épaisseur diminue, puis décroît aux plus faibles épaisseurs. De telles variations sont sans doute sensibles au potentiel créé par le substrat. Lorsque

---

(\*) L'épaisseur  $\tilde{z}_m$  (appelée  $D$  dans Sherril et Edwards [1985]) mesure la couverture en  $^4\text{He}$ . Ce serait l'épaisseur d'un film de densité égale à celle du liquide normal et comprenant le même nombre d'atomes que le film réel.

---



la fraction molaire de  $^3\text{He}$  sur la paroi est suffisamment importante, l'ouverture -- ou non -- de l'accès des  $^3\text{He}$  au premier état excité du film est contrôlée, à basse température, par le potentiel chimique  $\tilde{\mu}_3$  de  $^3\text{He}$  dans l'échantillon et par la valeur  $\varepsilon_2$ . Or, pour les très faibles épaisseurs, un film de mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  peut présenter une structure stratifiée [Laheurte et al., 1986] ; la fraction de  $^3\text{He}$  dans la partie du film la plus proche de la paroi présente des variations rapides avec le taux de couverture en  $^3\text{He}$ . Néanmoins, ces phénomènes ne se manifestent que pour des films plus froids et plus riches en  $^3\text{He}$  que ceux étudiés dans ce travail.

Ces valeurs de l'énergie des niveaux de  $^4\text{He}$  ont, en outre, fait l'objet d'études expérimentales récentes [Valles et al., 1986, 1987] semblant confirmer les prévisions de la figure IV-8.

#### IV.A.3.b - Etats liés de $^3\text{He}$ ; densité adsorbée

Les caractéristiques des états liés sont précisées sur la figure IV-9 : pour une valeur particulière de l'épaisseur totale, on a représenté, en fonction de la distance  $\tilde{z}$  à la paroi, d'une part la valeur du potentiel effectif vu par un atome d'hélium-3 (a), d'autre part les variations du carré de la fonction d'onde dans chacun des deux premiers états d'énergie (b).

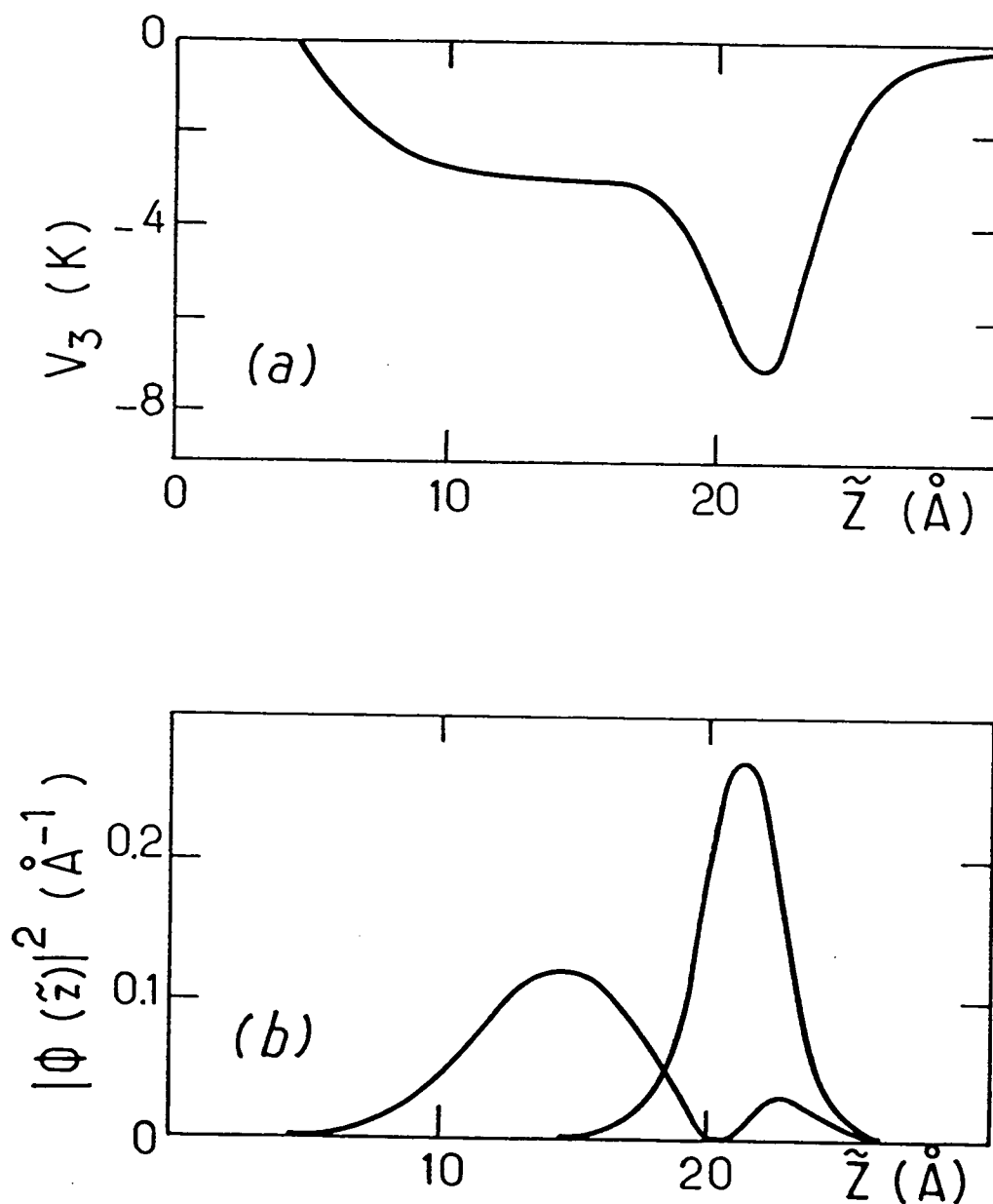
- l'état le plus lié est bien localisé principalement en surface, et bénéficie ainsi de l'attraction supplémentaire de la paroi, compte-tenu de la minceur du film ;

- le premier état excité est principalement localisé dans le film hors de la surface ; la valeur nouvelle de l'énergie correspondante résulte d'un arbitrage entre la pénétration de la fonction d'onde dans la zone moins attractive à faible  $\tilde{z}$  et l'amplitude de celle-ci dans le puits à la surface du film. Du côté des faibles  $\tilde{z}$ , la croissance avec  $\tilde{z}$  de la fonction d'onde se poursuit sur près de 10 Å.

**Figure IV-9** : Dans le cas particulier d'un film d'épaisseur 20 Å, on a représenté, en fonction de la distance  $\tilde{z}$  à la paroi :

a) le potentiel effectif  $V_3(\tilde{z})$  vu par un atome  $^3\text{He}$  ;

b) le carré de la densité de probabilité de présence normalisée pour les deux états les plus liés de ce film, dans le cas étudié par Sherril et Edwards [1985].



Les prévisions du paragraphe IV.A.1 concernant le nombre d'atomes adsorbés sur le film de  $^4\text{He}$  doivent être sensiblement modifiées, notamment dans la gamme de température pour laquelle l'adsorption est faible : comme l'énergie de piégeage à la surface est plus importante, l'adsorption est légèrement favorisée ; un point particulier supplémentaire (●) a été introduit sur la figure IV-1, en prenant, à  $T = 0,75\text{K}$ , donc pour  $e_4 = 4,7$  couches (voir figure III-10), la valeur  $\varepsilon_1$  de l'énergie extraite de la figure IV-8.

La disparition du continuum modifie également les estimations concernant le nombre d'atomes dans le film, puisqu'il n'est plus pertinent de considérer les atomes piégés ailleurs qu'à la surface comme les constituants d'un gaz parfait de quasi-particules libres à 3 dimensions.

Enfin, l'approche discutée par Sherril et Edwards exclut d'office la présence d'atomes  $^3\text{He}$  dans la ou les premières couches d'hélium-4 : le potentiel effectif  $\psi$  est pris infini. Elle n'est donc pas adaptée aux films très minces. Il est nécessaire, si l'on veut étudier ceux-ci, d'abandonner une description continue du film et de prendre en considération la structure atomique des couches de l'enduit d'hélium. C'est l'objet de la partie IV.B.

IV.B - UN ATOME $^3\text{He}$ DANS LES TOUTES PREMIERES COUCHES
---

Les descriptions usuelles d'un mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  adsorbé sur une paroi ne s'intéressent pas, en général, à la présence d'hélium-3 dans les couches immédiatement voisines de celle-ci. Néanmoins, les résultats expérimentaux sommairement décrits au § I.3 montrent qu'une modification très sensible du temps de relaxation de l'échantillon se produit dans une gamme de température pour laquelle l'épaisseur du film d'hélium-4 est *au plus* de quelques couches.

Dans les films de mélange, la présence de  $^3\text{He}$  dans *la première ou les deux premières couches*, qui sont très comprimées, est nécessairement très minoritaire [Romagnan, 1977]. L'essentiel des atomes de  $^3\text{He}$  est dans le corps du film, ou bien à la surface. De ce fait, la plupart des expériences habituelles sur les films sont peu sensibles à cette présence éventuelle. Au contraire, des atomes  $^3\text{He}$  en première couche pourraient être particulièrement affectés par la présence, à la surface du substrat, d'une impureté paramagnétique, qui serait une cause de relaxation très efficace. Dans la perspective d'élucider les phénomènes de relaxation intervenant dans nos expériences, il apparaît donc important d'examiner soigneusement la situation des  $^3\text{He}$  dans les toutes premières couches.

Or, ni les conditions d'existence de l'hélium-3 dans des films très minces, ni la façon dont ceux-ci sont exclus du voisinage immédiat de la paroi, ne sont valablement décrits par la seule approche du § IV.A. Lorsque l'éloignement de l'interface devient comparable aux distances interatomiques dans la phase condensée, il est nécessaire de prendre en compte les aspects microscopiques de la situation.

#### IV.B.1 - Description microscopique du film

Krotschek [1985] a effectué une détermination variation-

*Figure IV-10 : D'après les résultats obtenus par E. Krotschek [1985, Phys.Rev.B32, 5713] pour le potentiel  $V_p(z)$  de (III-18) :*

*a) Variations de la densité atomique de  $^4\text{He}$ , en fonction de la distance  $z$  à la paroi, pour un film comprenant au total 0,22 atomes par  $\text{Å}^2$  de surface de paroi.*

*b) Potentiel effectif  $\tilde{V}_3$  vu par un atome de  $^3\text{He}$  en présence du film précédent. En trait interrompu, on a représenté le potentiel  $V_3$  obtenu en considérant le film comme un milieu continu; les traits fins horizontaux donnent l'énergie des états les plus liés de  $^3\text{He}$  dans le potentiel  $\tilde{V}_3$ .*

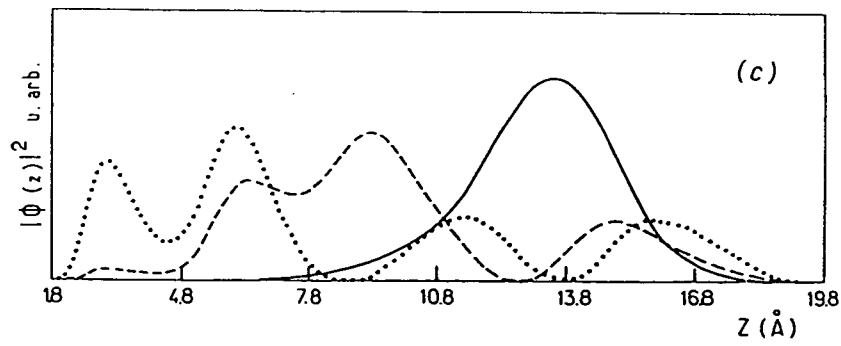
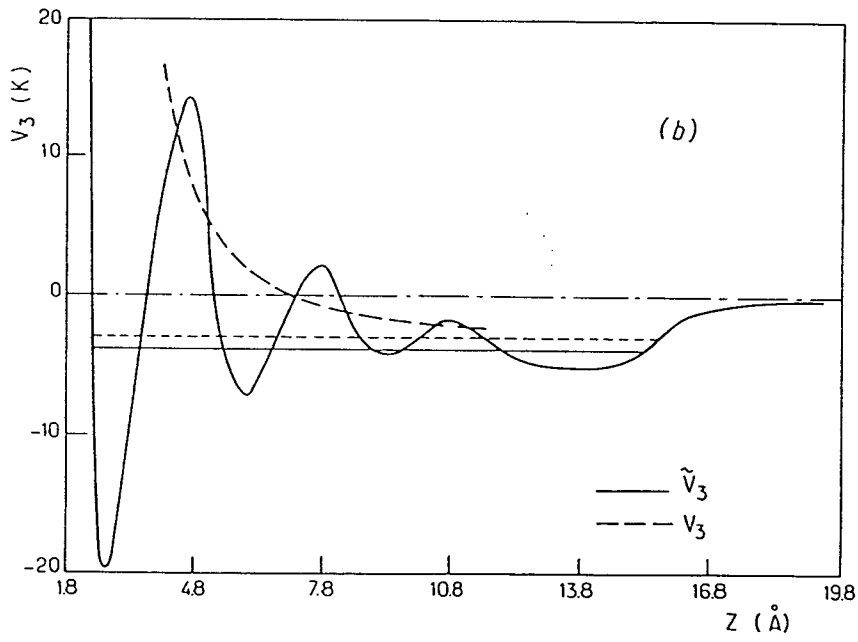
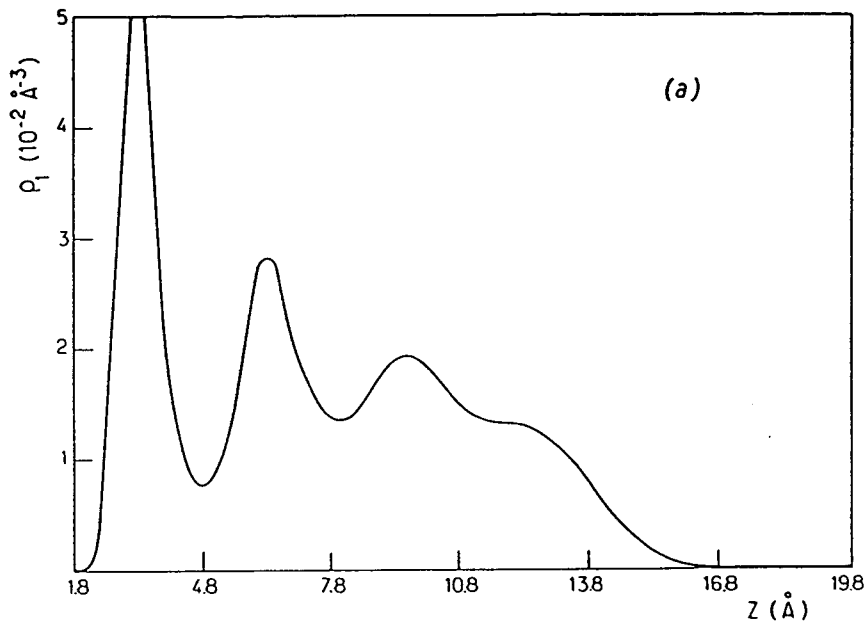
*c) Densité de probabilité de présence, au voisinage de la paroi, pour un atome  $^3\text{He}$  lié dans le film décrit sur la figure IV-10a. Les courbes en traits plein, interrompu et pointillé correspondent respectivement à l'état fondamental, au premier et au second état excité dans le potentiel  $\tilde{V}_3$ .*

nelle des caractéristiques d'équilibre d'une collection d'atomes d'hélium-4 adsorbés sur une paroi attractive plane : la description théorique employée consiste à adapter au cas d'un système placé dans un champ extérieur (\*) les méthodes d'approximations microscopiques habituelles permettant de calculer les fonctions de distribution des atomes. Dans les résultats obtenus, il apparaît nettement que la densité atomique associée à l'état fondamental du film présente des extréma successifs lorsqu'on s'éloigne de la paroi ; les maxima sont d'autant plus contrastés que l'on est proche du substrat. On peut interpréter ces variations en termes de positionnement structuré des couches atomiques successives de l'enduit. Ce résultat a d'ailleurs été évoqué au § III.B.2.c. Il est illustré sur la figure IV-10a.

---

*(\*) Les résultats extraits de l'article de Krotschek correspondent au potentiel d'interaction  $V_p(z)$  donné par (III-18), c'est-à-dire, approximativement, à la situation escomptée sur les enduits d'hydrogène minces de nos expériences.*

---



#### IV.B.1.a - Les états liés de $^3\text{He}$ dans le film

Lorsqu'une impureté -- par exemple un atome d'hélium-3 -- est placée dans ce film, le potentiel  $\tilde{V}_3$  décrivant ses interactions avec les atomes est donc également modulé lorsque la distance à la paroi varie : considéré comme une somme d'interactions de paire, il épouse les variations de la densité atomique d'hélium-4. Ainsi, la notion de couche atomique apparaît dans le potentiel ; on voit sur la figure IV.10b que  $\tilde{V}_3$  et la densité atomique d'hélium-4 varient de façon concomitante : l'impureté 3 est invitée à s'intégrer dans la structure ordonnée de l'enduit,  $\tilde{V}_3$  est minimal là où sont positionnées les couches atomiques.

On peut alors résoudre, pour l'impureté, l'équation de Schrödinger à une dimension dans  $\tilde{V}_3$ . L'allure des fonctions d'ondes associées à l'état fondamental et aux premiers états excités est illustrée sur la figure IV-10c. L'état fondamental est localisé principalement à la surface, mais s'étend jusqu'à la troisième couche. Dans le premier état excité, en revanche, la probabilité pour l'impureté d'être présente dans la seconde, de même dans la première couche, n'est pas nulle. Les énergies de ces états ont été rassemblées dans le tableau IV-1 pour différentes valeurs de la couverture atomique totale en hélium-4, donc différentes valeurs de l'épaisseur.

Qualitativement, la dépendance de  $\varepsilon_1$  et  $\varepsilon_2$  avec l'épaisseur est de même sens que celle trouvée par Sherril et Edwards [1985] (voir figure IV-8). Les comparaisons entre ces deux études ne peuvent être poussées beaucoup plus loin pour trois raisons :

- il ne s'agit pas du même substrat : les potentiels d'attraction par la paroi utilisés sont différents dans les deux cas ;
- les domaines d'épaisseur ne se recouvrent pratiquement pas ;

$d_s^4$ ( $\text{A}^{-2}$ )	0,12	0,14	0,16	0,18	0,20	0,22	$\infty$ (valeurs expérimentales)
$\mu_4$ [Krotschek] (K)	-7,21	-6,57	-6,32	-5,91	-5,68	-5,51	-7,21
$\varepsilon_1$ [ $=\mu_4 + \varepsilon_1$ ] (K)	-5,28	-4,86	-4,66	-4,29	-4,12	-3,96	-5,00
$\varepsilon_2$ [ $=\mu_4 + \varepsilon_2$ ] (K)	-3,15	-2,91	-2,76	-2,53	-2,44	-2,34	(*)

Tableau IV-1 : Energie des deux états les plus liés d'un atome  $^3\text{He}$  dans un film mince  $^4\text{He}$  d'épaisseur variable, selon Krotschek [1985] ; l'épaisseur est exprimée en nombre total d'atomes dans le film par unité de surface de paroi, soit  $d_s^4$ . L'origine des énergies a été ramenée, pour faciliter la comparaison avec les résultats antérieurement décrits, à la valeur de  $\tilde{V}_3$  ressentie par un atome infiniment éloigné de la paroi.  $\mu_4$  est le potentiel chimique de  $^4\text{He}$  dans le film, calculé par Krotschek. Les notations entre crochets font explicitement référence aux notations de son article *Phys.Rev.B32*, 5713 [1985].

(\*) Krotschek indique qu'il ressort de ses calculs que ce n'est pas le premier, mais le deuxième état excité dans le film qui tend, à épaisseur élevée, à devenir analogue à l'état à  $-2,79\text{K}$  de  $^3\text{He}$  dans le liquide massif.

■ l'approximation de calcul utilisée par Krotschek [1985], dite HNC (\*\*), rend mal compte des propriétés de  $^4\text{He}$  pur : dans le

---

(\*\*) L'approximation HNC (Hyper-Netted-Chain) est l'une des trois méthodes approchées les plus utilisées pour obtenir une équation simple liant la fonction de distribution à deux corps et le potentiel d'interaction de paire, dans l'étude des fluides homogènes denses. L'une de ses spécificités est de prendre en compte une partie des termes d'ordre élevé en puissances de la densité (voir par exemple Goodstein [1975]).

---



tableau IV-1, on attendrait, pour le potentiel chimique de  ${}^4\text{He}$  pur, la valeur  $-7,2K$  pour les grandes valeurs de l'épaisseur au lieu de la valeur de l'ordre de  $-5,2K$  obtenue par Krotschek. Les valeurs numériques des énergies du tableau ne sont donc pas directement utilisables dans une comparaison à l'expérience.

En fait, Krotschek a calculé l'écart des états d'énergie de  ${}^3\text{He}$  par rapport à  $\mu_4$  ; on pourrait penser que l'erreur sur cet écart est moins important que sur la valeur absolue des énergies. Toutefois il faut noter que, dans l'état d'énergie  $\varepsilon_1$  la plus basse d'une part, et dans les états excités d'autre part,  ${}^3\text{He}$  est dans des situations très différentes vis-à-vis du film. Il est donc vraisemblable qu'une description insuffisante du liquide  ${}^4\text{He}$  affecte ces états de façon différente, de sorte que toute tentative de combinaison ou d'extrapolation établies à la fois sur les calculs théoriques des énergies et les valeurs expérimentales de certains paramètres serait critiquable. Nous nous contenterons donc de mentionner et d'interpréter les résultats non altérés de E. Krotschek. Les considérations quantitatives qui suivent, notamment les valeurs obtenues au tableau IV-2, doivent être examinées en conservant à l'esprit l'importante réserve qui vient d'être formulée.

On peut également chercher à comparer les potentiels. Sur la figure IV-10b a été portée en trait interrompu la valeur du potentiel effectif  $V_3$  "au sens d'Edwards", calculée en considérant le film comme un fluide décrit par des variables intensives locales, à partir de l'équation (III-19) :

$$V_{\Delta}(z) + \mu_4(z) = \tilde{\mu}_4 \quad (\text{IV-39})$$

et des résultats de IV.A donnant  $E_3^B(\mu_4)$ . On constate que  $V_3$  apparaît comme une moyenne de  $\tilde{V}_3$ .

#### IV.B.1.b - La situation des atomes adsorbés

La figure IV-10c montre clairement que définir la position d'un atome d'hélium-3 dans le film n'a pas grand sens. En revanche, on peut définir la densité atomique  $N_3(z)$  à la distance  $z$  de la paroi : c'est le produit du nombre total  $N_3^T$  d'atomes d'hélium-3 par la probabilité de présence d'un atome à la distance  $z$  de la paroi ; ce dernier facteur tient compte, d'une part de la probabilité de présence en  $z$  lorsque l'atome est dans un état donné, d'autre part de la distribution de la population des atomes à l'équilibre à la température  $T$ , soit :

$$\frac{N_3(z)}{N_3^T} = \sum_{\text{états } n} \exp \left[ - \frac{(E_n - \tilde{\mu}_3)}{k_B T} \right] |\phi_n(z)|^2 \quad (\text{IV-40})$$

$\tilde{\mu}_3$  représente le potentiel chimique de  $^3\text{He}$  dans la cellule. La somme (IV-40) doit bien entendu comprendre tous les états du continuum correspondant aux atomes du gaz dont la fonction d'onde dans certaines parties du film n'est pas uniformément nulle. Le tableau IV-2 regroupe les résultats obtenus pour  $N_3(z)$ , pour quatre valeurs particulières de  $z$ . Nous avons déterminé ces valeurs à partir de la figure IV-10c, en tenant compte, dans le film, des fonctions d'onde des trois états liés trouvés par Krotschek [1985], et en assimilant la contribution du continuum à une distribution uniforme à l'intérieur du film. La valeur retenue pour l'énergie du deuxième niveau excité est  $-1,26\text{K}$ . Les positions particulières retenues coïncident avec les minima du potentiel effectif  $\tilde{V}_3(z)$  : elles correspondent aux positions des couches successives du film de  $^4\text{He}$ , et à l'état de surface. Les valeurs choisies pour la température couvrent notre gamme de mesures expérimentales, soit  $1,4\text{K}^{-1}$  et  $2,0\text{K}^{-1}$ . La couverture en  $^4\text{He}$  de la paroi, telle que la définit Krotschek, reste invariante dans notre calcul : il s'agit donc de valeurs obtenues "à film  $^4\text{He}$  invariant". De même, par hypothèse, le nombre total d'atomes

$z$	$N_3$	$N_3$	$\Delta E$
(Å)	$T = 0,714\text{K}$	$T = 0,5\text{K}$	(K)
2,8	1 (arb.)	1,5	-0,7
5,9	3,9	8,4	-1,3
9,2	7,0	24	-2,1
13,3	62	390	-3,1

*Tableau IV-2 : Variations avec la température du nombre  $N_3$  d'atomes  $^3\text{He}$  adsorbés dans un film  $^4\text{He}$  de couverture  $d_s^4 = 0,22 \text{ \AA}^{-2}$  (supposé invariant), pour différentes valeurs de la position dans le film; celles-ci correspondent grossièrement au piégeage dans les couches successives de  $^4\text{He}$ .  $N_3$  est exprimé en unités relatives. La valeur  $\Delta E$  calculée joue le rôle d'une énergie effective d'adsorption à la cote  $z$ .*

de  $^3\text{He}$  dans la cellule,  $N_3^T$ , reste inchangé entre  $1,4\text{K}^{-1}$  et  $2,0\text{K}^{-1}$ . Partant  $\left(\tilde{\mu}_3/k_B T\right)$ , déterminé par la densité en phase gazeuse, varie lentement avec  $T$  dans (IV-40).

La valeur de  $N_3$  obtenue est, à température fixée, une fonction rapidement croissante de  $z$  : les zones proches de la paroi ne sont pas favorisées. Néanmoins, on constate que pour chacune des valeurs de  $z$  choisies,  $N_3$  croît lorsque  $T$  diminue : de plus en plus d'atomes sont adsorbés, même dans les états excités. L'opposé de la valeur ( $\Delta E$ ) indiquée représente la pente moyenne de la variation de  $\ln(N_3)$  avec  $1/T$ .  $\Delta E$  joue le rôle d'une énergie effective d'adsorption à la cote  $z$ . Pour  $z = 13,3 \text{ \AA}$ , on s'approche de l'énergie d'adsorption à la surface d'un film épais, qui vaut  $-3,9\text{K}$  dans la description théorique de Krottschek.  $\Delta E$  est de plus en plus faible quand  $z$  diminue : on atteint  $1\text{K}$  vers  $2.8 \text{ \AA}$ . (Rappelons cependant que Krottschek décrit mal  $^4\text{He}$  pur, de sorte que ces valeurs absolues sont assez peu fiables).

Les résultats quantitatifs exposés ici permettent néanmoins de comprendre, qualitativement, que la présence d'"impuretés" de  $^3\text{He}$  dans les toutes premières couches du film, très près de la paroi, n'est pas totalement interdite par l'effet d'adsorption préférentielle évoqué au début de ce chapitre. La proportion d'atomes concernés par un séjour ou un piégeage dans les premières couches peut même croître, lorsque  $T$  diminue.

Ainsi, les approches de Krotschek (§ IV.B.1) et de Sherril et Edwards (§ IV.A.3) doivent être considérées comme complémentaires.

#### IV.B.2 - Un atome $^3\text{He}$ dans une monocouche $^4\text{He}$

Pour un film d'une à deux couches d'épaisseur, une approche bidimensionnelle peut être envisagée :  $^3\text{He}$  est supposé dissous dans un système à deux dimensions homogène, la monocouche de  $^4\text{He}$ .

##### IV.B.2.a - Calcul de $E_3^{2D}$ comme une fonction de $\mu_4^{2D}$

Soit une monocouche de  $^4\text{He}$ , supposée libre de toute interaction avec l'extérieur, de densité surfacique  $d_s$ , de potentiel chimique  $\mu_4^{2D}$ . Ses propriétés ont fait l'objet d'études théoriques et expérimentales que nous avons rappelées au chapitre III ; en particulier, Liu et al. [1976] ont, par un calcul microscopique variationnel, décrit les caractéristiques de la transition de phase liquide-solide dans une telle monocouche.

Il est possible d'utiliser les résultats de la simulation numérique effectuée par ces auteurs pour prédire le comportement, au sein d'un tel système, d'un atome d'hélium-3 unique. En effet, l'argument perturbatif de Baym [1966] pour calculer l'énergie  $E_3$ , que nous avons exposé au § IV.A, vaut également lorsque les mouvements de l'impureté sont limités à un plan. Soit  $T_4^{2D}$  l'éner-

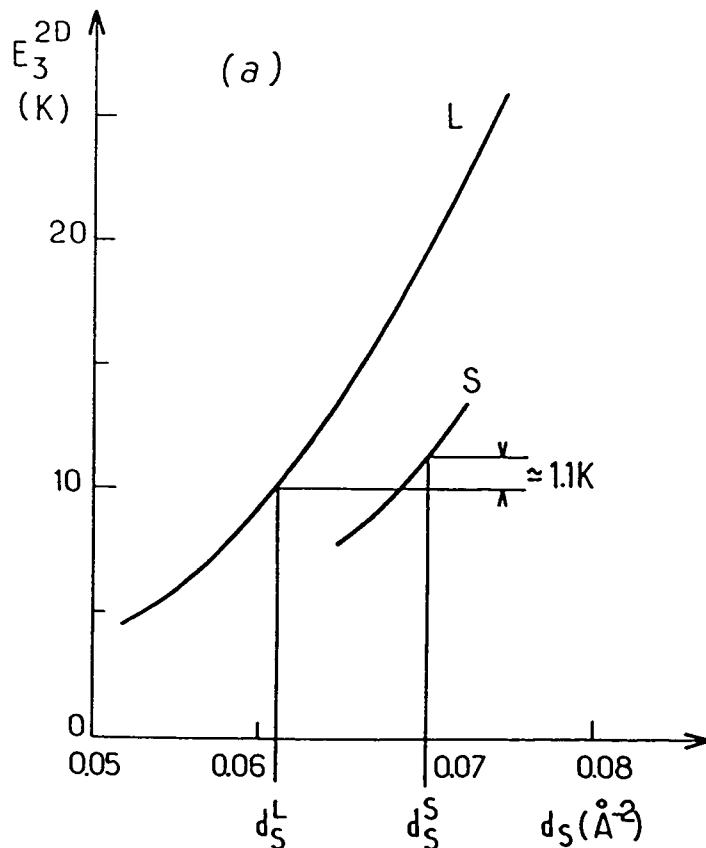
gie cinétique d'un atome d'hélium-4 de la monocouche dans l'état d'équilibre, à  $T = 0$ . Le potentiel chimique  $\mu_4^{2D}$  est obtenu à partir des variations de l'énergie par atome  $E_4^{2D}/N_4$  à l'aide de la relation :

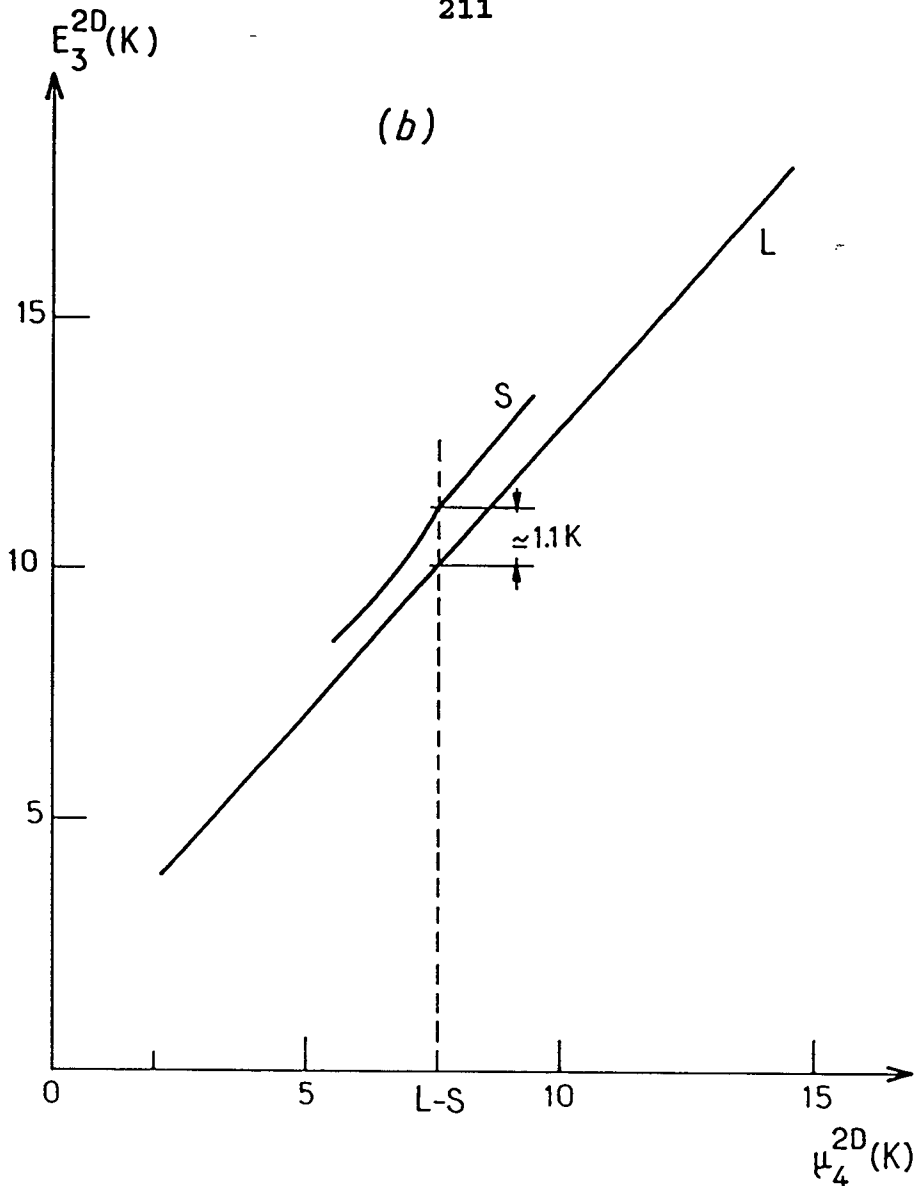
$$\mu_4^{2D} = \frac{E_4^{2D}}{N_4} + d_s \frac{\partial}{\partial d_s} \left( \frac{E_4^{2D}}{N_4} \right) \quad (\text{IV-41})$$

L'approche de Baym revient à écrire :

$$E_3^{2D} = \frac{T_4^{2D}}{3} + \mu_4^{2D} \quad (\text{IV-42})$$

où  $\mu_4^{2D}$ , calculé par (IV-41), a été représenté au chapitre III (figure III-8b) en fonction de  $d_s$  dans les cas "liquide" et "solide". On calcule alors  $E_3^{2D}$  en fonction de  $d_s$  (figure IV-11a), puis de  $\mu_4^{2D}$  (figure IV-11b). Les deux courbes " $E_3^{2D}$  fonction de  $\mu_4^{2D}$ "





**Figure IV-11** : Situation d'un atome  $^3\text{He}$  au sein d'une monocouche plane de  $^4\text{He}$  :

a) Energie  $E_3^{2D}$  de l'atome  $^3\text{He}$  en fonction de la densité  $d_s$  à deux dimensions de la monocouche de  $^4\text{He}$ , dans l'état liquide (L) ou solide (S). Les densités  $d_s^L$  et  $d_s^S$  correspondent à la transition liquide-solide pour la monocouche  $^4\text{He}$ .

b) Energie  $E_3^{2D}$  en fonction du potentiel chimique  $\mu_4^{2D}$  de  $^4\text{He}$  dans la monocouche. Au moment de la transition liquide-solide,  $E_3^{2D}$  subit une discontinuité de l'ordre de 1K.

pour le liquide et le solide peuvent être rapprochées de celles obtenues au § IV.A.3 pour un système tridimensionnel ; la pente moyenne est de 1,11 pour le liquide, 1,23 pour le solide : l'effet d'exclusion volumique semble donc plus faible. Il existe d'autre part au passage liquide-solide une discontinuité du même type et du même ordre de grandeur ( $\approx 1K$ ). Une approximation simple de ces courbes s'écrit :

$$E_3^{2D}(\text{liq}) = 1,8 + 1,11 \mu_4^{2D} \quad (\text{IV-43a})$$

$$E_3^{2D}(\text{sol}) = 1,8 + 1,23 \mu_4^{2D} \quad (\text{IV-43b})$$

#### IV.B.2.b - Application à une monocouche piégée sur l'hydrogène

Déterminons  $E_3$  pour un atome  $^3\text{He}$  situé par hypothèse dans la première couche du film d'hélium-4 épais adsorbé sur l'hydrogène. Chaque atome  $^4\text{He}$  est piégé dans un état d'énergie  $-16,8K$  (\*), compte tenu de l'effet du substrat sous-jacent. Si  $\tilde{\mu}_4$  est le potentiel chimique de  $^4\text{He}$  dans la cellule, l'état de la monocouche est défini par  $\mu_4^{2D} = \tilde{\mu}_4 - (-16,8)$ . L'atome de  $^3\text{He}$ , quant à lui, est lié selon Oz dans un état d'énergie  $-14,8K$  (\*) et son énergie vaut, avec (IV-43) :

$$E_3 = -14,8 + 1,8 + \begin{matrix} \nearrow 1,11 \searrow \\ \searrow 1,23 \nearrow \end{matrix} \left( \tilde{\mu}_4 + 16,8 \right) \quad (\text{IV-44})$$

On peut utiliser cette expression de  $E_3$  dans la partie "haute température" des courbes de condensation du film de  $^4\text{He}$  du chapitre III.  $E_3$  est une fonction croissante de  $\tilde{\mu}_4$ , donc de  $1/T$ . Elle atteint sa valeur maximale lorsque  $\tilde{\mu}_4$  ne varie plus et que

---

(\*) Cette valeur a été calculée en résolvant l'équation de Schrödinger à une dimension associée au potentiel  $V_p(z)$  donné par (III-18).

---

la vapeur est devenue saturante. La valeur de  $E_3$  lorsqu'on rencontre la courbe de rosée vaudrait  $-1,2K$ . Mais, on ne peut plus considérer alors que  $^3He$  est dans une monocouche, puisque le film s'épaissit. Cette valeur  $-1,2K$  représente toutefois un minimum pour l'énergie d'un atome  $^3He$  dans la première couche d'un film épais, puisqu'il faudrait ajouter l'effet de la compression par les couches supérieures dans la direction  $z$ .

Ainsi, entre l'approche tridimensionnelle de IV.A.2.c et l'approche bidimensionnelle présentée ici, les estimations de l'énergie effective d'un atome de  $^3He$  dans la première couche du film de  $^4He$  sur un substrat d'hydrogène se situent entre  $0,7K$  et  $-1,2K$ .  $^3He$  n'est donc pas "fortement" exclu de la première couche du film d'hélium.

#### IV.B.3 - Piégeage dans des sites privilégiés situés à une interface

##### IV.B.3.a - Expériences antérieures suggérant l'existence de ces sites

L'existence de sites privilégiés d'adsorption pour  $^3He$  à une interface a déjà été évoquée récemment pour tenter d'expliquer des résultats expérimentaux variés. Nous passons en revue ces résultats, car de tels sites pourraient également jouer un rôle important dans nos expériences.

- Dans l'hélium-4 liquide, Dingus et al. [1985] ont obtenu des variations des coefficients de transport, lorsqu'on introduit une faible fraction d'hélium-3, qui s'écartent des prédictions habituelles ; ces auteurs suggèrent un éventuel piégeage de quelques atomes  $^3He$  à l'interface entre l'hélium liquide et le substrat utilisé, en l'occurrence du cuivre. Ce piégeage pourrait provoquer une variation importante de la résistance de Kapitza avec la fraction molaire d'hélium-3 en solution.

- En étudiant le couplage magnétique entre des atomes d'hélium-3 et les atomes de fluor de billes de fluorocarbone, Schuhl et Chapellier [1986] ont observé une diminution importante de



celui-ci lorsque des atomes d'hélium-4, préférentiellement adsorbés sur le substrat, sont ajoutés au mélange. Néanmoins, à très basse température, les résultats de Schuhl [1986] suggèrent que de rares atomes d'hélium-3, éventuellement fortement piégés au voisinage de l'interface ou dans la première couche -- solide -- d'hélium-4, peuvent jouer un rôle primordial dans le processus de couplage.

■ Enfin, des mesures de chaleur spécifique de mélanges dilués  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ , placés en géométrie confinée, ont été faites par Hébral et al. [1981]. Les résultats obtenus s'écartent de près de 30% des prévisions des modèles habituels pour les solutions diluées. Castaing et al. [1982] ont suggéré, pour expliquer ces résultats, l'existence d'une couche d'hélium-3 piégée à l'interface liquide-solide dans l'hélium-4. Cette hypothèse peut aussi être confortée par les résultats de Landau et al. [1980] pour la croissance cristalline de  $^4\text{He}$  : la croissance lisse semble favorisée par la présence de quelques atomes d'hélium-3. Une estimation de l'énergie de liaison supplémentaire pour un  $^3\text{He}$  dans ces sites a été effectuée par Castaing et al. [1982] pour rendre compte des résultats évoqués. Ces auteurs obtiennent -1,5K par rapport à un  $^3\text{He}$  dans le liquide  $^4\text{He}$  à 25 bars et une densité de sites proche de  $10^{19}\text{m}^{-2}$  (soit approximativement la densité d'un plan cristallin d'hélium), ce qui semble une valeur élevée.

Dans ce qui précède, il n'est pas évident que les sites puissent exister indépendamment de la présence de  $^4\text{He}$ . Néanmoins, nous allons faire une telle hypothèse, afin d'en voir les conséquences. De tels sites pourraient alors -- pour fixer les idées -- correspondre à des défauts à la surface de l'hydrogène solide, du type "lacune" lorsqu'il manque une molécule, ou "coin de marche" localisé en un endroit non lisse du solide. Notre étude porte sur la compétition entre  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  pour l'adsorption à basse température dans ces sites privilégiés.

#### IV.B.3.b - Compétition entre atomes sur des sites localisés

Lorsque des atomes sans spin sont adsorbés sur des sites localisés, la relation (III-21) n'est plus valable : le potentiel

chimique  $\hat{\mu}$  dans la phase adsorbée s'écrit sous la forme [Dash, 1975] :

$$\hat{\mu} = \hat{E} + k_B T \text{Ln} \left( \frac{\hat{N}}{n_s S} \right) \quad (\text{IV-45})$$

où  $\hat{E}$  représente l'énergie d'un atome dans un site,  $\hat{N}$  le nombre de sites occupés et  $n_s . S$  le nombre total de sites présents sur la surface  $S$ .

Néanmoins, l'expression (IV-45) doit être modifiée lorsque différents types d'individus entrent en compétition pour l'occupation de sites. Il faut de plus tenir compte de la dégénérescence de spin lorsque  $^3\text{He}$  intervient.

