



HAL
open science

Polarisation par pompage optique d'hélium 3 liquide pur ou en solution dans l'hélium 4, en dessous de 500mK

Myriam Cornut

► To cite this version:

Myriam Cornut. Polarisation par pompage optique d'hélium 3 liquide pur ou en solution dans l'hélium 4, en dessous de 500mK. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1993. Français. NNT: . tel-00011886

HAL Id: tel-00011886

<https://theses.hal.science/tel-00011886>

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.

THESE
présentée par

Myriam CORNUT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR
DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I

(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 23 Novembre 1988)

Spécialité : **Physique**

**POLARISATION PAR POMPAGE OPTIQUE
D'HELIUM 3 LIQUIDE OU EN SOLUTION DANS
DE L'HELIUM 4, EN DESSOUS DE 500 mK**

Soutenue le 24 Février 1993 devant la Commission d'Examen :

Président : **S. BALIBAR**
P.J. NACHER
L. PUECH
J.M. RAIMOND
G. VERMEULEN

Thèse préparée au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, et de l'Université PARIS VI, Associé au CNRS

THESE
présentée par

Myriam CORNUT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR
DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I

(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 23 Novembre 1988)

Spécialité : **Physique**

**POLARISATION PAR POMPAGE OPTIQUE
D'HELIUM 3 LIQUIDE OU EN SOLUTION DANS
DE L'HELIUM 4, EN DESSOUS DE 500 mK**

Soutenue le 24 Février 1993 devant la Commission d'Examen :

Président : S. BALIBAR
P.J. NACHER
L. PUECH
J.M. RAIMOND
G. VERMEULEN

Thèse préparée au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, et de l'Université PARIS VI, Associé au CNRS

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE

PREMIERE PARTIE

CONSTRUCTION ET CARACTERISATION D'UN ENSEMBLE EXPERIMENTAL POUR L'ETUDE DE D'HELIUM 3 LIQUIDE POLARISE

CHAPITRE I : PRELIMINAIRE	7
CHAPITRE II : PREPARATION D'HELIUM 3 LIQUIDE POLARISE PAR POMPAGE OPTIQUE	11
II - A LE POMPAGE OPTIQUE - RAPPELS	12
II -A.1) PRINCIPE	12
II -A.2) CONDITIONS EXPERIMENTALES OPTI- MALES	13
a) ^3He pur	
b) Mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$	
II - A.3) LE LASER	15
a) Contraintes	
b) Dispositif optique	
II - A.4) DETECTION OPTIQUE DE LA POLARI- SATION	17
a) ^3He pur	
b) Mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$	
II - B PREPARATION d' ^3He LIQUIDE POLARISE	18
II -B.1) LES CELLULES	18
II -B.2) PROCEDURE EXPERIMENTALE	19
II -B.3) CONTACTS THERMIQUES	21
a) Contact vers la dilution.	
b) Contact vers le pot à 1 K	
II -B.4) REMPLISSAGE DES CELLULES	23

II - C REDUCTION DE LA RELAXATION NUCLEAIRE	24
II -C.1) RELAXATION SUR LES PAROIS DE LA CELLULE	24
<i>a) Précaution pour la partie supérieure de la cellule</i>	
<i>b) Solution pour la partie inférieure de la cellule</i>	
II -C.2) RELAXATION EN VOLUME	26
CONCLUSION	27
CHAPITRE III : CRYOGENIE	29
III -A ENVIRONNEMENT DU REFRIGERATEUR A DILUTION	30
III -A.1) INFLUENCE DES CONTRAINTES EXPERIMENTALES SUR LA CONCEPTION DU CRYOSTAT	30
<i>a) Introduction</i>	
<i>b) Précautions à respecter</i>	
III -A.2) LA PARTIE ⁴He - AZOTE	31
<i>a) Les vases cryogéniques</i>	
<i>b) Importance du niveau d'⁴He cryogénique</i>	
III -A.3) LA BOITE A VIDE	32
III -A.4) MESURES DES TEMPERATURES	33
<i>a) Etalonnage des résistances</i>	
<i>b) Précautions à prendre lors des mesures</i>	
III - B LE CRYOSTAT A DILUTION	35
III -B.1) PRINCIPE	35
III -B.2) DESCRIPTION	36
<i>a) Le circuit de pompage</i>	
<i>b) Le pot à 1 K</i>	
<i>c) L'échangeur de chaleur</i>	
III -B.3) LA JAUGE A PRESSION OSMOTIQUE	38
<i>a) Principe</i>	
<i>b) Utilisation</i>	
III -B.4) PERFORMANCES DU REFRIGERATEUR A DILUTION	42
<i>a) Réduction des pertes thermiques</i>	
<i>b) Résultats</i>	

CHAPITRE IV : L'INTERRUPTEUR THERMIQUE	45
IV -A DESCRIPTION	46
IV -A.1) MONTAGE EXPERIMENTAL	46
IV -A.2) PRINCIPE	47
IV - B PERFORMANCES ATTENDUES DE L'INTERRUPTEUR.	48
IV -B.1) LES DONNEES NECESSAIRES AU CALCUL	49
IV -B.2) TEMPERATURE MINIMUM DU LIQUIDE POLARISE	50
IV -B.3) TEMPS CARACTERISTIQUE DE REFROIDISSEMENT DE 1^3HE	52
IV -B.4) LIMITATIONS DE L'INTERRUPTEUR	56
CONCLUSION	58
CHAPITRE V : CARACTERISATION DU MONTAGE EXPERIMENTAL	59
V -A AMAGNETISME DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL	60
V -A.1) ETUDE PAR RMN DU GAZ POLARISE - PROCEDURE	60
V -A.2) RELAXATION NUCLEAIRE TRANSVERSE	61
V -A.3) RELAXATION NUCLEAIRE LONGITUDINALE	63
V -B TEST DE L'INTERRUPTEUR THERMIQUE	64
V -B.1) TEMPS DE REFROIDISSEMENT - TEMPERATURE MINIMUM ACCESSIBLE	64
V -B.2) CARACTERISATION DU LIQUIDE PAR RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE	66
V -B.3) RESULTATS	67
V -B.4) CONCLUSION - PERSPECTIVES	69

DEUXIEME PARTIE

ETUDE EXPERIMENTALE DE MELANGES POLARISES d'³He-⁴He

INTRODUCTION	72
CHAPITRE VI: PRINCIPE DE LA MESURE DU POTENTIEL CHIMIQUE DE L'HELIUM 4	76
VI -A RAPPELS	77
VI -A.1) LE MODELE A DEUX FLUIDES	77
VI -A.2) CONDUCTIVITE THERMIQUE DE L' ⁴ He PUR	80
VI -A.3) ORIGINE DE L'EFFET "HEATFLUSH"	84
VI -A.4) CONDUCTIVITE THERMIQUE DES MELANGES ³ He- ⁴ He	86
VI -B APPLICATIONS DE L'EFFET "HEATFLUSH"	89
VI -B.1) MESURE DU POTENTIEL CHIMIQUE DE L'HE II DANS LES MELANGES	89
a) Principe	
b) Procédure expérimentale	
VI -B.2) MODELISATION D'UNE COLONNE DE MELANGE : ESTIMATION DU PROFIL DE TEMPERATURE ET DE CONCENTRATION	92
a) La colonne de mélange	
b) Cas de la Jauge à Pression Osmotique	
VI C CARACTERISATION D'UN MELANGE POLARISE	97
VI -C.1) PROCEDURE DE MESURE DU POTENTIEL CHIMIQUE DE L' ⁴ HE DU MELANGE POLARISE	97
VI -C.2) CONTRAINTES EXPERIMENTALES	98
a) Influence sur la forme de la colonne de mélange	
b) Sensibilité de la mesure	
CONCLUSION	103

CHAPITRE VII : ETUDE EXPERIMENTALE D'UN MELANGE POLARISE :PREMIER TYPE DE DE CELLULE	104
VII - A MONTAGE EXPERIMENTAL	105
VII -A.1) ALLURE GENERALE DE LA CELLULE	106
a) <i>Caractéristiques</i>	
b) <i>Choix du diamètre intérieur de la cellule expérimentale</i>	
VII -A.2) PREPARATION DE L'AIMANTATION - DISCUSSION D'UNE PROCEDURE OPTIMALE	106
VII -A.3) PROCEDURE ADOPTEE	108
a) <i>Introduction</i>	
b) <i>Effet HEVAC dans les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$</i>	
c) <i>Conclusion</i>	
VII B INFLUENCE DE LA FORME DE LA CELLULE	112
VII -B.1) CHAMPS DEMAGNETISANTS	112
a) <i>Champ magnétique créé par un volume aimanté</i>	
b) <i>Evolution de l'aimantation dans un champ statique B_0</i>	
c) <i>Discussion</i>	
VII -B.2) MESURE DIRECTE DU TEMPS DE DIFFUSION DE L'AIMANTATION	119
a) <i>Principe de la mesure de D_0</i>	
b) <i>Calcul du temps d'amortissement de l'aimantation transverse</i>	
VII -B.3) ECHOS DE SPINS	124
a) <i>Rappels</i>	
b) <i>Effets de la diffusion de l'aimantation</i>	
c) <i>Quelques ordres de grandeur</i>	
VII - C RESULTATS OBTENUS	129
VII -C.1) TEMPERATURE MINIMUM DU MELANGE POLARISE	129
a) <i>Evaluation des pertes thermiques</i>	
b) <i>Température minimum du mélange polarisé</i>	
VII -C.2) DISPOSITIF RMN	133
a) <i>Le champ magnétique statique B_0</i>	
b) <i>Les bobines de gradients de champ</i>	
c) <i>Les bobines d'induction et de détection</i>	
d) <i>Le circuit de détection</i>	
VII -C.3) ETUDE DES SIGNAUX DE PRECESSION LIBRE DE L'AIMANTAION	136

VII -C.4) RELAXATION DE L'AIMANTATION	137
a) <i>Relaxation longitudinale</i>	
b) <i>Durée de vie du signal de précession de l'aimantation trans-</i> <i>verse</i>	
c) <i>Echos de spins</i>	
CONCLUSION	140
CHAPITRE VIII : ESSAI D'UN DEUXIEME TYPE DE CELLULES : LES CELLULES A CESIUM	
VIII A INTERET DU CESIUM	142
VIII -A.1) RAPPEL : "MOUILLAGE D'UNE SUR- FACE"	143
VIII -A.2) RESULTATS POUR LE CESIUM	144
VIII -A.3) OPTIMISATION DE LA FORME DE LA CELLULE	145
VIII B DESCRIPTION DE LA CELLULE	146
VIII -B.1) CARACTERISTIQUES	146
VIII -B.2) PROFIL DE TEMPERATURE ET DE CONCENTRATION LE LONG DE LA CELLULE	147
VIII-B.3) PREPARATION DE LA SOLUTION POLARISEE - DISCUSSION D'UNE PROCEDURE DE POMPEGE OPTIQUE	148
VIII -C RESULTATS PRELIMINAIRES	149
CONCLUSION - PERSPECTIVES	151
ANNEXE	155
REFERENCES	156

Liste des Figures

Figure II-1 : Schéma des premiers niveaux de l' ³ He.	12
Figure II-2 : Quelques niveaux de l' ³ He et de l' ⁴ He.	12
Figure II-3 : Meilleurs taux de polarisation observés à forte puissance laser (~ 3W) en fonction de la pression totale dans la cellule.	14
Figure II-4a : Niveaux 2 ³ S ₁ et 2 ³ P de l'hélium.	15
Figure II-4.b: Position relative des raies de l' ⁴ He et de l' ³ He.	15
Figure II-5 : Calcul du taux de polarisation nucléaire de l' ³ He en fonction de la puissance laser.	16
Figure II-6 : Schéma de principe du laser	16
Figure II-7 : Schéma simplifié de l'ensemble expérimental.	19
Figure II-8 : Variation du temps de relaxation nucléaire T ₁ avec la température θ de la cellule expérimentale.	26
Figure III-1 : Vue d'ensemble du montage expérimental.	31
Figure III-2 : Principe de la mesure du niveau d' ⁴ He cryogénique.	32
Figure III-3 : Détail du passage de la cellule entre le bain d' ⁴ He et la boîte à vide.	32
Figure III-4 : Ancrage thermique des résistances sur la cellule.	36
Figure III-5 : Diagramme de phase des mélanges ³ He- ⁴ He.	36
Figure III-6 : Schéma de principe de réfrigérateur à dilution.	36
Figure III-7 : Circuit externe de circulation de l'hélium cryogénique.	36
Figure III-8 : Le pot à 1K.	37
Figure III-9 : L'échangeur de chaleur.	37
Figure III-10 : Schéma de la jauge à pression osmotique.	40
Figure III-11 : Variation en fonction de la température, de la pression osmotique dans un mélange ³ He- ⁴ He, pour diverses concentrations en ³ He.	41
Figure III-12 : Variation de la pression fontaine de l' ⁴ He en fonction de la température.	41
Figure III-13 : Principe de fonctionnement de la jauge à pression osmotique.	42
Figure III-14 : Variation de la température T _e de l' ⁴ He pur en fonction de la température T _{bm} de la boîte à mélange.	42
Figure III-15 : Variation de la température T de l'extrémité E du capillaire en fonction de la puissance thermique qui lui est appliquée, pour une température T _{bm} = 52 mK de la boîte à mélange.	43
Figure III-16 : Puissance frigorifique du réfrigérateur à dilution.	44
Figure IV-1a : L'interrupteur thermique.	47

Figure IV-1b : Dimensions de l'interrupteur thermique.	48
Figure IV-2 : Contact thermique entre l'interrupteur et la cellule expérimentale. . .	48
Figure IV-3 : Représentation symbolique de l'interrupteur thermique en position ouverte.	49
Figure IV-4 : Représentation symbolique de l'interrupteur thermique en position fermée.	49
Figure IV-5 : Modélisation sommaire du fritté d'argent.	
Figure IV-6 : Détail de la partie inférieure du tube en inox de l'interrupteur.	50
Figure IV-7 : Détail de la partie de la cellule expérimentale en contact thermique avec l'interrupteur de chaleur.	51
Figure IV-8 : Détermination de la température de liquéfaction $T_{\text{liqué}}$ de l' ^3He	54
Figure IV-9 : Modélisation de la cellule pour le calcul du temps d'écoulement des atomes entre B et la cellule expérimentale C.	55
Figure IV-10 : Variation en fonction de la température de l'impédance thermique associée au processus évaporation-condensation.	57
Figure IV-11 : Modélisation du tube en inox de l'interrupteur, pour le calcul de son profil de température.	57
Figure IV-12 : Profil de température dans le tube en inox de l'interrupteur.	57
Figure V-1 : Signal de précession de l'aimantation dans la cellule expérimentale ($T=4,2$ K).	61
Figure V-2 : Signal de précession libre de l'aimantation dans la cellule expérimentale ($T=1$ K).	61
Figure V-3 : Détail de la partie supérieure de l'interrupteur thermique.	64
Figure V-4 : Temps d'ouverture et de fermeture de l'interrupteur thermique.	64
Figure V-5a : Signal de précession libre de l'aimantation en phase gazeuse	67
Figure V-5b : Transformée de Fourier du signal de la figure V-5a.	67
Figure V-6a : Signal de précession libre de l'aimantation en phase liquide	67
Figure V-6b : Transformée de Fourier du signal de la figure V-6a.	67
Figure V-7 : Evolution temporelle de la différence entre les fréquences de précession de l'aimantation en phase liquide et en phase gazeuse.	69
Figure VI-1 : Diagramme de phase de l' ^4He	78
Figure VI-2 : Vitesse moyenne v_m de l'écoulement de l' ^4He à travers des tubes capillaires de diamètre différent, en fonction de la pression à l'entrée du capillaire.	79
Figure VI-3 : Viscosité de l' ^4He en fonction de la température.	79
Figure IV-4 : Variation du rapport entre la masse volumique du fluide normal (resp. superfluide) et la masse volumique totale de l' ^4He , en fonction de la température.	80
Figure VI-5 : Le modèle de la condensation de Bose-Einstein appliqué à l' ^4He II	80

Figure VI-6 : Convection dans l'He II	81
Figure VI-7 : Variation du flux de chaleur dans l'He II contenu dans une fente de largeur $2,4 \mu\text{m}$, en fonction de la différence de température ΔT à travers la fente.	81
Figure VI-8 : Conductivité thermique de l'He II.	84
Figure VI-9 : L'effet "heatflush" dans un mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$	85
Figure VI-10 : Variation de la conductivité thermique des solutions $^3\text{He}-^4\text{He}$ en fonction de la température, pour diverses concentrations en ^3He	90
Figure VI-11 : Création d'une zone d' ^4He pur dans une colonne de mélange.	91
Figure VI-12 : Principe de la mesure du potentiel chimique μ_4 de l' ^4He	91
Figure VI-13 : Modélisation de la colonne de mélange pour le calcul de son profil de température et de concentration.	94
Figure VI-14 : Estimation du profil de température et de concentration en ^3He dans une colonne de mélange.	95
Figure VI-15 : Variation en fonction de la position dans le mélange, du rapport entre le flux de chaleur qui le traverse et le flux total.	96
Figure VI-16 : Représentation symbolique de la jauge à pression osmotique.	97
Figure VI-17 : Variation de la température T de l'extrémité du capillaire de la jauge à pression osmotique en fonction de la puissance thermique (courbe théorique).	98
Figure VII-1 : Vue d'ensemble de la cellule utilisée pour la préparation et l'étude d'une solution polarisée d' $^3\text{He}-^4\text{He}$	106
Figure VII-2 : Détail de la partie inférieure de la cellule.	107
Figure VII-3 : Conditions physiques régnant dans la cellule pour diverses températures de la cellule expérimentale.	108
Figure VII-4 : Représentation symbolique de la cellule expérimentale pour la modélisation de l'effet Hevac.	110
Figure VII-5 : Variation de la concentration en ^3He dans le gaz, en fonction de la position dans la cellule.	110
Figure VII-6 : Un modèle simple pour le calcul du champ magnétique créé par un cylindre aimanté.	115
Figure VII-7 : Axes de coordonnées adoptées pour repérer l'axe des cylindres par rapport au champ statique extérieure.	116
Figure VII-8 : Variation en fonction de la température du coefficient de diffusion des spins D_0 dans les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$	119
Figure VII-9 : Préparation d'une aimantation transverse inhomogène.	120
Figure VII-10 : Aimantation transverse initiale après une impulsion inhomogène de radiofréquence.	121
Figure VII-11 : Evolution temporelle de l'aimantation transverse inhomogène dans le référentiel de Larmor.	121

Figure VII-12 : Détection de l'aimantation transverse inhomogène.	121
Figure VII-13 : Principe des échos de spins	124
Figure VII-14 : Contact thermique entre la cellule expérimentale et la boîte à mélange.	129
Figure VII-15 : Dimensions de l'interrupteur thermique.	129
Figure VII-16 : Détermination des pertes thermiques amenées par la cellule vers la boîte à mélange.	130
Figure VII-17 : Estimation du profil de températures et de concentrations dans le mélange.	133
Figure VII-18 : Ensemble de bobines pour le champ B_0	134
Figure VII-19 : Variation de B_0 sur l'axe des bobines.	134
Figure VII-20 : Ensemble de bobines pour les gradients de champ.	134
Figure VII-21 : Dispositif RMN.	134
Figure VII-22 : Schéma du circuit déphaseur actif utilisé pour la compensation du signal radioélectrique parasite capté.	135
Figure VII-23 : Circuit électronique d'induction et de détection	136
Figure VII-24a : Signal de précession libre de l'aimantation du mélange, pour un faible angle de basculement.	136
Figure VII-24b : Transformée de Fourier du signal en temps réel.	136
Figure VII-25a : Signal de précession libre de l'aimantation du mélange, pour un angle de basculement $\pi/2$	136
Figure VII-25b : Transformée de Fourier du signal en temps réel.	136
Figure VII-26 : Durée de vie du signal de précession libre de l'aimantation transverse.	139
Figure VII-27 : Evolution de la composante inhomogène de l'aimantation transverse après une impulsion inhomogène	139
Figure VIII-1 : Définition du mouillage d'une surface.	144
Figure VIII-2 : Dispositif expérimental pour la mise en évidence du "non-mouillage" du césium par l' ^4He	144
Figure VIII-3 : Allure de la "cellule à césium".	146
Figure VIII-4 : Détail de la cellule expérimentale.	146
Figure VIII-5 : Allure de la cellule avant son remplissage à l'hélium.	146
Figure VIII-6 : Conditions physiques régnant dans la cellule pour diverses températures de la cellule expérimentale.	149

INTRODUCTION GENERALE

Ce travail s'inscrit dans le cadre de recherches sur les fluides quantiques polarisés, et plus particulièrement sur l'hélium polarisé à basse température. Ce champ de recherches s'est ouvert il y a une quinzaine d'années par une série de travaux théoriques [1] [2], bientôt suivis par de nombreuses vérifications expérimentales. Elles ont porté sur ^3He gazeux, ^3He liquide ainsi que les solutions diluées de ^3He dans de ^4He superfluide [3] [4]. Dans tous les cas, les phénomènes étudiés sont des effets macroscopiques induits par une modification de l'orientation des spins nucléaires de ^3He . En d'autres termes, la polarisation nucléaire M de l'échantillon peut être considérée comme un nouveau paramètre thermodynamique, auquel sont reliés des effets de statistique quantique variés. Citons par exemple la modification des propriétés de transport du fluide, le changement du diagramme de phase de ^3He ... L'origine commune à toutes ces propriétés est l'indiscernabilité des particules de ^3He lorsqu'elles sont dans le même état de spin nucléaire : elles sont alors soumises aux règles de la statistique quantique de Fermi, puisque leur spin nucléaire vaut $I=1/2$.

Ce mémoire fait suite aux thèses de P.J. Nacher [5] et G. Tastevin [6], et plus généralement aux travaux menés depuis une dizaine d'années par notre équipe du laboratoire de Spectroscopie Hertzienne . Elle polarise ^3He par pompage optique, et étudie ses propriétés à basse température. Cette équipe s'est tout d'abord intéressée aux propriétés du gaz de ^3He polarisé refroidi jusque vers 1,2 K. Il a ainsi pu être mis en évidence la propagation d'ondes de spin dans le gaz dilué [7]. Ce phénomène résulte d'un effet dit de rotation de spins identiques, bien connu dans le cas des électrons de conduction d'un métal. L'intérêt s'est ensuite porté sur la conductivité thermique du gaz de ^3He dans la même gamme de température, et il a été montré qu'elle dépendait nettement de la polarisation nucléaire [8].

Par la suite, notre équipe a réussi à préparer de ^3He liquide à partir du gaz polarisé, et à le refroidir jusque vers 500 mK grâce à un cryostat à ^3He construit au laboratoire [6] [9]. Les études quantitatives menées sur ce nouveau fluide quantique ont toutefois été limitées par la faible plage de température accessible avec le montage existant (la température la plus froide accessible est proche de celle où le gaz se liquéfie). C'est la raison pour laquelle nous avons décidé de construire un système de refroidissement des échantillons plus performant, comportant notamment un réfrigérateur à dilution. Celui ci doit présenter des caractéristiques très particulières adaptées aux

techniques de polarisation utilisées par notre équipe.

Un des objectifs assigné à ce nouveau montage est l'étude du liquide ^3He polarisé jusqu'à des températures assez basses pour que le régime dégénéré soit atteint (la température de Fermi du liquide ^3He est en effet estimée à 300 mK environ).

On s'attend à ce que les manifestations du principe d'exclusion de Pauli soient très marquées dans ce système, et donnent accès à des quantités qui relèvent des effets à N corps. Citons par exemple l'énergie de liaison par particules dans le liquide ou la relaxation nucléaire longitudinale liée aux interactions dipole-dipole. Ces propriétés sont évidemment beaucoup plus difficiles à prédire théoriquement que celles du gaz polarisé. La mise en évidence expérimentale de certains effets de polarisation dans l' ^3He liquide serait très certainement de nature à stimuler les efforts des théoriciens.

L'hélium à basse température offre aussi la possibilité d'étudier un autre système très riche : les solutions d' ^3He polarisé dans l' ^4He superfluide. Le nouveau montage que nous avons construit est bien adapté à leur étude en fonction du taux de polarisation nucléaire M dans une large gamme de température. L'intérêt de ce système physique est qu'il présente beaucoup d'analogies avec un système gazeux. En effet l' ^4He superfluide constitue pour les atomes d' ^3He un "pseudo vide", appelé parfois "vide massif". Les atomes d' ^3He s'y propagent comme des atomes libres, et on peut calculer simplement leurs propriétés physiques en leur affectant une masse renormalisée pour tenir compte des interactions avec l' ^4He [10] [11]. L'avantage de ces solutions sur l' ^3He gazeux est qu'on peut les porter jusqu'à une température proche du zéro absolu sans condensation de l' ^3He , à condition que leur concentration isotopique reste inférieure à 6% environ (pour $T=0$).

Plusieurs équipes ont déjà mis en évidence des effets de la polarisation nucléaire sur les propriétés de transport de telles solutions. On peut citer la propagation du second son [12] [13], la viscosité [14] [15], la diffusion d'aimantation et la propagation d'ondes de spin [16] [17] [18] [19]. Dans toutes ces expériences, la polarisation nucléaire était obtenue par une méthode de "force brute" (application d'un fort champ magnétique à basse température), qui ne permet de polariser fortement que des solutions très diluées (concentration en $^3\text{He} \sim 10^{-4}$).

En revanche, le pompage optique utilisé par notre équipe semblait bien adapté à l'obtention de solutions à la fois concentrées et bien polarisées. C'est pourquoi nous

nous sommes fixés comme but principal de préparer de telles solutions polarisées avec notre montage expérimental, et d'en étudier quelques propriétés en fonction de M dans la nouvelle gamme de température ainsi accessible.

Nous avons choisi de mettre au point une méthode de mesure du potentiel chimique μ_4 de l' ^4He , en fonction de M dans des conditions où la température T et la concentration x de l' ^3He sont mesurées simultanément. L'intérêt de cette mesure de μ_4 est que cette fonction est un des paramètres qui permet de prédire l'ensemble du comportement thermodynamique du système.

PLAN DE L'EXPOSE

Ce mémoire se compose de trois parties. La première décrit l'appareillage que nous avons construit et la procédure adoptée pour préparer et caractériser les échantillons liquides polarisés. Nous faisons quelques rappels sur le pompage optique et ses avantages, en insistant sur le cas particulier des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$ qui vient d'être étudié par C. Larat pour sa thèse [20]. Nous présentons aussi la technique des doubles cellules développée pour transférer du gaz polarisé d'une zone à température ambiante, où il est orienté optiquement, vers une zone d'expérimentation où il est éventuellement liquéfié.

Puis nous décrivons le cryostat à dilution que nous avons construit avec l'aide de G. Vermeulen. Cette première partie comporte de nombreuses estimations des diverses pertes thermiques du système de refroidissement, de façon à évaluer la température où l'on peut porter l'échantillon, ainsi que les constantes de temps associées à son refroidissement.

Dans une deuxième partie, nous décrivons les expériences réalisées sur les solutions $^3\text{He}-^4\text{He}$. Nous présentons la procédure de mesure du potentiel chimique de l' ^4He , ainsi que les divers signaux de résonance magnétique nucléaire que nous avons enregistrés. Enfin, nous reportons des mesures préliminaires effectuées sur une cellule contenant du césium dans sa partie froide. Nous utilisons là des résultats obtenus par ailleurs sur le non mouillage du césium par l' ^4He superfluide [21]. Ceci offre différentes possibilités fort intéressantes relatives d'une part à la diminution des pertes thermiques et donc aux températures ultimes accessibles, et d'autre part à l'amélioration des taux de polarisation nucléaire.

L'annexe constitue la dernière partie de ce mémoire. Il s'agit d'un premier ar-

ticle d'une série de trois, consacrés à l'effet d'un flux d' ^4He gazeux sur la concentration d'atomes d' ^3He en présence d'un film superfluide. Dans ce premier article, nous présentons une modélisation simple qui prend en compte les effets hydrodynamiques dans la phase gazeuse, et l'équilibre thermodynamique local avec un film superfluide. Le modèle est ensuite appliqué au cas d'un cylindre soumis à un flux thermique constant, ce qui est en pratique la situation rencontrée dans nos cellules expérimentales. Les résultats de nos calculs permettent d'expliquer la plupart des observations effectuées expérimentalement, et par conséquent d'améliorer nos méthodes de préparation des échantillons polarisés.

Cette thèse s'achève donc sur des perspectives nouvelles pour l'étude de l' ^3He polarisé optiquement dans une gamme de température étendue par rapport aux possibilités antérieures à ce travail. Elle ouvre en outre le domaine de recherche sur les solutions diluées d' ^3He dans l' ^4He , préparées dans un état à la fois concentré et fortement polarisé.

PREMIERE PARTIE

CONSTRUCTION ET CARACTERISATION D'UN ENSEMBLE EXPERIMENTAL POUR L'ETUDE D'HELIUM-3 LIQUIDE POLARISE

CHAPITRE I

PRELIMINAIRES

COMMENT AIMANTER ${}^3\text{He}$ LIQUIDE ET LES SOLUTIONS ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$

Pour des températures très supérieures à la température de Fermi, les propriétés thermodynamiques et magnétiques de ${}^3\text{He}$ liquide sont gouvernées par la statistique de Boltzmann (régime classique). En particulier, la susceptibilité magnétique suit une loi de Curie : elle varie comme l'inverse de la température.

Dans le régime dégénéré, ${}^3\text{He}$ liquide obéit à une statistique de Fermi : la susceptibilité devient indépendante de la température. Pour donner un ordre de grandeur, du liquide sous une pression de 34 bars, à une température de 50 mK et dans un champ magnétique de 7 T, présente un taux de polarisation de 3 %. Cette faible valeur résulte du principe de Pauli : seuls les spins dans un état proche du niveau de Fermi sont susceptibles de s'orienter.

Ce principe exclut l'utilisation de la "force brute" pour aimanter fortement du liquide. Un certain nombre de méthodes ont alors été développées dans le but d'obtenir de fortes polarisations. On peut par exemple avoir recours à la technique de fusion rapide adiabatique de ${}^3\text{He}$ solide polarisé [22]. Le principe repose sur la forte susceptibilité magnétique du solide. Dans cette phase, les spins sont indépendants (jusqu'à quelques mK) et la susceptibilité magnétique suit alors une loi de Curie : pour $T=5$ mK et $B=10$ T, le taux de polarisation atteint 91%. Il reste alors à fondre le solide par décompression pour obtenir du liquide dont l'aimantation initiale est celle du solide dont il est issu. Le point important est que la température du liquide est largement supérieure à 5 mK. Il existe plusieurs causes à ce réchauffement (voir par exemple [23]). Nous ne citons ici que les principales.

* Même avec une haute polarisation initiale du solide, il existe une entropie résiduelle due aux spins. Pour une aimantation du solide de 70 % (7 Tesla, 6 mK), la température du liquide sera de 100 mK si on suppose que la fusion est adiabatique.

* A 5 mK, la pression du solide est supérieure à 34 bars. Une décompression est appliquée sur l'une de ses faces. Pour qu'elle se propage dans tout le solide afin qu'il fonde, il faut évacuer la différence de volume entre le solide et le liquide. Ce processus s'accompagne d'un dégagement de chaleur associé au travail des forces visqueuses.

* La relaxation des spins génère également une quantité significative de chaleur.

Wieggers et al [24] ont réussi néanmoins à préparer du liquide dont l'aimantation

et la température initiale était de 60 % et 70 mK, par mise en contact thermique du liquide polarisé avec un réservoir froid d' ^3He normal.

Le problème de la faible susceptibilité magnétique des liquides de Fermi dans le régime dégénéré se pose également pour les solutions d' $^3\text{He}-^4\text{He}$. Rappelons que l'on doit disposer d'un champ magnétique suffisamment élevé pour que l'énergie magnétique produite soit du même ordre de grandeur que l'énergie de Fermi $k_B T_f$. Sous pression de vapeur saturante, la température de Fermi pour les solutions diluées est donnée par $T_f = 2,58 x^{2/3}$ (voir par exemple [25]), x étant la concentration en ^3He de la solution. On remarque que la méthode dite de "force brute" ne produit des taux de polarisation significatifs que pour de très faibles concentrations ($x \simeq 10^{-4}$). Pour des solutions plus concentrées, on doit recourir à un autre moyen, par exemple la méthode de fusion rapide déjà évoquée. Roobol et al [26] polarisent ainsi à plus de 10% des solutions dont la concentration en ^3He varie de 5,5 % à 8,5 %, pour une température de 350 mK.

En résumé, la technique de fusion rapide est très efficace, mais lourde à entreprendre. Citons quelques inconvénients :

- * L'utilisation d'un réfrigérateur à dilution très performant est nécessaire. Le temps de refroidissement est généralement très long.

- * La rapidité de refroidissement du solide jusqu'à quelques mK est fortement gênée par les processus d'échange de chaleur, qui sont très peu efficaces à très basses températures (Résistance de Kapitza entre matériaux (voir par exemple [27])).

Ces deux caractéristiques limitent évidemment la répétition des expériences.

- * Dans les études menées par Wieggers et al [24], refroidir le liquide polarisé en dessous de 100 mK nécessite son confinement dans des frittés d'argent pour augmenter la surface d'échange avec le réservoir froid. Le principal problème de cette technique provient des temps de relaxation nucléaire courts (~ 1 min.) dus à la présence du métal. Cela réduit donc les possibilités d'expériences à réaliser pour caractériser ensuite l' ^3He liquide polarisé.

AIMANTATION PAR POMPAGE OPTIQUE

La méthode développée depuis quelques temps dans notre laboratoire s'appuie sur une approche différente : on polarise l' ^3He (pur ou mélangé à de l' ^4He) sous forme gazeuse avant de le refroidir pour obtenir du liquide polarisé. Le gaz est aimanté par

la technique de pompage optique, inventée par Kastler et al [28] et développée par Colegrove et al [29] dans le cas de l'hélium.

En résumé, il s'agit de transférer une polarisation de la lumière de pompage vers les spins nucléaires des atomes d' ^3He . On trouvera une description des grandes lignes de ce procédé dans le chapitre II. Nous allons tout d'abord rappeler les résultats déjà obtenus dans notre laboratoire quant à l'étude d'une part de ^3He gazeux polarisé, et d'autre part de ^3He liquide polarisé.

Pour ^3He en phase gazeuse, des taux de polarisation aussi élevés que 50 % sont couramment obtenus [5] [6] (et pour une température supérieure à environ 600 mK).

Il a par la suite été prouvé qu'il était possible de préparer de ^3He liquide polarisé par condensation du gaz aimanté par pompage optique. Cet objectif a été atteint au cours du travail de thèse de G. Tastevin [6] [9]. Elle même et P.J. Nacher ont réussi à polariser de ^3He liquide jusqu'à 50 % pour une température de 450 mK. Parallèlement à ces études sur ^3He pur, C. Larat et al ont entrepris d'étendre la technique de pompage optique aux mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$ ([20] et références citées). Devant le succès de ces expériences, s'ouvrait un nouveau champ d'investigations : l'étude des solutions polarisées d' $^3\text{He}-^4\text{He}$. L'étape préliminaire a donc consisté à construire un ensemble expérimental comprenant un réfrigérateur à dilution, afin d'atteindre de plus basses températures que celles observées par G. Tastevin et P.J. Nacher avec un cryostat à ^3He . Le but est de disposer d'un outil permettant l'étude de ^3He polarisé pur ainsi que des solutions polarisées d' $^3\text{He}-^4\text{He}$ dans un large domaine de températures, **régime dégénéré compris**. Ce travail s'est déroulé sous la responsabilité de G. Vermeulen, en stage Post-doctoral de 1988 à 1991 dans notre laboratoire.

La première partie de ce mémoire est consacrée à la description de notre ensemble expérimental. Nous rappellerons tout d'abord dans le chapitre II quelle est la procédure mise au point dans notre laboratoire pour préparer du liquide polarisé, en insistant sur les modifications requises par l'utilisation d'un réfrigérateur à dilution. La partie technique consacrée à la cryogénie est regroupée dans le chapitre III. Nous verrons que l'étude de ^3He pur nécessite un interrupteur entre la partie dilution et la cellule expérimentale contenant ^3He : nous le décrirons dans le chapitre IV. Pour clore cette première partie (chapitre V), nous exposerons les résultats préliminaires obtenus avec de ^3He pur.

CHAPITRE II

PREPARATION D'HELIUM-3 LIQUIDE POLARISE PAR POMPAGE OPTIQUE

Au cours de ce chapitre, nous décrirons notre ensemble expérimental ainsi que la procédure mise au point au laboratoire pour préparer de l' ^3He liquide polarisé. Le travail que nous avons réalisé a consisté à modifier une technique développée autour d'un cryostat à ^3He pour un ensemble expérimental comprenant un réfrigérateur à dilution. Ces deux configurations sont semblables sur un grand nombre de points. Nous verrons toutefois que l'utilisation d'un réfrigérateur à dilution introduit quelques nouveaux problèmes.

II - A LE POMPAGE OPTIQUE - RAPPELS

II -A.1) PRINCIPE

Nous décrivons tout d'abord le pompage optique de l' ^3He pur. La physique mise en jeu au cours du pompage optique de l' ^3He a été analysée de manière détaillée dans de nombreuses publications (voir par exemple [5] [29] [30]). C'est pourquoi nous nous contenterons ici de décrire les étapes importantes de cette technique d'aimantation.

Une faible décharge Haute Fréquence entretenue dans le gaz permet de peupler les différents états excités de l'atome d' ^3He , en particulier le niveau métastable 2^3S_1 (figure II-1). Le faisceau polarisé d'un laser est envoyé sur le gaz, parallèlement au champ magnétique dans lequel il est plongé (voir § II-C). La longueur d'onde du laser ($\lambda=1,08 \mu\text{m}$) est telle que des transitions sont induites entre les niveaux 2^3S_1 et 2^3P . La conséquence est que l'on crée une polarisation électronique de ces états excités. Par couplage hyperfin au sein de chaque atome, il en découle une orientation nucléaire. Elle est finalement transmise aux atomes dans l'état fondamental par collisions d'échange de métastabilité (collisions entre les atomes respectivement dans les états métastable et fondamental).

La technique d'aimantation décrite ci-dessus peut également s'appliquer dans le cas où l' ^3He est mélangé à de l' ^4He . Cette méthode reste efficace tant que la proportion d' ^4He est inférieure à environ 1/3 [20]. Pour des quantités plus élevées, il devient avantageux d'effectuer le pompage optique sur l' ^4He .

Dans ce cas, les transitions induites entre les niveaux 2^3S_1 et 2^3P de l' ^4He (figure II-2) ont pour conséquence de créer une polarisation électronique des atomes d' ^4He dans l'état 2^3S_1 . Parmi la diversité des collisions que peuvent subir de tels atomes, il

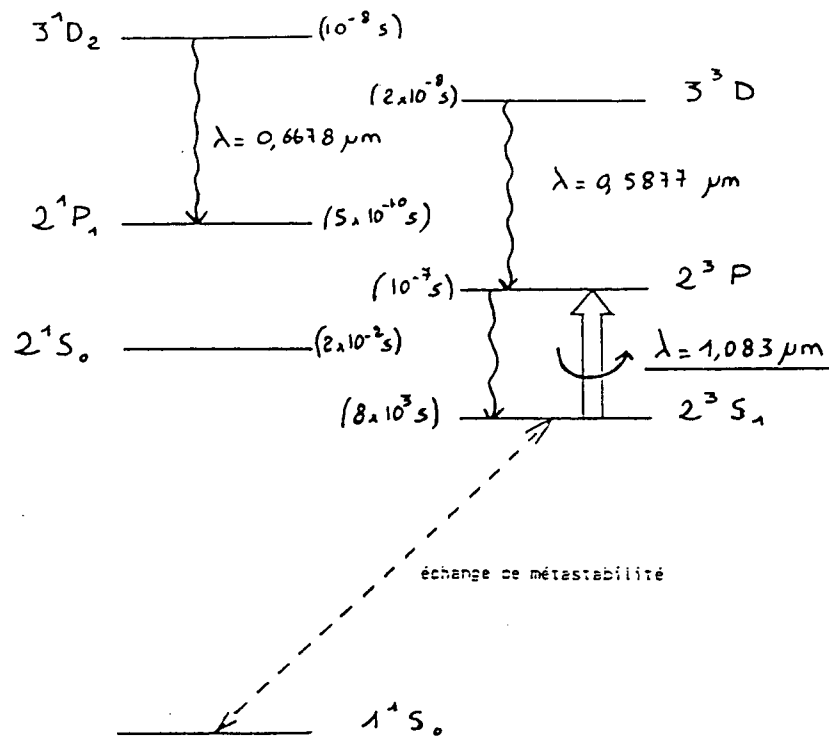


Figure II-1 : Schéma des premiers niveaux de l' ${}^3\text{He}$.
On a indiqué leur durée de vie ainsi que la longueur d'onde de certaines transitions.

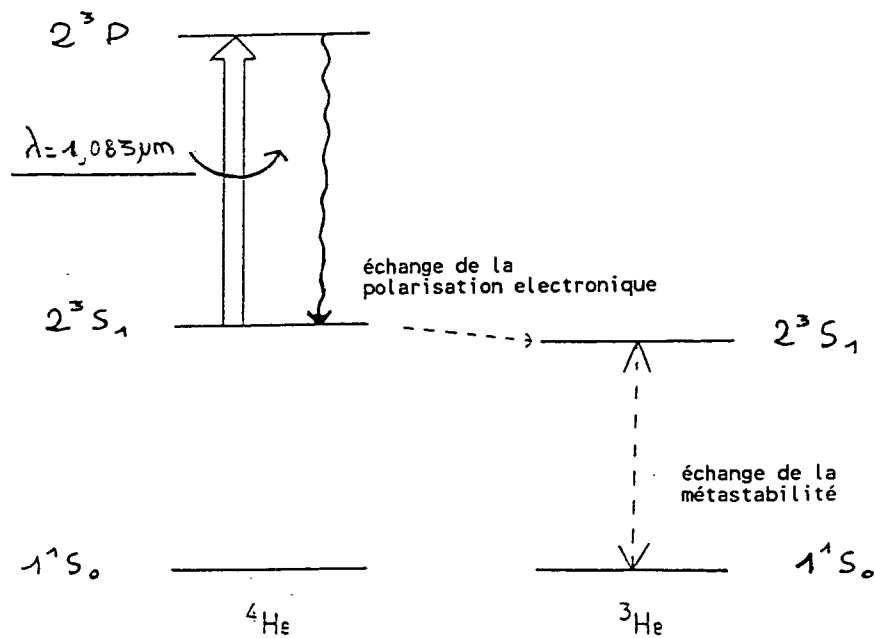


Figure II-2 : Quelques niveaux de l' ${}^3\text{He}$ et de l' ${}^4\text{He}$.

Un atome dans un état métastable est caractérisé par le symbole *. Le symbole † indique que l'atome possède une polarisation électronique (pour l' ${}^4\text{He}$), ou nucléaire (pour l' ${}^3\text{He}$).

en est une catégorie qui aboutit au transfert de la polarisation électronique des atomes d' ^4He aux atomes d' ^3He dans l'état métastable 2^3S_1 . Nous nous retrouvons alors dans la situation décrite pour l' ^3He pur : l'orientation nucléaire est transmise aux atomes d' ^3He dans l'état fondamental par collisions d'échange de métastabilité (collisions avec un atome d' ^3He ou d' ^4He).

II -A.2) CONDITIONS EXPERIMENTALES OPTIMALES

L'aimantation maximum du gaz dépend fortement des conditions physiques dans lesquelles nous nous plaçons pour réaliser le pompage optique. Diverses études tant théoriques qu'expérimentales (voir par exemple [30]) ont permis de délimiter une zone d'opération optimum, et en même temps facilement réalisable en pratique. Nous présentons les paramètres physiques les plus importants, et de façon succincte les motivations quant au choix de leurs valeurs.

a) ^3He pur

* Intensité de la décharge RF :

Elle conditionne le peuplement du niveau métastable 2^3S_1 , et par conséquent le taux de collisions d'échange de métastabilité des atomes dans l'état fondamental. Ce taux de collisions est un terme source de polarisation.

Une décharge intense génère une grande densité de sous-produits (électrons, ions, molécules...). Une collision entre un de ces sous-produits et un atome dans l'état fondamental peut entraîner la perte de l'orientation nucléaire de ce dernier.

Il s'agit donc de trouver un compromis entre une forte densité d'atomes métastables et une faible densité de produits de décharge. En pratique, les meilleurs résultats ont toujours été obtenus pour des décharges faibles, à la limite de l'extinction.

La fréquence de la décharge peut influencer le taux maximum de polarisation. Cet effet n'a pas été étudié de façon systématique au laboratoire, mais il apparaît qu'une fréquence de quelques Mega-Hertz permet d'obtenir généralement de bons résultats. Toutes nos expériences seront réalisées avec une fréquence de décharge de l'ordre de 9 MHz.

* Température :

Elle influence principalement le taux de collisions d'échange de métastabilité. En

effet, l'ordre de grandeur de la section efficace de telles collisions diminue de plus de deux ordres de grandeur entre 300 K et 4,2 K [31].

Bien qu'il ait été démontré que la section efficace est encore plus importante à 500 K qu'à 300 K [5] [30], des raisons pratiques ont motivé le choix de réaliser le pompage optique à température ambiante. A cette température, il est déjà très performant.

* Taux d'impuretés dans la cellule :

Le temps de vie radiative des atomes métastables ($\sim 8 \times 10^3$ s) peut être considérablement raccourci par les collisions contre les impuretés contenues dans la cellule. Pour limiter ce phénomène, toutes nos cellules sont soigneusement nettoyées [5] [32], ce qui permet d'avoir un taux d'impuretés inférieur à 10^{-6} .

En outre, toutes les impuretés résiduelles condensables sont en principe absentes du volume de pompage optique : en effet, nous verrons par la suite que nos cellules s'étendent jusqu'à des zones de très basse température, qui doivent par conséquent piéger les impuretés par "cryo-pompage".

* Densité d' ^3He :

Plus la densité d' ^3He est faible, plus le temps caractéristique de diffusion vers les parois est rapide, et par conséquent plus le taux de destruction des atomes métastables sur les bords de la cellule est important. Une trop faible densité ne permet donc pas un pompage optique efficace. A forte pression, il est difficile d'avoir un plasma peu relaxant vis à vis de l'orientation nucléaire, alors que la densité d'atomes dans l'état 2^3S_1 reste limitée. Cela est dû en particulier aux collisions auto-ionisantes entre atomes métastables.

En définitive, il a été montré [5] [30] que le pompage optique était efficace pour une densité d' ^3He comprise entre 3×10^{15} et 3×10^{17} atomes par cm^3 , ce qui correspond pour une température de 300 K à une pression entre 0,1 et 10 torrs (figure II-3). L'optimum d'efficacité se situe aux alentours de 10^{16} atomes par cm^3 , c'est-à-dire à une pression de 0,3 torr à 300 K.

b) Mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$

Dans le cas où la cellule expérimentale contient aussi de l' ^4He , nous avons déjà mentionné que le pompage optique sur l' ^3He pouvait être efficace si la proportion d' ^4He était inférieure à environ 1/3. La deuxième contrainte concerne la pression partielle

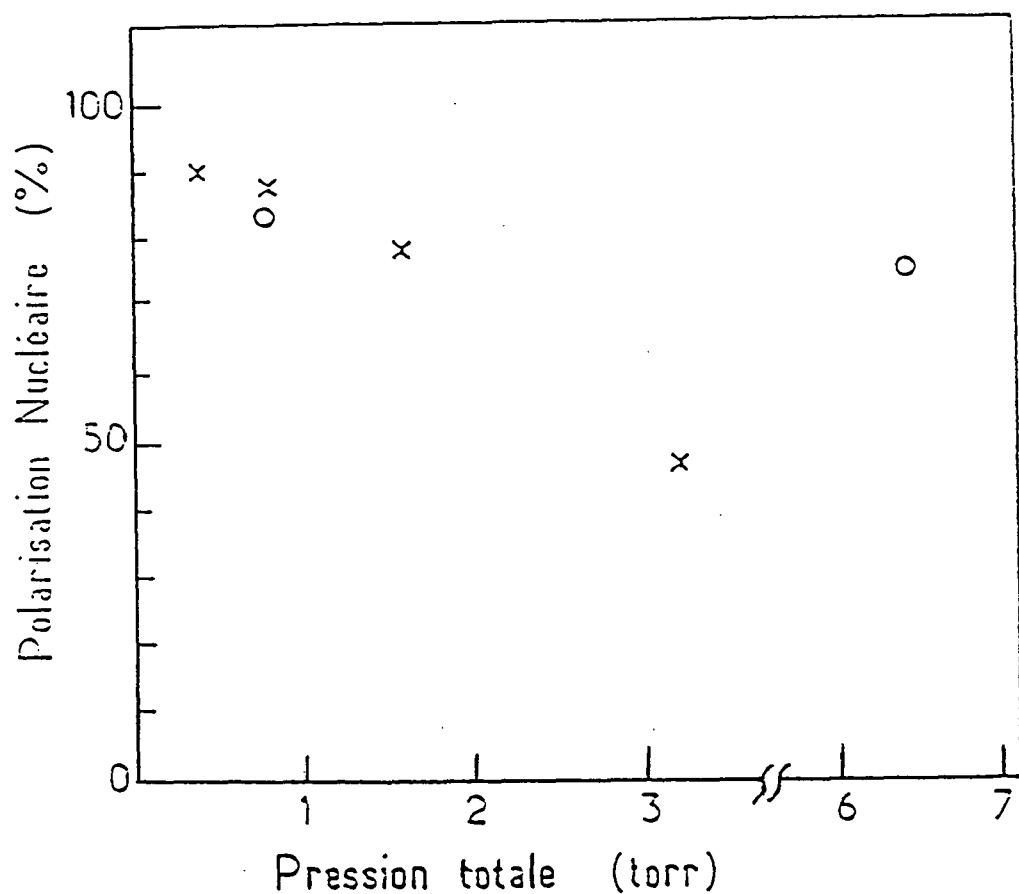


Figure II-3 : Meilleurs taux de polarisation observés à forte puissance laser ($\sim 3W$) en fonction de la pression totale dans la cellule.

Croix : hélium-3 (trois points à basse pression : pompage sur C_8 ; le quatrième sur C_9). Cercles : mélanges 1/4 hélium-3, 3/4 hélium-4 (le point à 6,4 torr a été obtenu avec une puissance laser de 1,5 W) [20].

$d'^3\text{He}$, qui comme nous venons de l'expliquer, peut varier entre environ 0,1 et 10 torrs à température ambiante. Ceci correspond à une pression totale optimum dans la cellule comprise entre 0,15 torr et 15 torr.

Pour une proportion $d'^4\text{He}$ supérieure à 1/3, le pompage optique est réalisé sur les atomes $d'^4\text{He}$. Le mécanisme du pompage optique de $l'^4\text{He}$ dans les mélanges présente une plus grande complexité que dans le cas de $l'^3\text{He}$ pur, car il fait intervenir plus de paramètres. L'étude systématique des mélanges a été entreprise au laboratoire. On pourra trouver quelques résultats concernant l'efficacité du pompage optique dans les références [20] et [33]. Les premières mesures montrent que dans des gammes de pressions comparables à celles de $l'^3\text{He}$ pur, le pompage optique sur $l'^4\text{He}$ peut être aussi efficace, voire plus performant que le pompage optique sur $l'^3\text{He}$ (voir figure II-3).

Expérimentalement, nous nous plaçons dans les mêmes conditions que pour $l'^3\text{He}$ pur : le pompage optique sera réalisé à température ambiante, avec une décharge faible.

II -A.3) LE LASER

a) Contraintes

La structure hyperfine des niveaux 2^3S_1 et 2^3P de $l'^3\text{He}$, ainsi que la structure fine de ces mêmes niveaux pour $l'^4\text{He}$ sont représentées sur la figure II-4. Nous pouvons voir que dans le cas de $l'^3\text{He}$ pur (ou mélangé avec peu $d'^4\text{He}$), compte tenu des règles de sélection sur les nombres quantiques, le pompage optique sur $l'^3\text{He}$ peut être réalisé via 9 transitions possibles, appelées respectivement C_1, C_2, \dots, C_9 . Des études théoriques et expérimentales antérieures ont montré que l'aimantation maximum du gaz était obtenue avec les raies C_8 et C_9 [5] (C_8 se révèle plus efficace que C_9 quand la pression en ^3He est inférieure à environ 2 torr. Les rôles sont inversés au-dessus de cette valeur). Pour des mélanges contenant une majorité $d'^4\text{He}$ (pompage optique sur $l'^4\text{He}$) la raie D_0 est la plus efficace [20].

Il convient donc d'avoir à notre disposition une source laser dont la fréquence puisse s'accorder avec les raies C_8 (C_9) ou D_0 . Outre cette particularité, la puissance laser sur chacune des raies précédemment citées doit être de l'ordre de plusieurs Watt pour obtenir une aimantation élevée (figure II-5) : le nombre de photons absorbés par seconde augmente avec la puissance laser.

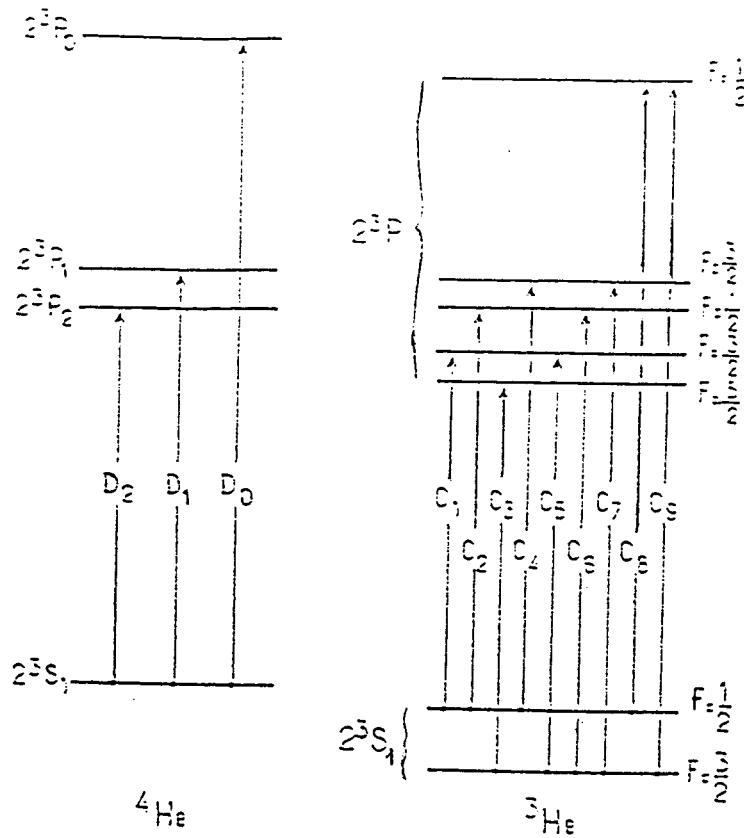


Figure II-4a : Niveaux 2^3S_1 et 2^3P de l'hélium.

Structure fine et transitions D_0, D_1, D_2 pour l' ^4He . Structure hyperfine et transitions C_1 à C_9 pour l' ^3He .

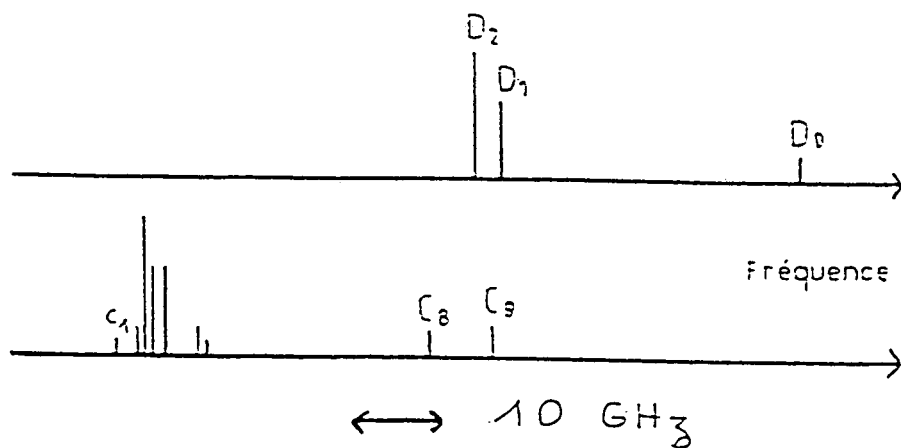


Figure II-4.b: Position relative des raies de l' ^4He et de l' ^3He .

Lors des premières expériences de pompage optique de l' ^3He , il n'existait aucun laser accordable à $1,08 \mu\text{m}$. Le faisceau de pompage était produit par de fortes lampes à décharge. Pour une puissance lumineuse de l'ordre de 1 mW , l'aimantation maximum était de 20% [30]. Au début des années 80, des progrès appréciables ont été accomplis grâce à la mise au point au laboratoire d'un laser à centres colorés [34]. La puissance disponible ($\sim 400 \text{ mW}$) a permis de polariser de l' ^3He à environ 70% . Malheureusement l'utilisation d'un tel laser présentait de nombreuses contraintes.

* La création de centres colorés met en jeu une technologie lourde (accélérateur de Van de Graff), qu'il fallait utiliser souvent car les centres colorés ont une durée de vie courte (quelques jours).

* Ce laser était pompé par un laser à colorant (HITC), lui même excité par un laser de puissance à Krypton ionisé.

La nécessité de diminuer à la fois la lourdeur et le coût des expériences de pompage optique a motivé la recherche d'un matériau d'emploi plus aisé. Désormais toutes les expériences de pompage optique effectuées au laboratoire sont réalisées grâce à un laser solide LNA (LNA = $\text{LaMgAl}_{11}\text{O}_{19}$ dopé au Neodyme) pompé par des lampes au Krypton. Nous le décrirons rapidement dans le paragraphe suivant, sachant que l'on peut en trouver toutes les caractéristiques dans la référence [20].

b) Dispositif optique

Un schéma simplifié du dispositif optique est représenté sur la figure II-6. Le barreau de LNA est fourni par la Société Union Carbide. Ses extrémités sont polies et traitées tel qu'il est décrit dans la référence [20]. Le barreau est inséré, ainsi que ses lampes excitatrices au Krypton, dans une tête laser commerciale (Yag 910 de Microcontrol). Une circulation d'eau refroidit l'ensemble du dispositif. Nous utilisons une cavité courte ($\sim 35 \text{ cm}$) entre miroirs plans, les extrémités du barreau présentant un rayon de courbure de 40 cm . La transmission du miroir de sortie est d'environ 1% .

Sans éléments sélectifs, le laser émet un faisceau de longueur d'onde voisine de $1,08 \mu\text{m}$, et de largeur spectrale 100 GHz . Il s'agit donc en premier lieu de réduire cette largeur à la largeur Doppler des niveaux ($\sim 1 \text{ GHz}$), puis de régler la fréquence à une valeur choisie (fréquence correspondant aux raies C_8 , C_9 ou D_0). Ceci est réalisé grâce à l'introduction de deux étalons de silice non traités (épaisseur 1 mm et $0,25 \text{ mm}$) dans

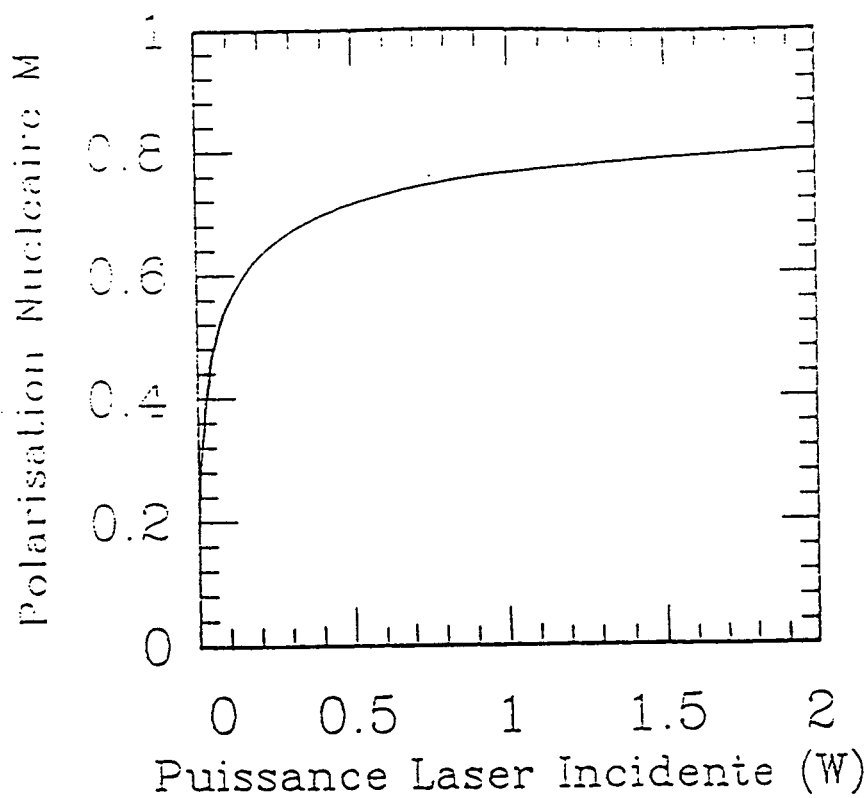


Figure II-5 : Calcul du taux de polarisation nucléaire de l' ^3He en fonction de la puissance laser (raie C_9 , pression : 0,8 torr) [5] [31].

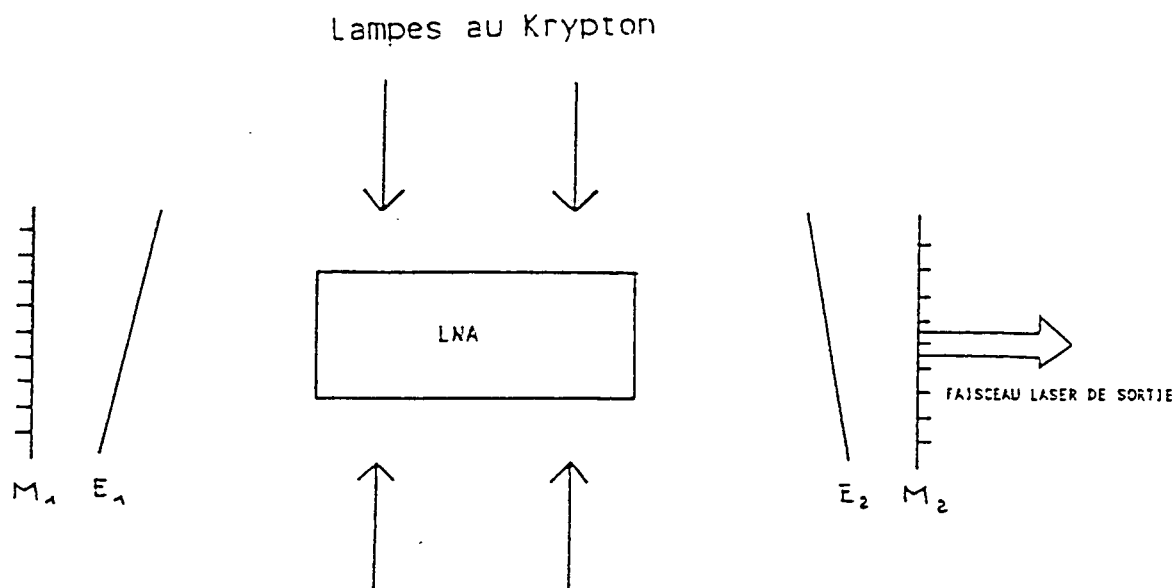


Figure II-6 : Schéma de principe du laser

M_1 , M_2 : miroirs plans

E_1 , E_2 : étalons solides.

la cavité optique. Une légère inclinaison permet aux étalons d'agir comme éléments sélectifs. L'accord en fréquence est réalisé par contrôle de la température de chaque étalon.

En conclusion, nous disposons d'une source laser capable d'émettre un faisceau dont la puissance est de plusieurs Watt sur une quelconque raie choisie pour le pompage optique. Sa largeur spectrale est de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler des niveaux de l'³He et de l'⁴He. Le taux de transition entre les états 2³S₁ et 2³P est par conséquent très important. Ce laser s'est révélé en outre d'un emploi facile et peu contraignant.

II -A.4) DETECTION OPTIQUE DE LA POLARISATION

a) ³He pur

La polarisation nucléaire dans le volume de pompage à 300 K est mesurée optiquement. On trouvera une description détaillée de cette méthode dans les références [5] [30]. Rappelons brièvement sur quel principe elle s'appuie : l'état 3¹D peuplé partiellement à partir du niveau fondamental (par la décharge HF), possède une orientation nucléaire si le gaz est polarisé. Par couplage hyperfin, il en résulte une orientation électronique proportionnelle à l'orientation nucléaire au moment de l'excitation. On détecte alors le taux de polarisation circulaire de la raie lumineuse correspondant à la transition 3¹D – 2¹D. On en déduit le taux de polarisation nucléaire M de l'état fondamental grâce à la formule suivante [35] :

$$M = a(P_3) \times \sqrt{2} \times \frac{\mathcal{P}}{I} \quad (\text{II} - 1)$$

M taux de polarisation nucléaire ($-1 \lesssim M \lesssim 1$)

\mathcal{P} signal de polarisation lumineuse mesuré par un photo-multiplicateur (en volt RMS)

I intensité de la décharge mesurée par un photo-multiplicateur (en volt)

$a(P_3)$ facteur dépendant de la pression d'³He.

$a(P_3)$ est connu pour toute pression comprise entre 0,15 torr et 6,15 torr. La précision relative de la détection optique de l'aimantation est de l'ordre de 3 % [36]. Le montage expérimental a déjà fait l'objet de plusieurs descriptions détaillées [5] [30]. Aussi nous ne le reproduirons pas ici.

b) Mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$

Dans le cas des mélanges, la formule II-1 doit être modifiée, car l'intensité I de la décharge dépend de la quantité d' ^3He et d' ^4He dans la cellule de pompage optique. En revanche, le signal de polarisation lumineuse n'est dû qu'aux seuls atomes d' ^3He . En première approximation :

$$M \simeq a(P) \times \sqrt{2} \times \frac{\mathcal{P}}{I} \times \frac{P}{P_3} \quad (\text{II} - 2)$$

$a(P)$ facteur dépendant de la pression totale

P pression totale dans la cellule de pompage

P_3 pression partielle en ^3He dans la cellule de pompage

Les autres termes sont définis de la même manière que pour la formule II-1.

La formule II-2 n'a pas été vérifiée expérimentalement pour toutes les combinaisons (P, P_3) . Les mesures déjà réalisées ont montré une précision relative de cette méthode de l'ordre de 10 %. Le point important est que pour un taux de polarisation donné, l'amplitude du signal de polarisation lumineuse \mathcal{P} décroît avec la pression partielle en ^3He . Cette technique de mesure du taux de polarisation devient donc d'autant moins précise que le mélange est plus dilué en ^3He (détérioration du rapport signal sur bruit).

II - B PREPARATION D' ^3He LIQUIDE POLARISE

II -B.1) LES CELLULES

Aimenter l' ^3He par pompage optique impose la transparence au faisceau laser de la cellule qui le contient. Le choix du matériau s'est porté sur le pyrex. Il présente un faible magnétisme, propriété importante quant à la relaxation nucléaire.

Nous avons rappelé dans le § II-A que pour plus d'efficacité, le pompage optique était effectué à 300 K. Une fois cette procédure terminée, il faudrait refroidir la cellule à la température désirée. Or ce schéma n'est pas réalisable : outre l'hélium, la cellule contient une certaine quantité d'hydrogène destiné à la fabrication d'un enduit cryogénique. Nous verrons dans le § II-C que son rôle consiste à limiter la relaxation nucléaire à basse température contre les parois de la cellule [34] [37] [38]. A 300 K, les atomes métastables sont détruits par collision avec l'hydrogène qui se présente sous forme gazeuse à cette

température. Nous pourrions envisager d'effectuer le pompage optique en l'absence d'hydrogène, puis de l'introduire dans la cellule une fois le gaz aimanté. Mais cette solution comporte de nombreux problèmes techniques. Finalement, nous avons adopté une technique dite des doubles cellules. Toutes les motivations concernant ce choix sont répertoriées dans la référence [6]. La figure II-7 représente les éléments importants de l'expérience. L' ^3He (ou le mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$), ainsi que l'hydrogène sont contenus dans une longue cellule en pyrex scellée. Elle débute hors du cryostat nécessaire à l'obtention de basses températures, traverse le volume contenant le bain d' ^4He cryogénique, pour se terminer dans la boîte à vide du réfrigérateur à dilution.

La cellule se compose de trois parties principales :

A) *La zone de pompage optique. $T=300\text{ K}$*

B) *Un "réservoir" de gaz polarisé. $T=4,2\text{ K}$*

(absent dans la cellule présentée dans le chapitre VIII)

C) *Le volume destiné à contenir l' ^3He liquide polarisé.*

Il est ancré thermiquement à la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution. Dans la suite de ce mémoire, on le désignera par "cellule expérimentale".

Remarque :

Nous pouvons adopter différentes géométries pour le volume C, dépendant du type d'expériences que l'on souhaite réaliser. Nous avons représenté un cylindre sur la figure II-8, mais cela peut être aussi une boule, ou deux cylindres connectés pour former un L. (Voir Chapitre VII).

II -B.2) PROCEDURE EXPERIMENTALE

Nous réalisons la procédure de préparation de l' ^3He polarisé en deux étapes.

* ^3He – pur

1ère étape : l' ^3He est sous forme gazeuse dans la totalité de la cellule, à une pression favorable à un bon pompage optique. Le laser de pompage éclaire la partie A à 300 K, et polarise le gaz contenu dans ce volume. L'aimantation se transfère alors de A vers la partie froide de la cellule (zone allant de B à C) par diffusion des atomes.

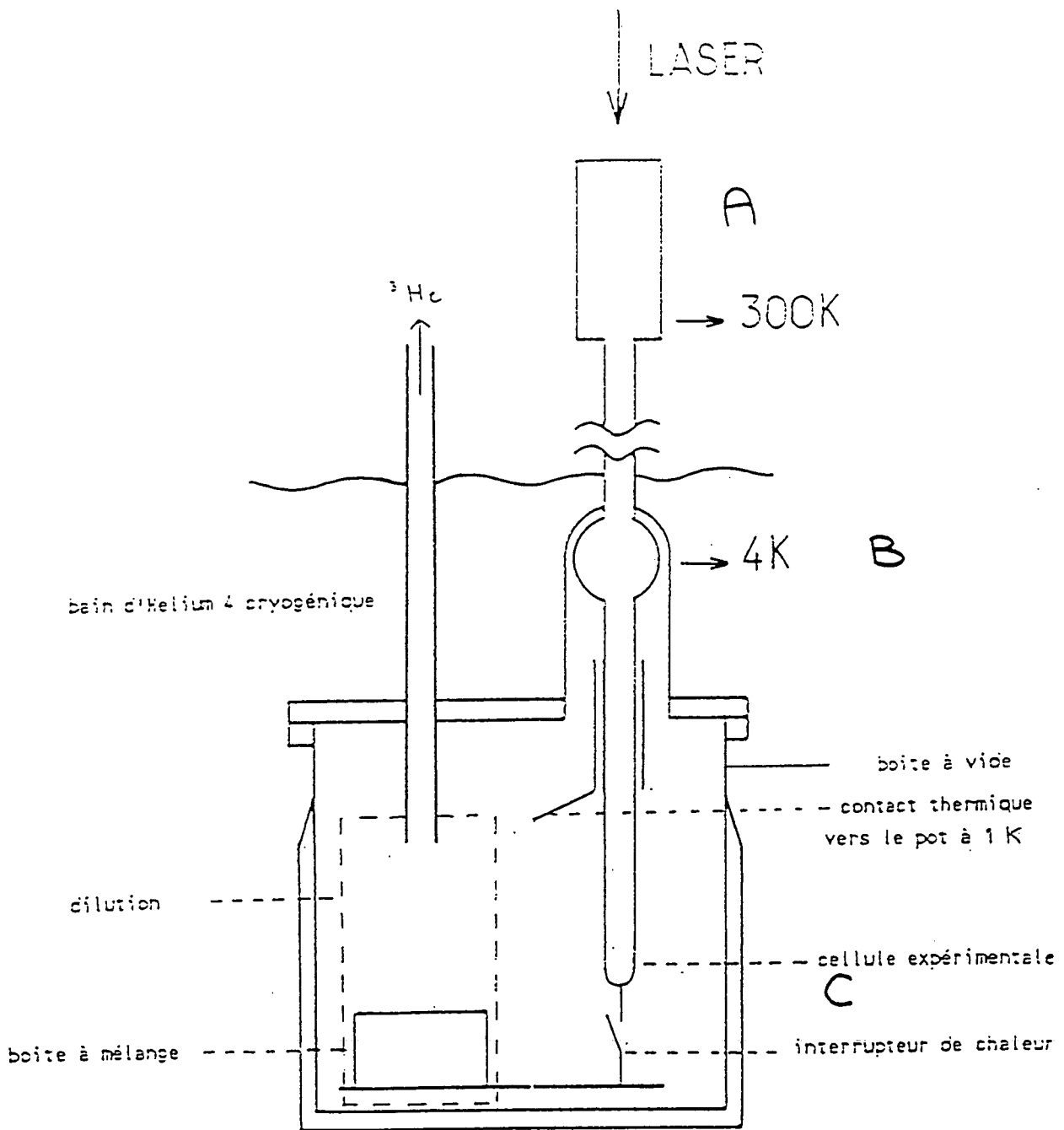


Figure II-7 : Schéma simplifié de l'ensemble expérimental.

longueur totale de la cellule : ~ 95 cm

longueur du tube reliant A à B (resp. B à C) : ~ 50 cm (resp. ~ 25 cm)

dimensions de A : hauteur 10,5 cm. diamètre 5 cm

dimensions de B : diamètre 3 cm

paroi du tube en pyrex : diamètres 6x3 mm.

2ème étape : Lorsque l'aimantation du gaz a atteint une valeur maximum, nous diminuons la température de la cellule expérimentale afin d'y condenser le gaz, puis de refroidir le liquide polarisé ainsi obtenu.

* Mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$

Dans le cas où la quantité d' ^4He est importante, le pompage optique s'effectuera alors qu'une partie de l' ^4He est condensée dans la cellule expérimentale. Dans cette configuration, il est évidemment plus intéressant d'avoir une faible dissolution de l' ^3He dans l' ^4He , afin d'avoir la majorité des atomes d' ^3He en phase gazeuse. Nous verrons dans la deuxième partie de ce mémoire quelle doit être la gamme de températures de la cellule expérimentale qui permet de respecter cette contrainte.

Selon les proportions relatives d' ^3He et d' ^4He en phase gazeuse, le pompage optique sera réalisé sur l'un ou l'autre de ces éléments. Le reste de la procédure est identique à celle utilisée dans le cas de l' ^3He pur.

P.J. Nacher et G. Tastevin ont démontré l'efficacité de cette technique de préparation d' ^3He liquide polarisé [6] [9]. Avec un cryostat à ^3He à la place du réfrigérateur à dilution, ils obtiennent du liquide pur à une température de 450 mK, aimanté à 50%.

Un certain nombre de précautions relatives aux phénomènes de relaxation nucléaire sont à respecter pour parvenir à un tel résultat. En effet, le taux de polarisation final du gaz avant condensation, qui représente en fait la limite supérieure au taux de polarisation initial du liquide, résulte d'un bilan entre trois processus.

- 1) *Le pompage optique, créateur d'aimantation.*
- 2) *La diffusion des atomes, qui tend à homogénéiser l'aimantation tout le long de la cellule.*
- 3) *La relaxation nucléaire, destructrice de l'aimantation.*

L'aimantation du gaz est d'autant plus élevée que la constante de temps τ_3 caractérisant l'effet de la relaxation nucléaire est supérieure aux temps caractéristiques des processus 1) et 2).

De nombreuses études (voir par exemple [5]) ont abouti à la mise au point de techniques visant à diminuer l'effet de la relaxation nucléaire (rallonger τ_3). Nous les passons en revue dans le paragraphe C.

II -B.3) CONTACTS THERMIQUES

a) Contact vers la dilution

Comme nous l'avons rappelé dans le paragraphe précédent, le pompage optique est réalisé sur de l' ^3He sous forme gazeuse dans toute la cellule. Ceci impose une température de la cellule expérimentale (et par conséquent de la boîte à mélange) suffisamment élevée pour ne pas liquéfier l' ^3He . En pratique, pour des cellules semblables à celle décrite dans la suite de cette première partie, la température de la cellule expérimentale ne devra pas descendre au dessous d'environ 550 mK (voir la justification pour une telle valeur dans le chapitre IV).

L'aimantation optimum du gaz étant atteinte, le refroidissement de C (voir figure II-7) doit être réalisé plus rapidement que le temps caractéristique de désaimantation nucléaire dans le gaz et dans le liquide. Nous savons que dans le cas de l' ^3He pur, le temps de relaxation nucléaire longitudinal T_1 est de l'ordre de 5 min pour du liquide à 500 mK [6] [9]. Or le temps prévu de mise en route du circuit de la dilution ne permet pas de respecter cette contrainte : le pompage optique et le refroidissement de la boîte à mélange (élément le plus froid du circuit de dilution) doivent être indépendants. L'utilisation d'un interrupteur de chaleur s'avèrera donc nécessaire.

La procédure de préparation de l' ^3He (pur) liquide polarisé s'opérera donc comme suit : le contact thermique entre la boîte à mélange et la cellule expérimentale est ouvert. Nous pouvons mettre en route le circuit de dilution, sans refroidir la cellule expérimentale. Simultanément, le gaz est pompé optiquement. Une fois l'aimantation maximum obtenue, nous établissons brusquement le contact thermique pour refroidir le gaz, le condenser, puis diminuer la température du liquide obtenu. Tout ceci doit si possible se dérouler sur un temps caractéristique inférieure à 1 min. Nous présentons dans le chapitre IV l'interrupteur thermique conçu dans cette optique.

Dans le cas des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$, nous nous attendons à des temps de relaxation nucléaire longitudinaux beaucoup plus longs. En effet, pour les solutions que nous nous proposons d'étudier, la densité d' ^3He sera de 10 à 100 fois plus faible que dans l' ^3He pur. Or l'origine de la relaxation nucléaire en phase liquide est due aux interactions dipole-dipole entre atomes d' ^3He . L'effet de ces interactions doit donc être beaucoup plus faible dans les solutions que dans l' ^3He pur. Nous verrons dans la seconde partie

de ce mémoire que c'est effectivement le cas, et que par conséquent nous pourrions nous dispenser de l'emploi d'un interrupteur de chaleur.

b) Contact vers le pot à 1 K

Le pot à 1 K (température égale à 1,5 K), qui est un élément du réfrigérateur à dilution, sera décrit au cours du chapitre III. Le rôle de la thermalisation vers le pot à 1 K est d'absorber une partie de la chaleur amenée par le pyrex vers la cellule expérimentale. Elle favorise donc une faible température finale de l'échantillon liquide polarisé. Connaissant la géométrie de la cellule ainsi que la conductivité thermique du pyrex [27], nous pouvons évaluer les pertes thermiques sur le liquide froid : $10 \mu\text{W}$ correspond à une configuration sans ancrage thermique vers le pot à 1 K. Lorsque cette disposition est adoptée, les pertes tombent à $1 \mu\text{W}$. Il s'agit évidemment d'une borne inférieure puisque nous n'avons pas tenu compte des pertes de nature différente, qui peuvent être difficiles à estimer. Citons par exemple les pertes par rayonnement dans la cellule, dont une portion est à température ambiante.