Notons  $N_\nu$  le nombre de sites occupés par des atomes de l'espèce  $\nu$ , ayant chacun dans le site l'énergie  $\hat{E}_\nu$ . Soit  $\mu_\nu$  le potentiel chimique de l'espèce  $\nu$  dans la phase en équilibre avec l'ensemble des atomes adsorbés dans les sites. Cette phase joue le rôle d'un réservoir d'atomes  $\nu$  pour le remplissage des sites. Un calcul thermodynamique simple conduit aux résultats suivants (voir Appendice C) :

$$\frac{\hat{N}_3}{N_s} = \frac{2 \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_3 + \mu_3\right)\right)}{1 + 2 \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_3 + \mu_3\right)\right) + \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_4 + \mu_4\right)\right)} \quad (\text{IV-46a})$$

$$\frac{\hat{N}_4}{N_s} = \frac{\exp\left(\beta\left(-\hat{E}_4 + \mu_4\right)\right)}{1 + \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_4 + \mu_4\right)\right) + 2 \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_3 + \mu_3\right)\right)} \quad (\text{IV-46b})$$

Le nombre de sites "vides"  $\hat{N}_\nu$  est lié au nombre total des sites

$N_s$  par :

$$\hat{N}_v = N_s \left( 1 - \frac{\hat{N}_3}{N_s} - \frac{\hat{N}_4}{N_s} \right) \quad (\text{IV-46c})$$

Les relations (IV-46) dépendent de la température par l'intermédiaire du facteur exponentiel  $\beta = 1/k_B T$ .  $\hat{E}_3$  et  $\hat{E}_4$  ne dépendent a priori pas de  $T$ . Quel que soit le type de site, puisque la masse de  $^3\text{He}$  est plus faible, on a en général l'inégalité :

$$\hat{E}_4 < \hat{E}_3 < 0 \quad (\text{IV-47})$$

En fait, l'utilisation de cellules scellées provoque également dans nos expériences une variation des  $\mu_v$  avec la température. Supposons que le réservoir d'atomes utilisé pour permettre l'occupation des sites est la phase gazeuse.  $\mu_3$ ,  $\mu_4$  sont donnés par la relation (IV-8) :

$$\mu_3 = \tilde{\mu}_3 = \beta^{-1} \text{Ln} \left( \frac{N_3^G}{2V} \lambda_3^3 \right) \quad (\text{IV-48a})$$

$$\mu_4 = \tilde{\mu}_4 = \beta^{-1} \text{Ln} \left( \frac{N_4^G}{V} \lambda_4^3 \right) \quad (\text{IV-48b})$$

Le nombre d'atomes en phase gazeuse  $N_4^G$  est approximativement constant, tant qu'il n'y a pas de liquéfaction : une couche complète de sites (généralement moins de 3% de la population d'une espèce dans la cellule) est au maximum occupée. Au cours du refroidissement effectué à nombre d'atomes constant,  $\tilde{\mu}_3$  et  $\tilde{\mu}_4$  augmentent régulièrement. Plus précisément, on a :

$$\left( \tilde{\mu}_4 - \tilde{\mu}_3 \right) \beta = \text{Ln} \left( 2 \frac{N_4^G}{N_3^G} \right) - 0,43 = \text{Ln} \left( \frac{N_4^G}{N_3^G} \right) + 0,26 \quad (\text{IV-49})$$

quantité à peu près indépendante de T. On en déduit avec (IV-46) que

$$\frac{\hat{N}_3}{\hat{N}_4} \simeq 2 \exp\left(\beta\left(\tilde{\mu}_3 - \tilde{\mu}_4\right)\right) \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_3 + \hat{E}_4\right)\right) \quad (\text{IV-50})$$

est, compte tenu de l'inégalité (IV-47), une fonction décroissante de  $\beta$  : l'effet d'adsorption préférentielle de l'hélium-4 [Thompson, 1978] aux dépens de l'hélium-3 se manifeste lorsque T diminue. A température suffisamment basse cependant, l'hélium-4 devient saturant et  $\tilde{\mu}_4$ , constant, vaut  $\mu_4^L \cdot v \cdot = -7,2\text{K}$  ; (IV-49) devient :

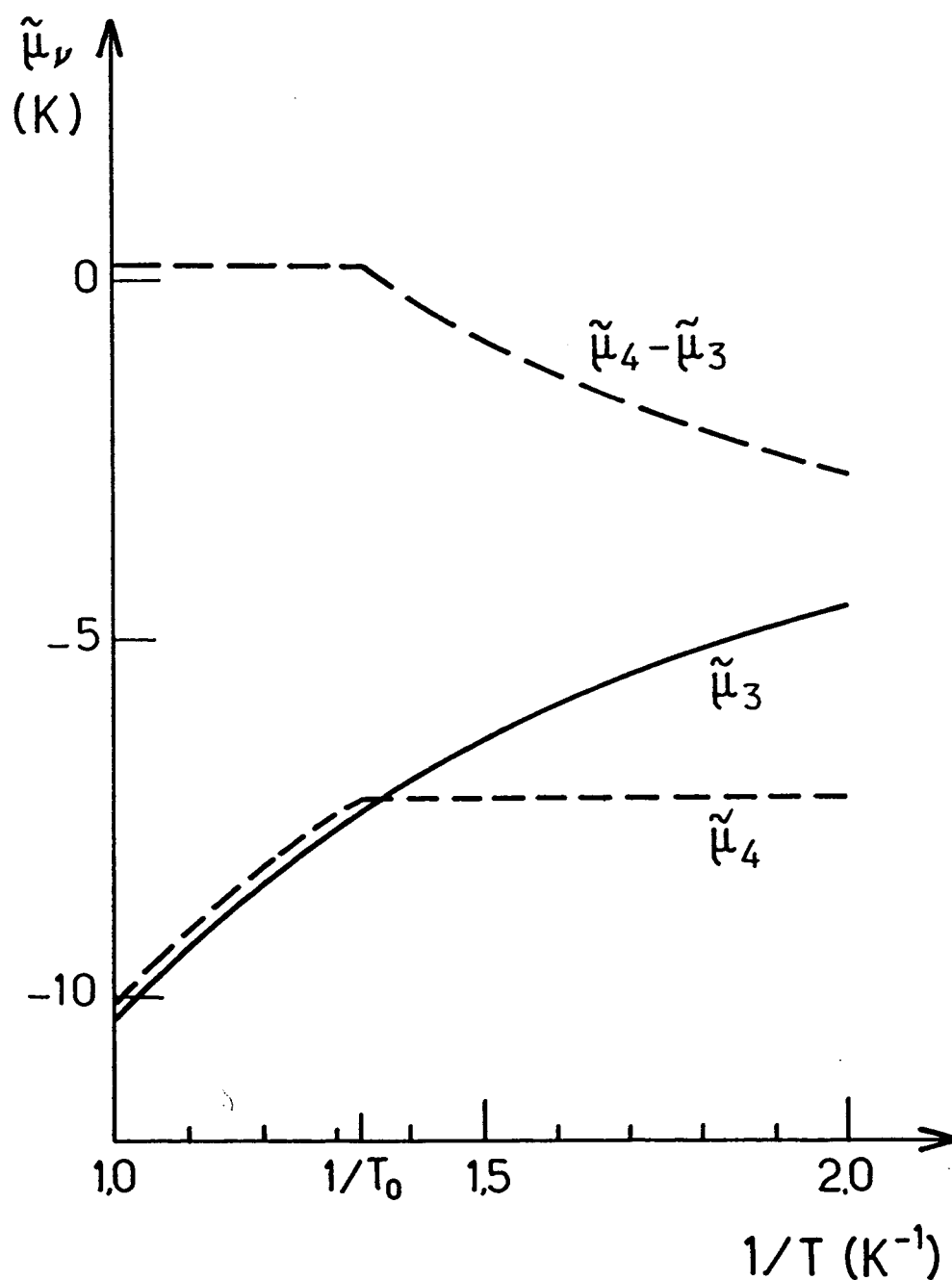
$$\frac{\hat{N}_3}{\hat{N}_4} \simeq \exp\left(\beta\left(\hat{E}_4 - \hat{E}_3 - \mu_4^L \cdot v \cdot\right)\right) \frac{N_3^G \lambda_3^3}{V} \quad (\text{IV-51})$$

$N_3^G$  reste jusqu'à 0,5K à peu près constant; le rapport  $\frac{\hat{N}_3}{\hat{N}_4}$  dépend donc exponentiellement de 1/T en première approximation. Le terme jouant le rôle d'énergie d'activation n'est cependant pas nécessairement négatif ! En-dessous du point de rosée pour l'hélium-4, le mécanisme d'adsorption préférentielle est donc profondément modifié.

Les variations numériques de  $\tilde{\mu}_3$ ,  $\tilde{\mu}_4$ , et de la différence  $(\tilde{\mu}_4 - \tilde{\mu}_3)$  ont été représentées sur la figure IV-12 dans le cas particulier  $p_4 = p_3 = 2$  torr à 300K.

Lorsque les sites d'adsorption sont suffisamment liants, il est possible de préciser cette approche. En effet on peut supposer que, en-dessous de 1K, les inégalités (IV-52) sont

Figure IV-12 : Variation des potentiels chimiques  $\tilde{\mu}_\nu$  dans la cellule en fonction de  $1/T$ , dans le cas particulier  $p_3 = p_4 = 2$  torr à 300K. On a également représenté la différence  $\tilde{\mu}_4 - \tilde{\mu}_3$ , qui devient négative dans la cellule considérée en deçà d'une température légèrement inférieure au point de rosée.



vérifiées :

$$\exp\left[\beta\left(-\hat{E}_4 + \tilde{\mu}_4\right)\right] \gg 1 \quad (\text{IV-52a})$$

$$\exp\left[\beta\left(-\hat{E}_4 + \tilde{\mu}_4\right)\right] \gg \exp\left[\beta\left(-\hat{E}_3 + \tilde{\mu}_3\right)\right] \quad (\text{IV-52b})$$

Presque tous les sites sont alors occupés par des atomes  ${}^4\text{He}$  ;  $\hat{N}_4 \simeq N_s$  ; (IV-46a) et (IV-50) donnent la fraction des sites occupés par un atome d'hélium-3. Une manipulation algébrique simple de (IV-46a) donne la relation suivante, analogue à (IV-45) :

$$\tilde{\mu}_3 = \left(-\hat{E}_4 + \hat{E}_3 + \tilde{\mu}_4\right) + k_B T \text{Ln} \left(\frac{\hat{N}_3}{2N_s}\right) \quad (\text{IV-53})$$

Le deuxième terme du second membre est le potentiel chimique de  $\hat{N}_3$  atomes libres se distribuant sans considération énergétique sur  $N_s$  sites vacants identiques. Le premier membre représente le potentiel chimique du réservoir gazeux d'atomes. Le premier terme du second membre joue donc le rôle d'une énergie effective pour chaque atome d'hélium-3 piégé dans un site, compte tenu de la présence d'atomes concurrents d'hélium-4. On peut donc écrire :

$$E_3^{\text{effective}} = \left(-\hat{E}_4 + \hat{E}_3\right) + \tilde{\mu}_4 \quad (\text{IV-54})$$

$E_3^{\text{effective}}$  joue le rôle de l'énergie effective  $E_3$  définie dans l'introduction de ce chapitre.

La relation (IV-54) est analogue aux relations extrapolées à partir des figures IV-6c et IV-11b pour les phases denses d'hélium-4 à trois et deux dimensions. Elle traduit en termes d'énergie effective la compétition 3-4 sur des sites. On remarque en particulier que, dans la relation univoque entre un occupant  ${}^4\text{He}$  du site et un occupant  ${}^3\text{He}$  éventuel, la pente de la courbe  $(E_3, \mu_4)$  est 1. En d'autres termes, le facteur volumique  $\alpha$  introduit au § IV.A.2.b doit -- c'est bien naturel -- être pris égal à 0 lorsqu'on décrit la compétition entre atomes pour l'adsorption sur des sites indépendants.

IV.C - RECAPITULATIF
----------------------

Sur la figure IV-13, nous avons regroupé l'ensemble des estimations numériques concernant les atomes d'hélium-3 au voisinage de la paroi qui peuvent être faites à partir des considérations exposées dans ce chapitre. En particulier, la valeur de la différence  $\hat{E}_3 - \hat{E}_4$  arbitrairement retenue est 3,5K. C'est le double de la différence d'énergie d'adsorption individuelle sur l'hydrogène d'un  $^3\text{He}$  et d'un  $^4\text{He}$ , telle qu'elle est calculée par Pierre et al. [1985]. Un tel "doublement" du résultat numérique peut être justifié qualitativement lorsqu'il s'agit d'un site d'adsorption consécutif à un coin de marche, une lacune, etc...

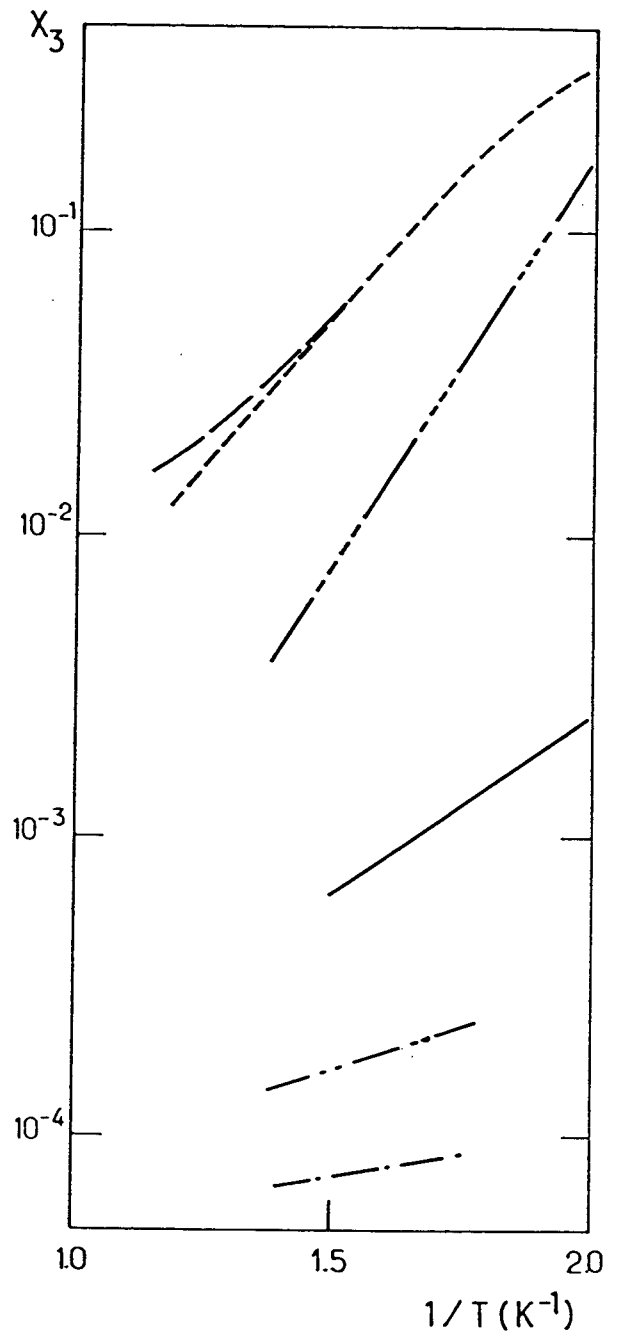
L'application numérique présentée sur la figure IV-13 correspond à un échantillon où  $p_3 = p_4 = 2$  torr à 300K. Les résultats obtenus tant par l'approche macroscopique en termes de liquide massif (§ IV.A) que par l'approche microscopique (§ IV.B) ont été représentés sous la forme homogène d'une "densité d'atomes d'hélium-3 à deux dimensions" exprimée en fraction de monocouche complète de densité  $0,063 \text{ \AA}^{-2}$ .

*Figure IV-13 : Quantité de  $^3\text{He}$  adsorbée dans le film de  $^4\text{He}$  en différents endroits, d'après les différents modèles développés dans ce chapitre.*

*Les applications ont été effectuées dans le cas  $p_3 = p_4 = 2$  torr à 300K. On a calculé, en fonction de  $1/T$ , dans le domaine de température où cela pouvait avoir un sens, la fraction  $X_3$  de  $^3\text{He}$  présente dans une couche du film de  $^4\text{He}$  :*

- *en considérant le film comme un fluide homogène au sein duquel sont piégés des atomes (trait continu, IV.A.1.a) ( $X_3$  = fraction de monocouche) ;*
- *dans l'état lié à la surface d'un film épais (trait interrompu, IV.A.1.b) (----) ( $X_3$  = fraction de monocouche) ;*
- *dans la limite des films minces, (IV.A.3), cet état voit son énergie modifiée par le substrat, ce qui conduit au trait interrompu long (— —) ;*

- dans la première couche d'un film mince, selon E. Krotschek [1985] (— · — · —) (IV.B.1) ;
- dans la deuxième couche de ce même film mince (— · — · — · — · —) ;
- enfin, dans le cas où il existe une couche de sites privilégiés d'adsorption (IV.B.3) dans lesquels la différence d'énergie de piégeage individuelle  $\hat{E}_4 - \hat{E}_3$  entre  $^4\text{He}$  et  $^3\text{He}$  serait  $-3,5\text{K}$  (— · — · — · — · —)



Les courbes correspondant aux calculs de E. Krotschek ont été limitées à  $T^{-1} \leq 1,75\text{K}^{-1}$ .





CHAPITRE V

PROCESSUS DE RELAXATION ET RESULTATS EXPERIMENTAUX :

L'ORIGINE DU TEMPS DE RELAXATION  $T_1$

Les résultats des chapitres III et IV nous ont permis de préciser la situation des atomes  $^3\text{He}$  n'appartenant plus à la phase gazeuse ; en particulier leurs propriétés et leur nombre dans les premières couches du film d'hélium 4 ont été déterminés : les chapitres I et II suggéraient qu'un rôle particulier était joué par les toutes premières couches de l'enduit de  $^4\text{He}$ . Dans ce dernier chapitre, nous confrontons l'ensemble des résultats expérimentaux que nous avons obtenus à différents modèles décrivant les processus de relaxation susceptibles d'intervenir dans nos expériences.

Les différents processus de relaxation envisageables sont passés en revue au paragraphe V.A. On expose ensuite les résultats expérimentaux (V.B). La compatibilité entre ces derniers et les processus évoqués au V.A est discutée au V.C.

V.A - REVUE DES DIFFERENTS PROCESSUS DE RELAXATION
--

Dans ce paragraphe, nous passons en revue les différents processus de relaxation qui sont susceptibles de se manifester dans notre situation expérimentale et nous cherchons à évaluer leurs effets en calculant, par exemple, l'ordre de grandeur de leur contribution au taux de relaxation. Ces processus sont de deux sortes :

- Les uns affectent directement l'orientation nucléaire de la phase gazeuse;
  
- Les autres résultent de la présence de la paroi de la cellule, soit directement -- l'interaction "atome individuel  $\leftrightarrow$  paroi" est une source de relaxation -- soit indirectement -- l'existence de la paroi favorisant par exemple l'apparition de phases plus condensées au sein desquelles peuvent se manifester efficacement des processus intrinsèques comme l'interaction magnétique entre spins.

Nous discutons plus en détail les processus liés à la paroi, qui dominent dans nos expériences. Un modèle quantitatif est présenté.

#### V.A.1 - Processus de relaxation de la phase gazeuse

Comme il a été évoqué au I.C, les principaux processus susceptibles d'affecter l'orientation de la phase gazeuse sont, d'une part, la relaxation due à la diffusion des atomes dans les gradients du champ magnétique macroscopique et, d'autre part, la contribution à la désorientation de l'interaction spin-spin entre atomes de la phase gazeuse.

V.A.1.a - Diffusion dans les gradients du champ magnétique macroscopique

En pratique, le champ magnétique  $\vec{B}_0$  n'est pas rigoureusement homogène sur la cellule ; ses variations peuvent être exprimées au premier ordre à l'aide du vecteur

$$\vec{\delta B}_0(x, y, z) = \sum_{\alpha} \left( \frac{\partial B_0}{\partial x_{\alpha}} \right) x_{\alpha} \vec{e}_{\alpha} \quad (V-1)$$

( $\vec{e}_{\alpha}$  est le vecteur unitaire dirigeant l'axe  $Cx_{\alpha}$ )

Notons  $\delta B_0^{\perp}$  la valeur quadratique moyenne sur la cellule des composantes du gradient perpendiculaire à  $\vec{B}_0$ . Pour une cellule sphérique on peut calculer en fonction de  $\delta B_0^{\perp}$  (\*) l'expression du taux de relaxation lorsque le libre parcours moyen des atomes du gaz est plus petit que le rayon, c'est-à-dire lorsque la dynamique dans le gaz satisfait une équation de diffusion. On obtient [Lefevre et al., 1982]

$$\frac{1}{T_1^g \cdot m} = \gamma^2 (\delta B_0^{\perp})^2 \tau_D \frac{1}{1 + \omega_0^2 \tau_D^2} \quad (V-2)$$

où  $\tau_D$  est le temps associé au principal mode de diffusion dans la cellule sphérique. Si  $D$  est le coefficient de diffusion dans le gaz, on a simplement :

$$\tau_D \simeq 0,231 \frac{R^2}{D} \quad (V-3)$$

En toute rigueur, la relation (V-2) suppose que les collisions entre atomes sont suffisamment fréquentes pour que la condition

---

(\*) Il n'est pas non plus exclu qu'existent des fluctuations temporelles du champ, incluses alors dans la valeur moyenne  $(\delta B_0^{\perp})^2$ .

---

(V-4) soit satisfaite.

$$\tau_{1c}^2 \omega_0^2 \ll 1 \quad (V-4)$$

( $\tau_{1c}$  désigne le temps moyen séparant deux collisions). Dans nos conditions expérimentales, les ordres de grandeur des différents paramètres sont  $D^{-1} \simeq 5.10^{-2} \text{ s.cm}^{-2}$ ,  $\Delta B_0^1 < 10^{-3} \text{ G}$  (\*),  $B_0 \simeq 14 \text{ G}$ ,  $R \simeq 1,4 \text{ cm}$ , soit  $\tau_D \simeq 23 \text{ ms}$  et

$$\frac{1}{T_1^{g.m.}} \simeq 4.10^{-7} \text{ s}^{-1} \quad (V-5)$$

$T_1^{g.m.}$  est donc de l'ordre de un mois ! On pourrait imaginer que les gradients du champ sur la cellule sont mal connus, que des termes d'ordre plus élevé interviennent ; en fait dans les conditions de pression et température correspondant aux expériences l'inégalité

$$\omega_0^2 \tau_D \gg 1 \quad (V-6)$$

est toujours satisfaite.  $\left(T_1^{g.m.}\right)^{-1}$  est donc proportionnel à  $\omega_0^{-2}$  d'après (V-2). Nous n'avons pas observé de variations de  $T_1$  en changeant  $\omega_0$  de 20 à 100 kHz ; l'hypothèse d'une contribution effective à la relaxation longitudinale des inhomogénéités du champ statique est donc exclue, même si celles-ci dépassent les prévisions précédentes de plusieurs ordres de grandeurs.

#### V.A.1.b - Relaxation intrinsèque de $^3\text{He}$ dans le gaz

Lors de son mouvement erratique dans la phase gazeuse, chaque atome subit de fréquentes collisions avec ses voisins. Ainsi, le champ local vu par un spin donné et créé par tous les autres varie rapidement au cours du temps du fait du mouvement de diffusion des atomes. A ces variations correspond une désorientation des spins d'autant plus efficace a priori que la phase est plus dense, c'est-à-dire que les collisions sont plus fréquentes.

---

(\*) Ces valeurs proviennent des mesures de  $T_2$  qui ont été détaillées au chapitre II.

---

Cet effet a été étudié avec précision par Shizgal [1973,1976]. Celui-ci décrit le mouvement relatif des atomes à l'aide d'une équation de Boltzmann et montre que le taux de relaxation  $(T_1^b)^{-1}$  dans une phase gazeuse s'écrit sous la forme :

$$\frac{1}{T_1^b} = d \sqrt{\frac{2}{\pi m}} \beta^3 \int_0^\infty e^{-\beta E} \sigma_{eff}(E) E dE \quad (V-7)$$

où les variables  $m$ ,  $E$  sont respectivement la masse réduite et l'énergie cinétique de la particule réduite dans le mouvement relatif de deux atomes de gaz  $^3\text{He}$  et où  $\beta = (k_B T)^{-1}$ . La section efficace  $\sigma_{eff}(E)$  intervenant dans (V-7) correspond à la probabilité de renversement du spin nucléaire au cours d'une collision (ce renversement est le processus atomique associé à la relaxation de l'aimantation macroscopique du gaz). Elle a été déterminée à partir du potentiel d'interaction He-He en faisant intervenir l'interaction dipolaire spin-spin. Les résultats obtenus par B. Shizgal sont reportés au tableau V.1. Ces valeurs correspondent pour une densité de 1 torr à 300 K à une valeur de  $T_1^b$  à basse température de  $3 \cdot 10^8$  s, soit quelques années... Pour qu'un processus de ce type commence à se manifester dans nos expériences, il faudrait que la densité gazeuse dans les cellules soit en fait proche de la densité du liquide. ( $10^{22}$  cm $^{-3}$  ou plusieurs dizaines de bars à 300 K).

Tableau V.1: Valeurs du temps  $T_1^b$  de relaxation longitudinale due à l'interaction spin-spin dans le gaz  $^3\text{He}$  à faible densité, d'après B. Shizgal [1976, Can. J. Phys. 54, 164] ( $\rho^b$  est la masse volumique du gaz).

T(k)	$\rho^b T_1^b$ (g cm $^{-3}$ minute)
0,5	86 ↔ 98
1,0	80 ↔ 89

Il est par ailleurs difficile d'imaginer la présence en phase gazeuse d'impuretés paramagnétiques pouvant créer une telle relaxation, car les tensions de vapeur de toutes les substances connues sont à cette température complètement négligeables.

Enfin, parmi les processus intrinsèques *encore moins efficaces* que tous ceux qui ont été mentionnés et qui se sont avérés tout à fait négligeables, on peut citer la relaxation due au couplage du moment de spin au moment angulaire de rotation du "di-atome" formé lors d'une collision ; ce processus a également été, pour mémoire, étudié par Shizgal.

## V.A.2 - Relaxation due à la présence de la paroi

### V.A.2.a - Effets de la paroi sur l'orientation du gaz

#### *a) Les origines de la relaxation*

La paroi peut produire un effet direct sur l'orientation des atomes du gaz qui sont à proximité. Dans le pyrex ou bien à la surface de celui-ci, la densité des constituants dotés de propriétés magnétiques peut être importante. Des impuretés possédant des propriétés de magnétisme électronique sont éventuellement présentes : il peut s'agir de molécules condensées sur la surface de la cellule avant le dépôt des enduits cryogéniques, d'électrons dans le gaz, à la surface de l'hélium ou bien ayant migré vers l'enduit solide. La présence intermittente d'une décharge dans la cellule provoque une irradiation de tous les constituants de l'échantillon dans l'Ultra Violet lointain ( $\approx 500 \text{ \AA}$ ), susceptible de créer de tels éléments ou de porter dans un état excité ceux qui sont initialement présents.

Au cours de son passage en vol libre au voisinage de la paroi un atome du gaz peut subir l'influence d'un champ local intense et être désorienté. Quelques indications quantitatives relatives à un tel mécanisme sont présentées plus loin. Néanmoins c'est principalement par le biais d'un processus d'adsorption que



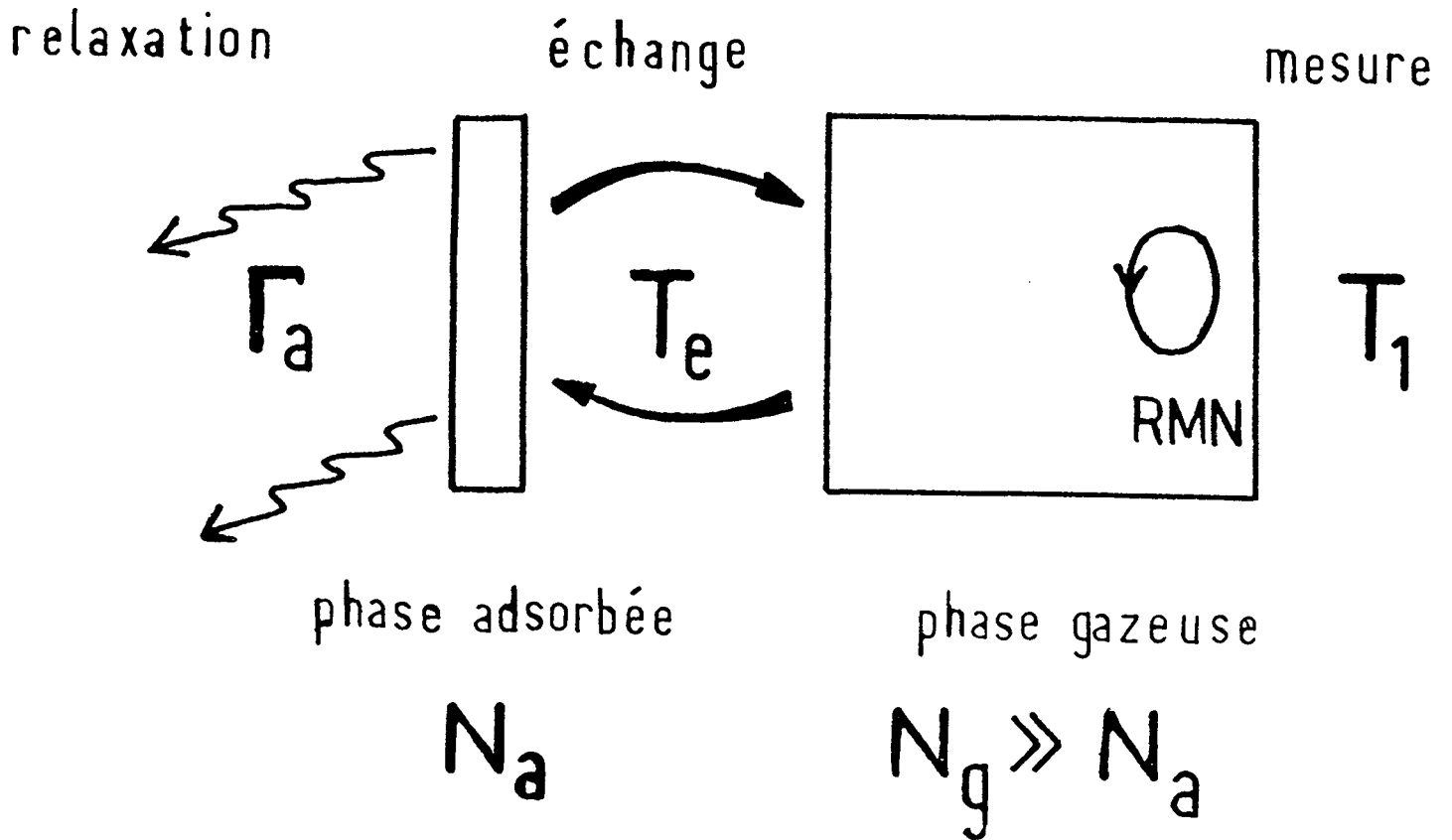
l'interaction atome-paroi peut contribuer à la relaxation. L'adsorption d'un atome assure la présence du spin au voisinage immédiat du champ relaxant, et le piégeage en surface garantit que le temps d'interaction est plus long que le temps que passe dans la même zone un atome du gaz en vol libre. Le couplage magnétique "spin-gradient du champ local" évoqué au V.A.1.a est donc efficace dans ce cas.

*β) L'échange entre phase gazeuse et phase adsorbée*

L'équilibre qui s'établit à basse température entre la phase gazeuse et la phase adsorbée à la surface conduit à une densité atomique importante dans la phase  $^3\text{He}$  adsorbée ; au sein de cette dernière, les processus de relaxation intrinsèques évoqués au V.A.1.b pour le gaz sont susceptibles de se manifester. Cet équilibre est bien sûr un équilibre dynamique. Par échange avec les atomes de la phase adsorbée qui subissent des processus de relaxation, les atomes de la phase gazeuse voient leur orientation diminuer. Le temps de relaxation  $T_1$ , que nous mesurons est celui de la phase gazeuse, où sont présents plus de 95 % des atomes  $^3\text{He}$ . Si le temps d'échange  $T_e$  entre phases, vu du gaz, est court devant l'inverse du taux de relaxation  $\Gamma_a$  en phase adsorbée, on peut aisément montrer que  $T_1$  est lié à  $\Gamma_a$  par :

$$\frac{1}{T_1} = \Gamma_a \frac{N_a}{N} \quad (\text{V-8})$$

où  $N_a/N$  est simplement la fraction d'atomes adsorbée. Cette relation est établie dans l'appendice D. Le mécanisme de relaxation du gaz est illustré par la figure (V.1).



*Figure V-1: Représentation schématique de l'échange entre la phase adsorbée et la phase gazeuse .*

*r) Le taux de relaxation en phase adsorbée*

Dans la phase adsorbée, c'est-à-dire dans tous les lieux autres que le gaz où peut se trouver un atome  $^3\text{He}$ , la relaxation d'un spin donné vers un état désorienté s'effectue par interaction avec les champs magnétiques locaux présents. Ces derniers sont éventuellement variables. De plus, le mouvement de l'atome dans le champ inhomogène ajoute une autre dépendance temporelle permettant au spin de moyenniser les fluctuations spatiales du champ magnétique. Les sources de ce champ local peuvent être des impuretés magnétiques contenues dans la paroi de verre mais aussi les autres atomes  $^3\text{He}$  de la phase adsorbée.

Lorsque le champ statique  $\vec{B}_0$  est nul, on peut mettre le taux de relaxation  $\Gamma_a$  sous la forme suivante [Abragam, 1961]

$$\Gamma_a = \left| \frac{\mathcal{V}}{\hbar} \right|^2 \tau_c \quad (\text{V-9})$$

où  $|\mathcal{V}|$  est le module de la perturbation agissant sur le spin nucléaire pour le désorienter et où  $\tau_c$  est le temps de corrélation en champ faible, c'est-à-dire en champ tel que la condition

$$\omega_0 \tau_c \ll 1 \quad (\text{V-10})$$

soit satisfaite. Ce cas correspond probablement à nos conditions expérimentales (voir V.A.2.b).

i) Temps de corrélation  $\tau_c$

Le temps de corrélation  $\tau_c$  dépend des conditions exactes de piégeage des atomes adsorbés et de la nature exacte de la perturbation exercée sur le spin. Différents cas seront discutés plus loin. La limite supérieure de  $\tau_c$  est cependant le temps de séjour  $\tau_s$  d'un atome en phase adsorbée : cela revient à faire l'hypothèse, raisonnable compte tenu du libre parcours moyen dans le gaz, qu'aucune corrélation ne se manifeste entre deux adsorptions successives d'un même atome. La situation de forte

corrélation ( $\tau_c = \tau_s$ ) se rencontre lorsque l'atome subit durant toute son adsorption une perturbation cohérente : le mouvement de l'atome pendant son séjour en phase absorbée moyenne de façon incomplète les fluctuations du champ local. L'ordre de grandeur de  $\tau_s$  a été estimé dans les cas particuliers évoqués au IV.A : pour un atome  $^3\text{He}$  piégé à la surface de  $^4\text{He}$ ,  $\tau_s$  est de l'ordre de la microseconde.

ii) Ordre de grandeur de  $\mathcal{V}$

La perturbation  $\mathcal{V}$  provenant de l'interaction avec les champs magnétiques créés par des impuretés contenues dans la paroi est étudiée en détail au V.A.3. Il est possible néanmoins de fixer dès à présent des ordres de grandeur dans les cas suivants.

■  $\mathcal{V}$  est le hamiltonien d'interaction magnétique d'un spin nucléaire avec le champ créé par son voisin immédiat en phase adsorbée. Le moment magnétique  $\vec{\mu}_I$  associé au spin nucléaire  $\vec{I}$  concerné s'écrit :

$$\vec{\mu}_I = g \frac{q\hbar}{2M} \vec{I} \quad (\text{V-11})$$

( $g$  est le facteur de Landé,  $q$  et  $M$  sont respectivement la charge et la masse du proton). Le champ créé vaut à la distance  $r$

$$\|\vec{B}_I\| \sim \frac{\mu_0}{4\pi} 2 \frac{\mu_I}{r^3} \quad (\text{V-12})$$

et  $|\mathcal{V}| \sim \left| \hat{\mu}_3 \cdot \vec{B}_I \right|$ . Lorsque  $r \simeq 3 \text{ \AA}$ , on obtient  $B_I \sim 0,2 \text{ G}$  et  $|\mathcal{V}/\hbar| \sim 10^3 \text{ s}^{-1}$ .

■  $\mathcal{V}$  provient d'une interaction magnétique avec un électron. Pour une même distance caractéristique de  $3 \text{ \AA}$ , le couplage, mille fois plus grand, conduit à  $|\mathcal{V}/\hbar| \sim 10^6 \text{ s}^{-1}$ .

### V.A.2.b - Mécanismes de relaxation en phase adsorbée

Nous envisageons dans ce paragraphe les différentes origines possibles de la relaxation et nous discutons les comportements qui résultent de chacune d'elles pour  $T_1$ . La fraction d'atomes adsorbée a été calculée au chapitre IV. Elle n'excède pas 2 % à 0,5 K. Une valeur typique de  $T_1$  est 1000 s (voir I.C). D'après la relation (V-8) nous devons expliquer l'existence en phase adsorbée d'un taux de relaxation  $\Gamma_a^{-1} \simeq 20$  s.

#### *α) Relaxation spin-spin*

Dans le gaz nous avons montré que l'interaction spin-spin provoque une relaxation négligeable en raison de la faible valeur de la densité de nos échantillons. Le phénomène d'adsorption conduit en revanche à une accumulation importante d'atomes sur la paroi pouvant aller jusqu'à la constitution d'une monocouche (voir IV), donc d'une phase dense. Il faut examiner dans ce nouveau contexte les effets de l'interaction spin-spin.

Dans un système bidimensionnel, cette question a fait l'objet de plusieurs études théoriques [Cowan 1980, Chapman et Bloom 1976]. Le calcul du taux de relaxation correspondant dépend du mouvement des atomes dans le plan où ils sont confinés.

Soit  $\tau_0$  un ordre de grandeur du temps de corrélation de l'interaction.

■ Pour une phase diluée dans laquelle les collisions sont bien séparées,  $\tau_0$  vérifie :

$$\tau_0 \simeq \frac{2a}{v} \quad (\text{V-13})$$

soit  $\tau_0 \simeq 0,5 \cdot 10^{-11}$  s dans la gamme de température explorée autour de 1 K puisqu'alors la vitesse moyenne  $v$  approche  $10^2$  ms<sup>-1</sup> et puisque le diamètre atomique  $a$  est à peu près 2,75 Å.

■ Pour une phase fluide plus dense, le temps de corrélation de la perturbation  $\tau_0$  correspond plutôt au temps de diffusion d'un atome donné sur une distance de l'ordre de  $a$ , soit [Abragam, 1961] :

$$\tau_0 \simeq \frac{a^2}{2D} \quad (\text{V-14})$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion à deux dimensions.

■ Pour une phase solide enfin, on s'attend plutôt à ce qu'intervienne le temps d'échange entre spins. Pour  $^3\text{He}$  solide à 3 dimensions, ce temps vaut  $10^{-7}\text{s}$  [Roger 1984].

La relaxation spin-spin à deux dimensions présente des particularités : la fonction de corrélation de l'interaction qui apparaît dans le cadre de l'utilisation d'une théorie supposant le "rétrécissement par le mouvement" présente des composantes divergentes aux temps longs en raison de la dimensionnalité réduite. La contribution à la relaxation des termes spectraux de fréquence basse, voire nulle, n'est pas donnée simplement par la formule (V-9). Il faut y ajouter dans le cas du champ faible un facteur  $\text{Ln}(\omega\tau_0)$ . De façon plus précise, selon Chapman et Bloom [1976] et Lusher [1985], on obtient pour  $\Gamma_a$  l'expression suivante :

$$\Gamma_a^{\text{spin-spin}} \simeq \left(\frac{\mu_0}{4\pi}\right)^2 \frac{\hbar^2 \gamma^2}{a^4} d_s \tau_0 \cdot \text{Ln}\left(\frac{1}{5,1\omega\tau_0}\right) \quad (\text{V-15})$$

où  $d_s$  est la densité à deux dimensions,  $a$  le rayon de coeur dur de He et  $\omega$  la fréquence de Larmor soit, numériquement :

$$\Gamma_a^{\text{spin-spin}} (\text{s}^{-1}) \simeq 3,3 \cdot 10^7 d_s (\text{A}^{-2}) \tau_0 (\text{s}) \text{Ln}\left(\frac{1}{5,1\omega\tau_0}\right) \quad (\text{V-16})$$

La divergence de  $\Gamma_a$  lorsque  $\omega$  tend vers 0 n'a pas de sens physique : d'une part la taille du système bidimensionnel est finie [Korb et al. 1984] ; d'autre part dans notre cas, au bout

d'un temps au plus égal à  $\tau_s$  un atome donné quitte la phase adsorbée : on doit donc éliminer la contribution des termes spectraux de fréquence inférieure à  $\tau_s^{-1}$ . En champ nul cela revient à remplacer dans le facteur logarithmique de (V-16)  $\omega$  par  $\tau_s^{-1}$  : la divergence disparaît. Cependant, même aux plus basses températures atteintes, les considérations du chapitre IV prouvent que les atomes  $^3\text{He}$  adsorbés forment une monocouche peu dense ( $d_s \simeq 2 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}^{-2}$ ). Si  $\tau_0 \simeq 10^{-11} \text{ s}$  on obtient  $\Gamma_a^{-1} \simeq 7 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ , ce qui induit une valeur de  $T_1$  beaucoup plus longue que la valeur observée. En outre, les variations avec  $T$  de (V-16), associées principalement à celles de  $d_s$ , ne ressemblent pas aux résultats expérimentaux. Dans l'étude sur la relaxation de  $^3\text{He}$  sur l'hydrogène solide effectuée à l'Université de Sussex, C. Lusher [1985] a été conduit à supposer que la relaxation spin-spin du système bidimensionnel était peut-être la cause principale de relaxation dans les échantillons testés. Mais deux différences notables séparent nos expériences de ces travaux :

- l'énergie de liaison de  $^3\text{He}$  sur  $\text{H}_2$  est plus importante que sur  $^4\text{He}$  (13 K au lieu de 5 K),
- la densité du gaz des échantillons en  $^3\text{He}$  est plus élevée (30 torr au lieu de 2 torr).

Il en résulte la formation d'une monocouche plus dense, plus comprimée, plus précoce lorsqu'on abaisse la température, que dans le cas envisagé ici. Ce fait peut expliquer que le temps de corrélation  $2 \cdot 10^{-9} \text{ s}$  qui a été retenu par C. Lusher [1985] soit beaucoup plus long que celui considéré plus haut.

La valeur numérique de  $\tau_0$  varie avec la structure de la couche adsorbée. Si celle-ci est solide  $\tau_0$  est de l'ordre de l'inverse des fréquences d'échange d'atome entre sites dans les solides, soit  $10^{-7} \text{ s}$ . Cet ordre de grandeur a été confirmé par des expériences effectuées sur des systèmes bidimensionnels [Creswell et al. 1972; Richards 1980]. Pour une phase liquide sur un substrat lisse et dans un domaine de densité et de température où les effets de dégénérescence sont faibles, on peut admettre que le coefficient de diffusion  $D$  est du même ordre de grandeur qu'à

trois dimensions. La dynamique du fluide conduit à abaisser  $\tau_0$ , lui conférant la valeur  $10^{-11}$  s considérée précédemment.

Les discussions ci-dessus s'appliquent convenablement à la phase à deux dimensions adsorbée à la surface du film d'hélium-4. Lorsque celui-ci est assez mince pour donner lieu à l'existence d'un faible nombre d'états liés pour  $^3\text{He}$ , elles correspondent aussi aux atomes piégés dans le film. Toutefois, la densité bidimensionnelle en  $^3\text{He}$  est encore plus faible, et partant le taux de relaxation tout à fait négligeable.

Lorsque le film devient épais, ces atomes  $^3\text{He}$  dissous forment plutôt un système tridimensionnel. Leur situation est, comme on l'a vu, proche de celle des constituants d'un gaz de quasi-particules libres. Une estimation de la densité correspondante a été donnée au (IV.A) :  $10^{19}$  à  $10^{20}$   $\text{cm}^{-3}$ . En utilisant les résultats établis par Shizgal pour une phase tridimensionnelle diluée, on obtient un taux de relaxation de l'ordre de  $10^{-5}$   $\text{s}^{-1}$ . Néanmoins l'application directe de ces résultats n'a pas de valeur quantitative. Ainsi il apparaît dans la relation (V-7) utilisée dans l'approche cinétique de Shizgal que la dynamique du système dilué joue un rôle prépondérant : il conviendrait donc de reprendre ces calculs à partir de (V-7) en tenant compte de l'existence du fluide environnant les atomes  $^3\text{He}$ . La dynamique du vol libre fait intervenir la masse effective  $m_3^B$  (voir IV.A). La section efficace de collision, liée à l'interaction  $^3\text{He}$  dilué  $\leftrightarrow$   $^3\text{He}$  dilué, n'a pas fait semble-t-il l'objet d'études spécifiques. Toutefois, une borne supérieure du taux de relaxation peut grossièrement être obtenue à partir des résultats concernant le liquide  $^3\text{He}$  massif : pour ce dernier, Vollhardt et Wölfle [1981] ont calculé à 1 K la valeur  $\Gamma_a^{\text{spin-spin}} \simeq 3 \cdot 10^{-3}$   $\text{s}^{-1}$  sous pression nulle, et  $\simeq 10^{-2}$   $\text{s}^{-1}$  à la pression de solidification. Mais, compte tenu de la faible proportion d'atomes adsorbés, même ces valeurs extrêmes ne peuvent rendre compte d'un temps de relaxation de  $10^3$  s pour l'ensemble des atomes de la cellule.

*$\beta$ ) Interaction avec le magnétisme de la paroi*

La relaxation de l'orientation nucléaire dans la phase



adsorbée est due dans cette hypothèse à la présence au voisinage immédiat de la paroi d'inhomogénéités du champ magnétique local, dont la source est extérieure au système de spins lui-même. Il peut s'agir du champ créé par des impuretés magnétiques contenues dans le verre qui sert de substrat aux enduits cryogéniques ou encore piégées à la surface de celui-ci, comme évoqué précédemment.

Un modèle de relaxation simpliste peut être établi ; on décrit l'interaction des spins d'atomes  $^3\text{He}$  avec le champ en termes de processus individuels ; cette interaction dépend du mouvement de chaque atome dans la phase adsorbée, mouvement qui n'est connu qu'en moyenne ; elle dépend aussi de la forme exacte de la carte du champ magnétique, dont les sources ne peuvent être approchées que de façon statistique. On peut montrer que le taux de relaxation en phase adsorbée s'exprime à l'aide des fonctions d'autocorrélation des composantes du champ vu par un atome de  $^3\text{He}$  [Abragam 1961]. Soit  $\tau_c$  le temps de corrélation de ce champ perturbateur pour l'atome, et soit  $\delta B$  l'amplitude caractéristique des fluctuations spatiales transverses du champ local. Si la condition de "rétrécissement par le mouvement"

$$\gamma \tau_c \sqrt{\langle \delta B^2 \rangle} \ll 1 \quad (\text{V-17})$$

est satisfaite, on obtient alors ( $\omega_0$  est la pulsation de Larmor)

$$\Gamma_a \simeq \gamma^2 \langle \delta B^2 \rangle \frac{\tau_c}{1 + (\omega_0 \tau_c)^2} \quad (\text{V-18})$$

Pour  $\omega_0/2\pi \simeq 45$  kHz le second terme au dénominateur peut être négligé si  $\tau_c$  est assez court, et on retrouve l'expression de  $\Gamma_a$  dans les conditions de "rétrécissement extrême" :

$$\Gamma_a \simeq \gamma^2 \langle \delta B^2 \rangle \tau_c \quad (\text{V-19})$$

Cette expression rappelle évidemment la forme plus générale (V-9).