Le contact thermique est réalisé de la façon suivante :

Deux fils cuivre (diamètre 1 mm) issus du pot, sont brasés sur deux demi cylindres en cuivre plaqués tout contre la cellule. Un enduit de graisse à vide entre les 1/2 tubes et le pyrex améliore la surface d'échange thermique.

Remarque

Il est essentiel que les fils soient suffisamment souples afin d'éviter les contraintes mécaniques dues aux changements de température, et qui risqueraient de casser la cellule.

C'est dans un but bien précis que nous avons choisi de nous connecter au pot à 1 K et non pas à d'autres éléments plus froids de la dilution tels l'évaporateur ou l'échangeur de chaleur. Il est vrai qu'un ancrage à plus basse température diminue d'autant la température minimum du liquide. De plus, cette connection thermique impose la température de la cellule expérimentale lors du pompage optique, puisqu'elle n'est pas reliée à la boîte à mélange lors de cette opération. Plus cette température est basse, plus rapide sera le temps de refroidissement du gaz lors du rétablissement du contact thermique vers la dilution. Mais c'est sans compter sur le fait que le temps de relaxation nucléaire longitudinal diminue avec la température (voir paragraphe C).

Il faut par conséquent trouver un compromis entre un gaz polarisé suffisamment froid pour être condensé rapidement, mais assez chaud pour un taux de relaxation nucléaire faible pendant la durée de construction de l'aimantation. Les résultats des expériences de G. Tastevin mentionnées dans le § II-B.2 ont été obtenus dans le cas où le gaz polarisé était préparé pour une température de la cellule expérimentale de l'ordre de 1,5 K. Le succès de ces expériences nous a incité à l'adapter à notre propre cas.

II -B.4) REMPLISSAGE DES CELLULES

Dans la partie consacrée au pompage optique, nous avons vu que les impuretés dans la cellule devaient être en partie condensées dans les zones les plus froides. Ce fait est favorable du point de vue du pompage optique du gaz dans la partie A (voir figure II-7), mais peut se révéler néfaste vis à vis de la relaxation nucléaire sur les parois froides des volumes B et C.

En outre, il est nécessaire que la surface interne de la cellule soit initialement aussi propre que possible : en effet, les impuretés de type magnétique contenues dans le pyrex peuvent conduire à la perte de l'orientation d'un atome lorsque celui-ci rencontre une paroi.

Dans le but de répondre à ces deux exigences, J. Brossel nettoye nos cellules selon une technique décrite dans les références [32] et [37]. Elle consiste premièrement à étuver sous vide poussé la cellule pendant plusieurs jours à 400°C. Revenue à la température ambiante, la cellule est remplie d'hélium, soumise à une décharge HF intense, puis vidée. Cette dernière procédure est répétée plusieurs fois. Cette opération de nettoyage terminée, nous introduisons l'hélium et l'hydrogène à température ambiante, puis la cellule est scellée une fois pour toute.

Quantité d'hélium à introduire (cas de l'³He pur) :

Une estimation du profil de température le long de la cellule lors de l'étape de pompage optique permet de calculer la quantité d'³He à introduire afin de se placer dans des conditions optimum de pompage : une pression de 0,3 torr (pour une température de la cellule expérimentale de 1,5 K) est obtenue pour $2,7 \times 10^{-5}$ moles d'³He, ce qui correspond à une pression de remplissage à température ambiante de l'ordre de 2 torr. Le volume de l'échantillon liquide sera alors d'environ 1 mm³.

Quantité d'hydrogène à introduire :

Nous verrons dans le paragraphe suivant que l'hydrogène solide doit recouvrir toutes les zones froides de la cellule ($T < 5$ K). Une pression d'hydrogène de 0,6 torr à température ambiante assure un enduit d'une épaisseur de l'ordre d'une dizaine de couches atomiques [5] [7] [32].

Nous verrons dans la seconde partie de ce mémoire le cas spécifique des mélanges.

II - C REDUCTION DE LA RELAXATION NUCLEAIRE

En l'absence de tout autre processus de relaxation nucléaire, l'interaction magnétique entre spins ne constituera pas un facteur limitatif à l'obtention de fortes polarisation du gaz, et par conséquent du liquide. En effet, les temps caractéristiques associés à ce processus sont extrêmement longs dans un milieu peu dense [39] [40]. Mais la présence inévitable des parois du volume contenant l' ^3He , ainsi que des gradients de champ magnétique, favorisent la destruction de l'aimantation, tant dans le gaz que dans le liquide. Pour pallier ce problème, plusieurs techniques dépendant de la nature du processus dépolarisant à éliminer sont adoptées.

II -C.1) RELAXATION SUR LES PAROIS DE LA CELLULE

Les forces de Van der Waals entre les parois de la cellule et les atomes d'hélium qu'elle contient impliquent la création d'un puits de potentiel au voisinage des parois. Aussi existe-t-il en permanence un certain nombre d'atomes qui s'y trouvent adsorbés. Les parois agissent par interaction magnétique sur le spin nucléaire des atomes d' ^3He adsorbés : en effet, malgré les précautions prises lors du nettoyage des cellules, il existe toujours au sein du pyrex, soit des impuretés paramagnétiques microscopiques, soit des domaines d'impuretés magnétiques qui créent des inhomogénéités locales de champ. En conséquence, au cours de leur adsorption, les spins nucléaires de l' ^3He peuvent être désorientés lors de leurs mouvements dans ces champs magnétiques spatialement fluctuants. Etant donné qu'il existe un échange perpétuel entre les atomes en phase adsorbée et les atomes en volume, il en résulte une dépolarisation de l'ensemble de l'échantillon.

Ce mécanisme de relaxation conduit généralement à des dépendances rapides du temps de relaxation longitudinal T_1 en fonction de la température. En effet, T_1 dépend de la fraction d'atomes adsorbés, ou autrement dit du temps moyen de séjour τ_S d'un atome dans cette phase. Dans de nombreux cas, τ_S varie de façon exponentielle avec

la température. Dans l'exemple particulier du verre, R. Barbé a montré que T_1 était supérieur à 1 heure pour $T=77$ K, ne valait plus que 10 s à 30 K, et tombait à 1 s à 25 K [41].

Dans le cadre de nos expériences, ces valeurs sont à comparer au temps caractéristique de diffusion de l'aimantation entre la partie A et les volumes B et C. P.J. Nacher a calculé une valeur typique de 15 min pour une cellule de géométrie semblable à la nôtre [5]. Dans ces conditions, il est évident que nous ne pouvons pas aimanter l' ^3He gazeux. Aussi une procédure visant à augmenter T_1 jusqu'à des valeurs satisfaisantes a été mise au point au laboratoire [5] [30] [37].

a) Précaution pour la partie supérieure de la cellule

Nous avons vu que T_1 était supérieur à 1 heure pour des températures plus élevées que 77 K. La solution consiste alors à augmenter autant que possible la surface "chaude" ($T > 77$ K) de la cellule à l'intérieur du cryostat. Dans ce but, le cylindre reliant la cellule de pompage à la boule à 4,2 K est entouré d'un tube en cuivre dont la température est proche de celle de la partie supérieure du cryostat (300 K). Ce tube est recouvert d'une mousse qui l'isole thermiquement du gaz froid en équilibre au dessus du bain d' ^4He . Les atomes diffusent alors entre A et B dans un tuyau dont la température est toujours supérieure à environ 100 K. T_1 est par conséquent largement supérieur à 1 heure dans cette portion de la cellule.

b) Solution pour la partie inférieure de la cellule

Une solution classique [41] consiste à diminuer le potentiel d'attraction de la paroi, et par conséquent à désavantager la fraction d'atomes condensés par rapport aux atomes en phase gazeuse. Ceci est réalisé grâce à l'utilisation d'"enduits cryogéniques". En premier lieu, ils sont choisis parmi des corps de faible polarisabilité électrique, exerçant donc de faibles attractions de Van der Waals. Aussi, les gaz rares solides sont-ils de bons candidats. En second lieu, ces enduits doivent être peu magnétiques en eux mêmes, pour ne pas perturber le champ local.

Outre la diminution du temps moyen de séjour d'un atome en phase adsorbée, l'enduit éloigne les atomes des impuretés du pyrex (ils y sont donc moins sensibles). Dans toutes nos expériences, le corps utilisé pour fabriquer l'enduit est de l'hydrogène moléculaire. Celui-ci doit recouvrir toute la surface froide de la cellule, c'est-à-dire

la zone limitée par l'extrémité inférieure du tube de cuivre décrit dans le paragraphe précédent. Dans une telle configuration, P.J. Nacher a mesuré le temps de relaxation T_1 dans la cellule expérimentale en fonction de sa température. Les résultats sont comparables à ceux obtenus en cellules scellées à température uniforme (voir figure II-8). Notons toutefois que l'existence en pratique inévitable d'une région à température intermédiaire (entre 5 K et 100 K), peut limiter à la fois le temps T_1 et la fraction de la polarisation transmise dans les zones de plus basse température [42].

Procédure de fabrication de l'enduit :

Nous avons observé que les temps de relaxation nucléaire T_1 pouvaient dépendre fortement des conditions expérimentales dans lesquelles était fabriqué l'enduit. Cette étape se déroule pendant le remplissage du vase d' ^4He cryogénique. Si lors de la condensation de l'hydrogène, la température n'était pas uniforme le long de toutes les zones destinées à être recouvertes par l'enduit, alors les T_1 mesurés étaient relativement courts. En effet l'hydrogène se condense aux points les plus froids. S'il existe un gradient de température, alors l'enduit comportera un certain nombre de "trous" correspondants aux parties les plus chaudes, où le gaz d' ^3He sera mis en contact direct avec le verre nu, qui est extrêmement relaxant. De par la faible mobilité de l'hydrogène solide, cette inhomogénéité de l'enduit ne pourra pas être réparée au cours du temps. Pour favoriser l'uniformité de la température de la cellule jusqu'à la condensation complète de l'hydrogène ($T \sim 5$ K), la boîte à vide est remplie d' ^4He sous une pression de 1 bar. Les échanges de chaleur entre les différentes parties de la cellule s'effectuent alors par conduction thermique dans le gaz. Ce processus est beaucoup plus efficace que la simple conduction dans le pyrex.

Outre le taux initial de polarisation du liquide, la qualité de l'enduit influence évidemment la valeur du temps de relaxation nucléaire de l'aimantation du liquide. Si l'on s'intéresse à ses propriétés intrinsèques (dépolariation due à l'interaction dipole-dipole), il est essentiel que le processus dominant ne soit pas la relaxation sur les parois.

II -C.2) RELAXATION EN VOLUME

Les atomes d' ^3He en phase gazeuse évoluent dans un champ magnétique ambiant non uniforme. Les gradients de champ induisent de la relaxation nucléaire, processus

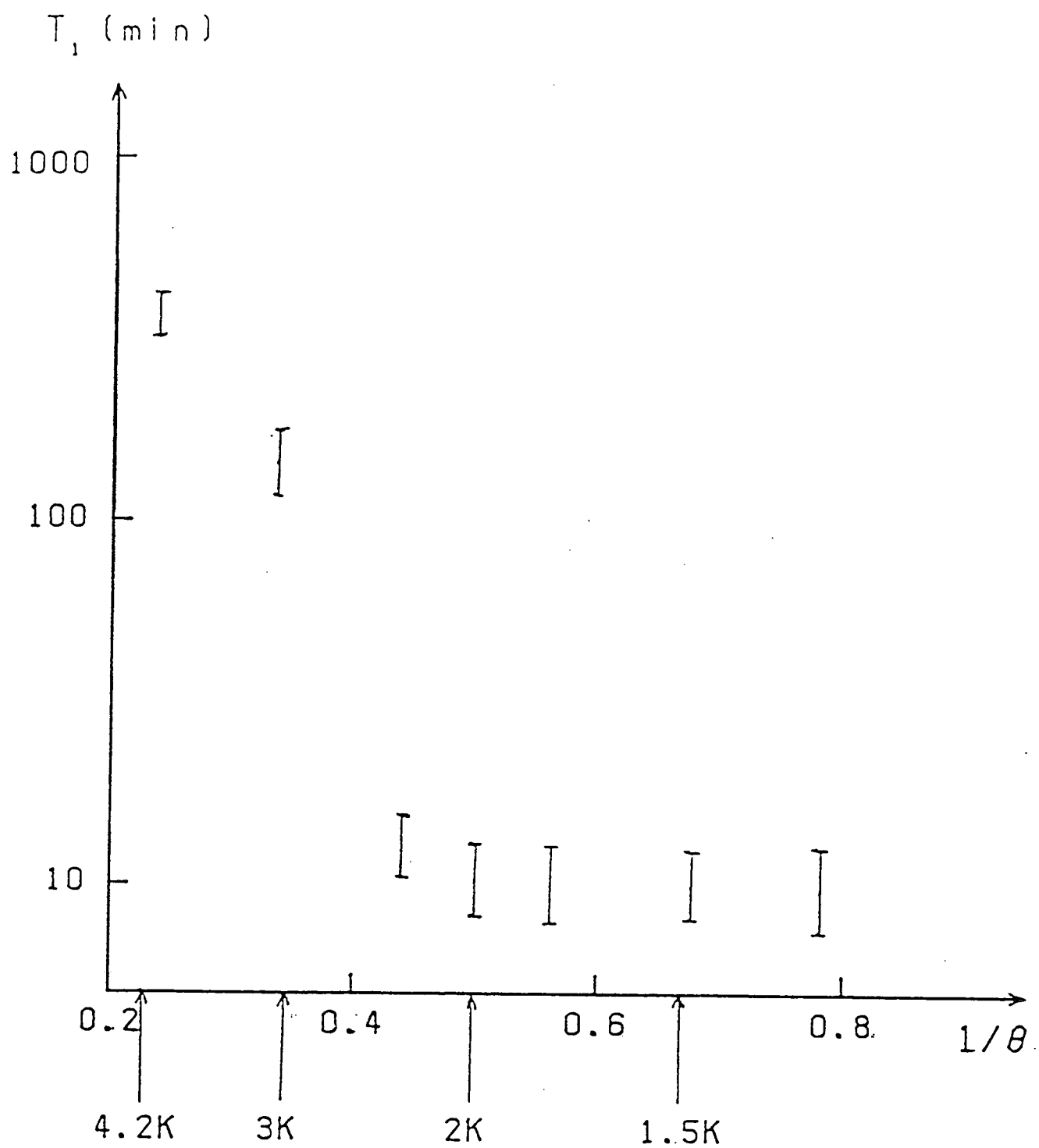


Figure II-8 : Variation du temps de relaxation nucléaire T_1 avec la température θ de la cellule expérimentale.

Les résultats présentés ici correspondent à ceux obtenus avec une cellule semblable à la nôtre, mais sans boule à 4,2 K [5].

qui s'effectue sur un temps caractéristique T_{1m} donné par la formule suivante, valable dans la limite dite du "rétrécissement par le mouvement" [43].

$$T_{1m} = \frac{1 + [\gamma B_0 \tau_d]^2}{\gamma^2 (\delta B_0)^2 \tau_d}$$

avec :

τ_d : temps de diffusion d'un atome dans un volume donné

B_0 : champ moyen et δB_0 sa variation sur le volume

γ : rapport gyromagnétique

Considérons par exemple le volume à 300 K de la cellule. Compte tenu des conditions expérimentales qui y règnent, le temps de diffusion d'un atome est de l'ordre d'1 ms. Le gradient du champ ambiant a été estimé à environ 10^{-3} Gauss/cm.

En champ nul, T_{1m} ne dépasse pas quelques secondes, alors qu'il atteint plusieurs heures si l'inhomogénéité relative $\delta B_0/B_0$ est de l'ordre de 10^{-4} .

Par conséquent, la cellule est plongée dans un champ magnétique B_0 aussi uniforme que possible. Sa valeur moyenne a été fixée à 3 Gauss, étant donné que cela ne nécessite pas une technologie lourde quant aux bobines inductrices (pas de circuit de refroidissement). On trouvera une description du dispositif expérimental dans le chapitre VII.

CONCLUSION

Pour clore ce chapitre, rappelons que la technique de préparation d' ^3He liquide polarisé s'inspire largement de celle employée par G. Tastevin et P.J. Nacher, et qui a permis d'observer de forts taux de polarisation. Il existe néanmoins deux différences fondamentales, qui conditionnent le succès de nos propres expériences. Premièrement, une partie de la cellule est située dans la boîte à vide nécessaire au fonctionnement du réfrigérateur à dilution. Cette caractéristique a deux conséquences :

* il est difficile de fabriquer un enduit homogène sur toutes les parties froides de la cellule, car les échanges thermiques ne sont pas très performants. En d'autres termes, l'uniformité de la température de la partie inférieure de la cellule n'est pas toujours réussie. Il s'agit donc d'un problème déterminant pour l'obtention de fortes polarisations.

* le contact thermique entre la cellule expérimentale et la dilution n'est pas direct (pour le cryostat à ^3He , la cellule trempe dans le liquide cryogénique). Un certain nombre de problèmes dus aux résistances thermiques de contact entre matériaux surgissent, aggravés par le fait que nous travaillons à plus basse température. La résistance thermique du pyrex lui même pose une sérieuse limitation à la température minimum du liquide obtenu.

La deuxième différence fondamentale avec les expériences effectuées dans un cryostat à ^3He réside dans l'obligation d'utiliser un interrupteur de chaleur pour étudier l' ^3He pur. Il doit obéir à trois contraintes :

- * amagnétisme
- * mauvaise conductivité thermique en position ouverte
- * très bonne conductivité thermique en position fermée

Nous verrons au cours des prochains chapitres que la majorité des problèmes énoncés ont été résolus, ou sont sur le point de l'être.

CHAPITRE III

CRYOGENIE

III -A ENVIRONNEMENT DU REFRIGERATEUR A DILUTION

III -A.1) INFLUENCE DES CONTRAINTES EXPERIMENTALES SUR LA CONCEPTION DU CRYOSTAT

a) Introduction

La contrainte majeure à respecter dans la conception de l'ensemble expérimental est qu'il soit aussi peu magnétique que possible pour ne pas déformer la carte du champ B_0 régnant sur la cellule. Nous avons par conséquent mis un soin particulier à choisir les matériaux : ils doivent présenter des propriétés de conductivité thermique adéquates pour atteindre des faibles températures, tout en étant aussi amagnétiques que possible.

Le succès des expériences de préparation d' ^3He liquide polarisé réalisées à l'aide d'un réfrigérateur à ^3He [6] [9] a montré qu'il était possible de construire un cryostat performant tout en respectant les contraintes d'amagnétisme requises. L'étape suivante, qui représente une grande partie du travail de cette thèse, a donc consisté à construire dans le même esprit que le cryostat à ^3He , un ensemble expérimental comprenant un réfrigérateur à dilution. Celui-ci a entièrement été réalisé au laboratoire, car les cryostats commerciaux font un large usage de matériaux magnétiques. De plus, ceux-ci ne sont pas forcément adaptés à la géométrie particulière de nos cellules, ni à diverses contraintes telles la constante de temps de refroidissement, la puissance frigorifique... .

b) Précautions à respecter

Dans la mesure du possible, nous n'avons utilisé que des matériaux peu magnétiques. Aussi notre cryostat est essentiellement composé de cuivre, laiton, verre, dural, inox mince (l'inox mince est beaucoup moins magnétique que l'inox massif), cupro-nickel, plastiques... L'ensemble de la visserie est en laiton. Lorsque l'utilisation de matériaux magnétiques ne peut être évitée, nous tachons de réduire leurs dimensions autant que possible, et nous les éloignons de la cellule au maximum. En effet, le gradient de champ qu'un tel matériau induit sur la cellule vérifie la relation

$$\frac{\text{grad } B}{B_0} \propto \chi \frac{a^3}{d^4}$$

où

a est la taille caractéristique du matériau

χ sa susceptibilité magnétique
d sa distance à la cellule
 B_0 le champ magnétique statique

Par exemple, nous n'avons pu éviter d'effectuer un certain nombre de soudures. Celles-ci utilisent un alliage d'étain-plomb supraconducteur pour $T < 4$ K. Aussi avons-nous porté un soin particulier à leur réalisation, en essayant d'utiliser une quantité minimum de soudure. La construction d'un réfrigérateur à dilution implique la réalisation de brasures afin d'associer des éléments métalliques qui ne peuvent être soudés entre eux. Les brasures cuivre-cuivre et cuivre-inox ont été effectuées grâce à des alliages de marque Castolin (respectivement 1802 et 1020 F) à base d'argent, donc peu magnétiques.

Il était aussi essentiel d'éviter des boucles de courant génératrices de champ magnétique. C'est pourquoi tous les fils de connection nécessaires aux mesures physiques (thermomètres, résonance magnétique nucléaire) sont torsadés. Quant aux matériaux supraconducteurs, une précaution de base consiste à appliquer le champ B_0 avant d'atteindre leur température de transition supraconductrice (un supraconducteur refroidi en champ nul se comporte comme un matériau diamagnétique parfait).

III -A.2) LA PARTIE ^4He - AZOTE

a) Les vases cryogéniques

L'ensemble du montage expérimental est représenté sur la figure III-1. Il est immergé dans un bain d' ^4He cryogénique nécessaire à l'obtention de basses températures. ^4He est contenu dans un vase en verre solidaire d'un bâti fixe. Le cryostat peut être aisément retiré du vase à hélium lors des changements de cellule (l'ensemble du montage de par sa petite taille, est relativement léger).

Le vase à ^4He possède une double paroi. Le volume compris entre ces parois peut être à volonté rempli d'air ou sous vide selon le stade de l'expérience : son refroidissement de la température ambiante vers la température de liquéfaction de l'azote (77 K), ou inversement son réchauffement dans cette même gamme sont accélérés par la présence d'air qui assure une relativement bonne conductivité thermique entre les deux parois.

Pour limiter les pertes thermiques par rayonnement, et par conséquent diminuer la consommation horaire d' ^4He , le vase à hélium est lui même plongé dans un vase à

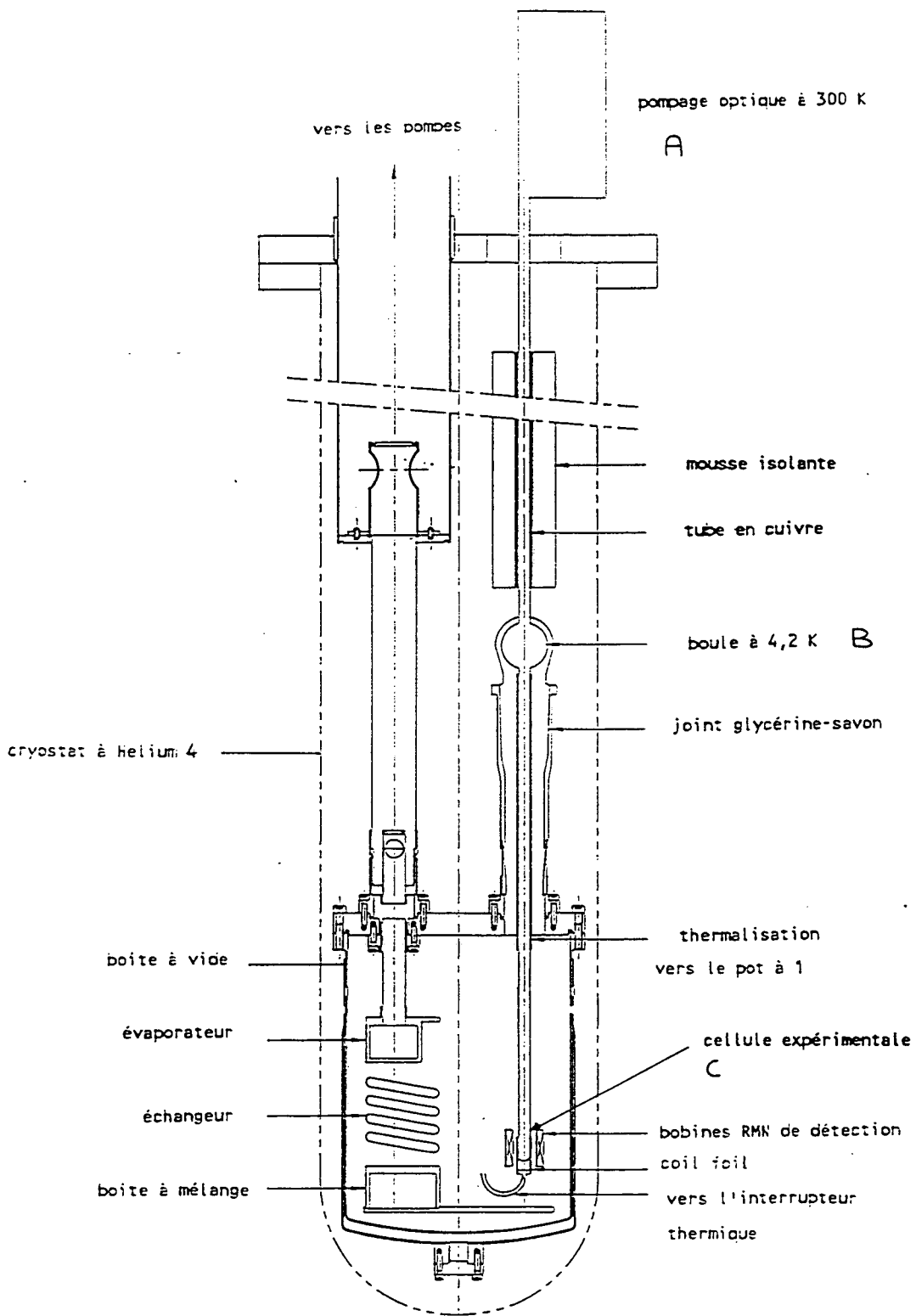


Figure III-1 : Vue d'ensemble du montage expérimental.

azote, également en verre. Ce vase est alimenté automatiquement par un bidon de 120 l, le transfert par suppression sur le bidon étant commandé par des pressiosstats plongeant dans le réservoir d'azote du cryostat.

L'inconvénient majeur de cet ensemble de vases réside dans leur fragilité. De fait, nous les avons brisés à plusieurs reprises. En revanche, nous sommes assurés de leur amagnétisme.

b) Importance du niveau d' ^4He cryogénique

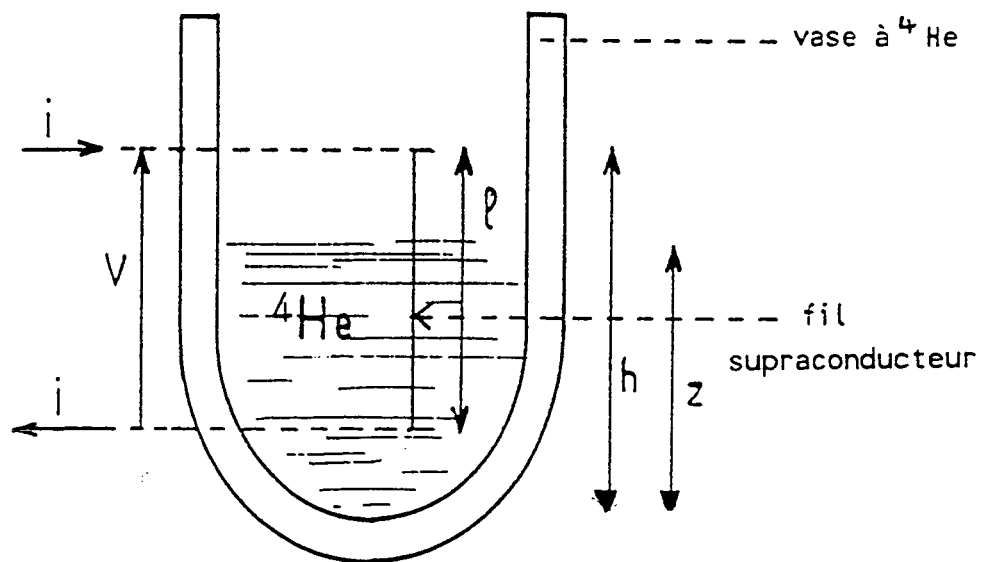
Il est crucial de connaître le niveau de remplissage du vase à ^4He . En effet, si l' ^4He ne monte pas à une hauteur suffisante, la température de la boule de stockage de l'aimantation risque d'être supérieure à 5 K. Si tel est le cas, il y aura évaporation de l'enduit d'hydrogène solide. Par conséquent, le dispositif expérimental devra être réchauffé avant de procéder à la fabrication d'un nouvel enduit. Une précaution sommaire consiste à entourer la boule à 4,2 K d'un écran thermique en cuivre, afin de rendre sa température moins sensible aux variations de niveau du liquide. Le niveau d' ^4He est également important pour le fonctionnement du réfrigérateur à dilution : en effet, le pot à 1 K est rempli grâce à un tube plongeant dans le liquide cryogénique. Il est évident qu'un niveau trop bas ne permette pas au pot de jouer son rôle dans le circuit de dilution.

La mesure du niveau d' ^4He est réalisée très simplement. Un fil supraconducteur en nobium-titane, ancré sur un support en fibre de verre (circuit imprimé), est disposé dans le vase à ^4He à une hauteur donnée. A 4,2 K, le nobium-titane est supraconducteur. Aussi, la portion de fil immergé dans l' ^4He ne présentera aucune résistance électrique. La mesure de la résistance totale du fil, qui varie par conséquent avec le niveau d' ^4He , permet de le déterminer (Figure III-2).

III -A.3) LA BOITE A VIDE

Sa partie inférieure consiste en une double paroi d'inox mince, brasée sur un large anneau en cuivre (voir figure III-1). Un joint d'indium inséré entre la partie supérieure de cet anneau et un couvercle également en cuivre assure l'étanchéité entre l'intérieur de la boîte à vide et l' ^4He cryogénique environnant.

Le passage de la cellule en verre dans la boîte à vide métallique requiert inévitablement un raccord verre-métal (figure III-3). Le rodage de la cellule s'emboîte



$$V = (h-z) \cdot i \cdot R / l$$

R résistance totale du fil supra-conducteur
 l longueur du fil supra-conducteur
 en pratique $i = 100 \text{ mA}$
 mesure de $V \rightarrow z$ niveau de ^4He

Figure III-2 : Principe de la mesure du niveau de ^4He cryogénique.

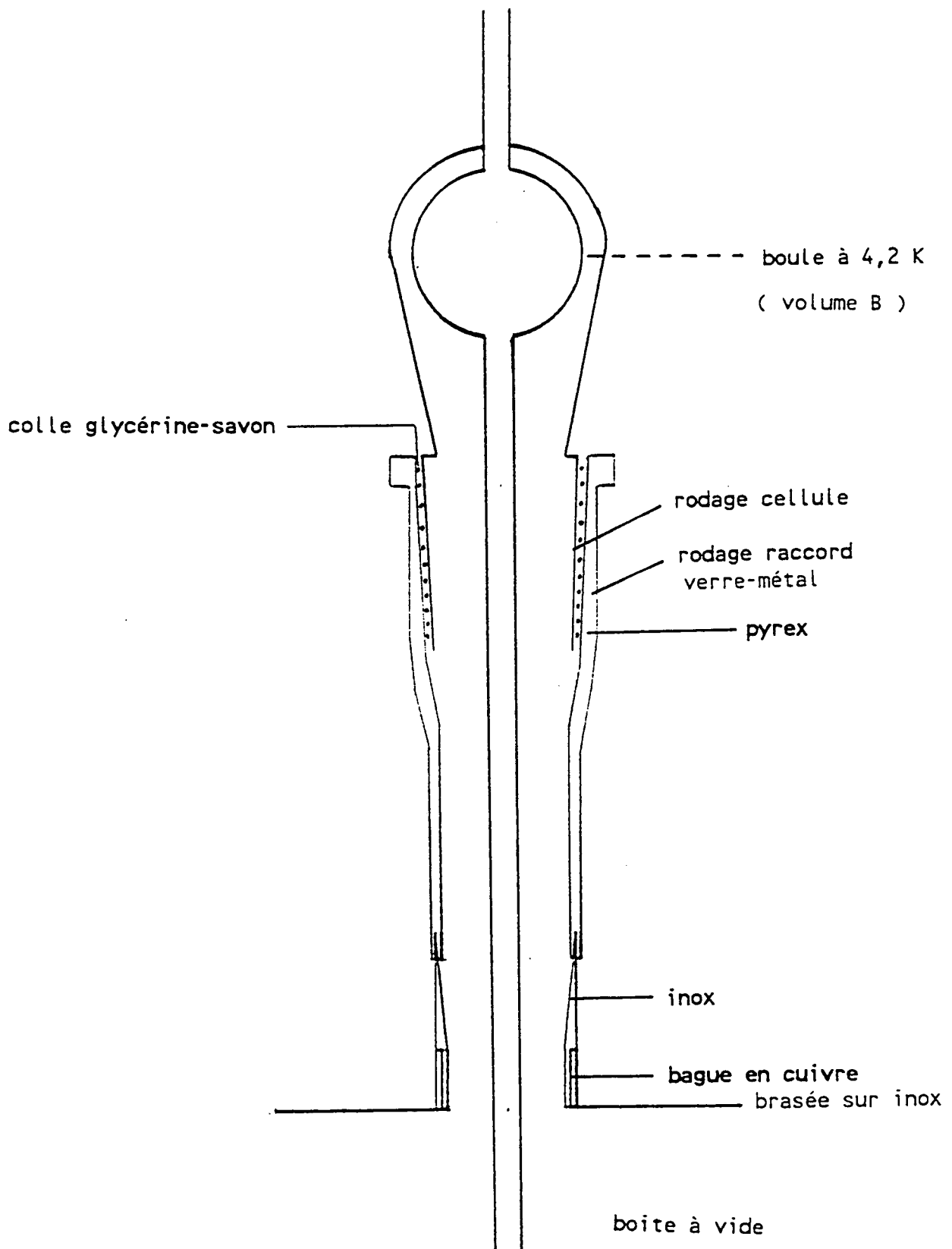


Figure III-3 : Détail du passage de la cellule entre le bain d' ^4He et la boîte à vide.

dans la partie en verre du raccord. L'étanchéité est réalisée grâce à un collage glycérine-savon [44]. L'avantage de cette technique est qu'il est facile de procéder au changement d'une cellule. Il suffit pour cela de chauffer légèrement la colle afin de la fondre.

Il n'était pas du tout évident a priori que la présence au voisinage de la cellule de matériaux tels l'inox mince ou le métal du raccord n'induisse pas de relaxation nucléaire. Nous avons pu vérifier (voir chapitre V) que ces divers éléments ne nuisaient pas à l'uniformité du champ B_0 sur la cellule.

III -A.4) MESURES DES TEMPERATURES

a) Etalonnage des résistances

Les températures des différentes parties de l'expérience sont déterminées grâce à des résistances en carbone. Selon leurs caractéristiques, le maximum de sensibilité appartient à des gammes de températures différentes. Nous présentons dans le tableau ci-dessous les différents types de résistances utilisées.

Températures	Marque	Valeur nominale à 300 K
$1 \lesssim T \lesssim 10 \text{ K}$	Allen – Bradley	100 Ω
$0,5 \lesssim T \lesssim 5 \text{ K}$	Allen – Bradley	22 Ω
$0,1 \lesssim T \lesssim 1 \text{ K}$	Matsushita	100 Ω

L'utilisation de résistances en carbone est commode à plusieurs titres

- moindre coût
- haute sensibilité
- réponse rapide
- facilité d'emploi

En outre, au bout de plusieurs cycles thermiques entre 300 K et 77 K, leur reproductibilité est satisfaisante : $\Delta T/T$ est inférieur à 1% [27]. Il n'existe pas de relation physique fondamentale simple entre R (résistance) et T (température). Cependant, on décrit très bien le comportement de R en fonction de T grâce à une relation empirique :

$$\log R = a_0 + a_1 \log T + a_2 (\log T)^2 \quad (\text{III} - 1)$$

Nous avons étalonné toutes nos résistances Allen Bradley contre la température donnée par la mesure de la pression de vapeur saturante de l'⁴He (échelle ETP 76 [45]). La faible isolation thermique du cryostat annexe utilisé ne nous a permis d'explorer que la gamme de température 1,3 K ↔ 1,9 K. Pour chaque résistance, une méthode classique d'approximation numérique nous donne accès aux coefficients a_0 , a_1 et a_2 de la relation III-1. Pour les températures inférieures à 1,3 K et supérieures à 1,9 K, la formule III-1 est extrapolée dans les limites de sensibilité de chaque type de résistances.

Pour les résistances Matsushita, l'étalonnage a été effectué contre la pression de vapeur saturante de l'³He. La température accessible variait entre 0,45 K et 2 K. le reste de la procédure est en tout point semblable à celle utilisée pour l'étalonnage des résistances Allen Bradley.

b) Précautions à prendre lors des mesures

* Les températures des endroits les plus froids de la cellule et du circuit de dilution ($T \lesssim 2$ K) sont déterminées grâce à un pont de résistance de type AVS45 (R.V. Elekroniikka). Plus la température à mesurer est basse, plus il convient de choisir une faible tension excitatrice : en effet, la résistance et le matériau dont la température est à déterminer doivent être en meilleur contact thermique possible. Il faut par conséquent que la puissance thermique dissipée par la résistance soit inférieure au taux de transfert de chaleur entre la résistance et le milieu. Ce taux de transfert est limité par la résistance thermique de contact entre les deux matériaux. Elle augmente d'autant plus que la température est faible [27]. Une trop forte tension excitatrice à basse température aurait donc pour conséquence de réchauffer la résistance de mesure, et donc de fausser la détermination de la température. Le pont de résistance nous permet de choisir plusieurs gammes comprises entre 10 μ V et 3 mV.

* Les résistances peuvent se réchauffer à cause des divers champs de Radiofréquence régnant autour de l'expérience. Nous avons donc porté une attention particulière à l'écrantage des fils de connections électriques des résistances. En outre, la fréquence de travail du pont de mesure étant de 25 Hz, une capacité de 1 nF est placée à 300 K, en parallèle avec chacune des résistances destinées aux mesures des températures les plus basses (Matsushita 100 Ω et Allen Bradley 22 Ω). Nous réalisons ainsi un filtre passe-bas qui élimine une grande partie des champs RF parasites.

La température de la cellule n'est pas mesurable de façon directe : il serait en

effet désastreux d'introduire au sein de $l'^3\text{He}$ un matériau provoquant la relaxation de l'aimantation. Tous les thermomètres sont ainsi situés hors de la cellule. Nous ne pouvons donc connaître que la température des différentes parties du pyrex, et non de l'échantillon proprement dit. Ceci justifie que l'on puisse sans inconvénient se satisfaire d'un étalonnage relativement peu précis, puisque les différentes résistances ne donnent en définitive qu'une indication de la température de l'échantillon polarisé.

Le courant électrique nécessaire aux mesures des résistances, ainsi que les soudures à l'étain les reliant à leurs fils de connection électrique, sont susceptibles de créer des champs magnétiques néfastes pour l'aimantation. Nous avons par conséquent exclu tout thermomètre dans un voisinage immédiat de la cellule. La figure III-4 représente la solution adoptée. La résistance est soigneusement thermalisée sur un fil de cuivre, le tout étant "noyé" dans une colle époxy (stycast noir 2850 FT). Ce fil de cuivre la relie à la cellule autour de laquelle il est enroulé. Une couche de vernis G.E. (fabriqué par Général Electric) assure un bon contact mécanique entre le cuivre et le pyrex. Le contact thermique est amélioré en badigeonnant le tout de laque à l'argent. La même précaution a été adoptée lorsque la cellule devait être équipée d'un fil chauffant, nécessaire pour réaliser les expériences décrites dans la deuxième partie de ce mémoire.

III - B LE CRYOSTAT A DILUTION

III -B.1) PRINCIPE

Le fonctionnement d'un réfrigérateur à dilution a été fort bien décrit et analysé dans de nombreuses publications [27] [46]. Rappelons tout de même brièvement le principe général d'un tel appareil.

Obtenir des basses températures repose sur l'absorption de chaleur latente lors du changement de phase, phase liquide - phase gazeuse. Un cryostat fonctionnant sur ce principe atteint environ 1 K avec de $l'^4\text{He}$ et 0,3 K avec de $l'^3\text{He}$. Ces valeurs limites proviennent de la faible pression de vapeur saturante de $l'^4\text{He}$ (à 1 K), et de $l'^3\text{He}$ (à 0,3 K). Un réfrigérateur à dilution d' $l'^3\text{He}$ permet d'atteindre des températures plus basses. Son principe repose sur la propriété suivante : $l'^3\text{He}$ n'est pas miscible à $l'^4\text{He}$ en toute proportion en dessous d'environ 0,85 K (à pression de vapeur saturante). Le mélange se sépare alors en deux phases (on dit qu'il y a "démixion"), l'une concentrée en $l'^3\text{He}$

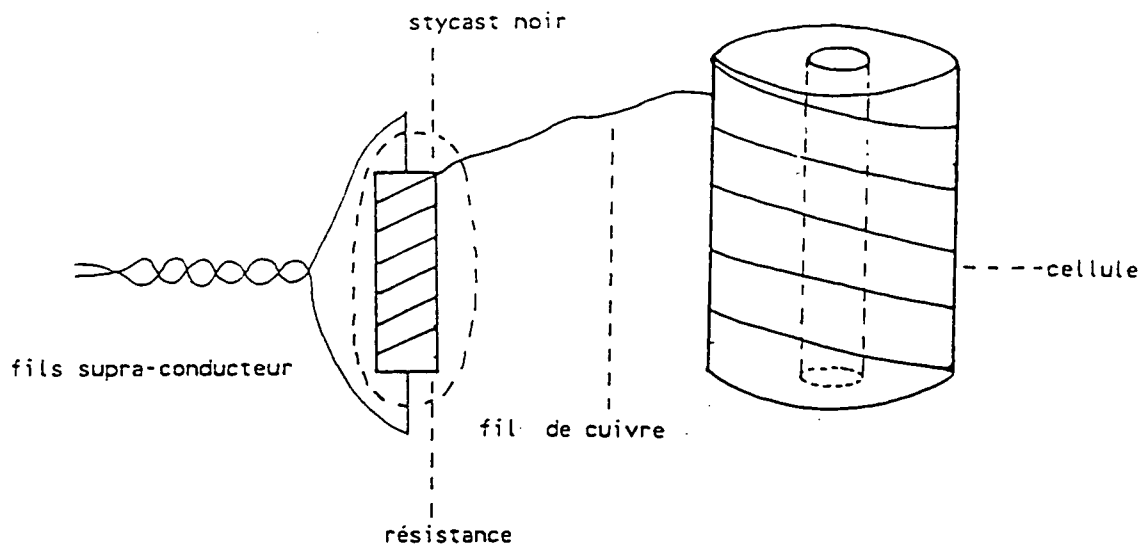


Figure III-4 : Ancre thermique des résistances sur la cellule.

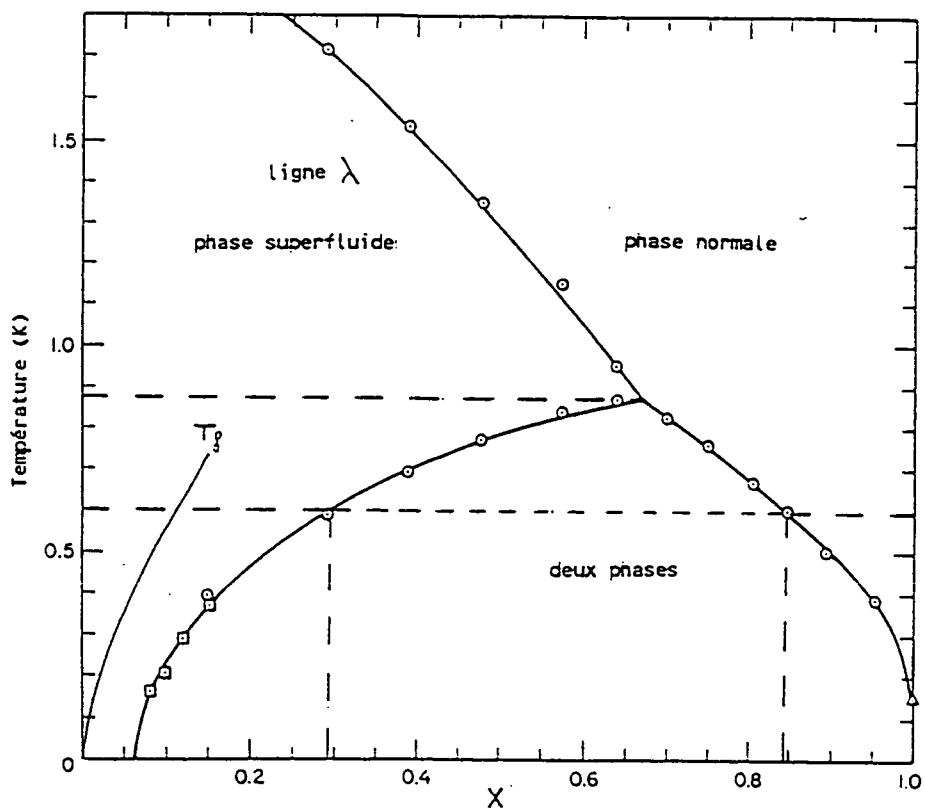


Figure III-5 : Diagramme de phase des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$.

La ligne λ délimite la région où l' ^4He est superfluide de celle où il est "normal" [47] [48] [49]. On a également représenté la variation de la température de Fermi T_f avec la concentration x en ^3He . On utilise pour cela $T_f \simeq 2,58x^{2/3}$, équation valable pour les solutions diluées ($x \lesssim 15\%$) [25].

flottant sur une autre diluée en ^3He (figure III-5). La concentration x en ^3He de chacune de ces deux phases est connue pour toute température.

Aux températures habituelles atteintes par un réfrigérateur à dilution ($T < 500$ mK), ^4He se comporte comme un "vide mécanique". On peut alors considérer la phase diluée en ^3He comme une phase gazeuse. L'enthalpie de la phase diluée est plus importante que celle de la phase concentrée. Par conséquent, le principe de production du froid est le même que pour ^3He ou ^4He pur. Le passage d'atomes d' ^3He de la phase concentrée (liquide) à la phase diluée (\equiv gaz) refroidit le mélange.

Un schéma de principe du réfrigérateur à dilution est représenté sur la figure III-6. Il n'est pas concevable de retirer les atomes d' ^3He directement de la phase diluée de la boîte à mélange, puisque sa pression de vapeur saturante est beaucoup trop faible compte tenu de sa température. On contourne ce problème de la façon suivante : la phase diluée s'étend sur une zone allant de la boîte à mélange à l'évaporateur. La température de ce dernier est maintenue aux alentours de 0,7 K par un chauffage auxiliaire. La pression de vapeur saturante est alors beaucoup plus élevée à cette température qu'à celle de la boîte à mélange. En outre, la phase gazeuse en équilibre avec le liquide contient essentiellement de ^3He . Ceux-ci sont donc retirés de la phase gazeuse par un système de pompage à température ambiante, opération qui met en mouvement ^3He de la boîte à mélange vers l'évaporateur. ^3He est continuellement réinjecté dans le cryostat. Il est tout d'abord refroidi jusqu'à 4 K par le bain cryogénique d' ^4He , puis condensé vers 1,5 K grâce au pot à 1 K. La température du liquide s'abaisse tout le long de l'échangeur de chaleur, par contact thermique avec le liquide froid sortant de la boîte à mélange. C'est l'élément dans lequel a lieu la séparation de phases, et c'est par conséquent le point le plus froid de la dilution.

III -B.2) DESCRIPTION

Conceptuellement, tous les réfrigérateurs à dilution possèdent les mêmes éléments. Dans ce paragraphe, nous ne passerons en revue que les caractéristiques spécifiques de notre propre cryostat.

a) Le circuit de pompage

Le circuit utilisé pour la manipulation du mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$ cryogénique est un système fermé. Lorsque le réfrigérateur à dilution ne fonctionne pas, ^3He et ^4He sont

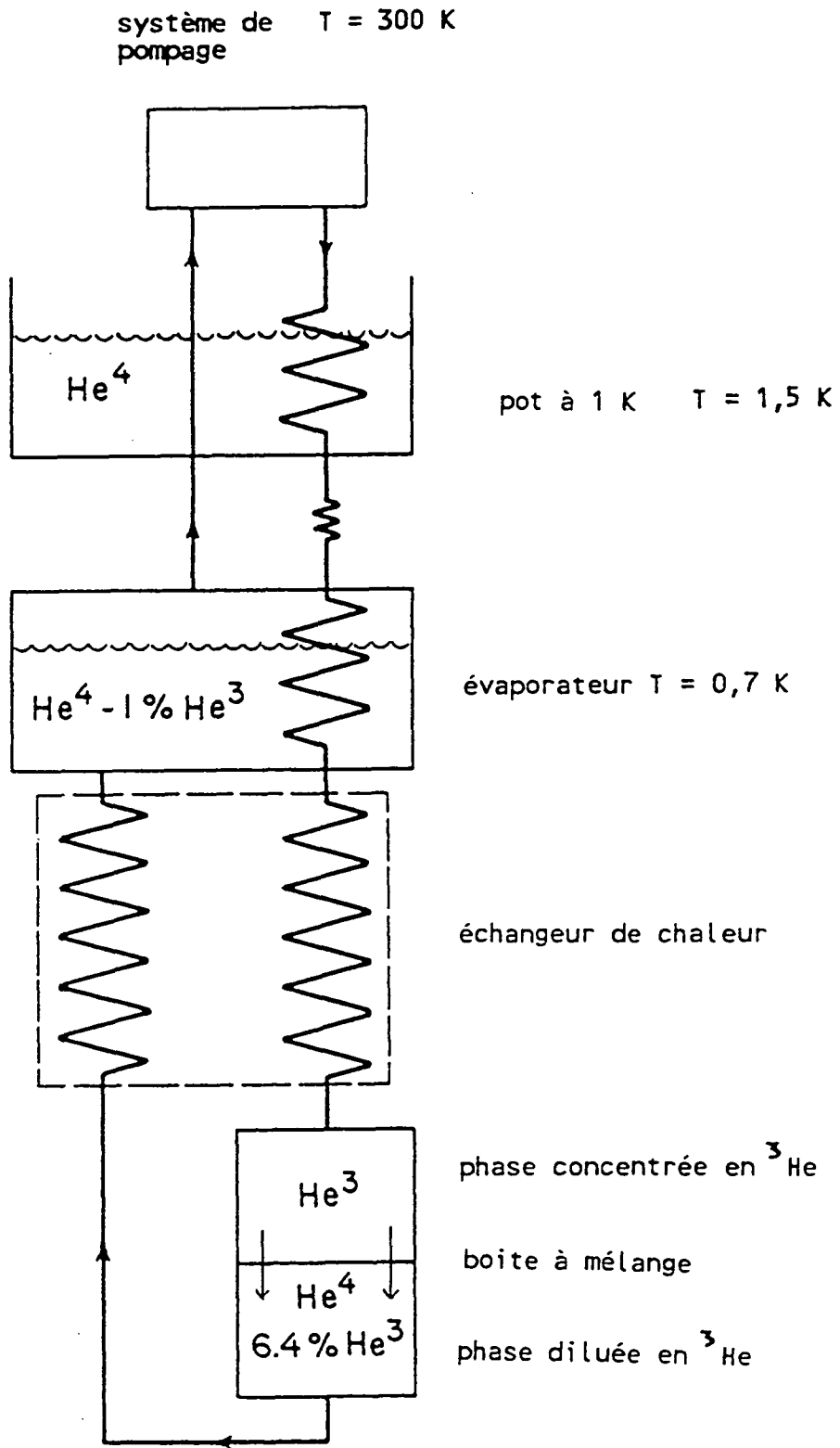


Figure III-6 : Schéma de principe de réfrigérateur à dilution.
 Les flèches indiquent le parcours des atomes d' ${}^3\text{He}$ dans le circuit.

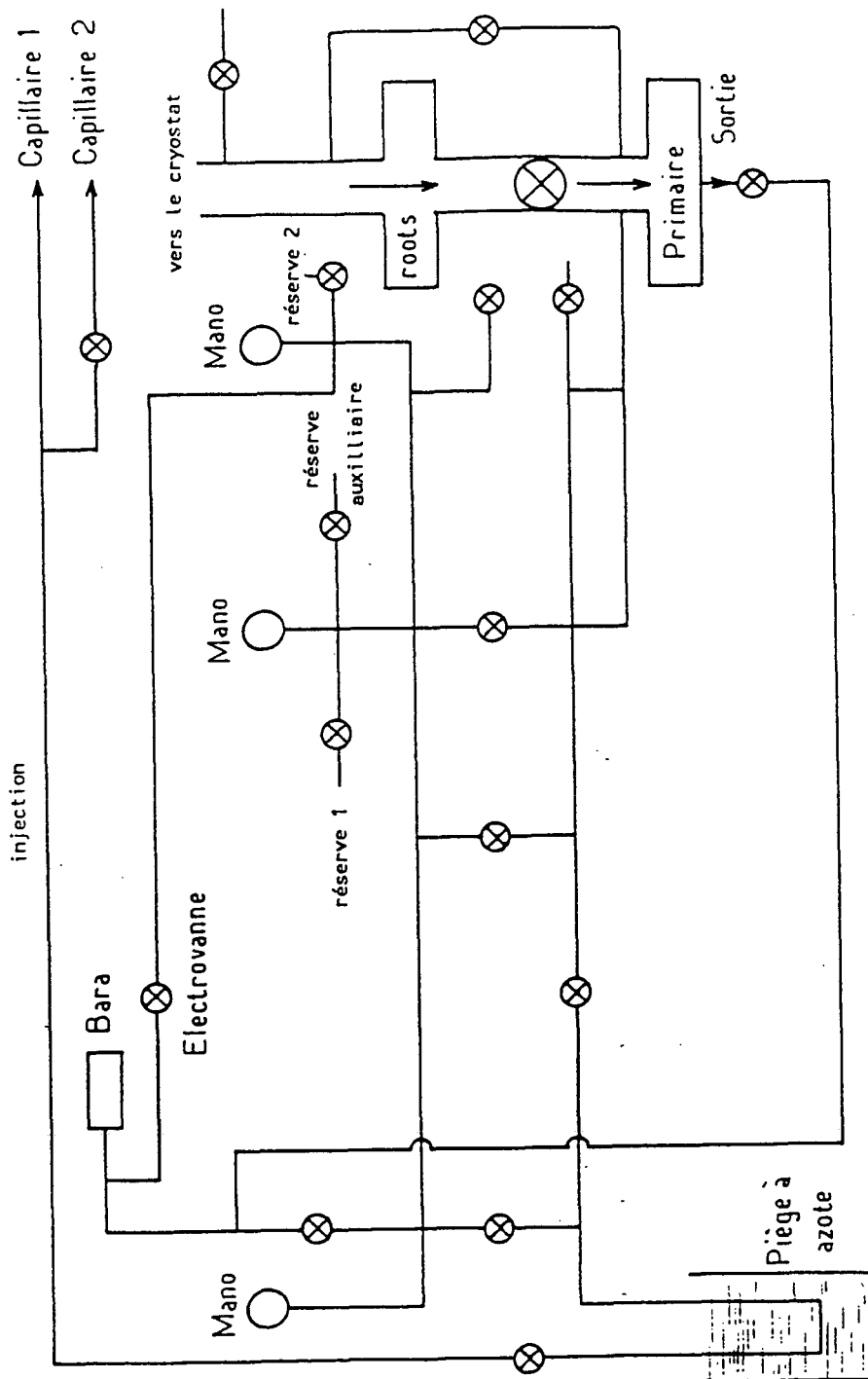


Figure III-7 : Circuit externe de circulation de l'hélium cryogénique.

Mano=Manomètre absolu. 0 ↔ 1 bar Ets Blondelle S.A.

Bara : Baratron MKS type 122 A (0 ↔ 100 torrs)

stockés dans deux réservoirs de gaz (de 20 l de volume pour l'³He et 30 l pour l'⁴He) situés à l'extérieur du cryostat. Une pompe "Roots" Alcatel (type RSV 350 de débit 350 m³/h), mise en série avec une pompe primaire Alcatel (60 m³/h) assure la circulation de l'hélium. L'ensemble du dispositif est représenté sur la figure III-7. Un système de sécurité automatique permet d'arrêter l'injection de l'hélium dans le cryostat lorsque sa pression d'entrée excède 0,9 bar. L'hélium est alors envoyé dans un des réservoirs à 300 K.

b) Le pot à 1 K

Rappelons que son rôle consiste à liquéfier l'hélium gazeux introduit dans le cryostat. C'est un cylindre de cuivre, de diamètre 3 cm et de hauteur 2 cm (figure III-8). On le remplit par pompage (pompe primaire Alcatel 2030 de débit 30 m³/h dans le bain d'⁴He grâce à un tuyau en cuivre qui part du pot et plonge dans l'⁴He liquide. Un fritté d'argent est fixé à son extrémité pour filtrer d'éventuelles impuretés. La sortie du tuyau est écrasée pour obtenir une bonne impédance de détente. Un compromis doit être choisi. Un fort débit donne une grande puissance frigorifique, mais une température du pot plus élevée. En pratique, notre pot fonctionne à environ 1,7 K, et fournit une puissance frigorifique de l'ordre de 100 mW. C'est largement suffisant pour condenser l'hélium du circuit de dilution.

c) L'échangeur de chaleur

Comme son nom l'indique, c'est la partie du circuit de dilution où l'³He liquide injecté (phase concentrée) cède une partie de son enthalpie à l'hélium sortant de la boîte à mélange (phase diluée). Plus la surface d'échange entre ces deux phases est importante, plus la température minimum atteinte par la boîte à mélange sera faible. En supposant que les pertes thermiques sont nulles sur la boîte à mélange on a (voir par exemple [46]) :

$$T_{\text{bm}} = \sqrt{\frac{6,4}{\sigma} \times n_3 \times r_k} \quad (\text{III} - 2)$$

avec :

T_{bm} température minimum atteinte par la boîte à mélange (K)

σ surface d'échange entre les phases concentrées et diluées (m²).

n_3 débit d'³He dans le circuit de dilution (mol/s).

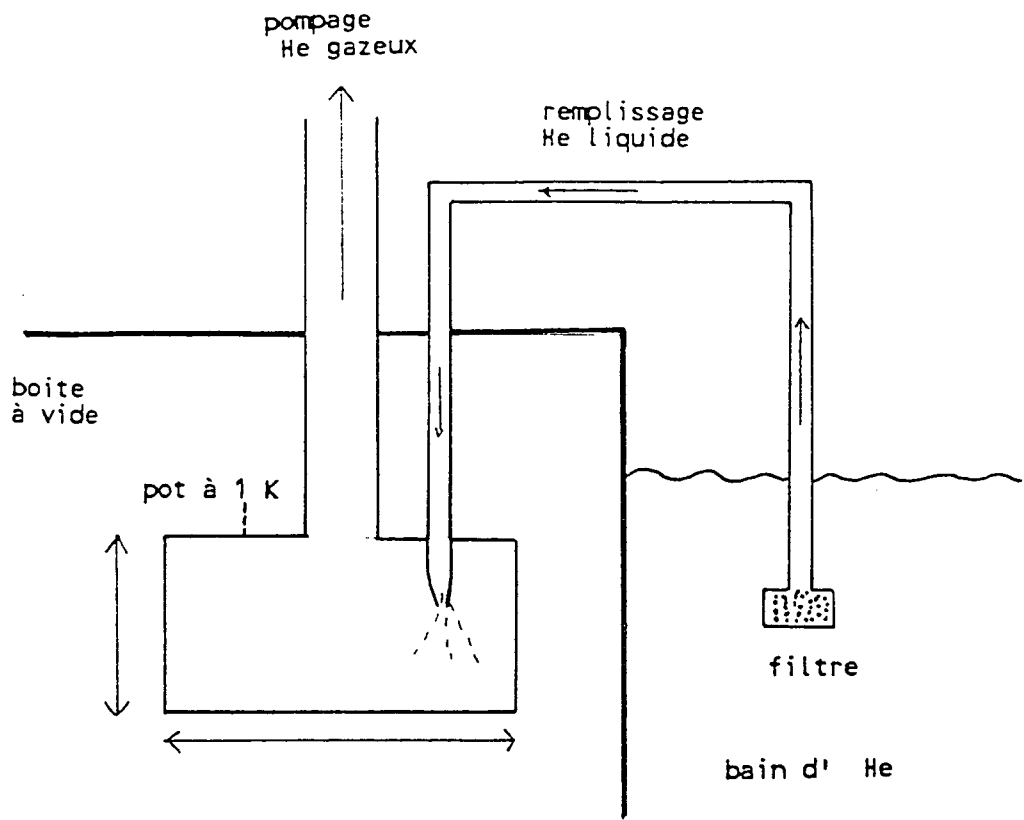


Figure III-8 : Le pot à 1K.

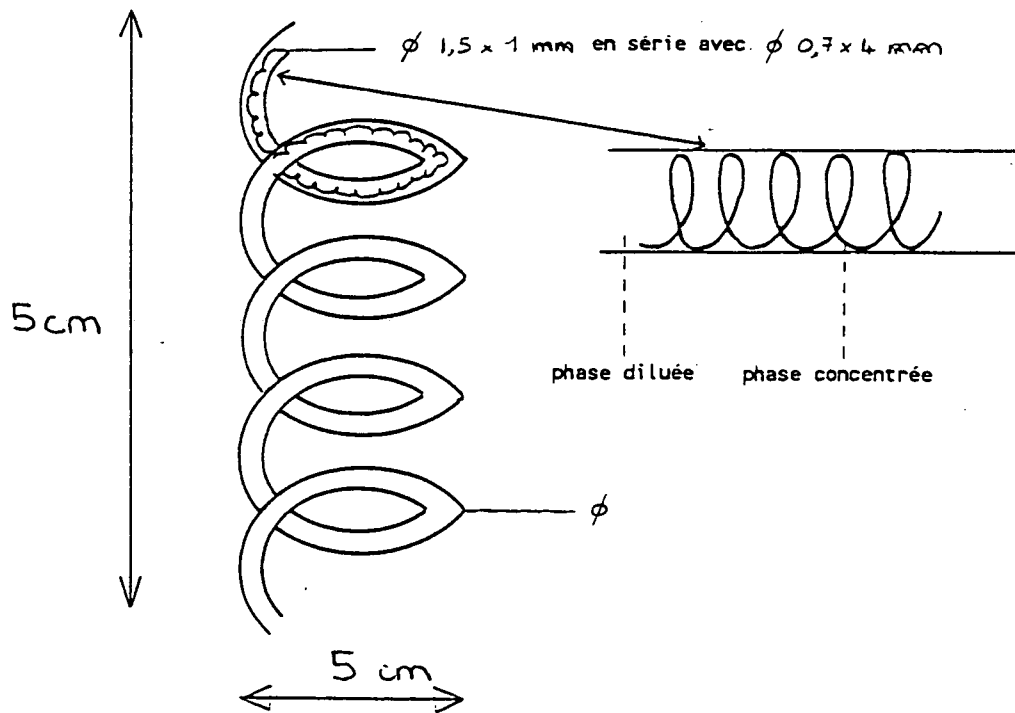


Figure III-9 : L'échangeur de chaleur.

r_k résistivité de Kapitza entre l'hélium et le matériau constituant de l'échangeur ($\text{m}^2\text{K}^4/\text{W}$).

Notre échangeur est composé d'un ensemble de tube et de capillaires en cupro-nickel. Grâce à la mauvaise conductivité thermique de ce matériau, les pertes vers la boîte à mélange sont limitées. La partie injection de l'échangeur de chaleur est constituée de la mise en série de deux capillaires enroulés en forme d'hélice (longueur maximum pour un encombrement minimum). Leurs dimensions respectives sont les suivantes :

- longueur : 4 m (resp. 3 m)
- diamètre externe : 1,5 mm (resp. 0,7 mm)
- diamètre interne : 1 mm (resp. 0,4 mm)

Cette hélice d'injection passe elle-même à travers un tube en inox de 1 mètre de longueur, de diamètres externe et interne respectivement 4 mm et 3,6 mm. La phase diluée remplit l'espace compris entre les parois internes du tube et externes de l'hélice d'injection. Pour diminuer l'encombrement de l'échangeur, le tube est également mis sous forme d'une hélice (figure III-9). Pour réaliser cette opération, l'ensemble de l'échangeur est rempli d'eau, puis plongé dans l'azote liquide. On peut ainsi lui donner la forme désirée sans risque de boucher les capillaires d'injection par écrasement au moment du pliage.

Compte tenu des dimensions géométriques de l'échangeur, la surface d'échange entre les phases diluées et concentrées est de l'ordre de 160 cm^2 . La résistivité de Kapitza entre l'hélium et le cupro-nickel est prise égale à $0,01 \text{ m}^2\text{K}^4/\text{W}$ [27]. Avec une circulation d' ^3He de l'ordre de $300 \mu\text{mol/s}$ (voir III-B.4), la relation III-2 permet de déduire une borne inférieure à la température minimum du réfrigérateur à dilution. On trouve $T_{\text{bm}} = 35 \text{ mK}$.

III -B.3) LA JAUGE A PRESSION OSMOTIQUE

Nous pouvons connaître la température de la boîte à mélange de façon classique, en mesurant la valeur d'une résistance type Matsushita 100Ω placée au sein du mélange. Il est alors essentiel que la détermination de cette résistance s'effectue à l'aide d'un courant aussi faible que possible afin d'une part de ne pas réchauffer le liquide, et d'autre part que la résistance de mesure soit à la même température que le liquide (problèmes de

résistance thermique de contact).

Il existe par ailleurs une technique astucieuse de thermométrie, qui tire profit de certaines propriétés thermodynamiques de l'hélium liquide. Une méthode basée sur le même principe a été employée par Varoquaux [50] pour déterminer la pression osmotique dans les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$ à différentes températures et concentrations en ^3He . D'où le nom de l'appareillage utilisé : Jauge à Pression Osmotique.

Dans ce chapitre, nous insistons sur la description expérimentale d'une telle jauge. Les bases théoriques sur lesquelles reposent son fonctionnement seront détaillées au cours du chapitre VI.

a) Principe

Le dispositif est représenté sur la figure III-10. La boîte à mélange du réfrigérateur à dilution est prolongée d'un capillaire en cupro-nickel (spirale pour diminuer son encombrement) de longueur 10 cm et de diamètres externe et interne 0,7 mm et 0,4 mm. Ainsi, la partie diluée de la solution démixée d' $^3\text{He}-^4\text{He}$ remplit complètement le capillaire.

Soient T_{bm} la température de la boîte à mélange et x_{bm} la concentration en ^3He de la phase diluée. Rappelons que dans la phase diluée d'une dilution démixée, x_{bm} (T_{bm}) est imposée par l'équilibre diphasé entre la phase diluée et la phase concentrée. La dépendance en température de x_{bm} peut être décrite par la relation approchée suivante [51] :

$$x_{\text{bm}} = 0,066 + 0,5056T_{\text{bm}}^2 \quad (\text{III} - 3)$$

Supposons maintenant que l'on chauffe l'extrémité E du capillaire (voir figure III-10), **sans changement de la température T_{bm}** (et donc de la concentration x_{bm}) de la boîte à mélange. Nous verrons dans le paragraphe suivant comment respecter une telle contrainte. Un gradient de température est alors créé entre la boîte à mélange et l'extrémité E du capillaire. La superfluidité de l' ^4He dans la solution diluée se traduit en outre par le fait que le potentiel chimique de l' ^4He est constant dans toute la solution, **même si sa température n'est pas uniforme** (voir chapitre VI). Un classique calcul de thermodynamique (que nous effectuerons dans le chapitre VI) conduit à la relation suivante :

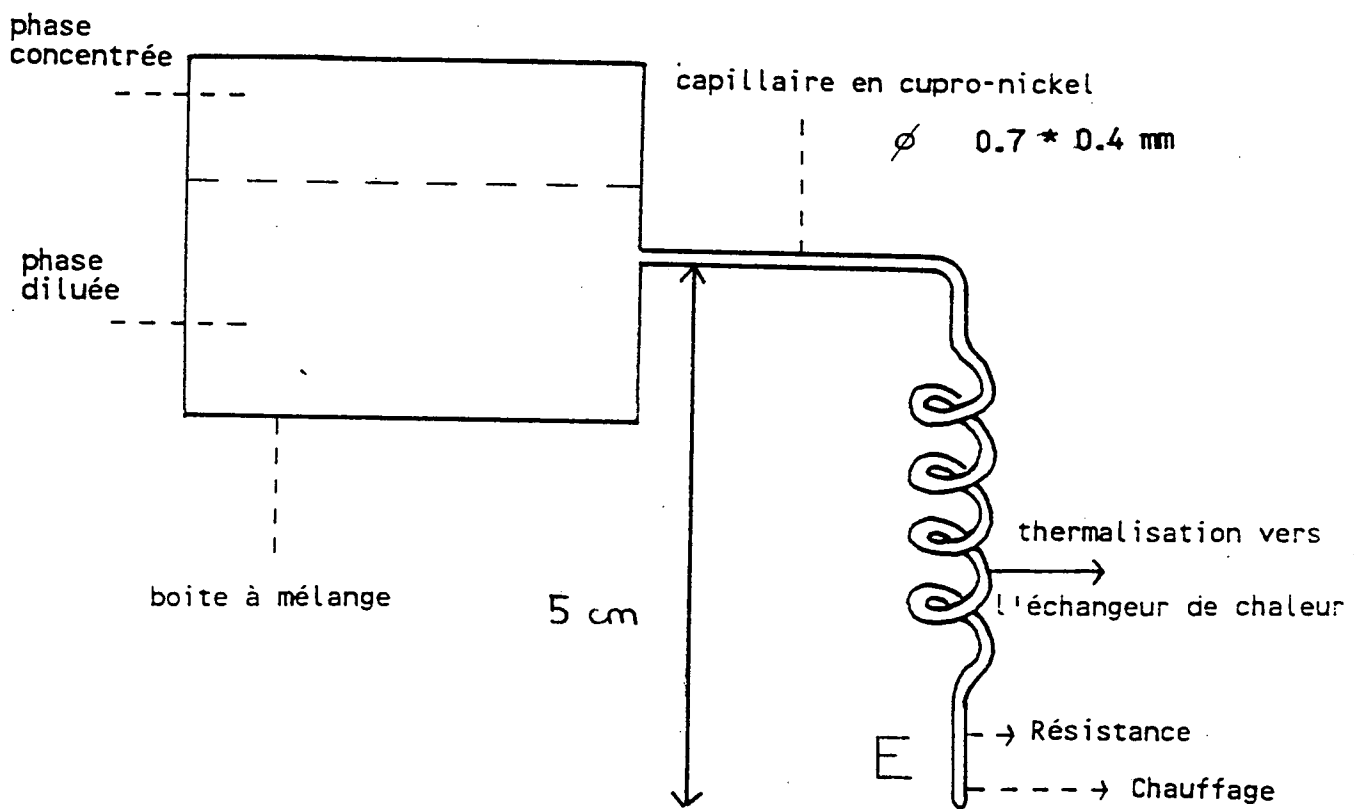


Figure III-10 : Schéma de la jauge à pression osmotique (la boîte à mélange est représentée de façon symbolique).

$$P_{\text{osm}}(T, x) + P_{\text{font}}(T) = \text{const} \quad (\text{III} - 4)$$

avec :

T, x respectivement température et concentration en ^3He en un point donné de la solution

P_{osm} et P_{font} pressions osmotique et fontaine au point considéré.

Rappelons que l'on définit la pression osmotique comme étant la différence de pression qui existe de part et d'autre d'une membrane semi-perméable séparant un liquide pur A d'un même liquide contenant un corps dissous B. Pour donner une explication simple de la pression fontaine, il faut tout d'abord rappeler que l' ^4He superfluide peut être considéré comme étant un mélange de fluides normal et superfluide (voir le modèle à deux fluides dans le chapitre VI). Dans cette approche, la pression fontaine est équivalente à la pression osmotique qu'exerce le liquide normal sur le liquide superfluide.

Remarque

La relation III-4 n'est valable que si la pression hydrostatique est constante dans toute la solution. Nous allons le supposer pour la suite des calculs, et nous le vérifierons plus tard.

Nous pouvons réécrire l'équation III-4 sous la forme particulière :

$$P_{\text{osm}}(T, x) + P_{\text{font}}(T) = P_{\text{osm}}(T_{\text{bm}}, x_{\text{bm}}) + P_{\text{font}}(T_{\text{bm}}) \quad (\text{III} - 5)$$

Dans la boîte à mélange, la température est suffisamment faible ($T_{\text{bm}} < 500 \text{ mK}$) pour que l'on puisse négliger la pression fontaine $P_{\text{font}}(T_{\text{bm}})$ devant la pression osmotique $P_{\text{osm}}(T_{\text{bm}}, x_{\text{bm}})$ (figure III-11). De plus, on peut écrire la pression osmotique en fonction d'une seule variable, T_{bm} ou x_{bm} (voir par exemple [51]) :

$$P_{\text{osm}}(T_{\text{bm}}) = 2209 + 1,044 \cdot 10^5 T_{\text{bm}}^2 \text{ (Pa)} \quad (\text{III} - 6)$$

La relation III-5 devient alors :

$$P_{\text{osm}}(T, x) + P_{\text{font}}(T) = 2209 + 1,044 \cdot 10^5 T_{\text{bm}}^2 \quad (\text{III} - 7)$$

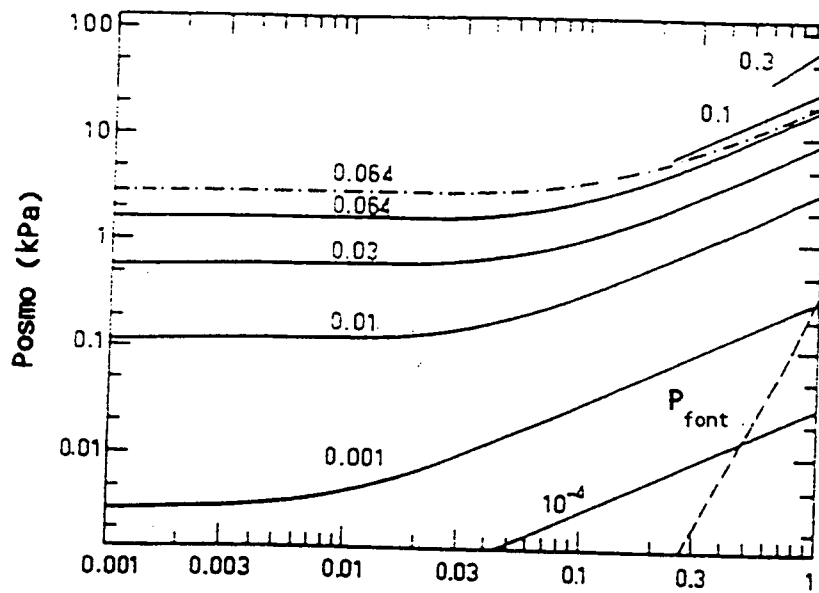


Figure III-11 : Variation en fonction de la température, de la pression osmotique dans un mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$, pour diverses concentrations en ^3He . Pour comparaison, la pression fontaine est également représentée [52]. La courbe en pointillé résulte d'un calcul.

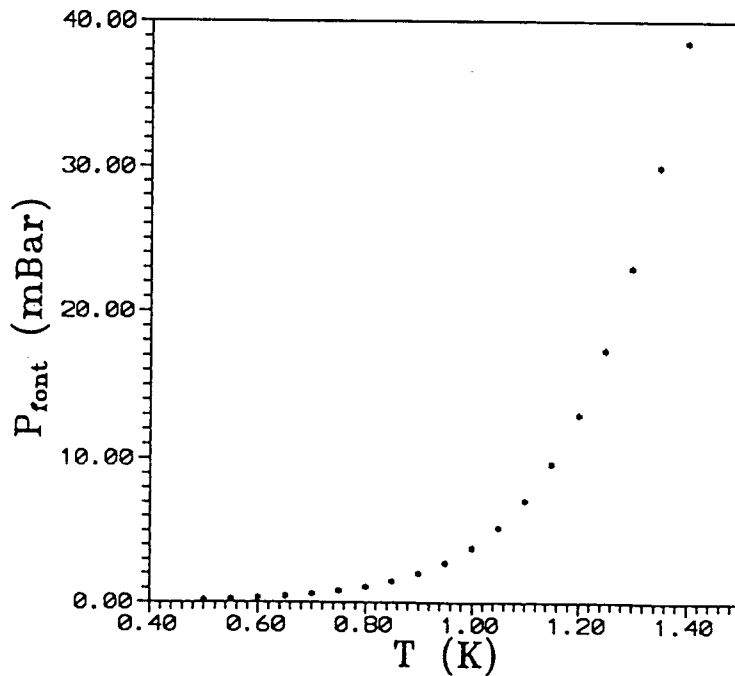


Figure III-12 : Variation de la pression fontaine de l' ^4He en fonction de la température [53]. Ces mesures ont été effectuées sur de l' ^4He pur.

Intéressons-nous à présent à l'extrémité E du capillaire. Plus on augmente la puissance thermique qu'il lui est appliquée, plus sa température croît, et par conséquent la pression fontaine qui règne dans cette région croît également (figure III-12). En vertu de la relation III-7, la pression osmotique diminue, jusqu'au cas limite où elle s'annule pour une puissance thermique suffisante. Dans ce cas, $x=0$, ce qui signifie que l'extrémité du capillaire ne contient que de l' ^4He (figure III-13). Si T_e est la température de l' ^4He pur, on a alors :

$$P_{\text{font}}(T_e) = 2209 + 1,044 \cdot 10^5 T_{\text{bm}}^2 \quad (\text{III} - 8)$$

Si on mesure T_e (par exemple grâce à une résistance en carbone), alors on peut déduire la pression fontaine $P_{\text{font}}(T_e)$ associée à cette température, et par conséquent la température T_{bm} de la boîte à mélange.

La variation de T_e en fonction de T_{bm} est représentée sur la figure III-14. A très basses températures, la pression osmotique ne varie plus beaucoup en fonction de la température (voir figure III-11). C'est pourquoi la jauge à pression osmotique donne des indications très imprécises au-dessous de $T_{\text{bm}} \simeq 30 \text{ mK}$.

Ce mesureur de températures nous permet donc de connaître très facilement la température de la boîte à mélange et ceci de façon de très précise au-dessus de 30 mK .

Vérifions à présent que l'on peut négliger la variation de pression hydrostatique ΔP le long de la solution diluée devant la pression osmotique qui règne dans la boîte à mélange. Nous allons utiliser la relation bien connue suivante :

$$\Delta P = \rho g h \quad (\text{Pascal})$$

avec :

ρ la masse volumique de la solution (kg/m^3)

h la hauteur de la jauge à pression osmotique (m)

g : accélération de la pesanteur ($g = 9,81 \text{ ms}^{-2}$)

En prenant $h = 0,05 \text{ cm}$ et une masse volumique de l'ordre de 133 kg/m^3 [52] on trouve que ΔP est de l'ordre de 65 Pa . Pour une température T_{bm} de 50 mK , la pression osmotique est de 2470 Pa . Ceci justifie l'approximation que nous avons faite.

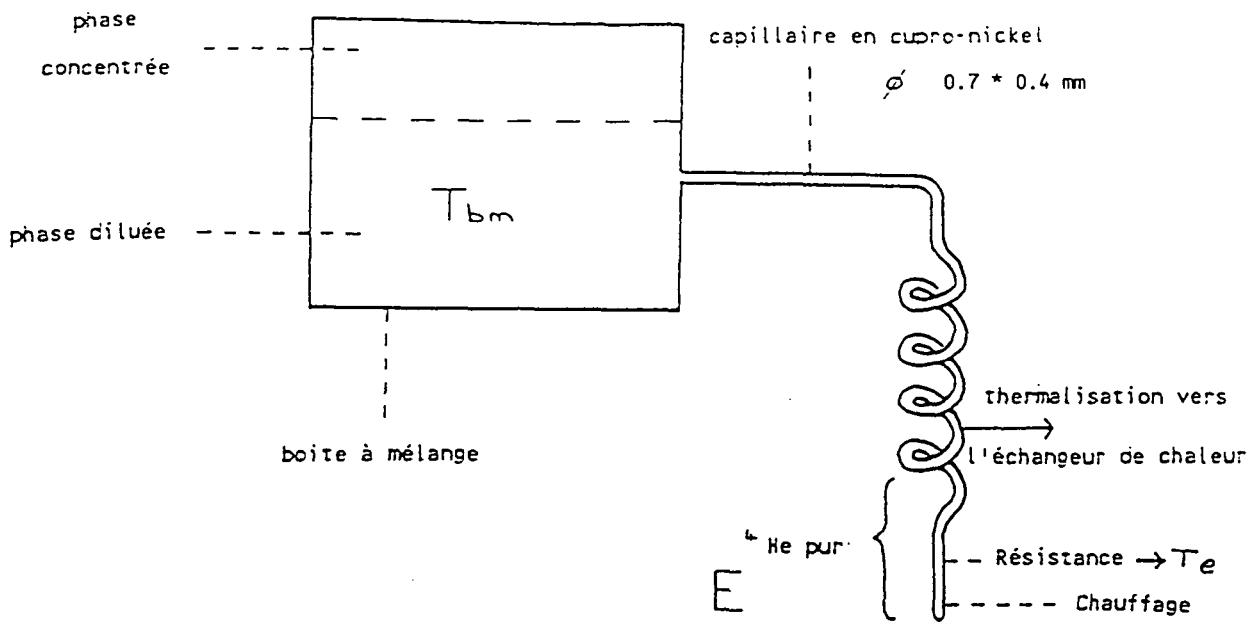


Figure III-13 : Principe de fonctionnement de la jauge à pression osmotique.
 Mesure de $T_e \Rightarrow T_{bm}$ est connue.

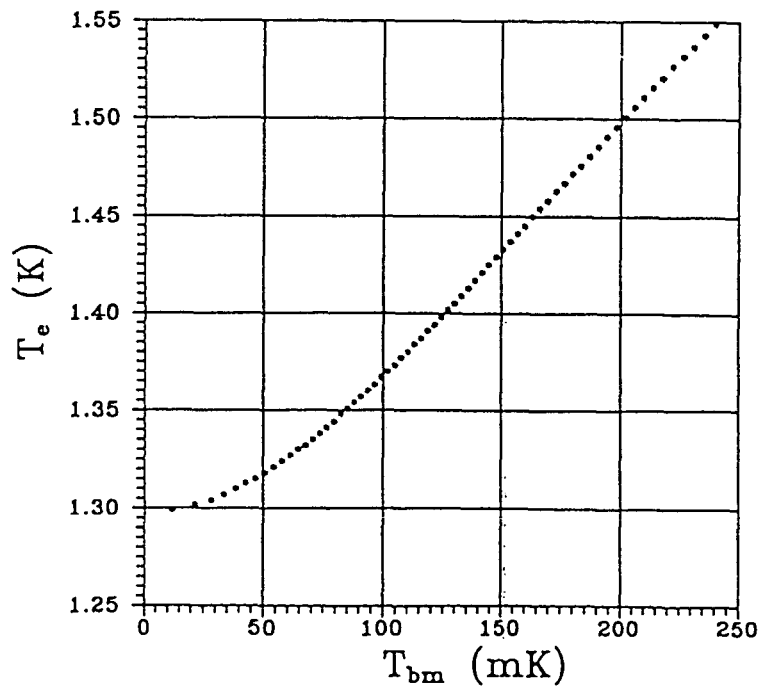


Figure III-14 : Variation de la température T_e de l' ^4He pur en fonction de la température T_{bm} de la boîte à mélange.

b) Utilisation

Il est évident que les pertes thermiques causées par le chauffage du capillaire doivent rester négligeables, pour que la température de la boîte à mélange ne soit pas altérée lors d'une mesure. Ceci nous a conduit à prendre trois précautions. Premièrement le capillaire a été choisi dans un matériau peu conducteur de chaleur : le cupro-nickel. Deuxièmement, nous avons relié thermiquement une partie du capillaire à l'évaporateur de la dilution, par l'intermédiaire d'un fil de cuivre (voir figure III-13). Ainsi, la quasi-totalité de la chaleur nécessaire au fonctionnement de notre mesureur de température n'arrive pas dans la boîte à mélange. Enfin, nous verrons au cours du chapitre VI que la création d'une zone d' ^4He pur nécessite d'autant moins de puissance thermique que le diamètre du capillaire est petit. D'où le choix que nous avons fait quant à sa taille.

Pour déterminer avec précision la température de la boîte à mélange, il faut s'assurer que T_e est bien la température de l' ^4He pur. Il existe un moyen très simple de le vérifier. Dès que la puissance thermique est suffisante pour créer une zone dépourvue d' ^3He , en changer la valeur ne modifie pas la température T_e , en supposant évidemment que T_{bm} est constante. Nous avons reporté sur la figure III-15 la variation de la température de l'extrémité E du capillaire en fonction de la puissance thermique Q qui lui est appliquée, ceci pour une température de la boîte à mélange égale à 52 mK. Le plateau de température indique la plage de puissance que l'on peut utiliser pour faire fonctionner correctement ce mesureur de température. On remarque que les puissance thermiques requises sont minimales ($Q \simeq 1 \mu\text{W}$). Pour des puissances plus importantes, des bulles de gaz sont nucléées au sein de l' ^4He , et la jauge à pression osmotique n'est plus opérationnelle.

III - B.4) PERFORMANCES DU REFRIGERATEUR A DILUTION

a) Réduction des pertes thermiques

La puissance frigorifique Q d'un réfrigérateur à dilution est une fonction bien connue du débit d' ^3He en circulation et de la température T_{bm} de la boîte à mélange [46] :

$$Q = 84n_3 T_{\text{bm}}^2 \text{ Watt} \quad (\text{III} - 9)$$

où n_3 est exprimé en moles/s et T_{bm} en Kelvin.

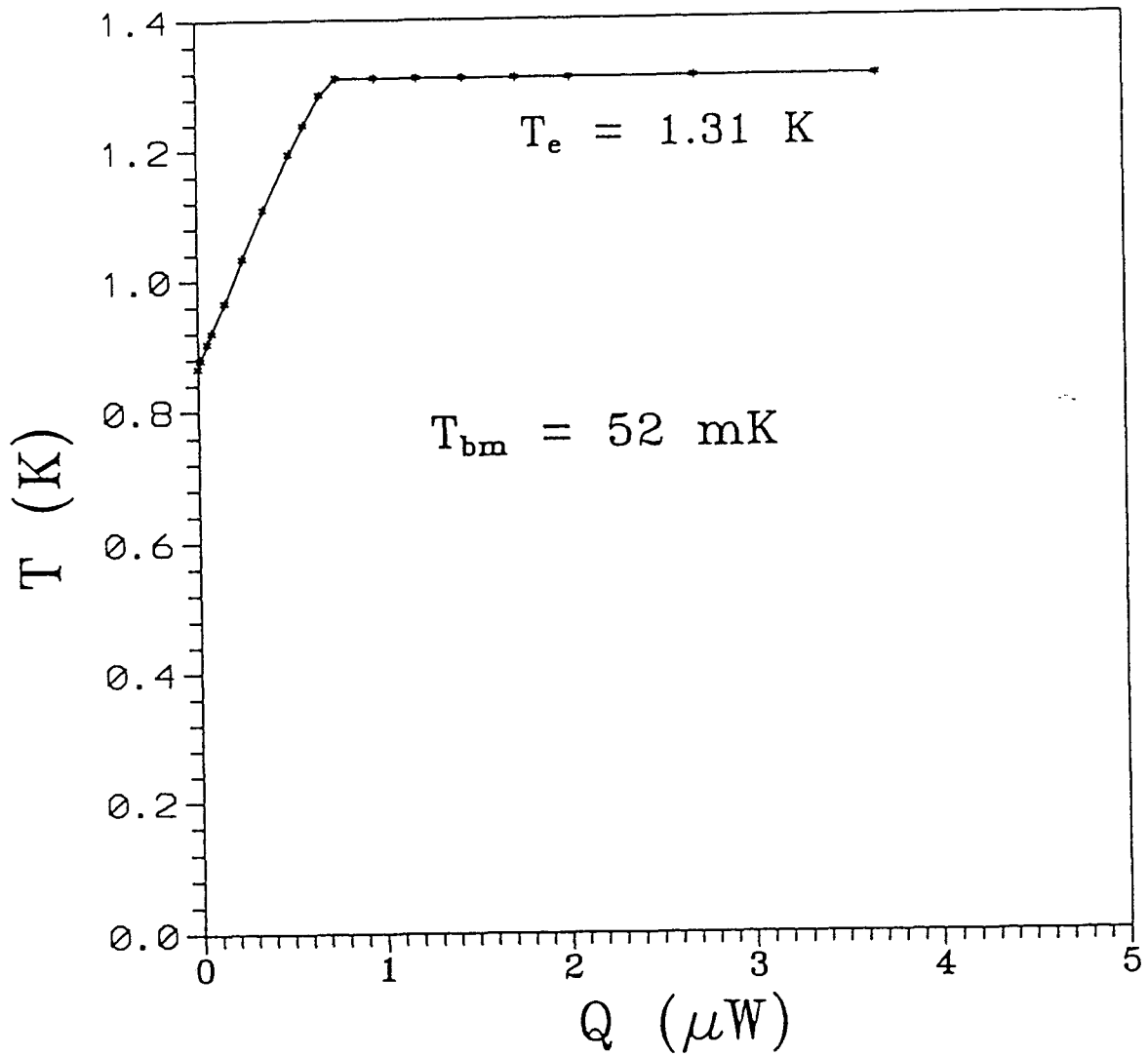


Figure III-15 : Variation de la température T de l'extrémité E du capillaire en fonction de la puissance thermique qui lui est appliquée, pour une température $T_{\text{bm}} = 52 \text{ mK}$ de la boîte à mélange.

Dans l'hypothèse où l'interface σ de l'échangeur est infinie, ce sont les pertes thermiques Q_{pertes} inévitables dans tout cryostat qui déterminent la température minimum $T_{\text{bm, min}}$ de la boîte à mélange :

$$84n_3 T_{\text{bm, min}}^2 = Q_{\text{pertes}} \quad (\text{III} - 10)$$

Nous répertorions ci-dessous un certain nombre de causes de pertes thermiques ainsi que les solutions adoptées pour les réduire.

*** Pertes par rayonnement.**

Comme nous l'avons indiqué précédemment, une majeure partie d'entre elles sont éliminées grâce aux bains cryogéniques d' ^4He et d'azote.

*** Pertes par conduction dans les gaz résiduels.**

Le fonctionnement du réfrigérateur à dilution est profondément perturbé si la pression régnant dans la boîte à vide n'est pas suffisamment faible. En pratique, nous avons obtenu des résultats satisfaisants en l'ayant évacuée en pompe secondaire pendant une heure à 4,2 K (pression résiduelle inférieure à 10^{-6} torr).

*** Pertes par conduction dans les métaux.**

→ Dans les tuyaux de pompage et les lignes de remplissage.

Les matériaux utilisés doivent à la fois présenter des propriétés de mauvaises conductivité thermique et de faible magnétisme. Rappelons que notre choix s'est porté sur l'innox mince et le cupro-nickel.

→ Dans les fils électriques nécessaires aux mesures physiques.

C'est pourquoi un fil destiné à un élément situé dans la boîte à vide n'y est pas directement connecté : à chaque fois, une portion d'environ 10 cm de fil supraconducteur (nobiium-titane dans une matrice en cupro-nickel, diamètre 5/100 mm) assure la jonction entre le fil de cuivre arrivant de la partie à température ambiante et ancré à 4,2 K, et le mesureur physique. Sa conductivité thermique est en effet bien inférieure à celle d'un fil de cuivre de même longueur.

*** Pertes le long des parois en pyrex de la cellule.**

Nous avons vu dans le chapitre II, qu'elles pouvaient être notablement abaissées grâce à l'ancrage thermique d'une partie de la cellule sur le pot à 1 K.

* Pertes causées par le laser.

Nous avons constaté que les températures des éléments les plus froids de l'expérience étaient affectées par la présence du faisceau laser sur la cellule. Celle-ci joue en effet un rôle de guide de lumière. En outre, l'alimentation du laser génère des parasites électriques qui perturbent les valeurs des résistances. Nos mesures de température sont alors effectuées après avoir éteint le laser.

b) Résultats

Nous déterminons la puissance frigorifique de notre réfrigérateur à dilution de façon classique : une puissance thermique Q croissante est appliquée sur la boîte à mélange. Pour chaque valeur de Q , nous mesurons la température correspondante T_{bm} de la boîte à mélange grâce à la jauge à pression osmotique.

Nous présentons sur la figure III-16 une courbe caractéristique montrant Q en fonction de T_{bm}^2 .

De la pente au départ, on peut déduire de la relation III-9 un débit d' ^3He d'environ $250 \mu\text{mol/S}$. Dans cette situation, la température minimum mesurée pour la boîte à mélange est de 45 mK . La relation III-10 permet d'évaluer les pertes thermiques sur la boîte à mélange : $Q_{\text{pertes}} \simeq 40 \mu\text{W}$. Les performances d'un cryostat ne sont pas parfaitement reproductibles. On peut toutefois considérer les valeurs présentées ici comme typique du fonctionnement de notre réfrigérateur à dilution.

Nous avons constaté que le temps caractéristique de mise en route de notre réfrigérateur à dilution était beaucoup plus rapide que les temps habituels de ce genre d'appareils : de l'ordre de 15 minutes pour passer de $1,5 \text{ K}$ à 50 mK à comparer à plusieurs heures dans de nombreux cas : cette différence résulte entre autres de la faible quantité de matériaux utilisés pour construire notre cryostat, ce qui réduit la durée nécessaire à son refroidissement.

Néanmoins, 15 minutes est encore trop long par rapport au temps de relaxation nucléaire T_1 dans l' ^3He pur polarisé. Dans ce cas, nous devons recourir à l'utilisation d'un interrupteur de chaleur. Nous le décrirons dans le chapitre suivant. En revanche, dans les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$, le rallongement prévu et observé de T_1 nous permettra de nous en passer.

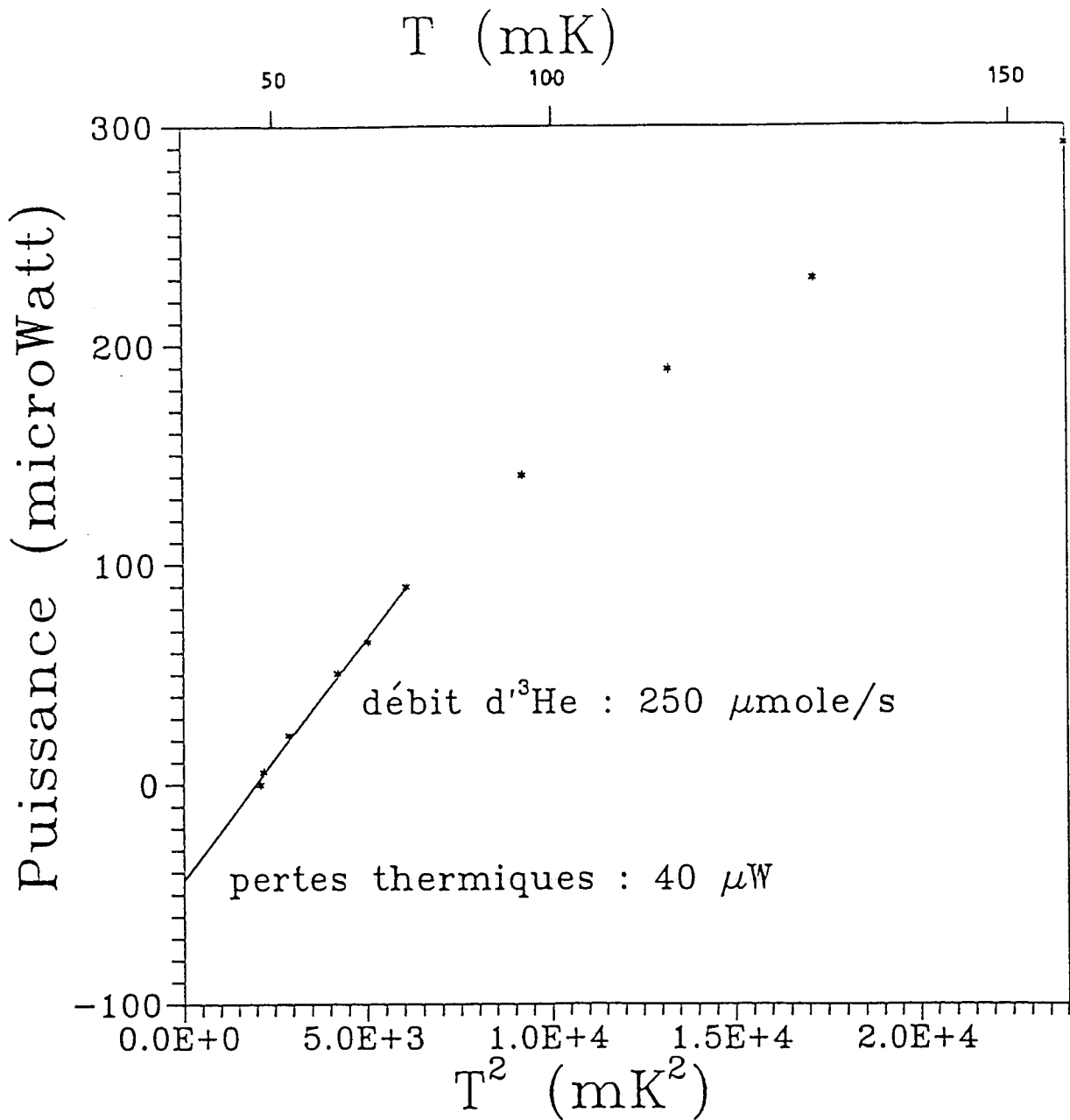


Figure III-16 : Puissance frigorifique du réfrigérateur à dilution.

CHAPITRE IV

L'INTERRUPTEUR THERMIQUE

IV -A DESCRIPTION

Nous avons vu que l'étude de l' ^3He pur liquide polarisé nécessitait d'utiliser un interrupteur thermique. Nous en avons donc conçu un qui respecte autant que possible diverses contraintes.

- * être peu magnétique, tout comme l'ensemble du dispositif expérimental. Ceci exclut l'utilisation d'un interrupteur à base de matériaux supraconducteurs [27].

- * être fixe, afin de ne pas risquer de briser la cellule. Nous avons donc écarté la possibilité de construire un interrupteur mécanique [27].

- * se fermer rapidement.

- * pouvoir s'ouvrir et se fermer à volonté. Une telle caractéristique réduirait considérablement la durée nécessaire au déroulement d'une expérience. En effet, une fois le liquide dépolarisé, il suffirait pour l'évaporer d'ouvrir l'interrupteur, afin de procéder à nouveau au pompage optique du gaz en vue d'une nouvelle expérience. Ceci nous éviterait donc d'arrêter le réfrigérateur à dilution, ce qui représente un gain de temps important.

La solution adoptée tire profit de la bonne conductivité thermique de l' ^4He superfluide (voir chapitre VI). C'est la présence ou l'absence de l'hélium dans une partie de l'interrupteur qui conditionnera le contact ou non entre la boîte à mélange et la cellule expérimentale. Nous décrivons dans ce chapitre l'interrupteur que nous avons construit, ainsi que ses performances prévues.

IV -A.1) MONTAGE EXPERIMENTAL

L'ensemble du dispositif est représenté sur la figure IV-1. Pour la compréhension du principe de fonctionnement de l'interrupteur, nous pouvons le séparer en deux parties A et B.

PARTIE A :

Elle est constituée de deux éléments 1 et 2 soigneusement vissés contre la plaque froide support de la boîte à mélange. Le réservoir 1 est destiné à recevoir de l' ^4He liquide. Son remplissage s'effectue grâce à un capillaire en cupro-nickel qui le relie à un réservoir d' ^4He situé hors du cryostat. Débutant à température ambiante, ce capillaire

est thermalisé en de nombreux points du dispositif expérimental, en particulier sur le pot à 1 K et sur l'évaporateur du circuit de dilution. Ces précautions, ajoutées au fait que le cupro-nickel conduit mal la chaleur, permettent de limiter les pertes thermiques vers la boîte à mélange. Un capillaire supplémentaire sortant du réservoir 1 aboutit à l'élément 2 de l'interrupteur. Celui-ci est composé d'une tige de cuivre massif surmontée d'un cylindre creux (également en cuivre) contenant un fritté de poudre d'argent. Un tube creux d'inox mince prolonge ce cylindre et relie la partie A à la partie B de l'interrupteur.

PARTIE B

On peut également la séparer en deux éléments 3 et 4

L'élément 3 est composé de la fin du tube inox, coiffé d'un autre cylindre de cuivre contenant un second fritté.

L'élément 4 comprend un faisceau de fils de cuivre parallèles ("coil foil"), maintenu rigide par une colle à époxy (stycast blanc type 1266) (figure IV-2).

Le stycast est creusé sur un côté de telle sorte que l'on puisse l'enfiler autour de la cellule expérimentale sur environ 1 cm, avec aussi peu de jeu que possible pour obtenir une surface d'échange maximum entre le stycast et la cellule.

Les éléments 3 et 4 sont reliés par environ une dizaine de fils de cuivre. Une des extrémités de ce faisceau est brasée sur une pièce de cuivre cylindrique, qui s'emboîte parfaitement dans l'autre côté de la pièce en stycast (voir figure IV-2). L'avantage d'un tel système est de faciliter les changements de cellule : il est aisé de retirer le "coil foil" afin de désolidariser la cellule de l'interrupteur de chaleur. Ceci n'est évidemment valable que dans le cas où la cellule expérimentale a une forme cylindrique. Dans toute autre géométrie, les fils de cuivre provenant du sommet de l'interrupteur seront collés un à un sur la cellule à l'aide de vernis G.E.

IV A.2) PRINCIPE

La partie externe du réservoir 1 est en fait un soufflet dont on fait varier la hauteur depuis l'extérieur du cryostat. Lorsque l'interrupteur thermique est ouvert, le soufflet est étiré au maximum. L'⁴He (superfluide) qui a été préalablement introduit dans le dispositif n'occupe que la partie A de l'interrupteur. A et B seraient relativement bien isolés thermiquement si la chaleur ne pouvait circuler entre ces deux parties que par

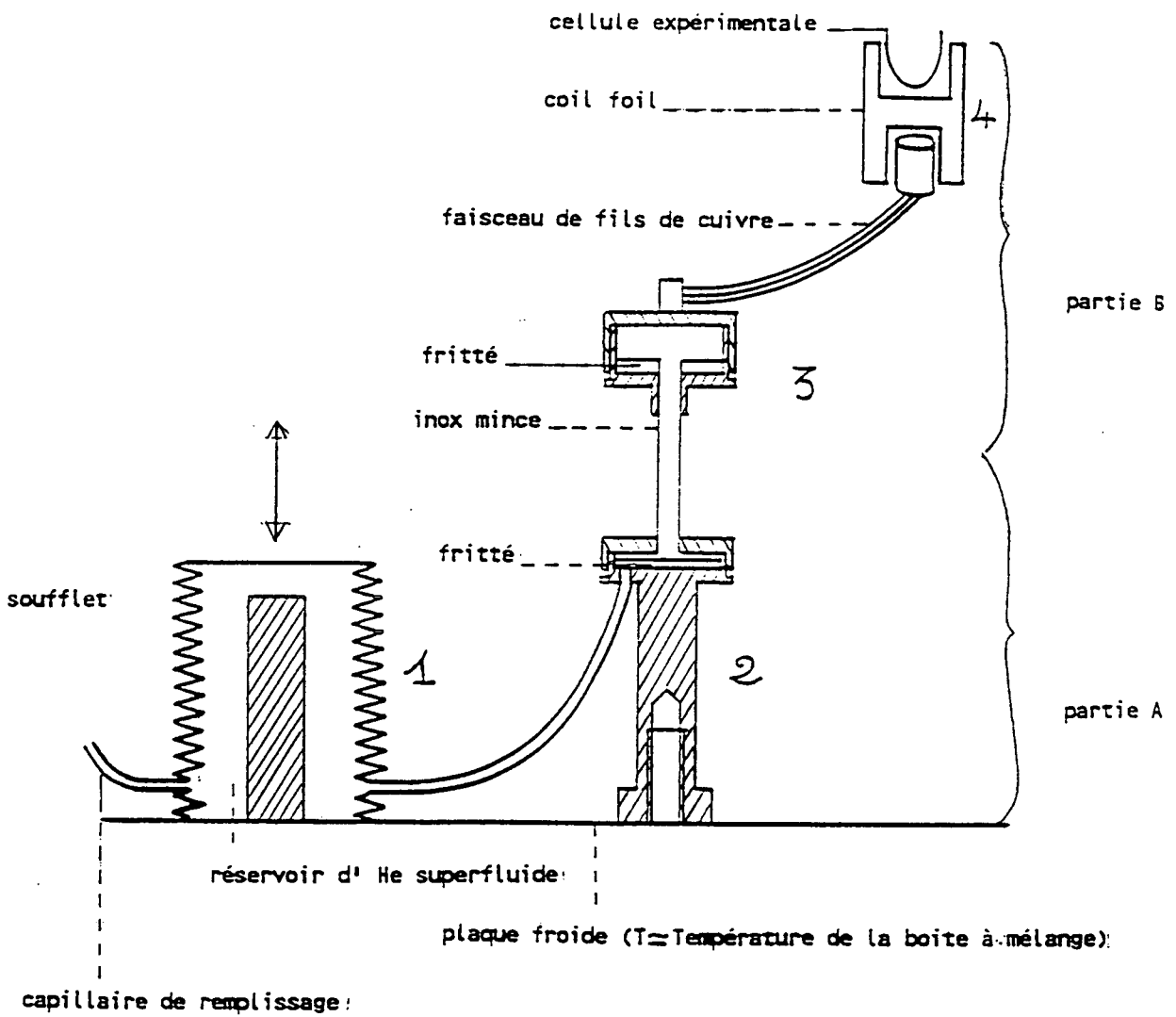


Figure IV-1a : L'interrupteur thermique.

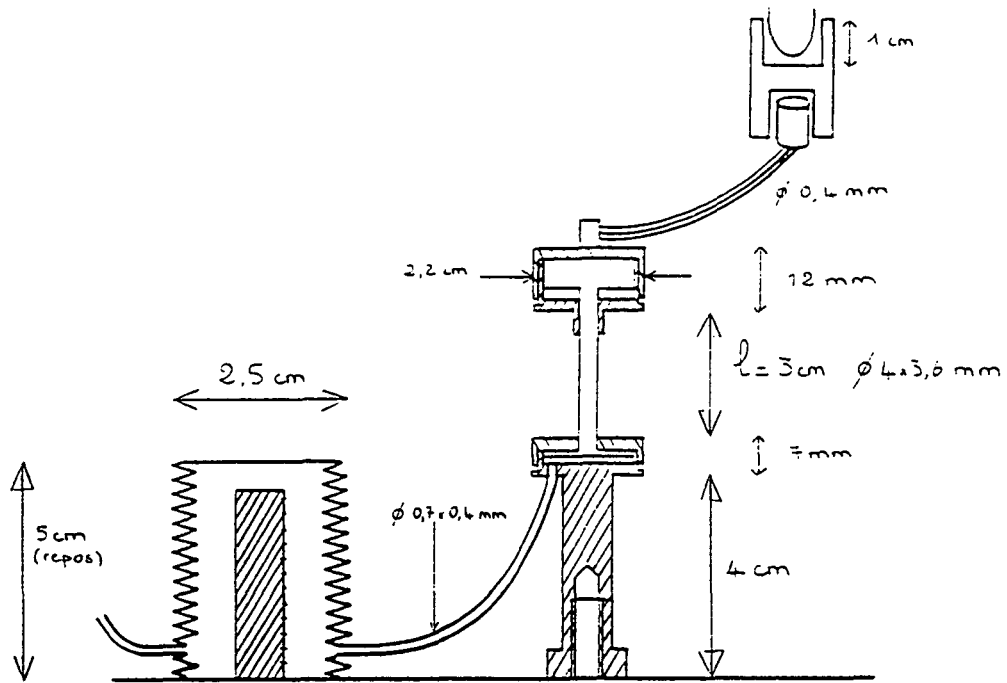


Figure IV-1b : Dimensions de l'interrupteur thermique.

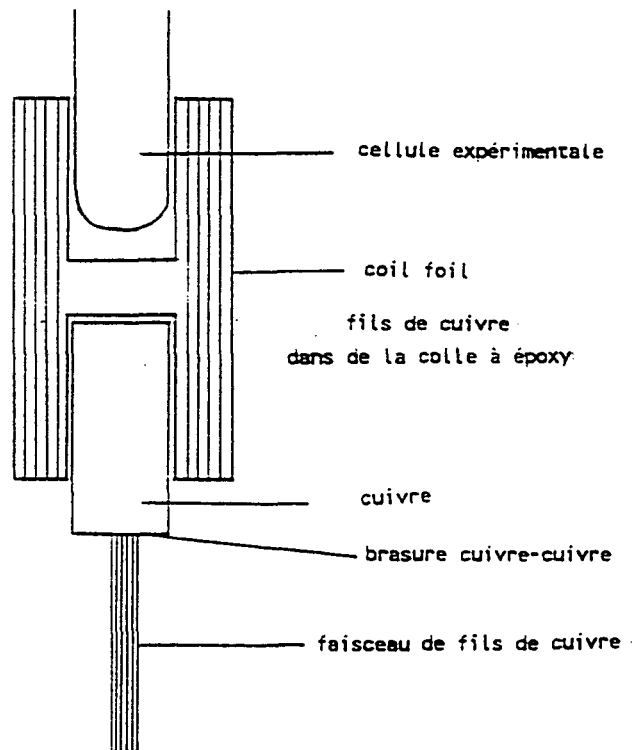


Figure IV-2 : Contact thermique entre l'interrupteur et la cellule expérimentale.

l'intermédiaire du tube inox mince, matériau mauvais conducteur de chaleur (fig IV-3). Dans cette situation idéale, la température de A serait par conséquent proche de celle de la boîte à mélange, tandis que B serait à une température suffisamment élevée pour permettre le pompage optique de l'³He. Nous verrons au § B-4 que tel n'est pas le cas.

Pour fermer l'interrupteur, on ramène le soufflet à sa position de repos (toujours à partir de l'extérieur du cryostat), afin de diminuer le volume du réservoir 1. L'⁴He superfluide remplit alors totalement l'élément 3, mettant ainsi en contact thermique la cellule expérimentale et la boîte à mélange (figure IV-4).

Une simple manipulation mécanique du soufflet permet donc de faire varier le niveau d'⁴He dans l'interrupteur, et par conséquent d'ouvrir ou de fermer à loisir le contact thermique entre la cellule expérimentale et la boîte à mélange.

Remarque

Le premier interrupteur utilisé était sensiblement différent de celui que l'on a décrit précédemment. Le fritté de la partie B se situait sur la face supérieure du cylindre en cuivre. Au cours des essais, il est apparu qu'une telle configuration ne permettrait pas d'ouvrir l'interrupteur. En effet, l'évacuation de l'⁴He remplissant la partie B ne peut s'effectuer que par remplacement du liquide par du gaz. Or il est très difficile de nucléer des bulles de gaz dans l'hélium liquide à basse température, même avec une pression négative importante [54]. Aussi, l'ouverture de l'interrupteur se produisait à une température telle que le réfrigérateur à dilution ne pouvait fonctionner.

La géométrie finale adoptée permet de nous affranchir du problème de nucléation, puisqu'il existe toujours une interface liquide-gaz : le fritté étant disposé sur la face inférieure du cylindre en cuivre de l'élément 3, il n'est pas nécessaire de le remplir totalement d'⁴He liquide.

IV - B PERFORMANCES ATTENDUES DE L'INTERRUPTEUR

Nous donnons dans ce chapitre une estimation de la température minimum du liquide polarisé, ainsi que du temps caractéristique de chacune des étapes de refroidissement de la cellule expérimentale. De par les hypothèses adoptées pour effectuer ces calculs, les résultats obtenus ne sont qu'approximatifs. Néanmoins ils donnent un bon ordre de grandeur des performances de notre interrupteur thermique, comme le confirmera l'expérience.

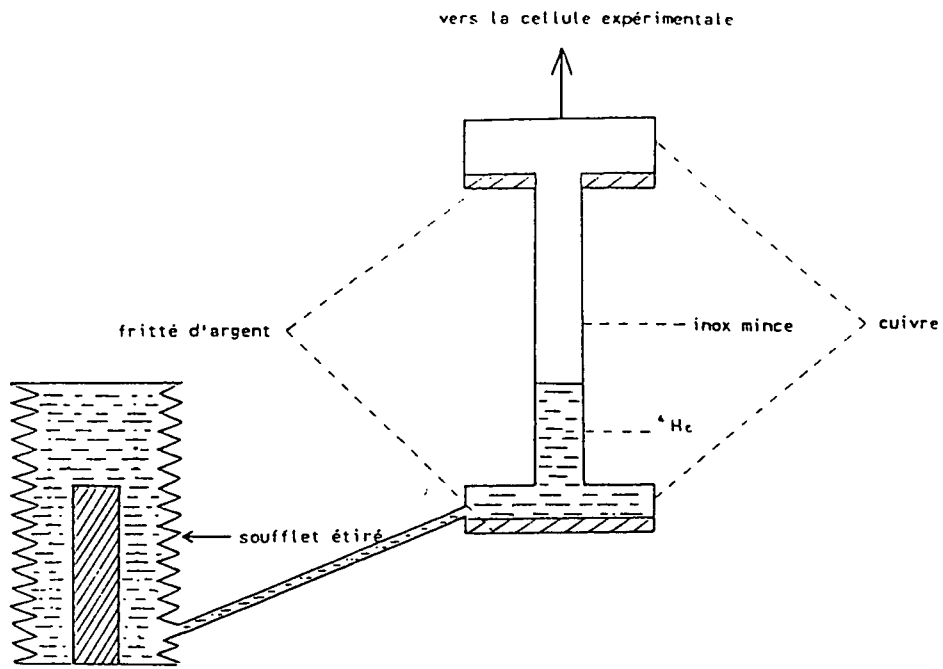


Figure IV-3 : Représentation symbolique de l'interrupteur thermique en position ouverte.

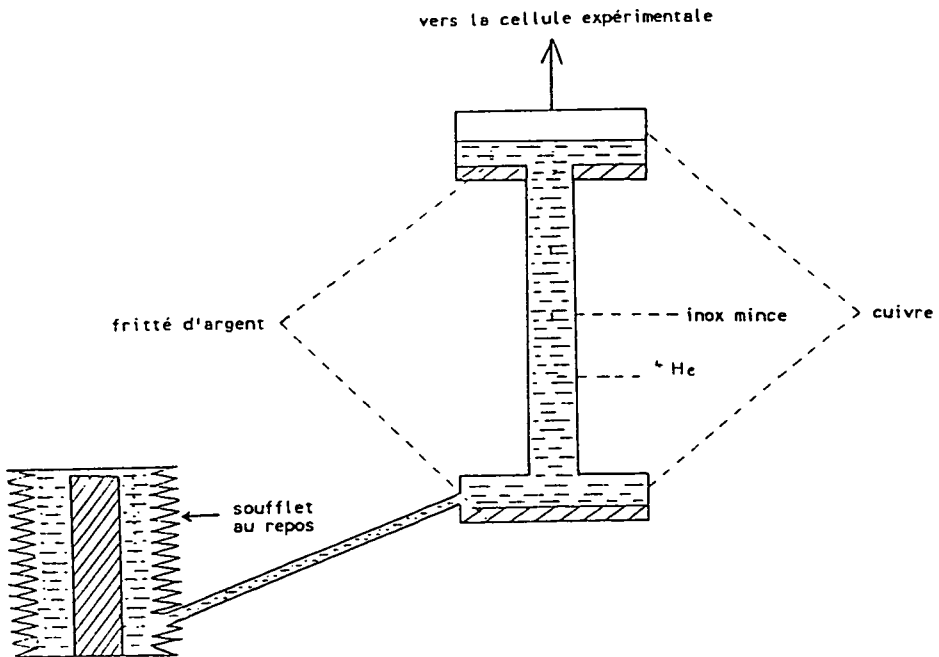


Figure IV-4 : Représentation symbolique de l'interrupteur thermique en position fermée.

IV -B.1) LES DONNEES NECESSAIRES AU CALCUL

Les valeurs des conductivités thermiques, chaleurs spécifiques et résistances de contact mise en jeu lors du contact thermique entre la boîte à mélange et la cellule expérimentale sont tirées de la référence [27]. Dans le cas où les données concernant un élément de notre interrupteur n'existent pas, nous les remplacerons par celles d'un matériau proche.

Détermination de la surface d'échange entre le fritté d'argent et l'hélium

A basses températures, les résistances de Kapitza existant entre les matériaux peuvent fortement limiter les processus de transfert de chaleur [27]. L'unique façon de remédier à ce problème consiste à augmenter les surfaces d'échange entre les matériaux. On réalise cela en utilisant des milieux finement divisés : les frittés d'argent. Une modélisation de la géométrie du fritté de notre interrupteur permet d'obtenir un ordre de grandeur de l'interface argent- ^4He . Le fritté est fabriqué à partir d'une poudre d'argent compactée à 50% (100% correspond à l'argent massif). Nous supposons alors que la moitié de son volume est constitué de canaux cylindriques remplis d' ^4He , de diamètre $d = 1 \mu\text{m}$ ($1 \mu\text{m}$ taille des grains de la poudre) (fig IV-5).

Soit S la surface d'échange entre l' ^4He et le fritté :

$$S = \frac{D^2}{2d} \times \pi \times e$$

avec :

$$D = 18 \text{ mm}$$

$$d = 1 \mu\text{m}$$

$$e = 2 \text{ mm}$$

On en déduit que $S \simeq 1 \text{ m}^2$, ce qui correspond à une surface d'environ $0,4 \text{ m}^2$ par gramme de fritté. Les mesures tirées de la référence [55] confirment ce résultat obtenu par une approximation sommaire.

Nous allons maintenant comparer la situation où l'interrupteur contient un fritté à celle où il en est dépourvu. Supposons que nous ayons à évacuer un flux thermique de $100 \mu\text{W}$. Soit T_{Cu} la température du cuivre (pratiquement égale à la température

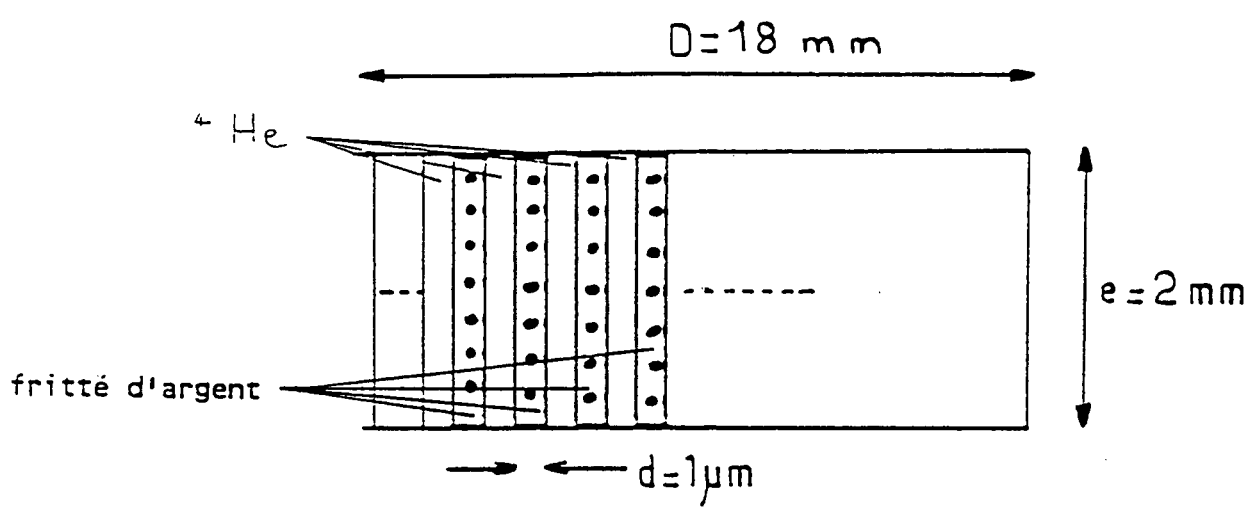


Figure IV-5 : Modélisation sommaire du fritté d'argent.

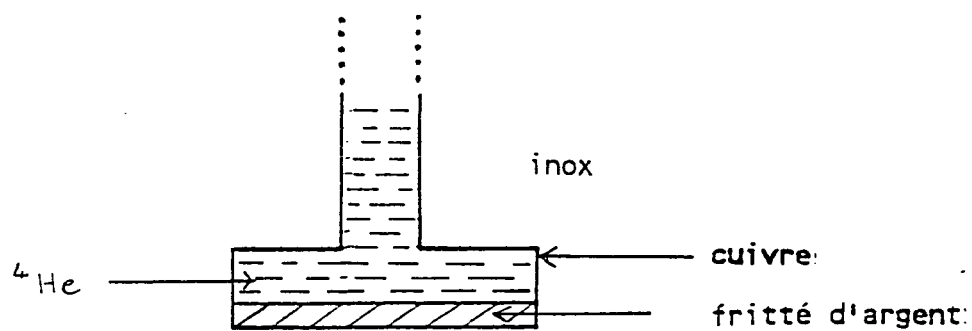


Figure IV-6 : Détail de la partie inférieure du tube en inox de l'interrupteur.

du fritté), que nous prendrons égale à 50 mK, et $T_{4\text{He}}$ celle de l' ^4He contenu dans l'interrupteur (figure IV-6). Nous prendrons une résistance de Kapitza R_K telle que :

$$R_K = \frac{5 \times 10^{-2}}{T^3 S} \quad \text{K/W}$$

avec :

S interface ^4He -argent (m^2)

T en Kelvin

En l'absence de fritté, S est de l'ordre de $7 \times 10^{-4} \text{ m}^2$, et par conséquent $T_{4\text{He}}$ est d'environ 400 mK. Grâce au fritté, $T_{4\text{He}}$ n'est plus que 70 mK. Dans la suite de nos calculs, nous négligerons donc systématiquement l'impédance thermique due à la résistance de Kapitza entre l' ^4He et l'argent devant toutes les autres impédances entre la boîte à mélange et l'échantillon polarisé.

IV -B.2) TEMPERATURE MINIMUM DU LIQUIDE POLARISE

Elle dépend essentiellement de trois paramètres

- * Les pertes thermiques sur la cellule expérimentale
- * La résistance de Kapitza R_K entre l' ^3He et le pyrex

Cette résistance dépend peut être de l'aimantation \mathcal{M} du liquide. Comme il n'existe aucune mesure de R_K en fonction de \mathcal{M} , nous utiliserons les valeurs connues pour l' ^3He normal. Elles sont bien reproduites par la relation suivante :

$$R_K = \frac{3.10^{-3}}{S T^3} \quad \text{K/W}$$

avec S surface de contact entre le liquide et le verre.

- * La résistance thermique R_p du pyrex.

la résistivité r_p du pyrex est donnée approximativement par la relation :

$$r_p \simeq \frac{67}{T^{1,7}} \quad \text{Km/W}$$

Sa résistance associée R_p vaut alors :

$$R_p \simeq r_p \frac{\ell}{S'} \quad K/W$$

avec:

S' surface moyenne de la paroi de la cellule

ℓ épaisseur de la paroi : $\ell = 1,5 \times 10^{-3}$ m (figure IV-7)

Les diamètres externe (resp. interne) de la cellule étant 6 mm (resp. 3 mm), S' est de l'ordre de $1,4 \times 10^{-4}$ m². On en déduit que :

$$R_p \simeq \frac{718}{T^{1,7}} \quad K/W$$

Calcul

Nous utilisons la relation bien connue de propagation de la chaleur :

$$Q = \int_{T_{bm}}^{T_\ell} K(T) dT \quad (IV - 1)$$

où

Q représente les pertes thermiques

T_{bm} et T_ℓ respectivement les températures de la boîte à mélange et du liquide polarisé.

$K(T)$ la conductivité thermique entre ces deux milieux.

$K(T)$ résulte de la mise en série des deux conductivités thermiques présentées plus haut. Nous négligeons l'impédance thermique liée à l'interrupteur lui-même.

Résultats

Les calculs ont été menés pour deux valeurs différentes de pertes thermiques, ainsi que pour diverses surfaces d'échange liquide-verre.

Les résultats sont présentés dans le tableau ci-dessous.

$$Q = 1 \mu W$$

S_{mm^2}	$T_{liquide}(mK)$
100	124
50	137
25	156
10	190
1	332

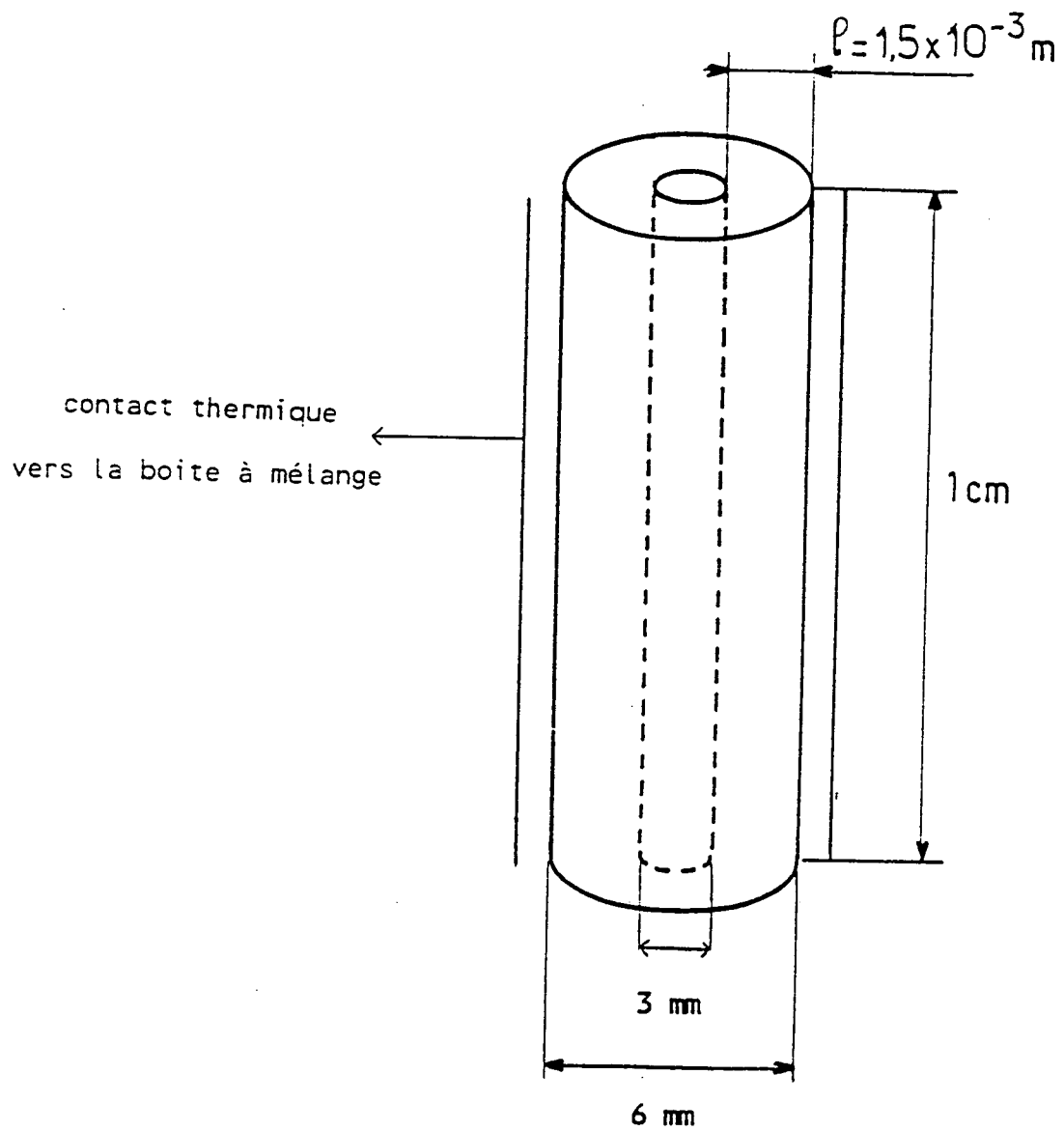


Figure IV-7 : Détail de la partie de la cellule expérimentale en contact thermique avec l'inter-rupteur de chaleur.

$$Q = 5 \mu\text{W}$$

S_{mm^2}	$T_{\text{liquide}}(\text{mK})$
100	202
50	218
25	243
10	290
1	497

Les températures calculées pour $Q=1 \mu\text{W}$ représentent une borne inférieure aux valeurs expérimentales. En effet $1\mu\text{W}$ correspond uniquement au flux de chaleur transporté dans le pyrex et provenant des régions plus chaudes de la cellule. Nous verrons que $5 \mu\text{W}$ constitue la borne supérieure aux pertes thermiques (ceci sera confirmé expérimentalement) .

La taille de l'interface $^3\text{He} - \text{pyrex}$ influence considérablement la température du liquide. Nous supposons que la surface intervenant au cours du refroidissement est maximum ($\sim 100 \text{ mm}^2$). On peut justifier ceci de la façon suivante : si l' ^3He se condensait sur une étendue restreinte, la chaleur latente libérée causerait son évaporation, la puissance thermique ne pouvant s'évacuer efficacement vers la boîte à mélange. Cette hypothèse n'est exacte que si la durée caractéristique d'écoulement du liquide dans le fond de la cellule ($\sim 1 \text{ min.}$ d'après [6]) est supérieure à son temps de refroidissement. Nous vérifierons a posteriori que c'est bien le cas. D'après nos calculs, on s'attend alors à une température minimum de l' ^3He de l'ordre de 200 mK.

IV -B.3) TEMPS CARACTERISTIQUE DE REFROIDISSEMENT DE L' ^3He

Pour notre calcul, nous décomposerons le refroidissement de la cellule expérimentale par le réfrigérateur à dilution en trois étapes :

- 1) Refroidissement du gaz de 2 K à la température de liquéfaction
- 2) Condensation du gaz
- 3) Refroidissement du liquide vers la température de travail souhaité.

Première étape : Refroidissement du gaz de 2 K à la température de liquéfaction.

Il s'agit de savoir tout d'abord à quelle température l' ^3He se condense.

En estimant le profil de température dans la cellule, dont la géométrie est par ailleurs connue, on peut calculer la pression qui y règne en fonction de la température T de la partie expérimentale (connaissant la pression de remplissage). L'intersection de la courbe $P(T)$ avec la courbe de pression de vapeur saturante détermine à quelle température $T_{\text{liqué}}$ la liquéfaction débute (figure IV-8). On trouve $T_{\text{liqué}} \simeq 0,55$ K pour une cellule identique à celle décrite dans le chapitre II.

Le temps d'équilibrage thermique τ entre deux milieux est donné par la relation [27] :

$$\tau = R_t \frac{C_1 + C_2}{C_1 C_2} \quad (\text{IV} - 2)$$

avec:

R_t résistance thermique entre les deux matériaux

C_1 et C_2 leur chaleur spécifique respective.

La relation IV-2 n'est en fait valable que si la différence de températures initiale entre les deux milieux est suffisamment faible pour assimiler R_t , C_1 et C_2 à des constantes. Nous l'utiliserons néanmoins, étant conscients que le résultat ne nous fournira qu'un ordre de grandeur de τ . Dans l'hypothèse où C_1 est négligeable devant C_2 , on a simplement :

$$\tau \simeq R_t C_1 \quad (\text{IV} - 3)$$

Dans notre cas, R_t est la résistance thermique du pyrex (résistance dominante devant toutes les autres dans la gamme de température 0,55 K - 2 K). C_1 est la chaleur spécifique de ${}^3\text{He}$ gazeux (chaleur spécifique faible devant toutes les autres). Entre 2 K et 0,55 K, la densité de ${}^3\text{He}$ dans la cellule est telle que ses propriétés thermodynamiques sont régies par la statistique classique. ($C_1 = 5/2 R$ J/mol K, avec $R = 8,314$ J/mol.K). En supposant que tout ${}^3\text{He}$ est contenu dans le volume froid de la cellule (qui s'étend sur 1 cm), on trouve alors que :

$$C_1 = 5,6 \times 10^{-4} \text{ J/K}$$

Le temps caractéristique de refroidissement est alors de l'ordre de la seconde. En pratique, tout le gaz n'est pas confiné dans la zone délimitée par le contact thermique

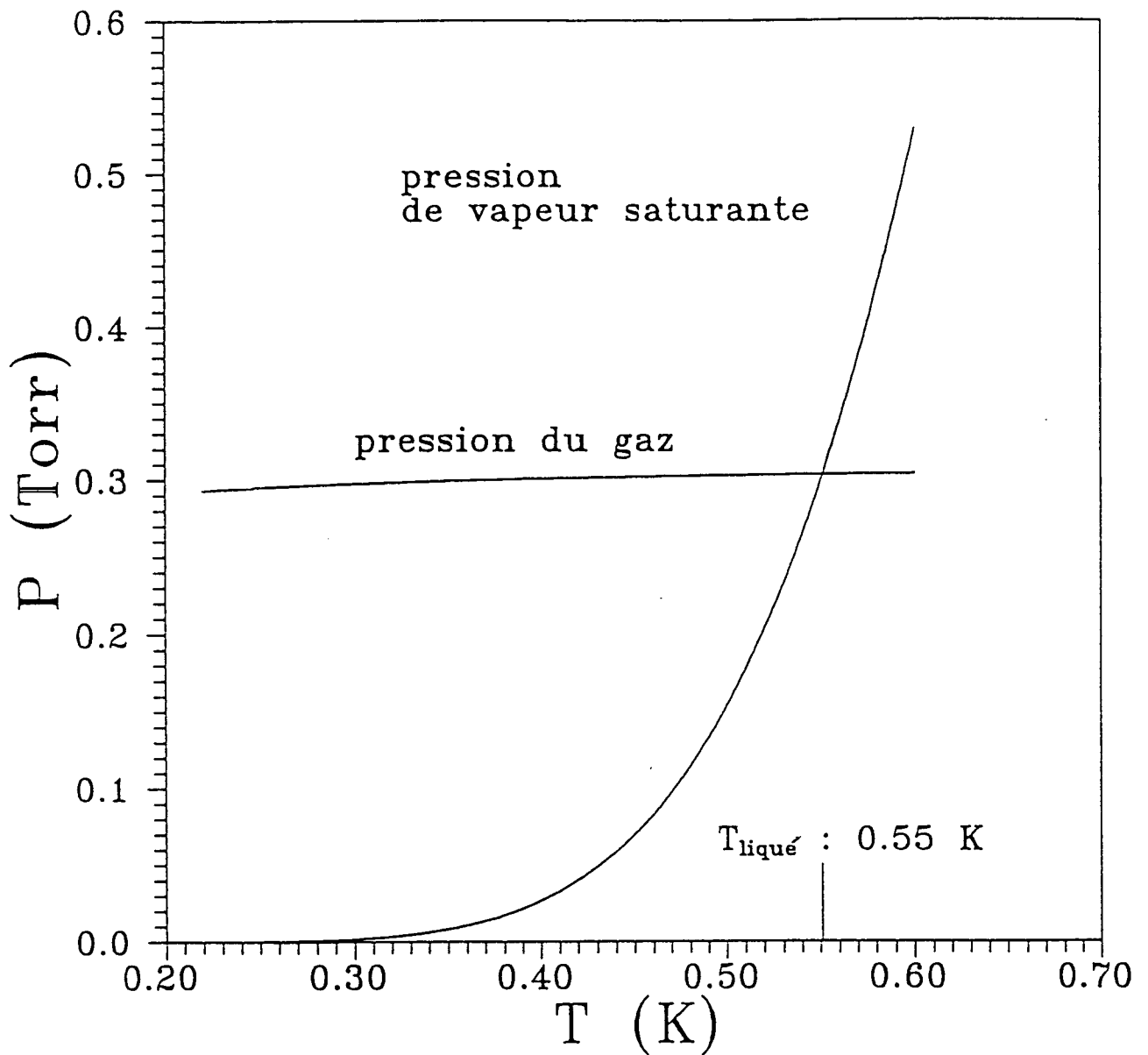


Figure IV-8 : Détermination de la température de liquéfaction $T_{\text{liqué}}$ de ${}^3\text{He}$.

P_{gaz} est la pression de ${}^3\text{He}$ pour une température T de la cellule expérimentale. La pression de vapeur saturante est tirée de [45].

vers la dilution. Au moment où le contact thermique est établi, la majorité de l'³He se trouve dans la boule à 4,2 K. Si le temps d'écoulement des atomes entre cette région et la cellule expérimentale est supérieure à typiquement 1 seconde, c'est ce processus de transfert qui déterminera la vitesse de refroidissement du gaz. Nous allons donc calculer un ordre de grandeur.

Temps d'écoulement des atomes entre la boule à 4,2 K et la cellule expérimentale

Considérons la situation représentée sur la figure IV-9. Compte tenu de nos conditions expérimentales de pression et de température, le libre parcours moyen de l'³He est inférieur au diamètre de la cellule (régime visqueux) [56].

Dans ce cas, nous pouvons utiliser la relation habituelle de perte de charge dans un tube cylindrique. A chaque instant t , on a :

$$\frac{dP(t)}{dz} = -\eta \times \frac{128}{\pi d^4} \times \frac{RT}{P(t)} n(t) \quad (\text{IV} - 4)$$

η viscosité du gaz (Poiseuille) (les données numériques sont tirées de [56])

d diamètre du tube reliant la boule B à la cellule expérimentale (m)

n flux du gaz (mol/s)

T température de la cellule (K)

P pression à l'abscisse z (Pa)

R constante des gaz parfaits

Pour résoudre l'équation IV-4, nous supposons une température T uniforme dans la boule B ainsi que dans le tube la reliant à la cellule expérimentale. La température de cette dernière sera prise égale à 550 mK. Nous fixerons un flux d'atomes $n(t)$ également uniforme à chaque instant. En négligeant la pression qui règne dans la cellule expérimentale (pression de vapeur saturante faible car basse température) on trouve que :

$$P_1^2(t) = -1,2 \times 10^7 n(t) \quad \text{pour } T = 4 \text{ K}$$

$$P_1^2(t) = -4 \times 10^5 n(t) \quad \text{pour } T = 0,5 \text{ K}$$

où $P_1(t)$ est la pression qui règne dans la boule B à un instant t .

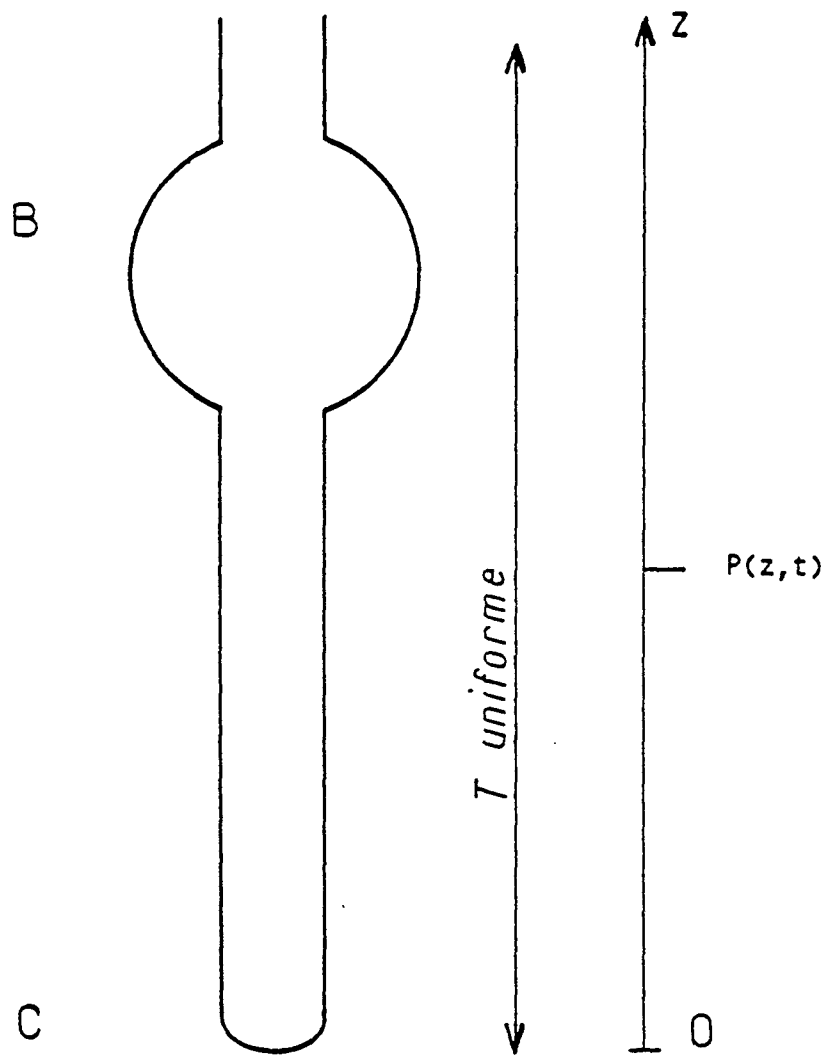


Figure IV-9 : Modélisation de la cellule pour le calcul du temps d'écoulement des atomes entre B et la cellule expérimentale C.

De la relation : $\frac{dP_1}{dt} V_1 = nRT$ (V_1 volume de la boule B)

On arrive à :

$$\begin{aligned} \frac{dP_1}{dt} &= 0,2P_1^2 \quad (T = 4K) \\ \frac{dP_1}{dt} &= 0,7P_1^2 \quad (T = 0,5K) \end{aligned} \quad (IV - 5)$$

La résolution de IV-5 conduit finalement à :

$$\begin{aligned} \frac{1}{P_1(t)} &= 0,2t + \frac{1}{P_1^0} \quad (T = 4 K) \\ \frac{1}{P_1(t)} &= 0,7t + \frac{1}{P_1^0} \quad (T = 0,5 K) \end{aligned}$$

où P_1^0 est la pression initiale dans la boule à 4,2 K : $P_1^0 \simeq 0,3$ torrs.

En définitive, 99% des atomes d' ^3He sont dans la cellule expérimentale au bout d'une durée typique comprise entre 1 s et 10 s, valeurs qui correspondent à deux situations extrêmes (T respectivement égale à 0,5 K et 4 K).

La conclusion de ces estimations est que le gaz d' ^3He devrait pouvoir être refroidi de 2 K à 0,5 K en moins d'une dizaine de secondes.

Deuxième étape : Condensation du gaz.

Nous allons maintenant estimer le temps mis par l' ^3He pour se liquéfier. On supposera une température de liquéfaction constante.

Nous partons de la relation :

$$Q = \int_{T_{\text{bm}}}^{T_{\text{liqué}}} K(T) dT$$

$T_{\text{liqué}}$: température de liquéfaction de l' ^3He (0,55 K)

T_{bm} : température de la boîte à mélange (de l'ordre de 0,05 K)

Nous ne faisons intervenir que les résistances thermiques dominantes :

* Résistance de Kapitza entre l' ^3He et le pyrex

* Résistance thermique du pyrex

Lors de la liquéfaction du gaz, la surface de contact entre l'³He et le verre est maximum : $S \simeq 100 \text{ mm}^2$. On trouve alors qu'un flux d'environ $95 \mu\text{W}$ peut circuler entre l'³He et la boîte à mélange.

Compte tenu de la chaleur latente de liquéfaction de l'³He (nous prenons la valeur correspondant à l'³He non polarisé : $L=30 \text{ J/mol}$ à $0,55 \text{ K}$ [56], $2,7 \cdot 10^{-5} \text{ mole d}'^3\text{He}$), on calcule un temps caractéristique de liquéfaction de l'³He est de l'ordre de la dizaine de secondes.

Troisième étape : Refroidissement du liquide vers la température minimum souhaitée.

Il reste à évaluer le temps de refroidissement du liquide de $0,55 \text{ K}$ à sa température minimum. Notre point de départ est à nouveau la relation IV-3 :

$$\tau = R_t C_\ell$$

C_ℓ est la chaleur spécifique de l'³He liquide : $C_\ell \simeq 5,4 \times 10^{-4} T \text{ J/K}$ [56] (valeur de l'³He non polarisé).

R_t est la somme de la résistance thermique du pyrex et de la résistance de Kapitza entre l'³He liquide et le pyrex :

$$R_t \simeq \frac{700}{T^{1,7}} + \frac{3 \times 10^{-3}}{ST^3} \quad \text{K/W}$$

Pour une température minimum du liquide de 200 mK et une surface S de 100 mm^2 , on trouve un temps de l'ordre de 10 s . L'hypothèse faite concernant la surface intervenant dans le refroidissement de l'³He est par conséquent justifiée. On s'attend en particulier à ce que l'³He se condense sur les parois verticales du pyrex et soit refroidi avant de s'écouler dans le fond de la cellule puisque la durée totale de ces opérations ($\sim 30 \text{ s}$) est inférieure au temps d'écoulement du liquide ($\sim 1 \text{ min.}$). L'étude RMN présentée dans le chapitre suivant confirmera cette interprétation.

IV -B.4) LIMITATIONS DE L'INTERRUPTEUR

Plaçons nous dans la configuration "interrupteur ouvert", et calculons la température de la cellule expérimentale dans l'hypothèse où la chaleur ne circule que dans les parois en inox. Les données nécessaires au calculs sont choisies comme suit :

Pertes thermiques : $5 \mu\text{W}$

Température de la partie inférieure du tube inox : 100 mK

Conductivité thermique de l'inox : $K = 0,14.T \text{ W/Km}$ [27]

Nous déduisons une température de l' ^3He gazeux de l'ordre de 850 mK. Dans le cadre de l'hypothèse citée plus haut, il suffirait de chauffer le sommet de l'interrupteur avec une puissance modérée ($\sim 15 \mu\text{W}$, ce qui ne constitue pas une gêne pour le fonctionnement de la dilution) pour élever la température de la cellule expérimentale à 1,5 K. Rappelons que c'est une température favorable pour un pompage optique efficace.

La situation idéale que nous venons de présenter omet un processus physique important. Il faut garder en tête que la partie A de l'interrupteur (voir figure IV-1) contient en permanence de l' ^4He superfluide. Nous savons donc qu'il existe un film superfluide recouvrant les parois internes du tube inox. Le gradient de température entre les parties supérieure et inférieure du tube a pour conséquence de mettre le film en mouvement vers les zones les plus chaudes, ceci en vertu de l'uniformité du potentiel chimique de l' ^4He superfluide (voir chapitre VI). Si la température est suffisamment élevée, le film s'évapore. Le gradient de température ainsi créé entre les deux extrémités du tube dirige le contre flux de gaz vers les zones plus froides, où il se recondense. Ce processus peut transporter très efficacement la chaleur, grâce à l'importante chaleur latente de l' ^4He . On pourra en trouver une modélisation dans l'annexe. Nous ne reportons ici que les résultats permettant une meilleure compréhension des évènements.

La figure IV-10 représente l'impédance thermique associée au processus évaporation-condensation en fonction de la température, compte tenu des dimensions géométriques de l'interrupteur (on a tracé la différence de température par unité de longueur et de puissance thermique). A titre de comparaison, nous avons inséré sur la même figure l'impédance thermique du tube inox, ainsi que celle d'un barreau de cuivre de 3,6 mm de diamètre. Au-dessus de 520 mK, la conduction de la chaleur dans l'interrupteur est assurée principalement par le processus évaporation-condensation. On peut remarquer qu'à plus haute température, ce processus est largement plus efficace que la conduction à travers un barreau de cuivre, matériau pourtant classé parmi les très bons conducteurs de chaleur.

A l'aide du modèle développé dans l'annexe, nous allons calculer le profil de température le long du tube inox de l'interrupteur. Signalons tout d'abord que ce modèle ne

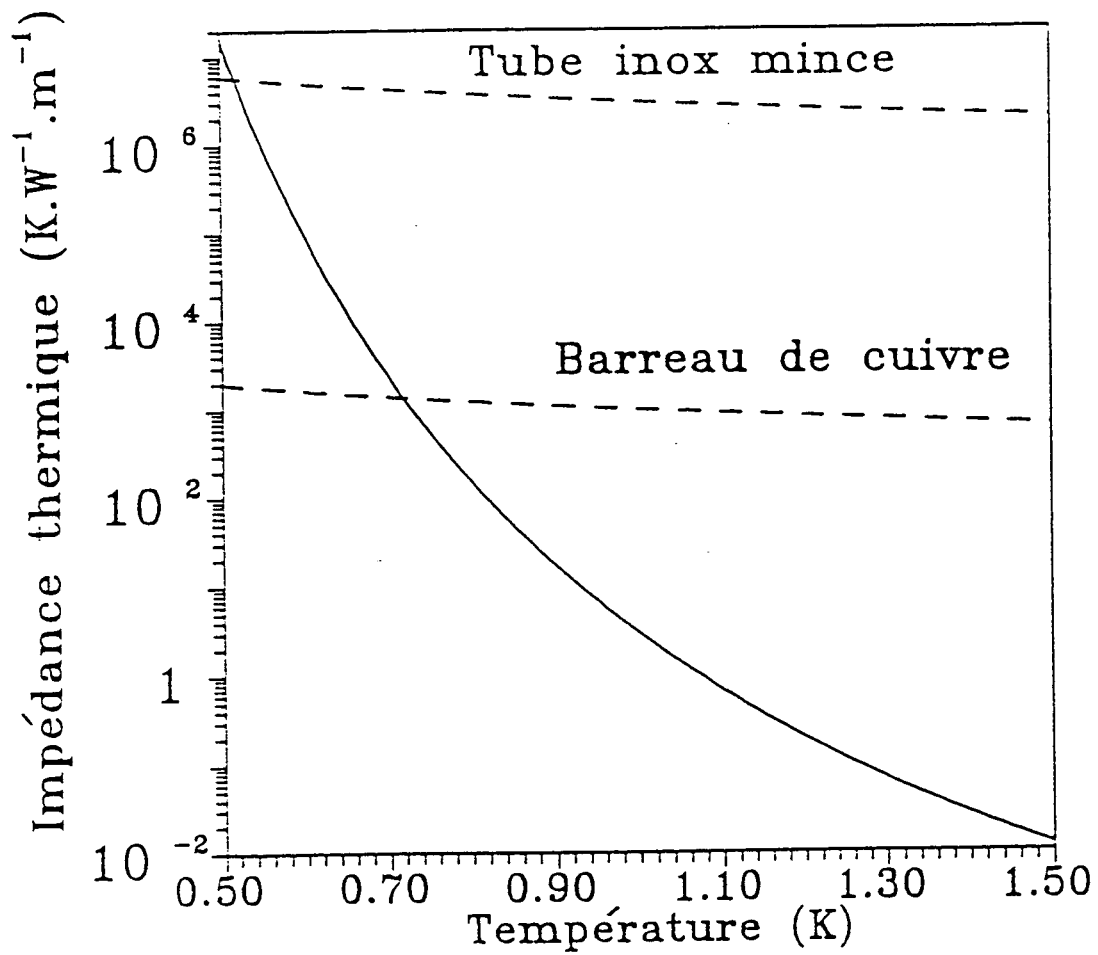


Figure IV-10 : Variation en fonction de la température de l'impédance thermique associée au processus évaporation-condensation.

Pour comparaison, on a également représenté l'impédance thermique d'un tube d'inox de diamètre $4 \times 3,6$ mm, ainsi que d'un barreau de cuivre de diamètre 3,6 mm [27].

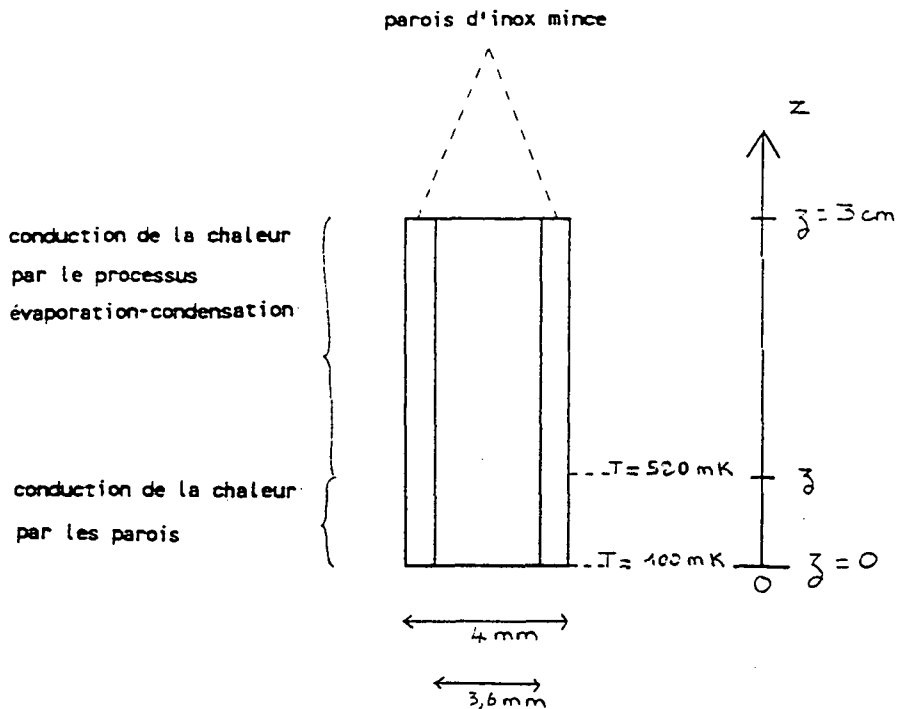


Figure IV-11 : Modélisation du tube en inox de l'interrupteur, pour le calcul de son profil de température.

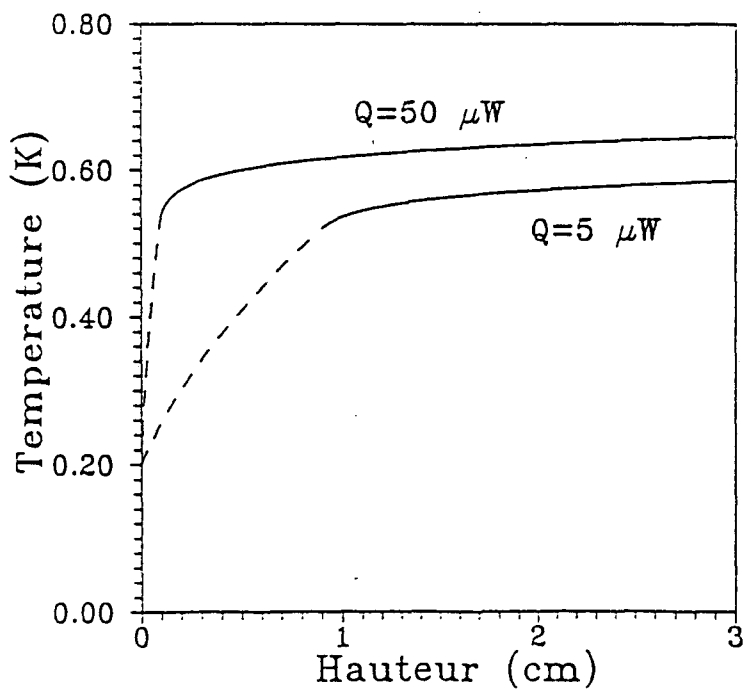


Figure IV-12 : Profil de température dans le tube en inox de l'interrupteur, pour deux puissances thermiques : $5 \mu W$ et $50 \mu W$.

Les courbes en pointillé correspondent à une conduction thermique par l'inox, celles en trait plein à la conduction par le processus évaporation-condensation d'un film d' 4He superfluide.

prend pas en compte la conductivité thermique des parois du volume contenant l'hélium. Dans notre cas particulier, son domaine de validité se situe au-dessus de 520 mK. En effet, en dessous de 520 mK, la chaleur est principalement transportée par l'inox. Nous avons donc modélisé notre interrupteur de la façon suivante (figure IV-11) : nous supposons qu'entre le bas du tube ($z = 0, T_0 \sim 100$ mK) et la hauteur z_i correspondant à une température T_i de 520 mK, la chaleur circule dans l'inox. Connaissant sa conductivité thermique ainsi que ses dimensions, on déduit le profil de températures $T(z)$ entre 0 et z_i . Pour la distance restante, nous utilisons le modèle de l'annexe.

Les résultats sont représentés sur la figure IV-12. Les deux courbes correspondent respectivement à des pertes thermiques de $5 \mu\text{W}$ et $50 \mu\text{W}$. La constatation qui s'impose est que la température du sommet du tube est relativement basse (~ 600 mK) quelle que soit la puissance thermique appliquée. Si notre modèle est exact, ce phénomène constituerait une sérieuse limitation à l'obtention de forts taux de polarisation du gaz

CONCLUSION

Rappelons que les calculs effectués précédemment ne prétendent pas être exacts. Néanmoins nous pouvons avoir confiance dans les ordres de grandeurs trouvés. En définitive, il paraît possible de condenser et refroidir jusqu'à environ 200 mK de l' ^3He polarisé en moins d'une minute. Sous réserve d'une polarisation initiale du gaz élevée, l'aimantation du liquide obtenu devrait être en principe suffisante pour une étude intéressante. L'opération de mise en contact thermique entre la cellule et la boîte à mélange respecte donc en théorie nos contraintes expérimentales. Le phénomène qui sera à vérifier concerne l'interrupteur thermique **en position ouverte**. Nous verrons dans le chapitre suivant que les mesures expérimentales confirment le résultat présenté dans le paragraphe IV-B.4, c'est-à-dire une trop forte conductivité thermique de l'interrupteur en position ouverte par rapport à nos exigences expérimentales.

CHAPITRE V

CARACTERISATION DU MONTAGE EXPERIMENTAL

V - A AMAGNETISME DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les premières expériences que nous avons réalisées ont consisté à vérifier que notre ensemble expérimental était suffisamment peu magnétique pour ne pas perturber la carte du champ \mathbf{B}_0 sur la cellule. Nous avons utilisé pour cela une cellule test remplie d' ^3He pur, semblable à celle décrite dans le chapitre II. Une cellule analogue a été étudiée dans le cryostat à ^3He de notre laboratoire [6] [9]. Nous utiliserons les résultats obtenus dans cet autre montage à titre de comparaison.