La valeur du temps de corrélation  $\tau_c$  et les variations de celui-ci avec la température dépendent du type de piégeage et de la nature des sources de champ. Nous avons évoqué plus haut que la limite supérieure qu'il convient de donner à  $\tau_c$ , dans l'hypothèse où la "mémoire" de l'interaction est perdue à chaque désorption, est le temps de séjour  $\tau_s$  en phase adsorbée. Cependant, le caractère aléatoire des sources du champ magnétique doit être pris en compte : des impuretés paramagnétiques piégées en surface sont éventuellement mobiles, des moments magnétiques dispersés dans le pyrex peuvent subir des processus d'échange. Les "sources du champ local" introduisent donc un temps de corrélation intrinsèque au processus d'établissement du champ relaxant, même si l'atome  $^3\text{He}$  est quasi-immobile en phase adsorbée.

Si les temps de corrélation associés à ces divers processus sont très différents, c'est le temps le plus court qu'il convient de retenir dans (V-19).

#### *r) Approche expérimentale de $\tau_c$*

Pour déterminer expérimentalement  $\tau_c$ , il suffit en principe de connaître la variation du taux de relaxation  $\Gamma_a$  avec le champ magnétique  $\vec{B}_0$  hors des conditions de rétrécissement extrême, c'est-à-dire lorsque  $\omega_0 \tau_c \gg 1$ , mais lorsque la formule (V-18) reste applicable. Varier de façon importante l'intensité du champ  $\vec{B}_0$  ne nous était pas accessible. Nous avons vérifié qu'une diminution et une augmentation d'un facteur 2 du champ  $\vec{B}_0$  ne modifie pas le taux de relaxation, validant ainsi la formule (V-19). En revanche nous avons étudié une cellule particulière réalisée par le groupe de M. Richards à l'Université de Sussex ; celle-ci y avait déjà fait l'objet de mesures du temps de relaxation  $T_1$  dans des champs magnétiques élevés. Bien que les techniques d'orientation, de constitution des enduits sur les parois, etc., soient très différentes dans les deux expériences, on peut tenter d'extraire des mesures une valeur de  $\tau_c$ . Les valeurs de  $T_1$  mesurées en champ fort ( $\omega_0 = 7,7$  Mhz, Sussex) et en champ faible ( $\omega_0 = 45$  kHz, Paris) ont été reportées sur la figure V.2. En

supposant (V-19) vérifiée à 45 kHz on peut déterminer  $\tau_c$  avec (V-18). On obtient:

$$0,9 \cdot 10^{-7} \text{ s} \leq \tau_c \leq 1,6 \cdot 10^{-7} \text{ s} \quad (\text{V-20})$$

(la valeur de  $\tau_c$  varie peu entre 1,2 K et 0,6 K).

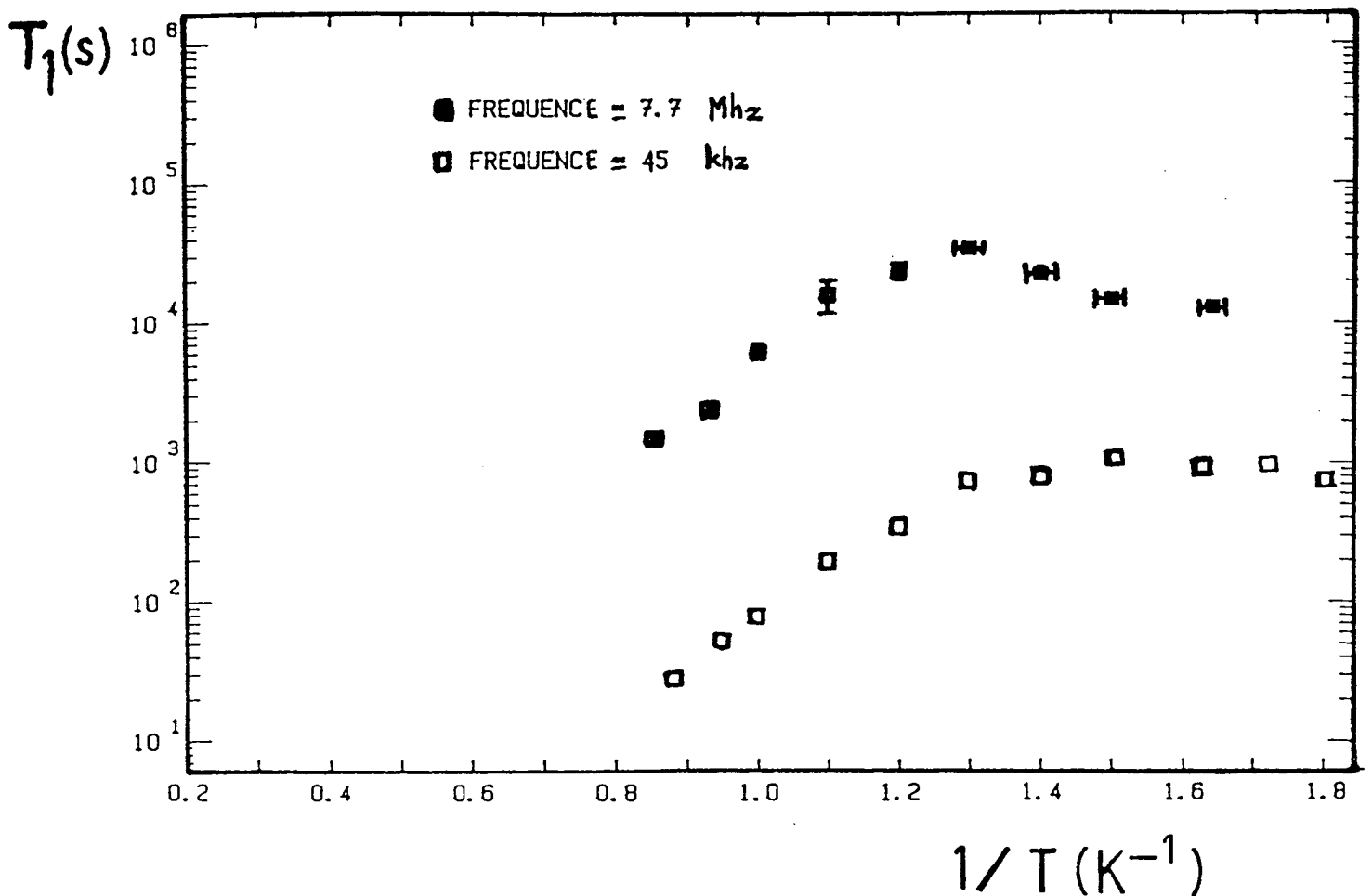


Figure V-2: Variations de  $T_1$  avec le champ magnétique. La cellule étudiée conjointement avec le groupe de l'Université de Sussex a été testée à 45kHz (□) et à 7,7Mhz (■). Avec la relation (V-18) on peut en déduire  $\tau_c$ .

De telles valeurs de  $\tau_c$  sont proches des temps d'échange entre atomes dans  $^3\text{He}$  solide ; elles sont également proches du temps de séjour global d'un atome sur la paroi. Elles semblent donc indiquer que les impuretés magnétiques créant le champ relaxant peuvent à l'échelle de  $\tau_s$  être considérées comme des sources statiques. C'est l'une des hypothèses du modèle présenté au paragraphe suivant.

### V.A.3 - Un modèle simple pour la relaxation en phase absorbée

#### V.A.3.a - Présentation et justification du modèle

L'écriture de  $\Gamma_a$  sous la forme simplifiée (V-19) masque le fait que la détermination de cette quantité est très spécifique aux différentes hypothèses retenues pour décrire, d'une part, l'ensemble des sources du champ relaxant, d'autre part, la situation dynamique des atomes proches de la paroi. En particulier, les variations de  $\Gamma_a$  lorsqu'on éloigne ces derniers des sources du champ ne sont pas précisées dans (V-19). Dans nos expériences, il est possible de faire varier l'épaisseur de l'enduit d'hydrogène séparant la paroi de verre -- dans laquelle ou sur laquelle on suppose que se trouvent les sources du champ local -- du film d'hélium-4 au sein duquel on suppose que les atomes d'hélium-3 sont piégés. Les variations du temps de relaxation avec l'épaisseur du sous-enduit d'hydrogène constituent donc un test important pour tout modèle de relaxation.

#### *$\alpha$ ) Hypothèses*

Le modèle présenté dans ce paragraphe correspond aux hypothèses suivantes :

- Atomes adsorbés : les atomes  $^3\text{He}$  sont susceptibles de se déplacer dans un plan  $\Pi$  fixe, supposé parallèle à la surface plane de la paroi, situé à la distance  $z_0$  de celle-ci. Le mouvement de ces atomes est un mouvement de diffusion ou de vol libre ; le temps de séjour en phase piégée est  $\tau_s$ .

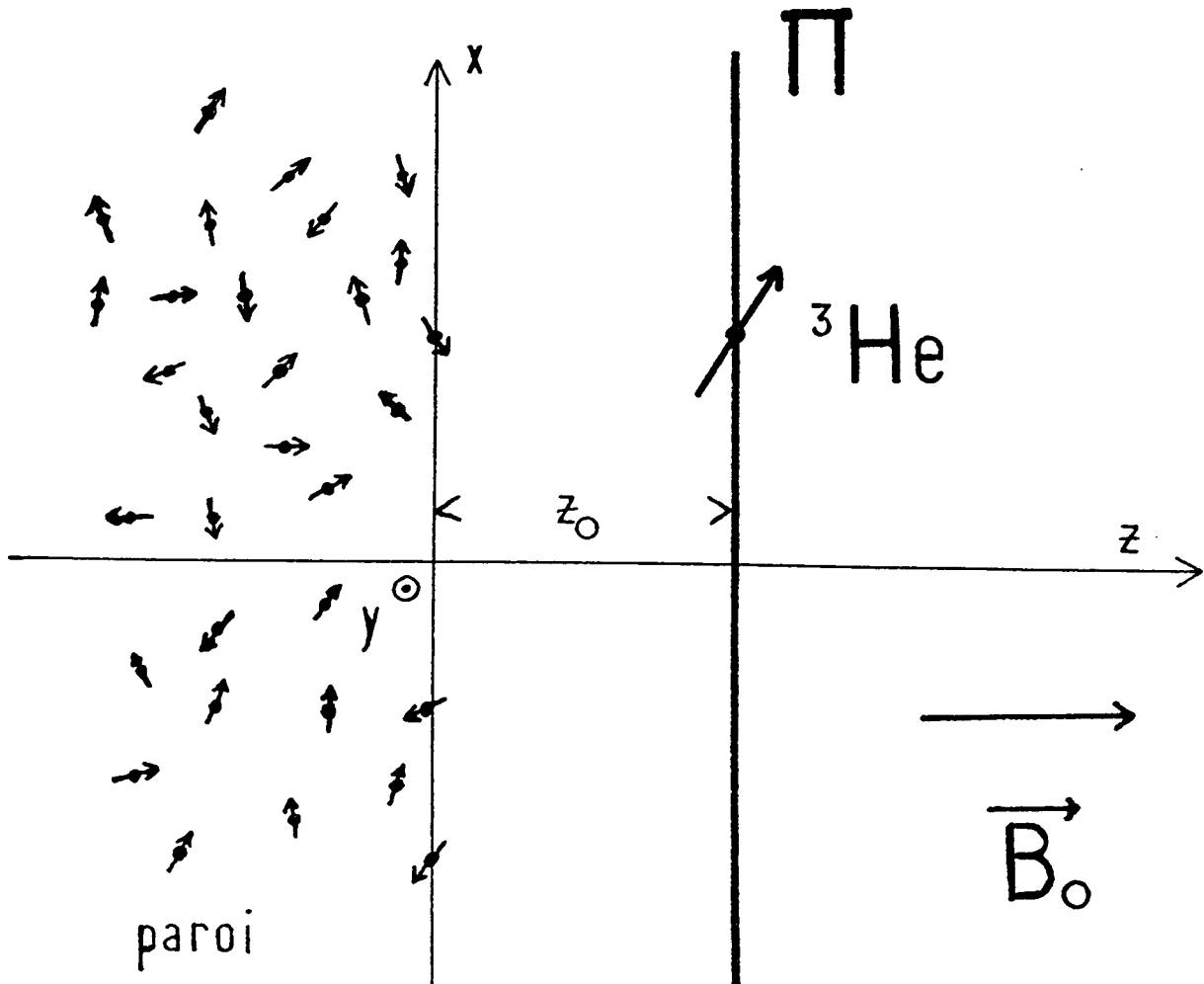
■ Sources de la relaxation : les impuretés magnétiques sont des moments magnétiques ponctuels identiques  $\vec{\mu}$ , fixes, aléatoires en direction, uniformément répartis avec une densité volumique  $\rho_{\mu}$  dans tout le demi-espace  $\{z < 0\}$  représentant la paroi de pyrex (figure V-3).

■ Champ magnétique : pour simplifier les calculs, le champ magnétique statique  $\vec{B}_0$  qui définit la direction de polarisation a été supposé orthogonal à la paroi. Pour une cellule sphérique plongée dans un champ homogène, il est clair que cette propriété ne peut être vérifiée sur toute la surface. Localement, on peut considérer que le mouvement des atomes se fait dans un plan parallèle à une surface plane mais le champ  $\vec{B}_0$  fait un angle  $\theta$  variable avec la normale à la surface. La moyenne sur la cellule revient à moyenner sur la direction de  $\vec{B}_0$  définie par cet angle  $\theta$ . Les conclusions qui suivent ne sont pas sensiblement modifiées par cette moyenne qui n'introduit (compte tenu notamment de la règle de somme (E-21)) qu'un facteur numérique correctif.

### *$\beta$ ) Situations physiques correspondantes*

Une telle description peut être adaptée à diverses situations physiques précises :

- La situation du modèle décrit ci-dessus, évidemment ;
- Le cas où les sources du champ sont en fait ordonnées en petits domaines d'impuretés ; on remplace chaque moment par un de ces domaines de volume  $a^3$ , et  $z_0$  par  $z_0 + a$ . Cette situation peut se manifester si sont présentes dans le pyrex des impuretés ferromagnétiques. C'est l'hypothèse retenue par V. Lefevre [1984].



*Figure V-3: Situation respective des différents partenaires du modèle de relaxation magnétique considéré à l'appendice E. Le mouvement des atomes est limité au plan  $\Pi$  parallèle à la paroi en  $z = z_0$ . Le demi-espace  $\{z \leq 0\}$  contient une densité uniforme  $\rho_\mu$  de moments magnétiques identiques ponctuels, fixes, d'orientation aléatoire.*

■ Le cas où il est nécessaire et possible de faire intervenir un temps de corrélation intrinsèque du champ relaxant. Si c'est le processus dominant, on peut substituer ce temps à  $\tau_s$ .

■ Le cas où le champ magnétique relaxant est produit par une simple couche d'impuretés piégées en  $z = 0$ . On effectue simplement une dérivation de  $\Gamma_a$  par rapport à  $z_0$ , puis on multiplie par l'épaisseur de la couche d'impuretés.

En dernier lieu, les résultats obtenus peuvent être rapprochés des calculs effectués dans des situations analogues par d'autres auteurs utilisant ou non la même approche : Chapman et Bloom [1976] ont déterminé  $\Gamma_a$  par analogie avec le problème de relaxation spin-spin en phase adsorbée ; Berlinsky, Hardy, Statt [1986] ont étendu ces résultats au cas du vol libre à la surface ; Albers et Wilkins [1979] ont effectué dans le cas apparemment plus complexe de la relaxation-paroi d'une phase dense un calcul quantique de la susceptibilité dynamique des spins ; et bien sûr V. Lefevre [1984] qui a notamment abordé ce problème dans l'appendice C de sa thèse.

#### V.A.3.b. Résultats obtenus

##### *α) Taux de relaxation*

Dans l'appendice E ont été rassemblés les éléments permettant de calculer  $\Gamma_a$  dans les cas simples évoqués ci-dessus :

■ Le mouvement des atomes en phase adsorbée est décrit par une équation de diffusion dans le plan  $\Pi$  de cote  $z = z_0$ .  $D$  est le coefficient de diffusion à deux dimensions dans ce plan.  $\tau_s$  est supposé très long. Alors

$$\Gamma_a^{(1)} = \gamma^2 \frac{\mu_0^2 \mu^2}{8\pi} \frac{\rho_\mu}{3} \frac{1}{2D} \times \frac{1}{z_0} \quad (\text{V-21-a})$$

■ Les atomes sont immobilisés dans des sites fixes du plan  $\Pi$ . Le mouvement dans leur piège ne moyenne pas les fluctuations spatiales du champ, et on obtient

$$\Gamma_a^{(2)} = \gamma^2 \frac{\mu_0^2}{8\pi} \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \frac{\tau_s}{4z_0^3} \quad (\text{V-21-b})$$

■ Les atomes passent en vol libre dans le plan  $\Pi$  ; si  $v_0$  est la valeur quadratique moyenne d'une composante de la vitesse thermique des atomes, il vient :

$$\Gamma_a^{(3)} = \gamma^2 \frac{\mu_0^2 \mu^2 \rho_\mu}{3} \frac{1}{8\sqrt{2\pi}} \frac{1}{v_0 \left(4z_0^2\right)} \quad (\text{V-21-c})$$

*$\beta$ ) Temps de corrélation*

Dans chacun des trois cas précédents, le résultat obtenu peut être mis sous la forme simple

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\pi}{6} \left( \frac{\mu_0}{4\pi} \mu \frac{1}{z_0^3} \right)^2 \left( \rho_\mu z_0^3 \right) \zeta \quad (\text{V-22})$$

où le paramètre  $\zeta$  a les dimensions d'un temps.  $\zeta$  dépend bien sûr des hypothèses choisies concernant le mouvement des  $^3\text{He}$ . On reconnaît dans le premier facteur entre parenthèses le champ dipolaire créé par un moment  $\vec{\mu}_1$  à la distance  $z_0$  ; il est élevé au carré ; la deuxième fonction entre parenthèses est le nombre approximatif  $\left( \rho_\mu z_0^3 \right)$  des moments situés à une distance de l'ordre de  $z_0$  d'un point fixe du plan contenant les atomes  $^3\text{He}$ . Ces deux facteurs correspondent bien à l'image physique que l'on se fait du carré moyen des fluctuations du champ.  $\zeta$  joue le rôle du temps de corrélation introduit à la formule (V-19).



- dans le cas d'un mouvement de diffusion, avec (V-21-a)

$$\zeta = \zeta^{(1)} = \frac{z_0^2}{D} \quad (\text{V-23-a})$$

c'est bien le temps de diffusion dans le plan  $\Pi$  sur une distance de l'ordre de  $z_0$ .

- dans le cas d'une diffusion très lente, avec (V-21-b)

$$\zeta = \zeta^{(2)} = \tau_s \quad (\text{V-23-b})$$

le "moyennage" par le mouvement est alors inefficace.

- pour le vol libre au voisinage de la paroi, avec (V-21-c)

$$\zeta = \zeta^{(3)} = \frac{z_0}{v_0} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \quad (\text{V-23-c})$$

l'ordre de grandeur est celui du temps de vol de l'atome sur la distance  $z_0$ .

#### *r) Variations avec la distance au substrat*

Dans ces trois cas  $z_0$  est la distance typique sur laquelle le champ varie de façon importante. Bien entendu, la valeur numérique de  $\zeta$  et donc celle de  $\Gamma_a$  sont à chaque fois différentes. De plus, les variations avec  $z_0$  ne sont pas les mêmes ;  $\Gamma_a$  varie comme :

- $z_0^{-1}$  pour un atome animé d'un mouvement de diffusion ;
- $z_0^{-3}$  si l'atome relaxant est quasi-immobile ;
- $z_0^{-2}$  s'il passe en vol libre près de la paroi ;

et même  $z_0^{-5}$  si la condition de rétrécissement extrême n'est pas satisfaite (formule (E-33) dans l'appendice E).

S'il s'agit de la relaxation induite par une couche bidimensionnelle plane de moments magnétiques, la dérivation nécessaire par rapport à  $z_0$  conduit respectivement à une dépendance en  $z_0^{-2}$ ,  $z_0^{-4}$ ,  $z_0^{-3}$  et  $z_0^{-6}$ .

Enfin, le résultat obtenu par V. Lefevre dans sa thèse, concernant le cas où les sources du champ sont de petits domaines ferromagnétiques de taille voisine de 1000 Å, donne " $\Gamma_a$  indépendant de  $z_0$ ". Nous pouvons retrouver cette variation particulière à partir de (V-21-a). Supposons en effet que les moments magnétiques considérés pour exprimer  $\Gamma_a^{(1)}$  s'ordonnent en domaines ferromagnétiques de volume  $a^3$ . A l'extérieur d'un domaine, le champ que crée celui-ci est équivalent au champ créé par un dipole unique  $\vec{\mu}_d$  au centre du domaine, si ce dernier est grossièrement sphérique, avec :

$$\vec{\mu}_d = a^3 \rho_\mu \vec{\mu} \quad (\text{V-24})$$

Si les domaines sont entre eux distants de  $b$ , notons  $\rho_\alpha \simeq b^{-3}$  la densité volumique de domaines dans la paroi. Le plan  $\Pi$  contenant les atomes et situé hors de la paroi à une distance  $z_d$  du centre des domaines les plus proches de la surface qui vérifie : (\*)

$$z_d \simeq z_0 + \frac{a}{2} \quad (\text{V-25})$$

Une simple substitution de paramètres  $z$ ,  $\rho$ ,  $\mu$  conduit à

$$\Gamma_a^{(4)} = \gamma^2 \frac{\mu_0^2}{8\pi} \left( a^3 \rho_\mu \mu \right)^2 \frac{1}{3b^3} \frac{1}{2D} \frac{1}{z_d} \quad (\text{V-26})$$

---

(\*) Le "plan de surface" du substrat coïncide dans notre étude avec la position du dernier plan cristallin du cristal formant la paroi.

---

soit :

$$\Gamma_a^{(4)} = \frac{\pi}{6} \left( \gamma \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\mu_d}{a^3} \right)^2 \frac{a^2}{D} \frac{a^3}{b^3} \frac{a}{z_0 + a} \quad (\text{V-21-d})$$

Cette relation s'interprète simplement : le terme dans les parenthèses est le champ créé à la distance typique  $a$  par un domaine ; le facteur suivant fait intervenir le temps de diffusion dans le plan  $\Pi$  sur une distance typique égale à  $a$  ; le terme  $(a^3/b^3)$  rappelle que seule une fraction du volume est occupée par des domaines magnétiques. Dans le cas où la distance à la paroi  $z_0$  est petite devant la taille d'un domaine  $a$ , on retrouve le fait que " $\Gamma_a$  est indépendant de  $z_0$ ". Ce résultat subsiste pour une diffusion très lente, le temps de séjour remplaçant alors le temps de diffusion dans (V-21-d).

#### 8) Conclusion

Les relations (V-21) obtenues ci-dessus correspondent à des modèles particuliers. Ils constituent néanmoins un guide pour analyser les résultats qui seront décrits au paragraphe V.B.

- Les jeux d'hypothèses conduisant à  $\Gamma_a^{(1)}$  et  $\Gamma_a^{(4)}$  correspondent à la situation des atomes d'hélium-3 piégés dans l'état lié existant à la surface d'un film assez épais (voir IV.A.2).

- Ceux associés à  $\Gamma_a^{(1)}$ ,  $\Gamma_a^{(2)}$  et  $\Gamma_a^{(4)}$  peuvent être adaptés au cas d'atomes piégés dans des sites privilégiés au voisinage immédiat de la paroi (voir IV.B.2). Le cas correspondant à  $\Gamma_a^{(3)}$  peut décrire la contribution éventuelle à la relaxation des atomes du gaz proches de la paroi. Il s'applique également aux atomes  $^3\text{He}$  piégés dans le film d'hélium-4 épais lorsque leur densité n'est pas trop grande. Mais pour traiter ce dernier cas, il semble essentiel de prendre en compte le mouvement à trois dimensions dont sont, en réalité, animés les spins.

V.B - PRESENTATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX
--

Nous regroupons dans ce paragraphe les résultats expérimentaux que nous avons obtenus pour diverses cellules. Bien entendu, ces résultats sont présentés conformément à l'analyse des paragraphes précédents qui attribuent l'origine de la relaxation à l'interaction individuelle entre un spin  $^3\text{He}$  et les impuretés magnétiques dans la paroi.

### V.B.1 - La reproductibilité des mesures

#### V.B.1.a - Reproductibilité pour une cellule donnée

##### *α) Effets de la décharge*

Pour chacune des cellules testées, la méthode de construction, préparation et remplissage utilisée est la méthode décrite au chapitre I. De même les techniques de mesure employées (allumage de la décharge à froid, compensation des gradients macroscopiques du champ, mesures de  $T_1$ ) sont celles qui furent expliquées au I.C. La reproductibilité des résultats d'un moment à l'autre est proche de  $\pm 12\%$  ; jamais nous n'avons observé de différences notables entre les temps de relaxation mesurés pour une même cellule, au cours de mises à froid différentes parfois séparées par plus d'une année, qui ne puissent être expliquées par une détérioration de l'enduit d'hydrogène à la suite d'un allumage prolongé de la décharge. A chaque "accident" de ce type, le fait de procéder à un "recuit" de l'enduit par réchauffement de l'appareillage ou bien par bombardement prolongé des parois à l'aide d'une décharge intense vers 1 K a permis de ramener le temps de relaxation mesuré dans la zone de reproductibilité énoncée ci-dessus.

Pour deux cas particuliers, une détérioration associée au nombre de décharges effectuées a été observée. Sur l'échantillon contenant  $d_3 = 8$  torr à 300 K de  $^3\text{He}$  une dégradation de  $T_1$  progressive avec le numéro d'ordre de la mesure n'a pu être

évitée ; à chaque fois, seule une action violente de recuit identique à celle décrite ci-dessus a permis de retrouver un faible taux de relaxation.

Par ailleurs, une valeur très faible de  $T_1$  (quelques dizaines de secondes) a été systématiquement observée entre 1,3 K et 3 K dans l'échantillon étudié en collaboration avec C. Lusher et M. Richards lorsque le pompage optique est effectué dans cette gamme de température. L'hydrogène solide mis à nu sur la paroi est gravement endommagé par la décharge. V. Lefevre [1984] a montré qu'alors l'enduit de  $H_2$  ne peut se reconstituer seul ; un réchauffement est nécessaire.

#### *β) Influence du montage extérieur à l'échantillon*

Certaines parties de l'appareillage cryogénique comme le tour de cellule ou le transformateur avaient été, pour des raisons de commodité, construites en deux exemplaires. Les principes retenus pour la mise en place des échantillons sont aussi en partie des causes d'irreproductibilité : les joints d'indium et la soudure au métal de Wood sont refaits à chaque montage et sont éventuellement, par leur supraconductivité, sources d'inhomogénéités magnétiques.

Néanmoins, pour une cellule donnée, nous n'avons pas observé de variations systématiques ou erratiques des résultats imputables à ces éléments. En revanche l'ajustement des paramètres expérimentaux, comme la fréquence de résonance HF de la décharge ou les courants dans les bobines de compensation des gradients macroscopiques du champ, est fonction de l'utilisation de telle ou telle partie du montage et varie d'une réalisation à l'autre dans des proportions compatibles avec les ordres de grandeur attendus.

#### V.B.1.b - Reproductibilité entre cellules différentes

D'une cellule à l'autre, la reproductibilité des mesures n'est pas aussi bonne. Elle s'avère même parfois impossible à

estimer (au V.B.4.a on représente un exemple de comportement différent à basse température pour deux cellules présumées identiques). Néanmoins, il est possible de comparer valablement entre eux les résultats obtenus lorsqu'un seul des paramètres expérimentaux varie en prenant les précautions suivantes sur les phases de préparation :

- les cellules sont soufflées dans les mêmes conditions à partir de la même canne de pyrex ;

- le nettoyage, l'étuvage, le remplissage sont faits conjointement sur le banc de J. Brossel. Ce banc est installé de telle sorte qu'on peut préparer simultanément quatre cellules lorsque les échantillons ne diffèrent que par la pression d'un seul des constituants du mélange gazeux.

Nous avons réalisé à plusieurs reprises par une telle méthode des cellules "jumelles" : même origine, même campagne de remplissage, même contenu. La reproductibilité des mesures de  $T_1$  de l'une à l'autre s'inscrit dans la limite de  $\pm 15 \%$ .

V.B.2. - Variations de  $T_1$  avec l'épaisseur du sous-enduit d'hydrogène

V.B.2.a - Conditions d'étude

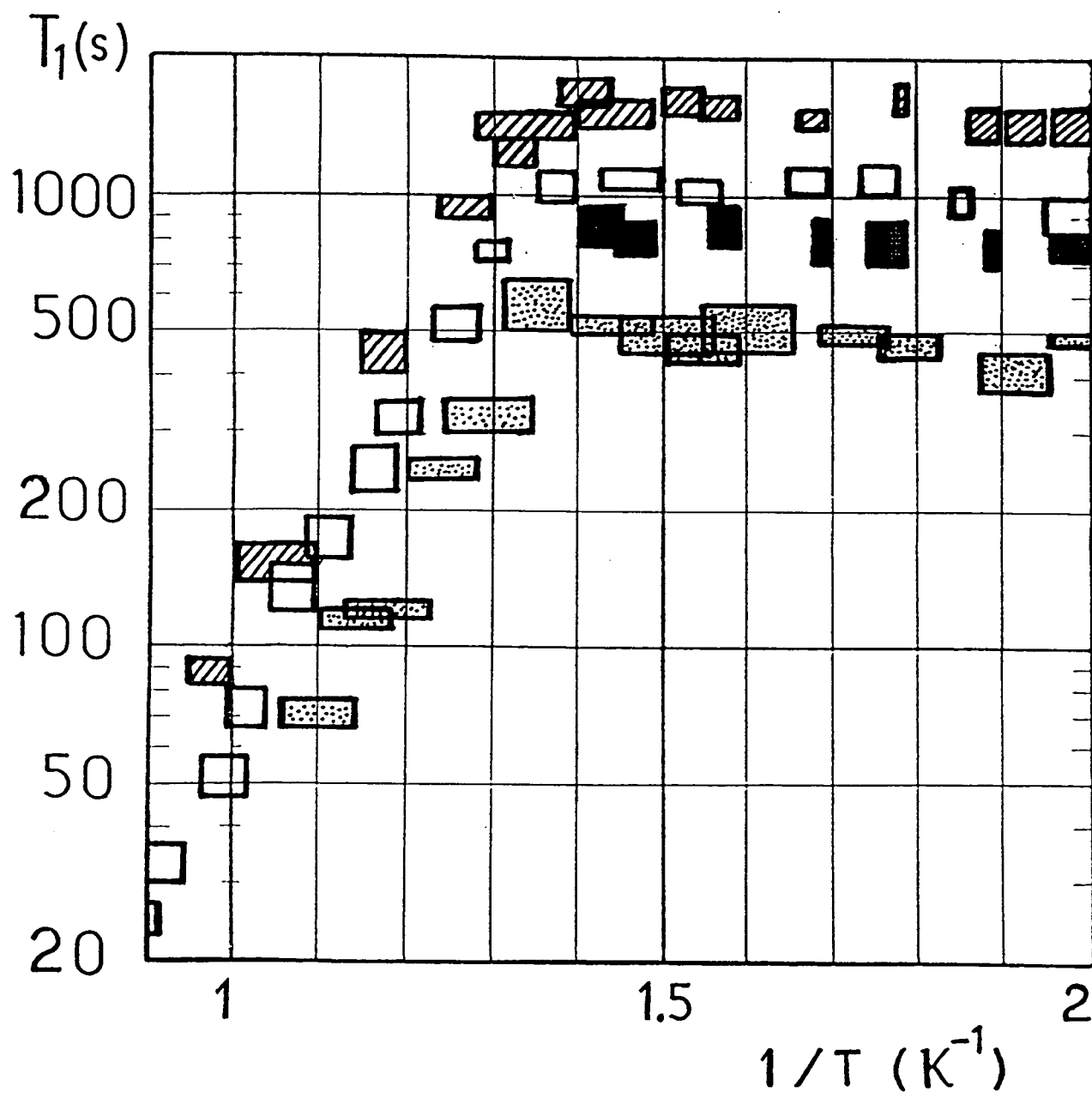
Il est apparu au paragraphe V.A que l'expression du taux de relaxation en phase adsorbée et donc de  $T_1$  dans la cellule est fonction de la distance à la paroi  $z_0$ . En faisant varier l'épaisseur de l'enduit d'hydrogène condensé préalablement au dépôt du film d'hélium on peut étudier la dépendance de  $T_1$  avec la distance de la phase condensée au pyrex. Plus précisément, le paramètre contrôlé est la pression de remplissage en gaz hydrogène dans la cellule. Or, la croissance d'un enduit solide d'hydrogène moléculaire sur une paroi de pyrex n'est pas régulière, comme il a été expliqué au III.A.2.b. L'épaisseur d'un enduit homogène de  $H_2$  est donc probablement limitée à un faible nombre de couches.

Nous avons testé deux séries de quatre cellules, contenant chacune une densité gazeuse initiale de 2 torr d' $^3\text{He}$  et de 2 torr d' $^4\text{He}$ . Ainsi, le nombre de spins est suffisant pour obtenir un bon rapport signal sur bruit et l'exploration de toute la gamme de température  $1\text{ K}^{-1} \leftrightarrow 2\text{ K}^{-1}$  correspond au processus complet de formation du film d'hélium-4.

#### V.B.2.b - Résultats expérimentaux obtenus

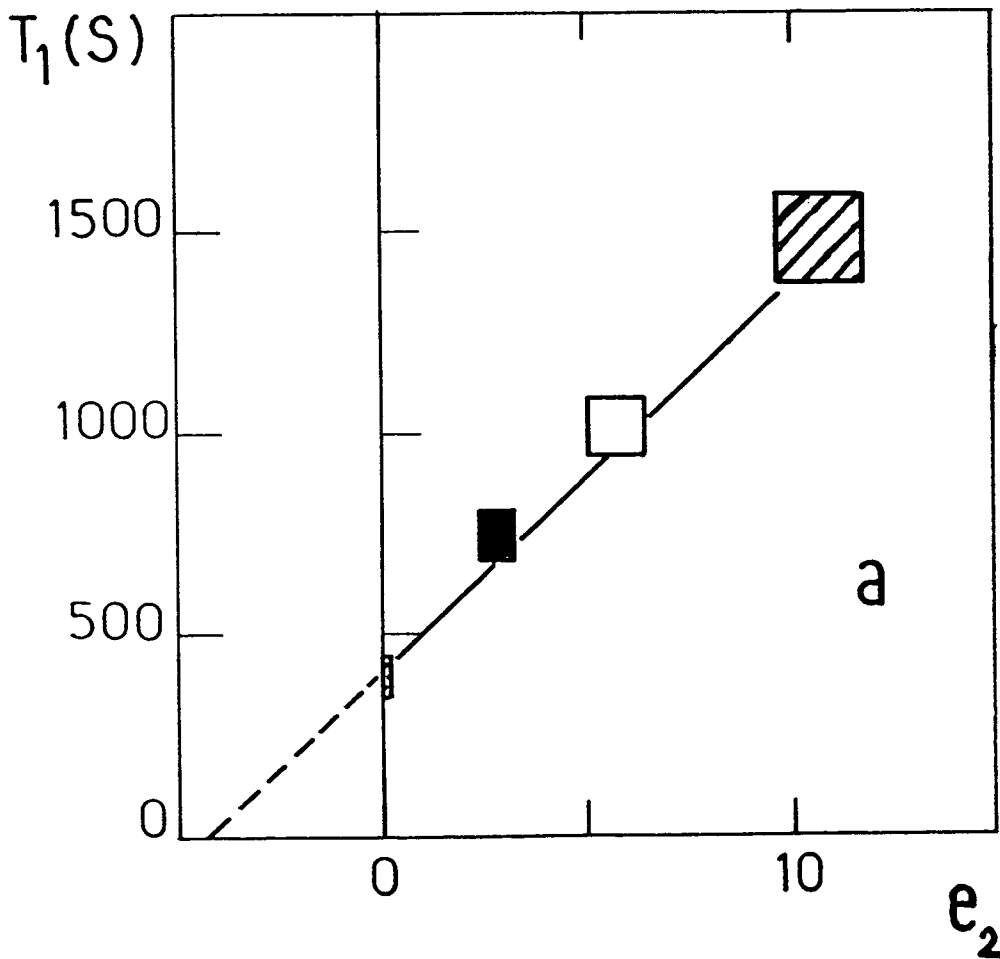
Sur la figure V-4 sont présentées les mesures de  $T_1$  effectuées pour une série de quatre cellules remplies simultanément ; elle contiennent chacune 2 torr à 300 K de  $^3\text{He}$  ; leur densité nominale de remplissage en gaz hydrogène est respectivement de 0 torr ; 0,17 torr ; 0,34 torr ; 0,63 torr. Ces contenus permettent de former à basse température un enduit qui, s'il était déposé sur la surface géométrique de la cellule, serait d'une épaisseur égale à 0 ; 3 ; 6 ; 11,5 couches. On constate que les quatre courbes " $\ln(T_1)$  fonction de  $1/T$ " ont un aspect identique ; leur forme a été brièvement évoquée au I.C. En particulier l'abscisse du "coin" correspondant au point de rosée pour  $^4\text{He}$  est le même pour les différentes cellules puisqu'elles contiennent la même quantité de  $^4\text{He}$ .

Figure V-4 : Variations de  $T_1$  avec la quantité d'hydrogène initialement présente dans la cellule. Les quatre séries de points correspondent à quatre cellules remplies simultanément, avec une pression de remplissage en  $^3\text{He}$   $p_3 = 2,01$  torr à 300 K et une pression de remplissage en  $^4\text{He}$   $p_4 = 2,05$  torr à 300 K communes, mais une quantité variable de  $\text{H}_2$  permettant de former à basse température un sous-enduit épais respectivement de 0 (☐); 3 (■) ; 6 (□) ; 11,5 (▨) couches "géométriques" d'hydrogène.

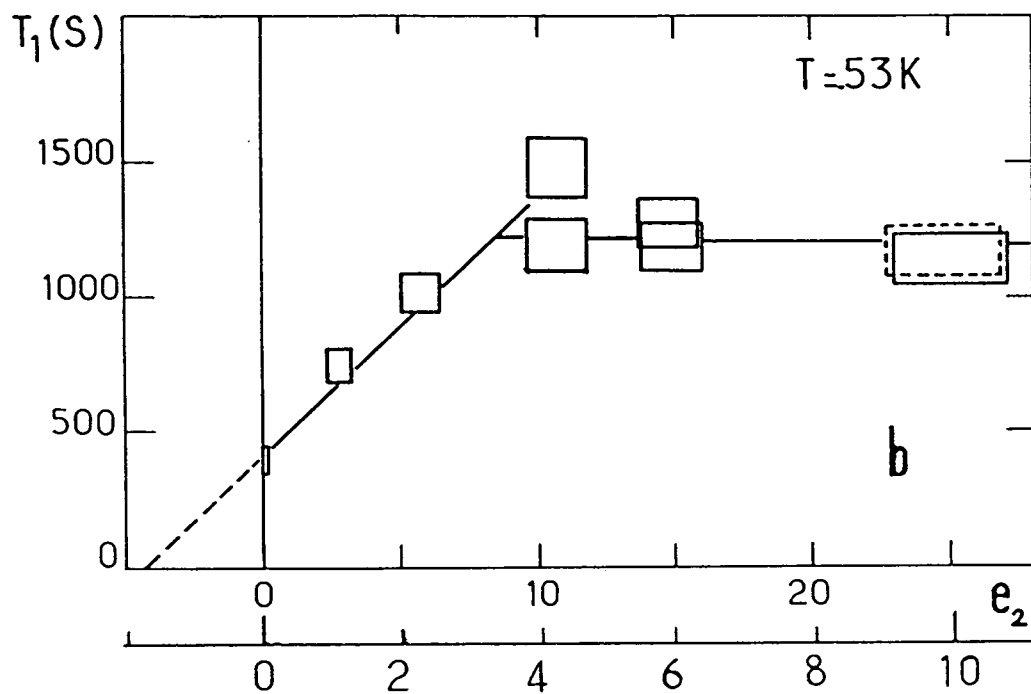




On constate sur la figure que le temps de relaxation pour ces quatre cellules est à toutes les températures une fonction croissante de l'épaisseur de  $H_2$  ; les courbes se déduisent l'une de l'autre pour une simple translation le long de l'axe vertical. L'influence de l'épaisseur du sous-enduit ne dépend pas, apparemment, de la fraction du film d'hélium 4 déjà condensé, et il suffit donc d'étudier les variations de  $T_1$  avec l'épaisseur à une température donnée. C'est pourquoi, sur la figure V-5-a, ont été portées les valeurs de  $T_1$  à 0,53 K pour les quatre cellules correspondant aux résultats de la figure V-4 en fonction de l'épaisseur nominale de l'enduit d'hydrogène.  $T_1$  est bien une fonction croissante de  $e_2$ .



*Figure V-5.a): Valeurs mesurées de  $T_1$  à basse température ( $T = 0,53$  K) en fonction de l'épaisseur supposée des sous-enduits d'hydrogène, exprimée en "couches géométriques" déposées sur la surface S des cellules. Sur le schéma (a) on a isolé les résultats correspondant au jeu de cellules associé à la figure V-4.*



*Figure V-5.b):* La valeur relative a un échantillon contenant moins de  $^3\text{He}$  ( $d_3 = 1$  torr à 300 K) a été portée en pointillés sur le schéma (b). Pour tous les autres points,  $d_3$  vaut 2 torr à 300 K.

Cependant, l'augmentation de  $T_1$  sature lorsqu'on accroît la quantité d'hydrogène : les résultats pour un autre ensemble de quatre cellules remplies avec une densité d'hydrogène plus forte ont été portés sur la figure V-5-b.

On constate d'autre part que la valeur de  $T_1$  obtenue est identique lorsque la densité de remplissage en  $^3\text{He}$  est deux fois moindre (les pointillés sur la figure V-5-b correspondent à  $p_3 = 1$  torr à 300 K).

#### V.B.2.c - Interprétation des résultats

Le premier résultat qui se dégage des courbes observées est que la présence d'hydrogène n'est pas nécessaire à l'obtention d'un temps de relaxation long : avec 0 torr de  $\text{H}_2$ ,  $T_1$  à basse température atteint 500 s. Le taux d'orientation par le pompage optique obtenu n'est pas plus affecté par l'absence de  $\text{H}_2$  que ne le laisse prévoir la baisse de  $T_1$  d'un facteur deux par rapport aux résultats caractéristiques de I.C, alors que le temps de pompage dans la cellule reste de l'ordre de 100 s. Ce fait confirme, s'il en était besoin, que l'effet "protecteur" des spins excités est dû à leur exclusion du voisinage de la paroi par l'hélium-4, dont la présence est indispensable à si basse température.

D'autre part, la variation de  $T_1$  avec  $e_2$  a une forme analogue quelle que soit la température, c'est-à-dire quelle que soit l'épaisseur du film d'hélium-4 situé au dessous de l'enduit d'hydrogène ; ce résultat est compatible avec un processus de relaxation se manifestant de façon intense dans les toutes premières couches du film d'hélium-4, c'est-à-dire à courte distance dans l'hélium-4. Le caractère non singulier du comportement de la cellule dépourvue d'hydrogène suggère cependant d'exclure la toute première couche du film, dont la structure ne peut manquer d'être affectée dès 1 K par un potentiel paroi beaucoup plus attractif que celui de  $\text{H}_2$ .

■ On peut préciser la variation de  $T_1$  avec  $e_2$  : dans le domaine  $0 \leftrightarrow 10$  couches géométriques, l'accroissement de  $T_1$  avec  $e_2$  est compatible avec une loi linéaire ; le taux de relaxation en phase adsorbée varie comme  $1/z$ . Ce résultat correspond au modèle ayant abouti à l'expression (V-21-a) du taux de relaxation et donc aux hypothèses associées. La distance caractéristique au substrat obtenue ici donne un ordre de grandeur de  $z_0$ , et donc de l'intensité des inhomogénéités du champ relaxant; pour assurer  $\Gamma_a^{-1} \approx 20s$  il faut un champ de l'ordre d'une fraction de Gauss à quelques A.

■ Pour une épaisseur  $e_2$  supérieure à 10 couches  $T_1$  reste constant. Cette saturation peut être comprise en supposant une croissance de type II pour l'enduit d'hydrogène. Le modèle décrit au (III.A.2.b) prévoit que l'épaisseur maximale d'un film régulier et homogène est 3 ou 4 couches. On trouve  $e_2 \approx 10$  sur la figure V.5.b. Le rapport 2 à 3 obtenu pourrait provenir du rapport entre la surface effective sur laquelle se dépose l'enduit (le pyrex) et la surface géométrique de la cellule. Une valeur aussi élevée est un peu surprenante, mais il ne s'agit que d'un ordre de grandeur ; une mesure indépendante de ce rapport semble très difficile. C'est pourquoi la deuxième échelle horizontale de la figure V-5-b, exprime  $e_2$  en "couches effectives" en ayant adopté un rapport de 2,5 entre les surfaces effective et géométrique...