Pour cette étude particulière, nous n'avons pas employé l'interrupteur thermique du chapitre IV. La cellule expérimentale et la boîte à mélange sont directement reliées par un faisceau de fils de cuivre : dans une telle configuration, nous ne tenterons pas de liquéfier l' ^3He gazeux polarisé.

V -A.1) ETUDE PAR RMN DU GAZ POLARISE - PROCEDURE

De manière maintenant habituelle au laboratoire (voir par exemple [5], [6], [30]), nous caractérisons nos échantillons polarisés par une technique standard de résonance magnétique nucléaire pulsée. L'aimantation initialement parallèle à \mathbf{B}_0 est basculée d'un angle α par une impulsion de champ (\mathbf{B}_1) dont la fréquence est égale à la fréquence de Larmor ω_0 . Dans nos expériences, $\omega_0 \simeq 13$ kHz. On observe ensuite le signal de précession libre de l'aimantation transverse ainsi créée grâce à une paire de bobines détectrices placée au voisinage de la cellule. Nous avons installé deux équipages RMN : l'un autour de la cellule expérimentale, l'autre autour de la boule à 4,2 K. Dans les deux cas, le dispositif est semblable à celui qui est décrit dans le chapitre VIII-C-2. Le basculement de l'aimantation est géré par un micro-ordinateur, qui stocke en outre les données numériques après conversion des signaux électriques induits aux bornes des bobines détectrices. L'amplitude d'un signal de précession est proportionnelle à l'aimantation transverse. Si l'on désire connaître le taux de polarisation du gaz dans la boule à 4,2 K ou dans la cellule expérimentale, on peut alors calibrer les signaux pour en déduire l'aimantation longitudinale (sous réserve de connaître l'angle de basculement) [6].

V -A.2) RELAXATION NUCLEAIRE TRANSVERSE

Les figures V-1 et V-2 montrent des signaux RMN obtenus respectivement pour une température de la cellule expérimentale de 4,2 K et 1 K. Ils correspondent aux composantes du signal électrique en phase et en quadrature par rapport à la fréquence de référence de la détection synchrone (proche de la fréquence de Larmor imposée par B_0). Les inhomogénéités de champ magnétique sur la cellule influencent la durée de vie du signal transverse. En règle générale, il est difficile d'évaluer un tel temps. Nous pouvons toutefois le calculer dans certaines hypothèses.

* **Théorie dite du rétrécissement par le mouvement** (voir par exemple [43]).

On sait que dans ce cas, la relaxation nucléaire transverse suit une loi exponentielle en e^{-t/T_2} , T_2 étant défini comme suit [57] :

$$\frac{1}{T_2} = (\gamma \delta B_0)^2 \tau_1 \quad (\text{s}^{-1}) \quad (\text{V} - 1)$$

avec :

δB_0 (Gauss) inhomogénéité de B_0 sur la cellule expérimentale (en fait partie de la cellule située dans la zone de sensibilité des bobines réceptrices).

τ_1 temps de diffusion (en seconde) de l'aimantation du mode le plus lentement amorti (voir VII-B.2).

γ rapport gyromagnétique ($|\gamma| = 3,24 \text{ kHz/Gauss}$).

Les enregistrements présentés sur les figures V-1 et V-2 ne présentent pas une décroissance purement exponentielle. Nous allons néanmoins nous placer dans le cadre de la théorie du rétrécissement par le mouvement pour calculer δB_0 .

Nous devons tout d'abord connaître la valeur de τ_1 pour une cellule cylindrique. On pourra se référer au paragraphe VII -B.2 pour le calcul. On trouve :

$$\tau_1 = \frac{\ell^2}{D_0 \pi^2} \quad (\text{seconde}) \quad (\text{V} - 2)$$

avec :

ℓ longueur de la partie de la cellule dans la zone de sensibilité des bobines de détection (cm)

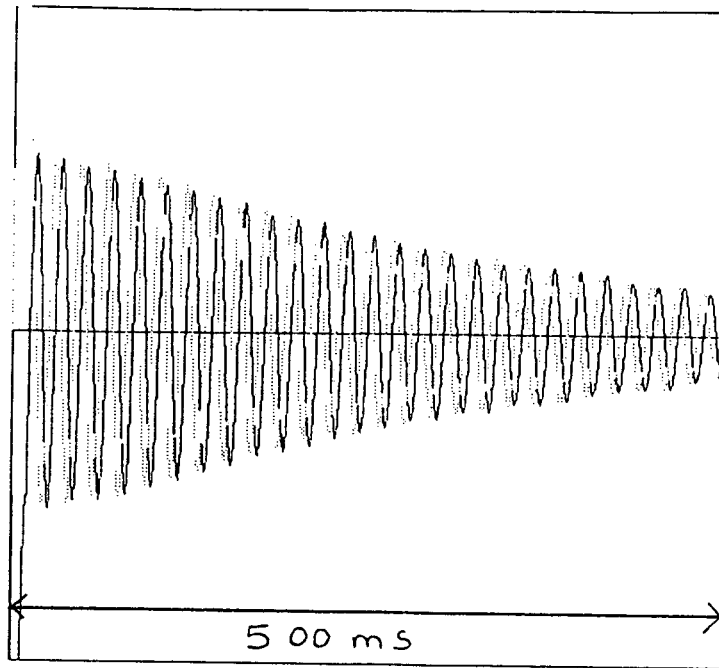


Figure V-1 : Signal de précession de l'aimantation dans la cellule expérimentale ($T=4,2$ K angle de basculement $\sim \pi/13$). Temps d'acquisition des données 500 ms.

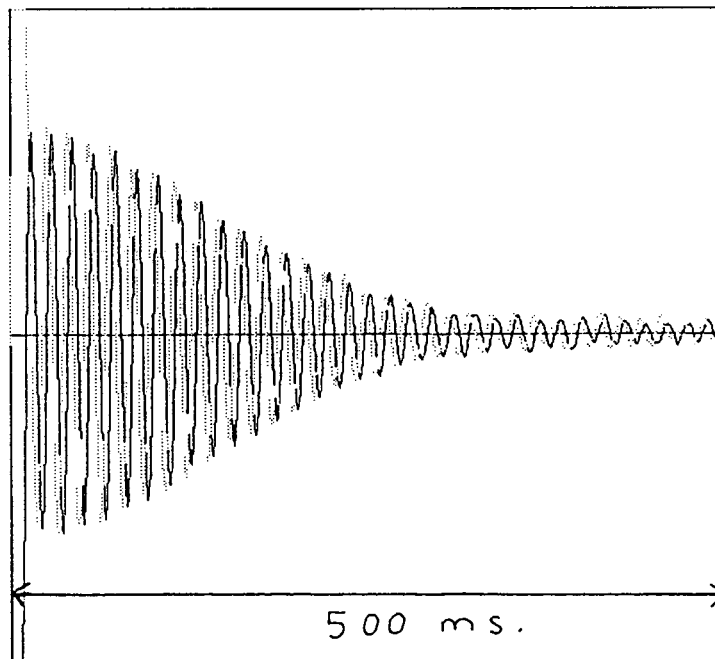


Figure V-2 : Signal de précession libre de l'aimantation dans la cellule expérimentale ($T=1$ K, angle de basculement $\sim \pi/13$). Temps d'acquisition des données 500 ms.

D_0 coefficient de diffusion des spins (cm^2/s)

Pour une densité correspondant à une pression de 1 torr à 300 K, les données expérimentales de D_0^0 [58] sont assez bien reproduites par la formule suivante :

$$D_0^0 = 56 T^{0,75} \text{ cm}^2/\text{s}$$

Comme D_0 est inversement proportionnel à la densité, on arrive finalement à :

$$D_0 = 25 \frac{T^{1,75}}{P} \text{ cm}^2/\text{s}$$

avec :

P pression (Pascal)

T température (Kelvin)

De l'équation V-2 on déduit le temps de diffusion de l'aimantation du mode le plus lent. Pour $\ell \simeq 1$ cm et $P = 0,3$ torr (40 Pa) (pression régnant dans la cellule), on trouve que $\tau_1 \simeq 10$ ms à 4,2 K et $\tau_1 \simeq 160$ ms à 1 K. La durée de vie du signal transverse à 4,2 K (voir figure V-1) est de l'ordre d'une seconde. De la formule V-1, on déduit que $\delta B_0 \simeq 3 \times 10^{-3}$ Gauss sur la cellule expérimentale. Pour une température de 1 K, le signal s'annule en environ 350 ms. En remplaçant τ_1 par sa valeur à 1 K ($\tau_1 = 0,16$ s) et en utilisant encore une fois la formule V-1, on arrive à $\delta B_0 \sim 10^{-3}$ Gauss sur un cm.

Il n'est pas étonnant de trouver deux valeurs légèrement différentes de δB_0 . En effet, nous pouvons constater sur la figure V-2 que la décroissance de l'aimantation transverse ne suit pas une loi exponentielle. Ceci indique qu'à une température d'1 K, nous ne sommes pas dans les conditions de rétrécissement par le mouvement. En conséquence, le calcul de δB_0 à partir de la formule V-1 ne peut être qu'approximatif. En revanche pour une température de 4,2 K, il semble correcte d'utiliser la relation V-1 pour calculer δB_0 . Une manière de le vérifier consiste à évaluer le produit $\gamma \delta B_0 \tau_1$, qui est très inférieur à 1 si nous sommes dans les conditions d'application de la théorie du rétrécissement par le mouvement. Pour $T = 4,2$ K ($\tau_1 \sim 10$ ms, $\delta B_0 \sim 3 \cdot 10^{-3}$ Gauss) $\gamma \delta B_0 \tau_1 \sim 0,1$. L'hypothèse adoptée était par conséquent justifiée. L'inhomogénéité de B_0 sur la cellule expérimentale et donc d'environ 10^{-3} Gauss par cm.

Elle est du même ordre de grandeur que la valeur mesurée par G. Tastevin [6] dans son propre ensemble expérimental. Ceci indique que notre cryostat perturbe peu la

carte du champ magnétique statique sur la cellule. Nous allons le confirmer en calculant δB_0 dans un autre cas limite

***Les spins sont immobiles.**

Dans cette hypothèse, une échelle de temps caractéristique de déphasage entre extrémités de l'échantillon est donnée par :

$$\frac{1}{T^*} = \gamma \delta B_0 \quad (\text{s}^{-1}) \quad (\text{V} - 3)$$

δB_0 calculé par la formule V-3 ne dépasse pas 10^{-3} Gauss/cm (valeur obtenue pour $T^* = 350$ ms à 1 K).

En conclusion, la valeur des inhomogénéités de champ magnétique calculée dans les hypothèses présentées précédemment montrent que notre cryostat offre des propriétés d'amagnétisme satisfaisantes.

V -A.3) RELAXATION NUCLEAIRE LONGITUDINALE

Il s'agit de vérifier que T_1 est suffisamment long pour obtenir un fort taux de polarisation du gaz. Pour cela, le pompage optique est arrêté, et nous suivons au cours du temps l'évolution de l'aimantation soit dans la boule à 4,2 K, soit dans la cellule expérimentale. Signalons que cette méthode ne nous donne pas directement le temps de relaxation nucléaire T_1 "local" dans la boule à 4,2 K ou dans la cellule expérimentale. Les atomes peuvent en effet diffuser entre les différentes parties de la cellule. Nous ne mesurons ainsi qu'un temps "moyen" d'annulation de la polarisation. Nous pouvons néanmoins déduire T_1 dans la boule à 4,2 K ou bien dans la cellule expérimentale sous réserve de connaître les temps caractéristiques de diffusion des atomes dans la cellule [42]. Dans toute la suite de ce mémoire, nous appellerons toutefois T_1 le temps "moyen" d'annulation de la polarisation. Nous avons mesuré T_1 pour différentes températures de la cellule expérimentale T_{exp} . Pour $T_{\text{exp}} = 4,2$ K, il nous est arrivé d'observer des T_1 aussi longs que plusieurs heures (jusqu'à 7 h). Pour $T_{\text{exp}} \simeq 1,5$ K, T_1 est ramené à environ 2 h. Pour 1 K, $T_1 \simeq 1$ h30 min et à 600 mK, T_1 n'est plus que 25 min. Dans la théorie du rétrécissement par le mouvement, nous rappelons qu'un temps de relaxation longitudinal causé par la seule présence de gradients de champ magnétique est donné par :

$$T_{1m} = \frac{1 + (\gamma B_0 \tau_1)^2}{\gamma^2 (\delta B_0)^2 \tau_1}$$

Pour $\delta B_0 = 10^{-3}$ Gauss, T_{1m} vaut plusieurs jours. En outre, il dépend peu de la température. Il est par conséquent clair que nous mesurons des T_1 dominés par la relaxation sur les parois de la cellule. Signalons que les données présentées ici peuvent diminuer notablement si la procédure de fabrication de l'enduit cryogénique est trop rapide.

En conclusion, si pendant la procédure de pompage optique la température de la cellule expérimentale était d'environ 1,5 K, T_1 (~ 2 h) serait très supérieur au temps caractéristique de diffusion des atomes entre le volume à 300 K et la boule à 4,2 K (~ 15 min). Par conséquent, nous serions capables de stocker du gaz fortement polarisé dans ce volume. Notre ensemble expérimental est donc suffisamment amagnétique pour procéder à l'étude de l' ^3He polarisé. Il s'agit maintenant de savoir si les performances de l'interrupteur thermique sont conformes à ce que nous avons prévu dans le chapitre IV. Nous le caractériserons au cours du paragraphe suivant. Pour cela, nous étudierons la cellule d' ^3He pur déjà utilisée pour présenter les résultats de ce paragraphe.

V - B TEST DE L'INTERRUPTEUR THERMIQUE

V -B.1) TEMPS DE REFROIDISSEMENT - TEMPERATURE MINIMUM ACCESSIBLE

Une résistance en carbone (Matsushita 100 Ω) équipe la partie supérieure de l'interrupteur, dont nous connaissons ainsi la température (figure V-3) . Nous avons enregistré la variation de sa valeur lors de la mise en contact thermique de la cellule expérimentale avec la boîte à mélange (figure V-4). On constate qu'elle passe de 470 mK (interrupteur ouvert) à 210 mK au bout de 45 s. Le temps de refroidissement de la cellule expérimentale est alors compatible avec ce que nous avons calculé au cours du chapitre IV.

Evaluons à présent la température du liquide formé. le calcul requiert la connaissance de la valeur des pertes thermiques amenées par la cellule sur la boîte à mélange. Nous les déterminons par comparaison des températures minimales observées avec et sans contact thermique avec la cellule expérimentale.

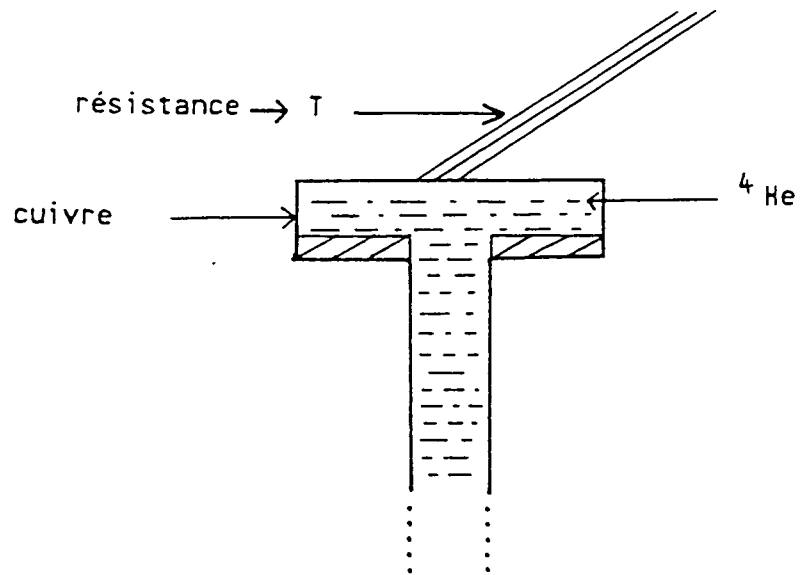


Figure V-3 : Détail de la partie supérieure de l'interrupteur thermique.

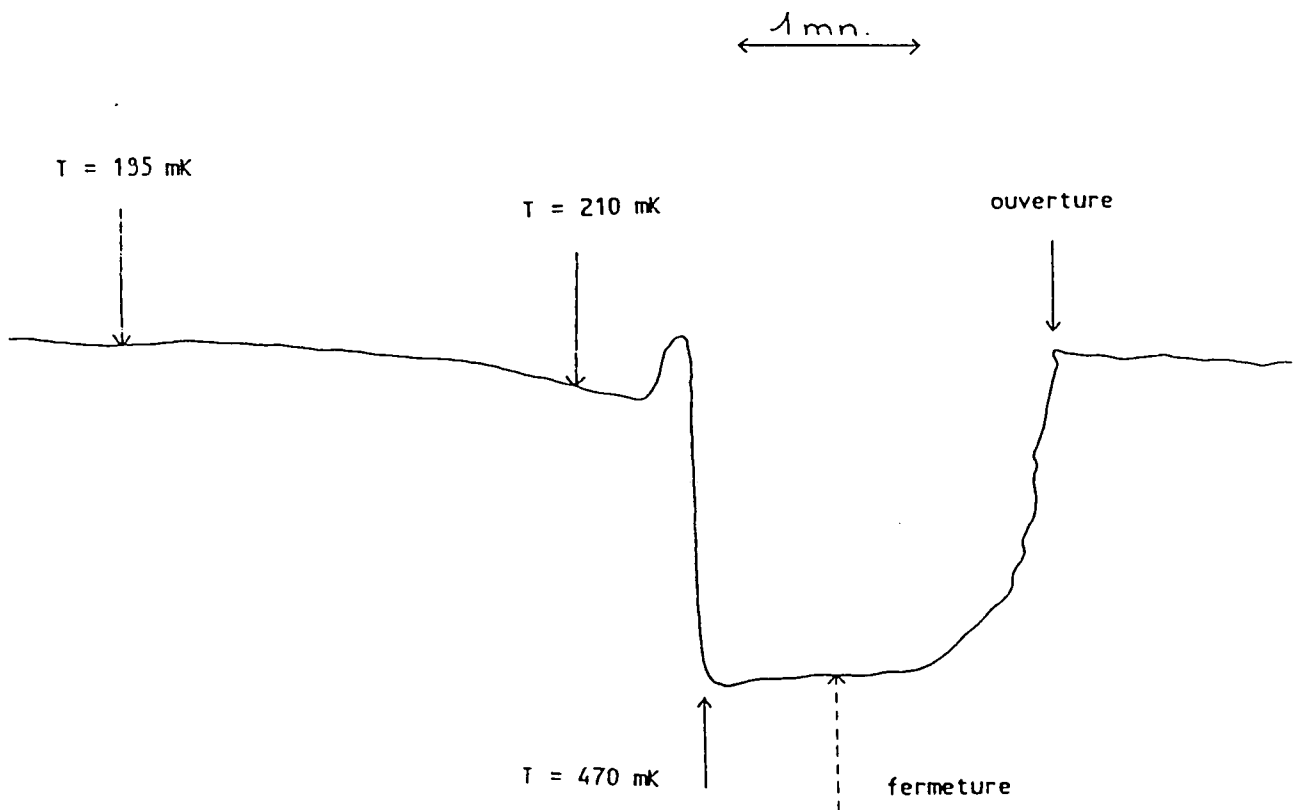


Figure V-4 : Temps d'ouverture et de fermeture de l'interrupteur thermique. On a reporté la température mesurée en son sommet.

Lorsque l'interrupteur est vide, la température minimum T_{bm1} de la boîte à mélange est de 39 mK. Quand il est rempli d' ^4He , $T_{bm2} = 41$ mK. D'après la relation III-9 :

$$Q \simeq 84n_3 (T_{bm2}^2 - T_{bm1}^2) \text{ Watts}$$

avec :

Q pertes thermiques amenées par la cellule
 n_3 flux d' ^3He dans le circuit de dilution (mol/s)
 T_{bm2} , T_{bm1} respectivement 0,041 K et 0,039 K

Pour un flux typique de $300 \mu\text{mol/s}$, on trouve que les pertes dues à la cellule sont de l'ordre de $4 \mu\text{W}$.

Entre le sommet de l'interrupteur et le liquide froid, la résistance de Kapitza entre le pyrex et l' ^3He ainsi que la résistance thermique du pyrex constituent la majeure partie de l'impédance thermique. En reprenant les valeurs du chapitre IV, on trouve que l' ^3He est à une température de l'ordre de 250 mK. Comme prévu, notre interrupteur thermique est par conséquent très performant puisqu'il permet de refroidir en moins d'une minute du liquide jusqu'à une température relativement basse (~ 250 mK). Signalons que nous pouvons l'ouvrir ou le fermer à volonté, ce qui nous permet d'effectuer un grand nombre d'expériences en une durée limitée.

Le seul le problème qui se pose provient de la trop faible température de la cellule expérimentale lorsque l'interrupteur est ouvert. Compte tenu des pertes thermiques, nous évaluons la température du gaz à environ 550 mK. Chauffer le sommet de l'interrupteur n'élève pas de façon significative sa température, en accord avec ce qui a été présenté au cours du chapitre IV-B-4. Or nous avons vu que dans cette gamme de température, le temps de relaxation nucléaire ($\simeq 20$ min pour 0,6 K) était comparable au temps caractéristique de diffusion des atomes entre le volume de pompage optique et la boule à 4,2 K. Il sera par conséquent impossible de construire une forte aimantation dans la boule à 4,2 K, ce qui réduit d'autant la polarisation initiale du liquide. En outre, si la cellule est à 550 mK, il est possible qu'une partie de l' ^3He y soit déjà liquéfié. L'échange perpétuel d'atomes entre les phases gazeuse et condensée introduirait donc un terme supplémentaire de relaxation (T_1 dans le liquide est de l'ordre de 5 min à 500 mK) [6] [9] [59] [60].

V -B.2) CARACTERISATION DU LIQUIDE PAR RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE

Principe de mesure de la polarisation du liquide

Une méthode développée au laboratoire permet de connaître l'aimantation du liquide **sans calibrer en amplitude les signaux RMN**. Le principe repose sur le fait suivant :

Considérons un atome appartenant à un volume aimanté : il est soumis à un champ local \mathbf{B} différent du champ extérieur \mathbf{B}_0 . En effet, il faut ajouter à \mathbf{B}_0 le champ magnétique induit \mathbf{B}_i sur l'atome considéré par tous les autres atomes présents. Lorsque le volume possède une symétrie sphérique, \mathbf{B}_i est nul. C'est en première approximation le cas du gaz aimanté, en équilibre au dessus de l' ^3He liquide. Dans le gaz, l'aimantation précesse donc à la fréquence de Larmor ω_0 correspondant au champ \mathbf{B}_0 ($\omega_0 = \gamma B_0$, γ rapport gyromagnétique). En revanche, le liquide polarisé formé sur les parois de la cellule possède a priori une forme aplatie. On s'attend par conséquent à ce que le champ \mathbf{B}_i ne soit pas nul, et participe à l'évolution de l'aimantation. En d'autres termes, la fréquence de précession ω des spins dans le liquide sera différente de la fréquence de Larmor ω_0 . En pratique, si on observe les signaux provenant à la fois du liquide polarisé et de sa vapeur saturante (elle aussi polarisée), on observera un spectre en fréquence présentant deux raies centrées sur ω et ω_0 .

G. Tastevin a calculé la valeur de $\omega - \omega_0$ en fonction de l'aimantation du liquide [6] [9]. Elle trouve que lorsque le liquide est étalé sur les parois verticales de la cellule, alors :

$$\omega_v - \omega_0 = - \frac{\mu_0}{2} |\gamma| n_0 \mu_n M \quad \text{Hz} \quad (\text{V} - 4)$$

moment magnétique de l' ^3He : $\mu_n = 1,08 \times 10^{-26}$ J/Tesla

facteur gyromagnétique : $|\gamma| = 3,24$ kHz/Gauss

densité atomique n_0 : $1,64 \times 10^{22}$ atomes/cm³ à 0,5K [56]

$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ dans le système d'unités internationales

M : taux de polarisation du liquide ($-1 \leq M \leq 1$)

Pour le liquide formant un plaque horizontale dans le fond de la cellule ex-

périmentale :

$$\omega_H - \omega_0 = \mu_0 | \gamma | n_0 \mu_n M \text{ Hz}$$

De la différence observée $\omega - \omega_0$ ($\omega_H - \omega_0$ ou $\omega_V - \omega_0$) on peut déduire le taux de polarisation M du liquide.

Remarque : Dans la totalité de ce mémoire ω est une fréquence (Hz) et non une pulsation (rad.s^{-1}), contrairement à la terminologie habituelle.

En pratique, les parois verticales de la cellule sont mieux couplées thermiquement à la boîte à mélange que l'extrémité de la cellule. En outre, on s'attend à ce que une fois le liquide écoulé dans le fond de la cellule, il n'ait plus la forme d'un film très plat et que par conséquent le décalage en fréquence ne soit plus déterminé. Il est alors probable que l'on ne puisse détecter que le liquide condensé sur les parois verticales. Dans ce cas, le décalage en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor sera de l'ordre de 36 Hz par pour cent de polarisation nucléaire (application numérique de la relation V-4).

En pratique, la différence $\omega_V - \omega_0$ sera mesurée après transformée de Fourier du signal en temps réel. Nous utilisons pour cela un algorithme numérique FFT (FFT = Fast Fourier Transform)

V -B.3) RESULTATS

Nous partons de la situation où notre interrupteur est en position ouverte. La température de la cellule expérimentale est suffisamment élevée pour que l' ^3He soit sous forme gazeuse. La polarisation du gaz mesuré par détection optique (dans le volume à 300 K) est de 60%. La figure V-5a représente un signal RMN enregistré juste avant la fermeture de l'interrupteur (détection dans la cellule expérimentale). Il s'agit des signaux de précession libre de l'aimantation en phase gazeuse. Après transformée de Fourier de ce signal, on déduit que l'aimantation précesse à la fréquence $\omega_0 = \omega_{\text{ref}} - 388 \text{ Hz}$, ω_{ref} fréquence de référence de la détection synchrone (figure V-5b). Signalons que la raie à 0 Hz provient d'une composante continue (offset de la détection synchrone).

Après la fermeture de l'interrupteur thermique, nous avons enregistré un signal provenant de l'aimantation en phase liquide (figure V-6a). On constate que le temps de relaxation nucléaire transverse est différent dans le liquide et dans le gaz (resp. inférieur

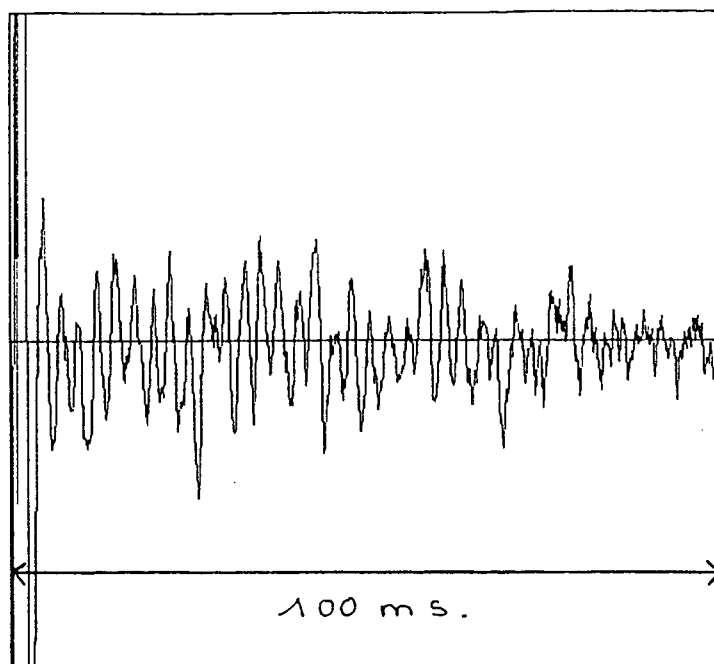


Figure V-5a : Signal de précession libre de l'aimantation en phase gazeuse (dans la cellule expérimentale). Nous n'avons reporté que la composante du signal en phase. Temps d'acquisition des données : 100 ms.

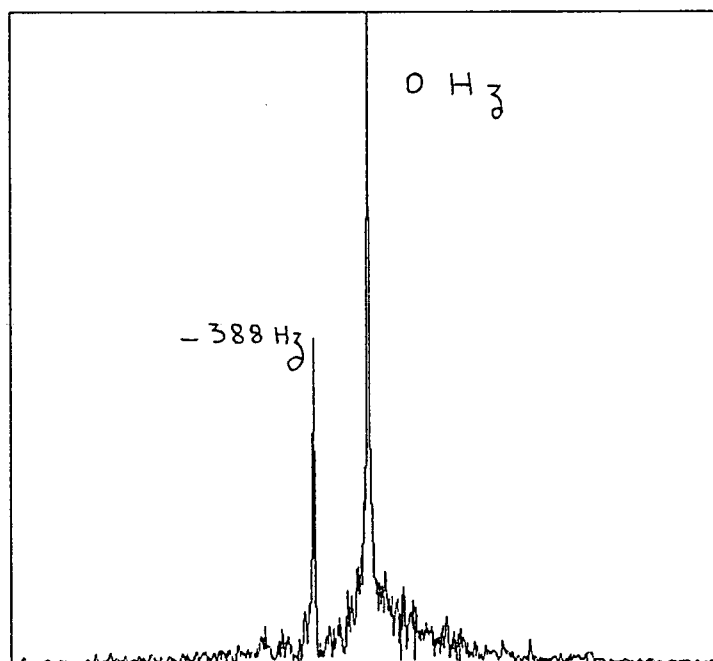


Figure V-5b : Transformée de Fourier du signal de la figure V-5a. Le pic à 0 Hz provient d'une composante continue délivrée à la sortie de la détection synchrone (offset). Le pic à -388 Hz est dû à la précession de l'aimantation en phase gazeuse.

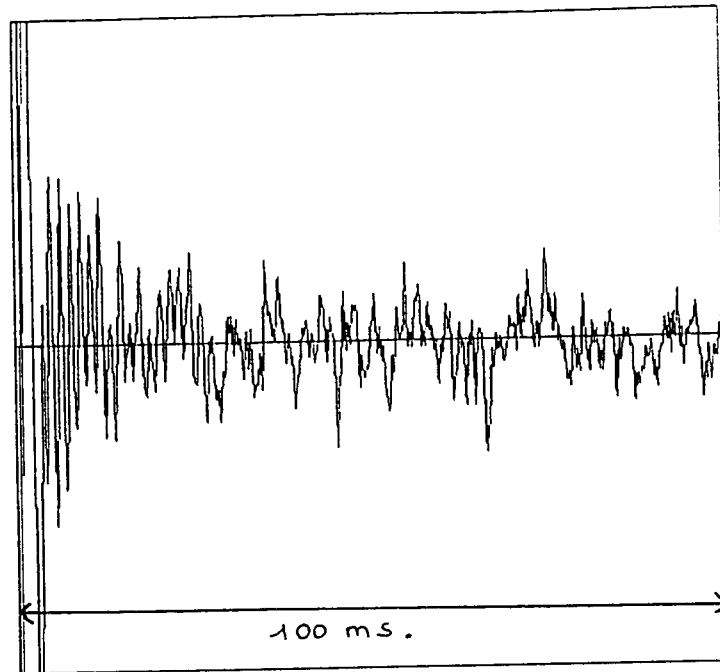


Figure V-6a : Signal de précession libre de l'aimantation en phase liquide (composante en phase).
Temps d'acquisition des données : 100 ms.

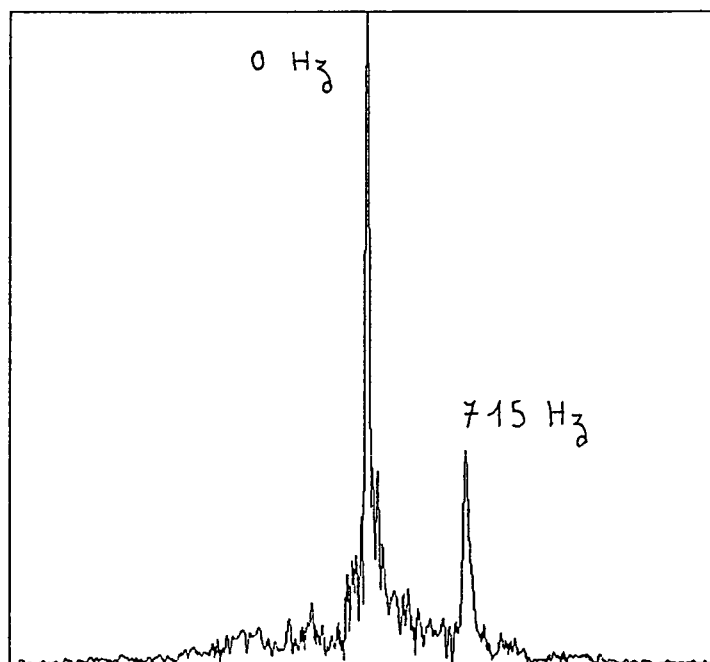


Figure V-6b : Transformée de Fourier du signal de la figure V-6a. Le pic à 715 Hz est dû à la précession de l'aimantation en phase liquide. Le pic correspondant à la phase gazeuse a disparu.

à 50 ms contre 100 ms). Ceci n'est pas étonnant, dans le sens où la largeur de raie RMN associée à la fréquence de précession de l'aimantation n'est pas déterminée par les mêmes phénomènes dans le liquide et dans le gaz. Dans le liquide, à la contribution des gradients de champs magnétiques externes, il faut ajouter celle due au fait que le champ B_i induit par tous les atomes sur un atome en un point donné n'est pas le même dans tout l'échantillon (voir § B.2). L'environnement d'un atome situé sur les bords ou au centre de l'échantillon est en effet différent. Comme nous détectons un signal induit par tous les atomes, il en résulte une contribution supplémentaire à la largeur de raie RMN. Ceci se traduit par une modification de la durée de vie du signal.

La figure V-6b montre la transformée de Fourier du signal de précession. On constate l'apparition d'une raie centrée sur la fréquence $\omega_v = \omega_{\text{ref}} + 715$ Hz. Cette raie correspond à l'aimantation en phase liquide. On peut également remarquer qu'il n'existe aucun signal dû au gaz, indiquant que celui-ci est entièrement condensé, et confirme que la température est très basse. Nous avons mesuré l'évolution temporelle de la différence entre la fréquence correspondant au liquide et celle du gaz. Les résultats sont reportés sur la figure V-7. Nous pouvons remarquer une décroissance exponentielle de l'aimantation. La constante de temps associée qui représente le temps de relaxation nucléaire longitudinal T_1 dans le liquide est d'environ 1 min. T_1 est 5 fois plus faible que la valeur mesurée par G. Tastevin dans du liquide à 500 mK [6] [9]. Or nous avons vu précédemment que le champ statique sur la cellule était assez uniforme. Il semble alors que le problème réside dans la qualité de l'enduit cryogénique. Rappelons que la fabrication de cet enduit est une procédure délicate. Idéalement, la température de la cellule devrait être uniforme jusqu'à la condensation de l'hydrogène. Le fait qu'une partie de notre cellule soit située dans une boîte à vide ne favorise pas le respect de cette contrainte. Nous avons constaté expérimentalement que pendant la descente en température, la boule à 4,2 K (volume B) était toujours plus froide que le reste de la cellule (partie située dans la boîte à vide). On s'attend alors à ce que l'hydrogène se condense préférentiellement dans la boule à 4,2 K. Malgré le défaut présumé de l'enduit, l'aimantation du liquide préparé est relativement importante. Le premier signal du liquide que nous ayons observé montre un décalage entre la fréquence de précession des spins et la fréquence de Larmor de l'ordre de 1100 Hz. En vertu de l'équation V-4, on en déduit que le taux de polarisation initial du liquide est de 30%, pour une température de l'ordre de 250 mK

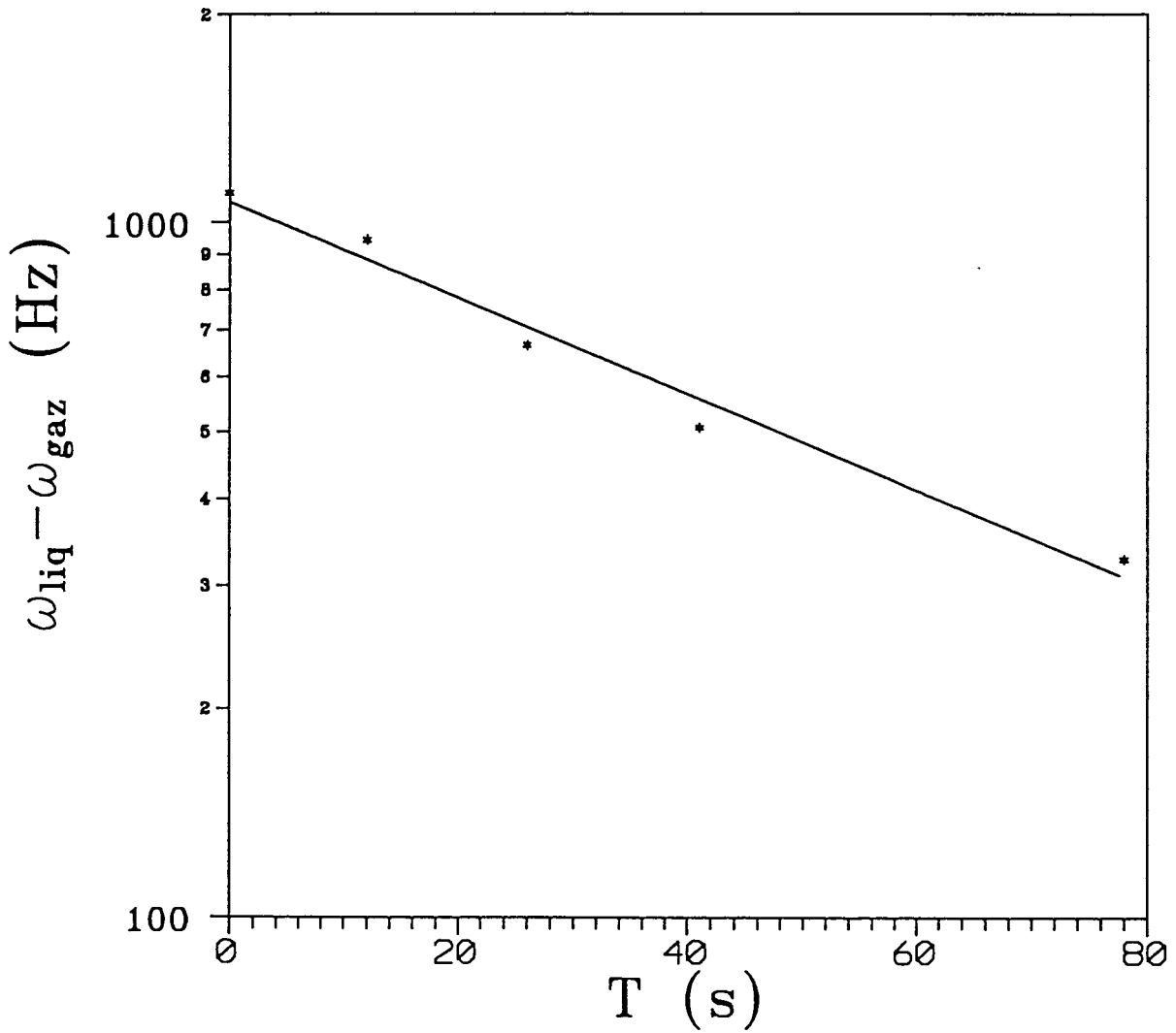


Figure V-7 : Evolution temporelle de la différence entre les fréquences de précession de l'aimantation en phase liquide et en phase gazeuse. On en déduit un temps T_1 de relaxation nucléaire longitudinal de l'ordre de 1 min.

V -B.4) CONCLUSION - PERSPECTIVES

Nous avons montré que notre interrupteur thermique était très performant d'un point de vue de rapidité, de conduction de la chaleur en position fermée et de facilité d'utilisation. En revanche ses performances sont insuffisantes quant à sa capacité de couper le contact thermique entre la cellule et la boîte à mélange, comme le prévoyait le modèle du chapitre IV-B.4. Sous sa forme actuelle, l'interrupteur n'offre donc pas toutes les caractéristiques nécessaires à l'étude de l' ^3He liquide **fortement** polarisé. Nous envisageons néanmoins d'y apporter une modification basée sur une des propriétés de l' ^4He vis à vis du césium. Comme on le verra dans le chapitre IX, l' ^4He ne "mouille" pas le césium. Si les parois du tube inox (voir figure IV-1) étaient recouvertes de césium, celui-ci pourrait arrêter la montée du film superfluide, et par conséquent mettre fin au processus évaporation-condensation. La difficulté d'un tel procédé provient du fait qu'à chaque réchauffement de l'expérience (par exemple pour changer de cellule), l'interrupteur est mis en contact avec l'air. Or nous savons que le césium réagit violemment avec l'oxygène. Il est donc impératif de mettre au point une géométrie fermée de l'interrupteur pour pallier un tel problème. Sous réserve d'y parvenir, nous disposerions alors de tous les outils nécessaires à nos études. Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi de ne pas nous engager sur cette voie.

Nous venons de voir comment il serait possible de préparer du liquide à un taux de polarisation plus élevé que ce que nous avons obtenu jusqu'à présent. Un autre objectif serait d'atteindre des températures inférieures à 250 mK, pour se placer dans des conditions de forte dégénérescence du liquide. L'obstacle majeur réside dans la faible conductivité thermique du pyrex. Une solution pourrait être d'utiliser des cellules dont la partie supérieure serait constituée de pyrex (transparence nécessaire pour le pompage optique) et la partie inférieure de métal, de bien meilleure conductivité thermique que le verre. Le problème qui surgit provient de la dépolarisation des spins induite par la présence du métal. On pourrait s'en affranchir en plaçant la cellule dans un champ magnétique de l'ordre du Tesla, dans l'espoir de limiter la relaxation nucléaire sur les parois [61]. Or le pompage optique n'est pas efficace dans une telle situation. Il faudrait par conséquent utiliser un champ magnétique qui passe de quelques Gauss à 1 Tesla d'une extrémité à l'autre de la cellule. On se trouve alors devant un problème ouvert, qu'il serait intéressant de résoudre : quel est le taux de relaxation nucléaire dans

un tel gradient de champ ?

Pour clore cette première partie, rappelons que nous disposons d'un ensemble expérimental qui vérifie la plupart des fortes contraintes expérimentales requises pour étudier l' ^3He liquide polarisé.

Néanmoins, il reste à résoudre le problème de la forte relaxation nucléaire longitudinale sur les parois de la cellule. Nous avons pris le parti d'orienter ce travail de thèse vers l'étude des solutions d' ^3He polarisé dans l' ^4He superfluide (la présence d' ^4He devrait en effet limiter la relaxation nucléaire sur les parois). C'est l'objet de la deuxième partie de ce mémoire.

DEUXIEME PARTIE

ETUDE EXPERIMENTALE DE MELANGES POLARISES D'He-3-He-4

INTRODUCTION

La deuxième partie de ce mémoire est consacrée à la préparation et à la caractérisation de solutions polarisées d' $^3\text{He}-^4\text{He}$ jusque dans le régime dégénéré. On connaît déjà les intéressantes propriétés des mélanges "normaux" d' $^3\text{He}-^4\text{He}$: abaissement du point de transition superfluide dû à la présence de l' ^3He , existence d'une concentration maximale d' ^3He dans l' ^4He qui varie avec la température et la pression....

Lorsque l' ^3He est polarisé, les propriétés tant thermodynamiques que de transport des solutions peuvent être radicalement modifiées. L'objectif de toutes les équipes travaillant sur ce fluide quantique consiste à prévoir ainsi qu'à observer expérimentalement de tels changements.

Pour ce travail de thèse, nous avons choisi d'étudier les solutions polarisées sur le plan de la thermodynamique. Comme pour n'importe quel autre système, toutes les propriétés thermodynamiques peuvent être déduites de l'énergie libre de Gibbs G . Un élément essentiel (mais non suffisant bien sûr) à la détermination d'une telle fonction est la connaissance du potentiel chimique de l' ^4He , défini de façon habituelle par :

$$\mu_4 = \left. \frac{\partial G}{\partial N_4} \right)_{T, P, B_0, N_{3\uparrow}, N_{3\downarrow}}$$

avec :

N_4 : nombre d'atomes d' ^4He

T, P : respectivement température et pression du mélange

B_0 : champ magnétique appliqué

$N_{3\uparrow}(N_{3\downarrow})$: nombre d'atomes d' ^3He dans l'état de spin nucléaire "up" (resp. "down")

Nous nous sommes donc fixés comme objectif de mesurer le potentiel chimique de l' ^4He en fonction de la concentration x en ^3He , de la température T et du taux de polarisation M du mélange.

A l'heure actuelle, il n'existe aucune théorie prédisant de façon quantitative le comportement de μ_4 en fonction de T , x et M , sauf pour les faibles valeurs de M .

Dans ce cas, on peut faire un développement limité de G autour de M [62] :

$$G(N_3, N_4, T, P, M, B_0) \simeq G(N_3, N_4, T, P, 0, B_0) + \frac{1}{2} \mu_n^2 \chi_0^{-1} N_3 M^2 - \mu_n N_3 B_0 M$$

avec :

$N_3(N_4)$: nombre d'atomes d' ^3He (^4He)

T, P, M : température, pression, taux de polarisation

B_0 : champ magnétique appliqué

χ_0 : susceptibilité magnétique par atome d' ^3He

μ_n : moment magnétique de l' ^3He

Notons que ce développement reste **a priori** valable même si M est différent du taux de polarisation correspondant à l'équilibre dans le champ appliqué B_0 . C'est en particulier le cas dans nos expériences où M est obtenu par pompage optique.

Compte tenu de la définition de μ_4 on a :

$$\mu_4(T, P, B_0, N_3, N_4, M) = \mu_4(T, P, B_0, N_3, N_4, 0) - \frac{1}{2} \mu_n^2 x^2 M^2 \left. \frac{\partial \chi_0^{-1}}{\partial x} \right)_{N_3, M, T, P, B_0}$$

D'une détermination expérimentale de μ_4 , on pourra extraire une mesure de χ_0 . Les résultats pourront alors être comparés à ceux obtenus par des mesures de susceptibilité magnétique effectuées à l'équilibre dans un champ magnétique [63] [64]. Un bon accord indiquerait que le développement de G présenté plus haut est effectivement valable même dans une situation hors équilibre. On pourrait alors en déduire toutes les propriétés thermodynamiques du système peu polarisé, et confronter ces prédictions aux résultats de nos futures expériences.

Enfin, pour les solutions fortement polarisées, qui sont particulièrement difficiles à appréhender théoriquement, la mesure de μ_4 donnera de précieuses informations, partielles mais extrêmement intéressantes sur la thermodynamique du système.

Le but de cette deuxième partie est donc de présenter une méthode conduisant à la mesure de μ_4 en fonction de la température, de la concentration et du taux de polarisation du mélange. Nous rappelons tout d'abord dans le chapitre VI quelles sont les bases théoriques sur lesquelles s'appuie cette méthode. Le chapitre VII est quant à lui consacré à la description et à la caractérisation d'une cellule expérimentale remplie d'une solution polarisée d' ^3He - ^4He . Nous avons tiré profit de ces premières observa-

tions pour améliorer le procédé de préparation d'un mélange polarisé. On trouvera nos modifications dans le chapitre VIII.

CHAPITRE VI

PRINCIPE DE LA MESURE DU POTENTIEL CHIMIQUE DE L'HELIUM-4

VI -A RAPPELS

Tout au long de ce paragraphe, nous passerons en revue quelques comportements physiques caractéristiques de l' ^4He superfluide, ainsi que des solutions diluées d' ^3He dans de l' ^4He superfluide. Ce rappel n'a pour ambition que de donner une meilleure compréhension des expériences (déjà réalisées ou en projet) décrites dans ce mémoire.

Le cas particulier de l' ^4He pur est évoqué pour plusieurs raisons. Il permet de :

- * *Justifier la géométrie adoptée pour l'interrupteur de chaleur du chapitre IV.*
- * *Introduire des concepts de base, applicables au cas plus compliqué des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$.*
- * *Mettre en évidence les différences de comportement entre l' ^4He pur et les solutions même très diluées.*

Nous décrirons également la "thermo-compression" de l' ^3He dans les mélanges, plus connue sous l'appellation d'"effet heatflush". Dans le cadre des études des solutions $^3\text{He}-^4\text{He}$, nous verrons que cette propriété constitue généralement une nuisance pour les mesures physiques. Dans notre cas particulier, c'est grâce à cet effet que nous serons a priori capables de développer une technique de caractérisation des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$.

VI -A.1) LE MODELE A DEUX FLUIDES

Il existe deux formes d' ^4He liquide : l'He I et l'He II (figure VI-1). A la pression de vapeur saturante, la transition entre ces deux phases est réalisée à une température T_λ d'environ 2,17 K. L'He I, dit normal, présente les caractéristiques d'un fluide classique (sa viscosité, conductivité thermique..... peuvent être calculées dans le cadre d'un modèle de gaz dense). En revanche, l'He II présente des propriétés physiques étonnantes. La plus connue d'entre toutes est certainement la superfluidité, c'est-à-dire la capacité qu'a le liquide de se mouvoir sans viscosité apparente. L'He II est communément appelé ^4He superfluide.

Un grand nombre d'expériences ont été réalisées afin de déterminer le coefficient de viscosité de l'He II. On peut les ranger en deux catégories distinctes.

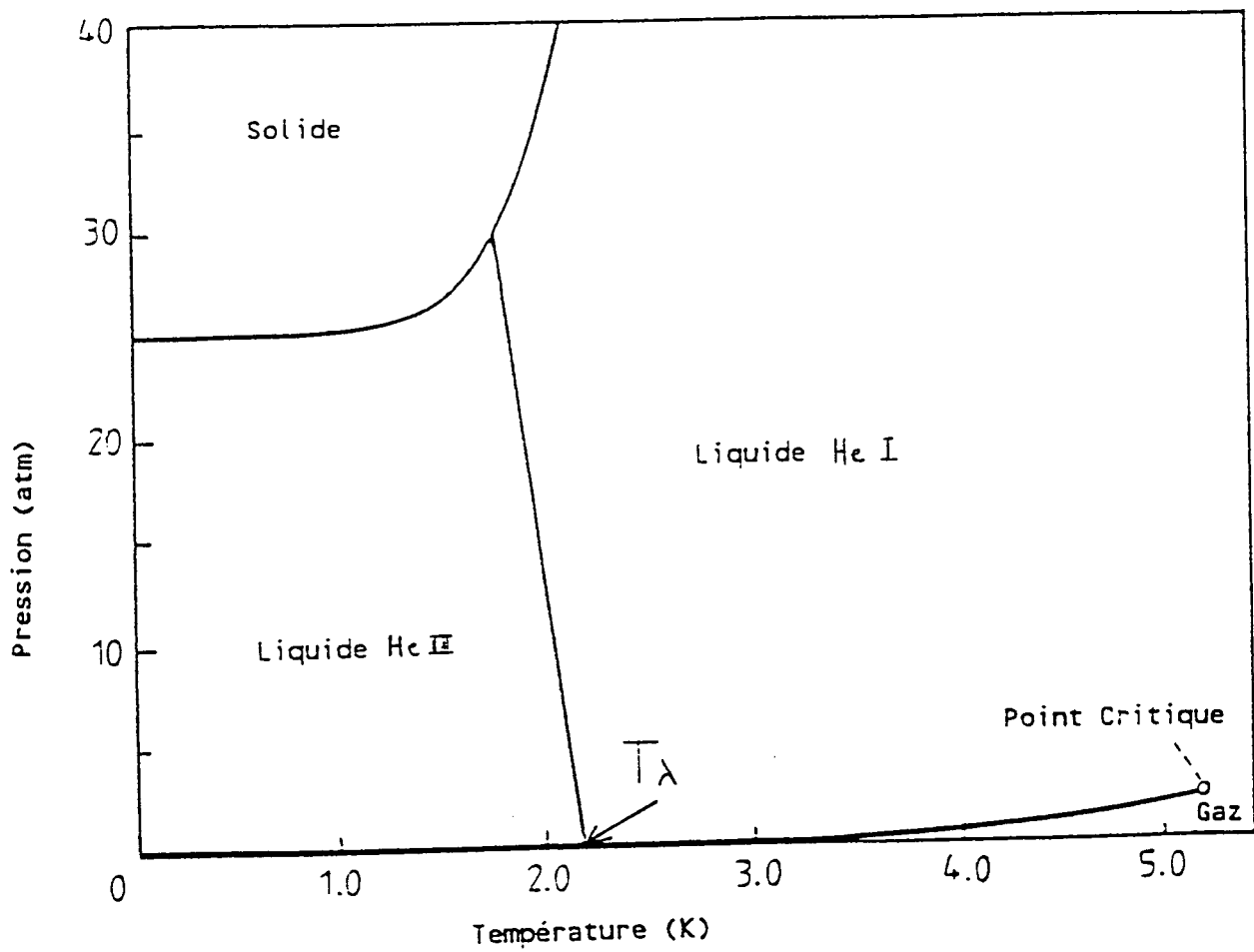


Figure VI-1 : Diagramme de phase de l' ${}^4\text{He}$.

La ligne λ marque la transition entre le liquide normal (He I) et le liquide dit "superfluide" (He II) [65].

Les mesures de résistance à l'écoulement

Elles consistent à mettre un fluide en mouvement à travers une impédance, en exerçant une pression à l'entrée de celle-ci. En vertu des lois classiques de l'hydrodynamique, on s'attend à ce que le flux du liquide soit d'autant plus important que la pression est forte : pour un écoulement de Poiseuille, $\Delta P = \eta Z L \vartheta$ où

ΔP est la différence de pression entre les extrémités de l'impédance (Pa).

η la viscosité du fluide (Poiseuille).

Z un coefficient dépendant de la géométrie de l'impédance (m^{-4}).

L longueur de l'impédance (m).

ϑ le flux volumique (m^3/s).

Pour une impédance connue, la mesure de ΔP et ϑ permet de déterminer le coefficient de viscosité η .

Les mesures de forces visqueuses

Une expérience classique consiste à utiliser un fil immergé dans un liquide, l'ensemble étant soumis à un champ magnétique statique. Lorsqu'on envoie transitoirement un courant électrique à travers le fil, celui-ci est momentanément écarté de sa position d'équilibre. La viscosité du liquide peut être déduite de l'observation du temps caractéristique de retour à l'équilibre, par la mesure de la force électromotrice induite à travers le fil.

La figure VI-2 représente des résultats typiques obtenus pour l'He II grâce à la première méthode citée. Les expériences ont été réalisées dans des tubes capillaires de diamètres différents. Il a été observé que pour un même capillaire de diamètre d , la vitesse moyenne v_m de l'écoulement, définie par :

$$\vartheta = v_m \times \frac{\pi d^2}{4}$$

ne dépend pas de la pression à l'entrée du capillaire, ce qui suggère que la viscosité de l'He II est nulle.

La viscosité de l'He II déduite de la mesure de forces visqueuses exercées sur un corps en mouvement est représentée en fonction de la température sur la figure VI-3.

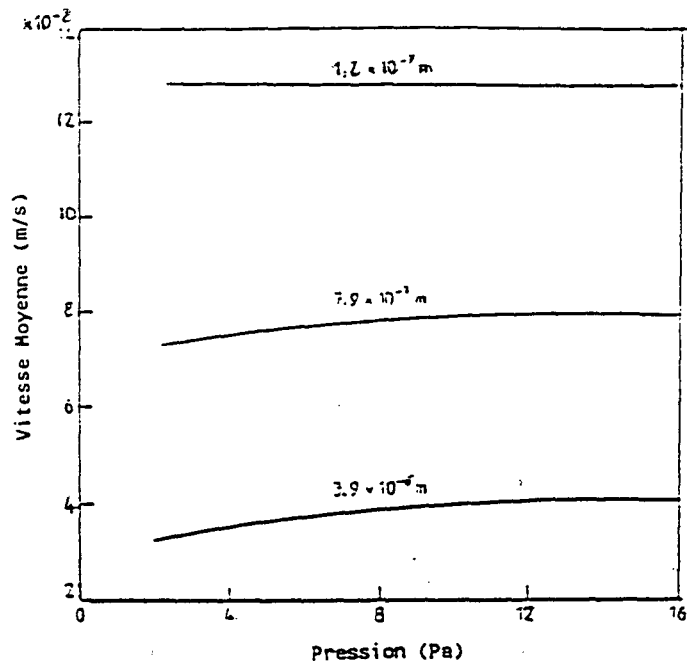


Figure VI-2 : Vitesse moyenne v_m de l'écoulement de l' ^4He à travers des tubes capillaires de diamètre différent, en fonction de la pression à l'entrée du capillaire [66] [67] (température : 1,2 K).

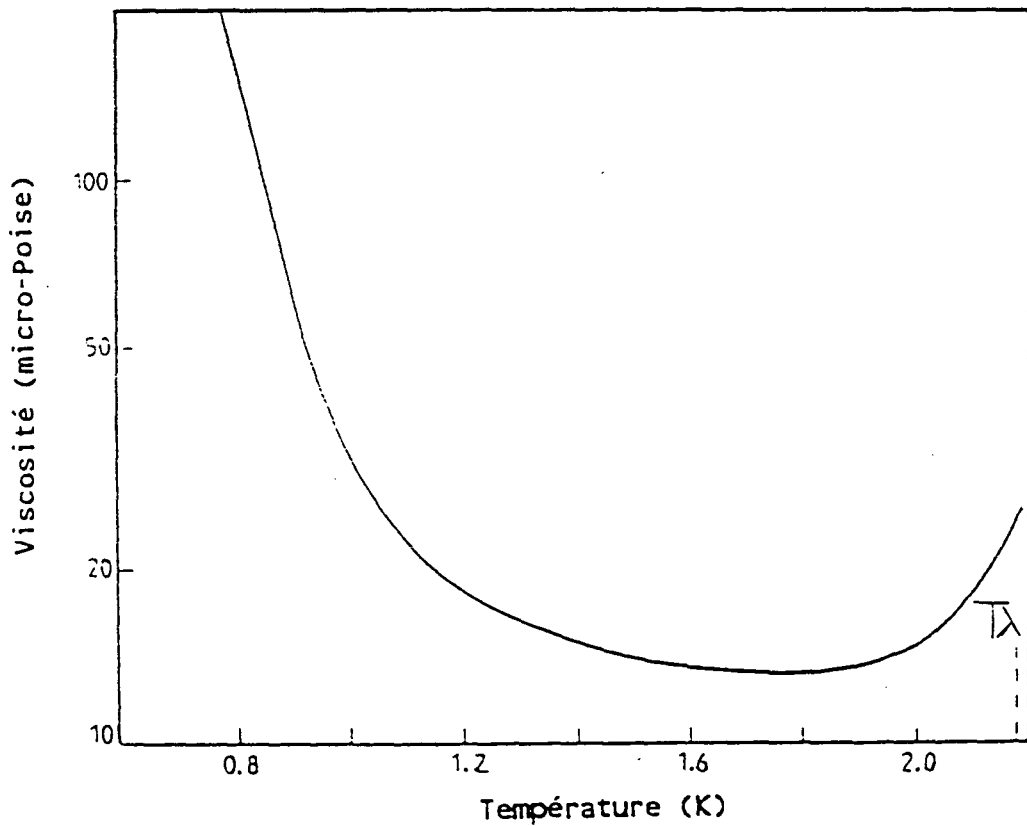


Figure VI-3 : Viscosité de l' ^4He en fonction de la température, déduite de la mesure de forces visqueuses exercées sur un corps en mouvement [68].

Cette classe particulière d'expériences met en évidence une viscosité finie de l'He I. En outre, sa valeur est du même ordre de grandeur que celle de la phase He I, qui constitue un liquide classique comme nous l'avons rappelé au début de ce paragraphe.

Ces résultats semblent alors paradoxaux : selon le type de mesures mises en jeu, l'He II apparaît comme un fluide visqueux et non visqueux à la fois. En fait, cette contradiction est levée lorsque l'on explique les propriétés physiques de l'He II en prenant comme théorie de base le **modèle à deux fluides**. Il fut proposé pour la première fois par Tisza en 1938 [69], qui développa les applications de London de la condensation de Bose-Einstein à l' ^4He .

Le modèle stipule que l'He II se comporte **comme si** il était un mélange de deux liquides :

* un liquide "normal", de viscosité η_n , de masse volumique ρ_n .

* un liquide superfluide, de viscosité nulle, de masse volumique ρ_S telle que $\rho = \rho_n + \rho_S$, ρ étant la masse volumique totale de l'He II.

La proportion de chacun des liquides est entièrement déterminée par la température. Plus celle-ci diminue, plus la fraction normale diminue, le liquide étant entièrement superfluide à $T=0$ (figure VI-4). Dans le cadre d'une théorie de condensation de Bose-Einstein (figure VI-5), la partie superfluide représente le "condensat", c'est-à-dire l'ensemble des atomes dans les états de plus faible énergie (en réalité cette image n'est pas tout à fait exacte, mais nous ne présenterons pas ici la théorie fort compliquée de la superfluidité). Il est à noter que le condensat n'est pas simplement constitué des atomes dans l'état fondamental. Comme il existe des interactions entre atomes, il comprend aussi des états d'énergie légèrement supérieure à l'énergie du fondamental (voir par exemple [71]). L'entropie de la fraction superfluide n'est pas rigoureusement nulle, mais elle est habituellement fixée à 0 lors des divers calculs des propriétés physiques de l' ^4He .

Les atomes situés dans les états de plus forte énergie (autrement dit les atomes correspondant aux excitations thermiques) forment quant à eux la fraction normale de l'He II. L'entropie totale S_4^0 de l'He II est pratiquement égale à l'entropie S_n du fluide normal.

Il est important de signaler que l'on ne peut pas dire qu'une particule appartient

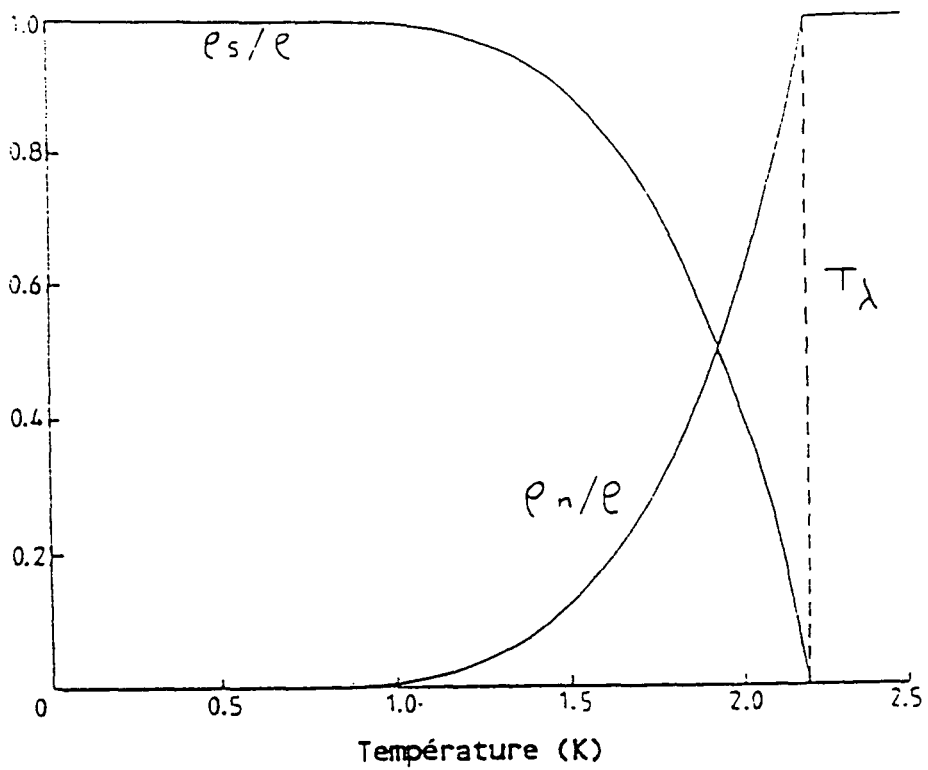


Figure IV-4 : Variation du rapport entre la masse volumique du fluide normal (resp. superfluide) et la masse volumique totale de l'⁴He, en fonction de la température [70].

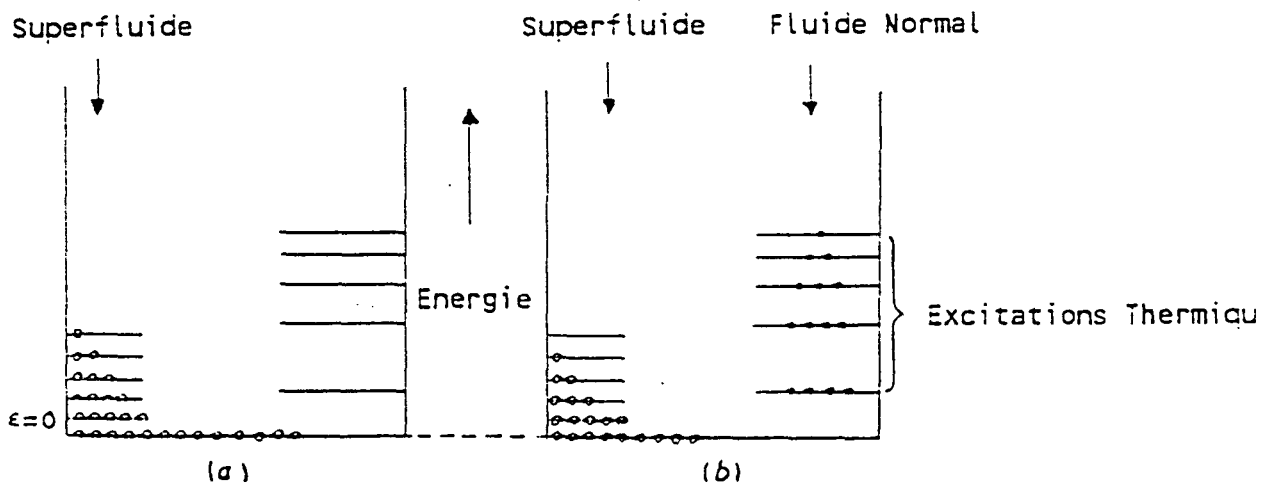


Figure VI-5 : Le modèle de la condensation de Bose-Einstein appliqué à l'He II

a) $T = 0$

b) $0 < T < T_\lambda$.

à la fraction normale ou superfluide, étant donné l'indiscernabilité des atomes : l'He II n'est pas un mélange de fluides au sens habituel du terme. Ce que le modèle postule est qu'il existe deux mouvements **indépendants** dans l'He II :

- * un mouvement superfluide, de vitesse locale v_s , sa particularité étant d'être non dissipatif (viscosité nulle).
- * un mouvement normal, de vitesse locale v_n , et qui suit les lois classiques de l'hydrodynamique.

Ce postulat n'est valable que dans les cas où la vitesse de la partie superfluide ne dépasse pas une vitesse critique. Si cette contrainte n'est pas respectée, les deux fluides interagissent et il devient nécessaire de développer une théorie beaucoup plus compliquée pour expliquer le comportement de l'He II. Dans le cadre de cette thèse, nous resterons constamment dans l'approximation où la vitesse du superfluide est inférieure à la vitesse critique.

Le modèle à deux fluides permet de lever la contradiction concernant les mesures de viscosité de l'He II :

Mesures d'écoulement

Comme la taille des impédances utilisées sont extrêmement faibles ($\sim 1 \mu\text{m}$), la viscosité du fluide normal empêche celui-ci de s'y écouler. On ne peut ainsi qu'étudier la fraction superfluide, ce qui explique la valeur nulle de la viscosité déduite de ce type d'expériences.

Mesures de forces visqueuses

Les expériences étant réalisées dans du liquide non confiné, la fraction normale de l'He II est capable de se mouvoir. Comme elle possède une viscosité, c'est elle que l'on mesure grâce au mouvement d'un corps plongé dans l'He II.

VI A.2) CONDUCTIVITE THERMIQUE DE L'⁴He PUR

L'He II possède une autre propriété spectaculaire. Entre environ 0,6 K et la température de transition T_λ vers l'He I, il est capable de transporter d'énormes quantités de chaleur. Autrement dit, sa conductivité thermique est très importante (elle est environ 2000 fois plus forte que la conductivité thermique à 300 K d'un bon conducteur de chaleur tel le cuivre).

Une expérience simple permet d'observer visuellement une des conséquences de cette forte conductivité. Lorsque l'on refroidit un bain d' ^4He par abaissement de sa pression de vapeur saturante, le passage des atomes de la phase liquide vers la phase vapeur s'effectue différemment selon la température T du bain. Pour une température supérieure à la température T_λ de transition superfluide, il existe un gradient de température entre la surface et le fond du bain ; en effet, la faible conductivité thermique de l'He I ne permet pas d'homogénéiser rapidement la température du bain (en d'autres termes, la constante de temps de diffusion de la chaleur est supérieure au temps caractéristique lié à l'évaporation de l' ^4He). La nucléation des bulles de gaz s'opère dans le fond du bain, là où la température est la plus élevée. Par la suite, les bulles remontent à la surface, ce qui confère au liquide un aspect agité . Quand T est inférieure à T_λ , le liquide devient extrêmement calme, l'évaporation n'ayant lieu qu'à la surface du bain. Ceci s'explique par la très forte conductivité thermique de l'He II, qui assure une température identique en tous points du liquide.

Entre 0,6 K et T_λ , le transfert de chaleur dans l'He II s'effectue de façon originale : il s'agit d'un processus convectif que l'on peut expliquer en s'appuyant sur le modèle à deux fluides.

Considérons un récipient rempli d'He II. Un de ses côtés est mis en contact avec un réservoir thermique, tandis que l'autre reçoit un certain flux de chaleur. Lorsqu'un régime stationnaire est atteint, il existe un profil de température dans l' ^4He , fixant ainsi les proportions des composantes normale et superfluide en tous points du liquide. Si Q est le flux thermique (en Watt) alors le liquide doit évacuer de l'entropie à un taux Q/T . Ceci est réalisé de la façon suivante : une fraction du fluide superfluide est convertie en fluide normal. Cet excès de la composante normale par rapport à la concentration fixée par la température locale au point considéré, s'écoule en direction des zones les plus froides où il est reconverti en superfluide en cédant son excès d'entropie au réservoir thermique. En vertu de la conservation de la masse, un courant inverse de superfluide s'instaure (figure VI-6).

La conductivité thermique associée au phénomène décrit ci-dessus se calcule en prenant comme point de départ une des équations du mouvement de l'He II. L'ensemble de ces équations a été proposé par Landau [72]. Par des considérations d'hydrodynamique et de thermodynamique, on arrive entre autre à l'équation suivante,

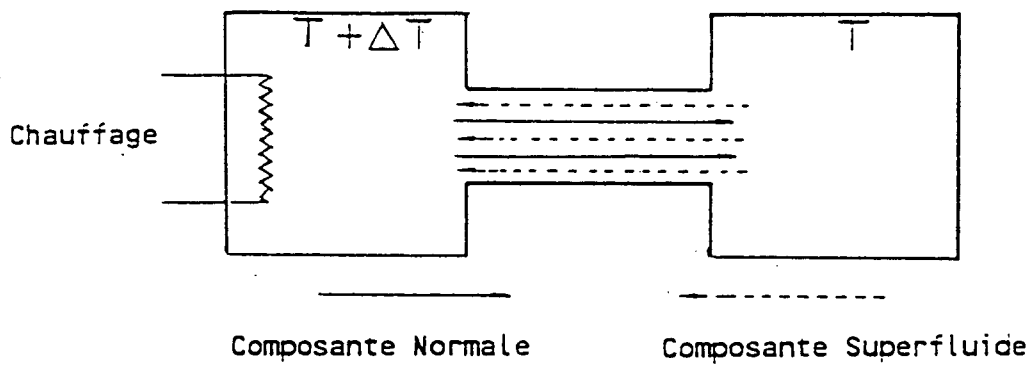


Figure VI-6 : Convection dans l'He II
 Les températures T et $T + \Delta T$ sont maintenues constantes

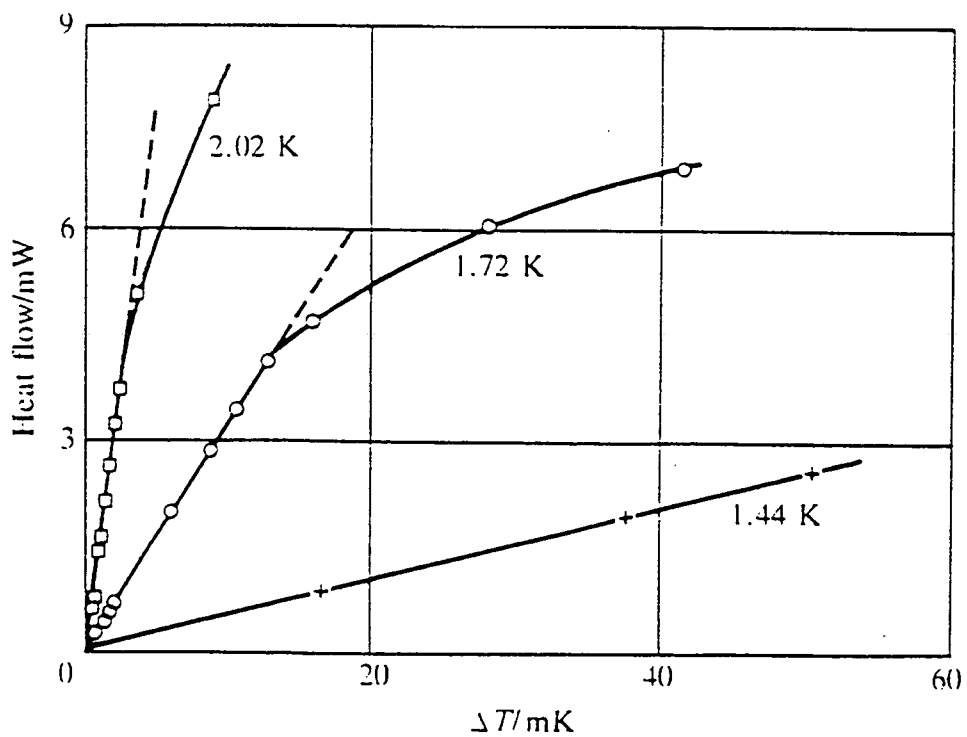


Figure VI-7 : Variation du flux de chaleur dans l'He II contenu dans une fente de largeur $2,4 \mu\text{m}$, en fonction de la différence de température ΔT à travers la fente (vérification de l'équation VI-4) [75].

valable dans l'approximation des vitesses faibles :

$$\frac{dv_s}{dt} = -\text{grad } \mu_4^0$$

v_s vitesse locale du superfluide

μ_4^0 potentiel chimique de l' ^4He par unité de masse.

En régime stationnaire, $\nabla\mu_4^0 = 0$. Cette relation est essentielle à la compréhension de certaines propriétés thermodynamiques importantes de l' ^4He II, qu'il soit pur ou mélangé à de l' ^3He , comme on le verra dans les paragraphes suivants. **Elle est en tous cas caractéristique de la nature superfluide de l' ^4He II .**

Comme $d\mu_4^0 = -S_4^0 dT + (1/\rho)dP$ où S_4^0 est l'entropie par unité de masse de l' ^4He II et ρ sa masse volumique, alors on trouve :

$$\text{grad}P = \rho S_4^0 \text{grad}T \quad (\text{VI} - 1)$$

établie pour la première fois par London [73]. La signification de (VI-1) est que l'uniformité du potentiel chimique de l' ^4He II impose qu'un gradient de pression se développe entre deux parties de températures différentes. P est plus connue sous le nom de pression fontaine. Elle peut être mise en évidence par une technique classique de mesure de pression osmotique dans les mélanges binaires.

Dans toute la suite, nous supposerons que les gradients de température n'existent que selon une direction notée z.

Nous avons vu que la conduction de la chaleur était assurée par la partie normale de l' ^4He II, qui transporte l'entropie à un taux de $\rho S_4^0 \vartheta_n$, ϑ_n étant le flux volumique (m^3/s) de la fraction normale de l' ^4He II. Dans l'hypothèse classiquement acceptée que le mouvement des deux fluides est réversible, le flux de chaleur Q (en W) est alors :

$$Q = T\rho S_4^0 \vartheta_n \quad (\text{VI} - 2)$$

La loi de Poiseuille donne la dernière équation nécessaire pour déterminer la conductivité thermique de l' ^4He II. Comme seule la composante normale suit les lois classiques de l'hydrodynamisme, on a :

$$\frac{dP}{dz} = \eta_n Z \vartheta_n \quad (\text{VI} - 3)$$

où Z est un facteur dépendant de la géométrie du volume contenant l'hélium, et η_n la viscosité de la composante normale de l'He II.

Des relations VI-1, VI-2 et VI-3, on déduit (voir par exemple [74]) :

$$Q = \frac{(\rho S_4^0)^2 T}{\eta_n Z} \frac{dT}{dz} \quad (\text{VI} - 4)$$

D'après la relation classique de propagation de la chaleur $Q = K\sigma \frac{dT}{dz}$, (σ section du volume contenant l'He II), on trouve alors que la conductivité thermique K associée au processus de convection est de la forme :

$$K = \frac{(\rho S_4^0)^2 T}{\eta_n Z \sigma} \quad (\text{W/Km}) \quad (\text{VI} - 5)$$

Diverses expériences ont montré que la relation VI-4 était vérifiée dans le cas où les impédances utilisées étaient de taille suffisamment faibles, et les puissances thermiques modérées (figure VI-7).

En effet, comme nous l'avons déjà rappelé, le modèle à deux fluides présenté dans le paragraphe précédent n'est valable que dans la limite où la vitesse du superfluide est inférieure à une vitesse critique. Or plus la puissance thermique envoyée dans l'hélium est importante, plus le processus convectif doit être rapide, ce qui impose une augmentation des flux des fractions superfluide et normale, ceci jusqu'à un certain flux critique. Lorsque la puissance thermique est trop élevée, la relation (VI-4) n'est plus valable, comme nous pouvons le remarquer sur la figure VI-7.

A cause de la grande efficacité du processus convectif de transport de chaleur, il est extrêmement difficile de créer un gradient de température dans l'He II, tout en restant dans les limites de validité de la relation VI-4. C'est pour cela qu'elle n'a été vérifiée que pour des impédances de petite taille : par exemple pour un tube cylindrique, la conductivité thermique dépend du carré du diamètre d car $Z = 128/\pi d^4$.

A la lumière de ce qui vient d'être présenté, nous pouvons expliquer à présent pourquoi le transfert de chaleur n'est pas aussi efficace en dessous d'environ 0,6 K (la conductivité thermique est alors comparable à celle des métaux usuels (figure VI-8))

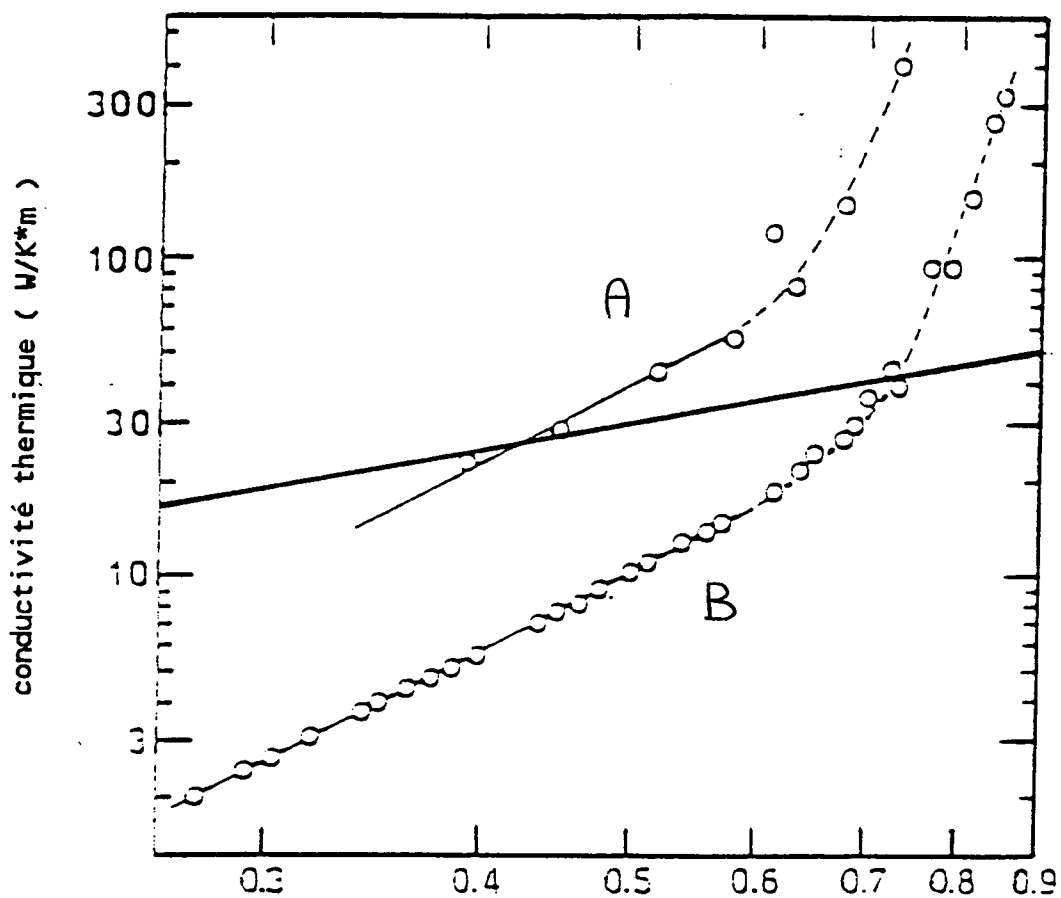


Figure VI-8 : Conductivité thermique de l'He II dans deux capillaires respectivement de diamètre 0,8 mm (A) et 0,29 mm (B), en fonction de la température [76]

Pour comparaison, on a reporté la conductivité thermique du cuivre (qualité "moyenne") [27].

: dans cette gamme de température, la convection est gênée par deux phénomènes indépendants :

- * une réduction importante de la densité de la fraction normale.
- * l'augmentation de la viscosité de cette même fraction.

Ainsi, pour une température inférieure à 0.6 K, la chaleur est transportée essentiellement par les phonons. La figure VI-8 montre très nettement une rupture de pente dans la représentation de la conductivité thermique en fonction de la température. Ceci correspond à la transition entre le régime convectif et le régime de transport par les phonons. A basse température, on s'attend alors à ce que la conductivité thermique dépende du cube de la température [76]. Le processus limitant étant la collision des phonons sur les parois du tube, la conductivité thermique doit donc aussi dépendre de son diamètre d . En définitive, les courbes de la figure VI-8 peuvent être reproduites pour $K = 300dT^3$ kW/Km, avec d : diamètre du tube.

Remarque

Considérons à nouveau l'interrupteur thermique du chapitre IV. Nous avons vu que lorsqu'il est fermé, le tube en inox (voir figure IV-1) est rempli d'He II à une température inférieure à 500 mK. Le flux thermique qui le traverse est alors proportionnel à d^3 . Le diamètre du tube influence donc de façon cruciale les performances de l'interrupteur (d'un point de vue de rapidité et d'efficacité de refroidissement de l' ^3He polarisé).

Par ailleurs, nous rappelons qu'en position ouverte, la conductivité thermique de l'interrupteur peut être importante à cause du processus convectif évaporation-condensation d'un film d'He II. Elle l'est d'autant plus que le diamètre du tube est grand. La taille choisie résulte donc d'un compromis entre deux exigences contradictoires : l'interrupteur doit très bien conduire la chaleur en position fermée, et présenter une forte impédance thermique en position ouverte.

VI A.3) ORIGINE DE L'EFFET "HEATFLUSH"

L'effet "heatflush" est une propriété spécifique des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$. Considérons une colonne remplie d'une telle solution, dont l'une des extrémités est en contact avec un réservoir thermique. Si aucun flux de chaleur n'est appliqué sur le mélange, alors la concentration x d' ^3He est uniforme tout le long de la colonne. Dans le cas contraire, on constate un enrichissement en ^3He du côté froid, au détriment

du côté chaud. (Figure VI-9). Ce phénomène a été utilisé pour la séparation des isotopes ^3He et ^4He [77] lorsque la méthode de préparation d' ^3He par réactions nucléaires n'existait pas encore.

L'explication de l'effet "heatflush" s'appuie à nouveau sur le modèle à deux fluides. Nous rappelons que l'apport de chaleur sur l' ^4He II a pour conséquence de créer un écoulement de fluide normal des zones chaudes vers les zones froides, écoulement compensé par un contre-courant de superfluide. Dans le cas des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$, Landau et Pomeranchuk [78] ont montré que l' ^3He ne prenait pas part au mouvement superfluide, mais entraînait dans la composante normale de la solution. Cette vue a été confirmée par des mesures de la densité de la composante normale [79] [80] [81]. Aussi, sous l'effet d'un flux thermique, la fraction normale de l' ^4He II entraîne l' ^3He vers les zones les plus froides. Il ne peut y avoir un contre-courant d' ^3He car celui-ci n'interagit pas avec la fraction superfluide. Le résultat est qu'un gradient de concentration est créé dans le mélange. Afin de rétablir une concentration uniforme, l' ^3He tend à diffuser dans le sens inverse (c'est-à-dire le sens du gradient de température). Ce mouvement est gêné par les collisions entre l' ^3He et la fraction normale de l' ^4He II. Finalement en régime stationnaire, ou en d'autres termes quand il n'y a pas de transport global d' ^3He , on a (voir par exemple [82]) :

$$xv_n = -D_0 \frac{dx}{dz} \quad (\text{VI} - 6)$$

où D_0 est le coefficient de diffusion de l' ^3He dans l' ^4He (nous rappelons que l' ^3He est mêlé à la composante normale de l' ^4He , et par conséquent se déplace à la vitesse v_n). Nous pouvons résoudre l'équation VI-6 dans l'hypothèse où le flux thermique envoyé sur le mélange est suffisamment faible afin de se placer dans l'approximation où les concentrations et températures varient peu d'un point à l'autre du mélange, et où par conséquent D_0 et v_n restent des constantes. Dans ce cas :

$$x = x_0 e^{-(v_n/D_0)z} \quad (\text{VI} - 7)$$

où x_0 est la concentration au point le plus froid. Nous retrouvons bien l'effet annoncé au début de ce paragraphe. Un flux thermique appliqué sur une solution d' $^3\text{He}-^4\text{He}$ crée un gradient de concentration le long de cette solution.

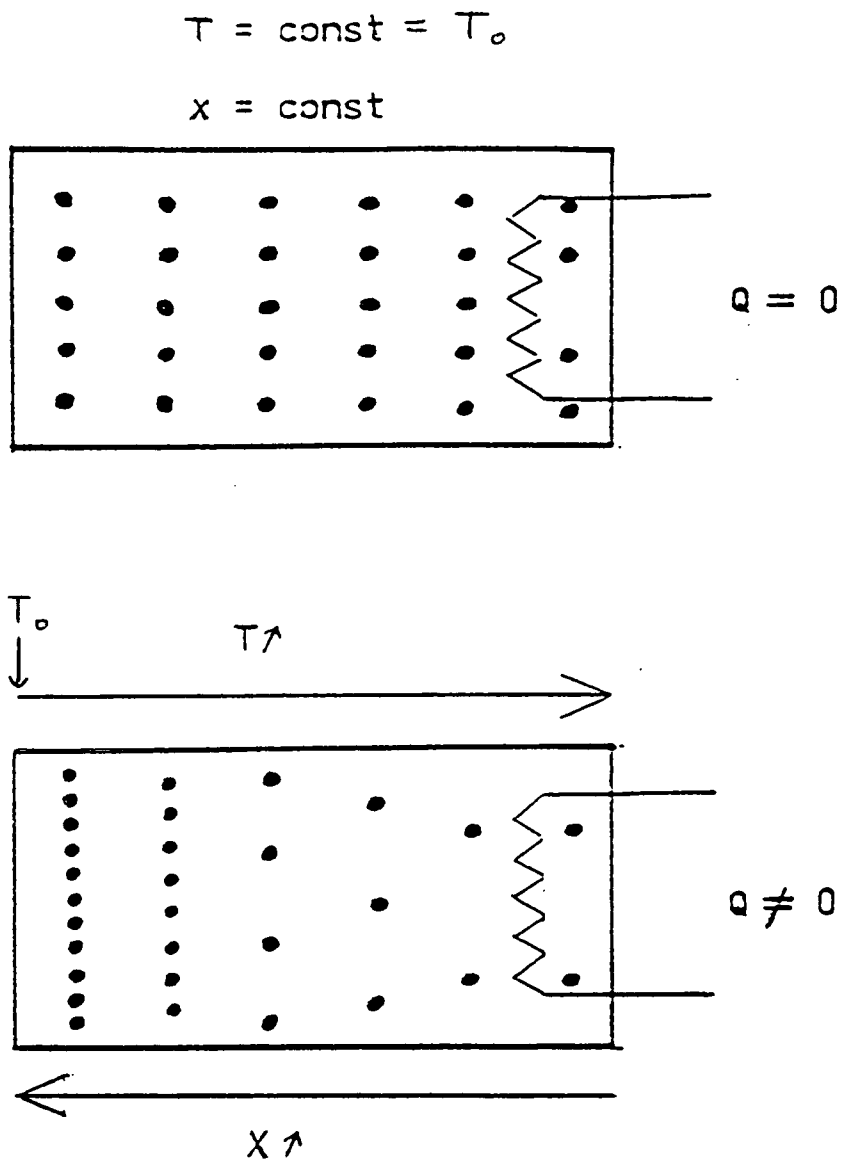


Figure VI-9 : L'effet "heatflush" dans un mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$
 T_0 est maintenue constante. Le symbole \bullet représente les atomes d' ^3He .

L'effet "heatflush" est un phénomène qui doit être bien contrôlé lors de la détermination des propriétés physiques des mélanges. En effet, la moindre chaleur "parasite" modifie la concentration en ^3He . Dans notre cas nous en tirerons avantage, ainsi qu'il l'est montré dans les paragraphes suivants.

VI A.4) CONDUCTIVITE THERMIQUE DES MELANGES $^3\text{He}-^4\text{He}$

Nous avons vu que l' ^4He superfluide pur présentait la capacité de transporter d'importantes quantités de chaleur (pour $T \gtrsim 0,6 \text{ K}$). En revanche, la présence d' ^3He dans l' ^4He entraîne une réduction considérable de la conductivité thermique, même pour de très faibles concentrations d' ^3He . Cette modification par rapport au cas de l' ^4He pur est une conséquence directe de l'effet "heatflush".

Le calcul de la conductivité thermique s'appuie sur une des équations du mouvement des mélanges. Celles-ci furent proposées pour la première fois par Khalatnikov [83], [84].

Nous partons de l'équation :

$$\frac{\partial v_s}{\partial t} = -\text{grad } \mu_4 \quad (\text{VI} - 8)$$

où μ_4 , potentiel chimique de l' ^4He par gramme de solution, est défini par la relation suivante :

$$\mu_4 = \left. \frac{1}{m_4} \frac{\partial g}{\partial n_4} \right)_{T,P,x}$$

m_4 : masse atomique de l' ^4He

n_4 : nombre d'atomes d' ^4He par gramme de solution

g : énergie libre de Gibbs rapportée à 1 g de solution

T,P,x : respectivement température, pression et concentration du mélange

Dans la limite des faibles concentrations en ^3He , nous pouvons introduire la relation habituelle (voir par exemple [85]) :

$$\mu_4 (T, P, x) = \mu_4^0(T, P) + \frac{RT}{M_4} \text{Log}(1 - x)$$

c'est-à-dire :

$$\mu_4 (T, P, x) \simeq \mu_4^0(T, P) - \frac{RT}{M_4} x \quad (\text{VI} - 9)$$

avec :

T, P, x : respectivement la température, pression et concentration en ^3He en un point donné du mélange

R : constante des gaz parfaits

M_4 : masse molaire de l' ^4He

μ_4^0 : potentiel chimique par unité de masse de l' ^4He pur.

μ_4^0 vérifie la relation suivante :

$$d\mu_4^0 = -S_4^0 dT + V_4^0 dP \quad (\text{VI} - 10)$$

avec :

S_4^0 entropie par unité de masse d' ^4He pur.

V_4^0 : volume par unité de masse d' ^4He pur ($V_4^0 = 1/\rho$).

Des relations VI-8) VI-9) et VI-10), on déduit :

$$\frac{dv_s}{dt} = -V_4^0 \text{grad}P + S_4^0 \text{grad}T + \frac{RT}{M_4} \text{grad}x$$

Lorsque le régime est stationnaire, les gradients de pression, température et concentration en tout point du mélange sont reliés par l'équation suivante :

$$-V_4^0 \text{grad}P + S_4^0 \text{grad}T + \frac{RT}{M_4} \text{grad}x = 0$$

Examinons ce que donne cette équation dans les cas particuliers suivants :

* lorsque la concentration en ^3He est uniforme, on retrouve bien l'expression de la pression fontaine déjà rencontrée dans le cas de l' ^4He pur (voir équation VI-1) :

$$\text{grad}P = \frac{S_4^0}{V_4^0} \text{grad}T$$

* lorsque la température est constante dans le mélange, alors :

$$\text{grad}P = \frac{1}{V_4^0} \frac{RT}{M_4} \text{grad}x$$

Cette relation signifie qu'un gradient de concentration dans le mélange doit être compensé par un gradient de pression afin de maintenir l'uniformité du potentiel chimique de l'⁴He. P représente la pression osmotique exercée par les atomes d'³He sur l'⁴He.

* dans le cas où la pression hydrostatique est uniforme tout le long du mélange, alors :

$$S_4^0 \text{grad}T + \frac{RT}{M_4} \text{grad}x = 0 \quad (\text{VI} - 11)$$

Ceci signifie que la somme de la pression osmotique et de la pression fontaine est constante dans toute la solution, et cela permet de comprendre pourquoi la conductivité thermique est moins forte dans les mélanges ³He-⁴He que dans l'⁴He pur : un flux de chaleur envoyé sur une solution crée un gradient de concentration (effet heatflush), et donc un gradient de température.

Ce gradient de température permet de définir une conductivité thermique effective. En effet, en utilisant respectivement (VI-2), (VI-6) et (VI-11), on obtient les trois relations présentées ci-dessous :

$$\begin{aligned} xv_n &= -D_0 \frac{dx}{dz} \\ RT \frac{dx}{dz} &= -M_4 S_4^0 \frac{dT}{dz} \\ Q &\simeq \rho_m S_4^0 T \vartheta_n \end{aligned}$$

avec :

Q le flux thermique transporté par la fraction normale (en W).

ρ_m la masse volumique du mélange.

S_4^0 l'entropie par unité de masse du mélange (pour une solution diluée, l'entropie est pratiquement égale à celle de l'⁴He pur).

En remplaçant ϑ_n par σv_n , σ section du volume contenant le mélange, on déduit que :

$$Q = \frac{\sigma \rho_m (S_4^0)^2 D_0 M_4}{xR} \frac{dT}{dz}$$

De façon habituelle, on peut définir une conductivité thermique K_{eff} de la manière suivante :

$$Q = K_{\text{eff}} \sigma \frac{dT}{dz}$$

On trouve alors que :

$$K_{\text{eff}} = \frac{\rho_m (S_4^0)^2 D_0 M_4}{xR} \quad (\text{W/Km})$$

Ptukha [86] a mesuré cette conductivité effective en fonction de la température, ceci pour des mélanges à diverses concentration. Ses résultats sont représentés sur la figure VI-10. Nous renvoyons à l'article d'où ils sont tirés pour une discussion exhaustive des processus de transfert de chaleur dans les mélanges. Néanmoins, deux constatations s'imposent :

* A "haute température" ($T \gtrsim 1,2$ K) la conductivité thermique d'un mélange, même très dilué en ^3He , est très faible en comparaison de celle de l' ^4He pur dans cette même gamme de température. Cette réduction provient du fait que le mouvement convectif du fluide normal est fortement gêné par les collisions avec les atomes d' ^3He .

* Pour une même température, la conductivité thermique est d'autant plus faible que la concentration est élevée. Ce comportement est conforme avec ce qui était prévu ($K_{\text{eff}} \propto 1/x$).

Dans le cadre de cette thèse, ce sont les deux faits présentés ci-dessus qui retiennent notre attention.

VI - B APPLICATIONS DE L'EFFET "HEATFLUSH"

VI -B.1) MESURE DU POTENTIEL CHIMIQUE DE L'He II DANS LES MELANGES

a) Principe

Dans ce paragraphe, nous allons voir comment il est possible d'exploiter l'effet "heatflush" pour mesurer le potentiel chimique de l'He II.

..... $x = 1.36E-2$
 oooooo $x = 1.32E-3$
 oooooo $x = 1.39E-4$
 ——— inox

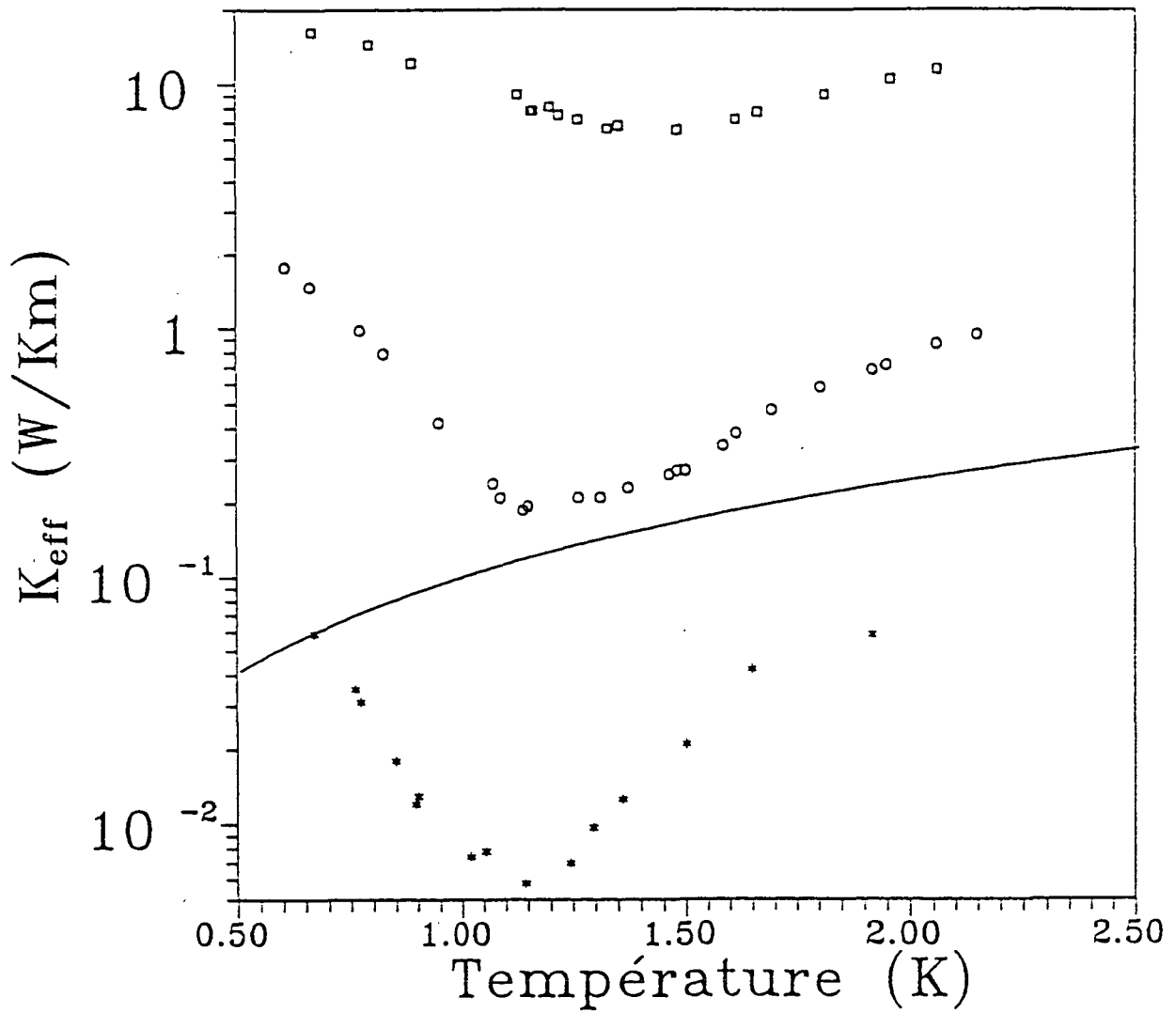


Figure VI-10 : Variation de la conductivité thermique des solutions $^3\text{He}-^4\text{He}$ en fonction de la température, pour diverses concentrations en ^3He [86].

On a également représenté la variation de la conductivité thermique de l'inox [27].

Considérons de nouveau la configuration représentée sur la figure VI-9. Rappelons que le profil de concentration x en ^3He vérifie la formule VI-7 (valable pour une faible puissance thermique Q) :

$$x = x_0 e^{-(v_n/D_0)z}$$

Si on appelle ℓ la longueur de la colonne de mélange et \bar{x} sa concentration moyenne en ^3He , alors :

$$\int_{z=0}^{z=\ell} x dz = \bar{x}\ell \quad (\text{VI} - 12)$$

Après intégration de la formule VI-12, on obtient :

$$x_0 - x_\ell = \frac{v_n}{D_0} \bar{x}\ell \quad (\text{VI} - 13)$$

avec x_0 et x_ℓ concentration en ^3He respectivement en $z=0$ et $z=\ell$.

Finalement, en remplaçant v_n par $Q/\rho_m S_4^0 T \sigma$ (voir paragraphe A-4) dans l'équation VI-13, on arrive à :

$$x_0 - x_\ell = \frac{Q\bar{x}\ell}{D_0 \rho_m S_4^0 T \sigma} \quad (\text{VI} - 14)$$

Si le nombre total d'atomes d' ^3He dans la colonne de mélange est fixé (\bar{x} est constante), alors augmenter la puissance thermique Q a pour conséquence d'augmenter la concentration x_0 et de diminuer la concentration x_ℓ , toute chose égale par ailleurs. Un tel raisonnement n'est évidemment valable que si les gradients de température et de concentration dans le mélange sont suffisamment faibles pour considérer D_0 , ρ_m , S_4^0 et T comme des constantes. Nous nous plaçons dans une telle hypothèse pour expliquer de façon simple le principe de la mesure du potentiel chimique de l' ^3He . Des calculs plus précis seront présentés au cours du paragraphe B-2.

Supposons maintenant que la puissance thermique Q est suffisamment élevée pour que $x_\ell \simeq 0$. En d'autres termes, une des extrémités de la colonne de mélange ne contient plus que de l' ^4He (figure VI-11). Nous avons vu au cours du paragraphe précédent que la nature superfluide de l' ^4He impliquait l'uniformité de son potentiel chimique. En tout point d'abscisse z , on a alors :

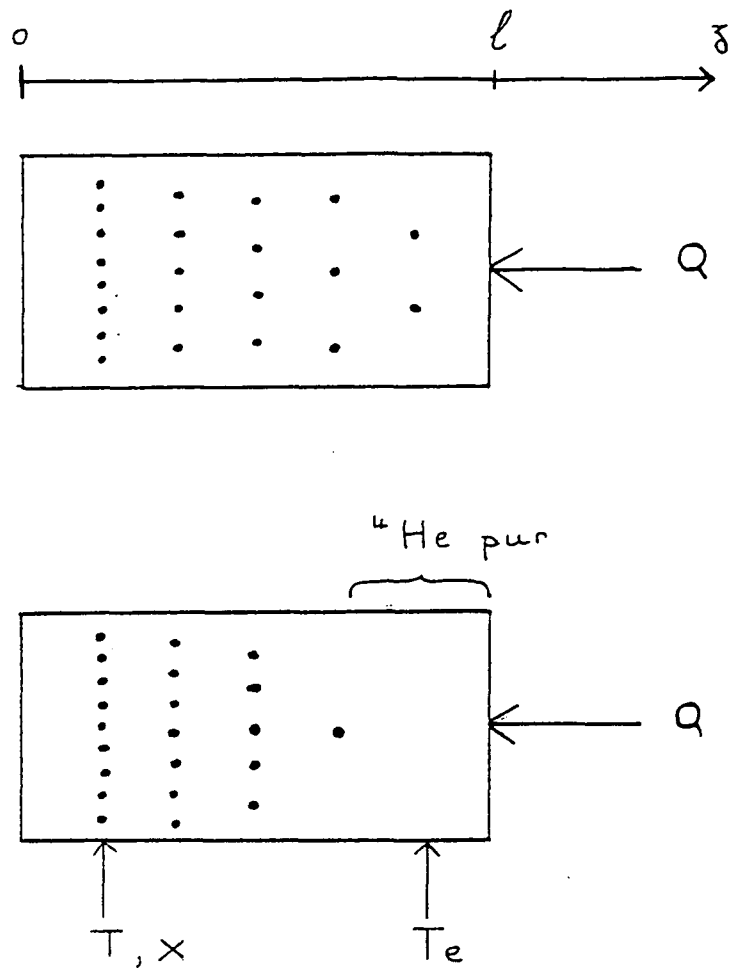


Figure VI-11 : Création d'une zone d' ${}^4\text{He}$ pur dans une colonne de mélange.

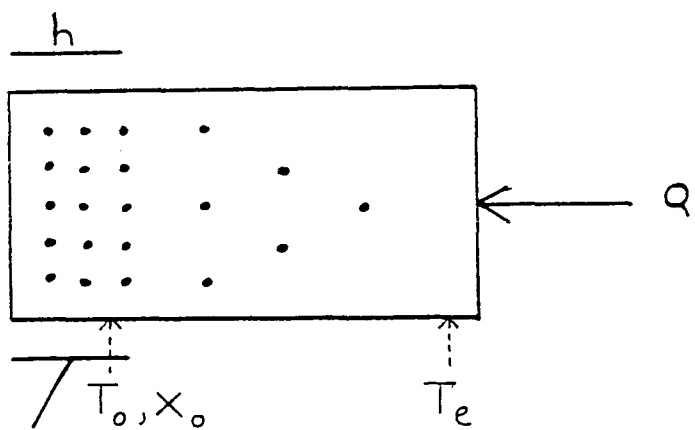


Figure VI-12 : Principe de la mesure du potentiel chimique μ_4 de l' ${}^4\text{He}$.
 Mesure de $T_e \Rightarrow \mu_4$ est déterminé . Mesure de $T_0, x_0 \Rightarrow \mu_4 (T_0, x_0)$ est connu.

$$\mu_4(T, x) = \text{const} \quad (\text{VI} - 15)$$

avec :

T température au point d'abscisse z

x concentration en ^3He au point d'abscisse z

Si une partie de la colonne ne contient que de ^4He (à une température T_e), alors on peut écrire l'équation VI-15 sous la forme suivante :

$$\mu_4(T, x) = \mu_4^0(T_e) \quad (\text{VI} - 16)$$

où μ_4^0 est le potentiel chimique de ^4He pur à la température T_e . Si la température T_e est connue, alors on peut remonter à la valeur de μ_4^0 , puisque le potentiel chimique de ^4He pur a été déterminé par ailleurs [52]. En vertu de la relation VI-16, le potentiel chimique de ^4He dans le mélange est alors déterminé.

b) Procédure expérimentale

En pratique, la situation représentée sur la figure VI-11 peut être reproduite de la manière suivante. La solution est contenue dans un tube dont on chauffe suffisamment une des extrémités pour créer une zone d' ^4He pur. L'extrémité opposée de ce tube est quant à elle ancrée thermiquement sur un réservoir froid (la boîte à mélange). Le contact ne pouvant être strictement local, il existera une zone isotherme (T_0) et isoconcentrée (x_0), de longueur h (figure VI-12). C'est cette zone qui attirera notre attention, puisque sa température T_0 est plus basse qu'à n'importe quel autre point du mélange.

D'après la relation VI-16 :

$$\mu_4(T_0, x_0) = \mu_4^0(T_e)$$

Il s'agit donc de déterminer d'une part T_e pour connaître $\mu_4(T_0, x_0)$, et d'autre part T_0 et x_0 .

D'un point de vue expérimental, ceci est tout à fait possible. Nous pouvons mesurer T_0 et T_e par l'intermédiaire d'une résistance en carbone. Quant à la concentration x_0 , elle peut être donnée par mesure capacitive de la constante diélectrique ϵ du mélange.

La valeur d' ϵ permet de remonter à son volume molaire [87] ; la variation de celui-ci en fonction de la température et de la concentration est en outre connue [52].

Par ailleurs, il est important de s'assurer qu'aux moments des mesures, le système est effectivement dans l'état supposé, à savoir avec de l' ^4He pur à une de ses extrémités. Une façon de détecter sa présence consiste à disposer deux thermomètres dans la zone qu'il est censé occuper. Lorsque l' ^4He contient de l' ^3He , de par la faible conductivité thermique des mélanges, les thermomètres indiquent deux températures différentes. En revanche, la présence d' ^4He pur, de très forte conductivité thermique, est signalée par l'égalisation des valeurs données par les deux thermomètres.

En définitive, il est donc a priori possible de connaître le potentiel chimique du mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$ en fonction de sa température et de sa concentration.

c) Mesure de la température d'une solution démixée : la jauge à pression osmotique

Les bases théoriques sur lesquelles repose le principe de la jauge à pression osmotique et de la mesure du potentiel chimique de l' ^4He dans un mélange sont identiques. Néanmoins, la présence d'une solution saturée dans la boîte à mélange introduit deux particularités appréciables.

Premièrement, la concentration en ^3He de la phase diluée y est fixée, déterminée uniquement par sa température. Celle-ci reste constante à condition de prendre les précautions élémentaires décrites au chapitre III, pour que la mesure ne perturbe pas le système (flux de chaleur modérés, ancrage thermique...).

Deuxièmement, il est très aisé de vérifier que l'extrémité chaude ne contient plus que de l' ^4He : la température y est alors constante, même si le flux de chaleur apporté varie. Cette caractéristique a été notifiée au chapitre III.

VI -B.2) MODELISATION D'UNE COLONNE DE MELANGE : ESTIMATION DU PROFIL DE TEMPERATURE ET DE CONCENTRATION

En pratique, c'est dans la "partie expérimentale" de nos cellules, c'est-à-dire l'extrémité du tube qui contient le mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$ condensé, que sera mesuré le potentiel chimique de l' ^4He . Le souci de vérifier la validité des températures mesurées dans les cellules nous a conduit à développer un modèle permettant de les calculer.

Nous appliquerons aussi notre modèle à la description de la jauge à pression osmotique pour vérifier qu'il rend effectivement compte de son fonctionnement et qu'il reproduit de manière satisfaisante toutes les observations expérimentales.

a) La colonne de mélange

Principe du calcul

Nous supposons que le système est dans la configuration représentée sur la figure VI-13. Le calcul est mené de la façon suivante :

Le flux de chaleur Q envoyé sur le mélange afin de chasser les atomes d' ^3He vers les zones plus froides est transporté à la fois à travers le mélange et les parois du tube, dans des proportions dépendant du rapport des conductivités thermiques K_{paroi} et $K_{^3\text{He}-^4\text{He}}$ de ces deux milieux. On admet qu'à une même hauteur z , la température est uniforme (ce qui revient à élaborer un modèle purement unidimensionnel). Alors, d'après la loi classique de propagation de la chaleur :

$$Q = K_{\text{paroi}} \frac{dT}{dz} + K_{\text{mélange}} \frac{dT}{dz}$$

Expérimentalement, les parois de nos cellules sont en pyrex. D'après la référence [27], la conductivité thermique du pyrex suit approximativement la relation :

$$K_{\text{pyrex}} = 15 \times 10^{-3} T^{1,7} \quad \text{W/Km}$$

Pour la conductivité thermique des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$, la formule $K_{\text{mélange}} = 3 \cdot 10^{-3} / x$ W/Km approche raisonnablement les valeurs mesurées par Abel et al [88].

On a ainsi :

$$Q = \left[15 \cdot 10^{-3} \cdot T^{1,7} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot [d_e^2 - d_i^2] + \frac{3 \times 10^{-3}}{x} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot d_i^2 \right] \frac{dT}{dz} \quad (\text{VI} - 17)$$

d_e et d_i étant respectivement les diamètres extérieur et intérieur de la paroi.

Une deuxième relation nous est fournie par l'uniformité du potentiel chimique de l' ^4He le long de la colonne. Comme il a été rappelé dans le paragraphe A-4, pour chaque hauteur z :

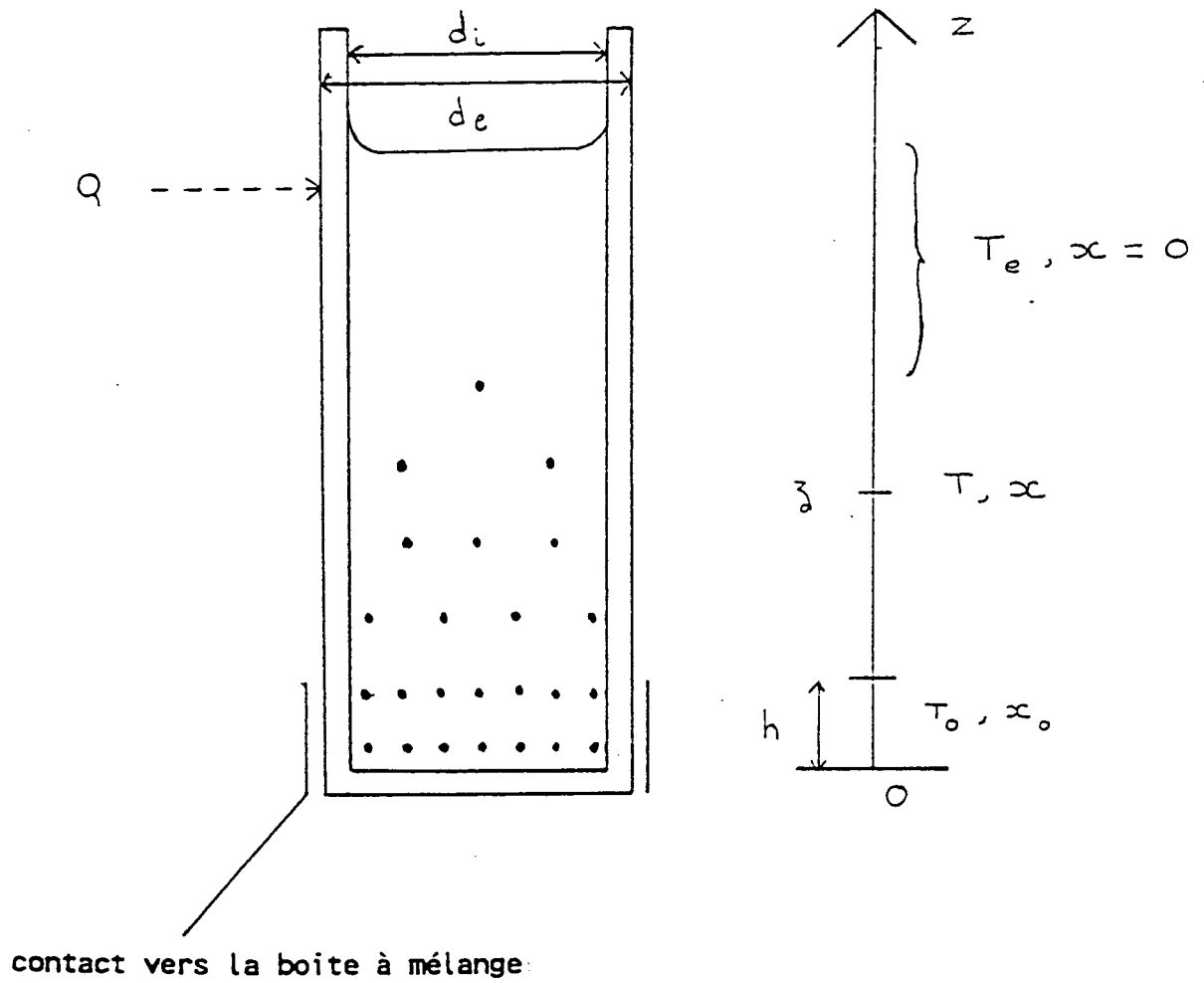


Figure VI-13 : Modélisation de la colonne de mélange pour le calcul de son profil de température et de concentration.

$$P_{\text{osm}}(T, x) + P_{\text{font}}(T) = \text{const} \quad (\text{VI} - 18)$$

En pratique, la température T_0 la plus froide de nos cellules (en $z=0$) sera telle que la pression fontaine pourra être négligée devant la pression osmotique. Aussi VI-18 devient :

$$P_{\text{osm}}(T, x) + P_{\text{font}}(T) = P_{\text{osm}}(T_0, x_0) = P_{\text{font}}(T_e) \quad (\text{VI} - 19)$$

Pour les calculs, la pression fontaine est approchée par la relation :

$$P_{\text{font}}(T) = 7,74 \times 10^{-3} \exp(6,16T) \text{ mbar} \quad (\text{VI} - 20)$$

qui reproduit très bien les valeurs mesurées par Sudraud et al [53] . Quant à la pression osmotique, un “fit” des valeurs tirées de la référence [50] ($T < 350 \text{ mK}$, $x < 8\%$) conduit à :

$$P_{\text{osm}} = 3140x(T + x) \text{ mbar} \quad (\text{VI} - 21)$$

Nous pouvons alors écrire l'équation VI-19 sous la forme suivante :

$$3.140x(T + x) + 7,74.10^{-3} \exp(6,16T) = 7,74.10^{-3} \exp(6,16T_e) \quad (\text{VI} - 22)$$

Il nous reste un certain nombre de paramètres à fixer :

- Les diamètres d_e externe et d_i interne des parois
- La longueur h de thermalisation vers un point froid (en pratique, le point froid est la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution). Sur toute cette longueur h , la température et la concentration du mélange sont uniformes et valent respectivement T_0 et x_0 .
- Le nombre total de moles d' ^3He , N_3 et d' ^4He , N_4 , et évidemment la puissance thermique Q .

Il s'agit en premier lieu de connaître la concentration x_0 associée à la température T_0 . Pour cela, une valeur de départ est assignée à x_0 . De l'équation VI-19, on déduit T_e , température de la zone d' ^4He pur.

Connaissant x_0 et T_0 , on peut déterminer T et x pour chaque de z à l'aide des équations VI-17 et VI-22, ceci jusqu'à ce que $T = T_e$. Si le nombre de moles d' ^3He dans toute la colonne n'est pas égal à N_3 , alors x_0 est modifié jusqu'à ce que cette contrainte soit réalisée. Le couple (x_0, T_0) étant déterminé, nous pouvons en déduire le profil de température et de concentration en ^3He le long de la colonne de mélange.

Les figures VI-14a , VI-14b et VI-14c représentent les résultats calculés pour des diamètres intérieurs de paroi respectivement de 0,8 mm, 1 mm et 1,2 mm. Dans les trois cas, les paramètres ont été fixés à des valeurs se rapprochant de nos conditions expérimentales.

Diamètre extérieur des parois : 6 mm

Longueur de thermalisation vers un point froid : 1,5 cm

Température minimum : 250 mK

Nombre de moles d' ^3He : $1,44 \cdot 10^{-5}$ mole.

Nombre de moles d' ^4He : $1,20 \cdot 10^{-3}$ mole.

La puissance thermique a quant à elle été choisie de telle sorte que l' ^3He soit absent d'une région s'étendant sur environ 1 cm. En pratique, une telle longueur est suffisante pour placer les deux thermomètres qui détecteront la présence de l' ^4He pur.

Nous pouvons remarquer que chasser l' ^3He vers les zones froides nécessite d'autant plus de puissance calorifique que le diamètre intérieur de la colonne est important. On retrouve bien le résultat présenté qualitativement dans le paragraphe précédent (équation VI-14). Etant donné que cette puissance est absorbée par la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution, l'étude des solutions $^3\text{He}-^4\text{He}$ à basses températures est facilitée par l'utilisation de petits diamètres intérieurs de cellule. En pratique, nous n'utiliserons pas des diamètres supérieurs à 1 mm.

Les figures VI-14a, VI-14b et VI-14c nous montrent la faible valeur de la conductivité thermique des mélanges : il existe un important gradient thermique sur quelques centimètres seulement. Elle est du même ordre de grandeur que celle du pyrex (figure VI-15) matériau classé parmi les mauvais conducteurs de chaleur.

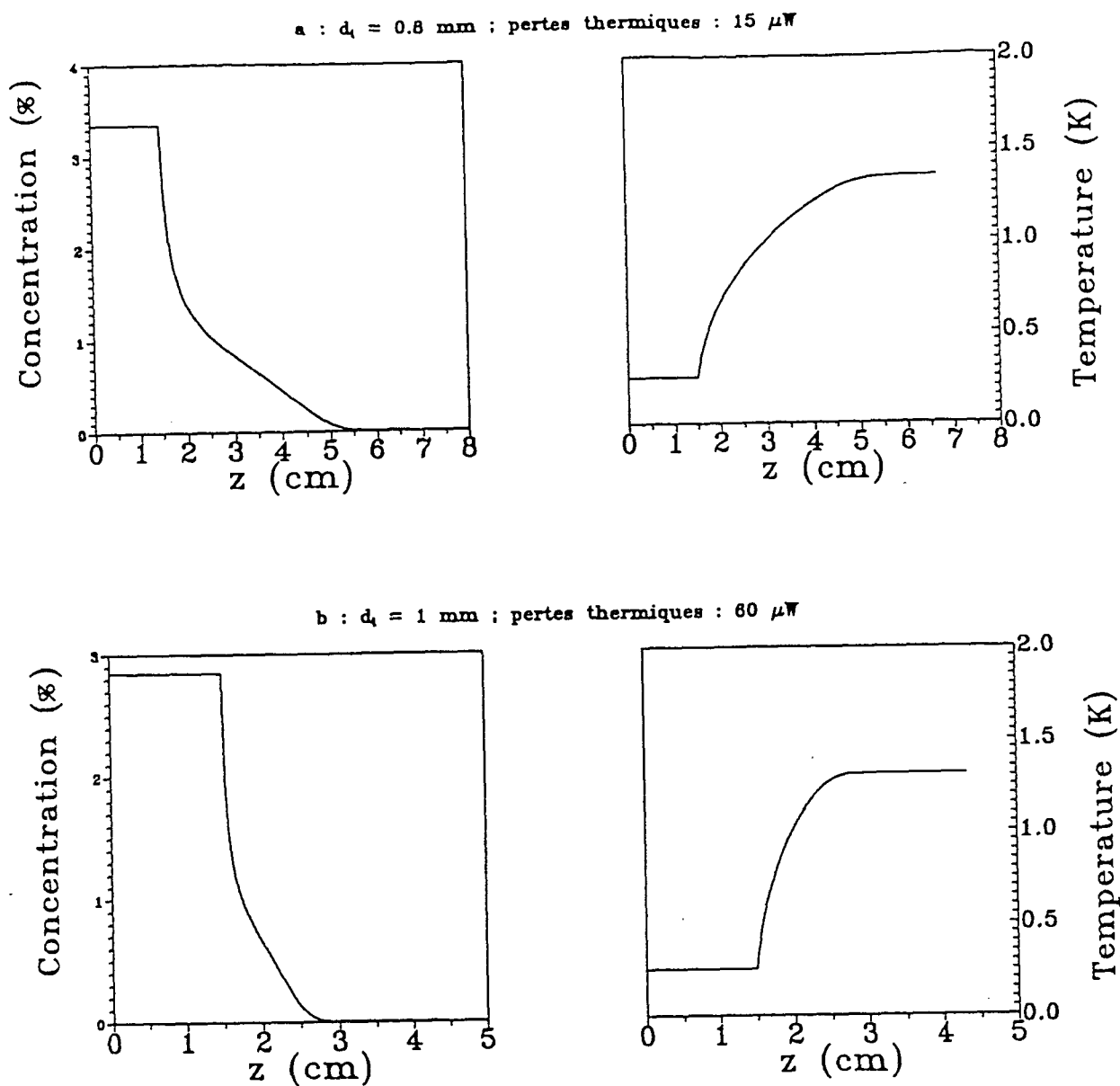


Figure VI-14 : Estimation du profil de température et de concentration en ^3He dans une colonne de mélange.

Diamètres extérieur et intérieur des parois : 6 mm, d_i

Longueur de thermalisation vers la boîte à mélange : 1,5 cm

Température minimum : $T_0 = 250 \text{ mK}$

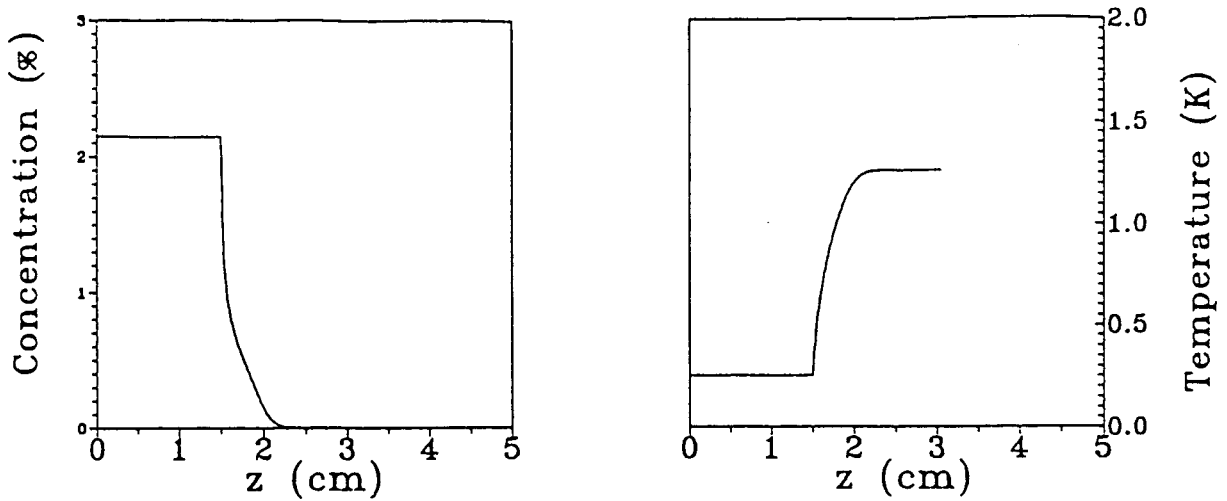
Nombre de moles d' ^3He (resp. ^4He) = $1,44 \times 10^{-5}$ (resp. $1,20 \times 10^{-3}$)

La puissance thermique a été choisie de telle sorte que le volume d' ^4He pur s'étende sur au moins 1 cm.

a : $d_i = 0,8 \text{ mm}$; puissance thermique : $15 \mu\text{W}$

b : $d_i = 1 \text{ mm}$; puissance thermique : $60 \mu\text{W}$

c : $d_i = 1.2 \text{ mm}$; pertes thermiques : $150 \mu\text{W}$



c : $d_i = 1,2\text{mm}$; puissance thermique : $150 \mu\text{W}$.

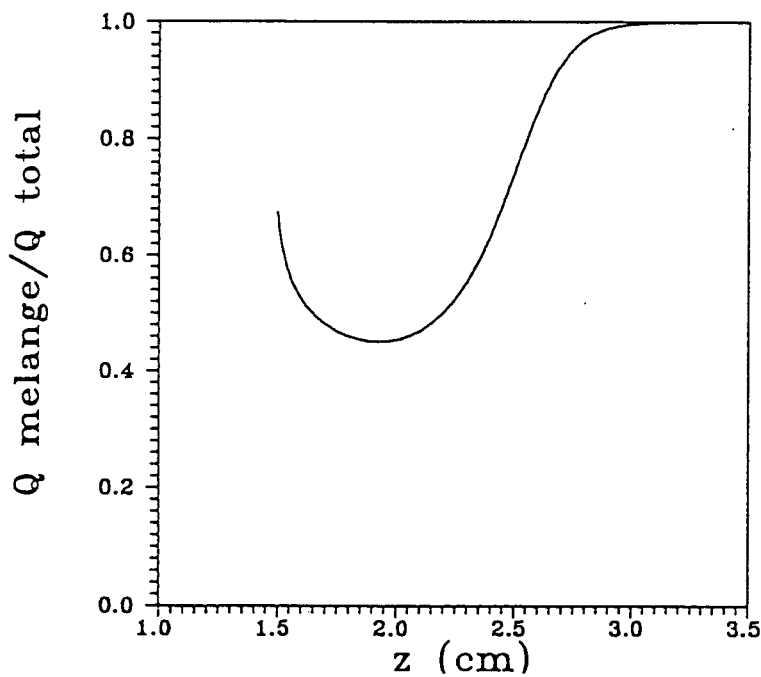


Figure VI-15 : Variation en fonction de la position dans le mélange, du rapport entre le flux de chaleur qui le traverse et le flux total.

Diamètre extérieur et intérieur des parois : $6 \times 1 \text{ mm}$

Longueur de thermalisation vers la boîte à mélange : $1,5 \text{ cm}$

Température minimum : $T_0 = 250 \text{ mK}$

Nombre de moles d' ^3He (resp. ^4He) : $1,44 \times 10^{-5}$ (resp. $1,20 \times 10^{-3}$)

Pertes thermiques : $60 \mu\text{W}$.

En pratique, nous avons intérêt à ce que la chaleur envoyée sur l'extrémité de la colonne passe préférentiellement dans le mélange, afin de réduire les pertes thermiques sur le réfrigérateur à dilution. Les parois en pyrex doivent par conséquent être aussi minces que possible. Jusqu'à présent, pour des raisons à la fois de fragilité et de fabrication, nous ne disposons que de cellules dont le diamètre extérieur est de 6 mm. Au regard des résultats représentés sur les figures VI-15 et VI-16, cette valeur nous permettra en principe de créer une zone $d^4\text{He}$ pur avec des pertes thermiques raisonnables sur la boîte à mélange.

b) Cas de la Jauge à Pression Osmotique

Nous allons appliquer le modèle développé précédemment au cas de la jauge à pression osmotique. Pour une température donnée de la boîte à mélange, nous nous proposons de connaître la température T de l'extrémité de la jauge (figure VI-16) en fonction de la puissance thermique. Nous pourrons alors comparer les résultats obtenus avec la courbe expérimentale [III-15] de la première partie.

Reprenons les formules VI-17 et VI-18 et modifions l'équation VI-17 pour l'appliquer à la jauge à pression osmotique. La conductivité thermique du pyrex est remplacée par celle du cupro-nickel, matériau qui constitue les parois de la jauge. D'après [27], cette conductivité K peut être approchée par la formule empirique

$$K = 0,1.T^{1,3} \text{ W/Km}$$

L'équation VI-17 devient alors :

$$Q = [0,1.\frac{\pi}{4}[d_e^2 - d_i^2].T^{1,3} + \frac{3 \times 10^{-3}}{x}.\pi.\frac{d_i^2}{4}] \frac{dT}{dz} \quad (\text{VI} - 23)$$

l'équation VI-18 est quant à elle conservée :

$$3140x(T + x) + 7,74.10^{-3}\exp(6,16T) = \text{const}$$

Résolution

Partons en $z=0$ d'une température T_{bm} donnée de la boîte à mélange. La concentration x_{bm} en $z=0$ est par conséquent connue grâce à l'équation III-3 :

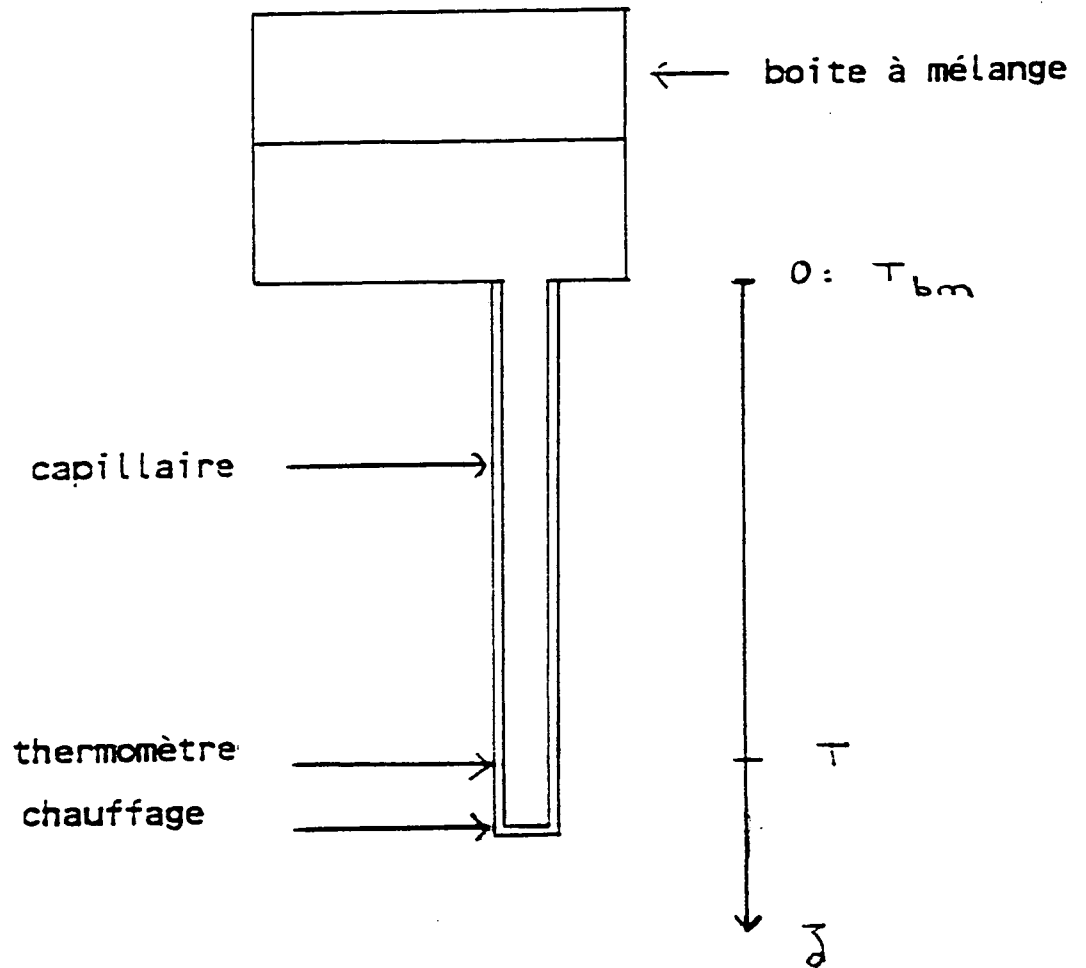


Figure VI-16 : Représentation symbolique de la jauge à pression osmotique.

$$x_{bm} = 0,066 + 0,5056.T_{bm}^2$$

Des formules VI-18 et VI-23, on peut alors en tirer la température et concentration en tout point de la colonne.

La figure VI-17 représente la variation théorique de la température T de l'extrémité chaude en fonction de la puissance de chauffage. La température de la boîte à mélange à été fixée à 52 mK. Pour comparaison, nous reproduisons la courbe expérimentale obtenue pour la même température de la boîte à mélange (figure III-15). Les différences entre ces deux courbes ont deux origines :

* Dans notre expérience, le capillaire est thermalisé à l'évaporateur du circuit de dilution. Cette précaution permet de dévier vers l'évaporateur plutôt que vers la boîte à mélange, une partie de la chaleur nécessaire à la création d'une zone d'⁴He pur (voir chapitre III). Nous n'avons pas tenu compte de ce fait pour notre modélisation.

* La jauge à pression osmotique que nous avons fabriquée est formée de deux capillaires de diamètres différents connectés en série. Dans notre calcul, nous avons choisi des diamètres extérieur et intérieur constants tout le long du capillaire.

Nous pouvons néanmoins constater avec satisfaction que les courbes théoriques et expérimentales présentent la même allure. En particulier, le "plateau de température" indicateur de la présence d'⁴He pur dans la jauge est bien prévu par la modélisation.

VI - C CARACTERISATION D'UN MELANGE POLARISE

VI -C.1) PROCEDURE DE MESURE DU POTENTIEL CHIMIQUE DE l'⁴He DU MELANGE POLARISE

Considérons à présent la situation où la colonne de mélange contient une solution polarisée d'³He - ⁴He. L'uniformité du potentiel chimique de l'⁴He le long du mélange est toujours vérifiée (les équations aboutissant à un tel résultat ne dépendent pas de l'état de polarisation de l'³He). Par conséquent, dans la configuration où une des extrémités de la colonne ne contient que de l'⁴He :

$$\mu_4^0(T_e) = \mu_4(T_0, x_0, M) \quad (\text{VI} - 24)$$

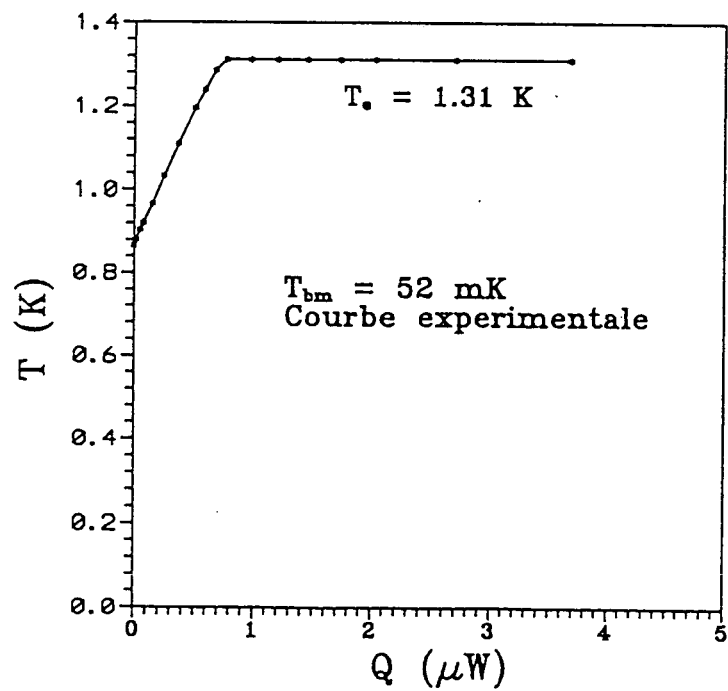
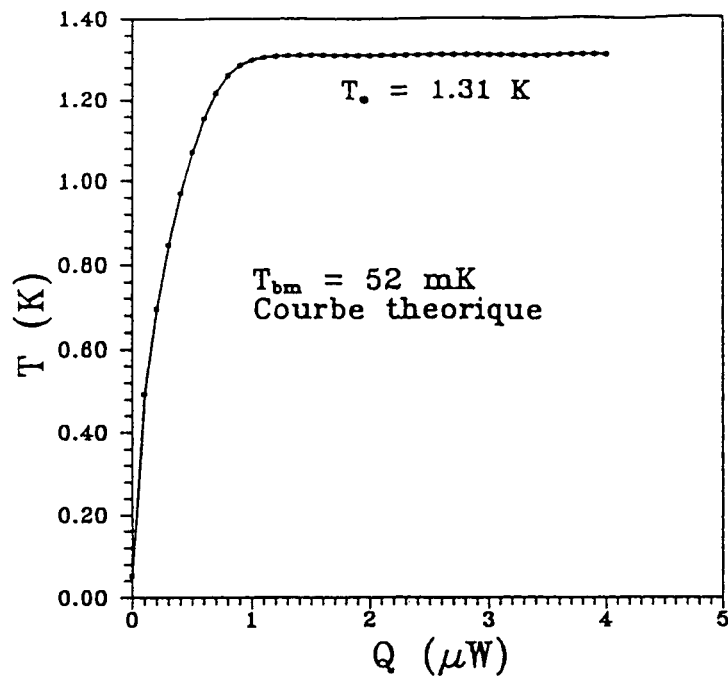


Figure VI-17 : Variation de la température T de l'extrémité du capillaire (plus exactement à 1,5 cm de l'extrémité) de la jauge à pression osmotique en fonction de la puissance thermique (courbe théorique).

avec des notations identiques à celles du paragraphe précédent, M étant le taux de polarisation du liquide ($|M| \lesssim 1$) dans la région la plus froide du mélange.

Grâce à l'équation VI-24 la connaissance de T_e nous donne la valeur de $\mu_4(T_0, x_0, M)$. Il s'agit par conséquent de déterminer la température, la concentration et le taux de polarisation dans la zone la plus froide du mélange. Dans ce paragraphe, nous présentons succinctement la procédure expérimentale. Elle sera plus largement développée au cours du chapitre VII.

La température T_0 du mélange pourra être estimée de la même façon que dans le paragraphe B. Une incertitude supplémentaire concernant la valeur de T_0 provient du fait que nous ne savons pas si la résistance de Kapitza entre le liquide et le pyrex dépend de l'aimantation du mélange. Pour plus de rigueur, il conviendrait donc de le vérifier.

Nous verrons dans le chapitre suivant que grâce à la géométrie particulière de notre cellule, la caractérisation des signaux de Résonance Magnétique Nucléaire fournit en théorie une relation entre le taux de polarisation M et la concentration x_0 (le produit $x_0 M$ est connu).

Enfin, la mesure du temps de diffusion des spins dans le mélange devrait nous permettre en principe de relier x_0 à T_0 .

D'un point de vue conceptuel, il nous semble par conséquent possible de mesurer le potentiel chimique de ${}^4\text{He}$ en fonction de la température, concentration et taux de polarisation du mélange.

VI -C.2) CONTRAINTES EXPERIMENTALES

a) Influence sur la forme de la colonne de mélange

Le principe de la mesure du potentiel chimique de ${}^4\text{He}$ impose de disposer d'un volume de liquide relativement important. Il est clair que la valeur typique de 1 mm^3 obtenu au laboratoire dans le cas d'une cellule à ${}^3\text{He}$ pur (cellule décrite dans la première partie de ce mémoire), est nettement insuffisant. Par conséquent, nous introduirons dans nos cellules une plus grande quantité d'hélium. Comme notre intérêt se porte sur les solutions diluées, c'est en fait la fraction d' ${}^4\text{He}$ qui sera considérablement augmentée.

Une deuxième contrainte concerne la longueur typique sur laquelle s'étend le liq-

uide. Nous avons expliqué dans le paragraphe B qu'une manière de détecter la présence d' ^4He pur consistait à repérer l'égalité de la température de deux thermomètres situés au sommet de la colonne de mélange. Etant en fait disposés sur les parois en pyrex de la cellule, un trop faible écartement entre eux peut avoir comme effet l'égalisation de leur température par la simple conduction thermique à travers le pyrex. D'où le choix d'un petit diamètre pour la colonne de mélange (le liquide s'étend sur une plus longue distance), motivé en outre par le besoin de faible puissance thermique pour chasser les atomes d' ^3He vers les zones froides (voir § B). En pratique, les diamètres seront inférieurs ou égaux à 1 mm.

b) Sensibilité de la mesure.

Nous avons montré précédemment qu'en théorie, il était possible de mettre en oeuvre une technique de mesure du potentiel chimique de l' ^4He , ceci en fonction de la température, concentration et taux de polarisation. Il reste à vérifier que la modification de μ_4 en fonction de M est effectivement détectable par l'intermédiaire de la mesure de la température T_e de l' ^4He pur. En d'autres termes, aurons-nous une sensibilité de mesure de T_e suffisante pour observer la variation de μ_4 en fonction de M ?

Estimons tout d'abord quelle est la différence entre les températures T_e de l' ^4He pur lorsque le taux d'aimantation du mélange passe de M à 0. Pour mener ce calcul à bien, nous nous appuyons sur l'équation présentée dans l'introduction de la 2ème partie de ce mémoire, valable dans le cas des faibles aimantations :

$$\mu_4(T, P, B_0, N_3, N_4, M) = \mu_4(T, P, B_0, N_3, N_4, 0) - \frac{1}{2} \mu_n^2 x^2 M^2 \left(\frac{\partial \chi_0^{-1}}{\partial x} \right)_{T, P, N_3, M, B_0} \quad (\text{VI} - 25)$$

où

T, P, M sont respectivement la température, pression et taux de polarisation.

N_3, N_4 nombre total de moles d' ^3He et d' ^4He dans la région froide.

B_0 le champ magnétique appliqué sur l'échantillon.

x concentration en ^3He .

μ_n magnéton nucléaire.

χ_0 susceptibilité magnétique par atome d' ^3He .

Un tel développement sous-entend que le taux de polarisation n'influence pas la concentration en ^3He , toutes choses égales par ailleurs. Compte tenu de la définition habituelle de la pression osmotique P_{osm} , on a :

$$\mu_4(T, P, B_0, N_3, N_4, M) = \mu_4(T, P - P_{\text{osm}}(M), B_0, 0, N_4) \quad (\text{VI} - 26)$$

et

$$\mu_4(T, P, B_0, N_3, N_4, 0) = \mu_4(T, P - P_{\text{osm}}(0), B_0, 0, N_4) \quad (\text{VI} - 27)$$

En remplaçant VI-26 et VI-27 dans l'équation VI-25 on obtient :

$$\mu_4(T, P - P_{\text{osm}}(M), B_0, 0, N_4) = \mu_4(T, P - P_{\text{osm}}(0), B_0, 0, N_4) - \frac{1}{2} \mu_n^2 x^2 M^2 \frac{\partial \chi_0^{-1}}{\partial x} \Big|_{T, P, N_3, M, B_0}$$

Dans la limite des basses températures (faibles pressions), nous pouvons faire un développement limité des deux premiers termes autour de $P=0$.

Nous arrivons finalement à :

$$P_{\text{osm}}(M) = P_{\text{osm}}(0) + \frac{1}{2} n_4^0 \mu_n^2 x^2 M^2 \frac{\partial \chi_0^{-1}}{\partial x} \Big|_{T, P, N_3, M, B_0} \quad (\text{VI} - 28)$$

où n_4^0 est la densité d' ^4He pur (atomes/ m^3) à pression nulle :

$$n_4^0 = \frac{\mathcal{N}_A}{V_m^0}$$

avec :

V_m^0 volume molaire de l' ^4He pur

\mathcal{N}_A nombre d'Avogadro

D'après [52] :

$$n_4^0 = \frac{6,022 \cdot 10^{23}}{27,58 \cdot 10^{-6}} = 2,18 \cdot 10^{18} \quad \text{atomes}/\text{m}^3$$

Lorsque nous sommes dans la configuration où l'extrémité de la colonne ne contient que de l' ^4He à une température T_e , alors :

$$P_{\text{osm}}(T_0, x_0, M) = P_{\text{font}}(T_e)_M \quad (\text{VI} - 29)$$

pour un mélange polarisé, et

$$P_{\text{osm}}(T_0, x_0, 0) = P_{\text{font}}(T_e)_{M=0} \quad (\text{VI} - 30)$$

pour un mélange non polarisé.

Les équations VI-29 et VI-30 ne sont valables que si la température de la zone la plus froide de la colonne de mélange est suffisamment basse pour pouvoir négliger la pression fontaine devant la pression osmotique. Nous serons dans cette hypothèse expérimentalement. De VI-28 VI-29 et VI-30 , on déduit

$$P_{\text{font}}(T_e)_M - P_{\text{font}}(T_e)_{M=0} = \frac{1}{2} n_4^0 \mu_n^2 x^2 M^2 \left. \frac{\partial \chi_0^{-1}}{\partial x} \right)_{T, P, N_3, M, B_0} \quad (\text{VI} - 31)$$

Application numérique

Il s'agit tout d'abord de connaître la dépendance de χ en fonction de x . Rappelons que le calcul développé précédemment n'est valable qu'à très basse température. Dans ce cas, le mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$ se comporte comme un liquide de Fermi de quasi-particules d' ^3He . Dans ce régime, nous pouvons appliquer la théorie de Landau des liquides de Fermi pour calculer les propriétés physiques du mélange [89] [90].

En particulier, la susceptibilité magnétique χ par atome d' ^3He est donné par la relation :

$$\chi = \frac{\chi_F}{1 + F_0^a}$$

avec :

χ_F la susceptibilité magnétique d'un gaz idéal de Fermions, de masse m_3^* . m_3^* est la masse d'une quasi particule d' ^3He (masse effective qui tient compte des interactions $^3\text{He}-^3\text{He}$ et $^3\text{He}-^4\text{He}$).

F_0^a un des paramètres intervenant dans la théorie de Landau. Ces paramètres décrivent les interactions $^3\text{He}-^3\text{He}$.

Prenons l'exemple d'une solution dont la concentration en ^3He , est de 3% : d'après la référence [25]

$$m_3^* \simeq 2,4.m_3$$

A faible concentration ($x < 10\%$), le paramètre F_0^a pourra être négligé devant 1 [91]. La susceptibilité magnétique χ est alors égale à χ_F : le mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$ peut être considéré comme un gaz idéal de Fermions de masse m_3^* .

Plaçons-nous à température nulle. La susceptibilité magnétique (par atome d' ^3He) est donnée par la formule usuelle :

$$\chi = g(\epsilon_F)\mu_n^2/N_3$$

où $g(\epsilon_F)$ est la densité d'état du niveau de Fermi.

Nous avons par conséquent :

$$\chi = \frac{m_3^*}{\hbar^2} \left[\frac{1}{\sqrt{3}} \pi^2 n x \right]^{-2/3} \times \mu_n^2 \quad (\text{VI} - 32)$$

avec :

$\hbar = h/2\pi$, h constante de Planck :

n densité totale de la solution (atomes/ m^3).

Pour le calcul, nous prendrons $n = n_4^0$; ceci conduit à une erreur sur la valeur de la densité de l'ordre de 0,8 % pour une solution dont la concentration en ^3He est de 3%. Tous calculs faits (on utilise les équations VI-31 et VI-32), on arrive finalement au résultat suivant :

$$P_{\text{font}}(T_c)_M - P_{\text{font}}(T_c)_{M=0} = 1,171 \times 10^3 \times M^2 \text{ Pa}$$

Pour un taux d'aimantation de 10%, la variation de la pression fontaine est donc de l'ordre de 12 Pascal (0,12 mbar).

Considérons à présent la relation empirique modélisant le comportement de la pression fontaine avec la température (équation VI-20) :

$$P_{\text{font}} = 7,74 \times 10^{-3} \exp(6,16T) \text{ mbar}$$

Pour de faibles variations de pression, on a ainsi:

$$\Delta T = \frac{1}{6,16} \times \frac{\Delta P_{\text{font}}}{P_{\text{font}}} = 245,6 \frac{M^2}{\exp(6,16T_e)} \text{ K} \quad (\text{VI} - 33)$$

Le modèle du paragraphe B-2 nous permet d'estimer la température T_e de la zone d' ^4He pur, avec les paramètres de la cellule décrite dans le chapitre VII :

Longueur de thermalisation : 1,5 cm

Diamètres externe et interne de la cellule : 6 mm et 1 mm

Pertes thermiques : 30 μW

Nombre de moles d' ^3He (resp. d' ^4He) dans le mélange : $1,44 \cdot 10^{-5}$ (resp. $1,22 \cdot 10^{-3}$)

Pour une température dans la zone froide de 200 mK, $T_e \simeq 1,25 \text{ K}$. On trouve alors que la variation de T_e est d'environ 1 mK lorsque le taux d'aimantation du mélange passe de 10 % à 0 %. Aux faibles aimantations, il s'agit donc de mesurer la température de l' ^4He pur avec une sensibilité de l'ordre de 1 mK, ce qui est en pratique réalisable. A plus forte aimantation, nous ne pouvons pas quel est l'ordre de grandeur de la variation de T_e , car le modèle développé plus haut n'est a priori plus valide : d'où l'intérêt de mesurer μ_4 à forte aimantation.

CONCLUSION

En théorie, nous disposons d'une méthode qui devrait permettre de connaître le potentiel chimique de l' ^4He en fonction de l'aimantation, température et concentration en ^3He du mélange. Signalons que cette technique pourrait être appliquée pour l'étude des solutions polarisées **demixées**. Dans ce cas, la configuration de la cellule est semblable à celle de la jauge à pression osmotique du réfrigérateur à dilution : elle est prolongée d'un capillaire en verre dont l'extrémité est équipée d'un chauffage et d'un thermomètre tout comme la jauge de la dilution. Nous avons construit quelques cellules sur ce modèle. Le problème réside dans l'extrême fragilité du capillaire qui se brise facilement. Nous avons alors pris le parti d'accorder la priorité de ce travail de thèse à l'étude de cellules qui imposent moins de contraintes.

CHAPITRE VII

ETUDE EXPERIMENTALE D'UN MELANGE POLARISE : PREMIER TYPE DE CELLULE

VII -A MONTAGE EXPERIMENTAL

VII -A.1) ALLURE GENERALE DE LA CELLULE

a) Caractéristiques

La figure VII-1 représente la première cellule à mélange que nous avons étudiée. Dans sa partie supérieure, elle est en tous points semblable à la cellule décrite dans la première partie de ce mémoire (Chapitre II). Seule sa partie inférieure est différente. Elle est constituée d'un tube cylindrique de diamètres extérieur et intérieur respectivement de 6 mm et 1 mm. En outre, l'extrémité de la cellule a la configuration d'un L.

A 300 K, la cellule est remplie d'hélium en respectant les précautions de propreté décrites dans le chapitre II. Les quantités d' ^3He , d' ^4He et d'hydrogène introduites, ainsi que leur pression partielle à 300 K sont les suivantes :

$$N_3 = 1,44 \cdot 10^{-5} \text{ mole d}'^3\text{He} \rightarrow P_3 = 1,2 \text{ torrs}$$

$$N_4 \simeq 1,20 \cdot 10^{-3} \text{ mole d}'^4\text{He} \rightarrow P_4 \simeq 100 \text{ torrs}$$

$$N_2 = 2,64 \cdot 10^{-3} \text{ mole d}'\text{He} \rightarrow P_{\text{H}_2} = 2,2 \text{ torrs}$$

Lorsque l'hélium est entièrement condensé dans la cellule, et que le mélange est isotherme, la concentration en ^3He est de l'ordre de 1,2 %. Dans ce cas, de la relation :

$$V = \frac{27,58}{x} + 7,60 + 1,65x^2 \text{ cm}^3/\text{mol d}'^3\text{He}$$

tirée de la référence [52], où V est le volume d'une solution contenant 1 mole d' ^3He et où x est sa concentration, on déduit que le volume total de la solution est de l'ordre de 30 mm^3 . Elle s'étend donc sur une longueur de 4 cm environ.

Le contact thermique vers la boîte à mélange du circuit à dilution est réalisé grâce à un faisceau de fils de cuivre enroulés sur l'extrémité de la cellule, assurant une température uniforme sur environ 1,5 cm. Afin d'augmenter le contact mécanique et thermique des fils sur le pyrex, ceux-ci sont badigeonnés de vernis G.E.. Lors des expériences, nous avons utilisé deux types de contact thermique. Il était soit direct, c'est à dire que les fils de cuivre relient sans interruption la cellule à la boîte à mélange, soit un interrupteur thermique a été employé. De plus, un faisceau supplémentaire de fils

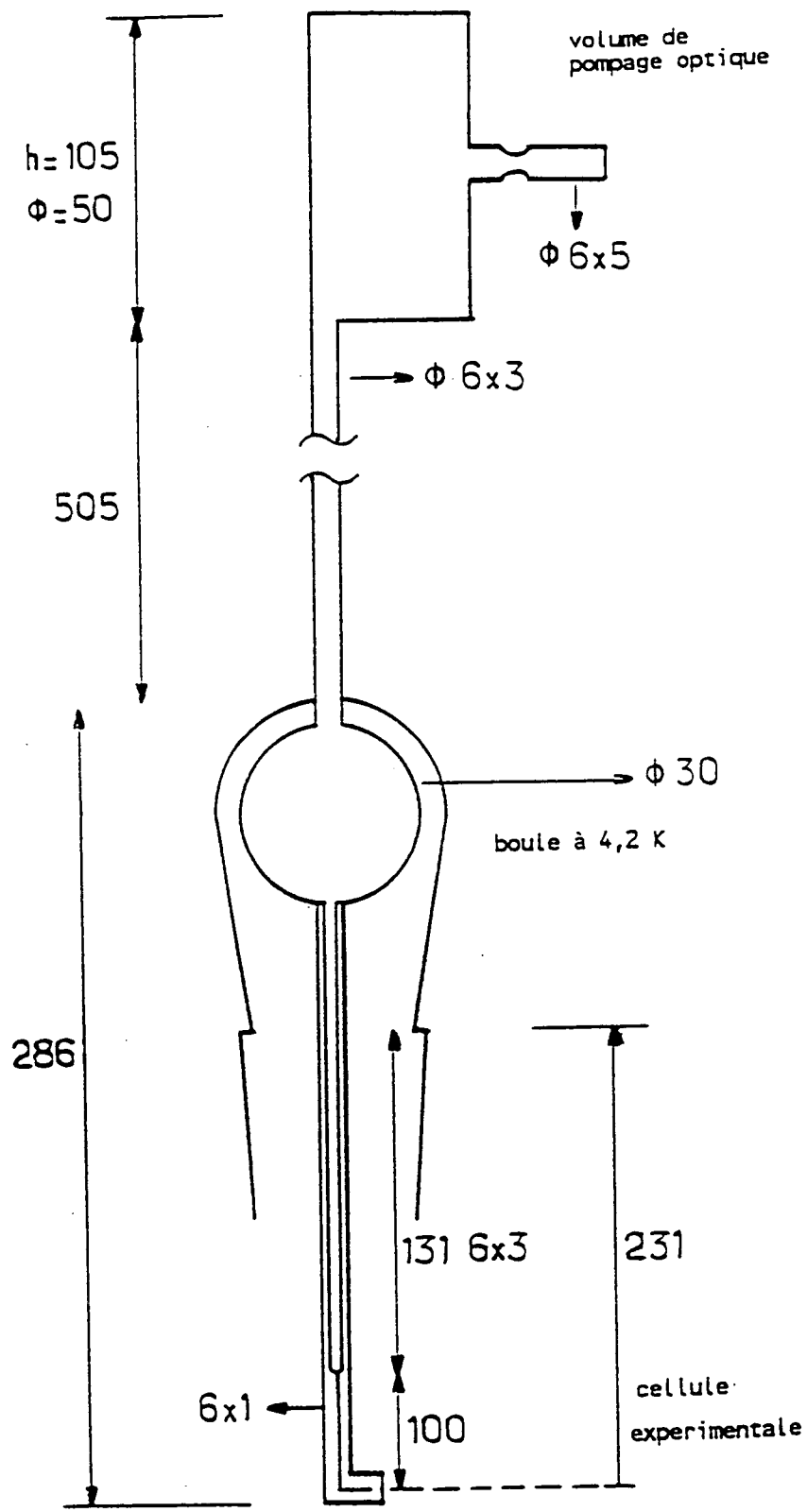


Figure VII-1 : Vue d'ensemble de la cellule utilisée pour la préparation et l'étude d'une solution polarisée d' ^3He - ^4He (le dessin n'est pas à l'échelle).

de cuivre connectant l'évaporateur à la cellule diminue les pertes thermiques (chaleur circulant dans le pyrex) vers la boîte à mélange du circuit de dilution.

b) Choix du diamètre intérieur de la cellule expérimentale

La valeur de 1 mm a été fixée pour répondre à plusieurs contraintes :

* Selon les profils de température et de concentration calculés dans le chapitre VI, il est relativement aisé de créer une zone d' ^4He pur dans un tube de 1 mm de diamètre, sans utiliser de fortes puissances thermiques susceptibles de réchauffer l'ensemble de l'expérience.