La partie de la courbe linéaire en  $e_2$  -- compatible avec une loi en  $1/z$  pour le taux de relaxation -- suggère l'interprétation quantitative suivante. En l'absence d'hélium 4, le temps de relaxation dans la cellule est en dessous de 1 K très court quelle que soit la quantité de  $H_2$  présente ; à l'échelle de la figure V-5 il est nul. En l'absence d'hydrogène mais en présence d'hélium,  $T_1$  n'est pas nul ; supposons que les spins ne puissent approcher la paroi qui provoque la désorientation en-deçà d'une certaine limite. L'épaisseur de la partie du film d'hélium-4 qui dans cette hypothèse serait inaccessible est simplement l'abscisse du point d'interaction de la droite de proportionnalité  $T_1 \leftrightarrow e_2$  et de l'axe  $T_1 = 0$ . Cette construction (voir figure V-5-a) donne une épaisseur de 4 couches géométriques d'hydrogène (ou

d'hélium), ce qui est sans doute un majorant de l'épaisseur réelle. Le même rapport que précédemment lui associerait 1,5 couches "effectives".

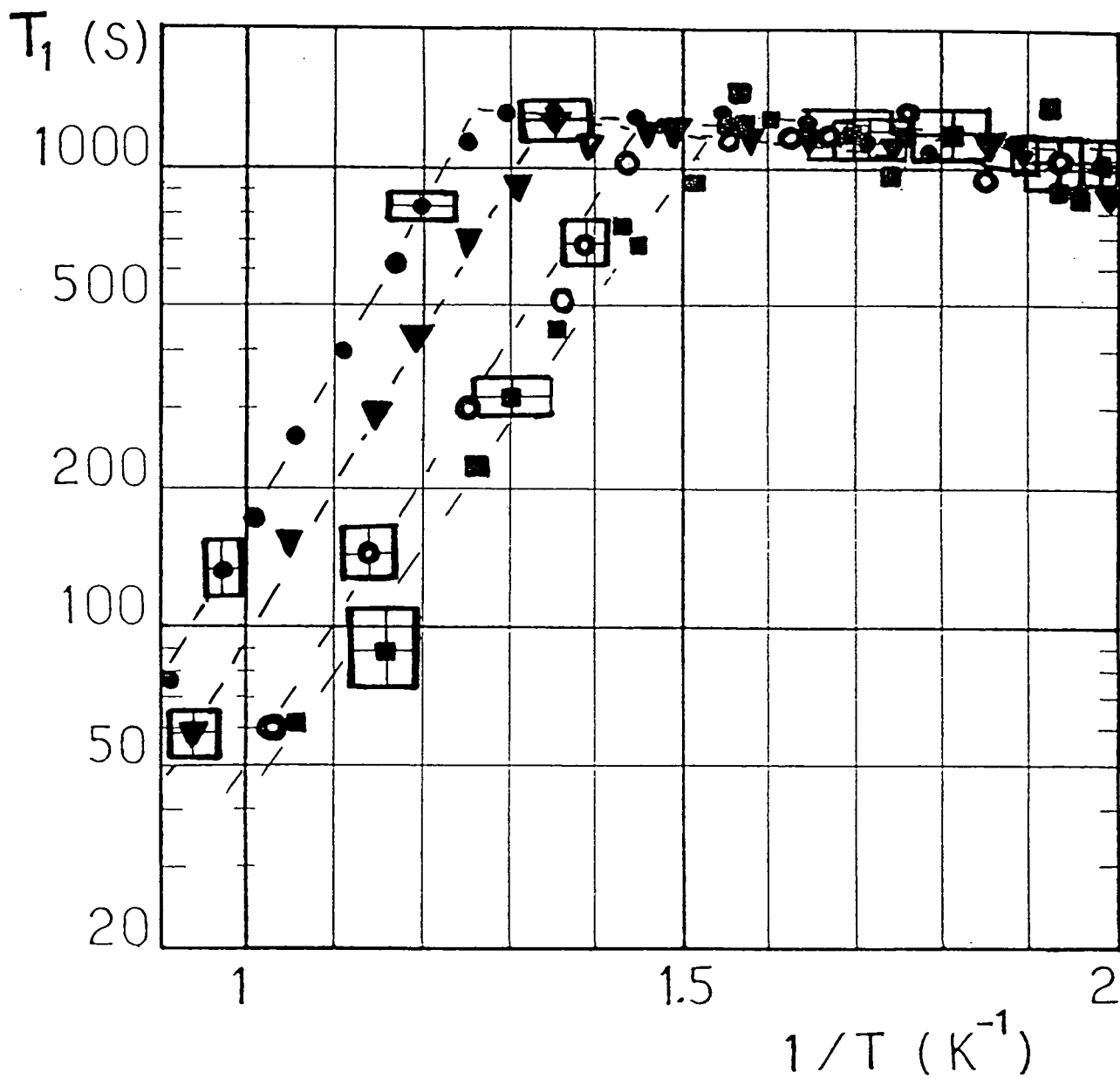
En conclusion, l'étude des variations de  $T_1$  avec l'épaisseur du sous-enduit d'hydrogène suggère un mécanisme de relaxation très localisé au voisinage immédiat des premières couches du film d'hélium-4 ; le champ relaxant lui-même varie nécessairement sur des distances de l'ordre de la taille d'une couche atomique.

### V.B.3 - Variations de $T_1$ avec la quantité de $^4\text{He}$ condensée sur la paroi

#### V.B.3.a - Les variations observées

Par le biais de la densité de remplissage en  $^4\text{He}$ , on peut contrôler l'épaisseur du film une fois que celui-ci est totalement condensé à basse température ( $T \approx 0,5 \text{ K}$ ). Les mesures de  $T_1$  correspondant à une série de quatre cellules au remplissage varié en  $^4\text{He}$  sont présentées sur la figure V-6. Ces cellules contiennent, en torr à 300 K,  $p_3 = 1 \text{ torr}$ ,  $p_2 = 1,5 \text{ torr}$ , et  $p_4 = 4,0 ; 1,9 ; 1,0 ; 0,3 \text{ torr}$ . La valeur  $p_2 = 1,5 \text{ torr}$  assure que l'enduit d'hydrogène a atteint son épaisseur maximale de croissance régulière.

*Figure V-6 : Variations de  $T_1$  pour un jeu de cellules de remplissage divers en  $^4\text{He}$  : on a représenté les résultats correspondant à des échantillons contenant initialement une densité en  $^4\text{He}$  égale à 4,0 (●) ; 1,9 (▼) ; 1,0 (○) ; 0,3 (■) torr à 300 K. Pour plus de lisibilité les barres d'erreur n'ont été indiquées que pour quelques points particuliers. Les droites en trait interrompu ajustées aux différents groupes de points dans la zone "haute température" permettent de définir empiriquement pour chaque échantillon l'abscisse  $T_{c.o.1n}^{-1}$  à laquelle les valeurs de  $T_1$  observées rejoignent une courbe commune dans la zone "basse température".*



■ Aux incertitudes de mesure près, la partie "basse température" est commune à toutes ces courbes : le taux de relaxation dans la cellule ne dépend pas de l'épaisseur du film d'hélium-4 lorsque celui-ci est épais [Himbert et Dupont-Roc, 1984].

■ La partie "haute température" n'est pas commune aux différentes courbes : plus la densité initiale d' $^4\text{He}$  est importante, plus l'augmentation rapide de  $T_1$  qui traduit l'effet d'adsorption préférentielle de  $^4\text{He}$  sur la paroi se manifeste à une température élevée ; ainsi les parties croissantes des courbes semblent décalées vers les grandes valeurs de  $1/T$  au fur et à mesure que  $p_4$  diminue.

#### V.B.3.b - Interprétation

##### *α) Lien entre $T_1$ et $\tilde{\mu}_4$*

Plus précisément, on peut faire une corrélation entre les variations de  $T_1$  et les variations du potentiel chimique de l'hélium-4 dans chacune des cellules. Le résultat d'une détermination théorique des variations du potentiel chimique  $\tilde{\mu}_4$  est présenté sur la figure V-7. Dans la partie "basse température" le film condensé ressemble à un liquide libre et le potentiel chimique approche la valeur constante  $-7,2$  K. En revanche, la zone "haute température" est, pour chaque cellule, limitée par la valeur de la température de vaporisation correspondant à la densité d'hélium : à une température plus élevée, c'est le gaz (supposé parfait) de densité presque constante qui gouverne les variations de  $\tilde{\mu}_4$  ; qui croît donc rapidement avec  $1/T$ . Le raccordement dans la zone intermédiaire a été effectué en calculant le paramètre  $\tilde{e}_4$  à l'aide du modèle FHH (III.B.3).

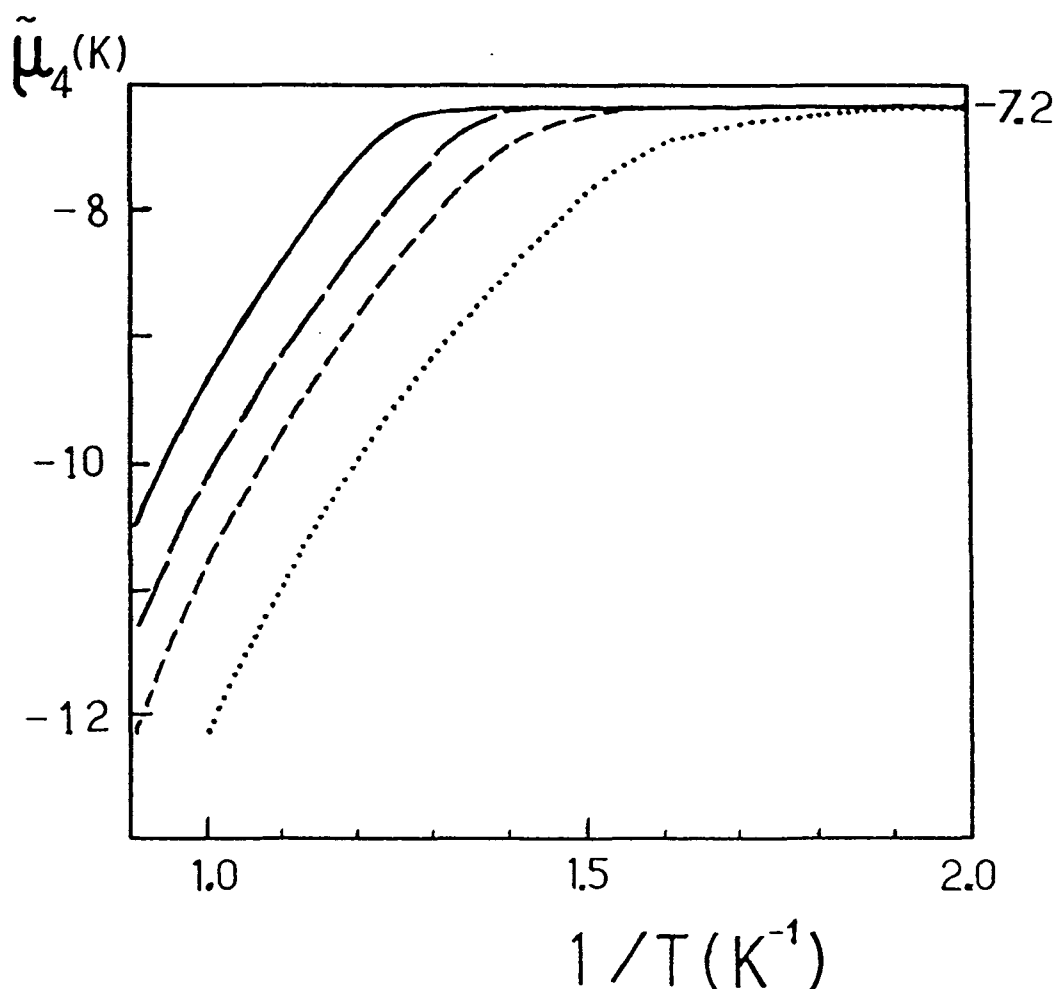
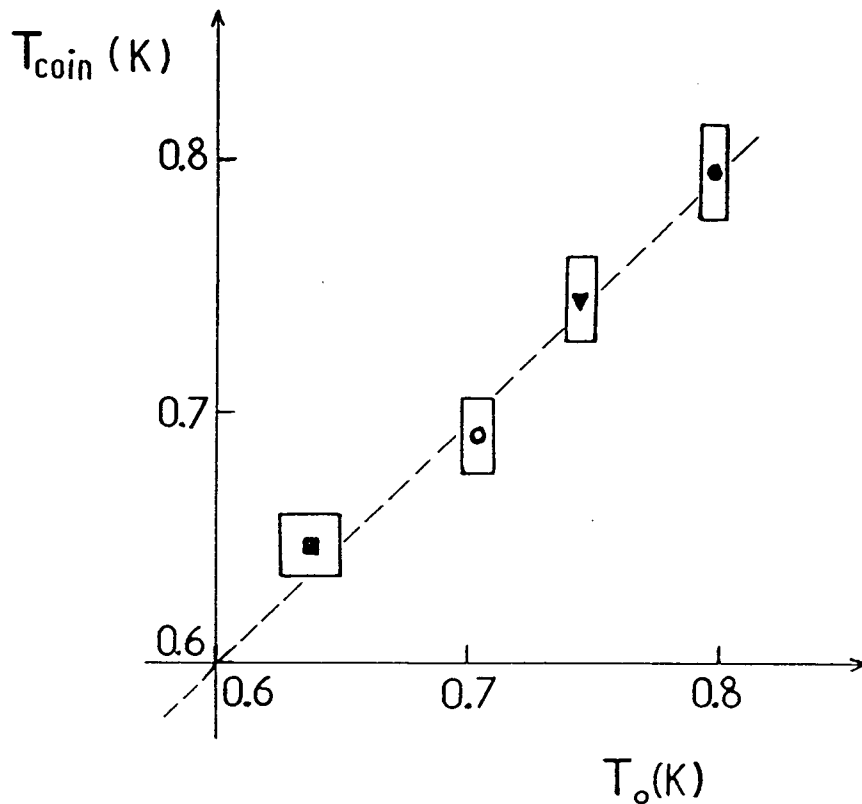


Figure V-7.: Potentiel chimique  $\tilde{\mu}_4$  dans les échantillons correspondant aux résultats de la figure V-6. La densité de remplissage en hélium-4 vaut respectivement 4,0 (—); 1,9 (— —); 1,0 (---); 0,3 torr (●●●●●) à 300K. Pour calculer  $\tilde{\mu}_4(T)$  on a supposé que l'épaisseur du film prenait la valeur  $\tilde{e}_4(T)$  donnée par le modèle F.H.H. (§ II-B-3-a)



Ainsi, le "seuil de condensation" peut être grossièrement repéré par la valeur  $T_0$  de  $T$  correspondant au point de rosée dans chaque cellule. On a représenté sur la figure V-8 en fonction de  $T_0$  la valeur  $T_{\text{coin}}$  de  $T$  à laquelle se produit le raccordement entre la partie croissante des courbes de  $T_1$  et la courbe commune à plus basse température. Les points obtenus sont très proches de la première bissectrice, assurant  $T_{\text{coin}} = T_0$ .



*Figure V-8: Lien entre  $T_{\text{coin}}$  et la température de rosée  $T_0$  pour les quatre cellules de la Figure V-6. Les points obtenus sont compatibles avec la relation  $T_0 = T_{\text{coin}}$  qui correspond à la première bissectrice, tracée en trait interrompu.*

L'arrêt de la croissance de  $T_1$  semble donc lié à l'arrêt de la croissance du potentiel chimique  $\tilde{\mu}_4$  lorsque le film devient épais : dans la cellule, les conditions de vapeur saturantes sont alors réalisées.

*$\beta$ ) Augmentation de la densité de  $^4\text{He}$*

Ces résultats ont été étendus aux cellules contenant une densité plus forte d'hélium 4 : 8 torr et plus de 100 torr à 300 K. L'accroissement de l'épaisseur maximale du film n'a pas d'influence sur la valeur de  $T_1$  à basse température. Pourtant dans le cas de remplissage à densité élevée, l'épaisseur maximale théorique du film pouvant être formé à 0,5 K sur la surface de la cellule excède de beaucoup la limite due à l'effet des forces de gravité : le film est déformé, présentant une large flaque liquide au point le plus bas de l'échantillon. En revanche, le point de rosée et donc le point prévu pour la variation brusque sur la courbe de variations de  $T_1$  se situent à plus haute température. La valeur théorique correspondant à la cellule au remplissage supérieur à 100 torr est  $T = 1,15$  K. Mais avec une telle densité gazeuse de  $^4\text{He}$  le pompage optique est inefficace et la diffusion dans le gaz est très ralentie, ce qui rend l'étude difficile.

*$\gamma$ ) Conclusions et perspectives*

La conclusion de cette étude est donc la suivante : la variation du remplissage en  $^4\text{He}$  modifie simplement la température d'apparition d'un enduit efficace et non l'efficacité de l'enduit ; celle-ci ne change plus, semble-t-il, dès que les premières couches sont condensées.

Il pourrait être tentant de comparer dans la zone "haute température" la valeur de  $T_1$  obtenue pour les différentes cellules à épaisseur donnée du film d'hélium-4 (1 couche, 2 couches, ...). La précision des mesures et surtout le peu de fiabilité de la détermination du "nombre de couches condensées" (voir III) ne permet pas de conclure proprement. En revanche, à

une température plus élevée que le point de rosée, les variations du potentiel chimique de l'hélium-4 dans la cellule sont bien corrélées à celles de  $T_1$  pour les différents échantillons.

Enfin, la cellule étudiée de plus faible remplissage ( $p_4 = 0,3$  torr) donne l'ordre de grandeur d'un majorant du nombre de couches d'hélium-4 "utile" pour diminuer l'intensité de la relaxation-paroi : la condensation de la totalité de l'hélium-4 correspondant donne un film épais de moins de six couches, l'épaisseur étant calculée d'après la surface géométrique du pyrex. Or à 0,5 K cette cellule donne une valeur de  $T_1$  identique aux autres. Diminuer encore l'épaisseur du film, donc diminuer la pression initiale de  $^4\text{He}$  dans la cellule, permettrait d'accéder à l'épaisseur minimale indispensable du film. Malheureusement, la technique d'orientation utilisée (le pompage optique à basse température) exige l'allumage de la décharge une fois le film condensé et la température du point de rosée décroît quand décroît la densité de  $^4\text{He}$ . Notre appareillage cryogénique ne permet pas de dissiper les quelques 5 mW liés à l'allumage et l'entretien d'une décharge en dessous de 0,6 K. Diminuer  $p_4$  en-deçà de 0,3 torr exigerait donc de changer de réfrigérateur ; de plus, il faut peut-être s'attendre en dessous de 0,5 K à l'apparition d'effets de relaxation autres que l'interaction individuelle atome-paroi, comme cela a été suggéré au paragraphe II.B.2.c.

#### V.B.4 - Autres résultats expérimentaux

##### V.B.4.a - Les différentes verreries

Aux deux paragraphes précédents, nous avons systématiquement isolé des autres résultats les courbes correspondant à des cellules remplies simultanément et préparées conjointement. En effet, il s'avère que le type de verre utilisé peut affecter la relaxation de l'hélium 3. Cet effet a été mis en évidence de deux manières :

- Au cours des expériences préliminaires [Himbert et al., 1983], il a été observé que pour une cellule construite en verre

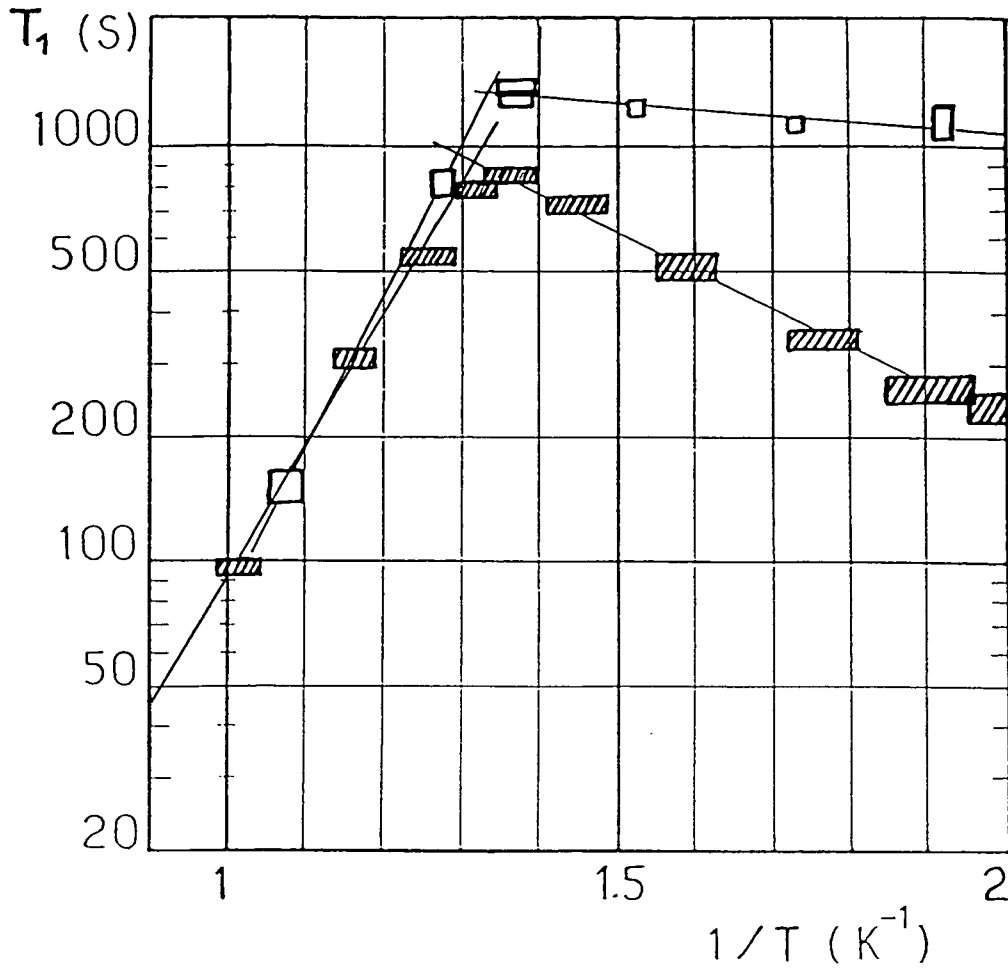
Corning, la décroissance de  $T_1$  avec  $T$  était plus rapide que pour des cellules en Pyrex.

■ Au cours des mesures exposées ici certaines cellules en pyrex ont présenté des caractéristiques analogues à celles observées pour la cellule en verre "Corning" : même ordre de grandeur de  $T_1$ , mais croissance moins rapide de  $T_1$  lors de la condensation des premières couches de décroissance plus rapide lorsque le film est formé, quand la température décroît, que pour les autres cellules en pyrex. Ces modifications des variations de  $T_1$  n'ont cependant pas pu être corrélées avec quelque paramètre expérimental que ce soit : modification du montage cryogénique, champ magnétique, etc. La figure V-9 présente les résultats obtenus pour deux cellules différentes, ayant même composition intérieure nominale et remplies SIMULTANEMENT .

L'une des courbes reproduit les résultats décrits sur la figure I-4, l'autre est composée de deux segments de droite dont les pentes sont différentes :

+ 8.7	et	- 0.3	dans le premier cas
+ 7.3	et	- 2.1	dans le second cas

La seule différence entre ces cellule est qu'elle n'ont pas été soufflées à partir de la même canne de pyrex, la première ayant été préparée en même temps que celles dont les résultats sont portés figure V-6, la seconde étant postérieure. Obtenir des comportements différents pour des verres différents confirme que l'origine de la relaxation doit être recherchée au voisinage de la paroi. Mais tout modèle de relaxation proposé pour décrire les résultats doit tenir compte de ces résultats variés. Notons cependant que si, de fait, les valeurs nominales des pentes des segments de droite obtenus sont différentes, en revanche la différence entre ces valeurs est à peu près la même ; nous verrons au V-C qu'il est possible de relier de façon intrinsèque cette différence à l'évolution des caractéristiques du film d'hélium-4 lors de la condensation.



*Figure V-9 : Mise en évidence de l'influence de la verrerie : les deux courbes ont été obtenues avec deux échantillons gazeux de même composition  $p_2 = 1,50$  ;  $p_3 = 1,95$  ;  $p_4 = 2,02$  torr à 300 K introduits simultanément dans deux cellules d'origine différente.*

V.B.4.b - Variations de  $T_1$  avec la quantité de  $^3\text{He}$

*α) Résultats obtenus*

Le dernier paramètre ajustable dans la composition de l'échantillon est, bien entendu, la densité de  $^3\text{He}$  présente dans la cellule. En effet, dans le cadre de l'hypothèse "relaxation-paroi",  $T_1$  est donné par la relation (V-8); soit  $N_3^A$  (respectivement  $N_3^G$ ) le nombre total d'atomes  $^3\text{He}$  présents en phase adsorbée (respectivement gazeuse).  $T_1$  peut dépendre du nombre total  $N_3$  d'atomes d'hélium-3 dans l'échantillon au travers de:

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_a} \cdot \frac{N_3^A}{N_3} \quad (\text{V-27})$$

Lorsque l'adsorption de  $^3\text{He}$  est un processus individuel (par exemple lorsque la phase adsorbée est très diluée) le rapport  $N_3^A/N_3$  est indépendant de  $N_3$ . Mais si  $N_3$  est augmenté, il n'est pas exclu qu'un processus de saturation puisse se manifester. A la limite de saturation complète de la phase adsorbée,  $N_3^A$  est une constante, et  $T_1$  devient proportionnel à  $N_3$ .

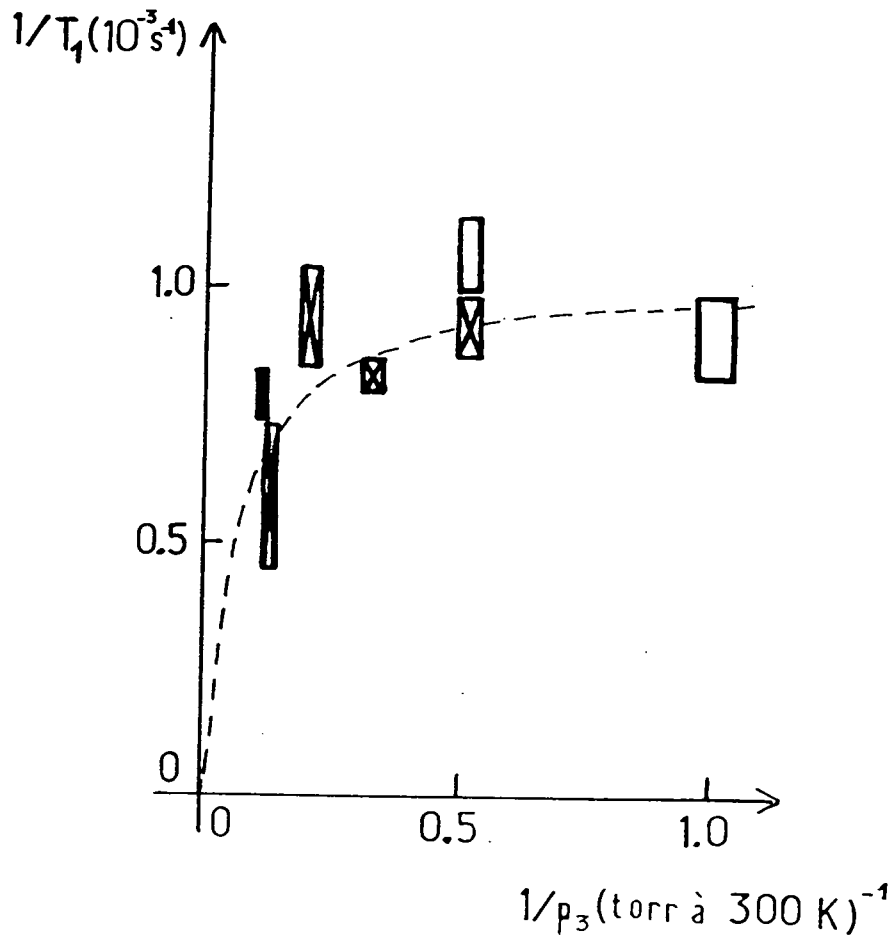
Les résultats présentés aux paragraphes précédents ont fait intervenir indifféremment, on l'a vu, des cellules contenant une densité d'hélium-3  $p_3 = 1$  torr ou  $p_3 = 2$  torr à 300 K sans qu'aucune modification n'apparaisse. L'étude a été poursuivie pour des pressions supérieures avec des cellules préparées et remplies conjointement donc le contenu est, en torr à 300 K, le suivant :

$$p_4 = 2 \text{ torr}$$

$$p_2 = 0,6 \text{ torr (remarque analogue à celle du V.B.3.a)}$$

$$p_3 = 1,95 ; 3,08 ; 5,1 ; 8,05 \text{ torr}$$

Les valeurs de  $1/T_1$  en fonction de  $1/p_3$  dans ces différentes cellules ont été portées sur la figure V-10 pour une température égale à 0,67K, donc inférieure à celle du point de liquéfaction de  $^4\text{He}$  sur la paroi.



*Figure V-10 : Variations de  $T_1$  avec la densité de  $^3\text{He}$  dans l'échantillon. Les mesures ont été effectuées à 0,67 K, pour un groupe de quatre cellules de contenu en  $^4\text{He}$  et  $\text{H}_2$  préparées simultanément (■). Ont également été représentés les résultats obtenus pour deux autres cellules de contenu identique en  $^4\text{He}$  et  $\text{H}_2$  (□) et pour la cellule étudiée conjointement avec l'Université de Sussex (■). La courbe en trait interrompu est la meilleure approximation homographique des points contenant l'origine.*

Les conclusions doivent rester prudentes : on observe effectivement une croissance de  $1/T_1$  avec  $1/p_3$  pour les fortes densités ; au contraire il semble que  $T_1$  ne dépende pas de  $p_3$  aux faibles densités. On a également reporté sur la figure V-10 des résultats complémentaires correspondant aux cellules antérieurement étudiées, et à la cellule de taille différente étudiée en collaboration avec le groupe de M. Richards de l'Université de Sussex. Cependant, pour comparer sur la figure V-10 la valeur de  $1/T_1$  obtenue dans la cellule de C. Lusher [1985] (rayon  $R' = 1.0$  cm) aux valeurs obtenues dans nos cellules (rayon  $R = 1.5$  cm), il faut tenir compte du fait que le rapport entre la surface relaxante et le volume contenant les atomes excités diffèrent d'un cas à l'autre. Or, la relation (V-27) peut s'écrire :

$$\frac{1}{T_1} \sim \frac{1}{T_a} \times \frac{1}{p_3} \times n_3^A \times \frac{1}{R} \quad (\text{V-28})$$

où  $n_3^A$  est la densité surfacique en  $^3\text{He}$  dans la phase absorbée,  $p_3$  la densité dans la cellule,  $R$  le rayon de la sphère. Ainsi, la quantité  $\left( R \cdot \frac{1}{T_1} \right)$  ne dépend que des variables intensives. C'est

donc le produit  $\left( \frac{1}{T_1} \times \frac{R'(\text{Sussex})}{R(\text{Paris})} \right)$  que nous avons reporté sur la figure V-10 pour la cellule de C. Lusher.

### *β) Tentative d'interprétation*

L'ensemble des résultats reportés sur la figure V-10 n'est pas incompatible avec une loi homographique ; une approximation de ce type en coordonnées  $(p_3^{-1}, T_1^{-1})$  correspond à la courbe en trait interrompu. Dans l'hypothèse évoquée au IV.B.3 cette variation homographique est attendue : supposons en effet qu'il existe un ensemble fini de  $N_s$  sites d'adsorption privilégiée où  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  puissent être piégés dans un état d'énergie respectivement égale à  $\hat{E}_3$  et  $\hat{E}_4$  (c'est au cours de ce piégeage que  $^3\text{He}$  serait désorienté par le champ de la paroi). Si



est assez basse pour qu'aucun site ne soit vacant, la fraction d'atomes  $^3\text{He}$  situés dans la phase absorbée est donnée par la relation (C-8-a) de l'appendice C, qui peut s'écrire, dans la cellule où les potentiels chimiques de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  sont  $\tilde{\mu}_3$  de  $\tilde{\mu}_4$  :

$$\frac{N_3^A}{N_3^G} \simeq \frac{N_s}{N_3^G} \frac{2 \cdot \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_3 + \tilde{\mu}_3\right)\right)}{2 \cdot \exp\left(\beta\left(-\hat{E}_3 + \tilde{\mu}_3\right)\right) + \exp\left(\beta\left(\tilde{\mu}_4 - \hat{E}_4\right)\right)} \quad (\text{V-29-a})$$

Associée à (V-27), cette relation assure :

$$\frac{1}{T_1} \simeq \frac{1}{T_a} \frac{N_s}{N_3^G} \frac{1}{1 + \frac{V}{N_3^G \lambda_3^3} \exp\left[\beta\left(\tilde{\mu}_4 - \hat{E}_4 + \hat{E}_3\right)\right]} \quad (\text{V-29-b})$$

Les deux paramètres caractérisant la loi homographique tracée sur la figure V-10 permettent alors de déterminer :

- $(\hat{E}_4 - \hat{E}_3) \simeq -4 \text{ K}$  ( $T$ ,  $\tilde{\mu}_4$ ,  $V$ , et la longueur d'onde de De Broglie,  $\lambda_3$  sont connus)
- le rapport  $(N_s/T_a)$  ; en supposant que la densité des sites accessibles sur la surface est égale à la densité d'une monocouche d'hélium à l'équilibre, on obtient  $T_a \simeq 3\text{s}$ .

Ces résultats restent cependant partiels et imprécis. L'accord entre les points expérimentaux et la courbe figure V-10 n'est pas très bon. Le paramètre  $p_3$  n'a pas été varié dans une gamme étendue de valeurs : à faible densité, le signal des spins est insuffisant ; à forte densité, le pompage optique direct devient inefficace.

### *$\gamma$ ) Cellules dépourvues d'hydrogène*

Nous avons aussi étudié trois cellules ne contenant pas d'hydrogène. La valeur de  $1/T_1$  à 0,67 K, en fonction de  $1/p_3$

apparaît sur la figure V-11 dans ces trois cas. On constate qu'à nouveau un processus de saturation n'est pas à exclure ; qualitativement, la saturation se manifeste à une densité  $p_3$  plus faible que dans le cas où existe un sous-enduit d'hydrogène, bien que la température retenue pour l'étude soit la même. Le sens de cette variation correspond à un substrat plus liant, donc des sites plus liants pour l'hélium et une valeur plus grande de la différence entre l'énergie de liaison de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$ . On s'attend effectivement à de tels effets lorsqu'on substitue le pyrex à l'hydrogène.

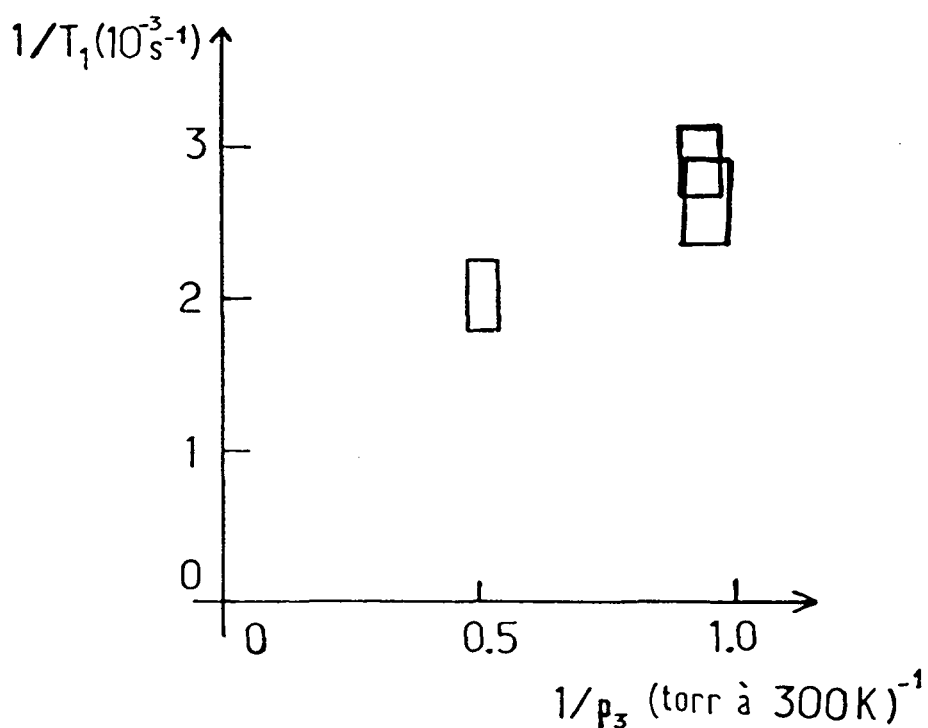


Figure V-11 : Variations de  $T_1$  avec la densité  $p_3$  en  $^3\text{He}$  pour trois cellules dépourvues d'hydrogène.

#### V.B.4.c - Résultats obtenus à plus haute température

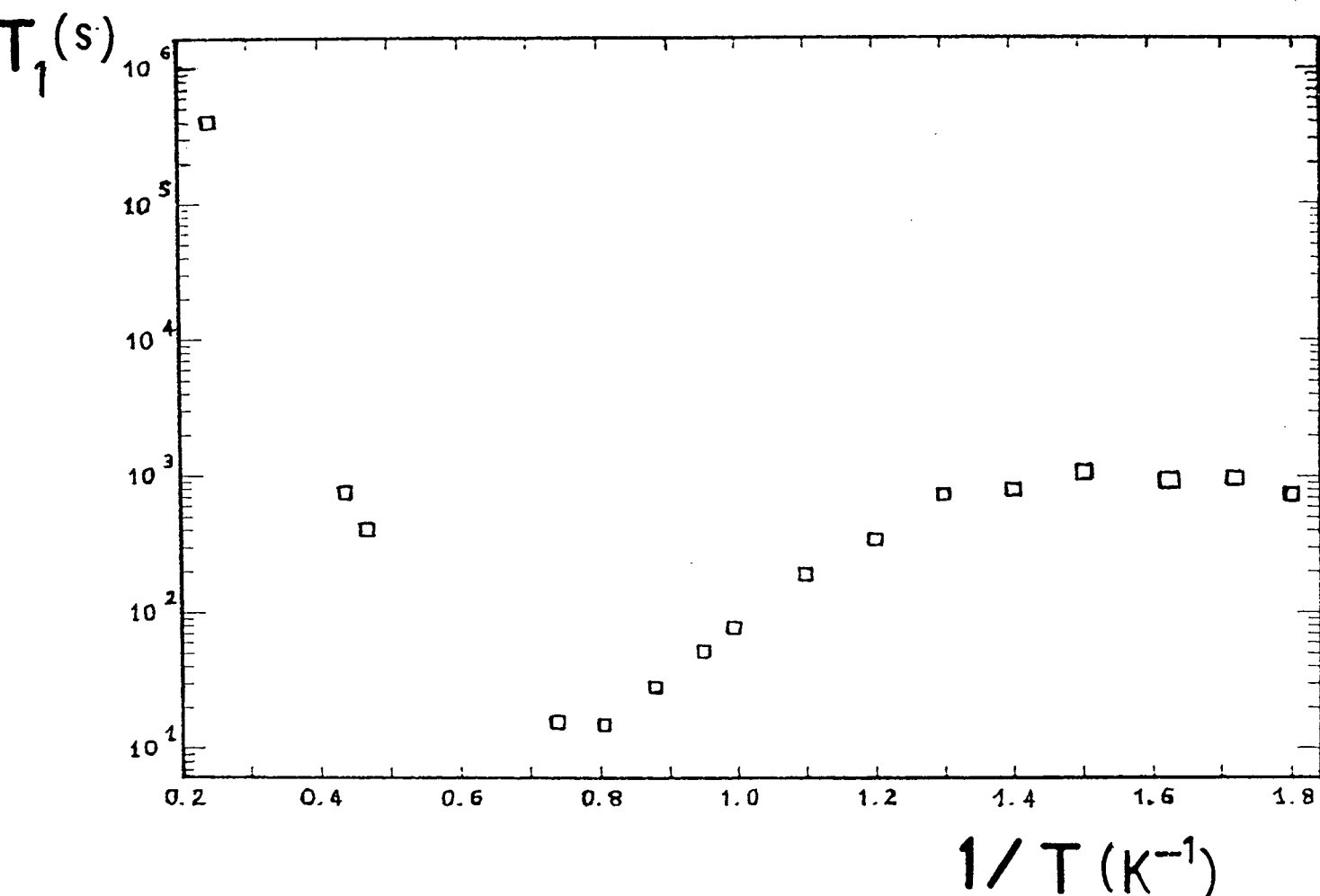
Il a semblé important de relier expérimentalement nos travaux aux expériences précédemment menées dans le groupe. Dans un cas particulier, nous avons montré qu'il était possible d'obtenir par pompage optique  $^3\text{He}$  orienté dans toute la gamme de température  $4.2 \text{ K} \leftrightarrow 0.5 \text{ K}$  en utilisant un enduit d'hydrogène puis un film d'hélium pour couvrir la paroi.

Les résultats obtenus pour une cellule particulière ont été portés sur la figure V-12. Dans la zone située à une température supérieure à  $1,5 \text{ K}$ , on effectue le pompage optique à  $4,2 \text{ K}$ , puis on abaisse la température pour mesurer  $T_1$ . En deçà, on effectue le pompage optique à  $0,6 \text{ K}$  ou  $0,75 \text{ K}$ , puis on réchauffe l'échantillon (lorsqu'on effectue le pompage optique à une température intermédiaire, l'enduit d'hydrogène est irrémédiablement perturbé par la décharge : voir V.B.1.a.α). Par des mesures analogues dans le domaine de température entre  $4,2 \text{ K}$  et  $2 \text{ K}$ , V. Lefevre a pu mesurer l'énergie d'adsorption individuelle d'un atome  $^3\text{He}$  sur l'hydrogène. A partir des résultats correspondants de la figure V-12, nous avons obtenu, en faisant les mêmes hypothèses qu'elle, la valeur

$$E_{^3\text{He}/\text{H}_2} \simeq - 16 \text{ K } (\pm 4 \text{ K})$$

compatible avec son résultat  $- 12 \text{ K} \pm 3 \text{ K}$  [Lefevre et al., 1985].

Le raccordement entre les courbes obtenues par V. Lefevre et nos expériences est ainsi explicitement effectué ; dans le cas particulier de la cellule étudiée,  $T_1$  présente un minimum de l'ordre de  $T_1 = 15 \text{ s}$  pour  $T \simeq 1,33 \text{ K}$ . A cette température, le film d'hélium 4 déposé sur  $\text{H}_2$  est probablement d'une épaisseur inférieure à  $1,5$  couche (voir figure III-10).



*Figure V-12* : Pour une cellule particulière la valeur de  $T_1$  a été mesurée dans toute la gamme de température 4,2 K  $\leftrightarrow$  0,6 K. La décroissance rapide de  $T_1$  quand T diminue entre 4,2 K et 2 K donne accès à l'énergie d'adsorption de  $^3\text{He}$  sur l'hydrogène.



V.C - ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX
---

## V.C.1 - Une relaxation localisée

Dans les paragraphes précédents, les conséquences de tel ou tel résultat sur le lieu où les atomes  $^3\text{He}$  subissent les processus de relaxation ont parfois déjà été évoquées. Cette recherche est indissociable du mécanisme d'interaction qui est à l'origine de la relaxation. Les relations fondamentales concernant  $T_1$  ont été établies au V.A. La relation (V-8) relie  $T_1^{-1}$  à la fraction adsorbée et au taux de relaxation en phase adsorbée : la relation (V-18) exprime  $\Gamma_a$  en fonction de  $\langle \delta B^2 \rangle$  et du temps de corrélation  $\tau_c$  ; les résultats des modèles discutés au V.A.3 (relations (V-21)) précisent les variations possibles de  $\Gamma_a$  avec la distance à la paroi. Nous nous proposons de rassembler dans ce paragraphe, en confrontant les prévisions aux résultats décrits au V.B, tous les éléments de réponse à la question suivante : où sont, dans nos échantillons, les atomes qui sont désorientés à basse température ? Plusieurs aspects de la relaxation observée font en effet peser des contraintes très fortes sur les conjectures que l'on peut établir à ce sujet : ils suggèrent en particulier une localisation précise des atomes dans la direction orthogonale à la paroi.

V.C.1.a - Conséquences des variations de  $T_1$  avec l'épaisseur des enduits

■ En dessous du point de rosée  $T_1$  augmente linéairement avec l'épaisseur  $e_2$  du substrat d'hydrogène. Il n'est pas exclu que d'autres variations, en  $(e_2)^\nu$  avec  $\nu \neq 1$ , soient compatibles avec nos résultats ; en particulier, ceux-ci pourraient être en accord avec une loi en  $\nu \leq 1$ . Mais l'effet principal observé est que  $T_1$  varie avec la distance du film de  $^4\text{He}$  au pyrex, de façon sensible sur une épaisseur faible de quelques couches atomiques ; cette variation est compatible avec le modèle de relaxation des atomes  $^3\text{He}$  diffusant dans un gaz bidimensionnel plan qui a conduit au résultat (V-21-a).