* Pour un flux thermique de $60 \mu\text{W}$, le volume d' ^4He pur créé s'étend sur environ 1,5 cm ; il est par conséquent facile de placer deux thermomètres le long de cette zone, afin de vérifier l'égalité de leurs résistances, signe de la présence d' ^4He pur. Sa température étant de l'ordre de 1 K, nous utilisons des résistances en carbone Allen Bradley de 22Ω . Leur ancrage thermique sur la cellule est celui que nous avons habituellement adopté et qui est décrit dans le chapitre III. La puissance thermique nécessaire au "heatflush" est quant à elle produite par un fil chauffant en constantan.

La position de ces divers éléments est représentée sur la figure VII-2.

VII A.2 PREPARATION DE L'AIMANTATION - DISCUSSION D'UNE PROCEDURE OPTIMALE

Nous rappelons que la forte pression de remplissage de l' ^4He (100 torrs) a été choisie dans le but de créer une solution diluée de volume relativement important ($\sim 30 \text{ mm}^3$), condition requise pour mesurer le potentiel chimique de l' ^4He . Il s'agit maintenant de vérifier qu'il existe une gamme de température de la cellule expérimentale permettant un pompage optique efficace. En pratique, la plus grande partie de l' ^4He doit être liquéfiée, afin de réduire sa pression partielle au moins d'un ordre de grandeur. En revanche, pour qu'une fraction notable d' ^3He puisse être sensible au pompage optique, il faudrait que très peu d' ^3He soit dissout dans l' ^4He .

Nous allons voir qu'il est **théoriquement** possible de trouver une plage de température dans laquelle ces deux conditions sont remplies. Pour cela, nous modélisons la cellule de la façon suivante : une partie du mélange est condensé dans la cellule ex-

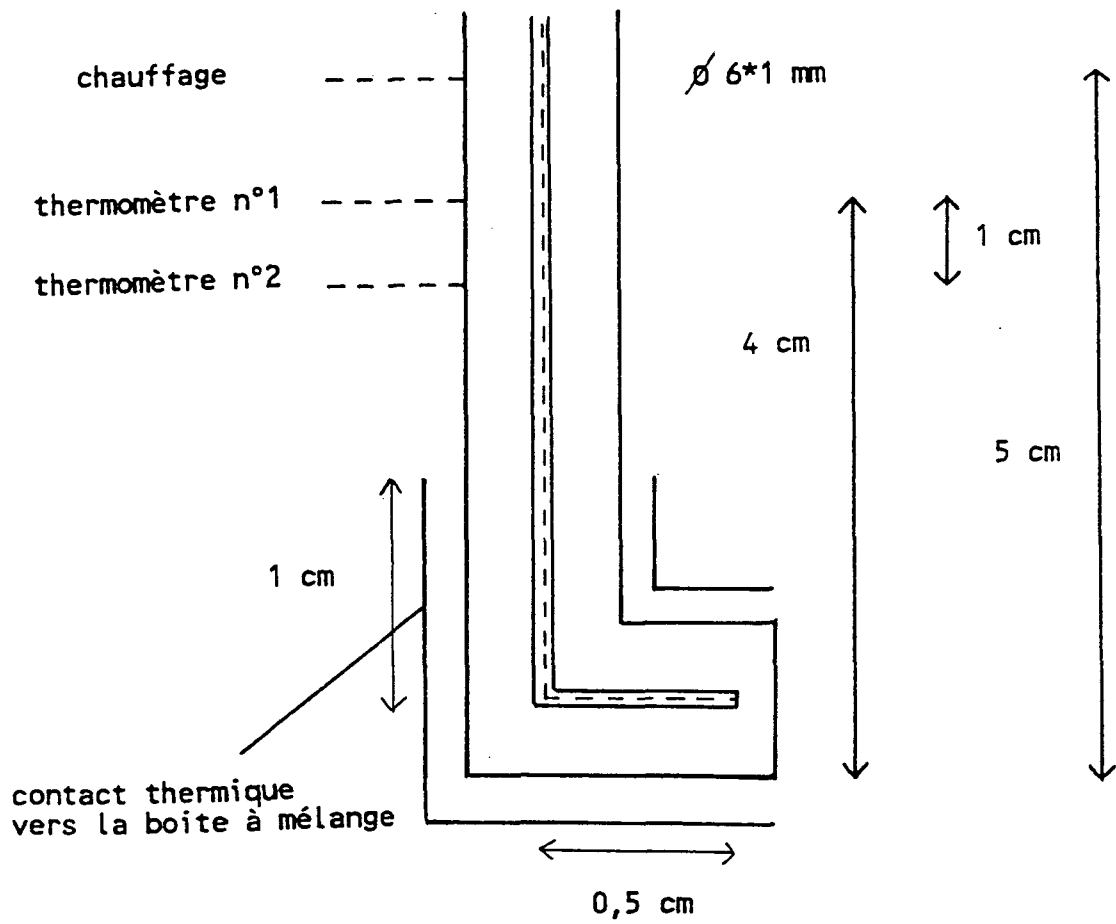


Figure VII-2 : Détail de la partie inférieure de la cellule (cellule expérimentale).

périmentale, à une température uniforme T . Le volume accessible au gaz est la boule à 4,2 K, ainsi que le cylindre de pompage optique (le reste du volume est négligeable). Pour une certaine température T , nous calculons

- * la concentration en ^3He dans le mélange condensé
- * la pression totale
- * la fraction des atomes d' ^3He soumis au pompage optique
(rapport entre le nombre d' ^3He dans le volume de pompage et la quantité totale d' ^3He dans la cellule)
- * la pression partielle d' ^3He

Pour mener ces calculs à bien, nous avons utilisé les valeurs des pressions de vapeur saturante en fonction de la température et de la concentration en ^3He , données dans la référence [92] (voir aussi l'appendice de l'annexe)

La figure VII-3 montre les résultats obtenus. Nous pouvons la séparer en deux parties :

* $T \lesssim 1 \text{ K}$

On constate que le gaz contient plus de 2/3 d' ^3He . Il sera donc plus efficace de le polariser en utilisant une des raies d'absorption de l' ^3He (voir chapitre II).

Nous avons vu par ailleurs que les meilleurs résultats étaient obtenus pour une pression totale supérieure à environ 0,15 torr, ce qui correspond à une température de la cellule expérimentale plus élevée que 0,8 K. La gamme 0,8 K-1 K offre donc a priori de bonnes conditions expérimentales pour un pompage optique utilisant une raie de l' ^3He .

* $T \gtrsim 1 \text{ K}$

Au dessus de 1 K, la proportion d' ^4He dans le gaz excède 1/3. Nous savons que dans cette situation, il est plus avantageux d'effectuer le pompage optique sur une raie de l' ^4He . Tant que la température ne dépasse pas environ 1,2 K, la pression totale est suffisamment faible pour qu'il soit possible de polariser efficacement les atomes d' ^3He (une pression supérieure à 1 torr ralentirait la diffusion des atomes vers les zones froides de la cellule).

En conclusion, pour une température de la cellule expérimentale comprise entre 0,8 K et 1,2 K, la situation est favorable pour un bon pompage optique. Entre 0,8 K

- ××××× concentration du liquide
- ★★★★★ pression totale (torr)
- ※※※※※ fraction en pompage optique
- ■ ■ ■ ■ P3/Ptotale

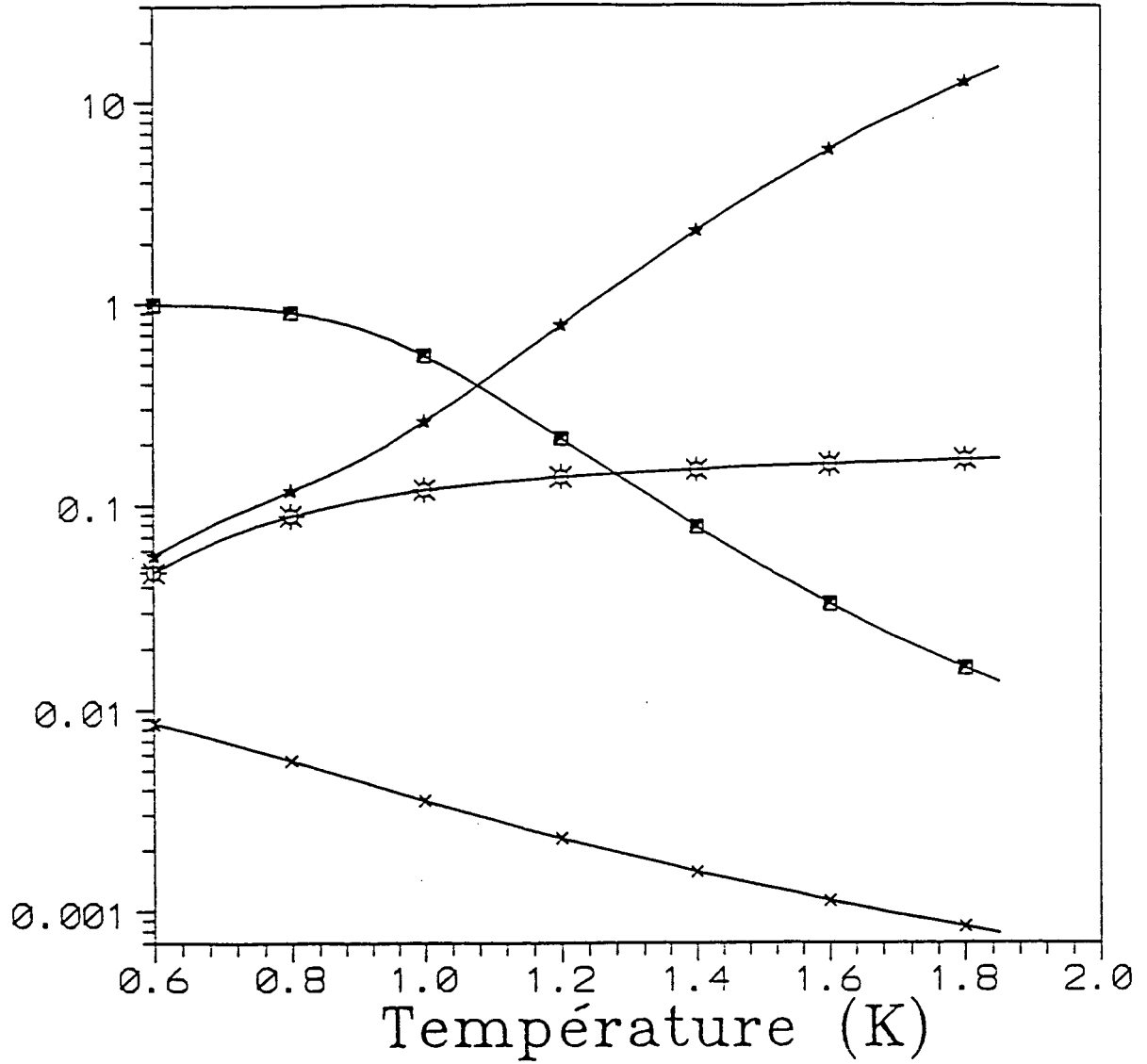


Figure VII-3 : Conditions physiques régnant dans la cellule pour diverses températures de la cellule expérimentale (courbes théoriques).

et 1 K, le laser sera accordé sur une raie de $l'^3\text{He}$, et sur $l'^4\text{He}$ entre 1 K et 1,2 K. En pratique, la gamme 0,8 K-1,2 K pourra être explorée grâce à la circulation d' $l'^4\text{He}$ cryogénique pur dans le réfrigérateur à dilution.

Dans ces deux cas de figure, environ 10 % des atomes d' $l'^3\text{He}$ introduits dans la cellule sont soumis au pompage optique. La boule à 4,2 K en contient quant à elle 60 %. De façon analogue au cas de $l'^3\text{He}$ pur, la construction de l'aimantation dans la boule à 4,2 K aura lieu grâce à la diffusion des atomes entre ce volume et la zone de pompage optique. Sous réserve d'un temps de relaxation nucléaire suffisamment long, il paraît en théorie possible d'obtenir un fort taux de polarisation du gaz. Ceci réalisé, il restera à refroidir la cellule expérimentale. Nous pouvons procéder de deux manières différentes :

si le contact thermique entre la cellule expérimentale et la boîte à mélange passe à travers un interrupteur de chaleur, le refroidissement est réalisé de la même manière que pour $l'^3\text{He}$ pur (chapitre II). Si le contact est direct, le temps de refroidissement de la cellule est égal au temps de mise en route du réfrigérateur à dilution : passer de 1 K à 50 mK, température minimum de la boîte à mélange, prend environ 15 min. . Nous verrons que les temps de relaxation de l'aimantation dans la solution sont nettement plus longs.

En définitive, il nous semble réalisable de se placer dans de bonnes conditions expérimentales pour le pompage optique. En outre, il paraît plus aisé de préparer une solution polarisée que de $l'^3\text{He}$ liquide polarisé pur. En effet, nous sommes beaucoup moins gênés par le processus de relaxation nucléaire. Nous verrons au cours du prochain paragraphe que cette situation théorique idéale n'a pu être observée en pratique.

VII A.3) PROCEDURE ADOPTEE

a) Introduction

Pour aimanter $l'^3\text{He}$, nous nous sommes placés dans les conditions idéales calculées précédemment. Pour une température de la cellule expérimentale comprise entre 0,8 K et 1,2 K, nous n'avons jamais observé un signal optique d'aimantation dans le volume à 300 K (voir chapitre II-A). La technique de RMN pulsée (voir chapitre V-B) a également montré que la solution d' $l'^3\text{He}-^4\text{He}$ n'était pas polarisée. Pour connaître l'origine du problème (mauvais pompage optique ou temps de relaxation nucléaire très

court), nous avons tenté de mesurer la proportion d' ^3He présent dans le volume à 300 K, ceci en fonction de diverses températures de la cellule expérimentale (thermomètre n°1 sur la figure VII-2). La méthode employée consiste à mesurer l'intensité de la lumière de fluorescence émise par les atomes du cylindre de pompage dans les deux configurations suivantes : le laser est accordé sur une raie de l' ^3He (resp. de l' ^4He), en l'occurrence C_8 (resp. D_0). Soit I_3 (resp. I_4) l'intensité de la lumière. Elle est proportionnelle à la densité d'atomes d' ^3He (resp. d' ^4He) dans l'état métastable. Cette densité varie elle-même linéairement avec la densité d'atomes d' ^3He (resp. d' ^4He) dans l'état fondamental [5].
En définitive :

$$\frac{I_3}{I_4} \propto \frac{N_3}{N_4}$$

Pour toute température de la cellule expérimentale comprise entre 0,8 et 1,2 K, nous avons détecté un signal de fluorescence pour le laser accordé sur la raie D_0 , signe de présence d' ^4He dans le volume à 300 K. En revanche, il n'y en avait aucun pour la raie C_8 de l' ^3He . Ce résultat n'est pas compatible avec ce qui était prévu. En effet, dans la gamme de température 0,8 K - 1,2 K, la cellule de pompage optique aurait du contenir entre 90% (à 0,8 K) et 20 % (à 1,2 K) d' ^3He .

En conclusion, il n'existe pas de quantité significative d' ^3He dans le volume de pompage optique lorsque la température de la cellule expérimentale est inférieure à environ 1,2 K. Pour de plus hautes températures, la proportion d' ^3He est peut être plus importante, mais la méthode décrite précédemment ne permet pas de le mettre en évidence (la pression est trop forte pour pouvoir entretenir une décharge de type habituel dans la cellule de pompage). Ce désaccord profond entre la théorie et la réalité provient du fait que nous n'avons pas tenu compte d'un phénomène physique : **L'effet Hevac dans les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$ superfluide.**

b) Effet HEVAC dans les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$

L'origine du mot HEVAC provient de l'expression Helium Vapor Compressor. C'est un processus utilisé pour le confinement de l'hydrogène atomique, dans certaines des expériences mises en oeuvre pour observer la condensation de Bose-Einstein [93] [94]. L'effet repose sur la propriété suivante : un film d' ^4He superfluide, qui "mouille" la plupart des matériaux, rampe vers les parties les plus chaudes du récipient qui le contient.

L'évaporation de ce film dans les régions de plus haute température crée une différence de pressions entre celles-ci et les zones les plus froides. En conséquence, s'instaure un contre-flux d' ^4He gazeux. Selon la température des zones les plus froides, la géométrie du récipient et les pertes thermiques, ce processus de convection peut agir comme une pompe à diffusion. C'est ce qui est exploité pour le confinement de l'hydrogène : l' ^4He gazeux entraîne avec lui les atomes d'hydrogène, dont la densité augmente au cours du temps dans la zone la plus froide.

Dans nos expériences, nous pensons que ce phénomène de "pompe à diffusion" est activé. L' ^3He semble être piégé dans les zones froides de l'expérience, ne pouvant diffuser vers le volume de pompage optique à cause du contre-flux d' ^4He gazeux. Une modélisation de ce processus est présentée dans l'annexe. Signalons que ce modèle n'est pas rigoureusement adapté à nos propres conditions expérimentales : dans nos cellules, le nombre total d'atomes d' ^3He et d' ^4He est fixé, contrairement aux hypothèses adoptées dans le modèle. Toutefois, pour une température donnée du liquide condensé, il donne une idée de la variation de la concentration en ^3He dans le gaz en fonction de la position dans la cellule (figure VII-4).

La figure VII-5a représente la concentration du gaz en fonction de z , pour trois températures du liquide (on suppose que le liquide est isotherme) : $T_\ell = 0,8 \text{ K}$, $T_\ell = 1,2 \text{ K}$ et $T_\ell = 1,6 \text{ K}$. Notre modèle requiert la connaissance de la concentration x_ℓ en ^3He dans le liquide en $z=0$. Nous prendrons les valeurs calculées par le modèle du paragraphe III-A-2 (et représentées sur la figure VII-3), c'est-à-dire $x_\ell = 0,6 \%$ pour $0,8 \text{ K}$, $x_\ell = 0,2 \%$ pour $1,2 \text{ K}$, et $x_\ell = 0,1 \%$ pour $1,6 \text{ K}$. Dans les trois cas, nous fixerons les pertes thermiques sur le liquide à $20 \mu\text{W}$, valeur proche de la réalité comme nous le verrons au paragraphe C. Notons enfin que nous ne pouvons calculer la concentration dans le gaz à une abscisse z que si à cette même hauteur la paroi de la cellule est recouverte d'un film d' ^4He . La concentration en ^3He reste constante au-dessus de la hauteur maximum atteinte par le film, puisqu'il n'y a pas de contre flux d' ^4He gazeux.

On constate que la concentration a nettement diminuée s'annule au bout de typiquement quelques millimètres. La modélisation présentée dans le chapitre VII-A.2 n'est donc pas valide. En particulier, la concentration dans le liquide est supérieure à la valeur typique de $0,1 \%$ utilisée pour calculer le profil de concentration dans le gaz à l'aide du modèle développé dans l'annexe. Nous allons maintenant supposer que la concentration

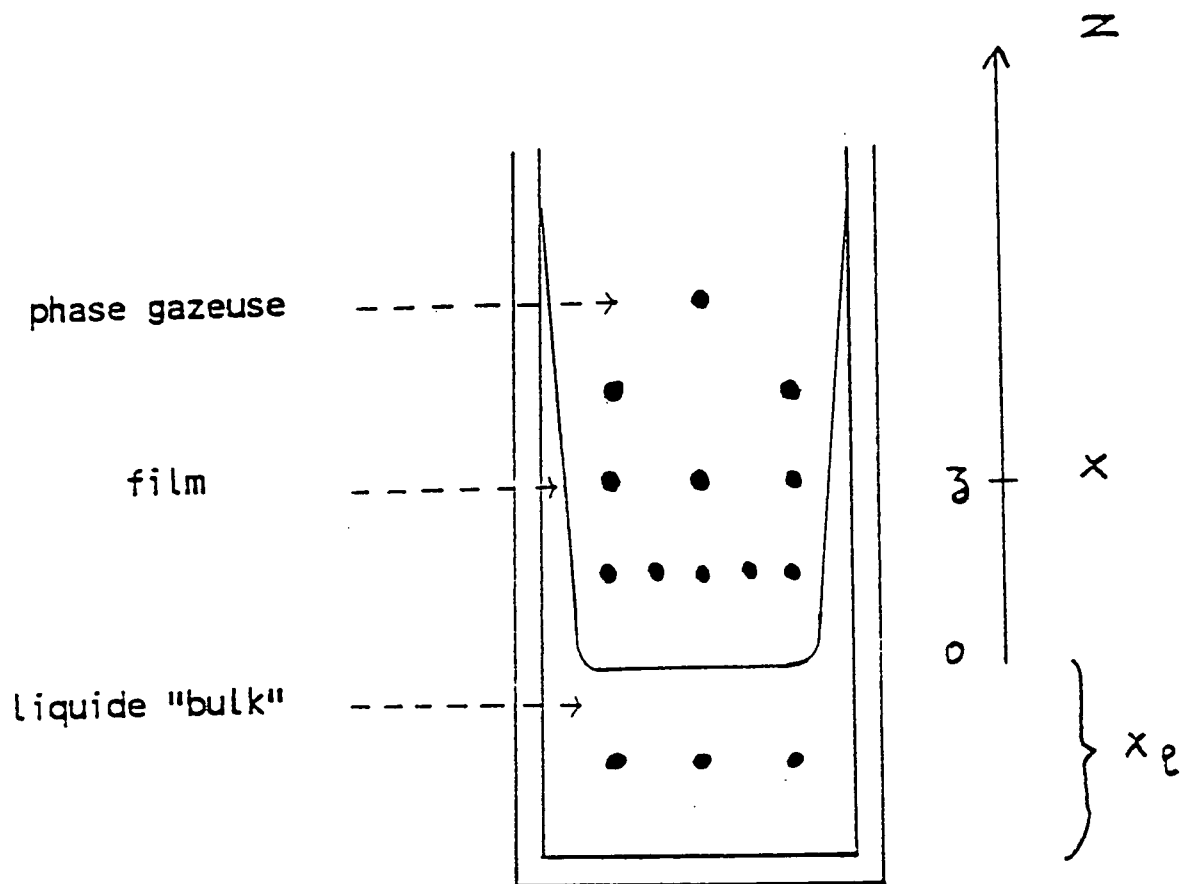
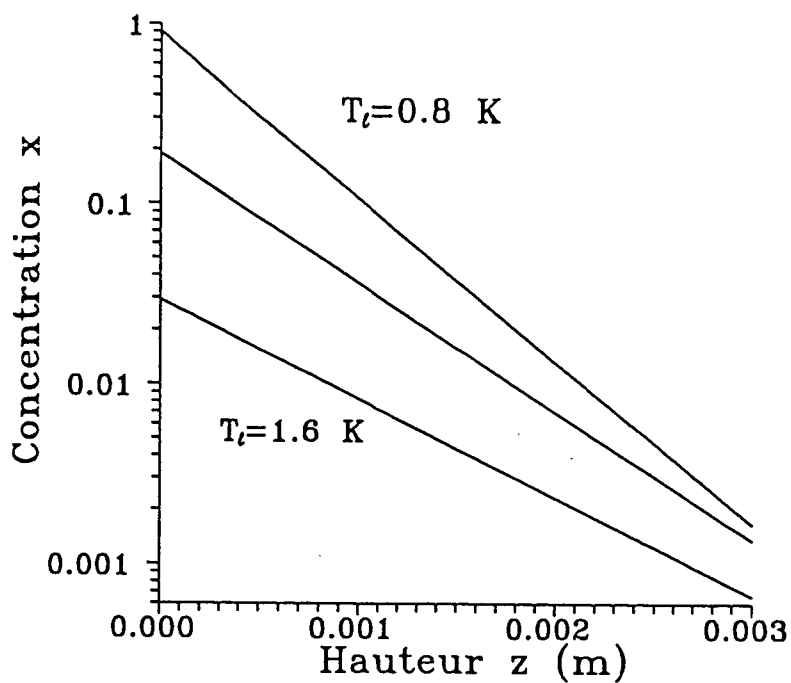
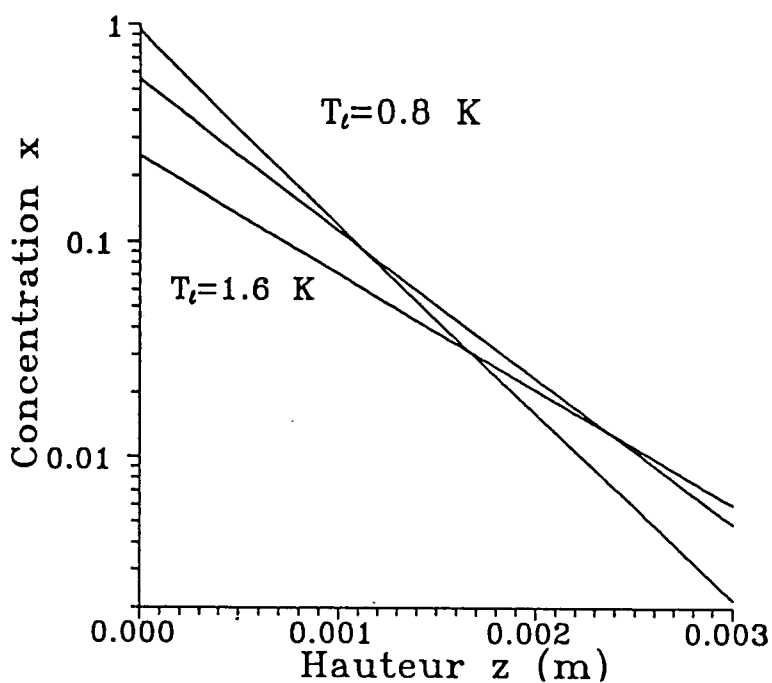


Figure VII-4 : Représentation symbolique de la cellule expérimentale pour la modélisation de l'effet Hevac (la partie inférieure isotherme et isoconcentrée a la forme de la lettre L).



a)



b)

Figure VII-5 : Variation de la concentration en ^3He dans le gaz, en fonction de la position dans la cellule, pour trois températures du liquide condensé : $T_\ell = 0,8$ K, $T_\ell = 1,2$ K, $T_\ell = 1,6$ K.

dans le liquide est de 1,1 %, et calculer la carte de concentration dans la phase gazeuse pour $T = 0,8 \text{ K}$, $T = 1,2 \text{ K}$ et $T = 1,6 \text{ K}$. Les résultats sont reportés sur la figure VII-5b. Rappelons que la valeur choisie pour x_ℓ (concentration du liquide), résulte du calcul du paragraphe A-2, où on suppose que la répartition de ${}^3\text{He}$ est déterminée uniquement par le diagramme de phase des mélanges. Le résultat que nous trouvons ici est en contradiction avec ces hypothèses : la plupart des atomes d' ${}^3\text{He}$ sont en phase liquide ou dans les premiers millimètres de la vapeur. Nous avons porté sur la figure V-5b les résultats obtenus avec le modèle de l'annexe, mais dans le cas où la concentration du liquide est de 1,1 % (la concentration maximum du mélange isotherme est de 1,2 %). Une fois encore, on remarque une compression très efficace de ${}^3\text{He}$, preuve de la validité de notre hypothèse concernant x_ℓ . Ceci explique que l'on n'ait pas observé d' ${}^3\text{He}$ dans le volume à 300 K. Le modèle montre qu'il est confiné dans les zones froides de la cellule. En revanche, nous avons observé expérimentalement un signal optique d'aimantation pour une température du liquide supérieure à 2 K, où le film superfluide a probablement disparu. On s'attend alors à ce qu'il y ait de ${}^3\text{He}$ dans le volume à 300 K, ce qui autoriserait son pompage optique.

c) Conclusion

Pour polariser ${}^3\text{He}$, il est impératif de stopper le processus "pompe à diffusion" qui piège les atomes d' ${}^3\text{He}$ dans les parties les plus froides de la cellule, ou de travailler à une température telle que cette "pompe" soit désamorcée, ce qui semble être le cas au-dessus de 2 K. Nous nous trouvons alors dans une situation où ${}^3\text{He}$ occupe principalement la boule à 4,2 K et la zone de pompage optique à 300 K, dans des rapports respectifs de 5/6 et 1/6. La présence d'une grande quantité d' ${}^4\text{He}$ gazeux impose que le pompage optique ait lieu via les atomes d' ${}^4\text{He}$. Le problème qui se pose provient du temps mis par les atomes d' ${}^3\text{He}$ polarisés pour se transférer vers la boule de stockage à 4,2 K. En effet, la pression régnant dans la cellule ($\gtrsim 10$ torr) ralentit considérablement la diffusion des atomes par rapport au cas de ${}^3\text{He}$ pur (où la pression était de 0,3 torr). Pour une pression d'un torr et dans une géométrie semblable, P.J. Nacher trouve un temps caractéristique de 15 min. [5]. Comme ce temps est proportionnel à la pression, nos propres conditions expérimentales impliquent un temps d'environ 1h30. Dans le chapitre V, nous avons mesuré des temps de relaxation nucléaire de l'ordre de 2 heures pour une température de la cellule expérimentale de 1,5 K (${}^3\text{He}$ pur). Or nous nous

attendons à des valeurs de T_1 plus courtes dans une cellule contenant 100 torrs d' ^4He . En effet, rappelons que la qualité de l'enduit d'hydrogène influence la valeur de T_1 . Lors de sa fabrication, la totalité de la cellule est à une température supérieure à 5 K, et par conséquent il y règne une forte pression due à la grande quantité d' ^4He non condensé. Il faudrait par conséquent pouvoir maintenir précisément et pendant des heures une température uniforme de l'ordre de 5 à 6 K pour que l'hydrogène se répartisse uniformément dans la partie froide de la cellule, ce qui est en pratique très difficile. Les temps de relaxation T_1 auxquels nous nous attendons dans la cellule ne permettent donc pas d'espérer un taux maximum de polarisation du gaz élevé, si la procédure expérimentale de préparation de l'échantillon polarisé est identique à celle utilisée pour l' ^3He pur. Nous l'avons donc modifiée de la façon suivante :

La température de la boîte à mélange est initialement aux alentours de 1 K. Les pompes de circulation sont ensuite arrêtées, et l'ensemble de l'expérience réchauffée au dessus de 2 K grâce à un fil chauffant disposé sur la plaque froide support de la boîte à mélange. Nous maintenons cette température pendant quelques dizaines de secondes, le temps que les atomes s'écoulent vers la zone de pompage optique pour y être aimantés. Au bout de ce temps, le chauffage est arrêté, et les pompes de circulation remises en fonctionnement. Le courant d' ^4He des parties chaudes vers sa zone de recondensation entraîne avec lui l' ^3He . Le processus réchauffement-condensation répété de nombreuses fois permet d'augmenter petit à petit le taux de polarisation de l' ^3He dans la cellule expérimentale.

VII - B INFLUENCE DE LA FORME DE LA CELLULE

VII B.1) CHAMPS DEMAGNETISANTS

Nous avons vu (chapitre V) que l'aimantation du liquide était connue grâce au fait que l'aimantation en phase liquide ne précesse pas à la fréquence de Larmor imposée par le champ magnétique statique : l'aimantation du liquide crée un champ magnétique qui modifie le champ total "vu" par un atome (champ démagnétisant). Aussi avons nous un déplacement de la fréquence de précession de l'aimantation par rapport à la fréquence de Larmor ω_0 . La connaissance de la contribution supplémentaire au champ statique nous permet de déduire l'aimantation du liquide de l'observation de la différence de fréquence entre les signaux RMN dus au liquide et au gaz.

Dans le cas d'une cellule à mélange, la zone expérimentale où sont effectuées les mesures RMN ne contient pas de vapeur. En conséquence, dans une cellule verticale, la précession de l'aimantation s'effectuerait à une fréquence unique, la fréquence de Larmor modifiée par le champ démagnétisant du liquide, sans possibilité de mesurer simultanément cette fréquence et la fréquence de Larmor non déplacée ω_0 . C'est pourquoi la zone de mesure de nos cellules se constitue de deux cylindres, un vertical et un horizontal. Les champs démagnétisants créés par l'aimantation du liquide contenu dans chacun de ces cylindres diffèrent. Nous nous attendons alors à un signal de précession libre de l'aimantation contenant deux fréquences. Sous réserve de connaître a priori l'expression des deux déplacements de fréquence attendus, nous pourrions déduire l'aimantation du liquide de l'analyse des spectres RMN observés.

a) Champ magnétique créé par un volume aimanté

Soit P un point d'un échantillon de volume V, uniformément aimanté. Il s'agit de calculer en P le champ magnétique induit par tous les moments nucléaires des atomes contenus dans V. Ce champ représente évidemment une valeur moyenne, car il fluctue à l'échelle microscopique, ces variations donnant par ailleurs naissance au phénomène de relaxation dipolaire dans le liquide.

Un calcul général de champ démagnétisant peut par exemple se mener de la façon suivante [6] : V est décomposé en une sphère S de rayon a centrée sur P, et le volume restant. La valeur de a est très supérieure aux distances interatomiques et très inférieure à la taille caractéristique de l'échantillon. Le champ local en P est alors la somme du champ des atomes respectivement à l'intérieur et à l'extérieur de S.

La sphère S contient un grand nombre d'atomes dont les positions sont aléatoires. Le champ moyen qu'ils créent en P est par conséquent nul.

Il ne reste donc qu'à calculer la contribution des atomes extérieurs à S. Dans ce but, nous utilisons la méthode des densités de courant équivalent, largement explicitée dans la référence [95].

A une densité d'aimantation \mathcal{M} , est associée en un point P une densité de courant volumique $\mathbf{J}_v = \text{rot } \mathcal{M}$ et une densité de courant surfacique $\mathbf{J}_s = \mathcal{M} \wedge \mathbf{u}$, \mathbf{u} vecteur unitaire sortant dirigé perpendiculairement à la surface au point considéré.

Si l'aimantation \mathcal{M} est uniforme, alors la densité de courant volumique est nulle. Seules les surfaces délimitant la sphère S et la surface extérieure de l'échantillon contribuent au champ local en P .

L'évaluation de la contribution due à la surface de la sphère se révèle être un classique calcul de magnétostatique, effectué dans de nombreux ouvrages [95]. On trouve :

$$\mathbf{B}_S = -2/3 \mu_0 \mathcal{M}$$

avec μ_0 perméabilité magnétique du vide.

Le champ induit par les courants circulant sur la surface externe de l'échantillon dépend de la géométrie de celui-ci. Que ce soit pour le cylindre vertical ou horizontal de la cellule, nous avons mené le calcul en supposant ces cylindres infiniment longs. Cette approximation se justifie de la manière suivante : considérons à nouveau un point P à l'intérieur d'un cylindre. Soit N le centre d'un élément de volume $d^3\mathbf{r}$ situé à la distance r de P . La contribution de cet élément de volume au champ local en P varie en

$$\mu_0 \frac{\mathcal{M} d^3\mathbf{r}}{r^3} \quad (\text{VII} - 1)$$

Le champ total en P résulte de l'intégration de VII-1 étendue sur tout le volume. Dans le cas d'un cylindre suffisamment long, l'intégrale volumique peut être remplacée par une intégrale simple, avec un élément d'intégration possédant une dépendance radiale en dr . L'intégrand varie alors en $1/r^3$, et tend vers zéro aux grandes distances. L'intégrale est donc convergente à l'infini. Nous pouvons par conséquent passer au cas limite où le cylindre est infiniment long.

Dans le but de simplifier les calculs, nous déterminons le champ local sur l'axe des cylindres. Pour un calcul exhaustif, il faudrait effectuer une intégration numérique sur le volume de chacun des cylindres. Nous ne le ferons pas ici.

Considérons un cylindre d'axe \mathbf{n} , d'aimantation \mathcal{M} de direction quelconque (figure VII-6.a). \mathcal{M} peut être décomposée en deux composantes : l'une parallèle et l'autre perpendiculaire à l'axe

$$\mathcal{M} = \mathcal{M}_{//\mathbf{n}} + \mathcal{M}_{\perp\mathbf{n}}$$

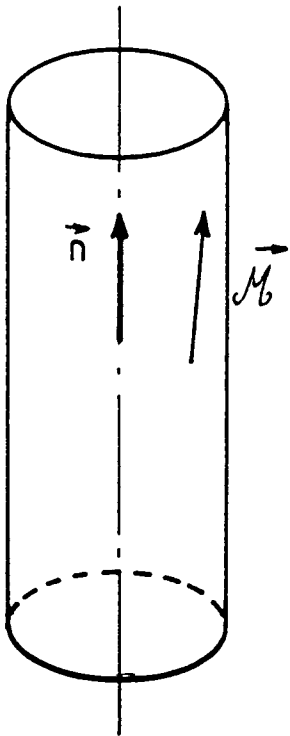


Figure 6a : L'aimantation a une direction quelconque par rapport à l'axe du cylindre.

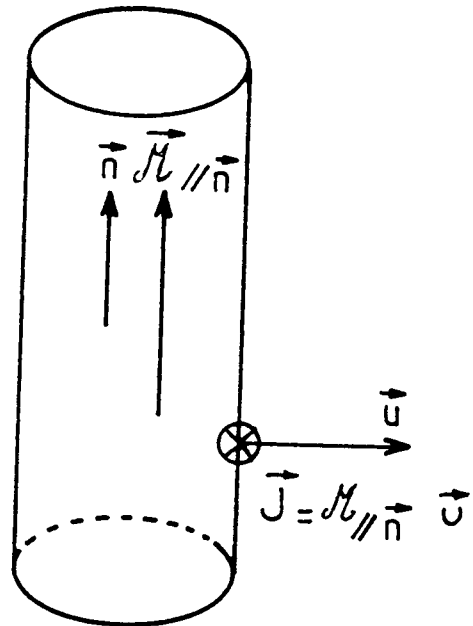


Figure VII-6b : L'aimantation est parallèle à l'axe du cylindre.

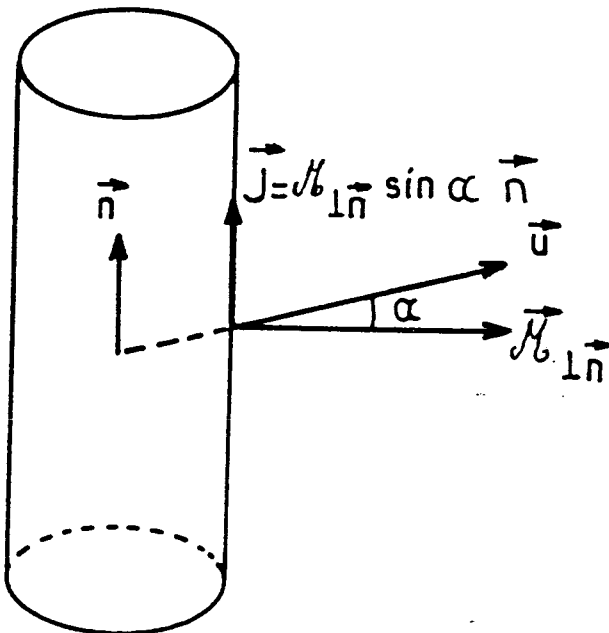


Figure VII-6c : L'aimantation est perpendiculaire à l'axe du cylindre.

Figure VII-6 : Un modèle simple pour le calcul du champ magnétique créé par un cylindre aimanté.

Nous pouvons calculer séparément la contribution de ces deux composantes, puis utiliser le principe de superposition pour déduire celle de leur résultante.

Contribution de $\mathcal{M}_{//n}$

En tous points de la surface du cylindre, la densité de courants équivalents vérifie $\mathbf{J} = \mathcal{M}_{//n} \wedge \mathbf{u}$, \mathbf{u} normale extérieure à la surface au point considéré (figure VI-6.b). Par conséquent, $\mathbf{J} = \mathcal{M}_{//n} \mathbf{u}_\theta$, \mathbf{u}_θ vecteur habituel du trièdre de référence des coordonnées cylindriques. Nous nous trouvons ainsi ramenés au cas d'un solénoïde infini parcouru par une densité de courant $\mathcal{M}_{//n}$, dans lequel la contribution $\mathbf{B}_{//}$ de la composante d'aimantation parallèle au cylindre est :

$$\mathbf{B}_{//} = \mu_0 \mathcal{M}_{//n}$$

En pratique, l'aimantation dans le cylindre vertical sera homogène sur environ 1 cm ($\mathcal{M} \propto xM$, x est constant sur 1 cm). Au centre de ce cylindre, l'erreur commise en l'assimilant à un solénoïde infini est de 0,5 %.

Contribution de $\mathcal{M}_{\perp n}$

La densité surfacique \mathbf{J} de courant est telle que $\mathbf{J} = \mathcal{M}_{\perp n} \wedge \mathbf{u}$, \mathbf{u} étant toujours la normale extérieure à la surface au point considéré. Le calcul revient alors à déterminer le champ magnétique créé par un cylindre parcouru par une densité de courant $\mathbf{J} = \mathcal{M}_{\perp n} \sin \alpha \mathbf{n}$ (figure VII-6.c). Un calcul simple conduit à :

$$\mathbf{B}_{\perp} = \frac{\mu_0}{2} \mathcal{M}_{\perp n}$$

En définitive, les atomes sont soumis au champ total :

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathcal{M}_{//n} + \frac{\mu_0}{2} \mathcal{M}_{\perp n} - \frac{2}{3} \mu_0 \mathcal{M}$$

champ qui peut aussi s'écrire :

$$\mathbf{B} = \frac{\mu_0}{2} (\mathcal{M} \cdot \mathbf{n}) \mathbf{n} - \frac{\mu_0}{6} \mathcal{M}$$

b) Evolution de l'aimantation dans un champ statique \mathbf{B}_0

Un atome du cylindre (vertical ou horizontal) est sensible au champ \mathbf{B}_0 ainsi qu'au champ créé par tous les autres atomes du même cylindre (on néglige le champ induit par les atomes d'un cylindre sur les atomes contenus dans l'autre cylindre). Le champ à l'intérieur de l'échantillon est alors égal à :

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}_0 - \frac{\mu_0}{6} \mathcal{M} + \frac{\mu_0}{2} (\mathcal{M} \cdot \mathbf{n}) \mathbf{n}$$

L'équation classique d'évolution de l'aimantation s'écrit :

$$\frac{d\mathcal{M}}{dt} = \gamma \mathcal{M} \wedge \mathbf{B} = \gamma \mathcal{M} \wedge \left[\mathbf{B}_0 - \frac{\mu_0}{6} \mathcal{M} + \frac{\mu_0}{2} (\mathcal{M} \cdot \mathbf{n}) \mathbf{n} \right]$$

avec γ rapport gyromagnétique.

Comme la composante de \mathbf{B} parallèle à \mathcal{M} ne contribue pas à l'évolution temporelle de l'aimantation, cette relation est équivalente à

$$\frac{d\mathcal{M}}{dt} = \gamma \mathcal{M} \wedge \left[\mathbf{B}_0 + \frac{\mu_0}{2} (\mathcal{M} \cdot \mathbf{n}) \mathbf{n} \right] \quad (\text{VII} - 2)$$

On s'attend donc à ce que l'évolution de l'aimantation dépende de l'angle entre celle-ci et l'axe du cylindre.

Nous allons résoudre l'équation VII-2 de façon analogue à celle présentée dans la référence [6], c'est-à-dire de manière approchée. L'ordre de grandeur du champ démagnétisant est donné par $\mu_0 \frac{\mathcal{M}}{2}$, qui vaut 20 mG pour un taux de polarisation de 1 % (voir plus loin). Comme lors de nos expériences, le champ appliqué \mathbf{B}_0 est de 3 Gauss, alors $\omega_0 \gg \mu_0 \gamma \mathcal{M}$, ω_0 fréquence de Larmor, $\mu_0 \gamma \mathcal{M}$ fréquence associée au champ démagnétisant.

Considérons le référentiel (O, X', Y', Z') tournant autour de l'axe Oz à la fréquence de Larmor : $\omega_0 = -\gamma B_0$ (figure VII-7). Dans ce nouveau repère,

$$\mathbf{n}(t) = (\cos\theta \mathbf{z} + \sin\theta (\cos(\varphi - \omega_0 t) \mathbf{x}' + \sin(\varphi - \omega_0 t) \mathbf{y}'))$$

θ angle entre l'axe Oz et \mathbf{n} , qui représente toujours un vecteur unitaire parallèle à l'axe du cylindre.

Dans le référentiel tournant, l'équation VII-2 devient :

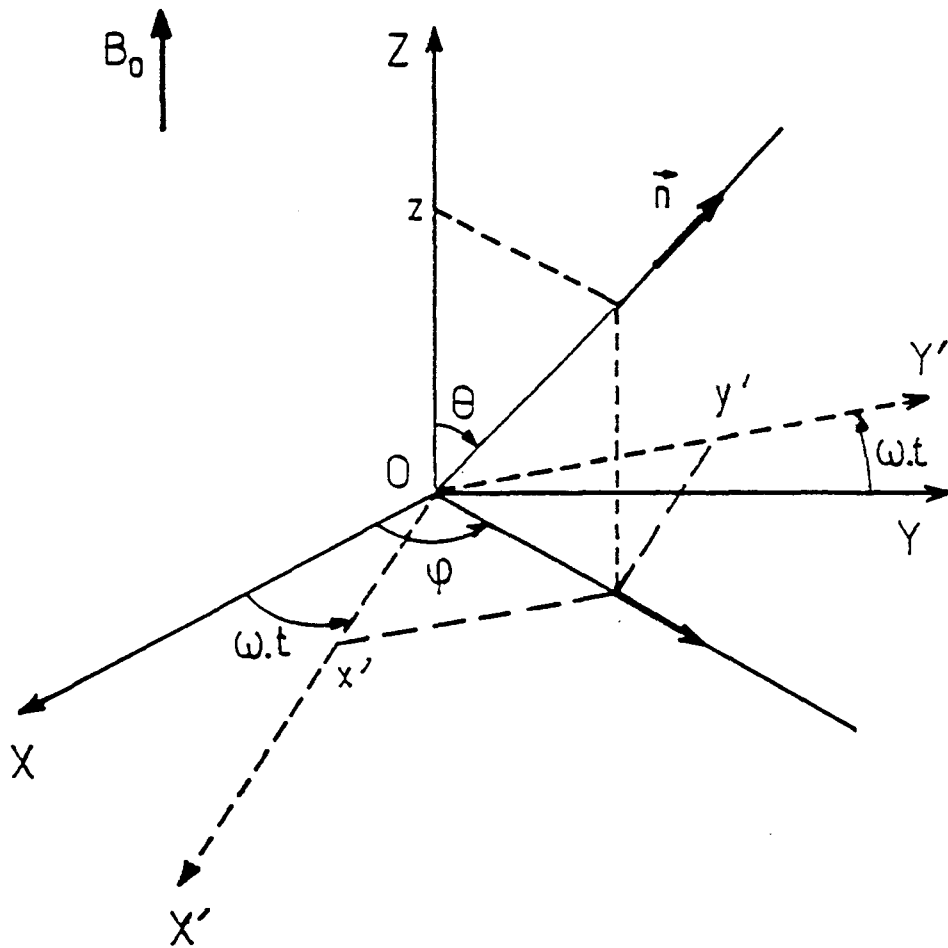


Figure VII-7 : Axes de coordonnées adoptées pour repérer l'axe des cylindres par rapport au champ statique extérieur

$$\frac{d\mathcal{M}}{dt} = \gamma \frac{\mu_0}{2} (\mathcal{M} \cdot \mathbf{n}(t)) (\mathcal{M} \wedge \mathbf{n}(t))$$

et dans l'approximation séculaire :

$$\frac{d\mathcal{M}}{dt} \simeq \gamma \frac{\mu_0}{2} \mathcal{M} \wedge \left[\cos^2 \theta \mathcal{M}_z \mathbf{z} + \frac{\sin^2 \theta}{2} (\mathcal{M} - \mathcal{M}_z \mathbf{z}) \right]$$

Par conséquent :

$$\frac{d\mathcal{M}}{dt} = \gamma \frac{\mu_0}{2} \mathcal{M} \wedge \left[\frac{(3\cos^2 \theta - 1)}{2} \mathcal{M}_z \mathbf{z} \right]$$

Dans le référentiel de Larmor, l'aimantation \mathcal{M} évolue sous l'action d'un champ magnétique fictif :

$$\delta \mathbf{B} = \frac{\mu_0}{4} (3\cos^2 \theta - 1) \mathcal{M}_z \mathbf{z}$$

parallèle à Oz. Dans le référentiel fixe, l'aimantation précesse autour de l'axe Oz à une fréquence ω telle que

$$\omega = -\gamma [\mathbf{B}_0 + \delta \mathbf{B}] = \omega_0 - \frac{\mu_0 \gamma}{4} \mathcal{M}_z (3\cos^2 \theta - 1)$$

En définitive, le déplacement en fréquence du signal de précession de l'aimantation transverse vaut :

$$\begin{aligned} * \omega_v - \omega_0 &= -\mu_0 \gamma \frac{\mathcal{M}_z}{2} && \text{pour le cylindre vertical } (\theta = 0) \\ * \omega_H - \omega_0 &= \mu_0 \gamma \frac{\mathcal{M}_z}{4} && \text{pour le cylindre horizontal } (\theta = \frac{\pi}{2}) \end{aligned}$$

Une analyse en fréquence des signaux RMN enregistrés après une impulsion de radiofréquence doit en définitive révéler deux fréquences de précession de l'aimantation.

La différence de ces deux fréquences vaut en module

$$\Delta \omega = \frac{3}{4} \mu_0 \gamma |\mathcal{M}_z|$$

On peut remarquer qu'après une impulsion de $\pi/2$, $\mathcal{M}_z = 0$. Pour un tel angle de basculement, l'aimantation précesse à une fréquence unique, qui est celle de Larmor.

Pour les impulsions de faible amplitude, nous faisons l'approximation que $\mathcal{M} \simeq \mathcal{M}_z$. Par conséquent, $\Delta\omega \simeq \frac{3}{4}\mu_0\gamma\mathcal{M}$, que l'on peut également écrire sous la forme :

$$\Delta\omega \simeq \frac{3}{4}\mu_0|\gamma|n_3\mu_n M \quad (\text{VII} - 3)$$

M taux de polarisation nucléaire (en %)

n_3 densité d'atome d' ^3He (atomes/ m^3)

μ_n moment magnétique de l' ^3He

γ facteur gyromagnétique

$n_3 = x \cdot \mathcal{N}_A \cdot \rho$ avec :

x concentration en ^3He du mélange

ρ densité molaire du mélange (mole/ m^3)

\mathcal{N}_A nombre d'Avogadro

L'équation VII-3 peut alors s'écrire de la façon suivante :

$$\Delta\omega = \frac{3}{4}\mu_0\gamma x \mathcal{N}_A \cdot \rho \mu_n M \quad (\text{VII} - 4)$$

Sous réserve de connaître la température et la concentration du mélange, on peut en principe déduire son taux de polarisation M . (Dans nos conditions expérimentales, ρ ne dépend pas de la température). Nous verrons dans le chapitre suivant les méthodes envisagées pour mesurer x .

c) - Discussion

L'observation de deux fréquences de précession de l'aimantation suppose que l'on puisse résoudre les deux raies obtenues après transformée de Fourier du signal. D'où l'importance de la largeur des raies. Rappelons d'abord que l'inhomogénéité du champ statique \mathbf{B}_0 sur la cellule entraîne une variation spatiale de la fréquence de précession et contribue donc à l'élargissement des raies. Pour donner un ordre de grandeur, la largeur de raie $\delta\omega$ vaut environ $\gamma\delta B_0$, avec δB_0 variation de B_0 sur la cellule. Dans le pire des cas, $\delta B_0 = 10^{-3}$ Gauss, et par conséquent $\delta\omega \simeq 3$ Hz.

Considérons à présent une solution contenant 3% d' ^3He , à une température de 200 mK. D'après [52], $1/\rho=27,8 \text{ cm}^3/\text{mole}$. Nous avons d'autre part :

$$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ dans le système d'unités international}$$

$$\gamma = 3,24 \text{ kHz/gauss}$$

$$\mu_n = 1,08 \times 10^{-26} \text{ J/Tesla}$$

$$\mathcal{N}_A = 6,022 \times 10^{23}$$

Pour le mélange décrit ci-dessus, l'écart de fréquence est de 2 Hz par pour cent de polarisation nucléaire.

Les conditions sont alors réunies pour que nous soyons en principe capables de mesurer un taux de polarisation aussi faible que quelques pour cent, sous réserve évidemment que le rapport signal sur bruit soit suffisamment bon (l'amplitude du signal est proportionnelle à l'aimantation du mélange).

VII -B.2) MESURE DIRECTE DU TEMPS DE DIFFUSION DE L'AIMANTATION

Le sujet que nous allons développer au cours des paragraphes VII-B.2 et VII-B.3 concerne la mesure de la concentration x en ^3He du mélange. Rappelons que d'une part nous désirons étudier μ_4 en fonction de T , x , M et que d'autre part la détermination de M telle que nous l'avons décrit au paragraphe B-1, nécessite la connaissance de x . Les deux méthodes que nous allons présenter consistent à mesurer le coefficient de diffusion des spins D_0 . D_0 varie en effet avec la température et la concentration. A notre connaissance, D_0 n'est connu expérimentalement que pour deux valeurs de la concentration : $x=1,3 \%$ et $x=5 \%$ (figure VII-8). Il est néanmoins calculable dans certaines situations, par exemple lorsque la température est suffisamment faible et la concentration suffisamment forte pour que l'on soit dans le régime dégénéré.(voir figure III-5). Nous verrons que le mélange que nous nous proposons d'étudier est dans un état intermédiaire entre le régime dégénéré et le régime classique. Or actuellement, il n'existe aucune théorie fiable décrivant le comportement d'une telle solution. En revanche, la mesure de D_0 est une expérience relativement facile. Il suffit de placer un échantillon de concentration connue dans un champ magnétique d'une fraction de Tesla. Nous pouvons appliquer ensuite la technique d'échos de spins décrite dans le paragraphe VII-B.3 pour connaître

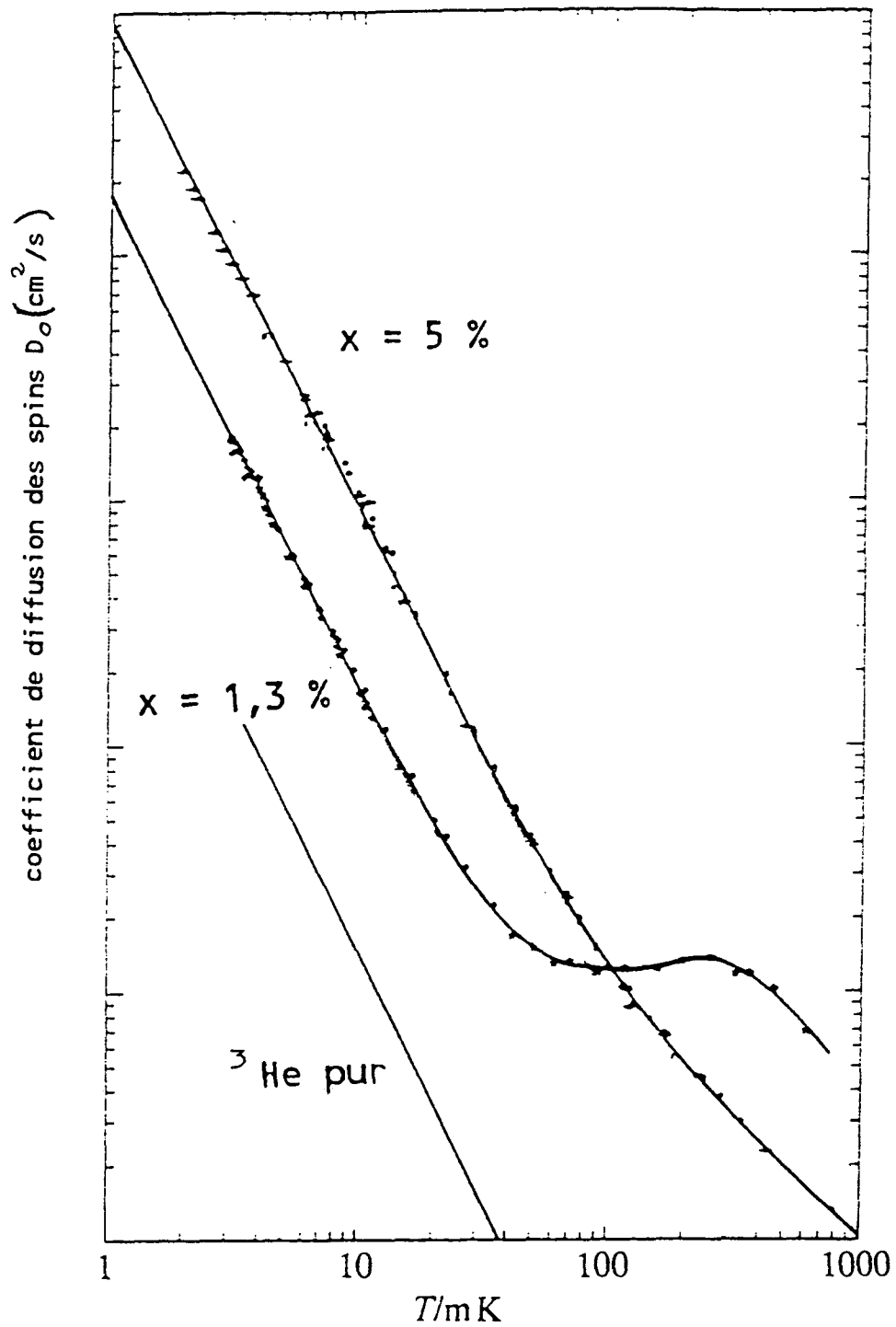


Figure VII-8 : Variation en fonction de la température du coefficient de diffusion des spins D_0 dans les mélanges ^3He - ^4He . D_0 a été mesuré pour deux concentrations x en ^3He : $x = 5\%$ et $x = 1,3\%$ [96].

D_0 . Une telle mesure préliminaire pour une détermination précise de D_0 en fonction de la température et de la concentration du mélange est donc parfaitement envisageable.

a) Principe de la mesure de D_0

Supposons qu'à un instant initial, on prépare une aimantation transverse $\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0}$ spatialement inhomogène. Les atomes vont alors diffuser dans le but de rétablir une aimantation uniforme sur l'échantillon. En chaque point, l'aimantation évoluera par conséquent pendant un temps caractéristique qui dépend entre autres du coefficient D_0 de diffusion des spins. Plus D_0 est faible, plus le temps de retour vers une aimantation homogène est long. Nous savons que dans le référentiel tournant de Larmor, la dépendance temporelle de \mathcal{M}_{\perp} résulte en général de la superposition de divers modes de diffusion. Chacun de ces modes est caractérisé par un temps d'amortissement τ_n [5].

Remarque

Cette approche n'est valable que si le champ statique \mathbf{B}_0 est suffisamment homogène sur toute la cellule. Dans le cas contraire, l'évolution de $\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0}$ au cours du temps devrait prendre en compte la variation de la fréquence de Larmor le long de la cellule.

Pour une géométrie connue de la cellule, nous pouvons calculer τ_n en fonction de D_0 . Il s'agit alors de détecter le signal de précession provenant de la partie inhomogène de l'aimantation pour mesurer τ_n . On en déduirait D_0 , puis la concentration x du mélange sous réserve que sa température soit connue. Cette technique a déjà été utilisée au laboratoire. On trouvera une description détaillée du principe ainsi que du dispositif expérimental dans la référence [5]. Nous nous contenterons ici d'en rappeler les grandes lignes.

Préparation d'une aimantation transverse inhomogène

Pour créer une aimantation transverse inhomogène, on peut utiliser une paire de bobines inductrices géométriquement semblables à celles employées pour préparer une aimantation homogène (voir VII-C.2a)). La seule différence est que les deux bobines sont électriquement connectées en opposition. Les courbes en pointillé de la figure VII-9 représentent les lignes de champ inducteur. La relative grande taille des bobines par rapport à notre cellule permet de nous placer dans une configuration qui simplifiera le calcul de τ_n : l'aimantation transverse ne dépendra que de l'abscisse y le long du cylindre

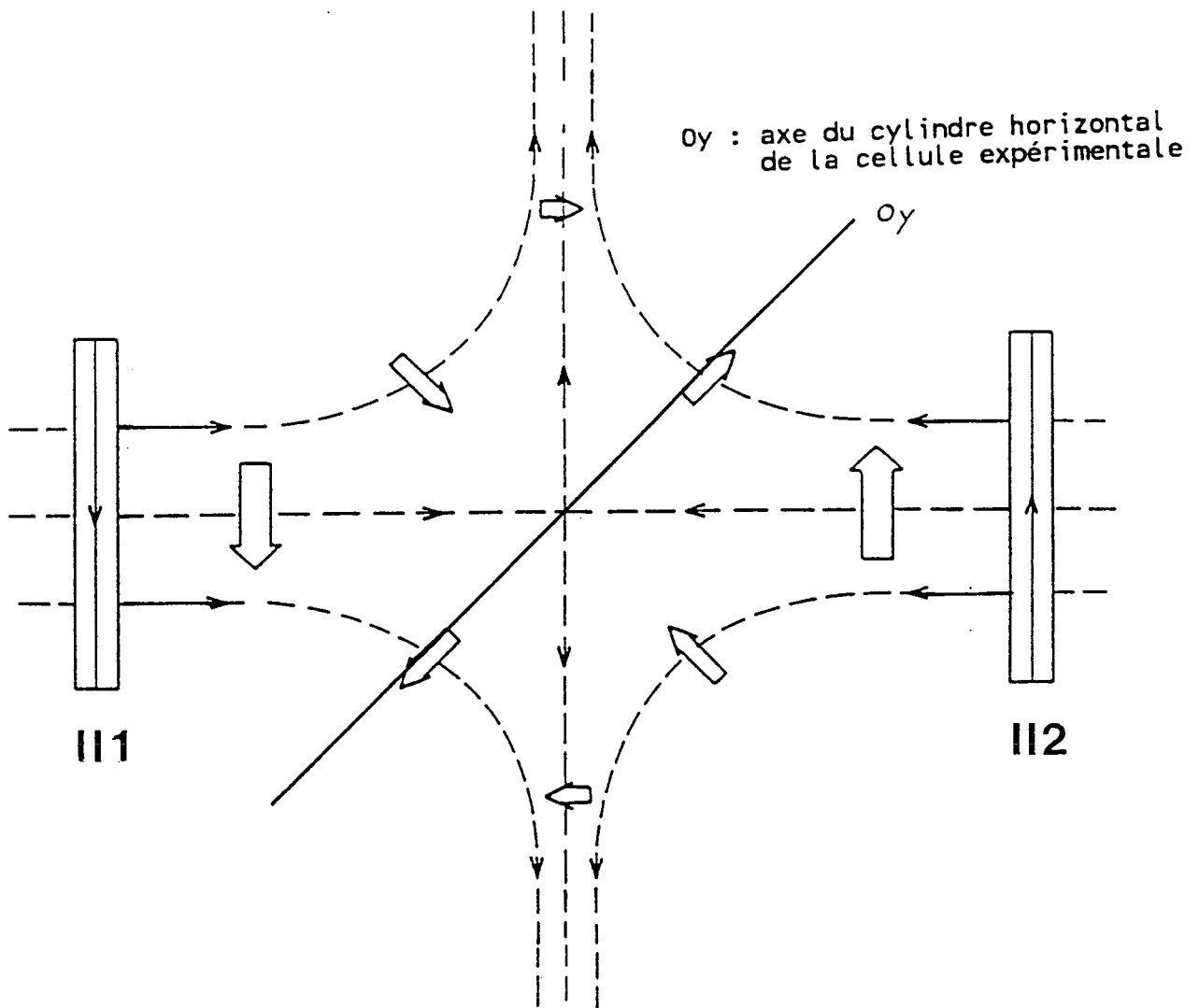


Figure VII-9 : Préparation d'une aimantation transverse inhomogène. La paire de bobines II1 et II2, connectées en opposition, crée sur la cellule un champ de radiofréquence (lignes de champ en pointillé) nul en moyenne. L'aimantation ainsi basculée (flèches) a donc une répartition spatiale antisymétrique.

horizontal, et du temps. Cette aimantation est antisymétrique par rapport au centre du cylindre (où elle est nulle). Cette caractéristique sera conservée au cours du temps. En réalité, nous excitons tous les modes antisymétriques (où l'aimantation s'annule un nombre impair de fois sur la cellule). Mais compte tenu des bobines que nous avons décrites, c'est essentiellement le mode représenté sur la figure VII-10 qui sera préparé.

Détection d'une aimantation transverse inhomogène

Après création d'une composante transverse de l'aimantation, celle-ci précesse autour du champ statique \mathbf{B}_0 . La figure VII-11 représente l'évolution de \mathcal{M}_\perp en chaque point de la cellule, dans le référentiel tournant de Larmor. Le signal de précession est détecté grâce à deux bobines semblables à celles utilisées pour observer l'évolution d'une aimantation homogène, mais connectées en opposition elles aussi (voir § VII-C.2a). Chaque bobine est alors surtout sensible à la précession des spins contenus dans la plus proche moitié de la cellule (figure VII-12). Nous avons vu que c'était principalement le mode de la figure VII-10 qui était excité. En outre, notre ensemble de bobines détectrices possède un maximum de sensibilité pour ce même mode. En pratique, nous mesurerons le temps τ_1 qui lui est associé. Il reste maintenant à calculer la dépendance de τ_1 avec D_0 .

b) Calcul du temps d'amortissement de l'aimantation transverse

Nous nous plaçons dans le référentiel tournant de Larmor. Un gradient dans l'une des composantes \mathcal{M}_i de l'aimantation \mathcal{M} donne naissance à un courant d'aimantation \mathbf{J} , qui vérifie une relation de Fick :

$$\mathbf{J}(\mathcal{M}_i) = -D_0 \text{grad}(\mathcal{M}_i) \quad (\text{VII} - 5)$$

avec D_0 : coefficient de diffusion des spins.

Pour sa part, la composante \mathcal{M}_i évolue sous l'effet du courant \mathbf{J} selon la relation :

$$\frac{\partial \mathcal{M}_i}{\partial t} = -\text{div}(\mathbf{J}(\mathcal{M}_i)) \quad (\text{VII} - 6)$$

L'élimination des courants entre VII-5 et VII-6 conduit à :

$$\frac{\partial \mathcal{M}_i}{\partial t} = D_0 \Delta \mathcal{M}_i \quad (\text{VII} - 7)$$



Figure VII-10 : Aimantation transverse initiale après une impulsion inhomogène de radiofréquence.

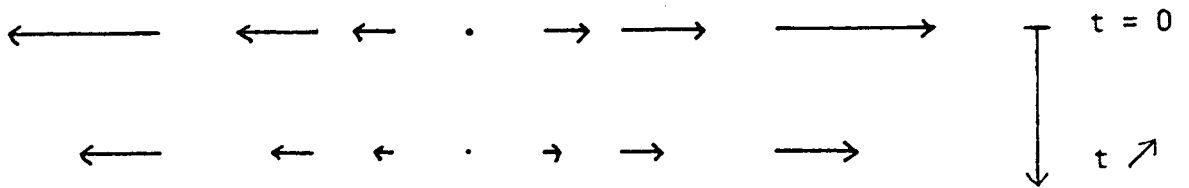


Figure VII-11 : Evolution temporelle de l'aimantation transverse inhomogène dans le référentiel de Larmor.

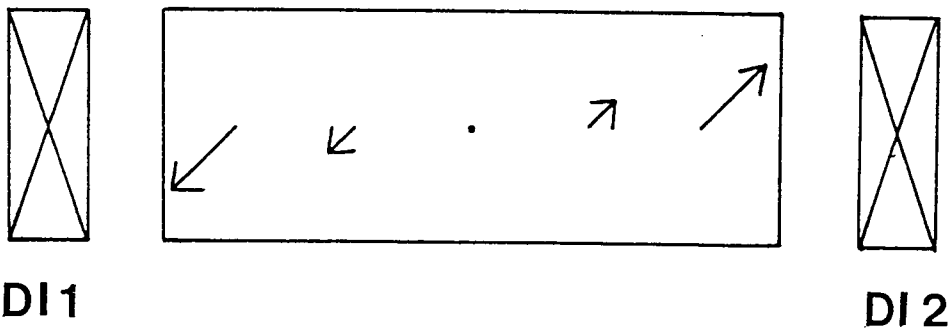


Figure VII-12 : Détection de l'aimantation transverse inhomogène.

La précession de l'aimantation transverse inhomogène (représentée ici dans le repère fixe) induit un signal aux bornes de la paire de bobines détectrices DI1 et DI2, connectées en opposition.

Supposons que l'on soit dans la situation représentée sur la figure VII-10. Nous pouvons décomposer $\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0}$ en fonction de deux variables séparables :

$$\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0} = g(y) h(t) \quad (\text{VII} - 8)$$

En remplaçant la formule VII-8 dans l'équation VII-7 , on trouve :

$$D_0 \frac{\partial^2 g(y)}{\partial y^2} h(t) = g(y) h'(t)$$

Cherchons une solution pour $h(t) = \text{const} \cdot e^{-at}$, avec $a > 0$. Nous avons alors :

$$g(y) = \text{const} \cdot \cos\left(\sqrt{\frac{a}{D_0}} y + \varphi\right)$$

et par conséquent :

$$\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0} = \text{const} \cdot e^{-at} \cdot \cos\left(\sqrt{\frac{a}{D_0}} y + \varphi\right)$$

Introduisons maintenant des conditions aux limites : nous supposons qu'il n'y a pas de relaxation nucléaire contre les parois de la cellule. La composante selon y du courant d'aimantation est donc nulle sur les parois :

$J_y (y = 0 \text{ et } y = \ell) = 0$, où ℓ représente la longueur du cylindre horizontal.

Finalement :

$$\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0} = \text{const} \cdot e^{-(t/\tau_n)} \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\ell} y\right) \quad (\text{VII} - 9)$$

avec :

$$\tau_n = \frac{\ell^2}{D_0 n^2 \pi^2} \quad (\text{VII} - 10)$$

temps caractéristique d'évolution de l'aimantation, n étant un entier. Compte tenu du choix de l'origine des abscisses, l'évolution de $\mathcal{M}_{\perp \mathbf{B}_0}$ résulte bien de la superposition de modes antisymétriques. Le mode principalement excité et détecté est le mode $n=1$. Il s'agit de plus du mode le plus lent à s'amortir. Une fois suffisamment atténué un

éventuel régime transitoire, l'évolution (dans le référentiel de Larmor) de $\mathcal{M}_{\perp B_0}$ suit l'équation suivante :

$$\mathcal{M}_{\perp B_0} = \text{const } e^{-(D_0 \pi^2 / \ell^2)t} \cos\left(\frac{\pi}{\ell} y\right) \quad (\text{VII} - 11)$$

On s'attend alors à une décroissance exponentielle du signal détecté aux bornes des bobines, qui devrait permettre de déduire D_0 et par conséquent x .

Remarque

En pratique, le cylindre horizontal où seront effectuées les mesures est connecté au cylindre vertical de la cellule expérimentale. Il est donc possible que cela entraîne une perturbation des modes de diffusion de l'aimantation : l'évolution de l'aimantation ne sera pas exactement décrite par l'équation VII-11. Il est théoriquement possible de calculer l'erreur commise sur D_0 en négligeant la diffusion des atomes entre le cylindre vertical et horizontal. Au stade de nos expériences, il n'est pas nécessaire de s'en préoccuper.

Ordre de grandeur

Reprenons l'exemple du paragraphe VII-B.2. $D_0 = 5.10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ pour une solution diluée à 5 %, de température 200 mK.

Le cylindre horizontal de la cellule expérimentale s'étend sur 5 mm. On en déduit d'après la formule VII-10, que τ_1 est de l'ordre de 5 s. Nous avons vu que le modèle développé précédemment n'était valable que dans le cas où le champ B_0 était suffisamment homogène sur l'échantillon. Nous allons maintenant évaluer qu'elle doit être la valeur maximum des gradients de champ sur la cellule pour que l'on puisse mesurer τ_1 avec suffisamment de précision.

En pratique, il faudrait que $\gamma \delta B_0 \tau_1$ soit très inférieur à 1, δB_0 variation du champ statique sur la cellule. Pour τ_1 de l'ordre de 5 s, on trouve que δB_0 doit être inférieur à environ 10^{-5} Gauss sur l'étendue de la cellule, c'est-à-dire sur 5 mm. Pour parvenir à une telle valeur, nous pourrions utiliser trois paires de bobines de champ (décrites dans le paragraphe VII C-2), qui permettent de compenser les gradients naturels dans les trois directions de l'espace. Par un ajustement soigneux des courants électriques qui circulent dans ces bobines, nous serons a priori capables de ramener les gradients de champ à une valeur suffisamment faible pour pouvoir déterminer D_0 avec précision.

VII - B.3) ECHOS DE SPINS

Nous venons de voir que la détermination de x par mesure du coefficient de diffusion des spins demandait un champ statique très homogène sur la cellule expérimentale. L'autre technique de mesure de D_0 que nous allons présenter s'appuie au contraire sur la présence de gradients de champ sur la cellule. Il s'agit d'une méthode également très classique de RMN (voir par exemple [43] [97]), appelée "echos de spins".

a) Rappels

En présence d'un champ magnétique \mathbf{B}_0 homogène, le signal de precession libre d'une aimantation transverse décroît selon une loi exponentielle e^{-t/T_s} . Dans la terminologie des techniques RMN, T_s est le temps de relaxation spin-spin-réseau. En pratique, \mathbf{B}_0 n'est jamais uniforme sur tout un échantillon. L'environnement magnétique dans lequel celui-ci est placé crée des contributions supplémentaires inévitables. Il en résulte que la fréquence de Larmor varie spatialement. Par conséquent, l'aimantation transverse **moyenne** de l'échantillon peut s'annuler plus rapidement que ce que prévoit la loi e^{-t/T_s} . La technique dite des "echos de spins" permet de s'affranchir du problème de gradient de champ statique. Elle fut proposé par Hahn en 1950 [98].

A l'instant $t=0$, une impulsion de $\pi/2$ bascule l'aimantation \mathcal{M}_0 dans le plan (Oxy) (figure VII-13.a). Sous l'effet des gradients, les spins se déphasent entre eux (figure VII-13.b), pour donner une aimantation moyenne nulle au bout du temps T_2^* . A un instant t_1 tel que $T_2^* < t_1 < T_s$, une impulsion d'angle π renverse la distribution des spins dans une symétrie par rapport à l'axe Oy' (figure VII-13.c). Par conséquent, les spins qui évoluaient à une fréquence inférieure à ω_0 ($\omega_0 = \gamma \bar{B}_0$, \bar{B}_0 champ moyen sur la cellule) se trouvent en avance de phase par rapport à ceux dont la fréquence était supérieure à ω_0 . Au bout d'un temps $t_2 = 2t_1$, l'aimantation redevient maximum (figure VII-13d), mais diminuée d'un facteur e^{-2t_1/T_s} par rapport à l'aimantation au temps $t=0$. Une nouvelle impulsion π appliqué à l'instant $3t_1$ sera également suivi d'un écho d'amplitude maximum pour $t = 4t_1$, l'aimantation \mathcal{M} étant $\mathcal{M}_0 e^{-4t_1/T_s}$ à cette instant. Une succession d'impulsions aux instants $t = (2n + 1)t_1$, n entier, permettra donc d'observer un signal maximum aux instants $(2n + 2)t_1$, d'amplitude $\mathcal{M}_0 e^{-(2n+2)t_1/T_s}$.

L'enregistrement de ce signal par rapport au temps est une méthode communément utilisée pour connaître T_s . Dans le cas des mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$, on s'attend à des temps

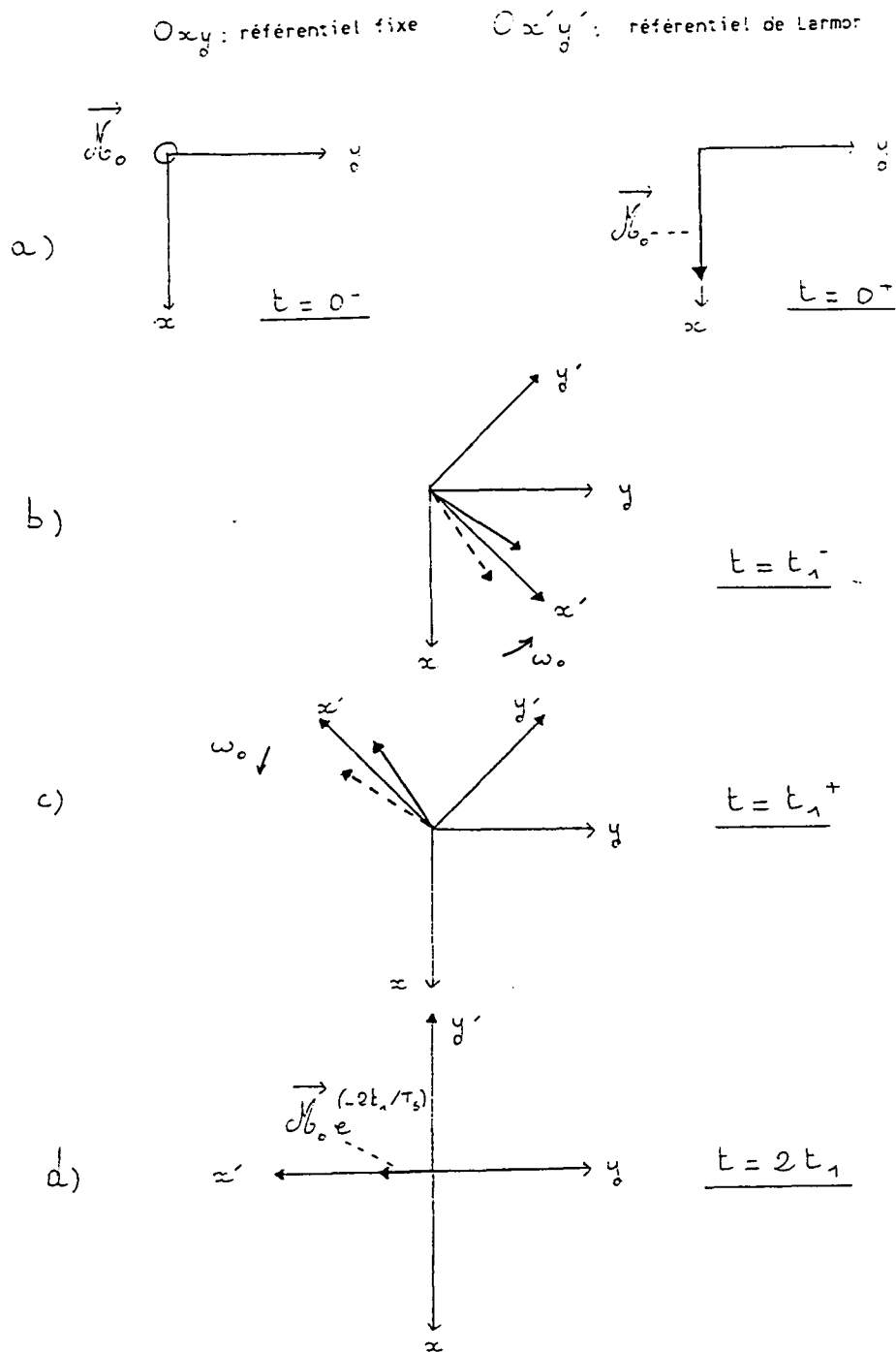


Figure VII-13 : Principe des échos de spins

a) L'aimantation M_0 initialement parallèle à B_0 est basculée dans le plan Oxy (angle $\pi/2$) à $t=0$.

b) Sous l'effet des gradients du champ B_0 , les spins ne "précessent" pas à la même fréquence de Larmor, et se déphasent entre eux : l'aimantation varie spatialement

c) A l'instant t_1 une impulsion d'angle π retourne la distribution de l'aimantation par rapport à l'axe Oy' .

d) A l'instant $2t_1$, tous les spins sont à nouveau "en phase".

de relaxation transverse T_S du même ordre de grandeur que le temps de relaxation longitudinal T_1 [60]. Nous verrons plus loin que nous avons mesuré des valeurs T_1 supérieures à une heure. Pour l'instant, rien ne nous permet de dire s'il s'agit d'un temps intrinsèque au liquide ou lié aux parois de la cellule. Le doute subsiste pour un T_S que l'on mesurerait par échos de spins. Mais le principe que nous venons de rappeler ne tenait pas compte de la diffusion des spins. Nous allons maintenant introduire ce phénomène et montrer comment la technique d'échos de spins permet de mesurer D_0 .

b) Effets de la diffusion de l'aimantation

Si l'aimantation dans le liquide n'est pas uniforme (à cause des gradients de champ statique) il se crée des courants d'aimantation $J(\mathcal{M})$ dans le liquide. Ils contribuent à une atténuation irréversible du signal de précession libre. Torrey [99] a modifié les équations phénoménologiques de Bloch pour tenir compte du processus de diffusion des atomes. Il obtient les équations suivantes, qui décrivent la précession libre de l'aimantation après une impulsion de radio-fréquence.

$$\frac{d\mathcal{M}_x}{dt} = \gamma(\mathcal{M} \wedge \mathbf{B}_0)_x - \frac{\mathcal{M}_x}{T_S} + D_0 \nabla \cdot \nabla (\mathcal{M}_x - \mathcal{M}_{x_0}) \quad (\text{VII} - 12)$$

$$\frac{d\mathcal{M}_y}{dt} = \gamma(\mathcal{M} \wedge \mathbf{B}_0)_y - \frac{\mathcal{M}_y}{T_S} + D_0 \nabla \cdot \nabla (\mathcal{M}_y - \mathcal{M}_{y_0}) \quad (\text{VII} - 13)$$

$\mathcal{M}_x, \mathcal{M}_y$, composantes de l'aimantation transverse dans le référentiel fixe.

$\mathcal{M}_{x_0}, \mathcal{M}_{y_0}$, composantes de l'aimantation transverse à $t=0$.

\mathbf{B}_0 le champ magnétique statique

Nous supposons que \mathbf{B}_1 (le champ inducteur) est suffisamment homogène sur le mélange à étudier. Dans ce cas, l'aimantation transverse est pratiquement uniforme après l'impulsion de R.F. . Nous pouvons alors négliger les termes $\nabla \mathcal{M}_{x_0}$ et $\nabla \mathcal{M}_{y_0}$. En outre, on s'attend à des T_S très longs. Nous ne ferons pas intervenir non plus les termes \mathcal{M}_x/T_S et \mathcal{M}_y/T_S . Pour résoudre les équations VII-12 et VII-13, définissons une aimantation transverse complexe \mathcal{M}_\perp , avec :

$$\mathcal{M}_\perp = \mathcal{M}_x + i\mathcal{M}_y$$

De plus appelons B_x , B_y et B_z les composantes de \mathbf{B}_0 dans le référentiel fixe ($Oxyz$) (rappelons que si \mathbf{B}_0 n'est pas homogène, alors des relations $\text{div } \mathbf{B}_0=0$ et $\text{rot } \mathbf{B}_0=0$, on déduit qu'il existe en effet forcément des composantes transverses de ce champ). De VII-11 et VII-12 nous déduisons que :

$$\frac{d\mathcal{M}_\perp}{dt} = D_0 \Delta \mathcal{M}_\perp - i\gamma B_z \mathcal{M}_\perp + i\gamma \mathcal{M}_z (B_x + iB_y) \quad (\text{VII} - 14)$$

Supposons que la composante selon z du champ statique présente une variation linéaire selon la direction Oy du repère fixe (Oy est par exemple l'axe du cylindre horizontal). Toute combinaison de gradients selon les trois directions de l'espace se traiterait de la même manière. Le champ selon z perçu par un atome situé à l'abscisse y est donc de la forme :

$$B_z = a + by, \quad a \text{ et } b \text{ étant des constantes}$$

Des relations $\text{div } \mathbf{B}_0=0$ et $\text{rot } \mathbf{B}_0=0$, on déduit la forme générale d'un champ possédant une telle composante B_z :

$$B_x = c(x^2 - y^2) \quad (c \text{ étant une constante})$$

$$B_y = -2cxy + bz$$

$$B_z = a + by$$

Remarque

Le gradient linéaire b peut résulter de l'inhomogénéité naturelle de \mathbf{B}_0 . On peut aussi le créer volontairement à l'aide des bobines de champ qui servent au contraire à compenser les gradients dans le cadre des mesures directes du coefficient de diffusion. Dans les deux cas, b peut être connu, ce qui permettrait de mesurer le coefficient de diffusion des spins comme on le verra plus loin.

Compte tenu de l'expression du champ magnétique \mathbf{B}_0 , VII-14 devient :

$$\frac{d\mathcal{M}_\perp}{dt} = D_0 \Delta \mathcal{M}_\perp - i\gamma [a + by] \mathcal{M}_\perp - \frac{1}{2} i\gamma \mathcal{M}_z (B_x + iB_y) \quad (\text{VII} - 15)$$

Pour une impulsion d'angle $\pi/2$, $\mathcal{M}_z = 0$. Comme nous nous intéressons au signal induit après une telle impulsion, le champ démagnétisant est nul (voir chapitre III-B.1).

Il faudrait éventuellement en tenir compte dans les cas où l'angle de basculement conserve une partie de la composante selon z de l'aimantation. En effet, nous avons vu que l'ordre de grandeur du champ démagnétisant était d'environ 20 mGauss pour un taux de polarisation d'1 %. Le champ démagnétisant peut donc être supérieur à la variation de B_z le long de la cellule expérimentale.

Cherchons une solution de VII-15 sous la forme :

$$\mathcal{M}_\perp = \bar{m}f, \text{ avec } \bar{m} = e^{-i\gamma at}$$

\bar{m} représente l'évolution de l'aimantation en l'absence de diffusion des atomes. Quant à f , c'est l'amplitude de l'aimantation non atténuée par la relaxation nucléaire : nous obtenons alors

$$\frac{df}{dt} = D_0 \Delta f - i\gamma byf \quad (\text{VII} - 16)$$

En présence d'un champ uniforme, f serait une constante. Avec une faible inhomogénéité, mais sans processus de diffusion, \mathcal{M}_\perp précesse autour de l'axe défini par B_0 avec une fréquence $\omega_0 + \gamma by$. La diffusion des atomes a pour conséquence qu'en un point donné, un certain nombre d'atomes sont remplacés par d'autres provenant d'une différente région de l'échantillon. L'effet de ce mouvement est de diminuer l'amplitude de \mathcal{M} en un point y , sans perturbation de la fréquence de précession. Nous pouvons alors décomposer f en :

$$f(t) = bA(t)e^{-i\gamma byt}$$

De VII-16 on arrive à :

$$\frac{dA}{dt} = -D_0 \gamma^2 b^2 t^2 A, \text{ dont la solution est de la forme :}$$

$$A = \text{const} \cdot e^{-(1/3)D_0 \gamma^2 b^2 t^3}$$

En définitive :

$$\mathcal{M}_\perp = \mathcal{M}_0 e^{-i\gamma(a+by)t} e^{-(1/3)D_0 \gamma^2 b^2 t^3} \quad (\text{VII} - 17)$$

\mathcal{M}_0 aimantation initiale avant l'impulsion $\pi/2$.

Nous pouvons constater que l'aimantation **moyennée sur tout l'échantillon** décroît

* d'une part à cause de la "défocalisation des spins", conséquence de la non-uniformité du champ magnétique (terme en $e^{-i\gamma(a+by)t}$)

* d'autre part à cause de la diffusion des atomes qui tendent à homogénéiser l'aimantation (terme en $e^{-(1/3)D_0\gamma^2b^2t^3}$)

Les échos de spins permettent de nous affranchir du premier processus : appliquons une impulsion d'angle π à l'instant τ . Au bout d'un temps 2τ , le signal de précession de l'aimantation redeviendra maximum avec une amplitude S telle que :

$$S = \mathcal{M}_0 e^{-(1/3)D_0\gamma^2b^2(2\tau)^3} \quad (\text{VII} - 18)$$

La mesure de l'amplitude du signal de précession libre à $t=0$, et celle de son écho à $t=2\tau$ nous permettrait donc de mesurer D_0 , b étant connu. Comme nous pouvons également déterminer la température du mélange étudié, on en déduirait alors sa concentration en ^3He .

c) Quelques ordres de grandeur

Rappelons quelle est la procédure expérimentale qui nous permettrait de mesurer le potentiel chimique de l' ^4He en fonction de la température, concentration et taux de polarisation de l' ^3He .

Le mélange est initialement aimanté et nous mesurons son potentiel chimique comme indiqué dans le chapitre VI. Une impulsion d'angle α ($\alpha \ll \pi/2$) permet de déduire de la caractéristique du signal de précession libre des spins une première relation entre M et x (voir III-B1). Nous appliquons ensuite une impulsion d'angle $(\pi/2)-\epsilon$, dans le but de ne garder qu'une faible composante selon z de l'aimantation du mélange. Après rétablissement des conditions d'équilibre thermodynamique, on mesure à nouveau le potentiel chimique de l' ^4He à aimantation quasi nulle. Finalement, on détermine D_0 par échos de spins en utilisant l'aimantation restante.

Remarque

D_0 dépend a priori de l'aimantation du liquide [5] [7]. Or les mesures de D_0 pub-

liées antérieurement ont été réalisées pour de petites aimantations. Pour comparer nos propres valeurs à celles déjà existantes, et par conséquent en déduire x , nous devons donc travailler à faible aimantation. Ceci justifie la procédure expérimentale décrite précédemment. L'inconvénient réside dans un moins bon rapport signal sur bruit par rapport au cas où D_0 serait mesuré à forte aimantation.

Les gradients "naturels" de champ magnétique sont de l'ordre de 10^{-3} Gauss/cm. Par conséquent, $B_z \simeq 3 + 10^{-3}y$ Gauss (y en cm). Considérons une fois encore l'exemple d'une solution contenant 5 % d' ^3He , dont la température est de 200 mK. Comme $D_0 \simeq 5 \times 10^{-3} \text{cm}^2/\text{s}$, le terme $e^{-(1/3)D_0\gamma^2 b^2 t^3}$ s'annule au bout de typiquement 5 s. La "défocalisation" des spins due à la variation de la fréquence de précession le long de la cellule et leur remise en phase suite à un écho de spin doit alors se dérouler en moins de 5 s. L'ajustement des courants dans les bobines de gradient de champ permettrait en principe de se placer dans les conditions décrites ci-dessus. Signalons que plus les gradients seront importants, plus le déphasage des spins sera rapide, d'où une amplitude de signal d'écho dans un meilleur rapport signal sur bruit.

VII - C RESULTATS OBTENUS

VII -C.1) TEMPERATURE MINIMUM DU MELANGE POLARISE

a) Evaluation des pertes thermiques

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les résultats typiques obtenus pour la configuration représentée sur la figure VII-14. Un interrupteur thermique relie la cellule expérimentale à la boîte à mélange. Les caractéristiques propres à cet interrupteur sont reportées sur la figure VII-15. Le corps de l'interrupteur est composé d'un cylindre creux en stycast blanc, rétréci en son milieu. La partie supérieure (respectivement inférieure) du cylindre est prolongée par 48 (resp. 64) fils de cuivre (diamètre 20/100 mm) ancrés sur la cellule expérimentale (resp. boîte à mélange). Une résistance en carbone type Matsushita 100Ω est collée par du vernis G.E. sur les fils supérieurs. Ceux-ci sont en outre entourés par un fil en constantan, qui produit une puissance thermique lorsqu'il est parcouru par un courant électrique.

A environ 15 cm au-dessus de l'extrémité de la cellule, nous avons plaqué contre cette dernière un faisceau de fils de cuivre ancrés thermiquement sur l'évaporateur, dans

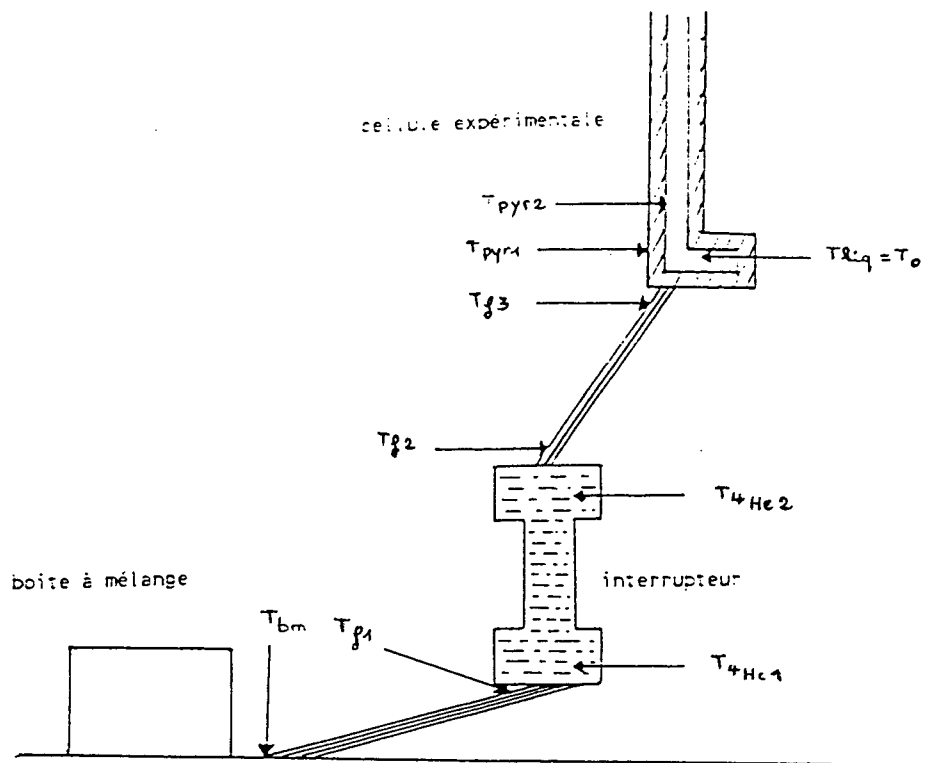


Figure VII-14 : Contact thermique entre la cellule expérimentale et la boîte à mélange.

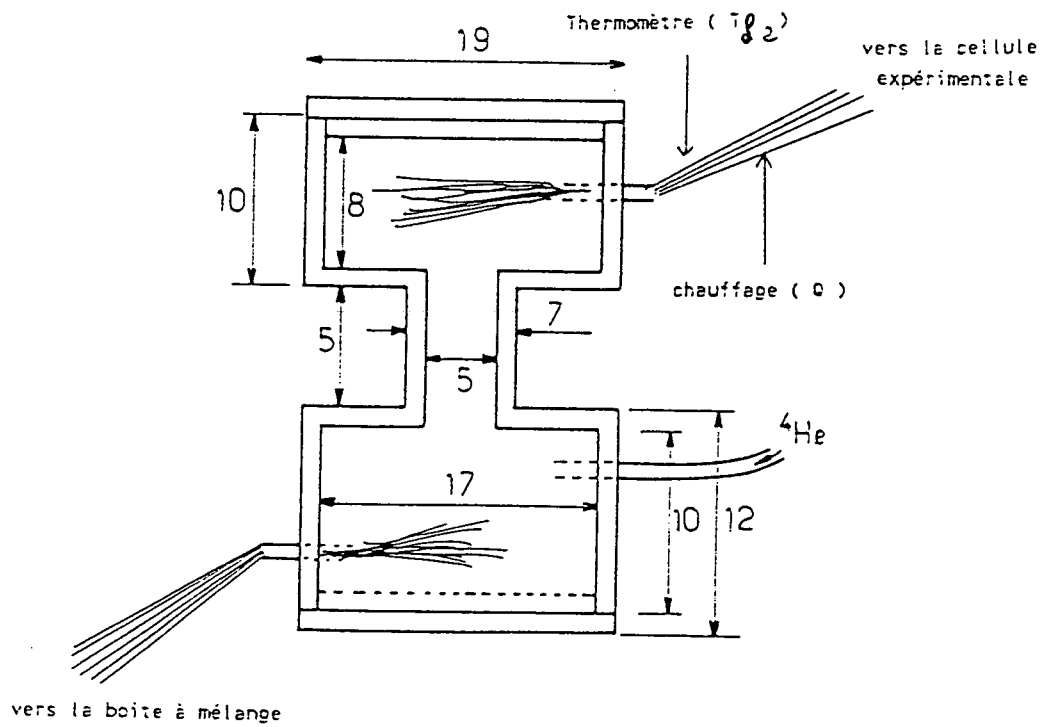


Figure VII-15 : Dimensions de l'interrupteur thermique (mm).

le but de limiter les pertes thermiques sur le liquide froid. On détermine celles-ci de manière habituelle : pour diverses valeurs de la puissance thermique Q produit par le fil chauffant, on mesure d'une part T_{f2} (température des fils), et d'autre part la température de la boîte à mélange T_{bm} . Lorsque l'interrupteur est rempli d' ^4He superfluide, nous supposerons que les fils de cuivre reliant la boîte à mélange à l'interrupteur constituent la majorité de l'impédance thermique. Nous vérifierons à posteriori si cette hypothèse était justifiée.

Une interpolation des valeurs tirées de la référence [27] montre une dépendance en température de la conductivité thermique K_{Cu} du cuivre de la forme :

$$K_{Cu} = aT^{0,9} \text{ W/K}$$

avec a un paramètre dépendant de la géométrie des fils de cuivre.

D'après la loi usuelle de la propagation de la chaleur ($dQ = K(T)dT$) on a :

$$T_{f2}^{1,9} - T_{bm}^{1,9} = \frac{1,9}{a} (Q + Q_0)$$

T_{f2} , T_{bm} , Q et définis comme précédemment

Q_0 pertes thermiques sur la cellule

La variation de $T_{f2}^{1,9} - T_{bm}^{1,9}$ en fonction de Q est représentée sur la figure VII-16.

Nous pouvons l'interpoler par une droite (au moins pour les faibles puissances), première confirmation que l'hypothèse faite concernant l'impédance thermique n'est pas loin de la réalité. La pente de la droite montre que le transport de chaleur s'effectue avec une conductivité thermique de $2,2 \times 10^{-3} T^{0,9} \text{ W/K}$. Connaissant les caractéristiques géométriques des faisceaux de fils, on en déduit une conductibilité du cuivre k_{Cu} telle que :

$$k_{Cu} \simeq 55.T^{0,9} \text{ W/Km}$$

Cette valeur est en bon accord avec les mesures répertoriées dans la référence [27] (cuivre de qualité moyenne).

L'extrapolation de la droite pour $T_{f2} = T_{bm}$ indique des pertes thermiques de l'ordre de $30 \mu\text{W}$, valeur à comparer aux $5 \mu\text{W}$ de pertes sur une cellule d' ^3He pur.

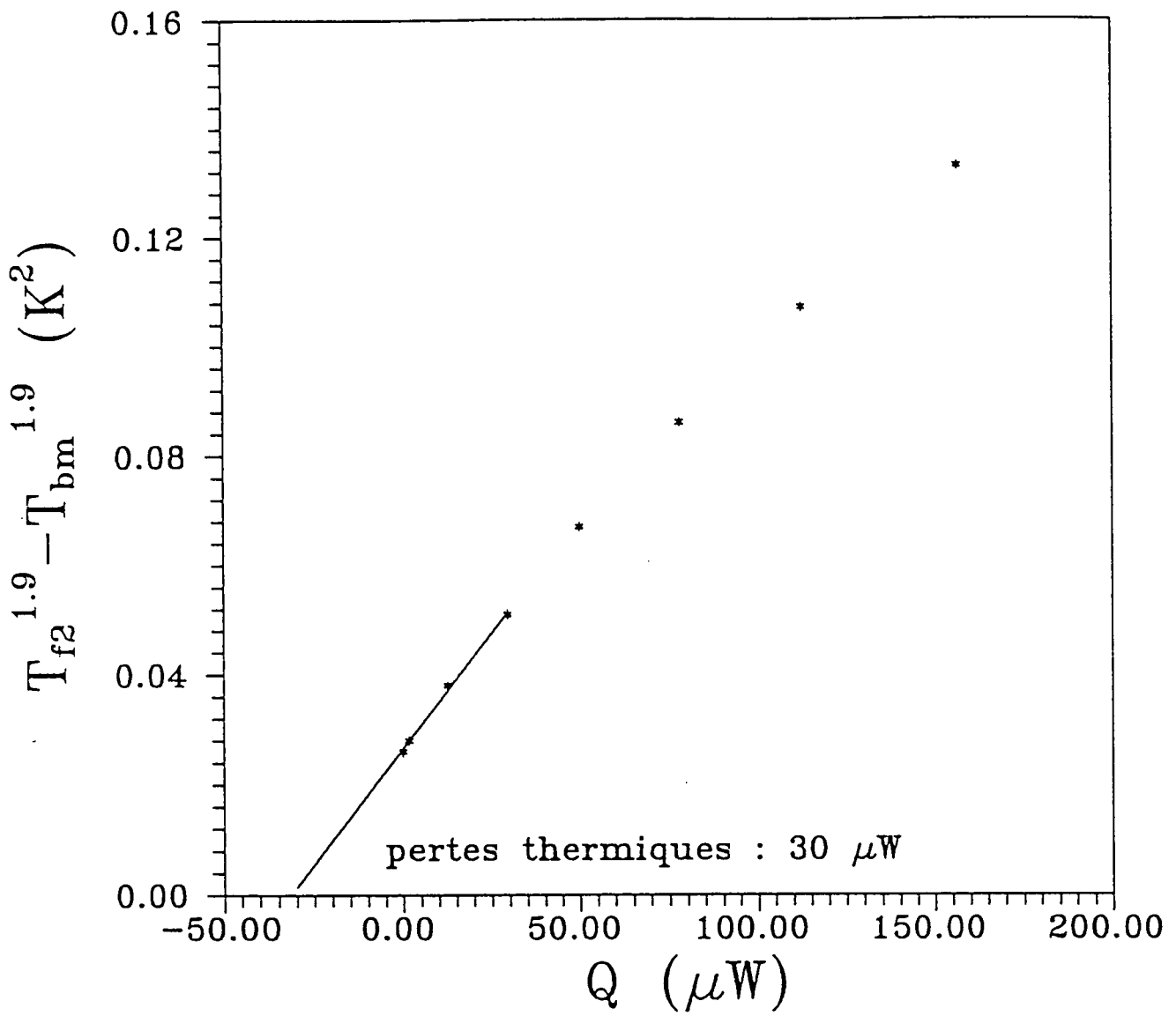


Figure VII-16 : Détermination des pertes thermiques amenées par la cellule vers la boîte à mélange.

L'origine de ces pertes importantes trouve sa source dans l'effet "Hevac" déjà cité : la chaleur est apportée vers le liquide par la recondensation du flux d' ^4He gazeux compensant un film superfluide en mouvement vers les zones à plus hautes températures. Ce phénomène impose une température relativement élevée du liquide contenu dans la cellule expérimentale. Nous l'estimerons au cours du paragraphe suivant.

Nous allons maintenant comparer l'impédance thermique du cuivre à : d'une part la résistance de Kapitza entre le cuivre et l' ^4He , et d'autre part à la résistance thermique de l' ^4He superfluide.

Dans l'interrupteur utilisé, la longueur des fils de cuivre trempant dans l'hélium est d'environ 10 cm. Intéressons-nous d'abord à la partie inférieure de l'interrupteur, qui comprend 64 fils de diamètre 0,2 mm. On trouve par conséquent une surface d'échange S entre le cuivre et l' ^4He de l'ordre de $4 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2$. Soit $R_K = 10^{-2}/ST^3 \text{ W/K}$ la résistance de Kapitza entre le cuivre et l' ^4He [27]. En supposant que les fils sont à une température T_{f1} de 155 mK pour des pertes de $30 \mu\text{Watt}$ (on tient compte de la résistance thermique des fils), on en déduit que l' ^4He est à une température $T_{4\text{He}1}$ de 172 mK.

Nous avons signalé dans le chapitre VI-A que la conductivité thermique $K_{4\text{He}}$ de l'hélium superfluide pouvait être approchée par la formule

$$K_{4\text{He}} = 300dT^3 \text{ kW/Km pour } T \lesssim 0,6 \text{ K}$$

Calculons la différence de température entre les deux extrémités d'une colonne d' ^4He de longueur $\ell=2,5 \text{ cm}$ et de diamètre $d=1 \text{ cm}$, pour un flux de chaleur égal aux pertes thermiques trouvées précédemment. On prendra l'une des extrémités à 172 mK. Il s'agit d'une modélisation "pessimiste" de notre interrupteur, qui est en moyenne d'un diamètre d plus important. Nous trouvons alors une différence de température de l'ordre de 1 mK, à comparer à la centaine de mK de différence entre T_{f2} et T_{bm} .

Pour la partie supérieure de l'interrupteur, compte tenu de la surface d'échange entre le cuivre et le pyrex ($\simeq 3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2$), on trouve que $T_{f2} \simeq 190 \text{ mK}$ en prenant $T_{4\text{He}2}$ égale à 173 mK. Rappelons que nous avons observé une température $T_{f2} \simeq 153 \text{ mK}$. Compte tenu de l'incertitude de la mesure, on peut considérer que le modèle développé précédemment est valide.

b) Température minimum du mélange polarisé

Nous présentons ci-dessous une estimation de la température du mélange pour des pertes thermiques de $30 \mu\text{W}$. Les impédances thermiques dominantes entre la cellule et l'interrupteur sont dues

- * à la résistance de Kapitza entre l'hélium et le pyrex.
- * à la conductivité thermique du pyrex.
- * à la résistance de contact entre le pyrex et le cuivre des fils de l'interrupteur thermique.
- * à la résistance thermique des fils.

Les valeurs nécessaires au calcul sont une fois encore tirées de la référence [27]. Etant donné l'absence de données pour la résistance cuivre-pyrex, nous prendrons une valeur moyenne des résistances connues entre différents solides.

Compte tenu des diverses caractéristiques géométriques :

$$\begin{aligned}
 K_{\text{cu}} &\simeq 8.10^{-4} \text{ }^{0,9} \text{ W/K} && \text{conductivité thermique des fils de cuivre} \\
 K_{\text{P}} &\simeq 10^{-3} \text{ }^{1,7} \text{ W/K} && \text{conductivité thermique du pyrex} \\
 R_{\text{Cu-p}} &\simeq \frac{1}{T^3} \text{ W/K} && \text{résistance thermique cuivre - pyrex} \\
 &&& \text{(surface d'échange } \simeq 5 \times 10^{-4} \text{ m}^2\text{)} \\
 R_{\text{Kp-He}} &\simeq \frac{65}{T^3} \text{ W/K} && \text{résistance de Kapitza entre} \\
 &&& \text{l'hélium et le pyrex}
 \end{aligned}$$

En intégrant l'équation usuelle de propagation de la chaleur, on a :

$$\begin{aligned}
 Q &= \frac{8.10^{-4}}{1,9} \left[T_{f3}^{1,9} - T_{f2}^{1,9} \right] \\
 Q &= \frac{1}{4} \left[T_{\text{pyr1}}^4 - T_{f3}^4 \right] \\
 Q &= \frac{10^{-3}}{2,7} \left[T_{\text{pyr2}}^{2,7} - T_{\text{pyr1}}^{2,7} \right]
 \end{aligned}$$

Pour la définition des différentes températures, se reporter à la figure VII-15.

Pour $Q=30 \mu\text{W}$ et $T_{f2} = 150 \text{ mK}$ (mesurée), les différentes températures calculées sont les suivantes :

$$T_{f3} = 297 \text{ mK}$$

$$T_{\text{pyr1}} = 298 \text{ mK}$$

$$T_{\text{pyr2}} = 455 \text{ mK}$$

La température du liquide est donnée finalement grâce à l'équation :

$$Q = \frac{1}{260} (T_{\text{liq}}^4 - T_{\text{pyr2}}^4)$$

On en déduit une température du liquide de l'ordre de 470 mK. Nous pouvons valider ce résultat à l'aide du modèle décrit dans le chapitre VI. Nous savons qu'il a été développé pour des solutions non polarisées. Toutefois, on s'attend à des corrections dues à l'aimantation extrêmement faibles. La figure VII-17 représente les profils de température et de concentration le long de la colonne de mélange, pour une température minimum de 470 mK, et des pertes thermiques de $30 \mu\text{W}$. Nous pouvons constater que la température au point d'abscisse $z=4 \text{ cm}$ ($T \simeq 1,35 \text{ K}$) est en accord raisonnable avec la valeur mesurée en ce point ($T = 1,2 \text{ K}$). Le décalage provient d'une part des approximations du modèle, et d'autre part de l'incertitude sur la mesure de température. La température et concentration estimée du liquide froid ($T_0 \simeq 470 \text{ mK}$, $x_0 \simeq 2,3\%$) le situent hors de la zone de dégénérescence (voir figure III-5). Notre première préoccupation sera par conséquent de limiter davantage les pertes thermiques sur la cellule. Nous verrons comment y parvenir dans le chapitre suivant.

VII -C.2) DISPOSITIF RMN :

a) Le champ magnétique statique B_0

Ce champ est produit par un ensemble de trois bobines (figure VII-18) dont la géométrie et les courants ont été optimisés numériquement afin de satisfaire la contrainte d'homogénéité nécessaire à la réussite de nos expériences. Le diamètre important des bobines assure une faible variation radiale du champ, caractéristique importante surtout au niveau de la boule à 4,2 K et de la partie expérimentale de la cellule. La valeur moyenne du champ sur l'axe des bobines est de l'ordre de 3 Gauss. L'homogénéité obtenue est satisfaisante puisque la variation du champ ne dépasse pas 10^{-3} Gauss/cm

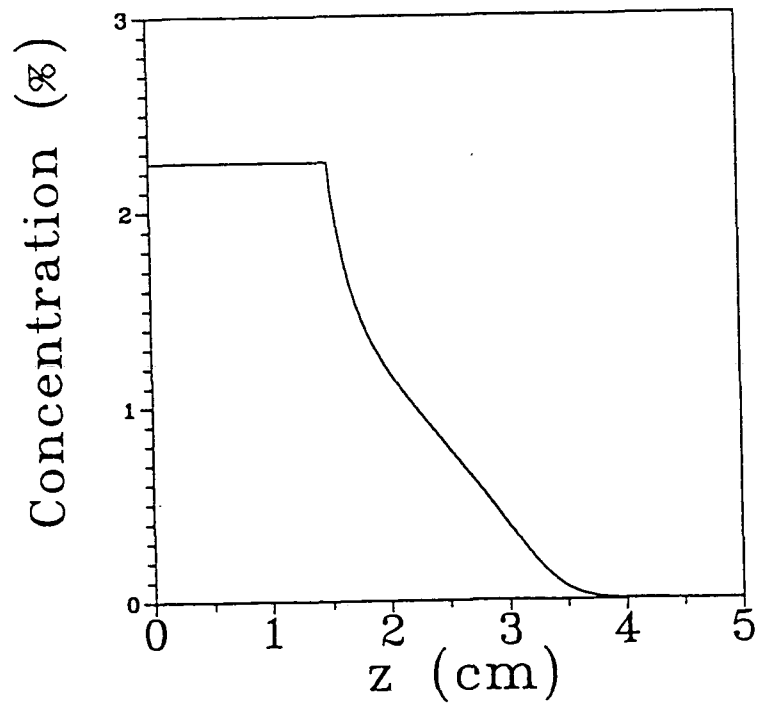
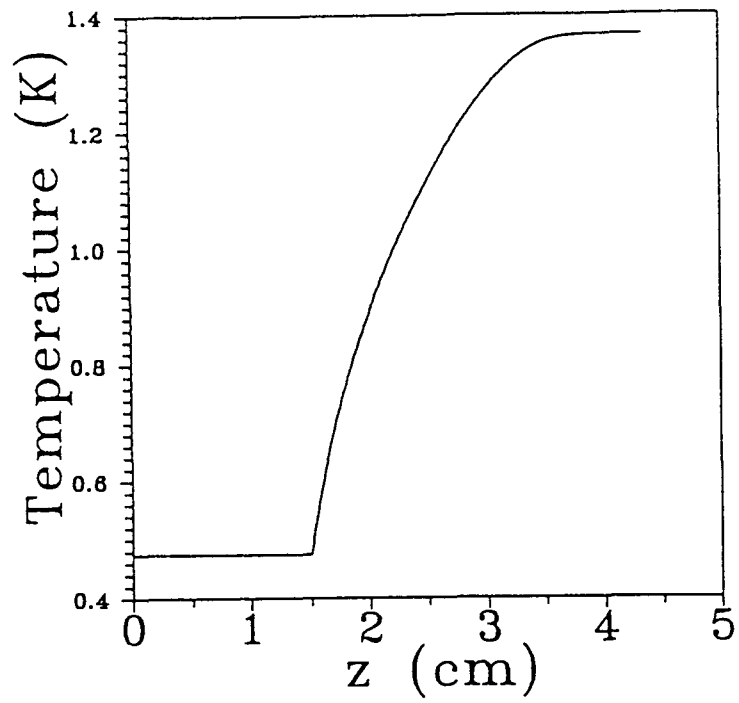


Figure VII-17 : Estimation du profil de températures et de concentrations dans le mélange (pertes thermiques $30 \mu\text{W}$).

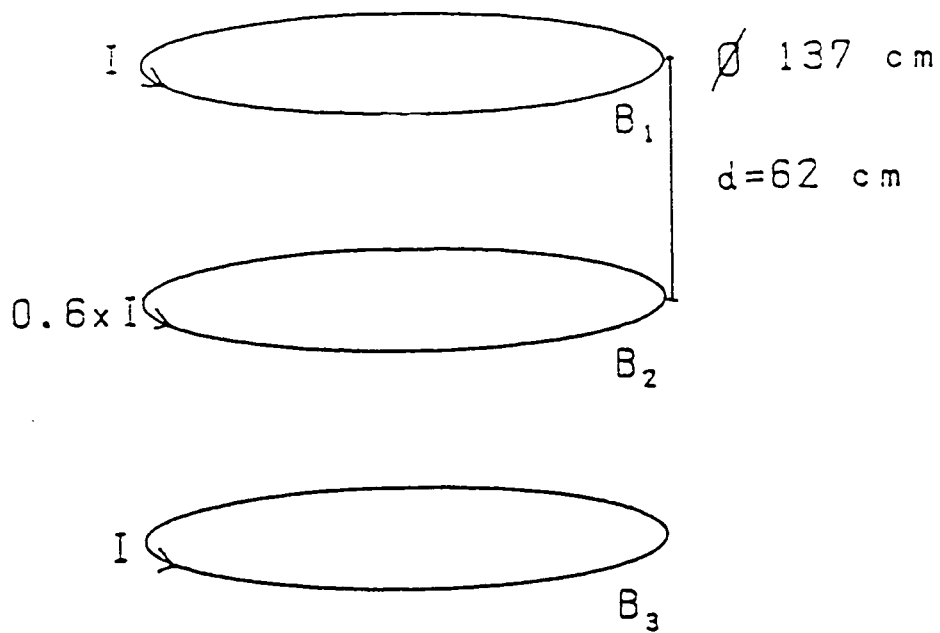


Figure VII-18 : Ensemble de bobines pour le champ B_0 .

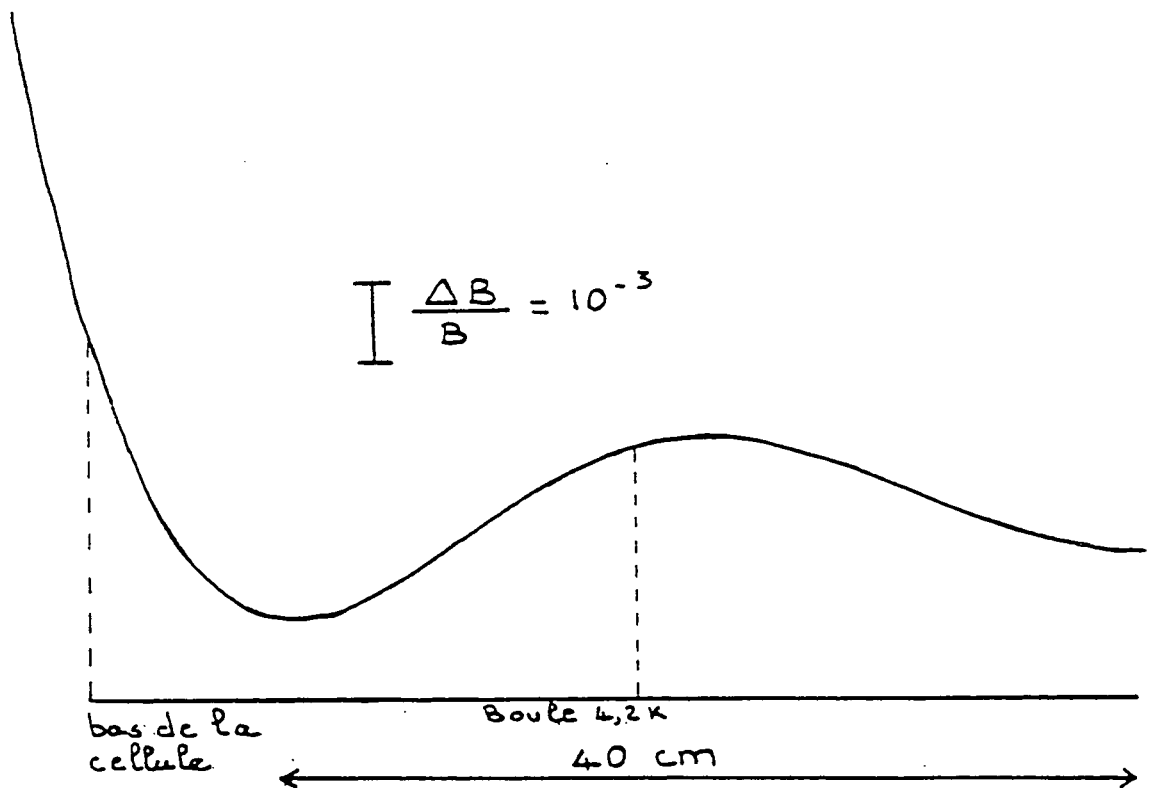


Figure VII-19 : Variation de B_0 sur l'axe des bobines.

(figure VII-19). Cette valeur est en tous cas comparable aux gradients de champ créés par l'environnement magnétique de l'expérience ($\sim 10^{-3}$ Gauss/cm).

b) Les bobines de gradients de champ

Nous avons vu dans le paragraphe VII-B.3 toute l'importance que prenait l'homogénéité du champ B_0 sur la cellule expérimentale, dans la mesure du temps de diffusion de l'aimantation. Nous pouvons améliorer cette homogénéité d'un facteur 100 grâce à trois paires de bobines disposées à proximité de la cellule expérimentale, fixées sur la paroi externe du récipient contenant les vases cryogéniques (figure VII-20). Ces bobines sont destinées à créer des gradients de champ longitudinal par rapport aux trois directions de l'espace. L'ajustement des courants qui les parcourent permet de compenser partiellement les gradients de champs présents sur la cellule. Nous pouvons espérer les ramener à une valeur inférieure 10^{-5} Gauss par cm.

Signalons que ces bobines peuvent également servir à créer des gradients de champ contrôlés, lors des mesures d'échos de spins.

c) Les bobines d'induction et de détection

Equipage RMN homogène

Le dispositif est représenté schématiquement sur la figure VII-21

- Bobines d'induction

Nous avons vu que l'aimantation du liquide se devait d'être homogène juste après une impulsion de Radiofréquence. Cette uniformité doit s'étendre sur la totalité du liquide polarisé. Une différence d'aimantation entre la zone d'étude (la partie isotherme de la cellule) et le reste du volume polarisé créerait des courants d'aimantation entre ces deux parties, et perturberait notamment les mesures d'échos de spins. Aussi avons-nous choisi une paire de bobines inductrices de grande taille (en forme de rectangle de longueur 9 cm et de largeur 3,5 cm), composées d'un enroulement de fil de cuivre d'une dizaine de tours chacune et connectées en série. La variation du champ B_1 sur la cellule expérimentale n'excède pas quelques pour cent.

- Bobines de détection

Elles sont constituées de deux enroulements de fils de cuivre, connectés en série, d'environ 200 tours chacun. Leur efficacité de détection est maximum pour une aimantation

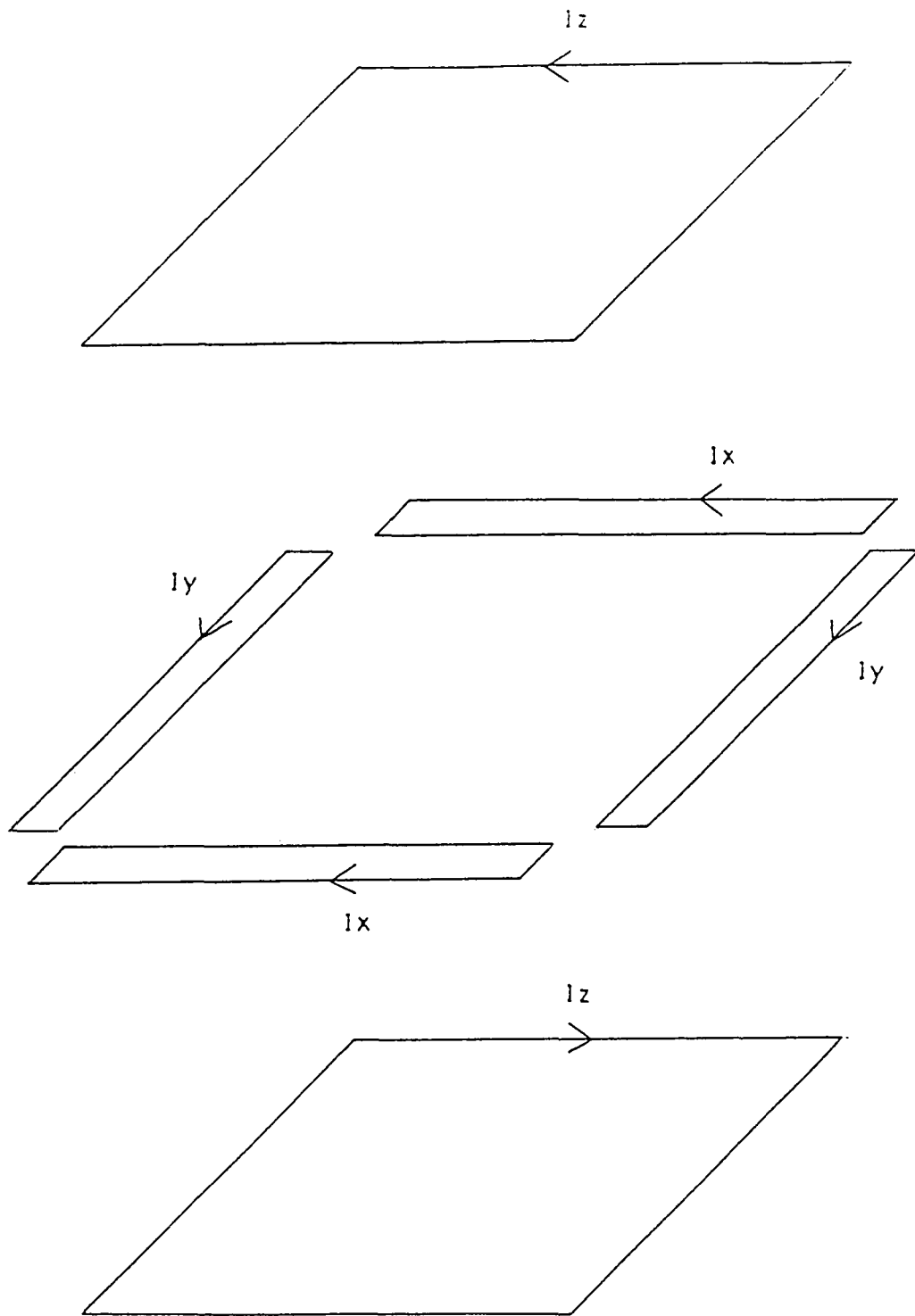
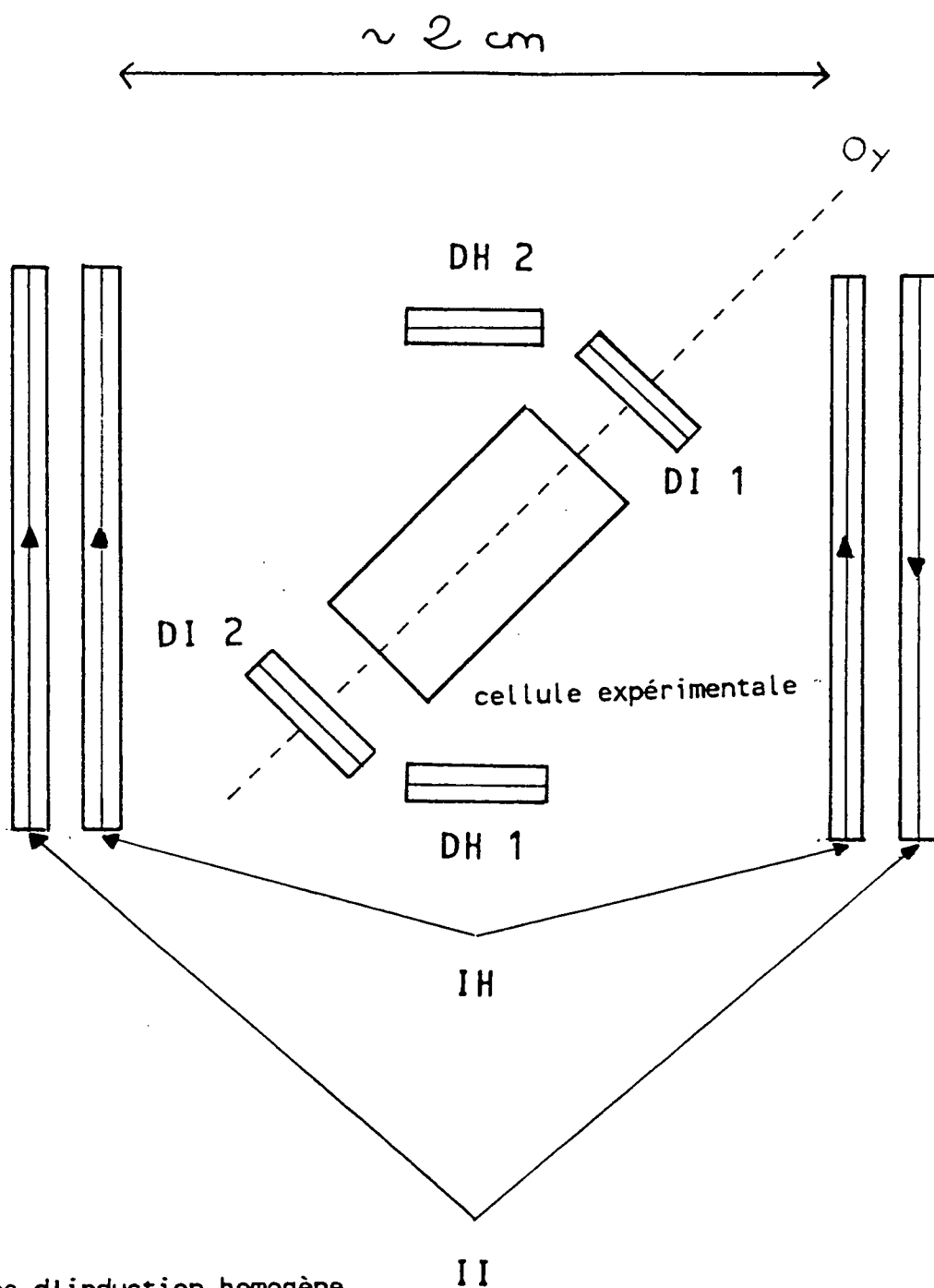


Figure VII-20 : Ensemble de bobines pour les gradients de champ.



- IH : bobines d'induction homogène
- II : bobines d'induction inhomogène
- DH : bobines de détection homogène
- DI : bobines de detection inhomogène

Figure VII-21 : Dispositif RMN.

tation homogène.

Les bobines réceptrices sont disposées perpendiculairement aux bobines d'induction dans le but de minimiser le signal provenant de l'impulsion de radio-fréquence. Toutefois, le signal parasite restant peut saturer la chaîne de détection. Pour pallier ce problème, nous avons placé une petite bobine de compensation dans le plan des bobines réceptrices [6]. L'amplitude et la phase du courant qui y circule (produit par le même générateur que celui utilisé pour le circuit inducteur) sont réglées pour annuler exactement le flux capté lors de l'impulsion RF. Le circuit utilisé est représenté sur la figure VII-22.

EQUIPAGE RMN INHOMOGENE

Il est analogue à l'équipage homogène, si ce n'est que les deux paires de bobines sont connectées en opposition. Le circuit d'induction permet de préparer essentiellement le mode d'aimantation transverse inhomogène représenté sur la figure VII-10. Les modes d'indices supérieurs (en d'autres termes les modes où l'aimantation transverse s'annule plusieurs fois le long de l'axe des bobines inductrices) sont en principe également excités, mais avec des poids plus faibles.

L'axe des bobines réceptrices fait un angle d'environ 45° par rapport à l'axe des bobines inductrices (voir figure VII-21). Cette position minimise le flux capté lors d'une impulsion RF. La détection de ces bobines est maximum pour le mode de diffusion le plus lent.

d) Le circuit de détection

Une manière classique d'augmenter le rapport signal sur bruit consiste à détecter le signal à travers un circuit résonnant. Une capacité située hors du cryostat est connectée en parallèle avec les bobines réceptrices. Sa valeur est ajustée pour que la fréquence de résonance du circuit coïncide avec la fréquence de précession des spins. Si on appelle q le facteur de surtension du circuit, et e le signal induit aux bornes des bobines réceptrices alors le signal capté vaut qe . Une surtension $q=20$ représente une valeur typique de nos expériences.

La figure VII-23 indique les divers éléments de la chaîne électronique de détection (nous avons également représenté le circuit d'induction). Au bout de cette chaîne, les signaux électriques reçus sont convertis en données numériques, enregistrées et traitées par

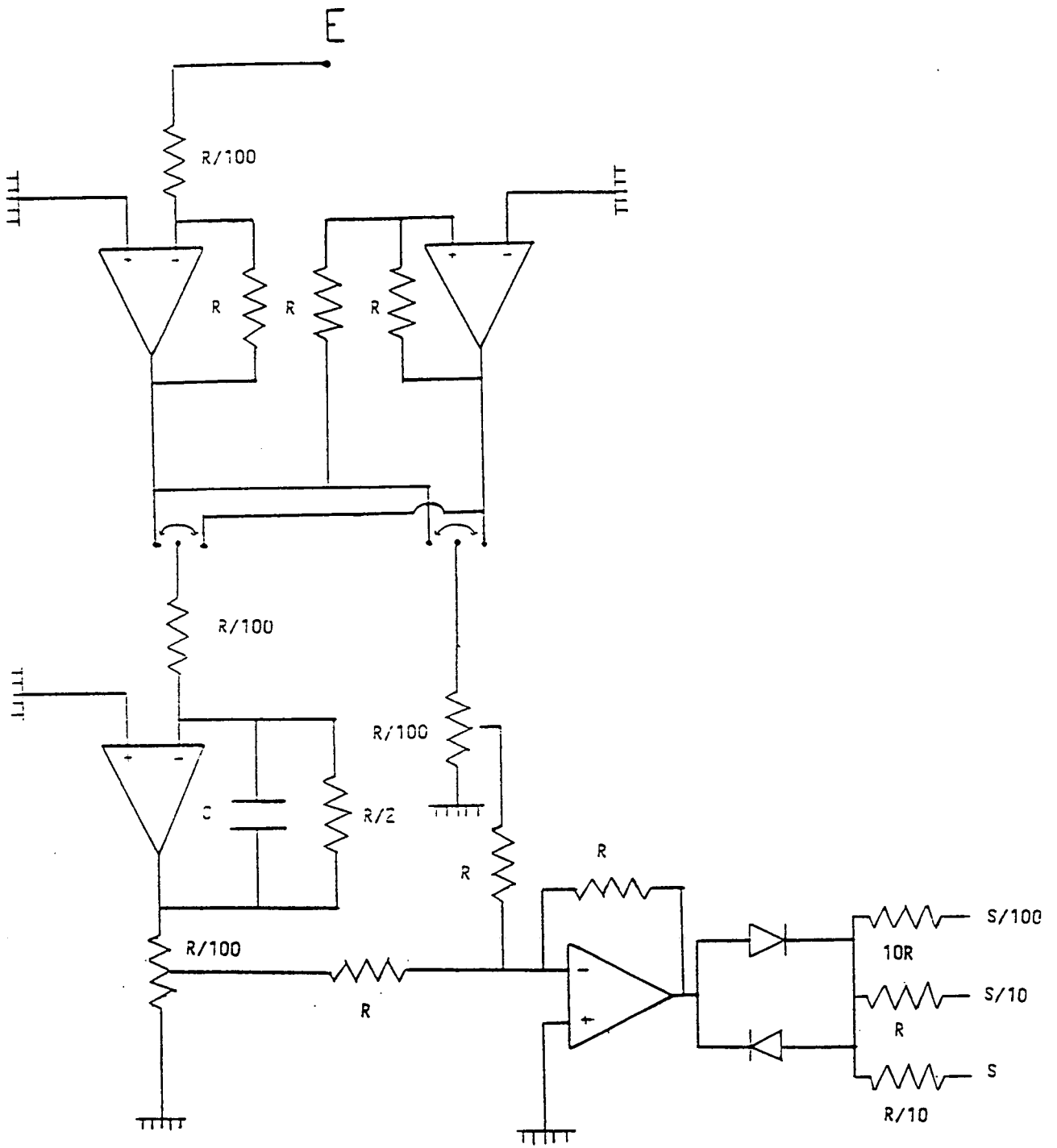


Figure VII-22 : Schéma du circuit déphaseur actif utilisé pour la compensation du signal radio-électrique parasite capté ($R=100\text{ k}\Omega$, $C=4\text{ nF}$)

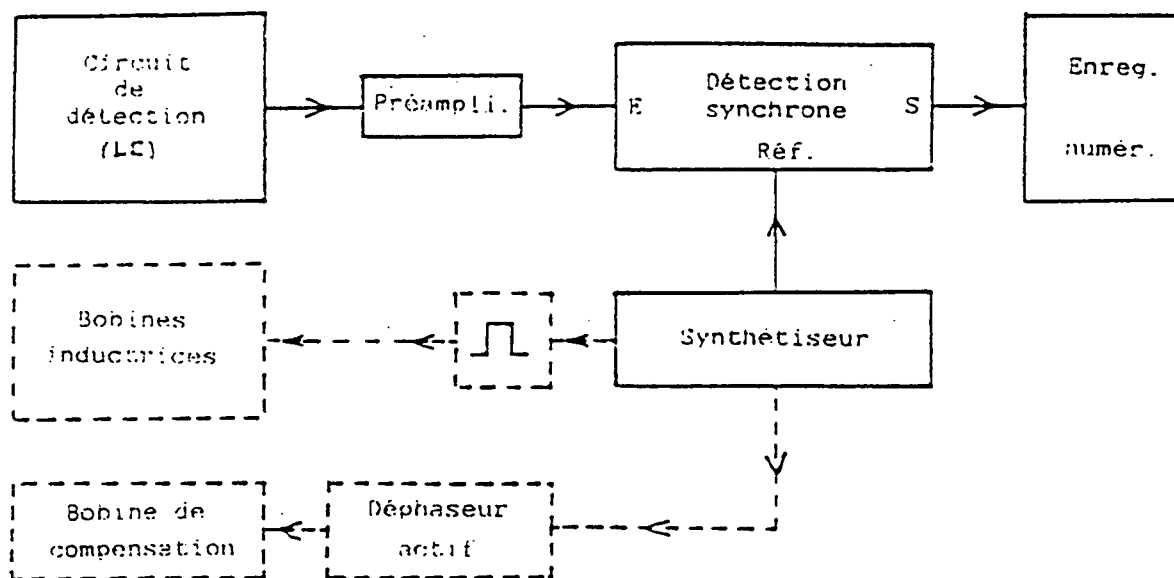


Figure VII-23 : Circuit électronique d'induction et de détection

Préampli : préamplificateur modèle 566 de HMS Elektronik

Ref : référence Détection synchrone
modèle 3961B de ITHACO

Enreg. numérique : enregistrement numérique (sur ordinateur)

: porte

synthétiseur : TOELLENR TOE 7710

un micro ordinateur. En outre, celui-ci gère le fonctionnement des parties électroniques du montage expérimental.

VII -C.3) ETUDE DES SIGNAUX DE PRECESSION LIBRE DE L'AIMANTATION

En premier lieu, nous désirons savoir quel est le taux de polarisation maximum du mélange que l'on obtient en utilisant la méthode du paragraphe VII-A.3. Pour cela, nous procédons ainsi qu'il est décrit dans cette partie : l'aimantation initialement parallèle à B_0 est basculée d'un angle α grâce à une impulsion du champ B_1 . Le signal de précession libre de l'aimantation transverse ainsi créée est transformé en données numériques puis stocké par un micro-ordinateur. La figure VII-24a représente un spectre typique correspondant à un petit angle α de basculement ($\alpha \simeq \pi/13$). Les oscillations rapides que l'on peut observer correspondent à un battement entre la fréquence de précession des spins et la fréquence de référence de la détection synchrone. Pour tirer des renseignements intéressants sur les caractéristiques de la solution, il est avantageux d'étudier le spectre en fréquence du signal de précession (transformée de Fourier du signal en temps réel).

Après un tel traitement, on obtient un spectre tel celui de la figure VII-24b. Nous pouvons remarquer qu'il comporte deux raies centrées sur deux fréquences différentes. En vertu de ce que nous avons présenté dans le paragraphe VII-B.1, chacune de ces fréquences correspondrait à la fréquence de précession des spins contenus respectivement dans le cylindre vertical et horizontal de la cellule. Supposons qu'un gradient de champ statique soit appliqué sur l'une des directions de l'espace, par exemple celle définie par l'axe du cylindre horizontal de la cellule. Les spins contenus dans ce volume en des points différents doivent par conséquent précesser à des fréquences différentes, d'où élargissement de leur raie associée. Nous avons vérifié expérimentalement une telle modification. En outre, lorsque l'aimantation est basculée d'un angle $\pi/2$, les deux raies disparaissent au profit d'un seul pic (figure VII 25b), suggérant ainsi l'annulation du champ démagnétisant comme prévu dans le paragraphe VII-B.1. Nous allons donc pouvoir appliquer le formalisme développé dans cette partie. D'après la formule VII-4,

$$\Delta\omega = \frac{3}{4}\gamma\mu_0 \chi \mathcal{N}_A \rho \mu_n M$$

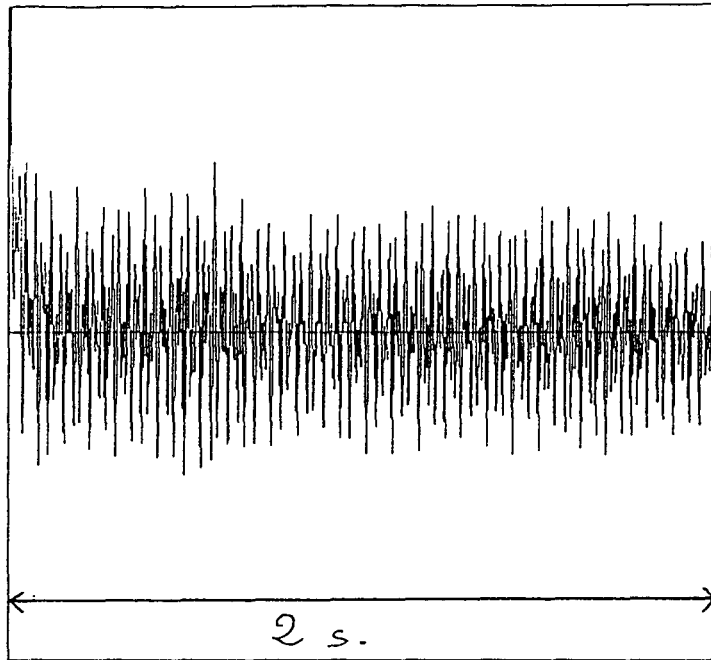


Figure VII-24a : Signal de précession libre de l'aimantation du mélange, pour un faible angle de basculement ($\alpha \simeq \pi/13$) (composante en phase avec le signal de référence de la détection synchrone)

Temps d'acquisition des données : 2 s

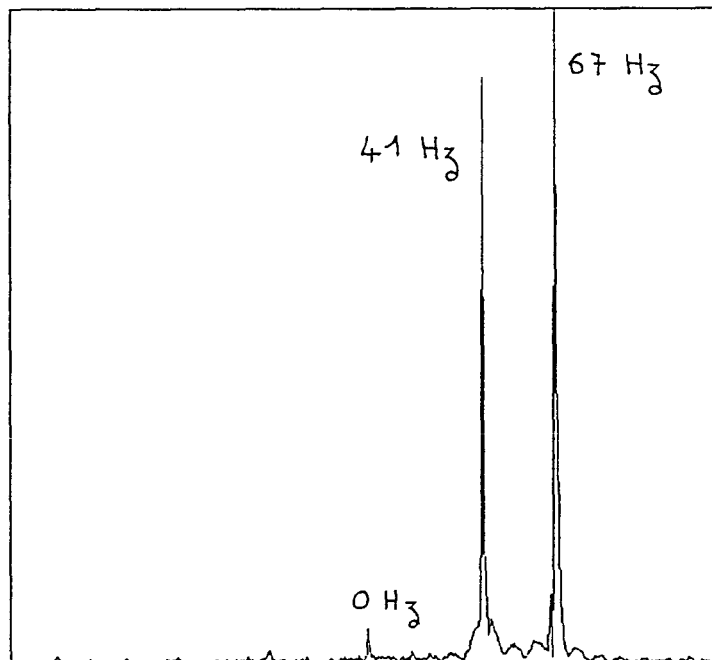


Figure VII-24b : Transformée de Fourier du signal en temps réel.

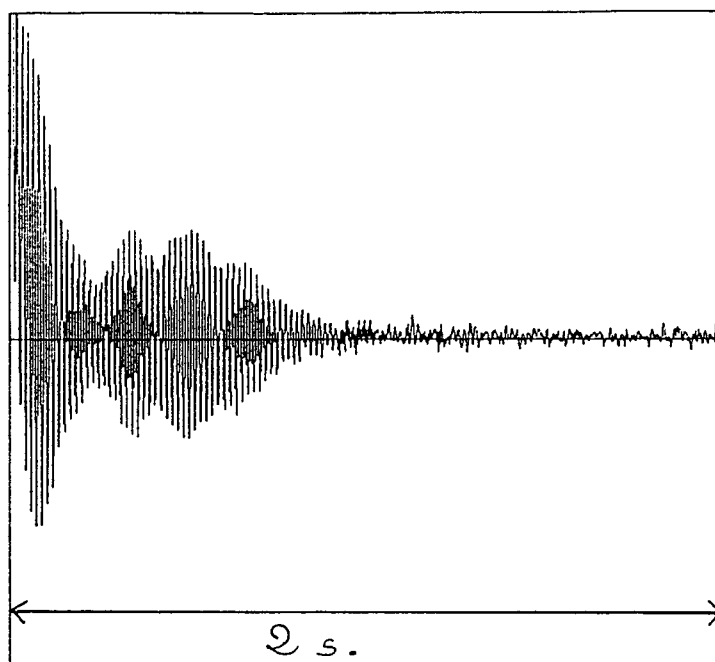


Figure VII-25a : Signal de précession libre de l'aimantation du mélange, pour un angle de basculement $\pi/2$ (composante en phase).

Temps d'acquisition des données : 2 s

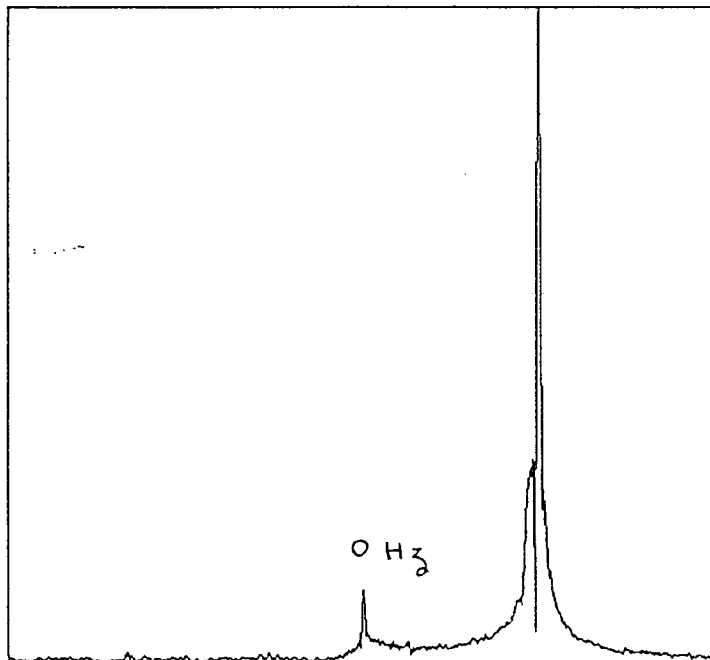


Figure VII-25b : Transformée de Fourier du signal en temps réel.

Pour le signal de la figure VII-24, $\Delta\omega \simeq 26$ Hz. Les conditions expérimentales de température et de pertes thermiques sont identiques à celle présentée de la paragraphe VII-C.1 : la solution est à environ 470 mK, et contient de l'ordre de 2,3 % d'atomes d' ^3He . De VII-4, on déduit un taux de polarisation $M \simeq 16\%$. C'est en fait la valeur maximum qu'il ait jamais été observé dans un mélange aussi concentré en ^3He . Il s'agit en tout cas d'un des meilleurs résultats obtenus pour une solution diluée. Nous pensons qu'il peut être encore amélioré, car les conditions expérimentales de préparation du mélange polarisé n'étaient pas idéales :

* La pression du gaz lors du pompage optique était trop importante.

* L'enduit d'hydrogène n'est probablement pas homogène dans les régions froides de la cellule, car sa procédure de fabrication a été réalisée beaucoup plus rapidement que la durée théorique nécessaire (plusieurs heures).

Nous présenterons dans le chapitre VIII les modifications apportées à notre cellule expérimentale dans le but d'augmenter le taux de polarisation de la solution. Néanmoins, nous avons déjà observé un certain nombre de phénomènes intéressants.

VII -C.4) RELAXATION DE L'AIMANTATION

a) Relaxation longitudinale

Après préparation du mélange polarisé, nous avons observé qu'au bout d'environ une heure, l'aimantation n'avait diminué que de quelques pour cent par rapport à l'aimantation initiale. Ceci suggère que le taux de relaxation nucléaire longitudinal T_1 est supérieur à une heure, à comparer aux 5 min. mesurées dans l' ^3He pur dans la même gamme de température [6]. La théorie prévoit effectivement un rallongement de T_1 dans une solution diluée en ^3He par rapport à une solution concentrée [60]. Rappelons que la décroissance de l'aimantation longitudinale provient de deux processus : d'une part la dépolarisation des atomes contre les parois de la cellule, et d'autre part la dépolarisation causée par l'interaction magnétique entre dipôles. La dilution de l' ^3He a pour conséquence de diminuer l'effet global de cette dernière. Il est possible que la relaxation de l'aimantation soit ici dominée par l'effet des parois. Les valeurs de T_1 sont néanmoins suffisamment importantes pour que nous ayons tout le temps nécessaire pour étudier notre mélange polarisé. En premier lieu, nous pourrions nous dispenser d'employer un interrupteur de chaleur : par la suite la cellule et la boîte à mélange

seront directement connectées par une dizaine de fils de cuivre de 0,2 mm de diamètre. La raison pour laquelle nous avons utilisé si peu de fils est la suivante : nous verrons au cours du prochain paragraphe que nous avons observé des signaux RMN de caractéristiques inattendues. Afin de vérifier que ceci n'était pas dû à l'environnement de la cellule, nous avons donc limité la quantité de métal dans son voisinage (le cuivre serait en effet susceptible de perturber soit le basculement, soit la détection de l'aimantation).

b) Durée de vie du signal de précession de l'aimantation transverse

Considérons à nouveau les spectres correspondant au signal de précession libre des spins après respectivement un faible angle de basculement (voir figure VII-24) et un angle $\pi/2$ (voir figure VII-25). Suite à une impulsion de $\pi/2$, l'aimantation transverse s'annule en typiquement 1 s. En chaque point, cette aimantation évolue selon la formule VII-17.

$$\mathcal{M}_{\perp} = \mathcal{M}_0 e^{-i\gamma(a+by)t} e^{-(1/3)D_0\gamma^2 b^2 t^3}$$

Pour une solution telle que $x=2,3\%$ et $T = 470$ mK, nous prendrons $D_0 \simeq 2,510^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ (valeur moyenne des résultats tirés de la référence [96]). Nous avons vu que $b \simeq 10^{-3} \text{ Gauss/cm}$. Par conséquent

$$e^{-1/3 D_0 \gamma^2 b^2 t^3} \simeq e^{-0,06 t^3}$$

Le signal de précession libre de l'aimantation moyennée sur l'échantillon devrait donc perdre un facteur 10 au bout d'un temps maximum de 3 s (il peut s'annuler avant à cause de la "défocalisation" des spins). Les caractéristiques du signal obtenu après un basculement de $\pi/2$ de l'aimantation sont alors compatibles avec ce qui était prévu. Ce n'est pas du tout le cas pour les faibles angles de basculement.

Reprenons la formule VII-15 :

$$\frac{d\mathcal{M}_{\perp}}{dt} = D_0 \Delta \mathcal{M}_{\perp} - i\gamma(a+by)\mathcal{M}_{\perp} - \frac{1}{2}i\gamma\mathcal{M}_z(B_x + iB_y)$$

Compte tenu des dimensions de notre cellule ainsi que du gradient de champ b qui y règne, nous pouvons négliger la contribution du dernier terme devant celle du second.

La résolution de VII-15 se ramène alors à celle effectuée pour un angle $\pi/2$ ($\mathcal{M}_z = 0$).
En définitive :

$$\mathcal{M}_\perp \simeq \mathcal{M}_0 \sin\alpha e^{-i\gamma(a+by)t} e^{-(1/3)D_0\gamma^2 b^2 t^3}$$

\mathcal{M}_0 aimantation avant l'impulsion

α angle d'impulsion ($\sim \pi/13$, dans les expériences présentées ici)

En principe, le temps caractéristique d'annulation de l'aimantation transverse ne devrait pas dépendre de l'angle de basculement. Or nous n'avons pas du tout observé un tel comportement, car dans le cas des petites impulsions, l'aimantation pouvait persister jusqu'à des temps aussi longs que 20 s (figure VII-26).

Ce caractère exceptionnel de la décroissance de l'aimantation a également été observé lorsque l'on prépare et détecte une aimantation inhomogène. En vertu de ce que nous avons présenté dans le paragraphe VII B2, le signal induit aux bornes des bobines ne peut que décroître (voir équation VII-11). On peut remarquer sur la figure VII-27 que le signal n'a pas du tout la forme prévue : la partie inhomogène de l'aimantation oscille au cours du temps. Il nous faudra donc avant tout comprendre ce qui se passe dans le liquide avant de pouvoir mesurer D_0 . Nous allons voir que la technique alternative de mesure de D_0 par échos de spins ne peut également pas être mise en oeuvre pour le moment. Nous n'avons en effet pas réussi, pour des raisons physiques encore inconnues, à observer un signal d'échos.

c) Echos de spins

Rappelons que nous avons prévu de mesurer le coefficient D_0 de diffusion de l'aimantation par échos de spins. Il nous faut donc déterminer l'intensité et la durée d'impulsion de radiofréquence qui permet un basculement de $\pi/2$ de l'aimantation. Nous savons que l'aimantation totale de la solution tend vers zéro à la suite d'une telle impulsion. Après précession de l'aimantation, une deuxième impulsion d'angle $\pi/2$ (en fait $(\pi/2)-\epsilon$) doit donc révéler une aimantation nulle. En pratique, nous avons trouvé les valeurs d'intensité et de durée d'impulsion telles que ceci soit vérifié. Si maintenant on retourne l'aimantation d'un angle $\simeq \pi$, l'aimantation longitudinale doit être conservée. Pour cela, on peut penser qu'il suffit de doubler simplement soit l'intensité, soit la durée de l'impulsion correspondant à un angle $\pi/2$. Or en pratique, nous avon-

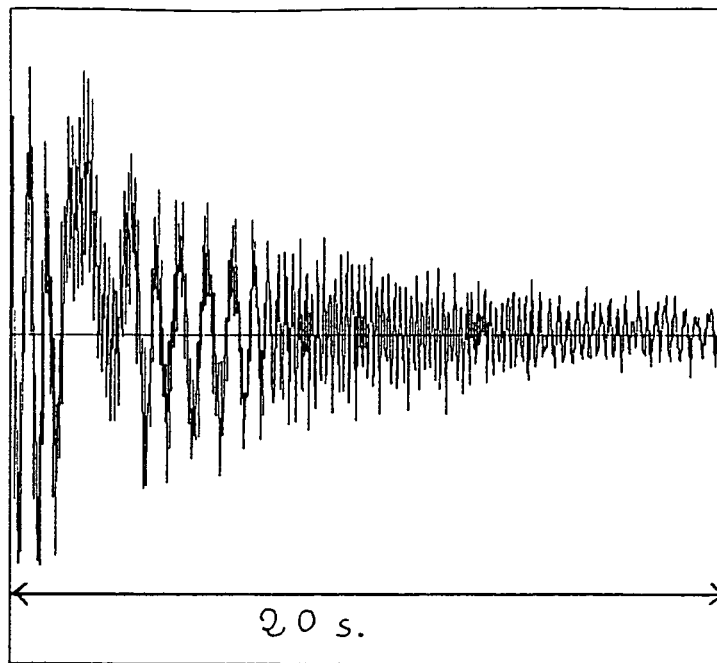


Figure VII-26 : Durée de vie du signal de précession libre de l'aimantation transverse ($\alpha \simeq \pi/13$).
Temps d'acquisition des données : 20 s.

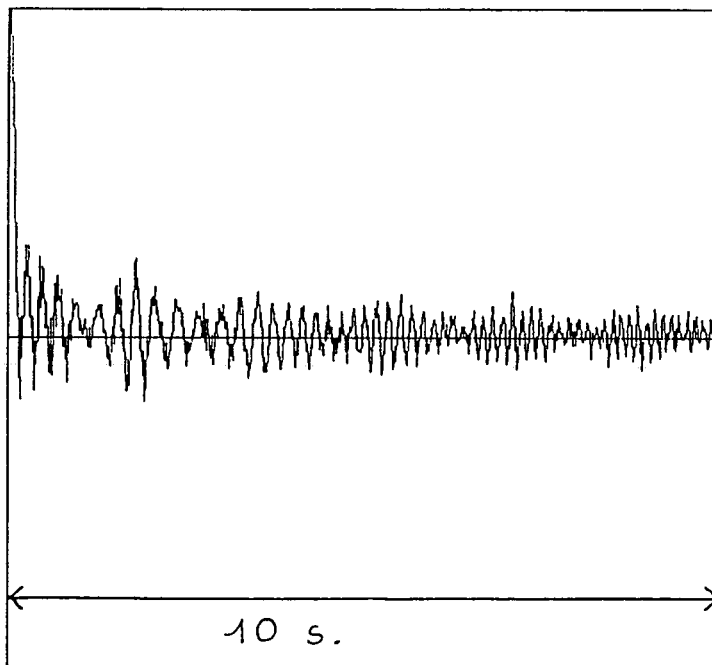


Figure VII-27 : Evolution de la composante inhomogène de l'aimantation transverse après une impulsion inhomogène ($\alpha \simeq \pi/13$).
Temps d'acquisition des données : 10 s
Taux de polarisation du mélange : 7 %.

s observé une forte atténuation de l'aimantation longitudinale après un basculement d'angle π . Ce comportement exceptionnel montre une fois de plus que le système étudié est gouverné par des processus non triviaux. Nous avons malgré tout tenté d'observer un écho de spin. Même en essayant diverses valeurs de gradients de champ magnétique, nous n'avons jamais observé un tel signal. Nous soupçonnons que c'est la nature même de la solution qui est en cause. Nous avons en effet vérifié qu'il était possible d'avoir des échos de spins pour de l' ^3He liquide pur polarisé par la seule présence du champ statique B_0 . Il ne s'agit donc pas d'un problème technologique où lié à une carte de champ magnétique défavorable sur la cellule.

CONCLUSION

Nous avons démontré qu'il était possible de préparer par pompage optique une solution polarisée à basses températures : le taux maximum de polarisation observé est de l'ordre de 16 % pour une température estimée à environ 470 mK. Les expériences de mesure du potentiel chimique de l' ^4He n'ont pu se dérouler comme nous l'avions prévu. Un certain nombre de phénomènes physiques ont en effet été découverts.