■ Supposons que l'épaisseur  $e_4$  du film de  $^4\text{He}$  puisse croître régulièrement lorsqu'on abaisse la température ou que l'on augmente  $p_4$ , (nous reviendrons sur cette hypothèse plus loin) : l'absence de variation de  $T_1$  avec  $e_4$  permet de tirer plusieurs conclusions. On imagine mal comment ce résultat pourrait être compatible avec un processus de relaxation mettant en cause l'ensemble des atomes  $^3\text{He}$  dissous dans le film : le simple épaissement de celui-ci fait changer la population correspondante d'un ordre de grandeur... sans effet sur  $T_1$  dans nos expériences. Cette absence de variation avec l'épaisseur du film de  $^4\text{He}$  exclut également les atomes piégés à la surface du film des candidats éventuels : le taux de relaxation de ces atomes par les inhomogénéités du champ créé par la paroi devrait être tout autant sensible à  $e_4$  qu'à  $e_2$ . On est donc amené à considérer que le processus de relaxation affecte principalement les atomes  $^3\text{He}$  dans les couches du film de  $^4\text{He}$  proches de l'interface avec l'hydrogène (ou proches du pyrex).

■ La conclusion précédente serait remise en cause si on admettait, comme cela a été suggéré par G. Dash, que la croissance régulière de  $^4\text{He}$  sur  $\text{H}_2$  est limitée à un faible nombre de couches, qui varie très peu lorsque  $T$  diminue. L'occurrence d'une croissance de classe II pour l'hélium (voir au paragraphe III.B.3.c) résoudrait les difficultés d'interprétation de la non-dépendance de  $T_1$  avec  $e_4$  en dessous du point de rosée. L'ordre de grandeur de l'épaisseur limite n'est d'autre part pas incompatible avec la proportion de  $^4\text{He}$  condensée au point de rosée, telle qu'elle est déduite des mesures de  $T_2$ ... À une épaisseur aussi faible, la description du film ne peut plus être la description macroscopique évoquée ci-dessus : localisation à la surface, confinement dans le film, le tout sur une épaisseur totale de l'ordre de quelques couches atomiques, ce qui est justement l'ordre de grandeur des variations explorées pour la distance totale des atomes d'hélium-3 à la paroi. On conçoit en revanche moins bien que puissent apparaître les prémices de saturation décrits au V.B.3. : au chapitre IV, nous avons montré que nous sommes toujours, pour les atomes dans le film, dans les conditions d'existence d'une phase dissoute très diluée.

Il semble néanmoins que ces hypothèses ne résistent pas aux considérations du paragraphe suivant.

#### V.C.1.b - Conséquences des variations de $T_1$ avec la température

D'après les relations (V-8) et (V-18), les variations de  $T_1^{-1}$  avec  $T$  suivent à la fois celles de la fraction d'atomes  $^3\text{He}$  adsorbée, et celles du temps de corrélation  $\tau_c$  de la perturbation magnétique (l'ordre de grandeur de celle-ci est supposé indépendant de  $T$  entre 1 K et 0,5 K, ce qui est justifié puisqu'il s'agit d'une source extérieure au système de spins).

##### *α) Fraction adsorbée*

Dans tous les cas évoqués au chapitre IV, la fraction d'atomes adsorbée varie avec la température par l'intermédiaire d'un facteur exponentiel en  $\beta = (k_B T)^{-1}$ . Dans l'exposant intervient aussi, pour les situations où il n'y a pas de saturation ou de compétition entre atomes, l'opposé de l'énergie effective de  $^3\text{He}$  pris individuellement dans la situation considérée. C'est dire que la fraction adsorbée croît rapidement lorsque  $T$  décroît, d'après (IV.A.1.b) et (IV.A.1.a) selon une loi approchée en (\*):

$$\blacksquare T^{-1/2} \exp\left(\frac{5}{T}\right) \text{ pour les atomes piégés à la surface} \quad (\text{V-30-a})$$

$$\blacksquare \exp\left(\frac{2,8}{T}\right) \text{ pour les atomes dissous dans un film épais} \quad (\text{V-30-b})$$

Lorsque le film est d'épaisseur limitée, les facteurs numériques dans les exposants des formules (V-30) sont modifiés : on peut par exemple se reporter aux prévisions du modèle de Sherril et Edwards [1985] développé au IV.A.3. Aux faibles épaisseurs, de l'ordre de quatre couches, les atomes en surface

---

(\*) L'exposant de  $T$  dans le préfacteur dépend de la dimensionnalité.

---



sont davantage liés et la fraction adsorbée augmente plus vite que ne le prédit (V-30-a) ; pour les atomes dissous dans le film la situation est analogue, car les variations non monotones de l'énergie  $\varepsilon_2$  de l'état excité dans le film en fonction de l'épaisseur (figure IV-8) sont spécifiques au potentiel du substrat considéré.

Des variations aussi rapides avec  $T$  n'ont en aucun cas été observées pour  $T_1$  ; la pente "à basse température" sur les figures analogues à la figure V-6 est comprise entre  $- 0,3$  K et  $- 2,5$  K. Ces valeurs absolues sont bien plus faibles.

### *$\beta$ ) Temps de corrélation*

Les variations du temps de corrélation avec la température sont susceptibles d'aggraver ce désaccord. Dans l'hypothèse du piégeage au sein d'un gaz parfait bidimensionnel de  $^3\text{He}$  par exemple, le temps  $\tau_c$  peut être indépendant de  $T$ . Il peut aussi varier en  $T^{-1/2}$  s'il est lié au vol libre des atomes sur une longueur caractéristique des fluctuations spatiales du champ source. Il peut faire intervenir le coefficient de diffusion à deux dimensions dans le gaz, comme dans (V-21-a) ; ce coefficient varie lui-même avec  $T$  et avec la densité adsorbée, amplifiant les exposants dans (V-30). Enfin, si  $\tau_c$  coïncide avec le temps de séjour en phase adsorbée -- qui constitue par hypothèse sa valeur maximale -- l'expression de  $\tau_c$  fait à nouveau intervenir la fraction adsorbée, ce qui double les coefficients apparaissant dans l'exponentielle de (V-30) lorsqu'on calcule  $T_1^{-1}$ .

### V.C.1.c - Conclusion

L'hypothèse d'une relaxation affectant l'ensemble des  $^3\text{He}$  adsorbés dans et sur le film, même si ce dernier a une épaisseur limitée, est incompatible avec les résultats expérimentaux. Les atomes directement concernés par la relaxation doivent être recherchés dans les lieux où l'énergie effective d'un atome  $^3\text{He}$  est en valeur absolue beaucoup plus faible : premières couches d'un film plus épais, sites d'adsorption privilégiée.

Il est difficile à ce stade de préciser si la situation envisagée correspond plutôt à un piégeage localisé dans des sites, ou à la présence intermittente d'atomes  $^3\text{He}$  très proches de la paroi dans de l'hélium-4 aux propriétés analogues à celles du fluide massif. Conceptuellement, ces deux situations en apparence éloignées présentent vis à vis du phénomène de relaxation magnétique des caractéristiques communes : interaction à courte portée avec les sources du magnétisme, localisation en  $z$ , piégeage dans une phase dense, temps de corrélation probablement long. Ces analogies permettront au IV.C.2 de les décrire comme deux variantes d'un même modèle.

#### V.C.2 - Confrontation des mesures aux prévisions numériques d'un modèle simple

Ce paragraphe est consacré à la présentation d'un modèle simple décrivant les conditions de relaxation des atomes au voisinage de la paroi (§ a), puis à la confrontation des prévisions de celui-ci aux résultats présentés au V.B (§ b et § c).

##### V.C.2.a - Présentation du modèle

Le scénario choisi est le suivant :

- Le taux de relaxation en phase adsorbée suit une loi en  $1/z$  analogue à (V-21-a) ; on a donc fait l'hypothèse que le champ relaxant est créé par un demi-espace de dipôles ponctuels aléatoirement répartis, et qu'il agit sur des atomes qui sont astreints à se déplacer dans un plan parallèle à la paroi selon un mouvement de diffusion.

- La proportion d'atomes directement concernés par la relaxation dépend principalement de la température par un facteur exponentiel :

$$\frac{N_a}{N_g} \sim T^\nu \exp \left\{ - \frac{1}{k_B T} E_3^a \right\} \quad (\text{V-31})$$

L'exposant  $\nu$  dépend du modèle de phase adsorbée choisi.

■  $E_3^a$  s'apparente à l'énergie d'adsorption des atomes  $^3\text{He}$  concernés par la relaxation.

La situation des atomes  $^3\text{He}$  relaxant peut être décrite soit en utilisant pour l'hélium 4 un modèle de fluide continu, soit en postulant l'existence de sites d'adsorption, ce qui nous conduit aux deux variantes ci-dessous.

*$\alpha$ ) Variante ( $\alpha$ ) : modèle de liquide continu*

Plaçons-nous dans le cadre du modèle évoqué aux paragraphes III.B.3.a et IV.A.2 : le fluide continu  $^4\text{He}$  est décrit par des variables locales  $p(z)$ ,  $\mu_4(z)$ ... à la distance  $z$  de la paroi où le potentiel attractif est  $V(z)$ . L'énergie  $E_3^a$  est obtenue en ajoutant à  $V(z)$ , qui agit autant sur  $^3\text{He}$  que sur  $^4\text{He}$ , l'énergie effective  $E_3^B$  de l'atome dans le fluide équivalent au film à la distance  $z$  :

$$E_3^a(z) = V(z) + E_3^B(\mu_4 = \mu_4(z)) \quad (\text{V-32})$$

En prenant pour référence la situation du fluide non comprimé, le deuxième terme du deuxième membre est donné par (IV-36), soit :

$$E_3^B(\mu_4(z)) = E_3^B(p=0) + (1 + \alpha)(\mu_4(z) - \mu_4(p=0)) \quad (\text{V-33})$$

où "l'excès de volume"  $\alpha$  est défini en (IV-32). La quantité  $\mu_4(z)$  est reliée au potentiel chimique  $\tilde{\mu}_4$  de  $^4\text{He}$ , uniforme dans la cellule, par la relation :

$$\mu_4(z) + V(z) = \tilde{\mu}_4 \quad (\text{V-34})$$

Ainsi :

$$E_3^a(z) = E_3^B(p=0) - \alpha V(z) + (1 + \alpha)(\tilde{\mu}_4 - \mu_4(p=0)) \quad (\text{V-35})$$

Les grandeurs de référence sont  $E_3^B(p=0) = -2,8 \text{ K}$  et  $\mu_4(p=0) = -7,2 \text{ K}$ .

D'après la relation (V-30-a), le préfacteur dans (V-31) est  $T^{-1/2}$  pour un gaz bidimensionnel piégé. La diffusion à deux dimensions dans ce gaz apporte probablement au travers du facteur D et de la relation (V-21-a) un second facteur  $T^{-1/2}$ . Une telle description n'est évidemment pas réaliste pour un  $^3\text{He}$  dans les premières couches du film  $^4\text{He}$ . Mais elle sert de modèle pour représenter les présences successives d'un atome près de la paroi après un aller-retour dans l'épaisseur du film liquide, ou bien encore le mouvement d'un atome dans la première couche -- solide -- du film par échange avec les  $^4\text{He}$ . Ainsi, le taux de relaxation s'écrit, à partir des relations (V-8), (V-21-a), (V-35), avec V et  $\tilde{\mu}_4$  exprimés en kelvin :

$$\frac{1}{T_1} \sim T^{-1} \exp \left\{ \frac{2,8}{T} + \frac{\alpha V(z)}{T} - (1 + \alpha) \frac{\tilde{\mu}_4 + 7,2}{T} \right\} \quad (\text{V-36})$$

On remarque que  $T^{-1}$  apparaît explicitement dans cette formule en préfacteur et comme argument dans l'exponentielle, mais aussi implicitement au travers de  $\tilde{\mu}_4(T)$ . De même, le coefficient d'excès de volume  $\alpha$  dépend de la pression locale dans le film, donc implicitement de z.

*$\beta$ ) Variante ( $\beta$ ) : piégeage dans des sites d'adsorption privilégiés*

Si on suppose plutôt que les atomes  $^3\text{He}$  participant à la relaxation sont adsorbés dans des sites privilégiés au voisinage immédiat de la paroi, la fraction adsorbée n'est plus donnée par (V-31) mais par (V-29) qui peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{N_a}{N_g} \sim T^{-3/2} \exp \left\{ - \frac{1}{k_B T} \left( \hat{E}_3 - \hat{E}_4 + \tilde{\mu}_4 \right) \right\} \quad (\text{V-37})$$

où  $\hat{E}_3$  et  $\hat{E}_4$  représentent les énergies d'adsorption respectives de

$^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  dans ces sites.

La dynamique dans le cas de ces sites ne peut plus être décrite par le jeu d'hypothèses ayant conduit à (V-21-a). Le temps de corrélation  $\tau_c$  de la perturbation magnétique agissant sur les atomes peut manifester différents types de comportement lorsque T varie, par exemple :

- $\tau_c$  peut être indépendant de T : c'est le cas si  $\tau_c$  est intrinsèque aux sources du champ, ou encore si  $\tau_c$  est le temps associé au mouvement rapide des  $^3\text{He}$  piégés dans leur puits.

- $\tau_c$  peut être associé à un mouvement de site en site faisant intervenir une énergie d'activation  $\Delta W$  (un tel mouvement s'apparente au mouvement de diffusion considéré précédemment pour le gaz bidimensionnel). Dans  $T_1^{-1}$  apparaît alors un facteur exponentiel supplémentaire  $\exp\left(-\frac{\Delta W}{k_B T}\right)$ .

Dans ce dernier cas (où on peut évidemment faire  $\Delta W = 0$  pour retrouver la limite " $\tau_c$  indépendante de T"), la relation analogue à (V-36) s'écrit, avec  $\hat{E}_1$ ,  $\Delta W$ ,  $\tilde{\mu}_4$  en K :

$$\frac{1}{T_1} \sim T^{-3/2} \exp\left\{-\frac{\Delta W}{T} + \frac{\hat{E}_4 - \hat{E}_3}{T} - \frac{\tilde{\mu}_4}{T}\right\} \quad (\text{V-38})$$

Cette relation est très proche de (V-36), à l'exposant du préfacteur près, avec  $\alpha = 0$  et  $\alpha.V \neq 0$ .

#### *γ) Les prévisions du modèle*

Les relations (V-36) et (V-38) introduisent l'intermédiaire  $\tilde{\mu}_4$  dans les variations de  $T_1^{-1}$  avec T. Il a été souligné au V.B.3 que les variations de  $\tilde{\mu}_4$  sont tout à fait analogues aux résultats observés. En particulier, on doit s'attendre à retrouver dans les variations de  $T_1^{-1}$ , donné par

(V-36), une importante modification au voisinage de la température de rosée  $T_0$ . C'est ce que l'on constate sur la figure V-13-a. Ont été reportés sur un même graphique, en échelle logarithmique et normalisés à une valeur commune à  $T = 1$  K, les résultats numériques obtenus pour  $T_1$  en appliquant (V-36) avec  $\alpha = 0,25$  dans le cas d'une cellule de remplissage  $p_4 = 2$  torr en  $^4\text{He}$  et  $p_2 = 0,60$  torr en hydrogène (\*) ; les différentes courbes correspondent à différentes valeurs du paramètre  $V(z)$ .

Comme on le voit, ces courbes sont à peu près rectilignes en dessous et au dessus du point de rosée. La différence entre les pentes de ces deux demi-droites dépend peu de  $V(z)$  ; tandis que la valeur de chacune d'elles en dépend. On remarque en particulier que pour  $T \leq T_0$  il est possible de trouver des conditions où  $T_1$  varie peu avec  $T$ . L'exposant de  $T$  dans le facteur préexponentiel ne joue pas un rôle très important. En particulier, les courbes présentées sur la figure V-13-b, qui ont été obtenues avec  $V = -7$  K et  $\alpha = 0,25$ , en multipliant le résultat donné par (V-36) par  $T^{\beta}$ , montrent que la substitution  $T^{-1} \leftrightarrow T^{-3/2}$  entre (V-36) et (V-38) ne joue pas un rôle déterminant.

---

(\*) La présence ou l'absence d'hydrogène au remplissage modifie le potentiel d'attraction de He par la paroi et partant la loi  $\tilde{\mu}_4(T)$ .

---

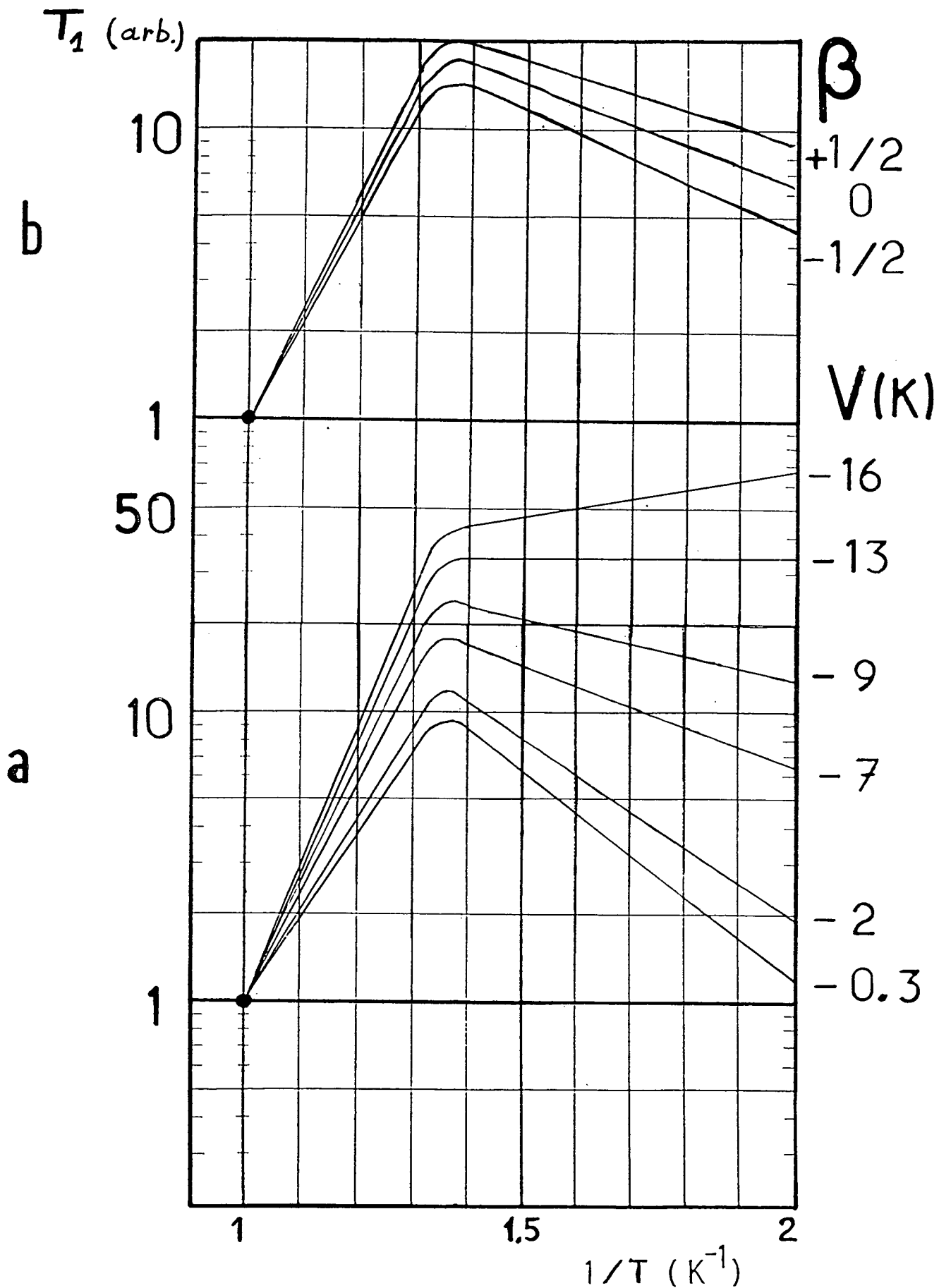


Figure V-13 : Exemples de prévisions du modèle théorique.

a) Influence de la valeur de  $V(z)$  (pour toutes les courbes  $\alpha = 0,25$  et  $\beta = 0$ ) ; pour  $V(z) = -13$  K la valeur de  $T_1$  à "basse température" est presque indépendante de  $T$ .

b) Influence de l'exposant  $(\beta-1)$  dans le facteur préexponentiel (avec  $V(z) = -7$  K).

#### V.C.2.b - Procédure adoptée pour la confrontation

##### $\alpha$ ) Principe de calcul retenu

L'accord entre les résultats obtenus pour une cellule déterminée et les prévisions de (V-36) ou (V-38) dépend de plusieurs paramètres : certains sont contrôlés, par exemple les pressions de remplissage ; d'autres sont connus : les caractéristiques géométriques des cellules ; d'autres enfin sont supposés connus (le rapport entre surface géométrique interne et surface de dépôt du film est pris égal à 1). Nous n'avons conservé que trois paramètres ajustables au plus ; dans le cas de la relation (V-36), ce sont :

- Le facteur de proportionnalité entre  $T_1^{-1}$  et l'expression algébrique donnée au V.C.2.a., noté  $\chi$  ;

- La valeur de "l'excès de volume"  $\alpha$  ;

- Le paramètre  $\xi$ , défini à partir du produit  $\alpha V(z)$  par la relation (où  $V(z)$  est en K) :

$$\xi = -2,8 - \alpha V(z) \quad (V-39)$$

L'utilisation de la relation (V-38) a été ramenée dans le cadre précédent en faisant simplement  $\alpha = 0$ , mais " $\alpha.V$ " variable, et en substituant  $T^{-3/2}$  à  $T^{-1}$  devant l'exponentielle. Seule l'inter-



prétation du paramètre  $\xi$  est alors différente. Selon (V-38), il vient (en K) :

$$\xi = -\hat{E}_4 + \hat{E}_3 - 7,2 + \Delta W \quad (V-40)$$

Dans chacun des deux cas,  $\xi$  est donc l'argument de  $1/T$  dans l'exponentielle, à une température inférieure au point de rosée.

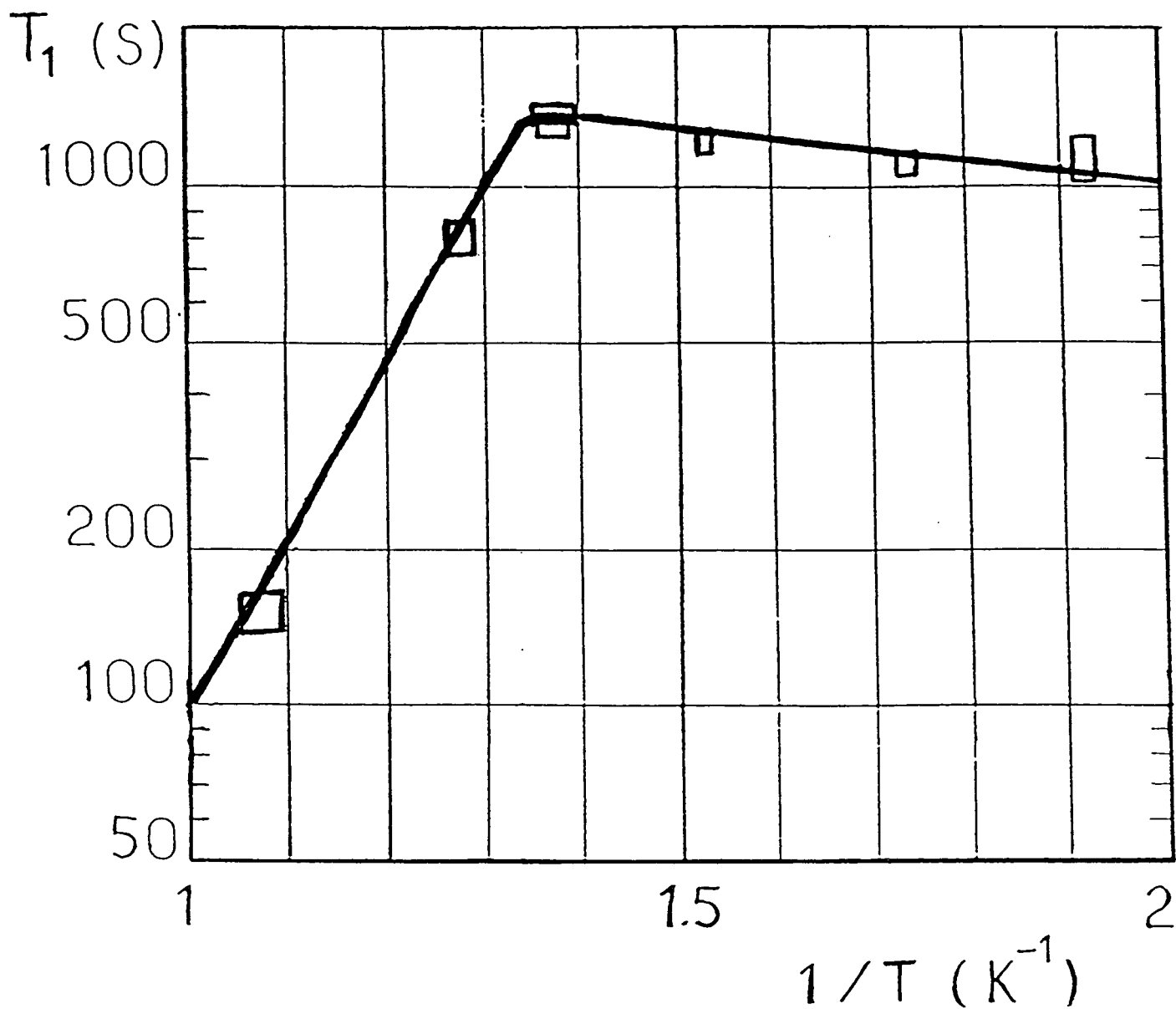
Les valeurs des paramètres assurant le meilleur accord entre les mesures et la relation algébrique (V-36) ont été recherchées en rendant minimale la somme des carrés des écarts normalisés des résultats expérimentaux aux prévisions du modèle. La technique d'itération retenue est une méthode de simplexe très classique adaptée au cas d'une fonction non linéaire. A chaque fois,  $\tilde{\mu}_4(T)$  a été déterminé en utilisant le modèle F.H.H. (voir III.B.3.a) pour trouver l'épaisseur  $\tilde{e}_4$  du film condensé. Divers types d'optimisation ont été tentés :

- Faire varier les trois paramètres  $\chi$ ,  $\alpha$ ,  $\xi$
- Imposer la valeur de  $\alpha$  et laisser varier  $\chi$  et  $\xi$ .
- Dans le cas  $\alpha = 0$ ,  $\chi$  et  $\xi$  variables, modifier le préfacteur de l'exponentielle pour que le modèle corresponde à (V-38).

Les paramètres  $\alpha$  et  $\xi$  sont particulièrement pertinents pour décrire la situation des  $^3\text{He}$  relaxant : c'est sur leur valeur que porte l'essentiel de l'interprétation du paragraphe V.2.c.

#### *$\beta$ ) Un exemple de confrontation*

Comme le laissait supposer la figure V-13, l'accord qui peut être obtenu entre les résultats pour un échantillon pris individuellement et les prévisions numériques ci-dessus est bon. Sur la figure V-14 ont été reportés les résultats obtenus pour la cellule B1, qui a illustré le chapitre I.



*Figure V-14 : Confrontation entre les prévisions numériques et les résultats expérimentaux pour la cellule B-1. La courbe en trait continu a été obtenue en utilisant (V-36) avec  $\alpha = 0$  ;  $\xi = 0,1$  K. L'accord avec les valeurs mesurées est très satisfaisant.*

Pour obtenir la courbe en trait continu, on a imposé  $\alpha = 0$  et utilisé (V-36) ; le préfacteur est donc  $T^{-1}$ . La recherche des meilleurs paramètres donne  $\xi = + 0,10$  K. L'écart statistique entre les mesures et la courbe est inférieur à 7 % ; le résultat numérique est compatible avec les incertitudes des mesures. Laisser varier le paramètre  $\alpha$  conduit à une approximation à peine meilleure, avec  $\alpha \simeq 0,005$  et  $\xi$  presque identique. Imposer  $\alpha = 0,20$  ou  $\alpha = 0,25$  comme ce peut être le cas dans de l'hélium 4 massif comprimé, rend impossible de trouver un accord aussi bon entre points expérimentaux et prévisions numériques (l'écart statistique minimal est deux fois plus grand). Enfin la recherche du meilleur jeu de paramètres associé à (V-38) ( $\alpha = 0$  et le préfacteur  $T^{-3/2}$ ) donne dans ce cas particulier  $\xi = + 0,45$  K et un accord entre prévisions et expérience équivalent à celui de la courbe de la figure V-14.

#### V.C.2.c - Les résultats de la confrontation

L'accord éventuel entre (V-36), (V-38) et les résultats expérimentaux a été recherché pour l'ensemble des cellules étudiées à l'occasion de ce travail. Dans presque tous les cas, un accord satisfaisant a pu être obtenu pour un jeu de paramètres ( $\alpha, \xi, \chi$ ). Au paragraphe  $\alpha$  nous nous limitons au cas de l'optimisation des deux paramètres,  $\xi$  et  $\chi$ , avec  $\alpha = 0$ , selon la relation (V-36). C'est cette procédure qui conduit au meilleur accord avec les points expérimentaux, à quelques exceptions près, qui seront évoquées plus loin. Etudier le cas  $\alpha = 0$  suffit donc pour prouver la cohérence des résultats du modèle (§  $\alpha$ ). Nous présentons ensuite l'ensemble des résultats (§  $\beta$ ), puis quelques éléments d'interprétation (§  $\gamma$ ).

##### *$\alpha$ ) Cohérence des résultats*

##### i) Reproductibilité pour une cellule donnée

Nous avons signalé les limites de la reproductibilité des résultats expérimentaux obtenus pour une même cellule, d'un jour

sur l'autre, ou bien à la suite d'un "recuit" du sous-enduit d'hydrogène. Il apparaît que les valeurs de  $T_1$  obtenues, même lorsqu'elles sont assez différentes, correspondent surtout à une translation homogène en échelle logarithmique. Il s'ensuit que la valeur optimale du paramètre  $\xi$  est peu affectée par l'irreproductibilité des mesures ( $\pm 0,20$  K). Seul  $\chi$  est modifié de façon significative (par un facteur allant jusqu'à 5).

D'autre part, la cohérence des résultats correspondant au même échantillon et à la même période passée en dessous de 1 K vis à vis du modèle (V-36) a été testée de la façon suivante : la comparaison entre valeurs numériques et valeurs expérimentales servant à déterminer  $\xi$  et  $\chi$ , a été limitée soit aux points "chauds" correspondant à une température supérieure à la température de rosée, soit aux points "froids". A nouveau, les valeurs de  $\xi$  obtenues s'inscrivent pour chaque cellule dans la limite  $\pm 0,25$  K.

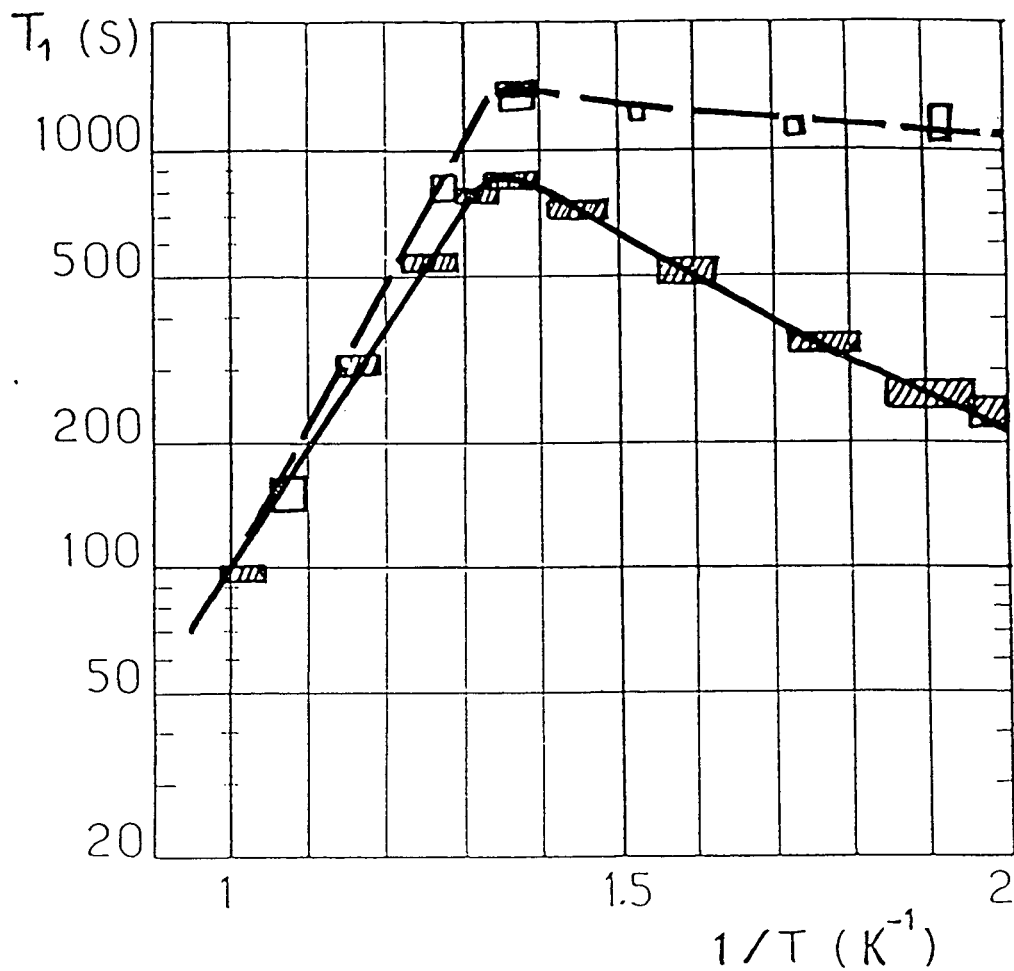
#### ii) Des cellules de remplissage identique

La différence de comportement entre différents jeux de cellules à basse température a été illustrée sur la figure V-9 ; nous l'avions au paragraphe V.B.4.a attribuée à la verrerie employée (il s'agit en effet d'échantillons identiques au remplissage simultané). Le modèle (V-36) rend parfaitement compte de chacun de ces deux résultats en utilisant le même potentiel attractif dû à la paroi, mais évidemment il conduit à des valeurs optimales différentes pour les paramètres. Ces résultats sont reportés sur la figure V-15 analogue à V-9 où les courbes en trait continu sont associées respectivement à

$$\alpha = 0 ; \xi = + 0,1 \text{ K} ; \text{Ln}(\chi) = 7,4 \text{ pour la cellule B1 du ch.I}$$

$$\alpha = 0 ; \xi = - 1,55 \text{ K} ; \text{Ln}(\chi) = 9,2 \text{ pour l'autre cellule}$$

(l'une des deux courbes reprend les résultats de la figure V-14).



**Figure V-15 :** Le modèle numérique développé ici permet de rendre compte des comportements différents observés sur deux cellules de remplissage identique ( décrits sur la figure V-9). Dans chaque cas l'accord entre les points expérimentaux et la courbe calculée est bon. Les valeurs optimales des paramètres correspondants sont données dans le texte.

## iii) Les groupes de cellules étudiés au V.B

Différents groupes de cellules ont été utilisés pour dégager les principaux aspects qualitatifs des résultats expérimentaux ayant introduit le modèle représenté par (V-36). Il est essentiel que, vis à vis de ce dernier, le comportement correspondant à chaque cellule soit cohérent avec celui des autres cellules du même groupe. Cette cohérence a été vérifiée ; il s'agit :

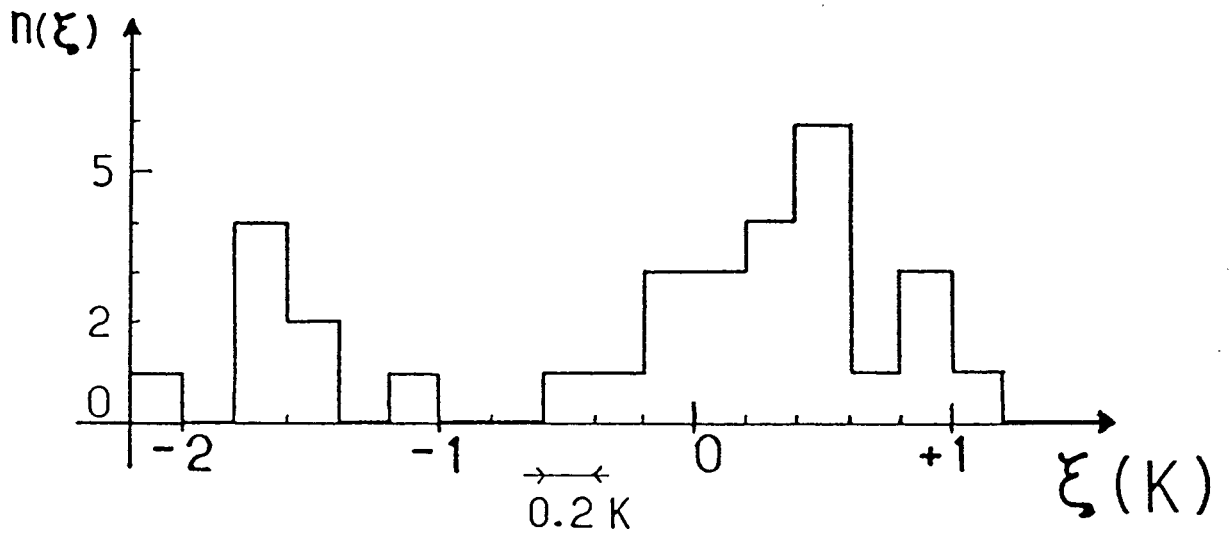
- des cellules dans lesquelles seul change le remplissage en hydrogène (figure V-4). La valeur optimale de  $\xi$  obtenue se situe, pour ces quatre cellules, entre + 0,25 K et + 0,50 K.

- des cellules de différents remplissages  $p_4$  en  $^4\text{He}$  varié (figure V-6); on obtient  $\xi = + 0,2 \text{ K} \pm 0,2 \text{ K}$ .

- des trois cellules dépourvues d'hydrogène étudiées, pour lesquelles il convient de substituer au potentiel  $V_p(z)$  dû à l'hydrogène le potentiel créé par la paroi de pyrex; on obtient  $\xi$  entre + 0,2 à + 0,7 K.

 *$\beta$ ) Valeurs optimales des paramètres*i) Les résultats obtenus pour  $\alpha = 0$ 

Les considérations des paragraphes précédents s'appliquent à toutes les cellules testées. L'histogramme des valeurs de  $\xi$  optimales est représenté sur la figure V-16. On constate qu'il existe un point d'accumulation privilégié autour de + 0,3 K correspondant aux échantillons dont le temps de relaxation  $T_1$  est à peu près constant à basse température. Un autre groupe de résultats donne environ - 1,7 K lorsque  $T_1$  diminue assez rapidement. Ces deux groupes pourraient correspondre aux cas d'utilisation de telle ou telle verrerie, comme il a été signalé précédemment.



*Figure V-16 : Histogramme des valeurs du paramètres  $\xi$  obtenues à partir de la procédure de confrontation utilisant (V-36) avec  $\alpha = 0$  ; les résultats concernant l'ensemble des cellules testées ont été rassemblés sur cette figure en les regroupant par pas de 0,2 K en  $\xi$ . Il existe deux points d'accumulation vers 0,3 K et - 1,7 K .*

$\xi$  joue d'après (V-36) le rôle d'une énergie effective de  $^3\text{He}$  dans la phase adsorbée dès que le film de  $^4\text{He}$  s'épaissit ( $\tilde{\mu}_4 \simeq -7,2 \text{ K}$ ). La faible valeur trouvée ici (0,3 K) est de l'ordre des estimations de l'énergie de  $^3\text{He}$  dans la première couche du film faites, au IV.A.2.c en analysant les données disponibles concernant les phases massives tridimensionnelles, et au IV.B.2.b. en calculant l'énergie de l'hélium-3 dans un système bidimensionnel d'hélium-4.

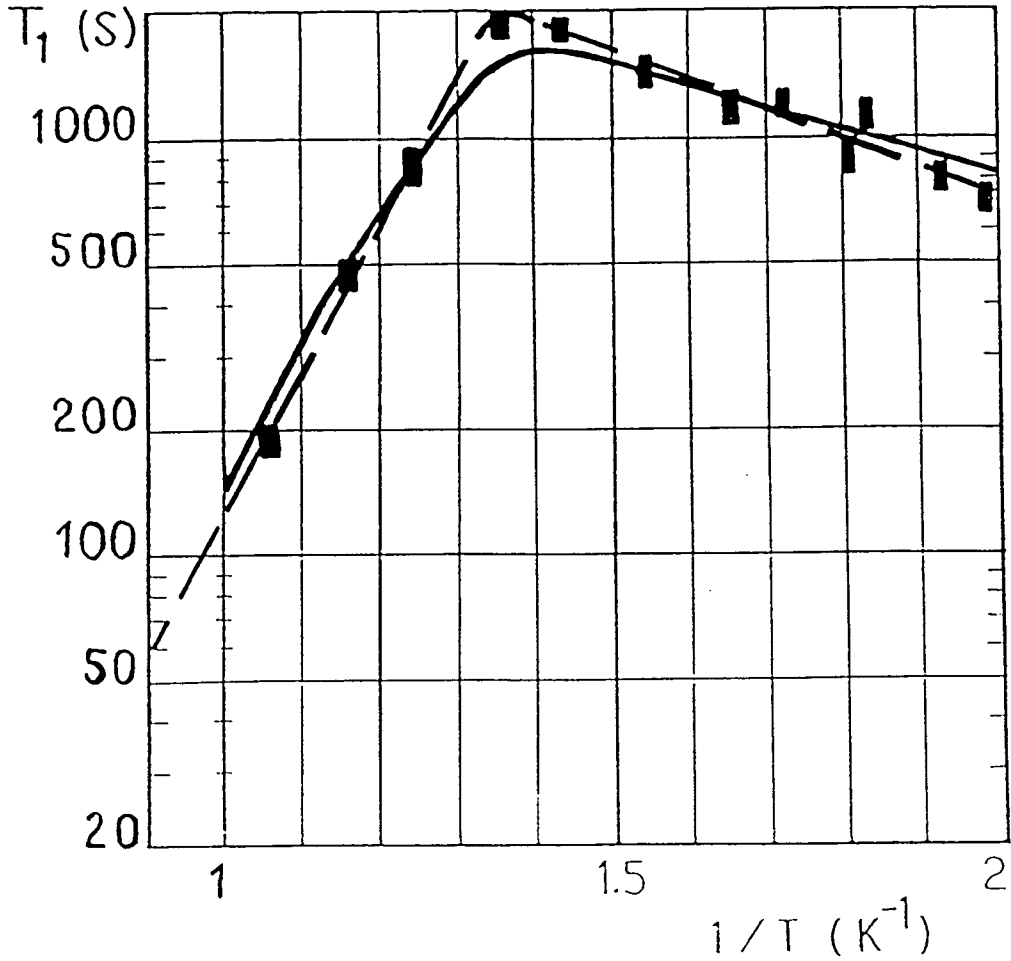
ii) Les variations pertinentes du paramètre  $\alpha$

Dans la plupart des cas, le choix d'un paramètre  $\alpha \neq 0$  n'améliore pas l'accord avec les points expérimentaux. De même, autoriser  $\alpha$  à varier dans le programme numérique conduit en général à une valeur optimale de  $\alpha$  proche de 0 (par valeurs positives ou négatives). C'est pourquoi nous avons toujours cité plus haut les résultats pour  $\alpha = 0$ . Les cellules contenant une forte quantité de  $^3\text{He}$  font exception. Dans les quatre cas étudiés pour lesquels le remplissage  $p_3$  était supérieur à 3 torr à 300 K, la valeur optimale du paramètre  $\alpha$  se trouve entre 0,18 à 0,26 ; l'écart typique entre valeurs numériques et valeurs expérimentales est deux fois plus faible que pour  $\alpha = 0$ . La valeur de  $\xi$  associée est proche de -0,8 K. Cet accord est illustré par la figure V-17 présentant les résultats obtenus pour un échantillon de remplissage  $p_3 = 8,05 \text{ torr}$  à 300 K avec  $\alpha = 0$ , et  $\alpha$  ajusté à sa valeur optimale égale, dans ce cas extrême, à 0,26.

iii) Préfacteur  $T^{-1}$  ou  $T^{-3/2}$  ?

La substitution de  $T^{-3/2}$  à  $T^{-1}$ , qui semblerait logique d'après (V-38) dès que dans la plupart des cas la valeur  $\alpha = 0$  semble s'imposer, n'améliore pas l'accord entre les mesures et les valeurs calculées. Pour presque la totalité des échantillons, la substitution de  $T^{-3/2}$  à  $T^{-1}$ , en gardant  $\alpha = 0$ , ajoute à  $\xi$  la quantité +0,3 à +0,4 K et multiplie par 1,2 l'écart typique des points calculés aux mesures.





*Figure V-17 : Résultat de la confrontation numérique pour une cellule de remplissage élevé en  $^3\text{He}$  ( $p_3 = 8,05$  torr à 300 K). La courbe optimale obtenue avec  $\alpha = 0,26$ ,  $V(z) = -7,5$  K soit  $\xi = -0,85$  K (trait interrompu) s'accorde beaucoup mieux aux points expérimentaux que la courbe la meilleure obtenue en imposant  $\alpha = 0$ , qui correspond à  $\xi = -0,4$  K (trait continu) : l'écart statistique moyen est divisé par deux.*

*γ) Des éléments d'interprétation*

L'interprétation physique des résultats précédents peut être faite dans le cadre des deux modèles sommaires ayant conduit aux relations (V-36) et (V-38). Ceux-ci ne doivent pas être considérés comme exclusifs l'un de l'autre ; ils cherchent à représenter la réalité physique de la situation locale des atomes  $^3\text{He}$  près de la paroi, qui ne se résume certainement pas à la simple immersion de  $^3\text{He}$  dans  $^4\text{He}$  massif comprimé (V-36) ou à l'adsorption dans des sites bien précis et bien définis (V-38).

i) Variante ( $\alpha$ )

Selon (V-36), la valeur  $\xi$  trouvée doit être rapprochée de la valeur du potentiel à la distance  $z$  dans le film où se produit la relaxation. Comme on l'a vu, la valeur optimale trouvée pour  $\alpha$  est proche de zéro, ce qui fait perdre son sens à (V-39). Si cependant nous nous imposons de rester dans le cadre du modèle de fluide continu comprimé avec  $\alpha \approx 0,2$ , les valeurs de  $V(z)$  correspondant aux résultats, données par la formule (V-39), sont alors  $-5,5 \text{ K}$  et  $-16 \text{ K}$  pour les deux points d'accumulation observés sur la figure V-16. Ces valeurs de  $V(z)$  correspondent à de très faibles valeurs de  $z$ , de l'ordre d'une à deux couches, comme on peut s'en convaincre en consultant, au chapitre III, la forme du potentiel  $V(z)$ . Il s'agit donc du voisinage de la première couche de  $^4\text{He}$  dont on a estimé que, sur  $\text{H}_2$ , elle pourrait être solide.

Cette valeur de  $V(z)$  s'accroît assez peu, en valeur absolue, lorsqu'on s'intéresse aux cellules dépourvues d'hydrogène, alors que le potentiel exercé par le pyrex est beaucoup plus attractif, provoquant assurément la solidification de la première couche. Le  $z$  associé à ces cellules est un peu plus élevé. La première couche d'hélium 4 semble jouer dans ce cas le rôle joué par le sous-enduit d'hydrogène dans les autres cellules.

ii) Variante ( $\beta$ )

Selon (V-40), la différence de l'énergie de piégeage dans des sites privilégiés entre  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  peut le cas échéant être reliée directement à la valeur de  $\xi$  obtenue pour  $\alpha = 0$ . Pour  $\Delta W = 0$  (pas d'activation thermique proprement dite pour l'échange entre sites), on obtient alors l'encadrement suivant :

$$5,0 \text{ K} \leq \hat{E}_3 - \hat{E}_4 \leq 8,5 \text{ K}$$

Celui-ci assure la compatibilité du modèle avec la grande majorité des résultats reportés sur la figure V-16. Une telle différence d'énergie semble élevée. On voit mal à quelle réalité physique elle pourrait correspondre à l'intérieur même du film d'hélium, puisque  $(\hat{E}_3 - \hat{E}_4)$  est déjà trois fois plus élevé que la différence d'énergie d'adsorption individuelle calculée par Pierre et al [1985] pour les atomes sur une paroi de  $\text{H}_2$ . En tout cas, cette valeur suggère plutôt des sites particuliers situés à l'interface substrat-film d'hélium que des sites peu liants à l'éventuelle interface solide-liquide dans le film.

Le fait de trouver un optimum pour  $\alpha = 0$  rend assez vraisemblable l'hypothèse d'un simple piégeage des atomes  $^3\text{He}$ . La saturation observée lorsque  $p_3$  est augmentée (voir figure V-9) et le changement de comportement associé ( $\alpha$  optimal devient égal à 0,20 environ) suggèrent que des atomes un peu plus éloignés dans la partie comprimée du film interviennent désormais, en sus des atomes piégés précédemment cités.

### CONCLUSION

La mise en œuvre de ces expériences répondait à plusieurs motivations :

- produire et conserver  $^3\text{He}$  polarisé gazeux en dessous d'un kelvin ;
- comprendre l'origine et le mécanisme des processus de relaxation du spin au voisinage de la paroi ;
- évaluer l'intérêt d'utiliser la R.M.N. sur  $^3\text{He}$  comme une sonde nouvelle des propriétés des films de mélange  $^3\text{He} \leftrightarrow ^4\text{He}$  .

Le premier objectif est atteint : l'utilisation d'un film mince d'hélium-4 permet d'effectuer le pompage optique du gaz hélium-3 dilué vers 0,5K et diminue considérablement la relaxation ; le comportement du temps  $T_1$  de relaxation longitudinale observé suggère qu'un tel film resterait sans doute efficace jusqu'au point de rosée pour l'hélium-3 (ici  $\simeq 0,3\text{K}$ ) .

Bien que tous les aspects des mécanismes de relaxation de l'orientation sur la paroi n'aient pas été élucidés, les expériences suggèrent de façon incontournable que la relaxation affecte les atomes  $^3\text{He}$  lorsqu'ils sont dans les toutes premières couches du film de  $^4\text{He}$  , proches du substrat constitué par l'enduit d'hydrogène. La valeur de l'énergie effective d'un atome d'hélium-3 dans cette région du film obtenue est de l'ordre de 0,3K pour la plupart des échantillon. Il n'existe pas de description théorique entièrement satisfaisante de cette partie des films  $^4\text{He}$ , mais les modèles simples développés ici reproduisent

qualitativement les variations du temps de relaxation  $T_1$  avec la température, la quantité d'hélium-4 et l'épaisseur de l'enduit d'hydrogène. Il est à noter que les mesures du temps  $T_2$  de relaxation transverse nous ont permis de contrôler la condensation progressive du film de  $^4\text{He}$ , et qu'elles ont fourni par ailleurs des valeurs expérimentales pour les coefficients de diffusion  $D_{33}$  et  $D_{34}$  pour le gaz entre 1K et 0,5K.

Ainsi, dans nos expériences, la résonance magnétique sur l'hélium-3 orienté nucléairement s'avère être sensible à une zone des films de mélange hélium-3  $\leftrightarrow$  hélium-4 peu étudiée. Le caractère encore incontrôlé du champ magnétique créant la relaxation est toutefois un handicap qui reste à lever.

Le prolongement de ce travail à des températures plus basses que 0,5K permettrait de tester des films de  $^4\text{He}$  de plus en plus minces, jusqu'à une épaisseur d'une ou deux couches; c'est une situation physique qualitativement nouvelle par rapport aux films plus épais que nous avons étudiés. En particulier, une monocouche complète d'hélium-3 serait alors présente sur le film d'hélium-4.

Du côté des plus hautes températures, une meilleure précision sur les mesures de  $T_1$  permettrait de rechercher si le passage à la température de solidification escomptée de la première couche a des conséquences perceptibles. Si tel était le cas, on confirmerait du même coup que les atomes  $^3\text{He}$  piégés dans le film  $^4\text{He}$  parviennent affectivement jusqu'à cette toute première couche et que cette première couche est solidifiée sur  $\text{H}_2$ .

Une telle mise en évidence consacrerait  $^3\text{He}\uparrow$  comme une sonde nouvelle des propriétés des films de mélange  $^3\text{He} \leftrightarrow ^4\text{He}$ .

APPENDICES



APPENDICE A
-------------

DEPOUILLEMENT SPECIFIQUE AUX CELLULES E ET D POUR LA  
DETERMINATION DIRECTE DE  $D_{33}^{-1}(T)$  A BASSE TEMPERATURE.

Les résultats présentés sur le tableau II.1 (§ II.A.1) pour les cellules E ( $p_2=0$  ;  $p_3=0,96$  ;  $p_4=1,98$ ) et D ( $p_2=0$  ;  $p_3=0,95$  ;  $p_4=4,06$ ) s'écartent notablement des autres mesures par la taille de la barre d'erreur retenue. L'objet de cet Appendice est de commenter et justifier ce choix.

La principale interrogation concernant ces cellules porte sur la valeur des densités de  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  à l'intérieur au moment des expériences. En effet, ces cellules ont été remplies (à 300K) simultanément, selon un mode opératoire différent de celui décrit au § I.A. Lorsqu'elle a été isolée du banc de pompage après remplissage en  $^3\text{He}$ , chacune de ces cellules était encore reliée à une "queue de cochon" préalablement remplie de  $^4\text{He}$  pur. Après brisure de la queue de cochon -- un petit capillaire bouché et friable assurant l'étanchéité pendant le remplissage -- et diffusion mutuelle des gaz, la cellule sphérique a été scellée ; on obtient les densités nominales par simple règle de 3 portant sur les volumes. Mais, il peut arriver que -- taille du capillaire ? obstruction par une poussière de verre ? -- la diffusion mutuelle des gaz soit encore incomplète au moment du scellement : l'égalité des pressions entre les compartiments s'est faite dès l'ouverture de la queue de cochon, mais le mélange est resté inhomogène, et la cellule contient davantage de  $^3\text{He}$  et moins de  $^4\text{He}$  que les valeurs nominales du tableau II.1 ...

Les valeurs extrêmes données pour  $D_{33}^{-1}(T)$  au tableau II.1 pour ces deux cellules correspondent aux hypothèses suivantes : la valeur la plus forte  $D_{33}^{-1}(T)$  correspond à la limite supérieure de la barre d'erreur pour la pression nominale ; la valeur la plus faible correspond à l'hypothèse -- irréaliste -- d'une diffusion incomplète des gaz au cours du mélange. Il n'a pas été



possible d'être raisonnablement plus précis. Néanmoins, l'existence probable d'un effet lié à un remplissage différent du remplissage nominal est attestée par les divers indices suivants :

■ Application d'un gradient transverse

Pour les deux cellules, les réglages des compensations des gradients transverses peuvent être également utilisés pour déduire  $D_{33}^{-1}(T)$ . Les résultats sont compatibles avec ceux obtenus

en variant (figure II-1-a et b) la composante  $\frac{\partial B_{0z}}{\partial z}$ . Une erreur expérimentale ou d'étalonnage est donc exclue.

■ Variations de  $T_2$  avec la température

Pour la cellule D, les variations de  $T_2$  avec la température ont été étudiées entre  $1K^{-1}$  et  $2K^{-1}$ . Celles-ci présentent une variation brusque vers  $T_0^{-1} = 1,29K^{-1}$  ; à cette température, la densité de vapeur de  $^4He$  est 3,0 torr à 300K. De plus, la variation totale de  $1/T_2$  liée à la disparition de tout  $^4He$  de la phase gazeuse correspond, si l'on suppose que la carte du champ relaxant ne dépend pas de la température et si l'on utilise les résultats théoriques de C. Lhuillier [1983], à la présence dans la cellule d'environ trois fois plus de  $^4He$  que de  $^3He$ .

■ Variations de  $T_1$  avec la température

Pour la cellule D, les variations de  $\text{Log}(T_1)$  avec la température présentent également la brusque modification correspondant au passage au voisinage de la densité de vapeur pour  $^4He$  vers  $1,29K^{-1}$  (soit  $d_4 = 3,0$  torr à 300K). Ces résultats doivent toutefois être nuancés : ces cellules sans hydrogène présentent des valeurs du temps de relaxation  $T_1$  assez courts ( $\approx 500s$ ) ; le rapport signal sur bruit des mesures est assez mauvais, car le pompage optique est difficile. Pour la cellule E, la position du "coin" sur la courbe ( $\text{Ln}(T_1) \leftrightarrow 1/T$ ) n'a pu être précisée. De même, les valeurs de  $1/T_2$  n'ont pu, sur cette cellule, être mesurées au-dessus de 0,7K.

■ Mesure des coefficients de diffusion à plus haute température

Les coefficients de diffusion  $D_{33}(T)$  et  $D_{34}(T)$  ont été mesurés à plus haute température par des techniques variées. A la température de liquéfaction de l'azote sous pression atmosphérique ( $\approx 77K$ ), aucun effet lié au caractère quantique des particules ne se manifeste et l'on a simplement la relation classique :

$$D_{33}^{-1}(T) = \left(\frac{7}{8}\right)^{\frac{1}{2}} D_{34}^{-1}(T) \quad (A-1)$$

Le coefficient numérique sous le radical est simplement le rapport des masses réduites des systèmes  $^3\text{He}-^3\text{He}$  et  $^3\text{He}-^4\text{He}$ . Ces résultats expérimentaux, ramenés à une densité de 1 torr à 300K, sont rassemblés sur le tableau A-1. Nous retiendrons pour  $D_{33}(T)$  les valeurs  $593 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$  à 77,1K et  $1420 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$  à 300K.

Auteur	Bendt 1958	du Bro et Weissman 1970	Barbé et al. 1974
T(K)	$D_{34} (\text{cm}^2 \text{s}^{-1})$	$D_{34} (\text{cm}^2 \text{s}^{-1})$	$D_{33} (\text{cm}^2 \text{s}^{-1})$
77,1	$565 \pm 16$	$544 \pm 17$	-
300	$1300 \pm 52$	$1330 \pm 60$	$1440 \pm 80$

Tableau A-1 : Résultats expérimentaux pour  $D_{34}$  et  $D_{33}$  à haute température. Les valeurs numériques correspondent à une densité de 1 torr à 300K.

Dans le cas des cellules D et E, l'absence d'hydrogène moléculaire permet d'effectuer le pompage optique à haute température, et donc de mesurer, par une méthode analogue à celle décrite au § II.A.1, le coefficient de diffusion en appliquant un gradient calibré du champ. Les valeurs obtenues pour le coef-

ficient  $D$  à 300K ont été reportées sur le tableau A-2. La valeur de  $D_{33}$  associée a été calculée à partir des pressions nominales de remplissage des cellules rappelées plus haut en utilisant la relation (A-2), issue de (A-1) et (II-2) :

$$\frac{1}{D} = \frac{P_3}{D_{33}} + \frac{P_4}{D_{34}} = \frac{1}{D_{33}} \left( P_3 + \left(\frac{8}{7}\right)^{\frac{1}{2}} P_4 \right) \quad (\text{A-2})$$

Cellule	$D$ ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )	$D_{33}$ ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )
D	353	1870
E	558	1730

Tableau A-2 : Valeurs mesurées du coefficient de diffusion  $D$  à 300K.

Les résultats sont de 20 à 30% supérieurs aux valeurs du tableau A-1, ce qui laisse supposer que la densité gazeuse de l'échantillon est *inférieure* à la densité nominale. Cet écart systématique ne peut être imputé à la mesure géométrique du rayon ; il est également trop important pour qu'on puisse invoquer pour l'expliquer l'incertitude sur l'étalonnage. Il pourrait provenir d'un couplage positif entre les spins atomiques et le circuit de détection ; bien que le coefficient de qualité de celui-ci soit plus faible à haute température ( $Q \approx 40$ ), le couplage est suffisant pour que, compte tenu de la valeur de  $T_2$  (plusieurs dizaines de secondes), un effet positif ou négatif d'amortissement par rayonnement ("radiation damping") puisse se manifester. Néanmoins, un tel effet ne dépend pas, en première approximation, du gradient statique appliqué : il n'intervient donc pas directement dans la mesure de  $D_{33}$ .

L'écart de la valeur expérimentale à la valeur attendue constitue donc un indice supplémentaire confortant l'hypothèse selon laquelle le contenu de l'échantillon *n'est pas bien déterminé* -- en tout cas qu'il n'est pas conforme aux valeurs nominales . A 77,1K. un écart systématique analogue a été observé : le nombre total d'atomes en phase gazeuse semble moins élevé que prévu.



APPENDICE B
-------------

## D'UN POTENTIEL DE PAIRE U AU POTENTIEL V CREE PAR UN SUBSTRAT

L'objet de cet Appendice est de construire le potentiel  $V(\vec{r})$  vu par un atome d'hélium au voisinage d'un substrat de densité volumique  $\rho_s$ , à partir du potentiel de paire  $U(\vec{r})$  décrivant les interactions entre cet atome et un élément de substrat. Pour calculer  $V(\vec{r})$ , on suppose qu'il est possible de faire simplement la somme des interactions à deux corps de l'hélium et de chaque atome du substrat. Cette approximation d'additivité est justifiée par la faible polarisabilité des espèces en cause : les corrections à plusieurs corps sont négligeables, compte tenu de l'incertitude du potentiel de paire. La distribution des constituants du substrat détermine entièrement  $V(\vec{r})$ .

B-1 - Les atomes ou molécules du substrat occupent des sites déterminés

Dans cette approche, on suppose que le substrat est un monocristal solide semi-infini dont les constituants occupent les sites  $(\vec{R}_i)_{i \in \mathbb{N}}$ . Alors :

$$V(\vec{R}) = \sum_i U(\vec{r} - \vec{R}_i) \quad (\text{B-1})$$

Il est possible de tenir compte de la nature quantique du solide en décrivant la distribution atomique autour de chaque site  $\vec{R}_i$  par une fonction de délocalisation normée  $\varphi_i(\vec{R})$ . (B-1) devient alors :

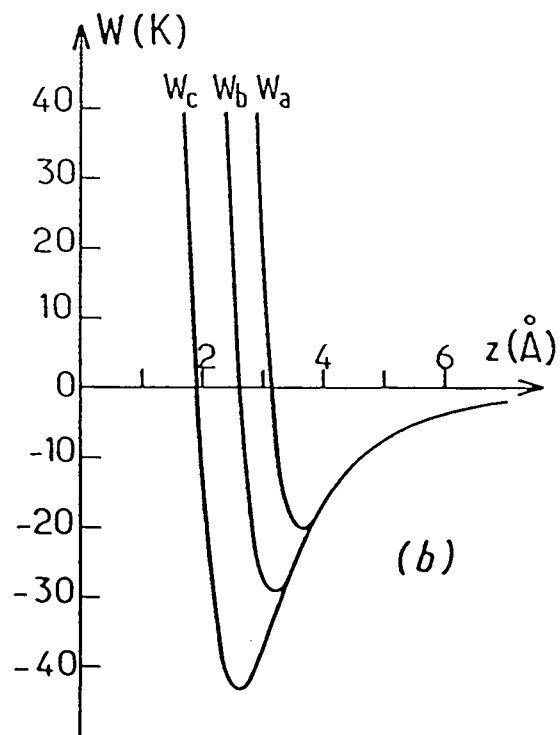
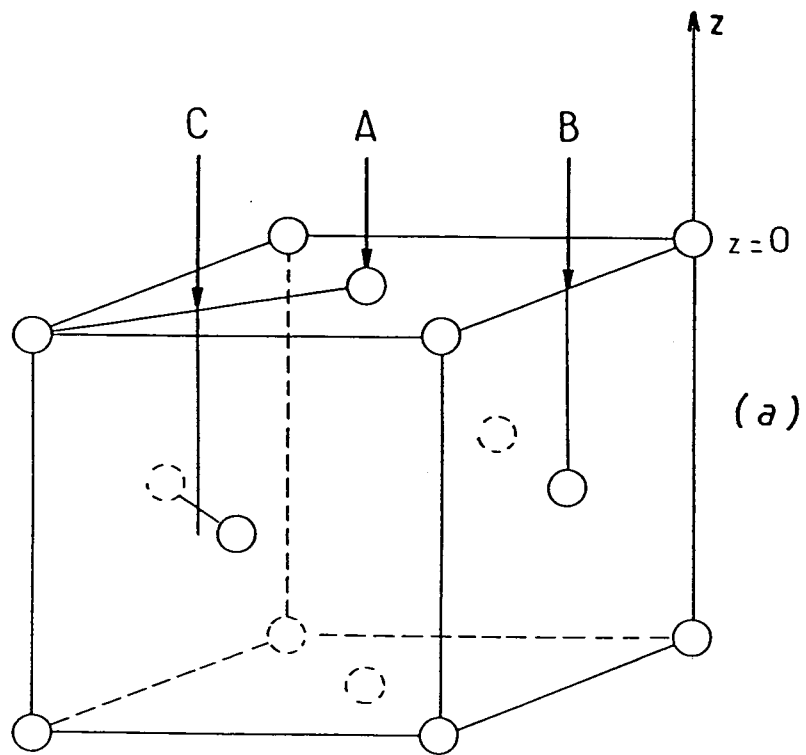
$$V(\vec{r}) = \sum_i \int d^3(\vec{R}) \varphi_i(\vec{R}) U(\vec{r} - \vec{R}) \quad (\text{B-2})$$

Soit  $\{z=0\}$  le plan contenant le dernier plan cristallin.  $V(\vec{r})$ , dans le demi-espace  $\{z>0\}$ , n'est pas invariant par translation de  $\vec{r}$  parallèlement au plan de surface  $\{z=0\}$ . Le potentiel  $V$  présente une certaine rugosité. La figure B-1-b, par exemple, montre les variations de  $V$  dans le cas d'un cristal cubique (f.c.c.) de  $H_2$  limité par un plan cristallin 100, lorsqu'on s'éloigne du plan  $\{z=0\}$  sur une parallèle à l'axe  $Oz$ , au-dessus des trois positions particulières A,B,C repérées sur la figure B-1-a.

La connaissance des états liés d'un atome d'hélium suppose la résolution d'une équation de Schrödinger complexe, tridimensionnelle. Les résultats obtenus dans ce cas particulier par Pierre et al. [1985] montrent cependant que, sur  $H_2$ , la rugosité n'a pas d'effet très important : les états liés de  $^3He$  et  $^4He$  sont proches des états liés du potentiel  $W_b(z)$  à une dimension (voir figure B-1-b), dont une approximation analytique,  $V_2^{CL}$ , a été donnée au chapitre III (formule III-4). En revanche, les résultats sont sensibles aux variations de la fonction d'onde  $\varphi_1$ , donc à la localisation des atomes du substrat. Ces deux constats -- importance de la délocalisation, peu d'importance de la rugosité --, associés au désir de disposer, lorsque le potentiel de paire  $U(\vec{r})$  a une forme analytique simple, d'un résultat  $V(\vec{r})$  simple à utiliser (par exemple analytique), ont conduit à utiliser les modèles simplifiés des paragraphes qui suivent.

*Figure B-1 : a) Structure cubique à faces centrées. Dans le cas où le plan cristallin limitant la surface du substrat est un plan 1-0-0, Pierre et al. ont distingué trois positions caractéristiques repérées par les flèches A, B, C, et ont déterminé le potentiel  $W_a, W_b, W_c$  créé par le substrat sur une droite parallèle à l'axe des  $z$  située au-dessus de A, B, C.*

*b) Potentiels  $W_a, W_b, W_c$ , d'après Pierre et al. [1985]. L'écart entre les profondeurs des puits de potentiel permet d'apprécier la rugosité de la paroi. Mais, dès que  $z \geq 4 \text{ \AA}$ , les potentiels  $W_a, W_b, W_c$  sont identiques.*





B-2 - Les constituants du substrat sont totalement délocalisés dans les plans cristallins ; la position de ceux-ci est complètement déterminée

On suppose à ce stade que le cristal solide constituant le substrat est composé des plans cristallins  $\Pi_p$  régulièrement distribués coïncidant avec les plans  $\{z=-pd_0\}$ ,  $p \in \mathbb{N}$  ; l'origine de  $z$  est donc prise à la position du premier plan cristallin. La constante  $d_s$  est la distance entre plans cristallins consécutifs ; elle dépend des caractéristiques du réseau solide et du choix du plan du réseau qui, par hypothèse, constitue la surface. Dans chaque plan, on représente les constituants à l'aide d'une fonction de distribution uniforme, caractérisée simplement par la valeur  $d_s$  de la densité atomique ou moléculaire à deux dimensions. Si  $\rho_s$  est la densité du cristal, on a simplement :

$$d_s = \rho_s \cdot d_0 \quad (\text{B-3})$$

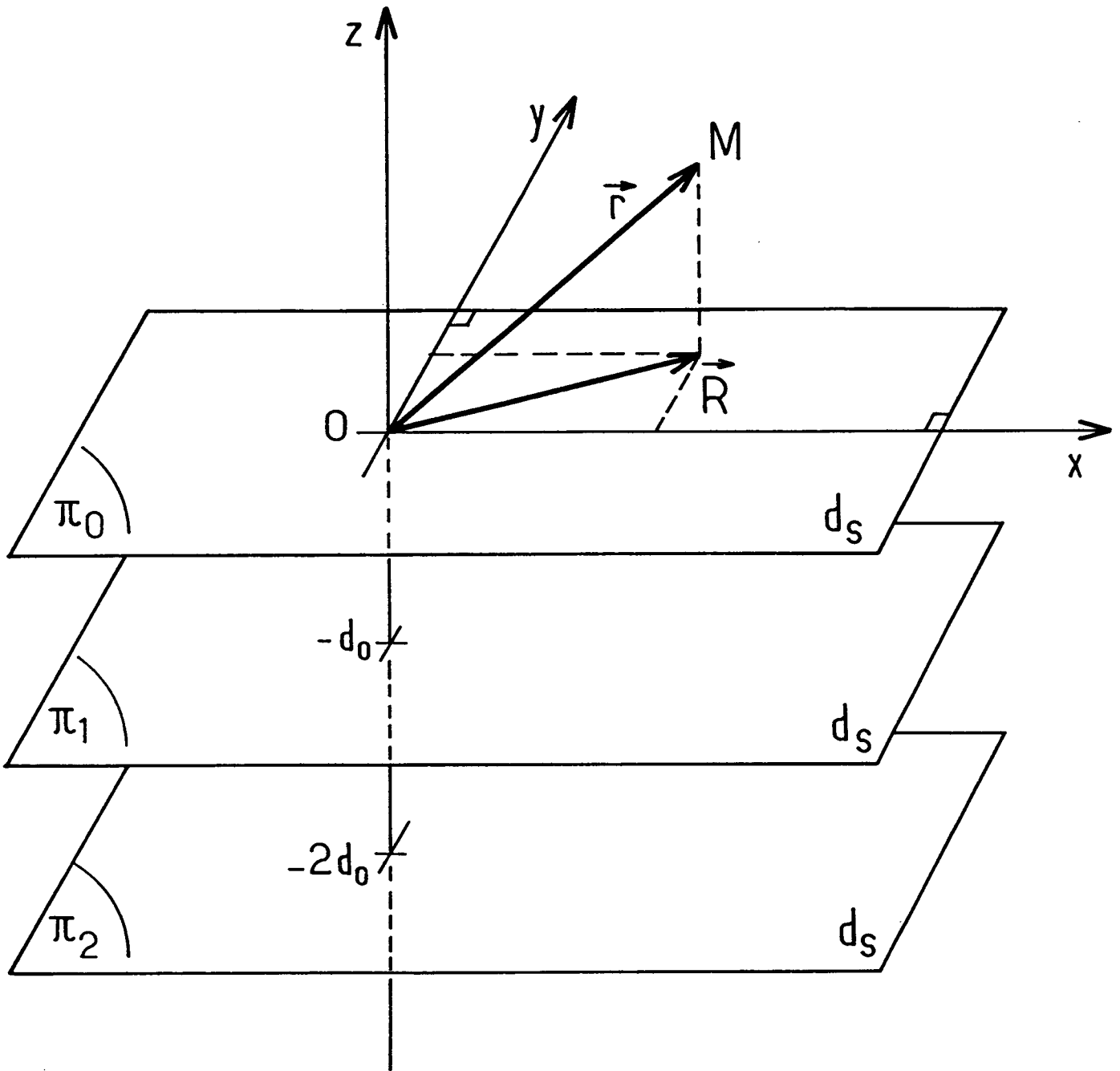
Le potentiel  $V_{\Pi}$  créé par le plan  $\Pi_0$  de densité  $d_s$  situé en  $z=0$  est alors au point  $M(\vec{r})$  :

$$V_{\Pi}(\vec{r}) = d_s \int d^2\vec{R} U(\vec{r}-\vec{R}) \quad (\text{B-4})$$

où  $\vec{R}$  décrit le plan vectoriel  $Oxy$  (figure B-2). En supposant que  $U(\vec{r})$  ne dépend que de la distance, il vient :

$$V_{\Pi}(\vec{r}) = V_{\Pi}(z) = d_s \int dX dY U\left(\sqrt{(X-x)^2 + (Y-y)^2 + z^2}\right) \quad (\text{B-5})$$

et  $V_{\Pi}$  ne dépend que de la distance  $z$  au plan de surface.



*Figure B-2 : Décomposition schématique du demi-espace formant la paroi en une succession de plans cristallins équidistants au sein desquels les constituants sont uniformément répartis.*

Le potentiel créé par tout le substrat est obtenu en sommant la contribution des différents plans :

$$V(z) = \sum_{p=0}^{+\infty} V_{\Pi}(z + pd_0) = d_s \sum_{p=0}^{+\infty} \int dXdY U \left( \sqrt{(X-x)^2 + (Y-y)^2 + (z+pd_0)^2} \right) \quad (\text{B-6})$$

Dans le cas où  $U(r)$  peut être développé sous la forme :

$$U(r) = \sum_{q \geq 3} U_{(q)} \frac{1}{r^q} \quad (\text{B-7})$$

on peut effectuer l'intégrale, soit :

$$\int \frac{dX dY}{[(X-x)^2 + (Y-y)^2 + z^2]^{q/2}} = \frac{2\pi}{(q-2)} \frac{1}{z^{q-2}} \quad (\text{B-8})$$

et donc obtenir :

$$V_{\Pi}(z) = d_s \sum_{q \geq 3} U_{(q)} \frac{2\pi}{(q-2)} \frac{1}{z^{q-2}} \quad (\text{B-9})$$

soit :

$$V(z) = d_s \sum_{q \geq 3} U_{(q)} \frac{2\pi}{(q-2)} \sum_{p=0}^{+\infty} \frac{1}{(z+pd_0)^{q-2}} \quad (\text{B-10})$$

La sommation portant sur  $p$ , correspondant aux différents plans du réseau, peut être effectuée à l'aide des fonctions dérivées de  $\Gamma(z)$  :

$$\sum_{p=0}^{+\infty} \frac{1}{(z+pd_0)^{q-2}} = \frac{1}{d_0^{q-2}} (-1)^{q-2} \frac{\psi^{(q-2)} \left( \frac{z}{d_0} \right)}{(q-3)!} \quad (\text{B-11})$$

où les fonction  $\psi^{(n)}$  sont définies par :

$$\psi^{(n)}(x) = \frac{d^{n+1}}{dx^{n+1}} [ \text{Ln} (\Gamma(x)) ] \quad (\text{B-12})$$

Application : Dans le cas particulier où U est un potentiel (12-6) de Lennard-Jones, de forme usuelle donnée par (II-8) :

$$U^{LJ}(r) = 4\varepsilon \left( \left( \frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r} \right)^6 \right) \quad (\text{B-13})$$

on calcule aisément :

$$V_{\Pi}^{LJ}(z) = 8\pi \varepsilon d_s \sigma^2 \left( \frac{1}{10} \left( \frac{\sigma}{z} \right)^{10} - \frac{1}{4} \left( \frac{\sigma}{z} \right)^4 \right) \quad (\text{B-14})$$

$$V^{LJ}(z) = 8\pi \varepsilon d_s \sigma^2 \left( \frac{1}{10} \left( \frac{\sigma}{d_0} \right)^{10} \frac{\psi^{(9)} \left( \frac{z}{d_0} \right)}{9!} - \frac{1}{4} \left( \frac{\sigma}{d_0} \right)^4 \frac{\psi^{(3)} \left( \frac{z}{d_0} \right)}{3!} \right) \quad (\text{B-15})$$

La valeur  $d_0$  fixe l'échelle en  $z$  de  $V^{LJ}(z)$ . Le rapport  $\frac{1}{n!} \psi^{(n)}(1)$ , proche de 1, dépend peu de  $n$ . Le rapport  $\left( \frac{\sigma}{d_0} \right)^6$  détermine le poids relatif des différents termes : la partie attractive du potentiel est d'autant plus dominante que le rayon de coeur dur de U est petit et que la distance  $d_0$  entre plans cristallins est élevé. Le comportement asymptotique au voisinage de 0 de la fonction  $\psi^{(n)}(x)$  est le suivant :

$$\psi^{(n)}(x) \sim (-1)^{n+1} n! \frac{1}{x^{n+1}} \quad \text{si } x \rightarrow 0 \quad (\text{B-16})$$

et le développement de  $\psi^{(n)}(x)$ , pour  $x$  infini, s'écrit :

$$\psi^{(n)}(x) \sim (-1)^{n-1} \left( \frac{(n-1)!}{x^n} + \frac{n!}{2x^{n+1}} + \sum_{k=1}^{+\infty} B_{2k} \frac{(2k+n-1)!}{(2k)! x^{2k+n}} \right) \quad (\text{B-17})$$

(les coefficients  $B_{2k}$  sont les nombres de Bernouilli).

Ainsi, lorsque  $z \ll d_0$ , l'effet dominant provient du premier plan cristallin :

$$v^{(LJ)} \sim 8\pi \varepsilon d_s \sigma^2 \frac{1}{10} \left( \frac{\sigma}{d_0} \right)^{10} \frac{1}{9!} (-1)^8 9! \left( \frac{d_0}{z} \right)^{10} \sim V_{\Pi}^{LJ}(z) \quad (\text{B-18})$$

En revanche, lorsque  $z \gg d_0$ , le potentiel  $V$  devient équivalent au potentiel créé par un milieu semi-infini homogène.

### B-3 - Le substrat est assimilé à un milieu semi-infini homogène

Nous considérons désormais le système comme un milieu semi-infini homogène de densité  $\rho_s$  : chaque constituant est complètement délocalisé ; le réseau décrit précédemment est transformé en un milieu homogène occupant, par hypothèse, tout le demi-espace  $\mathcal{E} = \left\{ z ; z \leq \frac{d}{2} \right\}$ . On précisera plus loin le sens physique de la longueur  $d$ .

Dans ces conditions, l'intégrale (B-2) devient simplement :

$$V_{\infty}(\vec{r}) = \rho_s \int_{\mathcal{E}} d^3\vec{R} U(\vec{r}-\vec{R}) \quad (\text{B-19})$$

Dans le cas particulier du potentiel (B-7), on obtient, après intégration de (B-9) par rapport à  $z$  :

$$V_{\infty}(z) = \sum_{q \geq 3} \rho_s U_{(q)} \frac{2\pi}{(q-2)(q-3)} \frac{1}{\left(z - \frac{d}{2}\right)^{q-3}} \quad (\text{B-20})$$

Dans le cas du potentiel Lennard-Jones (B-13), on obtient :

$$V_{\infty}^{LJ}(z) = 8\pi \varepsilon \rho_s \sigma^3 \left\{ \frac{1}{90} \left(\frac{\sigma}{z - \frac{d}{2}}\right)^9 - \frac{1}{12} \left(\frac{\sigma}{z - \frac{d}{2}}\right)^3 \right\} \quad (\text{B-21})$$

Le comportement asymptotique  $\left(z - \frac{d}{2} \gg \sigma\right)$  est alors :

$$V_{\infty}^{LJ}(z) \sim - \frac{2\pi \varepsilon \rho_s \sigma^6}{3 \left(z - \frac{d}{2}\right)^3} \quad (\text{B-22})$$

dont la partie principale ( $z \gg d$ ) s'écrit :

$$V_{\infty}^{LJ}(z) \sim - \frac{2\pi \varepsilon \rho_s \sigma^6}{3 z^3} \quad (\text{B-23})$$

On peut retrouver ce comportement à partir de (B-15). On développe  $\psi^{(9)}$ ,  $\psi^{(3)}$ , avec (B-17), et on ne garde que les premiers termes, lorsque  $z \gg d_0$ . En utilisant une notation de Landau :

$$V^{LJ}(z) = -2\pi\varepsilon d_s \sigma^2 \left(\frac{\sigma}{d_0}\right)^4 \frac{1}{6} \left\{ 2 \left(\frac{d_0}{z}\right)^3 + 3 \left(\frac{d_0}{z}\right)^4 + \mathcal{O}\left[\left(\frac{d_0}{z}\right)^5\right] \right\} \quad (\text{B-24})$$

La partie principale coïncide avec celle de  $V_{\infty}^{LJ}(z)$  donnée en (B-23), compte tenu de (B-3) :

$$V^{LJ}(z) \sim - \frac{2\pi \varepsilon}{3} \left( \frac{d_s}{d_0} \right) \frac{\sigma^6}{z^3} \quad (\text{B-25})$$

(B-24) peut cependant être mise sous la forme :

$$V^{LJ}(z) = - \frac{2\pi\varepsilon}{3} \left( \frac{d_s}{d_0} \right) \frac{\sigma^6}{z^3} \left\{ 1 + (-3) \left( -\frac{d_0}{2z} \right) + \mathcal{O}\left(\frac{d_0^2}{z^2}\right) \right\} \quad (\text{B-26})$$

qui coïncide, au deuxième ordre inclus, avec le développement  $\sigma \ll \left( z - \frac{d}{2} \right)$  puis  $d \ll z$  de (B-22)

$$V_{\infty}^{LJ}(z) = - \frac{2\pi\varepsilon}{3} (p_s) \frac{\sigma^6}{z^3} \left\{ 1 + (-3) \left( -\frac{d}{2z} \right) + \mathcal{O}\left(\frac{d^2}{z^2}\right) \right\} \quad (\text{B-27})$$

si on choisit :

$$d = d_0 \quad (\text{B-28})$$

Le "décalage en  $z$ " postulé pour définir le demi-espace  $\mathcal{E}$  n'est alors plus artificiel : comme cela est suggéré figure B-3, les constituants du substrat qui appartiennent aux différents plans cristallins considérés au § B-2, dont la densité  $d_s$  est donnée par (B-3), ont été "répartis" sur une épaisseur totale selon  $z$  égale à la distance entre plans  $d_0$ . Le milieu semi-infini homogène équivalent occupe tout le demi-espace  $\mathcal{E} = \left\{ z ; z \leq \frac{d_0}{2} \right\}$ .

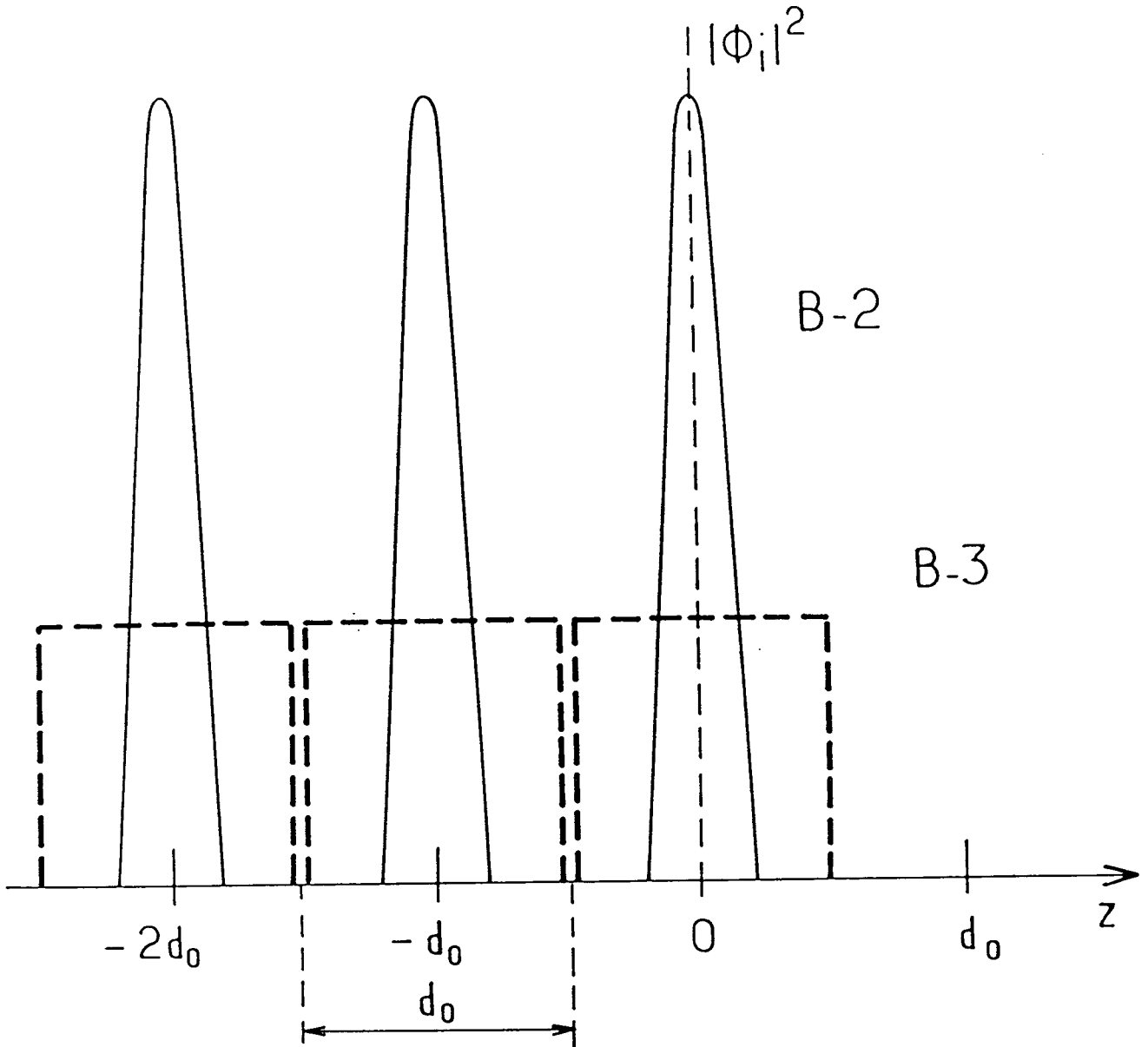


Figure B-3 : Représentation schématique de la localisation des constituants du substrat : au § B.2, on suppose ceux-ci localisés dans les plans cristallins en  $-pd_0, p \in \mathbb{N}$ . La dépendance en  $z$  de la fonction  $|\varphi_i|^2$  (voir (B-2)) est celle d'une fonction  $\delta$  de Dirac (elle a été élargie par commodité); au § B-3, les constituants sont délocalisés en un milieu homogène occupant tout le demi-espace  $\{z \leq d_0/2\}$  : tout se passe comme si chaque constituant se trouvait délocalisé en  $z$  sur une distance  $\pm d_0/2$  autour de sa position précédente.



Par rapport à la situation initialement considérée au § B-1, chaque constituant localisé au site  $\vec{R}_1$  du réseau a été délocalisé uniformément à l'intérieur d'un volume tenant compte de l'anisotropie du cristal, par exemple un parallélépipède rectangle de dimension  $d_0$  selon Oz et  $\frac{1}{\sqrt{d_s}}$  selon deux directions orthogonales.

APPENDICE C
-------------

PIEGEAGE CONCURRENTIEL DE  $^3\text{He}$  ET  $^4\text{He}$  SUR DES SITES LOCALISES

L'objet de cet Appendice est d'établir les relations (IV-46) qui donnent les conditions de l'équilibre existant entre l'hélium-3 et l'hélium-4 lorsque les atomes des deux espèces sont en compétition pour être piégés sur un ensemble de sites localisés.

Soit  $N_s$  le nombre total de sites,  $\hat{N}_3$ ,  $\hat{N}_4$  le nombre de sites occupés respectivement par des atomes  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  ; soient  $\mu_3$ ,  $\mu_4$  le potentiel chimique des réservoirs d'atomes  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$  en équilibre thermodynamique avec les atomes piégés ; soit  $\hat{E}_3$  et  $\hat{E}_4$  ( $\leq 0$ ) les énergies de liaison respectives dans un site. On fait l'hypothèse que  $\hat{E}_3$  ne dépend pas du spin de  $^3\text{He}$  ; on suppose qu'un site donné ne peut pas être occupé par plus d'un atome. Enfin, on néglige toute interaction entre atomes piégés. On se propose de déterminer les propriétés du système par l'intermédiaire du calcul du grand potentiel thermodynamique (voir par exemple. Balian [1982]) :

$$\Omega \equiv \Omega (\beta, \mu_3, \mu_4) \quad (\text{C-1})$$

où :

$$\beta = \frac{1}{k_B T} \quad (\text{C-2})$$

Le nombre d'états macroscopiques différents, pour un ensemble de  $N_4$  atomes  $^4\text{He}$  indiscernables et  $N_3$  atomes  $^3\text{He}$  de spin

1/2 distribués sur  $N_s$  sites individuels équivalents, s'écrit (\*):

$$2^{N_3} \mathcal{C}_{N_s}^{N_3} \mathcal{C}_{N_s - N_3}^{N_4} = 2^{N_3} \mathcal{C}_{N_s}^{N_4} \mathcal{C}_{N_s - N_4}^{N_3} \quad (\text{C-3})$$

La fonction de partition, dans l'ensemble canonique, vaut alors, pour ces  $(N_3 + N_4)$  atomes :

$$Z_c(\beta, N_3, N_4) = 2^{N_3} \mathcal{C}_{N_s}^{N_4} \mathcal{C}_{N_s - N_4}^{N_3} \exp\left[-\beta(N_3 \hat{E}_3 + N_4 \hat{E}_4)\right] \quad (\text{C-4})$$

La fonction de partition dans l'ensemble Grand Canonique (équilibre avec les réservoirs d'atomes à  $\mu_3, \mu_4$ ) se déduit de (C-4) :

$$Z_{GC}(\beta, \mu_3, \mu_4) = \sum_{N_3, N_4} \exp[\beta(\mu_4 N_4 + \mu_3 N_3)] Z_c(\beta, N_3, N_4) \quad (\text{C-5})$$

Puisqu'il n'y a pas d'interactions entre atomes, (C-5) peut être factorisée :

$$Z_{GC}(\beta, \mu_3, \mu_4) = \sum_{N_3=0}^{N_s} 2^{N_3} \mathcal{C}_{N_s}^{N_3} e^{-\beta N_3 (\hat{E}_3 - \mu_3)} \sum_{N_4=0}^{N_s - N_3} \mathcal{C}_{N_s - N_3}^{N_4} e^{-\beta N_4 (\hat{E}_4 - \mu_4)} \quad (\text{C-6a})$$

$$= \sum_{N_3=0}^{N_s} 2^{N_3} \mathcal{C}_{N_s}^{N_3} e^{-\beta N_3 (\hat{E}_3 - \mu_3)} \left(1 + e^{-\beta (\hat{E}_4 - \mu_4)}\right)^{N_s - N_3} \quad (\text{C-6b})$$

$$= \left[ 1 + \exp\left[\beta(\mu_4 - \hat{E}_4)\right] + 2 \exp\left[\beta(\mu_3 - \hat{E}_3)\right] \right] \prod_{N_s} \quad (\text{C-6c})$$

(\*) La notation  $\mathcal{C}_p^q$  est la notation d'analyse combinatoire habituelle :  $\mathcal{C}_p^q = p! / [(p-q)!q!]$ . C'est le nombre de sous-ensembles à  $q$  éléments d'un ensemble à  $p$  éléments.

Le calcul du grand potentiel :

$$\Omega = - kT \text{ Log}(Z_{c.c.}) \quad (\text{C-7})$$

donne les nombres d'occupation  $\hat{N}_3$  et  $\hat{N}_4$  de (IV-46) :

$$\hat{N}_3 = - \left( \frac{\partial \Omega}{\partial \mu_3} \right)_{\beta, \mu_4} = N_s \frac{2 e^{\beta(\mu_3 - \hat{E}_3)}}{1 + 2 e^{\beta(\mu_3 - \hat{E}_3)} + e^{\beta(\mu_4 - \hat{E}_4)}} \quad (\text{C-8a})$$

$$\hat{N}_4 = - \left( \frac{\partial \Omega}{\partial \mu_4} \right)_{\beta, \mu_3} = N_s \frac{e^{\beta(\mu_4 - \hat{E}_4)}}{1 + 2 e^{\beta(\mu_3 - \hat{E}_3)} + e^{\beta(\mu_4 - \hat{E}_4)}} \quad (\text{C-8b})$$

Lorsque l'équilibre est établi avec une phase gazeuse d'hélium contenant respectivement  $N_3^G, N_4^G$  ( $\gg 1$ ) atomes  $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$ , au sein de laquelle les potentiels chimiques valent :

$$\mu_3 = \tilde{\mu}_3 = \beta^{-1} \text{Ln} \left( \frac{N_3^G}{2V} \lambda_3^3 \right) \quad (\text{C-9})$$

$$\mu_4 = \tilde{\mu}_4 = \beta^{-1} \text{Ln} \left( \frac{N_4^G}{V} \lambda_4^3 \right) \quad (\text{C-10})$$

(  $\lambda_\nu$  est la longueur d'onde de de Broglie de l'espèce  $\nu$  ); il vient :

$$\frac{\hat{N}_3}{N_s} = \frac{N_3^G}{V} \lambda_3^3 \frac{e^{-\beta \hat{E}_3}}{1 + \frac{N_4^G}{V} \lambda_4^3 e^{-\beta \hat{E}_4} + \frac{N_3^G}{V} \lambda_3^3 e^{-\beta \hat{E}_3}} \quad (\text{C-11})$$

et :

$$\frac{\hat{N}_3}{\hat{N}_4} = 1,54 \frac{N_3^G}{N_4^G} \exp \left[ -\beta \left( \hat{E}_3 - \hat{E}_4 \right) \right] \quad (\text{C-12})$$

APPENDICE D
-------------

LIEN ENTRE  $\Gamma_a$  ( EN PHASE ADSORBEE ) ET  $T_1$  ( EN PHASE GAZEUSE )

L'objet de cet Appendice est de calculer le temps de relaxation  $T_1$  de l'orientation d'un échantillon de  $N$  atomes dans les conditions suivantes : le système comprend deux phases, l'une gazeuse et l'autre adsorbée ; les  $N_g$  atomes du gaz s'échangent avec les  $N_a$  atomes de la phase adsorbée, qui seuls subissent des processus de relaxation (magnétique) de leur orientation ; le taux de relaxation en phase adsorbée est  $\Gamma_a$ .

On se propose de montrer que, lorsque le temps d'échange  $T_e$  entre les phases est court devant  $T_1$  et lorsque la phase adsorbée est numériquement très minoritaire, la valeur du temps de relaxation  $T_1$  de l'ensemble s'écrit :

$$\frac{1}{T_1} = \Gamma_a \frac{N_a}{N} \quad (D-1)$$

où :

$$N = N_a + N_g \simeq N_g \quad (D-2)$$

#### D-1 - Hypothèses

On suppose que l'équilibre thermodynamique est atteint :  $N_a, N_g$  ne dépendent pas du temps ; on suppose que le taux de relaxation dans la phase adsorbée ne dépend ni du temps, ni de  $N_a$ . Enfin, on fait l'hypothèse que l'échange entre phases est indépendant de l'orientation et peut être décrit par un temps d'échange unique et constant.  $T_e$  est par définition le temps d'échange vu du gaz.

## D-2 - Equations d'évolution

L'aimantation  $\vec{M}_g$  du gaz et l'aimantation  $\vec{M}_a$  de la phase adsorbée satisfont les équations suivantes :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} N_g & \vec{M}_g \end{pmatrix} = - \frac{N_g}{T_e} \vec{M}_g + \frac{N_g}{T_e} \vec{M}_a \quad (D-3)$$

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} N_a & \vec{M}_a \end{pmatrix} = \frac{N_g}{T_e} \vec{M}_g - \frac{N_g}{T_e} \vec{M}_a - \Gamma_a N_a \vec{M}_a \quad (D-4)$$

En posant  $\rho = \frac{N_g}{N_a}$ , ces équations prennent la forme matricielle :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \vec{M}_g \\ \vec{M}_a \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{1}{T_e} & -\frac{1}{T_e} \\ -\frac{\rho}{T_e} & \frac{\rho}{T_e} + \Gamma_a \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{M}_g \\ \vec{M}_a \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \vec{0} \\ \vec{0} \end{pmatrix} \quad (D-5)$$

## D-3 - Résolution

Le système différentiel linéaire homogène du premier ordre à coefficients constants ci-dessus admet pour solutions les combinaisons linéaires des fonctions exponentielles  $\exp(-t/\tau_{\pm})$ , avec :

$$\frac{1}{\tau_{\pm}} = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{T_e} + \left( \Gamma_a + \frac{\rho}{T_e} \right) \pm \left[ \left( \frac{1}{T_e} (1+\rho) + \Gamma_a \right)^2 - 4 \frac{\Gamma_a}{T_e} \right]^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (D-6)$$

Supposons que  $\tau_+$  et  $\tau_-$  sont très différents; entre la somme  $\sigma_1$  des racines et leur produit  $\sigma_2$  est vérifiée l'inégalité :

$$\sigma_1^2 = \left( \frac{1}{T_e} (1+\rho) + \Gamma_a \right)^2 \gg \sigma_2 = \frac{\Gamma_a}{T_e} \quad (D-7)$$

C'est le cas en particulier lorsque  $\Gamma_a \gg \frac{\rho}{T_e}$  ou bien  $\frac{\rho}{T_e} \gg \Gamma_a$ .

Alors (D-6) devient :

$$\frac{1}{\tau_{\pm}} \simeq \frac{1}{2} \left( \sigma_1 \pm \sigma_1 \left( 1 - \frac{2}{\sigma_1^2} \sigma_2 \right) \right) \quad (\text{D-8})$$

soit :

$$\frac{1}{\tau_+} \simeq \sigma_1 \gg \frac{1}{\tau_-} \simeq \frac{\sigma_2}{\sigma_1} = \frac{1}{T_e + \left( \frac{1+\rho}{\Gamma_a} \right)} \quad (\text{D-9})$$

La première constante de temps  $\tau_+$  est courte, elle correspond à un amortissement rapide des inhomogénéités de l'aimantation entre les phases. La seconde constante de temps  $\tau_-$  est longue: c'est la valeur de  $T_1$  qui est mesurée dans nos expériences. Ainsi :

$$\frac{1}{T_1} \simeq \frac{1}{T_e + \left( \frac{1+\rho}{\Gamma_a} \right)} \quad (\text{D-10})$$

Si  $T_e \ll T_1$ , l'échange entre phase gazeuse et phase adsorbée est instantané du point de vue de la relaxation globale de l'échantillon. (D-10) devient :

$$\frac{1}{T_1} \simeq \frac{1}{\Gamma_a} = \Gamma_a \frac{1}{1 + \rho} = \Gamma_a \frac{N_a}{(N_a + N_g)} \quad (\text{D-11})$$



APPENDICE E
-------------

CALCUL DU TAUX DE RELAXATION EN PHASE ADSORBÉE  
DANS PLUSIEURS CAS PARTICULIERS  
SIMPLES

Le but de cet appendice est d'établir l'expression du taux de relaxation  $\Gamma_a$  correspondant au modèle simple décrit au paragraphe V.A : les atomes de  $^3\text{He}$  sont adsorbés avec un temps de séjour  $\tau_s$  dans un plan à une cote  $z_0$  au-dessus d'un substrat contenant des impuretés paramagnétiques. Ils se déplacent dans un plan en suivant un mouvement de vol libre ou de diffusion, ou bien ils sont piégés sur des sites fixes.

Nous allons d'abord déterminer les propriétés spatiales du champ vu par les atomes ( E-1 ) puis en déduire les fonctions de corrélation temporelles du champ vu par un atome dans son mouvement ( E-2 ). Le taux de relaxation dans la phase adsorbée, dans l'hypothèse où les conditions de rétrécissement par le mouvement sont satisfaites [Abragam 1961], s'exprime en effet à l'aide de ces fonctions de corrélation.

### E.1 - Le champ relaxant

#### E.1.a - Hypothèses retenues pour les sources du champ relaxant

Nous supposons que le champ relaxant est créé par un ensemble de moments magnétiques ponctuels  $\vec{\mu}_1$ , tous identiques, de même module  $\mu = \|\vec{\mu}_1\|$ , uniformément distribués aux points  $\vec{r}_1$  du demi-espace  $\{z \leq 0\}$  (voir figure V-3). Ces moments magnétiques sont orientés et répartis aléatoirement ;  $\vec{\mu}_1$ ,  $\vec{r}_1$  sont indépendants du temps. Soit  $\rho_\mu$  leur densité volumique. On note  $(0, \vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$  le trièdre de référence.

Il est utile d'introduire la densité de magnétisation ( $\delta$  est la fonction de Dirac).

$$\vec{M}(\vec{r}) = \sum_i \mu_i \delta(\vec{r} - \vec{r}_i) \quad (\text{E-1})$$

et sa transformée de Fourier spatiale

$$\vec{M}(\vec{k}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \sum_i \mu_i e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}_i} \quad (\text{E-2})$$

D'après l'hypothèse d'isotropie de la répartition des moments magnétiques, la moyenne statistique de ces deux quantités sur toutes les distributions possibles de moments est nulle.

Nous utiliserons dans la suite les fonctions de corrélation spatiale de l'aimantation. Nous supposerons que, pour le matériau massif constituant la paroi, on peut écrire (\*) ( $\delta_{\alpha\beta}$  est un symbole de Kronecker)

$$\overline{M_\alpha(\vec{r})M_\beta(\vec{r}')} = \frac{1}{3} \mu^2 \rho_\mu \delta_{\alpha\beta} \delta(\vec{r} - \vec{r}') \quad (\text{E-3})$$

(E-3) signifie simplement que les moments magnétiques des différentes impuretés ne sont pas corrélés entre eux. On peut tenir compte des corrélations éventuelles -- comme celles qui apparaîtraient si les impuretés formaient des domaines magnétiques [V. Lefevre 1984] -- en remplaçant la fonction  $\delta(\vec{r} - \vec{r}')$  par une fonction  $g(\vec{r} - \vec{r}')$  de largeur finie reliée à la taille des domaines formés.

---

(\*)  $\alpha$  et  $\beta$  représentent indifféremment des composantes spatiales  $x$ ,  $y$  ou  $z$  ; la barre surmontant le membre de gauche représente la moyenne statistique de l'expression surlignée.

---

La paroi est constituée du milieu décrit par (E-3) pour  $z \leq 0$  seulement. La fonction de corrélation de l'aimantation est alors

$$\begin{aligned} \overline{M_\alpha(\vec{r})M_\beta(\vec{r}')} &= \frac{1}{3} \mu^2 \rho_\mu \delta_{\alpha\beta} \delta(\vec{r} - \vec{r}') Y(-z) Y(-z') \\ &= \frac{1}{3} \mu^2 \rho_\mu \delta_{\alpha\beta} \delta(\vec{r} - \vec{r}') Y(-z) \end{aligned} \quad (\text{E-4})$$

où  $Y(z)$  représente la fonction "échelon" de Heaviside. Dans l'espace de Fourier, on obtient :

$$\begin{aligned} \overline{M_\alpha(\vec{k})M_\beta^*(\vec{k}')} &= \frac{1}{3} \mu^2 \rho_\mu \delta_{\alpha\beta} \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3\vec{r} e^{-i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{r}} Y(z) \\ &= \frac{1}{3} \mu^2 \rho_\mu \delta_{\alpha\beta} \delta(k_x - k'_x) \delta(k_y - k'_y) \frac{1}{2\pi} I(k_z - k'_z) \end{aligned} \quad (\text{E-5})$$

où

$$I(k_z - k'_z) = \int_{-\infty}^0 e^{-i(k_z - k'_z)z} dz \quad (\text{E-6})$$

Enfin le modèle adopté peut être appliqué si les impuretés forment de petits domaines ferromagnétiques sphériques de rayon  $a$  : le champ à l'extérieur du substrat est, dans ce cas, identique à celui créé par un substrat contenant des moments magnétiques ponctuels égaux au moment total des domaines et localisés en leur centre puisque, à l'extérieur d'une sphère d'aimantation volumique uniforme, le champ créé est un champ dipolaire pur. Dans la limite d'une densité d'impuretés faible, on peut considérer que les dipôles magnétiques résultant de ce "regroupement" sont répartis uniformément, comme les centres des domaines associés, dans le demi-espace s'étendant de  $z = -\infty$  à  $z = -a$ .

E.1.b - Calcul du champ magnétique et de ses fonctions de corrélation spatiales

Les équations locales de la magnétostatique

$$\begin{cases} \text{rot}(\vec{B} - \mu_0 \vec{M}) = \vec{0} \\ \text{div}(\vec{B}) = 0 \end{cases} \quad (\text{E-7})$$

indiquant que  $\vec{B}$  est la partie "transverse" de  $\mu_0 \vec{M}$ , ce qui s'écrit simplement sur les composantes de Fourier sous la forme

$$\vec{B}(\vec{k}) = \mu_0 \left\{ \vec{M}(\vec{k}) - \frac{\vec{k}}{k^2} (\vec{k} \cdot \vec{M}(\vec{k})) \right\} \quad (\text{E-8})$$

Le champ magnétique apparaît ainsi comme une fonction aléatoire dont les propriétés pourront être déduites de celles de  $\vec{M}(\vec{k})$ . (E-8) entraîne immédiatement que les moyennes de  $\vec{B}(\vec{k})$ , et donc celles de  $\vec{B}(\vec{r})$ , sont nulles.

Les fonctions de corrélation des composantes du champ  $\vec{B}$  s'expriment aussi en fonction de  $\vec{M}$  données par (E-5).

$$\begin{aligned} \overline{B_\alpha(\vec{k}) B_\beta^*(\vec{k}')} &= \mu_0^2 \overline{M_\alpha(\vec{k}) M_\beta^*(\vec{k}')} \\ &- \mu_0^2 \overline{M_\alpha(\vec{k}) k'_\beta \frac{(\vec{k}' \cdot \vec{M}^*(\vec{k}'))}{k'^2}} - \mu_0^2 \overline{M_\beta^*(\vec{k}') k_\alpha \frac{(\vec{k} \cdot \vec{M}(\vec{k}))}{k^2}} \\ &+ \mu_0^2 \frac{k_\alpha k'_\beta}{k^2 k'^2} \overline{(\vec{k} \cdot \vec{M}(\vec{k})) (\vec{k}' \cdot \vec{M}^*(\vec{k}'))} \end{aligned} \quad (\text{E-9})$$

Pour calculer la fonction de corrélation  $B_\alpha(\vec{R}) B_\beta(\vec{R}')$  de deux composantes de  $\vec{B}$  dans l'espace réel, on a recours à une double

transformation de Fourier :

$$\overline{B_\alpha(\vec{R})B_\beta(\vec{R}')}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3\vec{k}d^3\vec{k}' e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} e^{-i\vec{k}'\cdot\vec{R}'} \overline{B_\alpha(\vec{k})B_\beta^*(\vec{k}')} \quad (E-10)$$

Lorsque les vecteurs  $\vec{R}$  et  $\vec{R}'$  correspondent à des points extérieurs à la paroi, c'est-à-dire lorsque  $z$  et  $z'$  sont strictement positifs, seul le dernier terme du membre de droite de (E-9) donne une contribution non nulle à l'intégrale (E-10). En effet, la double transformation du premier terme donne directement  $\mu_0^2 M_\alpha(\vec{R})M_\beta(\vec{R}')$  qui est nul en dehors de la paroi. De façon analogue, les deuxième et troisième termes (conjugués dans l'échange  $\alpha \leftrightarrow \beta$  et  $\vec{k} \leftrightarrow \vec{k}'$ ) conduisent à des expressions du type  $\overline{M_\alpha(\vec{R})F_\beta(\vec{R}')})$  et  $\overline{F_\alpha(\vec{R})M_\beta(\vec{R}')})$  respectivement, qui sont nulles puisque l'aimantation  $\vec{M}$  est strictement nulle en dehors de la paroi.

Remarque:

On suppose que les moments magnétiques sources du champ sont complètement indépendants; on peut donc écrire

$$\overline{\mu_{1\alpha}\mu_{j\beta}^*} = \delta_{1j} \delta_{\alpha\beta} \frac{\mu^2}{3}$$

et calculer les contributions des premiers termes de (E-9) à l'intégrale (E-10), qui valent respectivement (l'indice 1 repère la projection orthogonale d'un vecteur sur le plan  $(x,y)$ ) :

$$\begin{aligned} & \mu_0^2 \delta_{\alpha\beta} \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \left( \int_{-\infty}^0 \delta(z-u)\delta(z'-u)du \right) \delta(\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp) \\ & - \frac{\mu_0^2}{(2\pi)^3} \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \int d^2\vec{k}_\perp e^{i\vec{k}_\perp(\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} \left( \int_{-\infty}^0 du \right) \int dk'_z e^{ik'_z(u-z')} \delta(z-u) \frac{k_\alpha k_\beta}{k^2} \end{aligned}$$

et le terme équivalent par échange ( $\alpha \leftrightarrow \beta$ ) de ( $\vec{k} \leftrightarrow \vec{k}'$ ). Cette dernière expression se simplifie lorsque  $\alpha = \beta = z$ , donnant

$$\square - \mu_0^2 \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \left[ \int_{-\infty}^0 du \delta(z^1 - u) \delta(\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp) \delta(z - u) + \frac{1}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_\perp k_\perp^2 e^{-k_\perp |z - u|} J_0(k_\perp |\vec{R}_\perp, \vec{R}'_\perp|) \right]$$

où  $J_0(x)$  est la fonction de Bessel:

$$J_0(x) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi \cos(x \cos \theta) d\theta$$

Il reste finalement, en utilisant (E-5) :

$$\overline{B_\alpha(\vec{R}) B_\beta(\vec{R}')} = \frac{1}{(2\pi)^4} \frac{\mu_0^2 \mu^2}{3} \rho_\mu \int \int d^3 \vec{k} d^3 \vec{k}' e^{i \vec{k} \cdot \vec{R}} e^{-i \vec{k}' \cdot \vec{R}'} \frac{\vec{k} \cdot \vec{k}'}{k^2 k'^2} k_\alpha k'_\beta I(k_z - k'_z) \delta(k_x - k'_x) \delta(k_y - k'_y) \quad (\text{E-11})$$

Pour achever le calcul, il faut distinguer plusieurs cas suivant les valeurs de  $\alpha, \beta$ . Nous nous limiterons dans la suite aux éléments diagonaux  $\alpha = \beta$ .

$\alpha$ ) Cas  $\alpha = \beta = z$

L'intégrale sur  $k'_x, k'_y$  dans (E-11) conduit à

$$\overline{B_z(\vec{R}) B_z(\vec{R}')} = \frac{\mu_0^2}{(2\pi)^4} \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \int d^2 \vec{k}_\perp \int dk_z dk'_z e^{i \vec{k}_\perp (\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} e^{i z k_z} e^{-i z k'_z} I(k_z - k'_z) k_z k'_z \frac{(k_\perp^2 + k_z k'_z)}{(k_\perp^2 + k_z^2)(k_\perp^2 + k'^2_z)} \quad (\text{E-12})$$

où l'indice  $\perp$  repère la projection d'un vecteur sur le plan  $(x,y)$ . Pour effectuer les intégrales sur  $k_z$  et  $k'_z$ , il convient de remplacer  $I(k_z - k'_z)$  par son expression (E-6). Les intégrales sur  $k_z$  et  $k'_z$  sont alors factorisées. En utilisant les relations

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu e^{i\nu \alpha} \frac{\nu^2}{\nu^2 + u^2} = \delta(\alpha) - |u| e^{-|u| \cdot |\alpha|} \quad (\text{E-13})$$

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu e^{i\nu \alpha} \frac{\nu}{\nu^2 + u^2} = -\text{sg}(\alpha) \frac{1}{2i} e^{-|u| \cdot |\alpha|} \quad (\text{E-14})$$

dans lesquelles  $\text{sg}(\alpha)$  désigne le signe ( $\pm 1$ ) du réel  $\alpha$ , il vient

$$\begin{aligned} \overline{B_z(\vec{R}) B_z(\vec{R}')} &= \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3(2\pi)^2} \int d^2 \vec{k}_\perp e^{i\vec{k}_\perp \cdot (\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} \times \\ &\int_{-\infty}^0 du \left\{ \left[ \delta(z-u) - \frac{k_\perp}{2} e^{-k_\perp |z-u|} \right] \left[ \delta(z'-u) - \frac{k_\perp}{2} e^{-k_\perp |z'-u|} \right] \right. \\ &\left. + \frac{k_\perp^2}{4} [\text{sg}((z-u)(z'-u))] e^{-k_\perp |z-u|} e^{-k_\perp |z'-u|} \right\} \quad (\text{E-15}) \end{aligned}$$

En se restreignant au demi-espace extérieur à la paroi, soit  $z$  et  $z'$  positifs, (E-15) devient

$$\overline{B_z(\vec{R}) B_z(\vec{R}')} = \mu_0^2 \frac{\rho_\mu \mu^2}{3} \int \frac{d^2 \vec{k}_\perp}{(2\pi)^2} e^{i\vec{k}_\perp \cdot (\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} \frac{k_\perp}{4} e^{-k_\perp (z+z')} \quad (\text{E-16})$$

$\beta)$  Cas  $\alpha \neq z$  et  $\beta \neq z$

A priori, les intégrales intervenant dans  $\overline{B_x(\vec{R}) B_x(\vec{R}')}$  et  $\overline{B_y(\vec{R}) B_y(\vec{R}')}$  dépendent de l'angle que fait  $(\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)$  avec les axes

du plan  $(\vec{e}_x, \vec{e}_y)$ . Mais tant que la symétrie de révolution autour de l'axe Oz est préservée, cet angle n'intervient pas dans les processus physiques qui nous concernent. Nous calculons simplement ici :

$$\overline{B_x(\vec{R})B_x(\vec{R}') + B_y(\vec{R})B_y(\vec{R}')} = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3(2\pi)^4} \int d^2 \vec{k}_\perp e^{i\vec{k}_\perp \cdot (\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} \int dk_z dk'_z e^{ik_z z} e^{-ik'_z z'} I(k_z - k'_z) \frac{k_\perp^2 (k_\perp^2 + k_z k'_z)}{(k_\perp^2 + k_z^2)(k_\perp^2 + k'^2_z)} \quad (\text{E-17})$$

En utilisant (E-14) et

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu e^{i\nu} \propto \frac{1}{\nu^2 + u^2} = \frac{1}{2|u|} e^{-|u| \cdot |\alpha|} \quad (\text{E-18})$$

on obtient

$$\overline{B_x(\vec{R})B_x(\vec{R}') + B_y(\vec{R})B_y(\vec{R}')} = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3} \int \frac{d^2 \vec{k}_\perp}{(2\pi)^2} e^{i\vec{k}_\perp \cdot (\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} \int_{-\infty}^0 du \left\{ \frac{k_\perp^4}{4k_\perp^2} e^{-k_\perp |z-u|} e^{-k_\perp |z'-u|} + \frac{k_\perp^2}{4} \text{sg}((z-u)(z'-u)) e^{-k_\perp |z-u|} e^{-k_\perp |z'-u|} \right\} \quad (\text{E-19})$$

(E-19) devient, lorsque  $z, z' > 0$  :

$$\overline{B_x(\vec{R})B_x(\vec{R}') + B_y(\vec{R})B_y(\vec{R}')} = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3} \int \frac{d^2 \vec{k}_\perp}{(2\pi)} e^{i\vec{k}_\perp \cdot (\vec{R}_\perp - \vec{R}'_\perp)} \frac{k_\perp}{8\pi} e^{-k_\perp (z+z')} \quad (\text{E-20})$$



γ) Commentaires

■ Il existe donc, à l'extérieur de la paroi, une règle de somme entre les diverses composantes, qui permet d'affirmer

$$\overline{B_x(\vec{R})B_x(\vec{R}')} + \overline{B_y(\vec{R})B_y(\vec{R}')} = \overline{B_z(\vec{R})B_z(\vec{R}')} \quad (\text{E-21})$$

■ La proportionnalité du résultat obtenu au carré d'un moment dipolaire individuel, mais à  $\rho_\mu$  seulement, résulte de l'hypothèse faite sur l'indépendance totale des sources ponctuelles du champ.

■ Le poids des fluctuations de champ de vecteur d'onde donné décroît exponentiellement avec la distance moyenne à la paroi ( $z+z'$ ), d'autant plus rapidement que la longueur d'onde est faible. Ce résultat est, par exemple, bien connu en électrostatique lorsqu'on s'intéresse à l'amplitude des fluctuations spatiales du champ créé par un treillis chargé.

## E.2 - Influence du mouvement des atomes

### E.2.a - Relation fondamentale : le taux de relaxation

Lorsqu'ils sont piégés au voisinage de la paroi, c'est-à-dire dans une région de l'espace où les fonctions de corrélation des composantes du champ ne sont pas nulles, les atomes relaxant ne sont pas immobiles a priori. L'action du champ sur leur orientation fait donc intervenir une moyenne dépendant du type de mouvement qu'ils possèdent. Dans l'hypothèse où le temps de corrélation  $\tau_c$  introduit au V.A.2.b.β est tel que la condition de rétrécissement par le mouvement est vérifiée, soit :

$$\tilde{\omega} \tau_c \ll 1 \quad (\text{E-22})$$

(où  $\tilde{\omega}$  est la pulsation de Larmor pour le spin nucléaire associé au champ magnétique aléatoire de la paroi). Il est possible d'exprimer simplement le taux de relaxation par unité de temps  $\Gamma_a$

d'un atome (\*) de la phase dite "adsorbée".

Supposons, par exemple, que le mouvement des atomes se produit dans les deux dimensions d'un plan parallèle à la surface de la paroi ; soit  $z_0$  la cote de ce plan. Lorsque le champ statique  $\vec{B}_0$  qui sert d'axe d'orientation des spins nucléaires est orthogonal à la paroi, on peut écrire [Abragam, 1961] :

$$\frac{\Gamma_a(t)}{\gamma^2} = \Re e \left\{ \int_0^\omega d\tau e^{i\omega_0 \tau} \int \int d^3\vec{R} d^3\vec{R}' \overline{\left( B_x(\vec{R}) B_x(\vec{R}') + B_y(\vec{R}) B_y(\vec{R}') \right)} \right. \\ \left. \delta(z-z_0) \delta(z'-z_0) f(\vec{R}_\perp, t) \underline{P}(\vec{R}_\perp, t; \vec{R}'_\perp, t+\tau) \right\} \quad (E-23)$$

■  $f$  est une fonction caractérisant la distribution initiale des atomes dans le plan : c'est, pour un atome qui va être adsorbé, la densité de probabilité de l'être en  $\vec{R}$  à la date  $t$ . Nous la supposons uniforme et égale à  $1/S$ , où  $S$  est la surface de paroi concernée par ce calcul.

■ le facteur  $e^{i\omega_0 \tau}$  est lié à la précession des spins nucléaires autour du champ statique ( $\omega_0$  est la pulsation de Larmor dans  $\vec{B}_0$ ). Ce facteur peut dans la plupart des cas être pris égal à 1 lorsque le temps de séjour sur la paroi est court devant une période de Larmor. On parle alors de relaxation en champ nul.

■ la fonction  $\underline{P}(\vec{R}_\perp, t; \vec{R}'_\perp, t+\tau)$  est la probabilité de trouver l'atome en  $\vec{R}'$  à l'instant  $t+\tau$  sachant qu'il était en  $\vec{R}$  à la date  $t$ .  $\underline{P}$  est exprimée par unité de surface. C'est la fonction de Green du mouvement des atomes. La désorption se traduit par

-----  
 (\*) La densité adsorbée est par hypothèse suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas lieu de considérer les interactions magnétiques entre atomes adsorbés.  
 -----

l'existence d'un temps de séjour fini  $\tau_s$  des atomes en phase adsorbée ; on en tient compte par l'introduction dans  $\underline{P}$  d'un facteur multiplicatif  $\exp(-\tau/\tau_s)$ .

■ Si  $\vec{e}_z$  est le vecteur unitaire dirigeant l'axe Oz, on a simplement  $\vec{R} = \vec{R}_\perp + z_0 \vec{e}_z$  compte tenu des deux fonctions  $\delta$  présentes dans la relation (E-23).

Dans l'hypothèse retenue, les fonctions de corrélation du champ et les fonctions  $\underline{P}$  et  $f$  sont invariantes par translation le long du plan (x,y) et par translation dans le temps.  $\Gamma_a$  ne dépend donc pas de t; l'expression (E-23) se réduit à l'intégrale d'espace suivante :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \Re_e \left\{ \int_0^\infty d\tau e^{i\omega_0 \tau} \int d^2 \vec{R}_\perp \underline{P}(\vec{0}; \vec{R}_\perp, \tau) \times \right. \\ \left. \overline{(B_x(z_0 \vec{e}_z) B_x(z_0 \vec{e}_z + \vec{R}_\perp) + B_y(z_0 \vec{e}_z) B_y(z_0 \vec{e}_z + \vec{R}_\perp))} \right\} \quad (E-24)$$

Il est plus commode d'utiliser la transformée de Fourier des fonctions de corrélation du champ magnétique dans le plan de cote  $z_0$  :

$$C_{\alpha\beta}(\vec{k}) = \frac{1}{2\pi} \int d^2 \vec{R}_\perp \overline{B_\alpha(z_0 \vec{e}_z) B_\beta(z_0 \vec{e}_z + \vec{R}_\perp)} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{R}_\perp} \quad (E-25)$$

et le propagateur associé à  $\underline{P}$  :

$$\mathcal{P}(\vec{k}, \omega) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^2 \vec{R}_\perp \int_0^\infty d\tau e^{i\omega \tau} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{R}_\perp} \underline{P}(\vec{0}; \vec{R}_\perp, \tau) \quad (E-26)$$

Utilisant alors l'égalité de Bessel-Perceval, on peut mettre (E-24) sous la forme :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \Re_e \left\{ \int d^2 \vec{k}_\perp (2\pi)^{\frac{1}{2}} \mathcal{P}(\vec{k}_\perp, \omega_0) \left[ C_{xx}(\vec{k}_\perp) + C_{yy}(\vec{k}_\perp) \right] \right\} \quad (E-27)$$

La description du mouvement des atomes est entièrement contenue dans la fonction  $\mathcal{P}$  ; nous allons considérer deux cas particuliers : le mouvement de diffusion et le vol libre.

### E.2.b - Mouvement de diffusion à deux dimensions

$\underline{P}(\vec{0}; \vec{R}_\perp, \tau)$  doit traduire dans ce cas la diffusion à deux dimensions dans le plan orthogonal à  $\vec{B}_0$  ; ce mouvement est limité par le temps de séjour  $\tau_s$ . On note  $D$  le coefficient de diffusion à deux dimensions. L'équation du mouvement donnant  $\underline{P}(\vec{R}_\perp, \tau)$  est :

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \underline{P}(\vec{R}_\perp, \tau) = - \frac{1}{\tau_s} \underline{P}(\vec{R}_\perp, \tau) + D \Delta \underline{P}(\vec{R}_\perp, \tau) + \delta(\vec{R}_\perp) \delta(\tau) \quad (\text{E-28})$$

Le propagateur correspondant obtenu par transformation de Fourier en  $\vec{R}_\perp$  et  $\tau$  s'écrit :

$$\mathcal{P}(\vec{k}_\perp, \omega) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{Dk_\perp^2 + \frac{1}{\tau_s} - i\omega_0} \quad (\text{E-29})$$

D'après (E-20), les fonctions de corrélation  $\mathcal{C}_{xx}$  et  $\mathcal{C}_{yy}$  vérifient ( avec  $z = z' = z_0 > 0$  ) :

$$\mathcal{C}_{xx}(\vec{k}_\perp) + \mathcal{C}_{yy}(\vec{k}_\perp) = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3} \frac{k_\perp}{8\pi} e^{-2k_\perp z_0} \quad (\text{E-30})$$

de sorte que (E-27) devient :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \mathcal{R}_e \left\{ \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{24\pi} \int_0^\infty \frac{2\pi k_\perp dk_\perp}{2\pi \left( Dk_\perp^2 - i\omega_0 + \frac{1}{\tau_s} \right)} k_\perp e^{-2k_\perp z_0} \right\} \quad (\text{E-28})$$

Cette relation permet d'individualiser la contribution à la relaxation des variations des fonctions de corrélation de vecteur d'onde fixé en module. L'intégrale n'est pas calculable analytiquement. Nous allons donner sa valeur pour différents cas limites. A cause de l'exponentielle  $e^{-2k_{\perp}z_0}$  la contribution essentielle provient des valeurs de  $k_{\perp}$  contenues dans l'intervalle  $[0, 1/z_0]$ . On peut donner à (E-28) une expression approchée plus ou moins simple, selon le terme qui domine au dénominateur de l'intégrande.

$$\alpha) D/z_0^2 \gg 1/\tau_s$$

C'est le cas si le temps de séjour est assez long pour permettre une diffusion des atomes sur une distance de l'ordre de  $z_0$ . On peut alors négliger  $1/\tau_s$  au dénominateur de l'intégrale. (E-28) devient :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2 \rho_{\mu} \mu^2}{24\pi} \int_0^{\infty} e^{-2k_{\perp}z_0} k_{\perp}^2 dk_{\perp} \Re \left\{ \frac{1}{Dk_{\perp}^2 - i\omega_0} \right\} \quad (\text{E-29})$$

En posant

$$\alpha = k_{\perp} \sqrt{\frac{D}{\omega_0}} \quad (\text{E-30-a})$$

$$\beta = 2z_0 \sqrt{\frac{\omega_0}{D}} \quad (\text{E-30-b})$$

on se ramène à l'intégrale suivante :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2 \rho_{\mu}}{24\pi} \mu^2 \sqrt{\frac{\omega_0}{D^3}} \int_0^{\infty} \alpha^4 \frac{e^{-\alpha\beta}}{\alpha^4 + 1} d\alpha \quad (\text{E-31})$$

La sommation sur  $\alpha$  vaut  $\beta^{-1}$  lorsque  $\beta^4 \ll 1$ , et  $24 \beta^{-5}$  lorsque  $\beta^4 \gg 1$ .

Ainsi, en champ faible ( $\beta^4 \ll 1$ ) le taux de relaxation peut être écrit :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2}{8\pi} \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \frac{1}{2Dz_0} \quad (\text{E-32})$$

C'est la relation que nous avons admise au chapitre V (V-21-a).

Dans nos conditions expérimentales,  $z_0 \simeq 10^{-9}$  m, et  $\omega_0 = 2,8 \times 10^5$  rd s<sup>-1</sup> ; D peut être majoré par la valeur correspondant au milieu superfluide tridimensionnel, soit  $6 \cdot 10^{-5}$  m<sup>2</sup>s<sup>-1</sup>. On en déduit que la condition de validité de (E-32) s'écrit  $z_0 \ll 15$   $\mu\text{m}$  ; c'est une condition satisfaite dans nos expériences. On parvient d'autre part immédiatement à (E-32) en intégrant (E-28) avec  $\omega_0 = 0$  et  $\tau_s = +\infty$  : c'est bien un résultat "en champ faible" indépendant de  $\omega_0$ .

En champ fort ( $\beta^4 \gg 1$ ) on obtient :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2}{8\pi} \rho_\mu \frac{\mu^2}{3} \frac{D}{\omega_0^2 z_0^5} \quad (\text{E-33})$$

$\Gamma_a$  varie comme  $\omega_0^{-2}$  avec le champ statique lorsque la condition de rétrécissement extrême n'est pas satisfaite.

$$\beta) D/z_0^2 \ll 1/\tau_s$$

C'est la limite des atomes immobiles ; le temps de corrélation est le temps de séjour. On peut alors négliger  $Dk_\perp^2$  au dénominateur de (E-28) qui devient

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2}{24\pi} \rho_\mu \mu^2 \mathcal{R}_e \left\{ \frac{1}{\frac{1}{\tau_s} - i\omega_0} \right\} \quad (\text{E-33})$$

soit :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2}{24\pi} \rho_\mu \mu^2 \frac{1}{4 z_0^3} \frac{\tau_s}{\omega_0^2 \tau_s^2 + 1} \quad (\text{E-34})$$

C'est le résultat  $\Gamma_a^{(2)}$  donné en (V.21.b) ; il est indépendant du coefficient de diffusion D.

### E.2.c - Le vol libre au voisinage de la paroi

Les atomes adsorbés dans une phase bidimensionnelle de faible densité et les atomes du gaz lui-même effectuent au voisinage de la paroi un mouvement qui, sur une échelle inférieure à leur libre parcours moyen, peut être assimilé à un mouvement de vol libre. Dans ce paragraphe nous calculons le taux de relaxation correspondant dans l'hypothèse où il s'agit d'un mouvement rectiligne uniforme dans le plan de cote  $z_0$ . La fonction  $\underline{P}(\vec{R}_\perp, t; \vec{R}'_\perp, t+\tau)$  s'écrit alors :

$$\underline{P}(\vec{R}_\perp, t; \vec{R}'_\perp, t+\tau) = \frac{Y(\tau)}{2\pi v_0^2} \int d^2 \vec{v} \exp\left(-\frac{v^2}{2v_0^2}\right) \delta(\vec{R}'_\perp - \vec{R}_\perp - \vec{v}\tau) \quad (\text{E-35})$$

où  $v_0$  est la vitesse quadratique moyenne des atomes concernés par le mouvement dans le plan. En effectuant l'intégrale on obtient

$$\underline{P}(\vec{R}_\perp; \vec{R}'_\perp, \tau) = \frac{1}{2\pi v_0^2} Y(\tau) \exp\left(-\frac{\|\vec{R}'_\perp - \vec{R}_\perp\|^2}{2v_0^2 \tau^2}\right) \cdot \frac{1}{\tau^2} \quad (\text{E-36})$$

et par transformation de Fourier :

$$\mathcal{P}(\vec{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \frac{d\tau}{\sqrt{2\pi}} e^{-i\omega\tau} \exp\left(-\frac{k^2 \tau^2 v_0^2}{2}\right) \quad (\text{E-37})$$

Le taux de relaxation (E-23) devient

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3} \int \frac{d^2 \vec{k}_\perp}{2\pi} \frac{k_\perp}{8\pi} e^{-2z_0 k_\perp} \Re e \left\{ \int_0^\infty d\tau e^{i\omega_0 \tau} \exp \left( -\frac{\nu_0^2 \tau^2}{2} k_\perp^2 \right) \right\} \quad (\text{E-38})$$

L'intégrale sur  $\tau$  vaut

$$\sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{\nu_0 k_\perp} \exp \left\{ -\frac{\omega_0^2}{2\nu_0^2 k_\perp^2} \right\}$$

ce qui conduit à

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{8\pi\nu_0} \int_0^\infty k_\perp dk_\perp \exp(-k_\perp (2z_0)) \exp \left( -\frac{\omega_0^2}{2\nu_0^2 k_\perp^2} \right) \quad (\text{E-39})$$

le facteur statique  $k_\perp^2 \exp(-2k_\perp z_0)$  est donc modifié à cause du vol libre par un terme en  $k_\perp^{-1} \exp(-\eta k_\perp^{-2})$  dont la croissance avec  $k_\perp$  est lente.

Dans nos conditions expérimentales  $\nu_0/\omega_0$  est de l'ordre de 30 micromètres alors que  $z_0$  varie probablement entre 0 et 100 Å. ( $\nu_0 \simeq 10 \text{ ms}^{-1}$ ,  $\omega_0 \simeq 3.10^5 \text{ rd s}^{-1}$ ) la contribution essentielle à l'intégrale présente dans la relation (E-39) provient de l'intervalle  $[0, z_0^{-1}]$ . Le dernier facteur dans cette intégrale peut être ignoré car il vaut 1 en dehors de l'intervalle  $[0, \frac{\omega_0}{\nu_0}]$  à l'intérieur duquel il atténue fortement la contribution des autres facteurs (en  $\exp(-\eta k_\perp^{-2})$ ). Les ordres de grandeur précédents montrent que cet intervalle est très petit puisque  $(\omega_0/\nu_0) \ll (1/z_0)$  ; on change donc peu la valeur de l'intégrale en



ignorant le dernier facteur exponentiel, ce qui donne :

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\mu_0^2 \rho_\mu \mu^2}{3} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{8\pi v_0} \int_0^\infty dk_\perp k_\perp \exp(-2z_0 k_\perp) \quad (\text{E-40})$$

et, par intégration, la formule admise en (V-21-c)

$$\frac{\Gamma_a}{\gamma^2} = \frac{\rho_\mu \mu_0^2 \mu^2}{24 v_0} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{1}{4z_0^2} \quad (\text{E-41})$$



REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES
-----------------------------

## A. Abragam

- 1961 *"Principles of Nuclear Magnetism"*  
Oxford University Press, Oxford (G.-B.)  
*"Les principes du magnétisme nucléaire"*  
Presses Universitaires de France, Paris (F)

## R.C. Albers et J.W. Wilkins

- 1979 J. Low Temp. Phys. 34, 105

## A. Avogadro et M. Villa

- 1977 J. Chem. Phys. 66, 2359

## R.A. Aziz, V.P.S. Nain, J.S. Carley, W.L. Taylor et G.T. McConville

- 1979 J. Chem. Phys. 70, 4330

## R. Barbé, M. Leduc et F. Laloë

- 1974 J. Physique 35, 699

- 1974 J. Physique 35, 935

## R. Barbé, F. Laloë et J. Brossel

- 1975 Phys. Rev. Lett. 34, 1488

## R. Barbé

- 1977 Thèse de Doctorat d'Etat  
Université Paris VI (F)

## R. Balian

- 1982 *"Physique Statistique : cours à l'Ecole Polytechnique"*  
Ellipses, Paris (F)

## G. Baym

- 1966 Phys. Rev. Lett. 17, 952

## G. Baym et C.J. Pethick, dans

- 1976 *"The Physics of Liquid and Solid Helium"*  
K.H. Benneman et J.B. Ketterson ed.  
Wiley & Sons, New York (U.S.A.)

## P.J. Bendt

- 1958 Phys. Rev. 110, 85

## A.J. Berlinsky, W.N. Hardy et B.W. Statt

- 1986 preprint

- B.K. Bhattacharyya et F.M. Gasparini  
1982 Phys. Rev. Lett. 49, 919
- B.K. Bhattacharyya, M.J. DiPirro et F.M. Gasparini  
1984 Phys. Rev. B 30, 5029
- M. Bienfait, J.G. Dash et J. Stoltenberg  
1980 Phys. Rev. B 21, 2765
- D.F. Brewer, dans  
1976 *"The Physics of Liquid and Solid Helium"*  
K.H. Benneman et J.B. Ketterson ed.  
Wiley & Sons, New York (U.S.A.)
- L.W. Bruch, J.M. Gay et J. Krim  
1985 J. Physique 46, 425
- J.H. Campbell et M. Bretz  
1985 Phys. Rev. B 32, 2861
- W.E. Carlos et M.W. Cole  
1980 Surf. Sci. 91, 339
- B. Castaing, A.S. Greenberg et M. Papoular  
1982 J. Low Temp. Phys. 47, 191
- M. Chapellier et A. Schuhl  
1984 *"Proceedings of the XVII<sup>th</sup> Conference on Low Temperature Physics"*, 2, 727  
U. Eckern, A. Schmid, W. Weber, H. Wühl ed.  
North Holland, Amsterdam (NL)
- R. Chapman et M. Bloom  
1976 Can. J. Phys. 54, 861  
1976 Can. J. Phys. 54, 1831
- S. Chapman et T.G. Cowling  
1952 *"The mathematical theory of non-uniform gases"*  
Cambridge University Press, Cambridge
- M. Chester, L.C. Yang et J.B. Stephens  
1972 Phys. Rev. Lett. 29, 211
- M. Chester et L.C. Yang  
1973 Phys. Rev. Lett. 31, 1377
- M. Chester, J.-P. Laheurte et J.-P. Romagnan  
1976 Phys. Rev. B 14, 2812
- D. Cieslikowski, A.S. Dahm et P. Leiderer  
1987 Phys. Rev. Lett. 58, 1751

- R.W. Cline, T.J. Greytak et D. Kleppner  
1981 Phys. Rev. Lett. 47, 1195
- M.W. Cole, D.R. Frankl et D.L. Goodstein  
1981 Rev. Mod. Phys. 53, 199
- F.D. Colegrove, L.D. Schearer et G.K. Walters  
1963 Phys. Rev. 132, 2561
- R.R. Conte  
1970 *"Eléments de cryogénie"* Masson, Paris (F)
- B.P. Cowan  
1980 J. Phys. C 13, 4575  
1983 J. Low Temp. Phys. 50, 135
- S.B. Crampton, J.J. Krupczak et S.P. Souza  
1982 Phys. Rev. B 25, 4383
- D.J. Creswell, D.F. Brewer et A.L. Thompson  
1972 Phys. Rev. Lett. 29, 1144
- J.G. Dash  
1975 *"Films on Solid Surfaces"*  
Academic Press, New York (U.S.A.)  
1982 Phys. Rev. B 25, 508
- R. De Bruyn-Ouboter, J.J.M. Beenakker et K.W. Taconis  
1959 Comm. Kam. Onnes Lab. 166c, 1162
- M. Dingus, F. Zhong et H. Meyer  
1985 Phys. Rev. Lett. 54, 2347
- R.J. Donnely  
1967 *"Experimental Superfluidity"*  
The University of Chicago Press, Chicago (U.S.A.)
- G.A. du Bro et S. Weissman  
1970 Phys. of Fluids 13, 2682
- J.S. Dugdale et J.P. Franck  
1964 J. Phil. Trans. R. Soc. A 257, 1
- M. Durieux et R.L. Rusby  
1983 Metrologia 19, 67
- I.E. Dzyaloshinskii, E.M. Lifshitz et L.P. Pitaevskii  
1961 Adv. Phys. 10, 165
- C. Ebner et D.O. Edwards  
1970 Phys. Reports 2, 77

- C. Ebner et H.H. Fu  
1974 J. Low Temp. Phys. 16, 43
- V.S. Edel'man et M.I. Faley  
1983 J. Low Temp. Phys. 52, 301
- D.O. Edwards et J.G. Daunt  
1961 Phys. Rev. 124, 640
- D.O. Edwards, A.S. McWilliams et J.G. Daunt  
1962 Phys. Rev. Lett. 9, 195
- D.O. Edwards et R.C. Pandorf  
1965 Phys. Rev. 140, A816
- D.O. Edwards, D.F. Brewer, P. Seligman, M. Skertic et M. Yaqub  
1965 Phys. Rev. Lett. 15, 773
- D.O. Edwards, P.P. Fatouros et G.G. Ikas  
1976 Phys. Lett. 59A, 131
- D.O. Edwards et P.P. Fatouros  
1978 Phys. Rev. B 17, 2147
- D.O. Edwards et W.F. Saam, dans  
1978 "*Progress in Low Temperature Physics VIIIA*"  
D.F. Brewer ed.  
North Holland, Amsterdam (NL)
- R.L. Elgin et D.L. Goostein  
1974 Phys. Rev. A 9, 2657
- F.M. Ellis et R.B. Hallock  
1984 Phys. Rev. B 29, 497
- F.M. Ellis, J.S. Brooks et R.B. Hallock  
1984 J. Low Temp. Phys. 56, 49
- W.A. Fitzsimmons, L.L. Tankersley et G.K. Walters  
1969 Phys. Rev. 179, 156
- J. Frenkel  
1946 "*Kinetic Theory of Liquids*"  
Oxford University Press, Oxford (G.-B.)
- H.H. Fu et C. Ebner  
1974 Phys. Rev. A 10, 338
- R.L. Garwin et H.A. Reich  
1959 Phys. Rev. 115, 1478

- F.M. Gasparini, B. Bhattacharrya et M.J. DiPirro  
1984 Phys. Rev. B 29, 4921
- R. Gengenbach et C. Hahn  
1972 Chem. Phys. Lett. 15, 604
- H. Godfrin, G. Frossati, D. Thoulouze, M. Chapellier et W.G. Clark  
1978 J. Physique Coll. 39, C6-287
- H. Godfrin, G. Frossati, B. Hebral et D. Thoulouze  
1980 J. Physique Coll. 41, C7-275
- F.O. Goodman et N. Garcia  
1986 Phys. Rev. B 33, 4560
- D.L. Goodstein  
1975 "States of Matter"  
Prentice Hall, London (G.-B.)
- D. Gray (ed.)  
1982 "American Institute of Physics Handbook"  
McGraw Hill, New York (U.S.A.)
- G.D. Halsey Jr.  
1951 J. Am. Chem. Soc. 73, 2693
- P.C. Hammel et R.C. Richardson  
1984 Phys. Rev. Lett. 52, 1441
- B. Hebral, A.S. Greenberg, M.T. Béal-Monod, M. Papoular, G. Frossati,  
H. Godfrin et D. Thoulouze  
1981 Phys. Rev. Lett. 46, 42
- G.A. Herzlinger et J.G. King  
1972 Phys. Lett. 40A, 65
- G.B. Hess et R.J. Muirhead  
1982 J. Low Temp. Phys. 49, 481
- T.L. Hill  
1948 J. Chem. Phys. 17, 500
- M. Himbert, V. Lefevre-Seguin, P.-J. Nacher, J. Dupont-Roc,  
M. Leduc et F. Laloë  
1983 J. Physique Lettres 44, L-523
- M. Himbert et J. Dupont-Roc  
1984 "Proceedings of the XVII<sup>th</sup> Conference on Low  
Temperature Physics", 2,  
U. Eckern, A. Schmid, W. Weber, H. Wühl ed.  
North Holland, Amsterdam (NL)

- M. Himbert, A. Lezama et J. Dupont-Roc  
1985 J. Physique 46, 2009
- H. Hoinkes  
1980 Rev. Mod. Phys. 52, 933
- S.B. Hurlbut, J.G. Dash  
1984 Phys. Rev. Lett. 53, 1931
- J.P. Korb, M. Winterhalter et H.M. McConnel  
1984 J. Chem. Phys. 80, 1059
- J. Krim, J.G. Dash et J. Suzanne  
1984 Phys. Rev. Lett. 52, 641
- E. Krotschek  
1985 Phys. Rev. B 32, 5713
- K.E. Kürten et M.L. Ristig  
1983 Phys. Rev. B 27, 5479
- J.-P. Laheurte, J.-C. Noiray et J.-P. Romagnan  
1981 J. Physique Lettres 42, L-197
- J.-P. Laheurte, J.-C. Noiray, J.-P. Romagnan et D. Sornette  
1986 J. Physique 47, 39
- J. Landau, S.G. Lipson, L.M. Määttänen, L.S. Balfour et D.O. Edwards  
1980 Phys. Rev. Lett. 45, 31
- M. Leduc, S.B. Crampton, P.-J. Nacher et F. Laloë  
1984 Nucl. Sci. Appl. 2, 1
- M. Leduc, P.-J. Nacher, D.S. Betts, J.M. Daniels, G. Tastevin et  
F. Laloë  
1987 à paraître dans Europhys. Lett.
- V. Lefevre, P.-J. Nacher et F. Laloë  
1982 J. Physique 43, 89
- V. Lefevre-Seguin  
1984 Thèse de Doctorat d'Etat  
Université Paris VI, Paris (F)
- V. Lefevre-Seguin, P.-J. Nacher, J. Brossel, W.N. Hardy et F. Laloë  
1985 J. Physique 46, 1145



**J.E. Lennard-Jones**

1931 Proc. Phys. Soc. 43, 461

**E. Lerner et J.G. Daunt**

1972 "*Proceedings of the XIII<sup>rd</sup> Conference on Low Temperature Physics*" 1, 182

K.D. Timmerhaus, W.J. O'Sullivan et E.F. Hammel ed.  
Plenum Press

**A. Lezama**

1981 Thèse de Doctorat de III<sup>ème</sup> cycle  
Université Paris VI, Paris (F)

**C. Lhuillier et F. Laloë**

1979 J. Physique 40, 239

**C. Lhuillier et F. Laloë**

1982 J. Physique 43, 197

1982 J. Physique 43, 225

**C. Lhuillier**

1983 J. Physique 44, 1 et résultats non publiés

**C. Lie-Zhao, D.F. Brewer, C. Girit, E.N. Smith et J.D. Reppy**

1986 Phys. Rev. B 33, 106

**K.S. Liu, M.H. Kalos, G.V. Chester**

1976 Phys. Rev. B 13, 1971

1978 Phys. Rev. B 17, 4479 (E)

**C.P. Lusher**

1985 Ph.D. Thesis

The University of Sussex, Brighton (G.-B.)

**H.H. McAdams**

1968 Phys. Rev. 170, 276

**D. McQueeney, G. Agnolet, et J.D. Reppy**

1984 Phys. Rev. Lett. 52, 1325

**I.B. Mantz et D.O. Edwards**

1979 Phys. Rev. B 20, 4518

**J. Maps et R.B. Hallock**

1983 Phys. Rev. B 27, 5491

**W. Meyer**

1976 Chem. Phys. 17, 27

**W. Meyer, P.C. Hariharan et W. Kutzelnigg**

1980 J. Chem. Phys. 73, 1880

- A.D. Migone, J. Krim, J.G. Dash et J. Suzanne  
1985 Phys. Rev. B 31, 7643
- L. Monchick, E.A. Mason, R.J. Munn et F.J. Smith  
1965 Phys. Rev. A 139, 1076
- M. Morrow, R.J. Jochemsen, A.J. Berlinsky et W.N. Hardy  
1981 Phys. Rev. Lett. 46, 195  
1981 Phys. Rev. Lett. 47, 852
- R.J. Muirhead, J.G. Dash et J. Krim  
1984 Phys. Rev. B 29, 5074
- W.J. Mullin  
1968 Phys. Rev. Lett. 20, 254
- P.-J. Nacher, M. Leduc, G. Tréneç et F. Laloë  
1982 J. Physique Lettres 43, L-525
- P.-J. Nacher, G. Tastevin, M. Leduc, S.B. Crampton et F. Laloë  
1984 J. Physique Lettres 45, L-441
- P.-J. Nacher  
1985 Thèse de Doctorat d'Etat  
Université Paris VI, Paris (F)
- P.-J. Nacher et M. Leduc  
1985 J. Physique 46, 2057
- V.U. Nayak, D.O. Edwards et N. Masuhara  
1983 Phys. Rev. Lett. 50, 990
- X.Z. Ni et L.W. Bruch  
1986 Phys. Rev. B 33, 4584
- L.H. Nosanow  
1966 Phys. Rev. 146, 120
- A.D. Novaco  
1973 Phys. rev. A 8, 3065
- M.A. Paalanen et Y. Iye  
1985 Phys. Rev. Lett. 55, 1761
- M. Pavlovic et F. Laloë  
1970 J. Physique 31, 173
- L. Peliti et S. Leibler  
1984 J. Physique Lettres 45, L-591
- L. Pierre, H. Guignes et C. Lhuillier  
1985 J. Chem. Phys. 82,1

S.E. Polanco et M. Bretz

1978 Phys. Rev. B 17, 151

M.G. Richards, dans

1980 "Phase Transitions in Surface Films"

Dash et Ruwalsd ed.

Plenum Publishing Corporation

T.R. Roberts et S.G. Sydoriak

1958 "Proceedings of the V<sup>th</sup> International Conference on Low  
Temp. Phys. and Chem."

J.R. Dullinger ed.

Madison

M. Roger

1984 Phys. Rev. B 30, 6432

J.-P. Romagnan

1977 Thèse de Doctorat d'Etat

Université de Nice, Nice (F)

J.-P. Romagnan et J.-C. Noiray

1984 J. Physique 45, 1237

M.E. Rosenkrantz et M. Krauss

1985 Phys. Rev. A 32, 1402

E.S. Sabisky et C.H. Anderson

1973 Phys. Rev. Lett. 30, 1122

J.H. Scholtz, E.O. McLean et I. Rudnick

1974 Phys. Rev. Lett. 32, 147

A. Schuhl

1986 Thèse de Doctorat d'Etat

Université Paris-Sud, Orsay (F)

K.W. Schwarz et R.W. Stark

1968 Phys. Rev. Lett. 21, 267

1969 Phys. Rev. Lett. 22, 1278

P. Seligman, D.O. Edwards, R.E. Sarwinski et J.T. Tough

1969 Phys. Rev. 181, 415

- D.S. Sherril et D.O. Edwards  
1985 Phys. Rev. B 31, 1338
- B. Shizgal  
1973 J. Chem. Phys. 58, 3424  
1976 Can. J. Phys. 54, 164
- R.L. Siddon et M. Schick  
1974 Phys. Rev. A 9, 907
- I.F. Silvera et J.T.M. Walraven  
1980 Phys. Rev. Lett. 45, 1268  
*"Spin Polarized Quantum Systems"*  
1980 J. Physique Coll. 41, C7
- A. Taber  
1978 J. Physique 39, C6-192
- H.T. Tan et C.W. Woo  
1973 Phys. Rev. Lett. 30, 365
- K.T. Tang et J.-P. Toennis  
1982 J. Chem. Phys. 76, 2524
- K. Thompson  
1978 J. Low Temp. Phys. 32, 361
- R.S. Timsit et J.M. Daniels  
1971 Canad. J. Phys. 49, 545
- G. Tréneç, P.-J. Nacher et M. Leduc  
1982 Opt. Comm. 43, 37
- 
- J.M. Valles Jr., R.M. Heinrichs et R.B. Hallock  
1986 Phys. Rev. Lett. 56, 1704  
1987 Phys. Rev. Lett. 58, 1797 (E)
- H. van Beelen et G. Banninck  
1983 Physica 121B, 30
- G. Vidali, M.W. Cole et C. Schwartz  
1979 Surf. Sci. 87, L-273
- G. Vidali et M.W. Cole  
1980 Phys. Rev. B 22, 4661
- D. Vollhardt et P. Wölfle  
1981 Phys. Rev. Lett. 47, 190
- 
- G.E. Watson, J.D. Reppy et R.C. Richardson  
1960 Phys. Rev. 188, 384

- E. Webster, M. Chester, G.D.L. Webster et T. Oesterreich  
1980 Phys. Rev. B 22, 5186
- G.D.L. Webster, M. Chester, E. Webster et T. Oesterreich  
1980 J. Low Temp. Phys. 40, 207
- H. Wiechert, H.J. Lauter et B. Stühn  
1982 J. Low Temp. Phys. 48, 209
- J. Wilks  
1967 *"The Properties of Liquid and Solid Helium"*  
Oxford University Press, Oxford (G.-B.)
- C.W. Woo, H.T. Tan et W.E. Massey  
1969 Phys. Rev. 185, 287  
1970 Phys. Rev. A1, 519
- C.W. Woo, dans  
1976 *"The Physics of Liquid and Solid Helium"*  
K.H. Benneman et J.B. Ketterson ed.  
Wiley & Sons, New York (U.S.A.)
- J. Yugama et T. Watanabe  
1982 J. Low Temp. Phys. 48, 331
- D.S. Zimmerman et A.J. Berlinsky  
1984 Can. J. Phys. 62, 590



## LISTE DES ILLUSTRATIONS

I-1 : Densité de vapeur saturante de $^3\text{He}$ et $^4\text{He}$ en-dessous de 1K.....	14
I-2 : Représentation schématique de l'enduit vers 0,5K.....	18
I-3 : Le réfrigérateur à $^3\text{He}$ : schéma simplifié de la partie située à basse température.....	21
I-4a : Circuit d'entretien de la décharge H.F.....	27
I-4b : Allumage de la décharge H.F.....	27
I-5 : Dispositif à bobines croisées.....	32
I-6 : Coupe verticale partielle du montage expérimental.....	35
I-7a : Mesure de $T_2$ : détection phase et quadrature.....	40
I-7b : Mesure de $T_2$ : échelle logarithmique.....	40
I-8 : Compensation du gradient de $B_{o_2}$ dans une direction transverse.....	43
I-9 : Variations de $(1/T_2)$ en fonction du gradient de champ.	48
I-10 : Variations de $(1/T_2)$ avec la température.....	48
I-11 : La situation respective de $\vec{B}_{eff}$ et $\vec{M}$ au moment du passage à résonance.....	52
I-12 : Passage adiabatique rapide sur la R.M.N. : un enregistrement caractéristique.....	55
I-13 : Dépouillement numérique des données.....	57
I-14 : Variations de $T_1$ avec la température : exemple caractéristique.....	60
I-15 : Variations de $T_1$ avec la température ( $p_2 = 0,34$ torr)	61
II-1 : Variations de $(1/T_2)$ avec le gradient de champ : accès au coefficient de diffusion à 0,525K pour trois échantillons particuliers.....	71
II-2 : Variations de $(1/D)$ avec la densité en $^3\text{He}$ , pour $T^{-1} = 1,75\text{K}^{-1}$ .....	76
II-3a : Variations de $(1/D)$ avec la température pour cinq échantillons de remplissage varié en $^3\text{He}$ .....	80
II-3b : Détermination de $D_{33}^{-1}(T)$ .....	81
II-4 : Confrontation des mesures de $D_{33}^{-1}(T)$ aux prévisions numériques de C. Lhuillier [1983].....	85

II-5a : Variations de $(1/T_2)$ avec $(1/T)$ pour l'échantillon B4 dans lequel, dès 1K, $^4\text{He}$ est en situation de vapeur saturante.....	89
II-5b : Variations du coefficient de diffusion dans la cellule B4 avec la température.....	89
II-5c : Valeurs de $D_{34}^{-1}(T)$ avec l'échantillon B4.....	90
II-6 : Variations de $(1/D)$ avec la température pour trois échantillons de remplissage varié en $^4\text{He}$ .....	94
II-7 : Densité de vapeur à $T^c$ et densité de remplissage en $^4\text{He}$ .....	96
II-8 : Variations de $(1/D)$ avec la densité en $^4\text{He}$ pour $T = 1,0\text{K}$ .....	97
II-9 : Confrontation des mesures de $D_{34}^{-1}(T)$ aux prévisions numériques de C. Lhuillier [1983].....	100
II-10 : Etude du rapport $(D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1})$ en-dessous de 1K.....	102
II-11 : Mise en évidence d'une contribution nouvelle à la relaxation à 0,5K dans les échantillons les plus denses en $^3\text{He}$ .....	104
III-1 : Partie isotrope du potentiel d'interaction $\text{H}_2\text{-He}$ ....	112
III-2 : Potentiel d'interaction entre un atome d'hélium et un demi-espace d'hydrogène moléculaire.....	115
III-3 : Comparaison à la situation de l'hélium adsorbé sur du grafoil.....	125
III-4 : Diagramme binaire d'équilibre du mélange $^3\text{He-}^4\text{He}$ vers 0,8K.....	128
III-5 : Condensation "successive" des couches d'hélium, d'après E. Krottschek.....	135
III-6 : La situation locale à l'interface film-gaz : le modèle de croissance Frenkel-Halsey-Hill (F.H.H.)...	138
III-7 : Confrontation du modèle de croissance F.H.H. aux résultats de Paalanen et Iye [1985].....	140
III-8a : Energie par atome dans une monocouche de $^4\text{He}$ [d'après Liu et al., 1976].....	149
III-8b : Potentiel chimique dans une monocouche de $^4\text{He}$ [d'après III-8a].....	149
III-9 : Seuil de superfluidité pour un film mince d'hélium [d'après Hess et Muirhead, 1982].....	153



III-10	: L'épaisseur $e_4$ du film d'hélium-4 entre 1,5K et 0,5K dans un échantillon caractéristique.....	157
III-11	: Estimations numériques de $(1/D)$ : confrontation aux résultats expérimentaux.....	162
IV-1	: La densité des atomes $^3\text{He}$ piégés à la surface du film $^4\text{He}$ .....	177
IV-2	: $^3\text{He}$ et H à la surface libre de $^4\text{He}$ .....	179
IV-3	: Le libre parcours moyen de H à la surface de $^4\text{He}$ .....	180
IV-4	: Limitations au libre parcours moyen en phase piégée dues à l'interaction $^3\text{He} \leftrightarrow ^3\text{He}$ .....	182
IV-5	: Le temps de séjour en phase adsorbée.....	185
IV-6	: Situation d'un atome $^3\text{He}$ dans une phase massive de $^4\text{He}$ :	
	a : excès de volume.....	189
	b : potentiel chimique.....	189
	c : énergie effective $E_3^B$ .....	190
IV-7	: Energie potentielle effective vue par un $^3\text{He}$ au voisinage de la paroi : le modèle du fluide continu.....	193
IV-8	: Les états liés de $^3\text{He}$ dans un film mince d'hélium, d'après Sherril et Edwards [1985].....	196
IV-9	: Prévisions numériques pour un film particulier [Sherril et Edwards, 1985] :	
	a : potentiel effectif pour $^3\text{He}$ .....	199
	b : fonctions d'onde des états liés.....	199
IV-10	: D'après les résultats de E. Krotschek [1985] pour un film particulier :	
	a : densité atomique en $^4\text{He}$ .....	203
	b : potentiel effectif pour $^3\text{He}$ .....	203
	c : probabilité de présence de $^3\text{He}$ .....	203
IV-11	: Energie $E_3^{2D}$ d'un atome $^3\text{He}$ dans une monocouche libre de $^4\text{He}$ :	
	a : en fonction de la densité à deux dimensions en $^4\text{He}$ .....	210
	b : en fonction du potentiel chimique de $^4\text{He}$ .....	211
IV-12	: Variations des potentiels chimiques dans la cellule avec la température.....	218

IV-13 : Récapitulatif : les atomes $^3\text{He}$ piégés aux divers endroits du film.....	221
V-1 : L'échange entre les phases de $^3\text{He}$ et la relaxation....	231
V-2 : Variations de $T_1$ avec le champ magnétique.....	240
V-3 : Les hypothèses du modèle de relaxation magnétique retenu.....	243
V-4 : Valeurs expérimentales de $T_1$ obtenues pour des échantillons de contenu varié en $\text{H}_2$ .....	253
V-5 : Influence de l'épaisseur du sous-enduit d'hydrogène ; a : pour les enduits minces.....	254
b : cas général.....	254
V-6 : Valeurs expérimentales de $T_1$ obtenues pour des échantillons de contenu varié en $^4\text{He}$ .....	259
V-7 : Variations avec la température du potentiel chimique de $^4\text{He}$ dans la cellule pour diverses valeurs de $p_4$ ....	261
V-8 : Température de rosée et température du "coin".....	262
V-9 : Mise en évidence de l'influence de la verrerie.....	266
V-10 : Variations de $T_1$ à 0,67K avec la densité de $^3\text{He}$ dans l'échantillon.....	268
V-11 : Le cas des cellules dépourvues d'hydrogène.....	271
V-12 : Exploration complète de la gamme 4,2K $\leftrightarrow$ 0,6K.....	273
V-13 : Exemples de prévisions numériques lorsqu'on fait varier :	
a : la valeur $V(z)$ du potentiel.....	284
b : l'exposant $\nu$ du préfacteur $T^\nu$ .....	284
V-14 : Confrontation des prévisions du modèle aux valeurs expérimentales de $T_1$ : un exemple caractéristique....	287
V-15 : Les différents comportements observés et les prévisions numériques.....	290
V-16 : Histogramme des valeurs optimales du paramètres $\xi$ représentant l'énergie effective.....	292
V-17 : Confrontation entre prévisions et résultats pour un échantillon de densité élevée en $^3\text{He}$ .....	294

B-1 : D'après Pierre et al. [1985] :	
a : les positions privilégiées au-dessus du plan 100 limitant un demi-espace de $H_2$ .....	309
b : les potentiels "atome d'hélium $\leftrightarrow$ paroi" associés..	309
B-2 : Décomposition schématique en plans cristallins du demi-espace de $H_2$ .....	311
B-3 : La localisation des constituants du substrat.....	317



S O M M A I R E
-----------------

INTRODUCTION.....	5
-------------------	---

CHAPITRE I
------------

REALISATION EXPERIMENTALE DU POMPAGE OPTIQUE DE  $^3\text{He}$   
EN-DESSOUS DE 1K.

<table border="1" style="display: inline-table; vertical-align: middle;"><tr><td style="padding: 2px;">I.A - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL</td></tr></table> .....	I.A - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL	13
I.A - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL		
I.A.1 - La cellule et son revêtement interne.....	13	
I.A.1.a - Préparation de l'échantillon.....	13	
I.A.1.b - Un exemple caractéristique.....	16	
I.A.2 - L'appareillage cryogénique.....	19	
I.A.2.a - Eléments du montage cryogénique.....	19	
I.A.2.b - Performances du montage cryogénique.....	23	
I.A.3 - L'orientation nucléaire de $^3\text{He}$ : réalisation et mesure.....	24	
I.A.3.a - Le pompage optique.....	24	
<i>α</i> ) La décharge dans le gaz.....	25	
<i>β</i> ) Le laser.....	28	
<i>γ</i> ) Le champ magnétique.....	29	
I.A.3.b - La détection de l'orientation.....	30	
<i>α</i> ) Détection optique.....	30	
<i>β</i> ) Détection radioélectrique.....	31	
i) Principe.....	31	
ii) Dispositif utilisé.....	31	
iii) Performances.....	33	
<table border="1" style="display: inline-table; vertical-align: middle;"><tr><td style="padding: 2px;">I.B - LE TEMPS DE RELAXATION DE L'AIMANTATION TRANSVERSALE</td></tr></table> .....	I.B - LE TEMPS DE RELAXATION DE L'AIMANTATION TRANSVERSALE	37
I.B - LE TEMPS DE RELAXATION DE L'AIMANTATION TRANSVERSALE		
I.B.1 - La technique de mesure de $T_2$ .....	38	

I.B.2 - La valeur absolue de $T_2$ à basse température.....	41
I.B.2.a - Relaxation par les gradients du champ $\vec{B}_0$ .....	41
I.B.2.b - Compensation des gradients de champ.....	42
I.B.2.c - Coefficient de diffusion du spin.....	46
I.B.3 - Les variations de $T_2$ avec la température.....	46

I.C - MESURE DU TEMPS $T_1$ DE RELAXATION LONGITUDINALE ENTRE 1K ET 0,5K .....	50
---	----

I.C.1 - La procédure de mesure de $T_1$ .....	50
I.C.1.a - Optimisation du montage R.M.N.....	50
I.C.1.b - Exemple de résultat expérimental.....	53
I.C.2 - Les variations de $T_1$ avec la température.....	58
I.C.2.a - Résultats expérimentaux.....	58
I.C.2.b - Quelques éléments d'interprétation.....	62
$\alpha$ ) Dans la zone "basse température".....	62
$\beta$ ) Dans la zone "haute température".....	62

## CHAPITRE II

### ETUDE DU TEMPS DE RELAXATION $T_2$ DE L'AIMANTATION TRANSVERSE

II.A - MESURE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION $^3\text{He}-^3\text{He}$ A BASSE TEMPERATURE .....	69
--	----

II.A.1 - La détermination directe de $D_{33}(T)$ par application d'un gradient calibré du champ magnétique.....	69
II.A.1.a - Echantillon de $^3\text{He}$ gazeux presque pur.....	69
II.A.1.b - Variations de $D$ avec la densité gazeuse de $^3\text{He}$ ...	74
II.A.2 - La détermination de $D_{33}(T)$ en-dessous de 1K par étalonnage à 0,57K.....	77
II.A.3 - Comparaison aux prévisions numériques.....	82
II.A.3.a - Le calcul des valeurs théoriques.....	82

II.A.3.b - La confrontation théorie-expérience.....	83
<i>α) Les résultats théoriques.....</i>	83
<i>β) Nos résultats expérimentaux.....</i>	83
<i>γ) Commentaires.....</i>	86
<b>II.B - LA CONTRIBUTION DE <math>^4\text{He}</math> A LA DIFFUSION</b> .....	88
II.B.1 - Détermination de $D_{34}(T)$ .....	88
II.B.1.a - Diffusion dans un gaz presque pur de $^4\text{He}$ .....	88
II.B.1.b - Utilisation d'un jeu de cellules de remplissage varié en $^3\text{He}$ .....	92
II.B.1.c - Variations de D avec le remplissage en $^4\text{He}$ .....	93
II.B.2 - Confrontation avec les résultats théoriques.....	98
II.B.2.a - Comparaison directe avec les résultats numériques	98
II.B.2.b - Etude du rapport $D_{34}^{-1}/D_{33}^{-1}$ .....	101
II.B.2.c - Contribution à $T_2$ de l'hélium-3 adsorbé sur la paroi vers 0,5K.....	103

### CHAPITRE III

#### LA CONDENSATION DE L'HELIUM-4 SUR UN ENDUIT D'HYDROGENE

<b>III.A - LE POTENTIEL ATTRACTIF CREE PAR LA PAROI</b> .....	111
III.A.1 - Attraction entre un mur d'hydrogène et un atome d'hélium.....	111
III.A.1.a - Potentiel d'interaction entre la molécule d'hydrogène et l'atome d'hélium.....	111
III.A.1.b - Potentiel d'interaction entre l'enduit d'hydro- gène et un atome d'hélium.....	113
III.A.2 - L'enduit d'hydrogène réel dans nos expériences....	117
III.A.2.a - Les irrégularités de l'enduit de $\text{H}_2$ .....	117
III.A.2.b - L'épaisseur de l'enduit de $\text{H}_2$ .....	117
III.A.2.c - Correction due au substrat sous-jacent.....	120
<i>α) Il existe un enduit d'hydrogène.....</i>	120

<i>β</i> ) Il n'y a pas d'hydrogène dans la cellule.....	122
III.A.3 - Comparaison avec d'autres substrats.....	122
<b>III.B - LA CROISSANCE DU FILM DE <sup>4</sup>HE</b> .....	127
III.B.1 - Généralités ; l'équilibre dans la cellule.....	127
III.B.1.a - Le mélange <sup>3</sup> He- <sup>4</sup> He.....	127
<i>α</i> ) En-dessous de 1K.....	127
<i>β</i> ) Au-dessus de 1K.....	129
III.B.1.b - L'équilibre de <sup>4</sup> He dans la cellule.....	129
III.B.2 - La formation des premières couches.....	131
III.B.2.a - Adsorption individuelle des atomes.....	131
III.B.2.b - Formation de la première couche.....	133
III.B.2.c - Au-delà d'une couche atomique.....	133
III.B.3 - L'épaisseur du film au-delà de quelques couches...	136
III.B.3.a - Le modèle du fluide continu.....	136
III.B.3.b - Limitation à l'épaississement du film.....	142
III.B.3.c - L'hypothèse du non-mouillage de <sup>4</sup> He.....	143
<b>III.C - LA STRUCTURE DU FILM D'HELIUM-4</b> .....	145
III.C.1 - La première couche du film : une monocouche solide	145
III.C.1.a - La première couche décrite comme un élément d'un	
système massif.....	145
III.C.1.b - Propriétés d'une monocouche de <sup>4</sup> He à la surface	
de H <sub>2</sub> solide.....	147
<i>α</i> ) Quelques paramètres.....	147
<i>β</i> ) Adsorption sur l'hydrogène.....	150
III.C.1.c - Comparaison avec d'autres substrats.....	151
III.C.2 - La superfluidité des films minces.....	151
<b>III.D - APPLICATION : LA FORMATION DU FILM</b>	
<b>DANS UN CELLULE PARTICULIERE</b> .....	155



III.D.1 - L'épaisseur du film.....	155
III.D.1.a - Les premières couches.....	158
III.D.1.b - Au-delà de quelques couches.....	159
III.D.1.c - Conclusion.....	160
III.D.2 - Evaluation expérimentale indirecte de l'épaisseur.	161
III.D.2.a - Principe du calcul de $1/D$ .....	161
III.D.2.b - Confrontation aux résultats expérimentaux.....	163

CHAPITRE IV
-------------

LES ATOMES  $^3\text{He}$  ET LE FILM  $^4\text{He}$ 

IV.A - $^3\text{He}$ VIS-A-VIS D'UN FILM ÉPAIS : FLUIDE CONTINU.....	169
IV.A.1 - $^3\text{He}$ vis-à-vis d'un film homogène.....	169
IV.A.1.a - Dissolution à l'intérieur du film.....	169
<i>α) Propriétés d'un atome dissous.....</i>	169
<i>β) Densité des atomes dissous.....</i>	170
<i>γ) Le libre parcours moyen dans le film.....</i>	172
IV.A.1.b - Piégeage à la surface d'un film épais.....	174
<i>α) Caractéristiques de l'état lié.....</i>	174
<i>β) Nombre d'atomes piégés en surface.....</i>	175
<i>γ) Mobilité des atomes piégés en surface.....</i>	178
IV.A.1.c - Temps de séjour en phase adsorbée.....	183
<i>α) Calcul du temps de séjour au voisinage de la</i> <i>paroi.....</i>	183
<i>β) Calcul du temps de séjour à la surface du film... </i>	185
IV.A.2 - $^3\text{He}$ dans les premières couches d'un film épais.....	185
IV.A.2.a - L'effet d'adsorption préférentielle.....	185
IV.A.2.b - Relation entre $E_3^B$ et $\mu_4$ pour une phase homogène..	187
<i>α) Phase liquide.....</i>	187
<i>β) Phase solide.....</i>	191
IV.A.2.c - Potentiel effectif vu par un $^3\text{He}$ au voisinage de la paroi.....	192

IV.A.2.d - Mouvement des atomes piégés dans les premières couches.....	194
IV.A.3 - La limite des films minces.....	195
IV.A.3.a - Energie de liaison de $^3\text{He}$ .....	195
IV.A.3.b - Etats liés de $^3\text{He}$ . Densité adsorbée.....	198
<b>IV.B - UN ATOME <math>^3\text{He}</math> DANS LES TOUTES PREMIERES COUCHES</b> .....	201
IV.B.1 - Description microscopique du film.....	201
IV.B.1.a - Les états liés de $^3\text{He}$ dans le film.....	204
IV.B.1.b - La situation des atomes adsorbés.....	207
IV.B.2 - Un atome $^3\text{He}$ dans une monocouche $^4\text{He}$ .....	209
IV.B.2.a - Calcul de $E_3^{2D}$ comme fonction de $\mu_4^{2D}$ .....	209
IV.B.2.b - Application à une monocouche piégée sur l'hydrogène.....	212
IV.B.3 - Piégeage dans des sites privilégiés situés à un interface.....	213
IV.B.3.a - Expériences antérieures suggérant l'existence de ces sites.....	213
IV.B.3.b - Compétition entre atomes sur des sites localisés.	214
<b>IV.C - RECAPITULATIF</b> .....	220

## CHAPITRE V

### PROCESSUS DE RELAXATION ET RESULTATS EXPERIMENTAUX : L'ORIGINE DU TEMPS DE RELAXATION $T_1$

<b>V.A - REVUE DES DIFFERENTS PROCESSUS DE RELAXATION</b> .....	225
V.A.1 - Processus de relaxation en phase gazeuse.....	225
V.A.1.a - Diffusion dans les gradients du champ magnétique macroscopique.....	226
V.A.1.b - Relaxation intrinsèque de $^3\text{He}$ dans le gaz.....	227

V.A.2 - Relaxation due à la présence de la paroi.....	229
V.A.2.a - Effets de la paroi sur l'orientation du gaz.....	229
$\alpha$ ) <i>Les origines de la relaxation</i> .....	229
$\beta$ ) <i>L'échange entre phase gazeuse et phase adsorbée</i> ..	230
$\gamma$ ) <i>Le taux de relaxation en phase adsorbée</i> .....	232
i) Temps de corrélation $\tau_c$ .....	232
ii) Ordre de grandeur de $\mathcal{V}$ .....	233
V.A.2.b - Mécanismes de relaxation en phase adsorbée.....	234
$\alpha$ ) <i>Relaxation spin-spin</i> .....	234
$\beta$ ) <i>Interaction avec le magnétisme de la paroi</i> .....	237
$\gamma$ ) <i>Approche expérimentale de <math>\tau_c</math></i> .....	239
V.A.3 - Un modèle simple pour la relaxation en phase adsorbée.....	241
V.A.3.a - Présentation et justification du modèle.....	241
$\alpha$ ) <i>Hypothèses</i> .....	241
$\beta$ ) <i>Situations physiques correspondantes</i> .....	242
V.A.3.b - Résultats obtenus.....	244
$\alpha$ ) <i>Taux de relaxation</i> .....	244
$\beta$ ) <i>Temps de corrélation</i> .....	245
$\gamma$ ) <i>Variations avec la distance au substrat</i> .....	246
$\delta$ ) <i>Conclusion</i> .....	248
<b>V.B - PRESENTATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX</b> .....	249
V.B.1 - La reproductibilité des mesures.....	249
V.B.1.a - Reproductibilité pour une cellule donnée.....	249
$\alpha$ ) <i>Effets de la décharge</i> .....	249
$\beta$ ) <i>Influence du montage extérieur à l'échantillon</i> ..	250
V.B.1.b - Reproductibilité entre cellules différentes.....	250
V.B.2 - Variations de $T_1$ avec l'épaisseur du sous-enduit d'hydrogène.....	251
V.B.2.a - Conditions d'étude.....	251
V.B.2.b - Résultats expérimentaux obtenus.....	252
V.B.2.c - Interprétation des résultats.....	256

V.B.3 - Variations de $T_1$ avec la quantité de $^4\text{He}$ condensée sur la paroi.....	259
V.B.3.a - Les variations observées.....	259
V.B.3.b - Interprétation.....	260
$\alpha$ ) Lien entre $T_1$ et $\tilde{\mu}_4$ .....	260
$\beta$ ) Augmentation de la densité de $^4\text{He}$ .....	263
$\gamma$ ) Conclusion et perspectives.....	263
V.B.4 - Autres résultats expérimentaux.....	264
V.B.4.a - Les différentes verreries.....	264
V.B.4.b - Variations de $T_1$ avec la quantité de $^3\text{He}$ .....	267
$\alpha$ ) Résultats obtenus.....	267
$\beta$ ) Tentative d'interprétation.....	267
$\gamma$ ) Cellules dépourvues d'hydrogène.....	270
V.B.4.c - Résultats obtenus à plus haute température.....	272
<b>V.C - ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX</b> .....	275
V.C.1 - Une relaxation localisée.....	275
V.C.1.a - Conséquences des variations de $T_1$ avec l'épaisseur des enduits.....	275
V.C.1.b - Conséquences des variations de $T_1$ avec la température.....	277
$\alpha$ ) Fraction adsorbée.....	277
$\beta$ ) Temps de corrélation.....	278
V.C.1.c - Conclusion.....	278
V.C.2 - Confrontation des mesures aux prévisions numériques d'un modèle simple.....	279
V.C.2.a - Présentation du modèle.....	279
$\alpha$ ) Variante ( $\alpha$ ) : modèle de liquide continu.....	280
$\beta$ ) Variante ( $\beta$ ) : piégeage dans des sites d'adsorption privilégiés.....	281
$\gamma$ ) Les prévisions du modèle.....	282
V.C.2.b - Procédure adoptée pour la confrontation.....	285
$\alpha$ ) Principe de calcul retenu.....	285
$\beta$ ) Un exemple de confrontation.....	286
V.C.2.c - Les résultats de la confrontation.....	288

$\alpha$ ) <i>Cohérence des résultats</i> .....	288
i) Reproductibilité pour une cellule donnée.....	288
ii) Les cellules de remplissage identique.....	289
iii) Les groupes de cellules étudiés au V.B.....	291
$\beta$ ) <i>Valeurs optimales des paramètres</i> .....	291
i) Les résultats obtenus pour $\alpha = 0$ .....	291
ii) Les variations du paramètre $\alpha$ .....	293
iii) Préfacteur en $T^{-1}$ ou en $T^{-3/2}$ ?.....	293
$\gamma$ ) <i>Des éléments d'interprétation</i> .....	295
i) Variante ( $\alpha$ ).....	295
ii) Variante ( $\beta$ ).....	296
<u>CONCLUSION</u> .....	297

APPENDICES
------------

A - DEPOUILLEMENT SPECIFIQUE AUX CELLULES E ET D.....	301
B - D'UN POTENTIEL DE PAIRE U AU POTENTIEL V CREE PAR UN SUBSTRAT.....	307
B-1 - Les atomes ou molécules du substrat occupent des sites déterminés.....	307
B-2 - Les constituants du substrat sont totalement déloca- lisés dans les plans cristallins.....	310
B-3 - Le substrat est assimilé à un milieu semi-infini homo- gène.....	314
C - PIEGEAGE CONCURRENTIEL DE $^3\text{He}$ ET $^4\text{He}$ SUR DES SITES LOCALISES.....	319
D - LIEN ENTRE $\Gamma_a$ (EN PHASE ADSORBEE) ET $T_1$ (EN PHASE GAZEUSE).....	323
D-1 - Hypothèses.....	323

D-2 - Equations d'évolution.....	324
D-3 - Résolution.....	324
E - CALCUL DU TAUX DE RELAXATION EN PHASE ADSORBEE DANS PLUSIEURS CAS PARTICULIERS SIMPLES.....	327
E-1 - Le champ relaxant.....	327
E-1-a - Hypothèses retenues pour les sources du champ relaxant.....	327
E-1-b - Calcul du champ magnétique et de ses fonctions de corrélation spatiales.....	330
$\alpha$ ) Cas $\alpha = \beta = z$ .....	332
$\beta$ ) Cas $\alpha \neq z$ et $\beta \neq z$ .....	333
$\gamma$ ) Commentaires.....	335
E-2 - Influence du mouvement des atomes.....	335
E-2-a - Relation fondamentale : le taux de relaxation.....	335
E-2-b - Mouvement de diffusion à deux dimensions.....	338
$\alpha$ ) $D/z_0^2 \gg 1/\tau_s$ .....	339
$\beta$ ) $D/z_0^2 \ll 1/\tau_s$ .....	340
E-2-c - Le vol libre au voisinage de la paro.....	341
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	345
LISTE DES ILLUSTRATIONS.....	357
SOMMAIRE.....	363



Key words :

Polarized helium-three

Surface

Nuclear spin

Optical Pumping

Helium-four film

Magnetic relaxation

Nuclear Magnetic Resonance

Low temperature



"Gaseous spin polarized helium-three below one Kelvin :

- Orientation by optical pumping,
- Spin relation on walls coated with helium-four".

Abstract :

Optical pumping techniques, first developed by Colegrove, Schearer, Walters (Physical Review, 1963, vol. 132, p. 2561) make possible to get spin polarized samples of helium-three gas.

In low magnetic fields is such a system off-equilibrium. Spin relaxation occurs mainly in the vicinity of the container walls. The atoms interact during their adsorption with magnetic impurities present near or inside the walls. The use of lowly attractive cryogenic solid coatings, like neon or molecular hydrogen, decreases the efficiency of this relaxation process. At a temperature lower than two Kelvin, the adsorption times become too long. We then added a helium-four film in the samples. It excludes helium-three atoms from the vicinity of the walls.

With such a film, we obtained by optical pumping a few per cent of nuclear orientation at half a Kelvin. The value of the longitudinal relaxation time was more than thousand seconds.

Variations of relaxation time with film thickness, coating composition, gas density and temperature have been studied experimentally. Increasing condensation of helium-four with lowering temperature, helium-three adsorption on the film, helium-three dissolution into the film, especially in the first layers, have been discussed in details. We got a few models describing relaxation processes occurring in the samples.

Furthermore, we achieved the first measurements of the spin diffusion coefficient in gaseous helium below one Kelvin, using Nuclear Magnetic Resonance techniques for the detection of the free precession of the spins in calibrated magnetic field gradients.

Résumé :

Le pompage optique permet de réaliser, par la méthode de Colegrove, Schearer, Walters (Physical Review, 1963, vol. 132, p. 2561), des échantillons gazeux d'hélium-trois dont les spins nucléaires sont orientés.

En champ magnétique faible, un tel système est hors d'équilibre. La relaxation de l'orientation se produit principalement au voisinage des parois du récipient : pendant leur adsorption, les atomes subissent l'action des impuretés magnétiques présentes dans la paroi. L'utilisation d'enduits cryogéniques solides peu attractifs (le néon, l'hydrogène moléculaire) réduit notablement cet effet jusque vers deux kelvin. A plus basse température, l'allongement des temps d'adsorption les rend inefficaces : nous avons alors ajouté un film d'hélium-quatre liquide aux échantillons pour exclure l'hélium-trois du voisinage immédiat des parois.

Avec un tel revêtement de la cellule, nous avons pu réaliser le pompage optique d'un gaz d'hélium-trois vers un demi kelvin et obtenir un taux d'orientation nucléaire de quelques pour cent ; le temps de relaxation de l'orientation longitudinale est alors de vingt minutes.

Les variations du temps de relaxation avec l'épaisseur du film, la composition de l'enduit, la densité gazeuse et la température ont fait l'objet d'études expérimentales détaillées. La condensation progressive de l'hélium-quatre lorsqu'on abaisse la température, l'adsorption de l'hélium-trois sur ce film, sa dissolution à l'intérieur et notamment dans les premières couches ont été discutées. Les estimations effectuées ont permis de proposer quelques modèles explicatifs des processus de relaxation qui interviennent.

En outre, par des techniques de Résonance Magnétique Nucléaire permettant l'observation de la précession libre des spins dans un champ magnétique inhomogène, nous avons effectué sur le gaz lui-même les premières déterminations expérimentales des coefficients de diffusion de spin dans l'hélium entre un et un demi kelvin.