Citons tout d'abord la valeur exceptionnellement longue de la durée de vie du signal de précession de l'aimantation transverse, pour de faibles angles de basculement. Ce résultat rappelle ceux obtenus par Nunes et al [19]. Néanmoins, leurs conditions expérimentales étaient fort différentes des nôtres, puisque les mélanges ont été étudiés dans une gamme de température allant de 4 mK à 400 mK, et pour des concentrations en ^3He au maximum de l'ordre de 0,2 %. L'origine physique des très longues durées de vie du signal de précession n'est peut être alors pas identique.

Les solutions polarisées se révèlent donc être un système physique extrêmement riche, que l'on soit dans le régime dégénéré ou non. Une étude d'un tel système dans une large gamme de conditions expérimentales (température, concentration, taux de polarisation) nous aiderait très certainement à l'appréhender d'un point de vue théorique. Pour cela, il nous faut avant tout supprimer l'effet Hevac observé dans la cellule étudiée dans ce chapitre. Il constitue une nuisance à plusieurs titres : il limite d'une part le taux maximum de polarisation du mélange, et d'autre part amène des pertes thermiques importantes sur le liquide, dont la température ultime est supérieure à celle de l' ^3He liquide pur. Nous verrons dans le prochain chapitre que l'effet Hevac peut être supprimé

grâce à l'introduction d'un anneau de césium dans la partie froide de la cellule. Comme ${}^4\text{He}$ ne mouille pas le césium [21], celui-ci arrêtera la montée du film superfluide le long des parois, mouvement à l'origine de l'effet Hevac.

Pour une meilleure compréhension de ce phénomène physique intéressant, nous avons développé un modèle susceptible de l'expliquer (voir annexe). Les résultats donnés par nos calculs, sont tout à fait conformes à ce qui a été observé expérimentalement. Il apparaît dès à présent que l'effet Hevac est un phénomène bien compris d'un point de vue théorique.

CHAPITRE VIII

ESSAI D'UN DEUXIEME TYPE DE CELLULES : LES CELLULES A CESIUM

VIII - A INTERET DU CESIUM

VIII -A.1) RAPPEL : “MOUILLAGE D'UNE SURFACE”

Une goutte de liquide déposée sur la surface d'un solide, s'étale ou non selon que le liquide mouille ou ne mouille pas le solide. La limite entre ces deux comportements est définie de la façon suivante : il existe un angle de contact α entre un plan tangent à la surface du liquide et la surface du solide (figure VIII-1). On dit que le liquide mouille le solide lorsque α est nul, et qu'il ne le mouille pas pour toute autre valeur.

Le phénomène de mouillage dépend essentiellement de la compétition entre deux propriétés physiques :

- * les forces de cohésion au sein du liquide (tendance au non mouillage)
- * l'attraction du solide envers le liquide (tendance à l'étalement du liquide, par conséquent au mouillage).

L' ^4He était considéré jusqu'à très récemment comme un liquide mouillant tous les matériaux. Or en 1991, Cheng et al [100] ont émis l'hypothèse que les métaux alcalins (Rubidium, Césium...) pouvaient constituer une exception à ce comportement universel. Afin de vérifier le non-mouillage des alcalins par l'hélium, un certain nombre d'expériences ont été entreprises dans trois laboratoires différents. Elles se divisent en trois catégories.

* Taborek et al [101] utilisent une micro-balance à Quartz, dont la surface est recouverte du métal alcalin à tester. La simple pesée de la quantité d' ^4He sur l'alcalin permet d'en déduire le mouillage ou non de la surface.

* Ketola et al [102] mettent en oeuvre une technique de troisième son. Le troisième son est une onde se propageant à la surface d'un film d' ^4He qui peut être comparée à la houle se propageant à la surface de l'eau. Le film d' ^4He est réparti sur une surface dont une portion est recouverte d'alcalin. Son “mouillage” “ou non mouillage” peut être décelé grâce à l'étude du 3ème son, dont la propagation serait en effet perturbée, voire impossible, dans le cas où l'hélium ne mouille pas l'alcalin.

* La troisième méthode ayant été mise en oeuvre au sein de notre groupe par P.J. Nacher et al [21], je m'y attarderai plus longuement. Son principe repose sur le processus de transport de chaleur par un film superfluide. Le schéma de l'expérience est représenté sur la figure VIII-2. L' ^4He est contenu dans un tube scellé dont l'une des

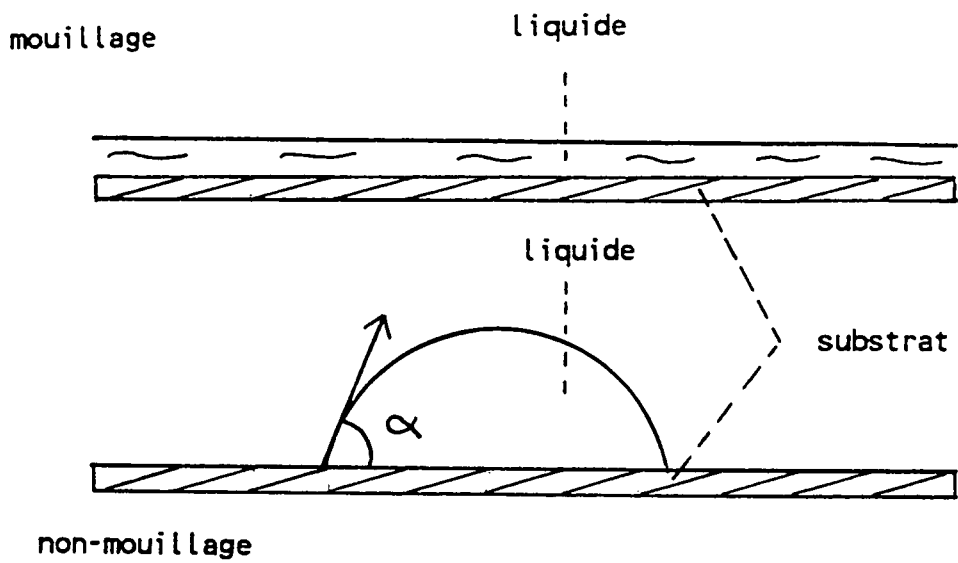


Figure VIII-1 : Définition du mouillage d'une surface.

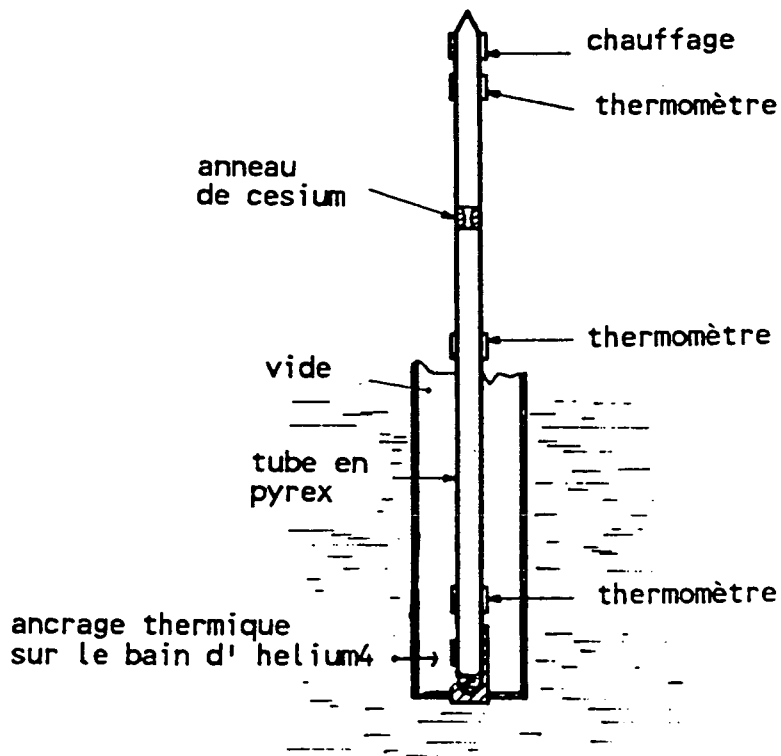


Figure VIII-2 : Dispositif expérimental pour la mise en évidence du "non-mouillage" du césium par l'⁴He.

extrémités est en contact thermique avec un bain d' ^4He . Le bain est maintenu à une température inférieure à la température de transition superfluide de l' ^4He par pompage sur sa vapeur saturante. Un anneau d'alcalin tapisse la surface interne du tube sur quelques millimètres, le séparant ainsi en deux régions distinctes. Lorsqu'on applique une puissance thermique Q sur l'extrémité supérieure du tube, s'instaure un processus de transport de la chaleur déjà décrit dans le cas de l'interrupteur thermique du chapitre IV. Grâce au phénomène d'évaporation - condensation du film superfluide présent sur les parois du tube et si l'anneau de césium ne gêne pas la progression du film, deux thermomètres placés de part et d'autre de l'anneau doivent indiquer la même température. Si en revanche, l' ^4He ne mouille pas le césium, celui-ci doit interrompre la montée du film, et par là même diminuer considérablement la conductivité thermique effective due au processus évaporation-condensation. On doit alors observer une différence de température de part et d'autre de l'anneau d'alcalin.

VIII -A.2) RESULTATS POUR LE CESIUM

A l'aide de la technique transport de chaleur par le film superfluide, P.J. Nacher et al [21] ont clairement démontré que l' ^4He ne mouillait pas le césium pour la gamme de température dans laquelle ils ont effectué leurs mesures : $1 \text{ K} < T < 1,7 \text{ K}$. Ceci a été confirmé par les travaux des autres groupes. Toutefois la reproductibilité et la qualité des résultats des mesures semblent dépendre fortement des conditions de préparation du dépôt de césium. La méthode employée au laboratoire, qui jusqu'à présent a donné d'excellents résultats est la suivante :

Une cellule en pyrex est soigneusement dégazée pendant plusieurs heures afin d'évacuer la majeure partie des impuretés qu'elle contient. Après introduction de l'hélium et du césium, elle est définitivement scellée. Le césium est ensuite facilement refondu afin de le placer à l'endroit désiré dans le tube.

La technique que nous venons de présenter s'adapte facilement à la procédure de réalisation de nos propres cellules. Elle doit permettre de former un anneau de césium qui jouera un rôle de "coupe film", et qui par conséquent supprimera l'effet Hevac observé dans la cellule du chapitre VII. Nous allons maintenant voir comment modifier la cellule pour s'accomoder de la présence du césium.

VIII -A.3) OPTIMISATION DE LA FORME DE LA CELLULE

La présence de césium dans la cellule interdit l'utilisation d'hydrogène comme enduit cryogénique. En effet, ne pouvant contrôler exactement sa position dans la cellule, il est probable que le césium s'en trouverait recouvert, et perdrait de ce fait sa propriété de non mouillage par l'hélium. Or nous avons déjà mentionné que sur le verre nu, le temps de relaxation nucléaire longitudinale varie de 1h à $T=77$ K, pour n'être plus que d'1 s à 25 K. Par conséquent, nous avons essayé de limiter au maximum l'étendue des surfaces froides de la cellule, en supprimant la boule à 4,2 K qui ne peut plus assurer un rôle de stockage de l'aimantation.

Comme dans le cas de la cellule décrite dans le chapitre VII, nous avons prévu d'effectuer la procédure de pompage optique alors que pratiquement tout l' ^4He est condensé dans la partie inférieure de la cellule. Dans cette partie là, nous avons vu que la présence du liquide superfluide assure un long temps de relaxation pour les atomes d' ^3He qui sont dissouts. Dans ces conditions, il reste malgré tout une zone de la cellule, située entre le sommet de la colonne d' ^4He et le passage vers l'extérieur de la boîte à vide, dont la surface est à priori extrêmement relaxante ($T < 4,2$ K). Lors de la mise en place de l'anneau de césium, cette surface se trouve avoir été mise en contact avec le césium au moins une fois. Il reste par conséquent un certain nombre d'atomes de césium adsorbés. On parle alors de verre "césié". G. Tastevin [103] a montré que le temps de relaxation nucléaire sur une telle surface était rallongé par rapport à du verre nu. Nous comptons sur cette propriété pour limiter la relaxation nucléaire dans cette partie de la cellule, d'extension d'ailleurs modeste.

La dernière interrogation concerne la relaxation nucléaire sur le césium lui-même. G. Tastevin [103] a observé un temps de relaxation nucléaire T_1 de l'ordre de 5 min. pour du liquide ^3He pur à 500 mK sur du césium métallique. Ceci indique que la présence du métal alcalin n'introduit pas de relaxation paroi dramatique, susceptible de rendre impossible toute expérience. Cette valeur de T_1 est la même que dans le cas où l'hydrogène est utilisé comme enduit cryogénique, et correspond au temps de relaxation dipole-dipole du liquide "bulk".

VIII - B DESCRIPTION DE LA CELLULE

VIII -B.1) CARACTERISTIQUES

La géométrie adoptée en définitive pour la cellule est représentée sur la figure VIII-3. Son allure générale est du même type que la cellule étudiée dans le chapitre VII. Sa différence réside d'une part dans l'absence d'une boule à 4,2 K, et d'autre part dans des diamètres différents de sa zone expérimentale. Ceux-ci ont été optimisés à l'aide du modèle du chapitre VI, dans le but de permettre une étude du liquide à différentes concentrations en ^3He pour une même composition du mélange initialement mis dans la cellule lors de son remplissage. En outre, les parois en pyrex de la zone en contact thermique avec la boîte à mélange sont plus minces que pour la cellule du chapitre VII. La contribution de ce matériau à l'impédance thermique est alors moins importante, ce qui doit réduire d'autant la température minimum de la solution.

De manière maintenant classique, notre cellule est équipée de divers thermomètres et chauffage nécessaires à la caractérisation physique du mélange. L'anneau de césium est placé dans un renflement du diamètre intérieur de la cellule. En effet, il est impossible de former un tel anneau dans un capillaire de 1 mm de diamètre par simple manipulation d'une goutte de métal fondu : celui-ci a tendance à systématiquement former un bouchon qui obstrue totalement le tube (figure VIII-4).

Remplissage de la cellule

Il s'agit d'introduire dans la cellule d'une part le mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$, d'autre par le césium nécessaire à la fabrication du coupe-film. La procédure se déroule de la manière suivante :

Considérons le volume V représenté sur la figure VIII-5. Ce volume est composé de deux zones a et b initialement isolées l'une de l'autre par une mince paroi en pyrex ("queue de cochon"). Le volume a contient un aimant, tandis que le césium est dans la partie b. Le volume V est relié à la cellule à la cellule au point S (voir figure VIII-5). L'ensemble est nettoyé selon la méthode habituelle décrite au chapitre II (pompage, étuvage, dégazage...). Une fois cette procédure terminée, nous brisons la paroi séparant b de c avec l'aimant. On distille ensuite le césium pour l'amener dans le renflement R. Pour ce faire, il suffit que cette partie soit le point le plus froid de la cellule, à une température T inférieure à la température de condensation du césium. Puis nous

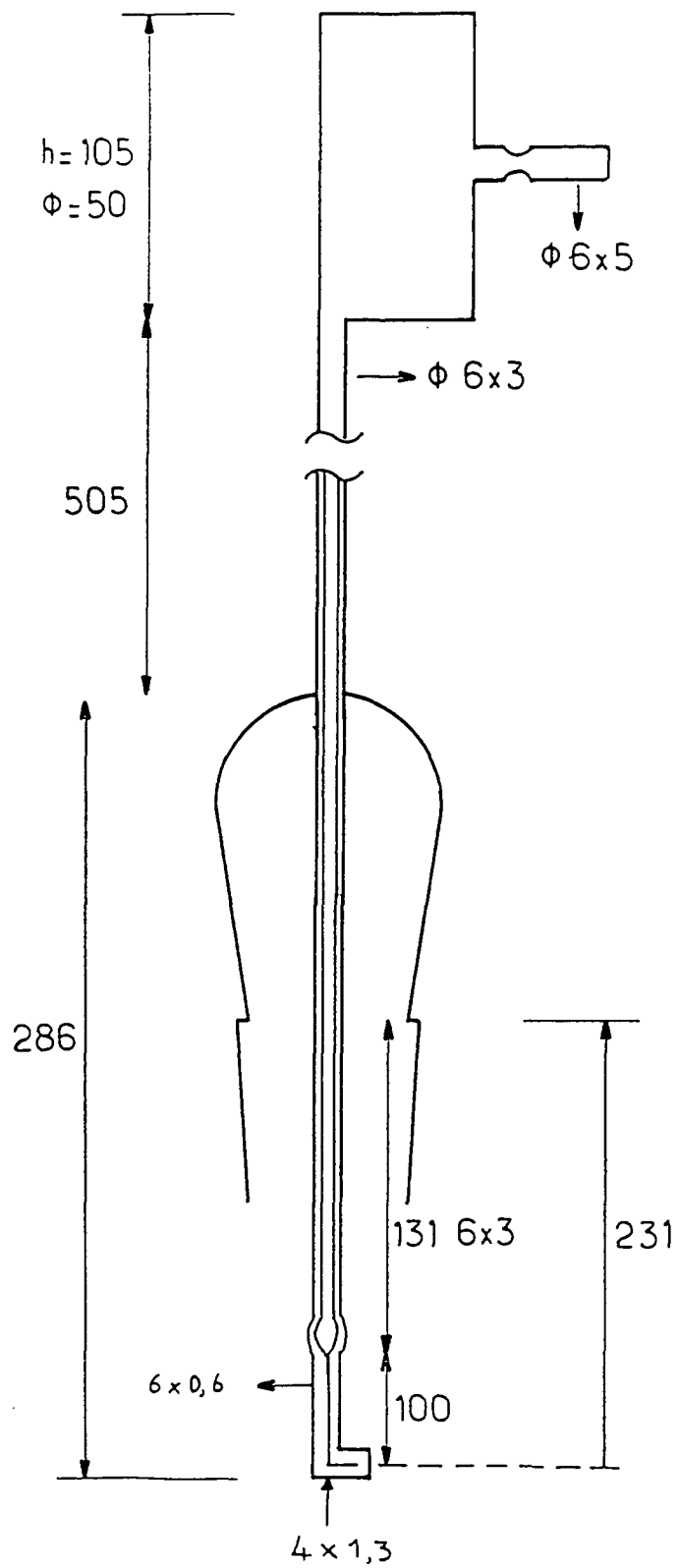


Figure VIII-3 : Allure de la "cellule à césium".

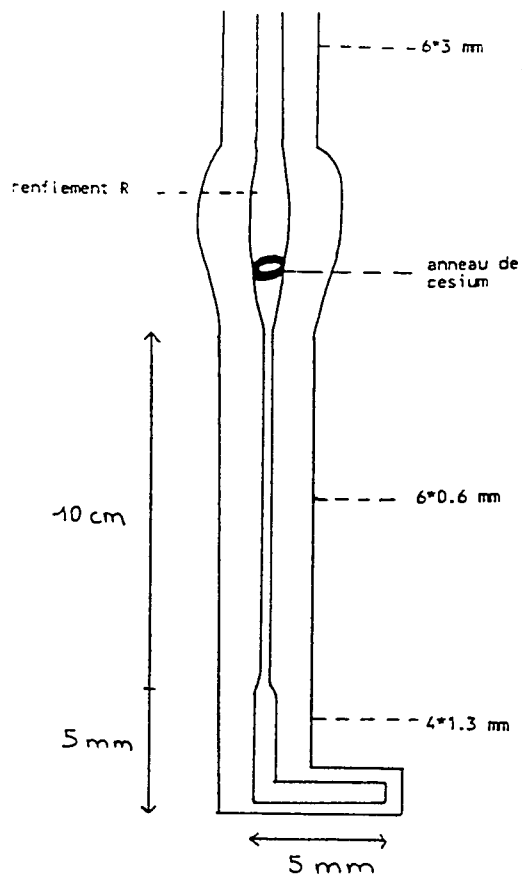


Figure VIII-4 : Détail de la cellule expérimentale.

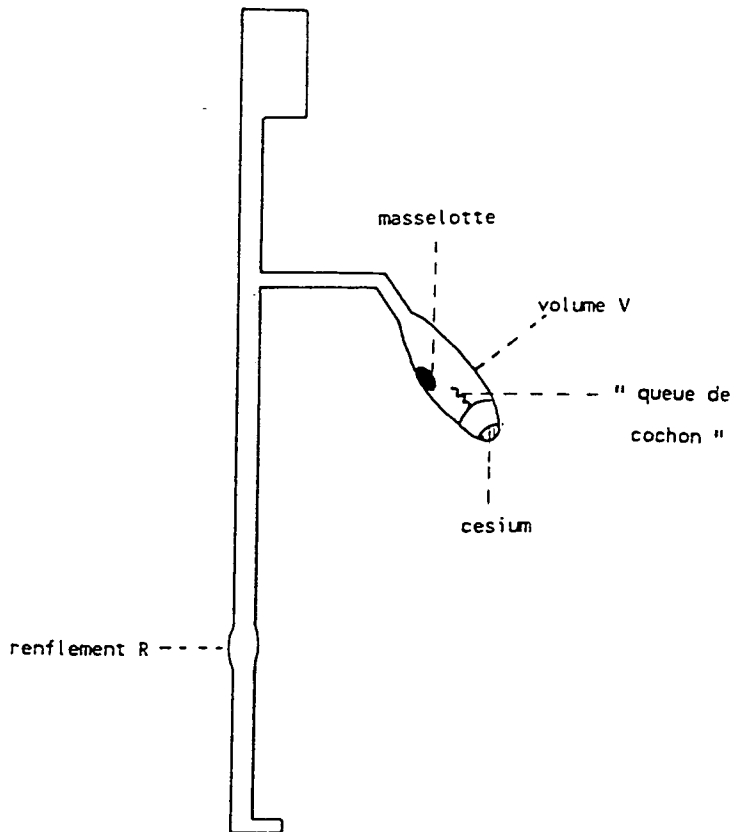


Figure VIII-5 : Allure de la cellule avant son remplissage à l'hélium.

scellons au point S pour retirer le volume V qui d'une part ne rentre pas dans nos dispositif expérimental, et d'autre part contient encore l'aimant. L' ^3He et l' ^4He sont ensuite introduits dans la cellule qui est définitivement scellée.

VIII -B.2) PROFIL DE TEMPERATURE ET DE CONCENTRATION LE LONG DE LA CELLULE

La cellule contient les quantités respectives d' ^3He et de d' ^4He suivantes :

$$N_3 = 5,4 \cdot 10^{-5} \text{ mole}$$

$$N_4 \simeq 1,1 \cdot 10^{-3} \text{ mole}$$

Ceci correspond à une pression à 300 K de 4,8 torrs pour l' ^3He , et d'environ 100 torrs pour l' ^4He . A l'aide du modèle du chapitre VI, nous pouvons déduire le profil de température et de concentration dans le mélange condensé, en fonction de la puissance thermique qui lui est appliquée. Nous pouvons en particulier connaître la plage accessible de concentration en ^3He dans la zone froide, en fonction de sa température. La concentration minimum est obtenue pour une puissance thermique telle que la zone d' ^4He s'étende sur un centimètre environ (pour pouvoir y disposer deux thermomètres). La concentration maximum est limitée soit par la concentration saturante d'une solution diluée, soit par une puissance thermique maximum que nous fixerons à 100 μW .

En définitive, nous pouvons varier la concentration entre 10 % et 10,6 % à 200 mK, et 10 % et 15 % à 500 mK. Dans tous les cas, nous nous situons dans le régime dégénéré (voir figure III-5). Pour étendre l'étude au delà du régime dégénéré, il faudrait diminuer la quantité d' ^3He introduite dans la cellule lors de la procédure de remplissage.

Remarque

Par comparaison, la cellule du chapitre VII nous permettait d'étudier des solutions dont la concentration ne variait qu'entre 2,3 % et 3 % à une température minimum de l'ordre de 500 mK.

VIII -B.3) PREPARATION DE LA SOLUTION POLARISEE - DISCUSSION D'UNE PROCEDURE DE POMPAGE OPTIQUE

Reprenons l'idée développée dans le paragraphe VII-B.2 : le but est de trouver une gamme de température de la cellule pour laquelle pratiquement tout l' ^4He est condensé et peu d'atomes d' ^3He dissouts. Les résultats du modèle de VII-B.2 appliqué à cette cellule particulière sont représentés sur la figure VIII-6.

En dessous de 1 Kelvin, la phase gazeuse ne contient pratiquement que de l' ^3He dont la pression est inférieure à environ 1 torr. Ce sont là des conditions expérimentales favorables à un pompage optique efficace. L'inconvénient est que la proportion d' ^3He en phase gazeuse par rapport à la quantité d' ^3He dans la cellule ne dépasse pas 30% (maximum pour $T \simeq 1 \text{ K}$). Le taux de polarisation d'une solution préparée dans ces conditions serait au plus égale à 30 %, si on suppose d'une part que le gaz est aimanté à 100 % et d'autre part qu'il n'y a pas de relaxation nucléaire. Il semble donc plus avantageux de procéder au pompage optique pour une température de la cellule supérieure à 1 K. Ceci n'est évidemment possible que si le césium joue son rôle de coupe film (effet Hevac désamorcé). C'est effectivement le cas si le film ne comporte que de l' ^4He . Or G. Tastevin a montré que l' ^3He mouillait le césium [103], et c'est sans doute le cas pour les mélanges dont la concentration en ^3He dépasse 3 ou 4 % [104]. Fort heureusement, la quantité d' ^3He dissouts dans l' ^4He lors du pompage optique est suffisamment faible pour que le film rampant sur les parois de la cellule soit stoppé par le césium ($x_c < 3 \%$).

Après préparation du mélange polarisé et création d'une zone d' ^4He pur, l' ^3He se concentre dans les zones les plus froides. Par conséquent, le film montant au dessus de la colonne de mélange ne contient pratiquement que de l' ^4He , et est donc stoppé au niveau de l'anneau de césium. On s'attend alors à une réduction des pertes thermiques vers le mélange, et donc une température minimum inférieure à celle obtenue avec la cellule du chapitre VII.

En fait, le processus Hevac ne peut se déclencher que lors de la condensation de l' ^3He dans l' ^4He , quand transitoirement la concentration de la partie supérieure de la colonne de mélange est suffisamment élevée pour que le film qui s'élève au-dessus d'elle ne soit pas arrêté par le césium. Dans ce cas, le phénomène Hevac ne constitue pas une gêne, au contraire il accélère la condensation de l' ^3He en augmentant sa vitesse d'écoulement vers la zone de condensation.

x x x x x concentration du liquide
 * * * * * pression totale (torr)
 * * * * * fraction en pompage optique
 ■ ■ ■ ■ ■ P3/Ptotale

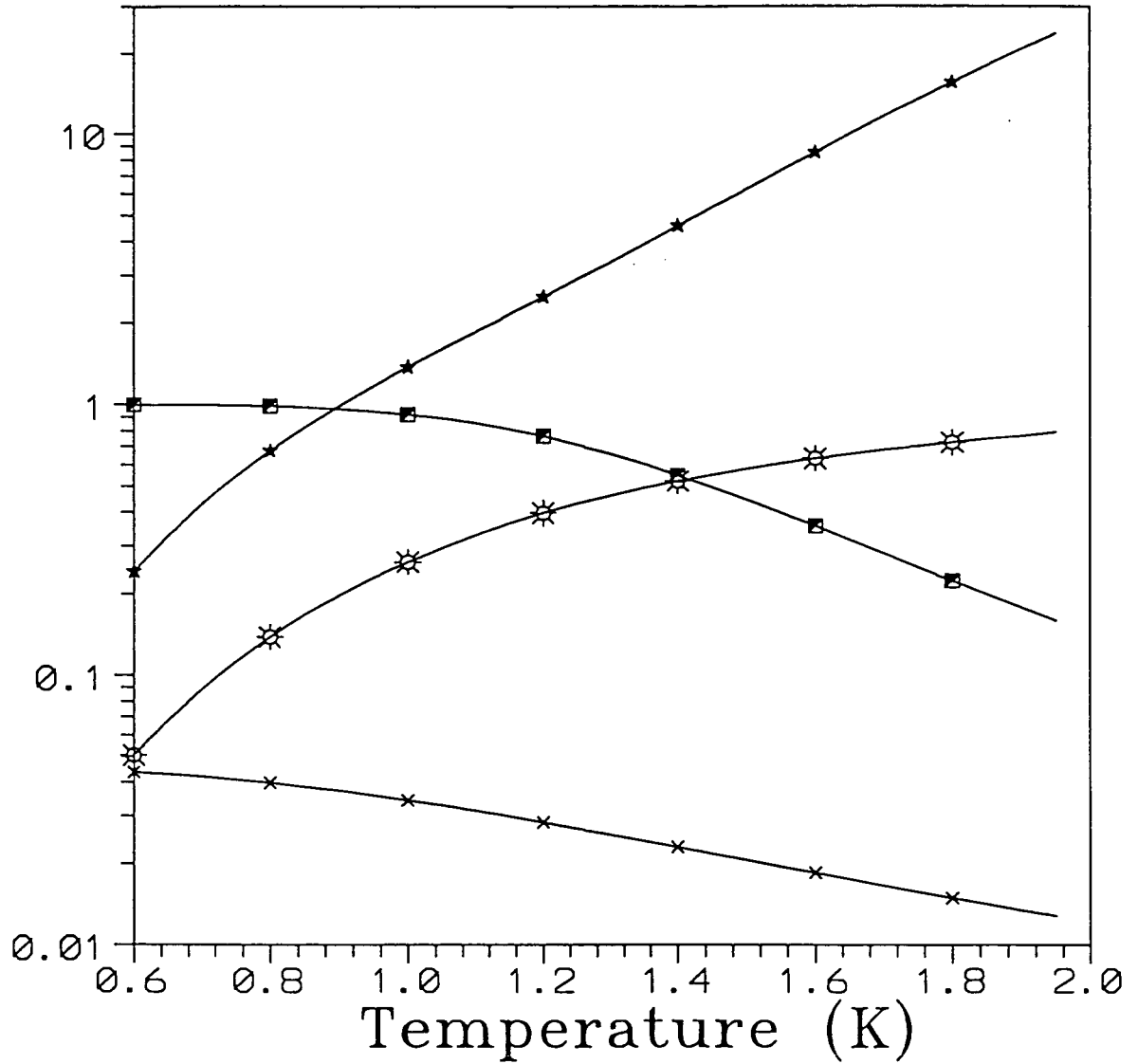


Figure VIII-6 : Conditions physiques régnant dans la cellule pour diverses températures de la cellule expérimentale.

VIII-C RESULTATS PRELIMINAIRES

La toute première constatation que nous ayons faite est la suivante : pour une température de la cellule expérimentale où en théorie la majorité de l' ^4He devait être condensée et la phase gazeuse constituée essentiellement d' ^3He , il n'y avait aucun signal optique d'aimantation. Nous en avons déduit que le processus Hevac était une fois encore amorcé. La raison est que le niveau du liquide n'atteint pas le césium. Il existe donc une partie du tube située entre le sommet de la colonne de mélange et l'anneau de césium où le processus Hevac peut avoir lieu. La différence avec la cellule du chapitre VII est que le film s'évapore à une hauteur moins importante, et donc de température moins élevée. Les pertes thermiques doivent donc être plus faibles par rapport au cas où la cellule ne contient pas de césium. Nous avons en effet constaté que la température du liquide était de 230 mK contre 450 mK pour la cellule du chapitre VII.

Pour aimanter l' ^3He , nous avons dû recourir à la méthode déjà utilisée dans le chapitre VII, c'est-à-dire réchauffer suffisamment la cellule expérimentale pour désamorcer l'effet Hevac ($T > 2\text{K}$). L'inconvénient est que en l'absence de boule à 4,2 K, la pression dans le volume à 300K est trop forte pour un pompage optique efficace ($P > 20$ torr). Aussi avons nous observé un très faible taux de polarisation du liquide (quelques pourcents). Le point positif est que les temps de relaxation nucléaires longitudinaux semblent être aussi longs que dans la cellule du chapitre VII. La présence de césium n'introduit donc pas de relaxation nucléaire supplémentaire, ce qui confirme les résultats que G. Tastevin a obtenu avec de l' ^3He pur à 500 mK [6].

L'étape suivante a donc consisté à raccourcir notre cellule (en coupant sa partie inférieure) pour que le niveau du liquide monte jusqu'au bulbe renfermant l'anneau de césium. Nous avons mesuré une température du liquide de l'ordre de 190 mK. Les mesures d'absorption optique ont montré qu'il était effectivement possible de trouver une température de la cellule expérimentale permettant le pompage optique, preuve que l'effet Hevac est supprimé grâce au rôle de coupe film du césium. En revanche, il a été impossible d'observer le moindre signal dû à l'aimantation. On peut penser que le fait d'avoir chauffé fortement la cellule pour la sceller (à l'aide d'un chalumeau) a eu pour conséquence d'extraire un certain nombre d'impuretés magnétiques du volume du pyrex.

Le travail qui fait suite à ce mémoire consistera alors à étudier une cellule sem-

blable à celle décrite dans le § B, mais dont la longueur est réduite afin que la surface du mélange condensé se situe dans le bulbe. Il suffit donc de fabriquer une nouvelle cellule ayant une partie capillaire assez courte pour vérifier les excellents résultats attendus quant à la température minimum du mélange et son taux de polarisation. Nous n'avons pas pu poursuivre ce travail dans le cadre de cette thèse par faute de temps.

CONCLUSION

PERSPECTIVES

Nous avons donc construit et fait fonctionner un nouveau montage expérimental remplissant les objectifs que nous nous étions fixés : il permet de refroidir des échantillons d'hélium polarisé par voie optique, jusqu'à une température estimée pour l'instant à 200 mK.

Cette limite, qui d'ailleurs semble être encore améliorable, étend considérablement la gamme des températures accessibles aux expériences sur l'hélium 3 polarisé, précédemment bornées à environ 500 mK par le cryostat à ^3He utilisé par notre équipe. Le nouveau cryostat à dilution entièrement mis au point et construit au laboratoire, remplit les conditions nécessaires à la conservation de la polarisation nucléaire de l'hélium 3 orienté par pompage optique dans une zone extérieure à température ambiante. Il a en effet de bonnes caractéristiques d'amagnétisme et ses constantes de temps de refroidissement sont courtes : il faut environ 15 min. pour que la température de la boîte à mélange passe de 4,2 K à 50 mK. Si nécessaire, on peut refroidir l'échantillon en un temps encore plus court (~ 1 min.) grâce à un interrupteur de chaleur à niveau d' ^4He superfluide que nous avons mis au point. C'est en utilisant ce dernier perfectionnement que nous avons pu liquéfier du gaz d' ^3He polarisé et le refroidir jusqu'à environ 250 mK; la polarisation nucléaire restante à cette température était initialement de 30 %, avant sa décroissance sous l'effet de la relaxation en un temps que nous estimons à 1 minute. Le liquide polarisé ainsi obtenu à partir du gaz peut être comparé à celui que fournit une fusion rapide d' ^3He solide polarisé par la méthode de "force brute". Cette méthode alternative développée à Leyden et à Grenoble, fournit en fait un fluide assez différent du nôtre : si d'une part sa température est nettement plus basse (typiquement 100 mK contre ici 250 mK), d'autre part sa pression est beaucoup plus forte (quelques dizaines d'atmosphères contre ici quelques torrs ou moins). Bien des propriétés physiques diffèrent pour les deux fluides, à commencer par leur densité, si bien que les effets de statistique quantique attendus dans les deux cas peuvent ne pas être les mêmes. L'avantage de la méthode de fusion est que les températures sont nettement plus basses qu'ici. Notons néanmoins que nous avons fabriqué du liquide polarisé à une température inférieure ou de l'ordre de sa température de Fermi, c'est-à-dire dans le domaine dégénéré où l'on peut prédire que les effets de statistique quantique liés à la polarisation deviennent grands. Nous pensons qu'il sera bientôt possible d'étudier les variations à la fois en fonction de M et de T de certaines propriétés macroscopiques de notre liquide polarisé. La plus accessible d'entre elles est sans doute le temps T_1

associé à la relaxation en volume de l'aimantation. Si nous n'avons pas effectué cette étude pour cette thèse, c'est que les valeurs de T_1 mesurées sont restées limitées par la relaxation sur les parois. La confection des enduits d'hydrogène sur les parois froides de la cellule s'est en effet révélée extrêmement délicate à maîtriser avec notre méthode de refroidissement via l'interrupteur de chaleur. Nos dernières expériences indiquent que le remplacement de l'hydrogène par du césium en très mince dépôt devrait beaucoup améliorer la qualité et la reproductibilité des enduits cryogéniques. Nous pensons que la mesure de T_1 en fonction de M et de T devrait être possible avec le montage actuel et déboucher sur d'intéressants problèmes théoriques. D'autres mesures en fonction de M peuvent être envisagées dans ce liquide (densité, propriétés de transport, ondes de spins etc...), mais elles supposent que nous trouvions d'abord un moyen commode pour augmenter le volume de nos échantillons (pour l'instant limité à quelques mm^3).

Le deuxième volet de ce travail de thèse concerne l'étude de solutions d' ^3He polarisé dans l' ^4He superfluide. Pour la première fois dans l'équipe de l'ENS, nous avons pu préparer des échantillons macroscopiques (environ 30 mm^3) de telles solutions polarisées à partir d'un mélange gazeux des deux isotopes pompés optiquement. Nous avons ainsi fabriqué un premier échantillon concentré à environ 2 % et polarisé à environ 16 %, la température étant estimée à 470 mK. Son temps de relaxation T_1 s'est révélé très long (supérieur à 1 heure), ce qui nous a permis de refroidir l'échantillon en même temps que le cryostat, sans la complication du passage par l'interrupteur de chaleur. Sur cette première cellule, nous avons fait toute une étude de l'aimantation par des techniques RMN. Les signaux RMN obtenus se sont révélés très riches et pleins de surprise. Ainsi nous avons observé, après des impulsions de basculement très brèves, des signaux de précession libre persistant pendant des temps très longs (jusqu'à 20 secondes). Nous n'avons pas encore bien compris l'origine physique de tels signaux, qui à bien des égards ressemblent aux échos de spin persistants observés par une équipe de Cornell travaillant sur des solutions de ce type. Cette étude devrait être reprise avec des échantillons mieux polarisés et mieux refroidis. Tant l'augmentation de M que l'abaissement de T devraient résulter de l'utilisation d'un anneau de césium dans la partie froide de la cellule, ainsi que l'indiquent les expériences préliminaires par lesquelles s'achève notre travail.

En effet, dans l'échantillon polarisé à 16 % initialement préparé, la valeur de M est restée limitée par les difficultés du pompage optique dans le mélange gazeux à température ambiante. Ceci résulte d'un effet appelé *hevac* que nous avons étudié en détail

par ailleurs. Ce phénomène est lié au brûlage du film d' ^4He superfluide sur les parois et a pour conséquence un appauvrissement en ^3He gazeux dans les zones à haute température de la cellule. Un anneau de césium jouant le rôle de coupe film devrait remédier à cet inconvénient. Il aurait aussi l'avantage de diminuer les pertes thermiques et donc d'abaisser la valeur de la température ultime du mélange.

Ces idées semblent bien confirmées par une étude préliminaire que nous avons effectuée sur une cellule à mélange d'isotopes, sans hydrogène mais comportant en revanche un anneau de césium. Nous avons pu la refroidir jusqu'à 200 mK environ, ce qui représente un abaissement de température considérable par rapport à la précédente cellule sans césium. De plus cette nouvelle cellule au verre "césié" a présenté des temps de relaxation T_1 aussi longs que la précédente, ce qui confirme que le césium constitue un enduit cryogénique au moins aussi bon que l'hydrogène. Enfin nous avons pu trouver des modes de fonctionnement y permettant une forte diminution de l'effet hevac. Nous pensons donc avoir montré que toutes les bonnes conditions peuvent être réunies pour préparer des solutions d' ^3He dans l' ^4He superfluide, à la fois bien polarisées (on espère $M \sim 50\%$) et assez concentrées ($x \sim$ quelques %), étudiables dans une gamme de température descendant au moins jusqu'à 200 mK. On atteint ainsi le régime dégénéré où les effets de statistique quantique deviennent marqués et intéressants. Nous avons mis au point une méthode permettant de mesurer le potentiel chimique μ_4 de l' ^4He en fonction de M , x et T . La détermination de M et x devrait résulter de deux mesures de RMN indépendantes. Pour l'instant nous n'avons pas pu mener cette étude jusqu'au bout à cause de la complexité des signaux d'écho de spin obtenus. Nous pensons qu'elle sera reprise sous peu dans de meilleures conditions, c'est-à-dire avec des enduits de césium, sans effet hevac et avec de fortes polarisations.

D'autres méthodes alternatives pour déterminer la concentration x sont de toute façon envisageable, comme par exemple des mesures capacitives. Il faut remarquer que les solutions que nous préparons ainsi ont des caractéristiques différentes de celles obtenues par la "force brute" dans d'autres équipes : les taux de polarisation sont élevés, même pour de fortes concentrations. De plus, les paramètres x et M sont indépendants, ce qui n'est pas le cas avec la technique de "force brute" . Comme pour l' ^3He pur nous avons donc, avec les solutions d' ^3He dans l' ^4He , préparé une nouvelle génération de fluides quantiques polarisés dont nous pensons que l'étude devrait se révéler fructueuse.

Compression of ^3He by Refluxing ^4He :
I - A Model for Computing HEVAC Effects in ^3He - ^4He Mixtures.

M. CORNUT and P.J. NACHER.

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne[†]
Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, F75231 Paris, France.

P.A.C.S. 67.60, 47.25Q, 51.10

This article is the first of a series of three concerning the effect of a flow of gaseous ^4He on the concentration distribution of ^3He atoms in the presence of a superfluid film. We present here a simple model that allows to take into account hydrodynamic effects in the gas phase (diffusion and viscosity), and local thermodynamic equilibrium with a superfluid film. Results are derived and discussed in the simple case where a heat flow is sustained along a cylindrical tube. It drives a superfluid flow in the film, and a corresponding ^4He counterflow in the vapour. The pressure, temperature, ^3He concentration, and film thickness profiles are computed. Over a wide range of conditions, a dramatic ^3He concentration enhancement is obtained in the colder regions, associated with a large temperature increase and a spectacular film thinning in the hotter parts.

1. INTRODUCTION

Liquid helium has the property of wetting most materials, so that superfluid ^4He films tend to cover all cold surfaces. In addition, superfluid helium can be set in motion by thermal gradients, flowing towards regions of higher temperature. This well known effect can cause some trouble in cryogenic design, in situations where tubes or pumping lines lead the film towards high temperature regions. The evaporation of the film thus results in a pressure difference with respect to the colder parts, and drives some vapour refluxing. Such a convective process provides an efficient heat transfer mechanism, due to the rather large latent heat of condensation of liquid helium.

Although often considered a nuisance, vapour refluxing can actually play a useful part in a cryogenic set up. For instance, various heat pipe designs can be used to make thermal contacts at low temperatures, and the model developed in this article can in particular be applied to calculate the thermal impedance of ^4He heat pipes. In fact, other fluids can be used in heat pipes as well,^[1] and for instance ^3He heat pipes can be operated at lower temperatures.^[2] In the latter situations, the flow of the non superfluid liquid is simply driven by gravity, so that hot regions have to sit below colder ones. Another example of a useful function performed by refluxing ^4He vapour is the efficient confinement of hydrogen atoms obtained using a HElium VApor Compressor (HEVAC).^[3,4] The same effect has been observed for ^3He atoms in a ^3He - ^4He mixture,^[5-7] and the model we describe here has been derived as an attempt to analyze the compression effects obtained in various situations. The calculations we have performed make use of some simplifying assumptions that will be discussed below, but could easily be extended to more complex situations. However, we believe that all the important physical features of realistic systems are included in this model, and can be more conveniently discussed for the simple situation considered in this article.

2. THE MODEL

The elementary physical system we want to model consists of a container filled with a

mixture of ^3He and ^4He (^3He could be replaced by atomic hydrogen with minor changes). We shall assume the temperature to be low enough so that part of the helium is condensed, and a superfluid film covers all surfaces.

For the sake of simplicity, we shall assume in this article that the shape of the container is a tube of constant circular section. Different geometrical arrangements will be considered in a subsequent article. Let us also assume that all transverse gradients of temperature, pressure and concentration can be neglected, so that one deals with a one-dimensional problem. We shall discuss in more detail in § 2.2 the range of validity of this approximation, but let us mention that it greatly simplifies all calculations and allows to derive simple analytical results.

In the frame of the present model, the elementary system we consider will be fully described given the values taken by the temperature $T(z)$, the pressure $P(z)$, the composition of the gas phase, characterized by the ^3He molar fraction $x(z)$, and the flow velocities $v_3(z)$ and $v_4(z)$ of each isotope, at any point z along the tube. Let us now derive the equations relating these various functions.

2.1. Local transport equations

First, two equations can be derived from the local hydrodynamics of a mixture of gases. In all the following, the density is assumed to be high enough for the mean free path between collisions to be small compared to all relevant dimensions or distances. Let $V_3(\mathbf{r})$ and $V_4(\mathbf{r})$ be the local thermally averaged velocities of ^3He and ^4He atoms in the gas phase (we explicitly consider here the spatial variation of the local flow velocities with the distance from the tube axis). The usual methods used to compute transport coefficients, applied to a binary mixture of gases, allow in particular to compute the pressure tensor. It has the same expression as that of a pure gas, that would have a velocity $V_0(\mathbf{r})$, equal to the local mass weighted average of $V_3(\mathbf{r})$ and $V_4(\mathbf{r})$.^[8] The effective shear viscosity η of the mixture can also be obtained using standard approximation methods,^[9] and is in general a function of concentration and temperature. Just as for a simple fluid, we thus have a Poiseuille flow along a tube of circular section with diameter d . The velocity distribution

for $V_0(\mathbf{r})$ is parabolic, maximum on the axis and vanishing on the wall. The pressure gradient is related to the average velocity $v_0(z)$ of the mass flow (the average of $V_0(\mathbf{r})$ over a tube section) by:

$$\nabla_z P = -32\eta v_0/d^2. \quad (1)$$

The other relation that can be derived from local conservation laws is the generalized Fick's law of diffusion:^[9]

$$V_4(\mathbf{r}) - V_3(\mathbf{r}) = \frac{D_{34}}{x(1-x)} \left\{ \nabla x + \left(x - \frac{m_3 x}{m_3 x + m_4(1-x)} \right) \nabla \text{Log} P + k_T \nabla \text{Log} T \right\}. \quad (2)$$

In this equation, D_{34} is the mutual diffusion coefficient, m_3 and m_4 are the masses of ^3He and ^4He atoms, and k_T is a dimensionless coefficient, known as the thermal diffusion ratio. Making use of the assumption that x , P and T depend only on z , so that the right hand side of equation (2) is a constant over any section of the tube, we may explicitly compute both local velocities $V_3(\mathbf{r})$ and $V_4(\mathbf{r})$. They differ from the usual parabolic Poiseuille flow by a constant, and thus are non zero at the wall. In order to derive a one-dimensional model, let us make use of the fact that equation (2) still holds for the averaged values $v_3(z)$ and $v_4(z)$ of local flow velocities $V_3(\mathbf{r})$ and $V_4(\mathbf{r})$ (the average is taken over the section of the tube). Expressing v_0 as a function of v_3 and v_4 , and setting m_3 and m_4 to the values for ^3He and ^4He respectively, equations (1) and (2) finally become:

$$\nabla_z P = -\frac{32\eta}{d^2} \frac{3xv_3 + 4(1-x)v_4}{4-x} \quad (3)$$

$$\nabla_z x + \frac{x(1-x)}{4-x} \nabla_z \text{Log} P + k_T \nabla_z \text{Log} T = \frac{x(1-x)}{D_{34}} (v_4 - v_3) . \quad (4)$$

2.2. Boundary conditions

The physical system we model is depicted in figure 1. The tube of constant circular section we have considered so far is terminated by two isothermal end volumes H (hot) and C (cold). The lower end C is partly filled with bulk liquid, and is heat sunk to a refrigerator at a temperature T_C . At the upper end H, a constant heating power \dot{Q} is applied, to be transported to the cold end. We assume both end volumes C and H to have a large enough surface area, so that vapour and liquid (or film) can be considered to be in thermodynamic equilibrium despite the net condensation (in C) or evaporation (in H) of atoms. More precisely, we shall assume that any effective thermal impedance in the end volumes is negligible compared to that of the central part of the tube (as derived below).

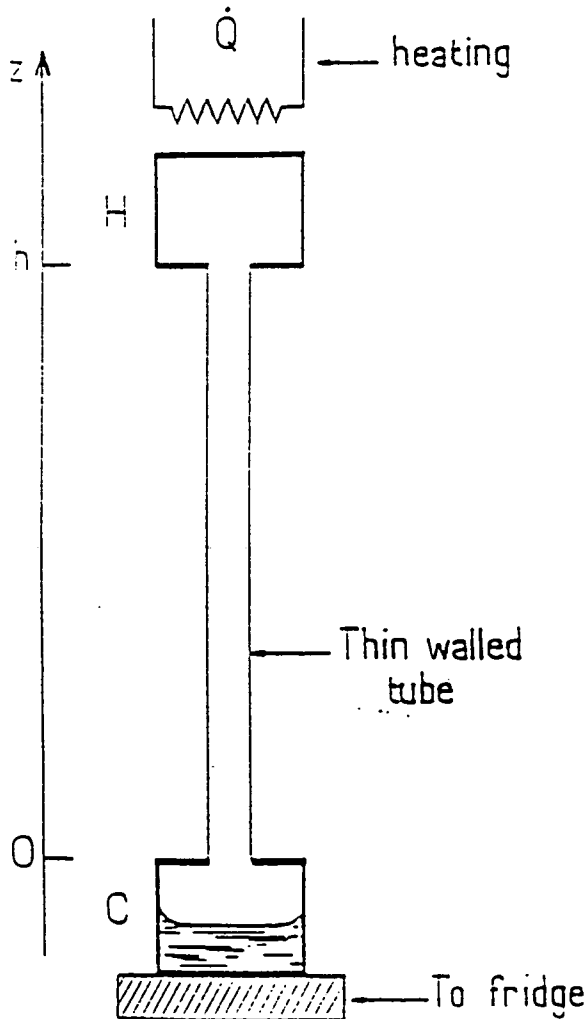


Figure 1: Sketch of a helium heat pipe. A tube of negligible thermal conductivity connects two end volumes, H, and C. Liquid helium (pure ^4He or an isotopic mixture) partly fills the lower cold volume C. A superfluid film is assumed to cover all internal surfaces of the system, in local equilibrium with the vapour (see text). A heat flux \dot{Q} is driven from the heated volume H to the cold end C, that is heat sunk to a refrigerator.

The other important assumptions we make at this point are that the whole device is in a vacuum, and that thermal conduction along the wall of the tube that connects C to H can be neglected. In such a situation, quite often met in practice, all the heat \dot{Q} applied at the hot end is exclusively transported to the cold end by convecting ^4He . In addition, no heat can be exchanged between the helium film and the wall, so that no net evaporation or condensation of atoms can take place outside the end volumes C and H in steady state. (*) Since the helium film above the level of the bulk liquid is microscopically thin, viscous flow of ^3He atoms in the condensed phase can occur only at a negligible rate, and there is no net evaporation or condensation of ^3He atoms in steady state. As a result, both $V_3(\mathbf{r})$ and $V_4(\mathbf{r})$ have no radial component at the wall, and equation (2) can be satisfied in the absence of transverse gradients of concentration, pressure or temperature.

Another consequence of the fact that there is no net transfer of atoms between the vapour and the film is that the molar flow rates of ^3He and ^4He , \dot{n}_3 and \dot{n}_4 , are independent of the position z and are given by:

$$\dot{n}_3 = \pi d^2 v_3 P x / 4RT \quad \text{and} \quad \dot{n}_4 = \pi d^2 v_4 P (1 - x) / 4RT \quad (5)$$

where R is the ideal gas constant.

2.3. Film vapour-equilibrium

As a consequence of the boundary conditions we have chosen, the vapour and the film are in local equilibrium. It results that either no evaporation or condensation occurs, or that their effect can be neglected. At a given height z , the chemical potentials $\mu_3(z)$ and $\mu_4(z)$ (for ^3He and ^4He atoms respectively), are the same in the vapour and in the film. In addition, we have assumed the liquid phase to be superfluid. In steady state, the chemical

(*) This is not strictly true due to the heat capacity of the vapour. Since the flow takes place in a temperature gradient, some heat has to be exchanged at the vapour-film interface all along the tube. However for small enough temperature differences, this amount of heat will be negligible compared to the total heat \dot{Q} transported by the convected helium.

potential μ_4 is thus uniform over the liquid, and hence throughout the system. (**) The usual formula giving the chemical potential of an ideal gas can thus be used to relate the concentration, pressure and temperature at all points in the tube:

$$kT \text{Log}[(1-x)P\lambda_T^3/(kT)] = \mu_4 = \text{Constant} \quad (6)$$

where $\lambda_T = h/\sqrt{2\pi m_4 kT}$ is the thermal wavelength of the ^4He atoms, and k the Boltzmann constant. Differentiating this relation with respect to height z one obtains:

$$\frac{\nabla_z x}{1-x} - \nabla_z \text{Log}P + \left(\frac{5}{2} - \frac{\mu_4}{kT}\right) \nabla_z \text{Log}T = 0. \quad (7)$$

Since equations (6) and (7) rely on the presence of a superfluid film covering the whole system, it is of interest to compute an estimate of the film thickness as a function of the position in the tube after the concentration, pressure and temperature profiles have been derived integrating equations (3), (4) and (7). The method we have used is described in Appendix A. It relies on the knowledge of the liquid-vapour phase diagrams of ^3He - ^4He mixtures and on assumptions about the attraction of atoms to the wall.

3. RESULTS FOR A CLOSED TUBE

In this section we solve the equations derived in our model for the simple system depicted in figure 1, consisting of a tube having closed ends. In such a situation, the molar flow rates of ^3He and ^4He that are used in equation (5) are simply given by:

$$\dot{n}_3 = 0 \quad \text{and} \quad \dot{n}_4 = -\dot{Q}/L \quad (8)$$

where L is the molar latent heat of evaporation of ^4He . We thus deduce that ^3He atoms are at rest in steady state ($v_3 = 0$), while the average velocity of ^4He atoms is given by:

$$v_4 = -\frac{4\dot{Q}RT}{\pi d^2 LP(1-x)} \quad (9)$$

(**) The matter of the equilibrium conditions with the vapour is somewhat controversial in the case of a moving film.^[10-13] In this article, we make use of the fact that the vapour facing a superfluid film has a uniform chemical potential. This should be true to a very good approximation, except perhaps for the highest flow rates when the kinetic energy contributions to the chemical potentials cannot be neglected.

(the negative sign is simply a result of our choice of reference frame). These expressions for the average velocities v_3 and v_4 will be retained throughout this section, until different geometrical arrangements are considered in §4. To make numerical predictions, a certain number of physical quantities have to be evaluated. They are listed and discussed in the following section. We then consider the case of a tube containing pure ^4He . It provides a basis for a comparison with the more complex situation of a ^3He - ^4He mixture. In the latter case, we first evaluate the gradients of the thermodynamical variables. This is then used to derive a general solution that is finally discussed.

3.1. Experimental data used for calculations

The various parameters that appear in the equations written so far are known to depend on temperature, and sometimes on concentration. In the following we have not tried to make accurate calculations, but rather to discuss the general behaviour of the system under study. As a result we sometimes have used rough approximations, in particular when accurate experimental data are not available.

The viscosity of a gaseous mixture is a complicated function of temperature and concentration.^[8] We have made a simple linear fit

$$\eta = 1 \times 10^{-7}(1 + x)(0.5 + 2.25T) \quad \text{Pa.s} \quad (T \text{ in Kelvin}) . \quad (10)$$

to the experimental data of Becker et al.^[14] below 2.2 K.

Experimental data^[15] for the diffusion coefficient D_{34}^0 for a gas with a number density $n_0 = 3.22 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (corresponding to a pressure of 1 Torr at room temperature) are well fit by:

$$D_{34}^0 = 33 T^{0.65} \quad \text{cm}^2/\text{s} . \quad (11)$$

Since D_{34} is proportional to the inverse of the gas density, we infer that:

$$D_{34} = 1.463 \times 10^{-3} T^{1.65} P^{-1} \quad (\text{in S.I. units}). \quad (12)$$

The saturated vapour pressures are computed using the method described in Appendix A, and the results are used to compute the chemical potential $\mu_4(T)$ of ^4He in the

vapour using equation (6). This procedure does not take into account the virial corrections to the pressure, but the resulting error is of little consequence on the solutions of the coupled hydrodynamical equations, especially when the relative density changes along the tube are not too large. On the other hand, when a more accurate determination of the chemical potential $\mu_4^0(T)$ of the saturated liquid is required (for instance in order to compute film thickness profiles, that are sensitive to small changes in $\mu_4^0(T)$), we use the values deduced from specific heat measurements.^[16] The latent heat of vaporization L of ^4He is computed from the saturated vapour pressure using the standard Clapeyron-Clausius formula.

The last function required to solve explicitly the equations in this model is the thermal diffusion ratio k_T . It is generally a complicated function of concentration and temperature,^[9] and theoretical predictions seem to be quite sensitive to the interatomic potential which is chosen.^[17] We are not aware of any measurement performed for a ^3He - ^4He mixture in the low temperature regime of interest for this article, so we shall assume that $|k_T|$ is as small as it usually is, of order 2×10^{-2} or less.

3.2. Pure Helium-4

The local equations that govern the behaviour of a heat pipe filled with pure ^4He can be deduced from equations (3), (7) and (9), simply by setting $x = 0$. The simplified equations for the pressure P and the temperature T which result are:

$$\nabla_z P = \frac{128\eta \dot{Q} R T}{\pi d^4 L P} \quad (13)$$

$$\left(\frac{5}{2} - \frac{\mu_4}{kT} \right) \nabla_z T = \frac{128\eta \dot{Q} R T^2}{\pi d^4 L P^2} \quad (14)$$

The latter equation can be used to compute the effective thermal impedance per unit length $Z_{eff} = \nabla_z T / \dot{Q}$ of a heat pipe, as a function of temperature. It is a very rapidly changing function of T , due to the very strong temperature dependence of the saturated vapour pressure of ^4He . Hence the exact way the other functions in equation (14) depend on T is not essential to the result, and we are fully justified in using the approximations listed in the previous section.

The results deduced for Z_{eff} from equation (14) setting the pressure to its saturation value are shown in figure 2 for a particular value of the diameter $d = 3$ mm. The corresponding values for the thermal impedance per unit length of a copper rod and of a glass tube are also shown for comparison. As long as the heat flow is low enough, this device acts as a very efficient heat pipe above 0.8 K, while its thermal impedance is much larger than that of a low conductance tube below 0.5 K. This sets a lower limit to the temperature domain where the present model can remain valid while neglecting thermal conduction along the tube wall.

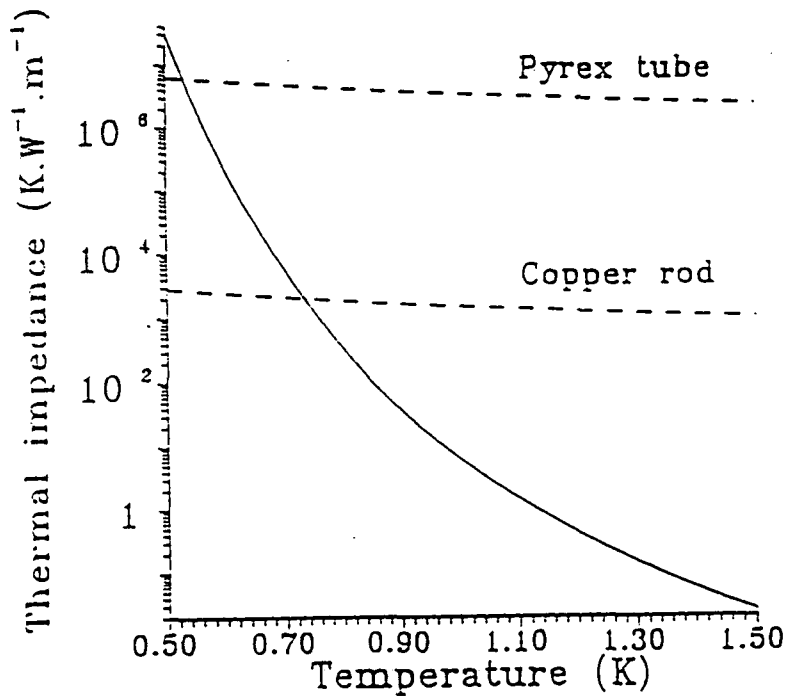


Figure 2: Plot of the effective thermal impedance $Z_{eff} = \nabla_z T / Q$ in a tube filled with pure helium-4, as a function of temperature. The diameter d has been set to 3 mm, and the local pressure is assumed to be saturated. The corresponding temperature gradients along a copper rod of the same diameter, and along a 6 mm o.d., 3 mm i.d. Pyrex glass tube have also been plotted.

The film thickness profile along the tube can be computed, using once again the uniformity of the chemical potential μ_4 , but in the liquid phase. It is the sum of the chemical potential $\mu_4^0(T)$ of a bulk liquid under saturated conditions, and of the contributions re-

sulting from the external forces acting on the liquid. Let us first note that μ_4^0 is a negative, decreasing function of the temperature. As a result, bulk ^4He tends to accumulate at the hottest end of the heat pipe, and the colder regions are covered by an unsaturated film for which the excess in μ_4^0 is just balanced by an additional energy term. If we neglect gravity for a moment, this energy is due to the attraction of the wall, and its value $U(r_0)$ (see in Appendix A) allows to compute the film thickness r_0 . In figure 3 we plot the film thickness as a function of the local temperature in the tube. Each curve corresponds to a situation in which the hot end contains bulk liquid, at a temperature T_H ranging from 0.7 K to 1.5 K. The thinning to microscopic values (say below 100 atomic layers) always takes place over a narrow temperature range just below T_H , and rather thick films (in excess of 10 layers) can be stabilized by the wall at all temperatures. Such films are thick enough, in the temperature range of interest, to be superfluid. The assumption we have made so far, that the whole tube is covered by a superfluid film, is thus justified even when large temperature differences exist along the tube.

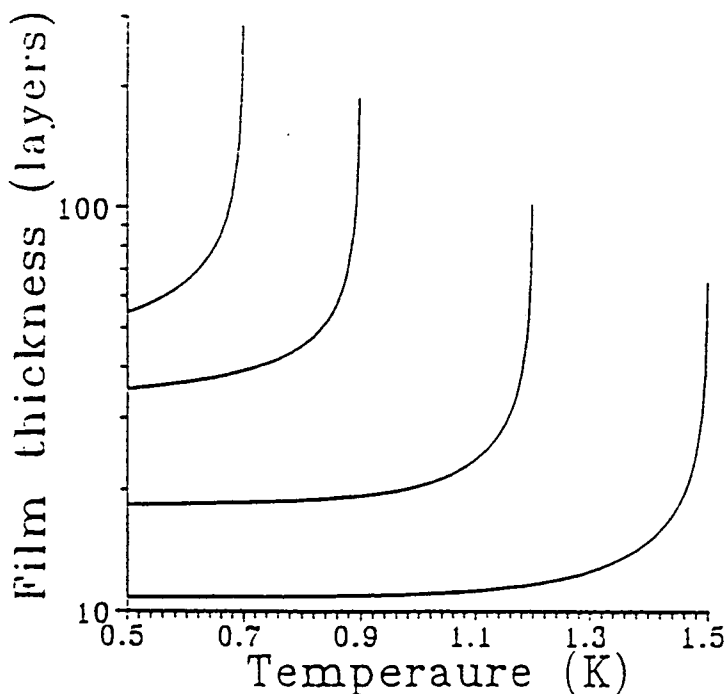


Figure 3: Plot of ^4He film thickness profiles computed neglecting the effects of gravity, as a function of the local temperature T . The four curves correspond to situations where the hot end, that contains bulk ^4He , has a temperature $T_H = 0.7, 0.9, 1.2$ and 1.5 Kelvin. Film thinning occurs in the colder regions of the sample, for $T < T_C$.

Let us now consider all external forces acting on the film. For thicknesses of order 100 layers or more, the effects of gravity on the chemical potential of the film cannot be neglected. For the situation that we have considered so far, where the temperature increases with height z , the gravity and temperature changes have opposing effects on the thickness variation with z . Using the results plotted in figure 2, and the experimental values of $d\mu_4^0/dT$, we have computed the gradient of μ_4^0 along a 3 mm tube for a heat flux $\dot{Q} = 0.2$ mW (this value is close to the maximum value for a Rollin film that a tube with this perimeter can sustain).^[18] The results are plotted (in temperature units) in figure 4 as a function of the temperature, and are to be compared to the gravity induced gradient of chemical potential $\nabla\mu_4^{grav}/k = m_4g/R = 4.7$ mK/m. For temperatures higher than 0.65 K, the stabilizing action of gravity is large enough to prevent the film thickness from increasing with z . The thickening effect of temperature can actually be neglected above a temperature of order 0.9 K. These temperatures are actually upper bounds, and the stability domain for a film is extended if one uses smaller heating powers \dot{Q} .

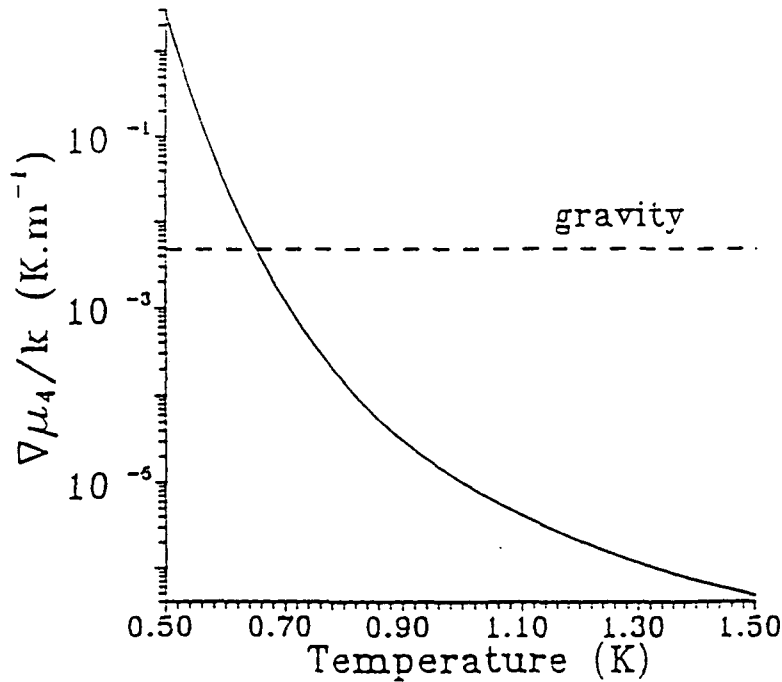


Figure 4: Plot of the chemical potential gradient associated with the thermal gradient induced by a typical heat flux $Q = 2 \cdot 10^{-4}$ W in a tube of diameter $d = 3$ mm. The dashed line corresponds to the temperature independant gradient due to gravity (see text). $\nabla\mu_4$ is actually negative if the hot end is above the cold one, and the intersection in the graph corresponds to a cancellation of the effects of gravity and temperature. Under such conditions, the film thickness is controlled by gravity for temperatures higher than 0.7 Kelvin.

3.3. Helium mixtures: discussion of the gradients

Making use of equations (8) and (9) that result from the boundary conditions, we can eliminate the flow velocities v_4 and v_3 from the local equations (3), (4) and (7):

$$\nabla_z P = \frac{128}{\pi d^4} \frac{4\eta}{4-x} \frac{\dot{Q} R T}{L P} \quad (15)$$

$$\frac{\nabla_z x}{1-x} + \left(\frac{5}{2} - \frac{\mu_4(x, P, T)}{kT} \right) \nabla_z \text{Log} T = \nabla_z \text{Log} P \quad (16)$$

$$\nabla_z x + k_T \nabla_z \text{Log} T = -x \left(\frac{(4-x)d^2 P}{128\eta D_{34}} + \frac{1-x}{4-x} \right) \nabla_z \text{Log} P \quad (17)$$

In the previous section where pure ^4He was considered, this set was reduced to the first two equations using the fact that $x = 0$. In such a case, it can be noticed in the corresponding form of equation (16) that the gradients of $\text{Log} T$ and $\text{Log} P$ are of the same order of magnitude (the value of the chemical potential, μ_4^0/k , is of order -7 Kelvin for pure liquid ^4He). With a ^3He - ^4He mixture the situation may be considerably different, depending on the right hand side of equation (17). It is a usual diffusion equation, for which large concentration gradients can be met with arbitrarily low pressure gradients if the tube is wide enough. In figure 5 we have plotted the coefficient multiplying $\nabla_z \text{Log} P$ on the right hand side of equation (17) as a function of temperature for various concentrations x , and using a diameter $d = 3$ mm as before. The pressure has been set to the saturated vapour pressure of the mixture, computed as described in Appendix A. Over a wide range of conditions, this coefficient is found to be very large. Values of order one, or smaller, are obtained only at low temperatures and vapour concentrations, corresponding to a mixture which is almost pure ^4He .

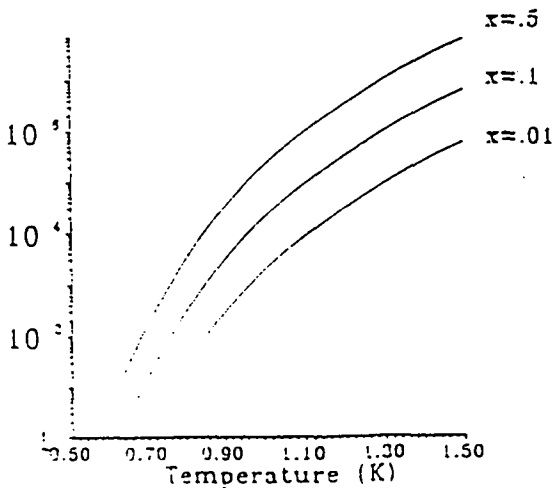


Figure 5: Plot of the dimensionless coefficient in the right hand side term of Equation (18), as a function of temperature and vapour helium-3 concentration x . When this coefficient is large, the situation is very different from the case of pure helium-4 (see text).

As a first step, we shall only consider situations for which the coefficient is large. Using the additional fact that k_T is expected to be much smaller than one, we shall for now replace equations (16) and (17) by a simplified set. It is obtained setting $\nabla_z P = 0$ in equation (16), and neglecting the smaller terms on both sides of equation (17):

$$\nabla_z \text{Log} T = \left(\frac{\mu_4^0(T)}{kT} - \frac{5}{2} \right)^{-1} \frac{\nabla_z x}{1-x} \quad (18)$$

$$\frac{\nabla_z x}{x} = - \frac{2.73 \times 10^3 \dot{Q} R T^{-0.65}}{\pi d^2 L} \quad (19)$$

In equation (18), the chemical potential μ_4^0/k is weakly temperature dependant. The ratio $\nabla_z \text{Log} T / \nabla_z x$ is negative, and its value is of order $-T^2/10(1-x)$ over the temperature range of validity of the approximations made. Note that it depends neither on the dimensions of the tube nor on the heat flux applied to its end. The gradient of $\text{Log} T$ is thus found to be much larger than the gradient of $\text{Log} P$, in contrast with the situation where pure ^4He was considered. This implies that the thermal impedance of a tube filled with a ^3He - ^4He mixture can be orders of magnitude larger than that derived in the previous section for pure ^4He (figure 2).

The concentration profile can be computed using equation (19). A constant right hand side term would lead to an exponential decrease of the concentration as a function of height, with a characteristic length λ equal to the inverse of this term. This length λ is somewhat temperature dependant, both explicitly and through the latent heat L , so that concentration profiles in a temperature gradient may be non stricly exponential. The maximum heating \dot{Q}_{cr} that a film can sustain without loss of superfluidity is proportional to the perimeter πd of the tube. The corresponding minimum value λ_{cr} for the characteristic length is thus proportional to the diameter d . More precisely, for a temperature of 1 Kelvin, and taking for \dot{Q}_{cr} the same value as the one observed for pure ^4He films,^[18] one finds $\lambda_{cr} = d/6$. It is not clear whether such high critical heating fluxes can be reached in ^3He - ^4He films, but the validity of this model (in which a uniform transverse distibution of all thermodynamic functions has been assumed) can certainly be questionned for such high fluxes. On the other hand, this result implies that over a very wide range of situations, the system described by this model can be a very efficient compressing device for ^3He . We shall

now use the set of complete equations (15-17) to evaluate numerically the temperature and concentration gradients. This is done for various vapour concentrations and temperatures, assuming that the local pressure P is the saturated vapour pressure. This allows to verify that the exact value we ascribe to the thermal diffusion coefficient k_T is not important. All the results obtained below are quite insensitive to changes in k_T between 0 and 0.05, and thus we have arbitrarily chosen to use a constant value $k_T = 2 \times 10^{-2}$. The temperature and concentration gradients predicted by equations (16) and (17) when a heating power $\dot{Q} = 1$ Watt is applied are shown in figures 6 and 7. They do not differ significantly from the approximate results computed using equations (18) and (19) except for temperatures lower than a temperature $T_{app.}$ of about 0.7 Kelvin. This temperature $T_{app.}$ is only weakly diameter dependant, and corresponds to the situation for which the parameter plotted in figure 5 is of order 1. This parameter changes by two orders of magnitude for a temperature change of 0.1 K, due to the very strong dependance of the pressure P on the temperature T , while it is proportional to d^2 . The lowest temperature $T_{app.}$ for which the approximations are valid is thus raised to 0.8 K for a smaller tube of diameter $d = 0.3$ mm, or lowered to 0.6 K for a wider tube ($d = 3$ cm).

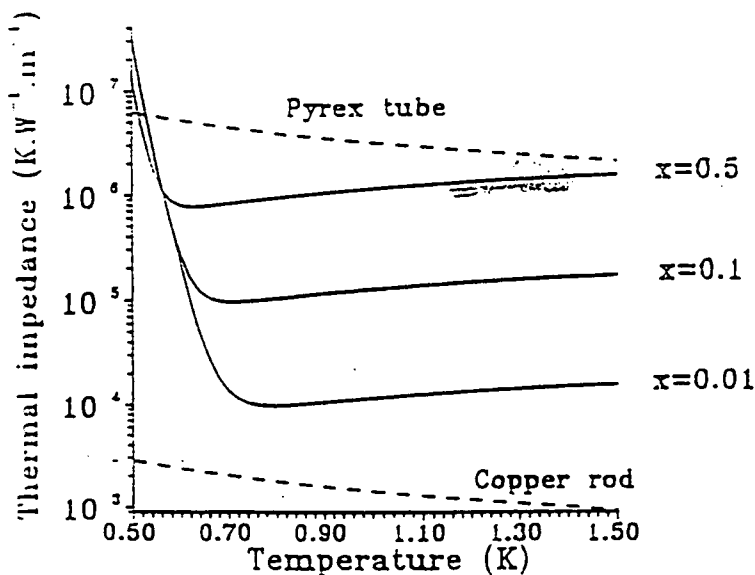


Figure 6: Plot of the temperature gradient induced by a unitary heat flux $\dot{Q} = 1$ W in a tube filled with a $^3\text{He} - ^4\text{He}$ mixture, as a function of temperature and vapour concentration x . The diameter d has been set to 3 mm, and the local pressure is assumed to be saturated. The corresponding temperature gradients along a copper rod of the same diameter, and along a 6 mm o.d., 3 mm i.d. Pyrex glass tube have also been plotted. These results can be compared with those plotted in figure 2 for pure helium-4 (note that the vertical scales are different).

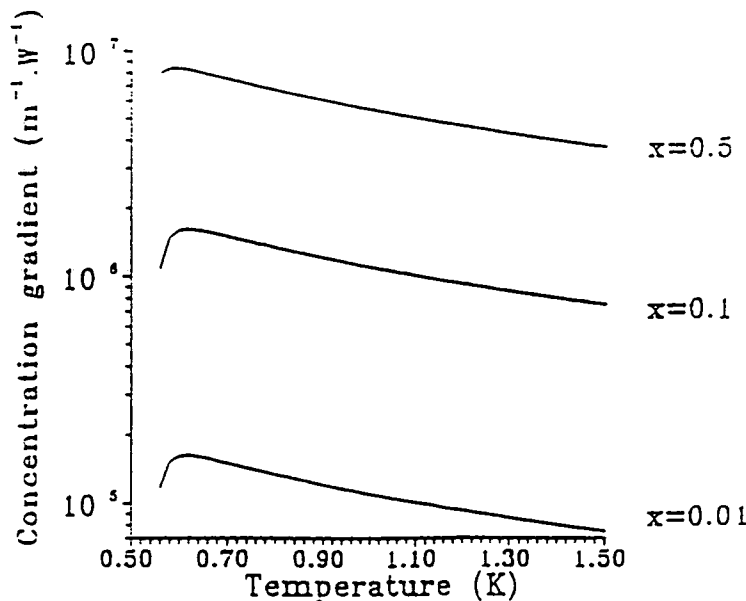


Figure 7: Plot of the concentration gradients due to the HEVAC effect, as a function of temperature, and vapour concentration x . The conditions are the same as in figure 6.

The last issue that remains to be discussed at this point concerns the change in the film thickness induced by the temperature and concentration gradients. Just as for the case of pure ${}^4\text{He}$, we have to compute the chemical potential $\mu_4^0(x, T)$ of ${}^4\text{He}$ atoms in a bulk liquid in equilibrium with a vapour of concentration x (see Appendix A). The gradient $\nabla_z \mu_4^0$ resulting from the gradients of concentration and temperature can be computed from equation (A-11):

$$\nabla_z \mu_4^0(x, T) = \nabla_z \mu_4^0(T) + k \nabla_z T \text{Log}(1 - X_{liq.}) + \nabla_z X_{liq.} \left(2W X_{liq.} - \frac{kT}{1 - X_{liq.}} \right) \quad (20)$$

where $\mu_4^0(T)$ is the chemical potential of pure ${}^4\text{He}$ under saturated conditions. The ${}^3\text{He}$ concentration $X_{liq.}$ in the liquid is computed from equation (A-10), and $\nabla_z X_{liq.}$ is given by:

$$\left(\frac{1}{X_{liq.}} + \frac{1}{1 - X_{liq.}} - \frac{2W}{kT} \right) \nabla_z X_{liq.} = \left(\frac{1}{x} + \frac{1}{1 - x} \right) \nabla_z x + (1 - 2X_{liq.}) \frac{W}{kT} \nabla_z \text{Log} T . \quad (21)$$

The gradient of chemical potential of ${}^4\text{He}$ atoms in a ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ mixture differs from that of pure ${}^4\text{He}$ by the positive additional contributions in the right hand side of equation (20). In contrast with the case of pure ${}^4\text{He}$ that was discussed at the end of §3.2, the chemical potential $\mu_4^0(x, T)$ in a mixture is thus not necessarily a decreasing function of the temperature T . We have plotted in figure 8 the gradient of chemical potential $\nabla_z \mu_4^0(x, z)$ given by equation (21) as a function of temperature for various vapour concentrations x . Except at the lowest temperatures, or for vanishing concentrations, the gradient is positive, and much larger than the one induced by gravity. The film is thus thinning with increasing temperatures, at a rate that can be much faster than in the absence of a heat flux when it is controlled by gravity. This situation is quite different from that of pure ${}^4\text{He}$ (see figure 4), and we can expect large effects of even a moderate flow on the film thickness profile due to the creation of temperature gradients.

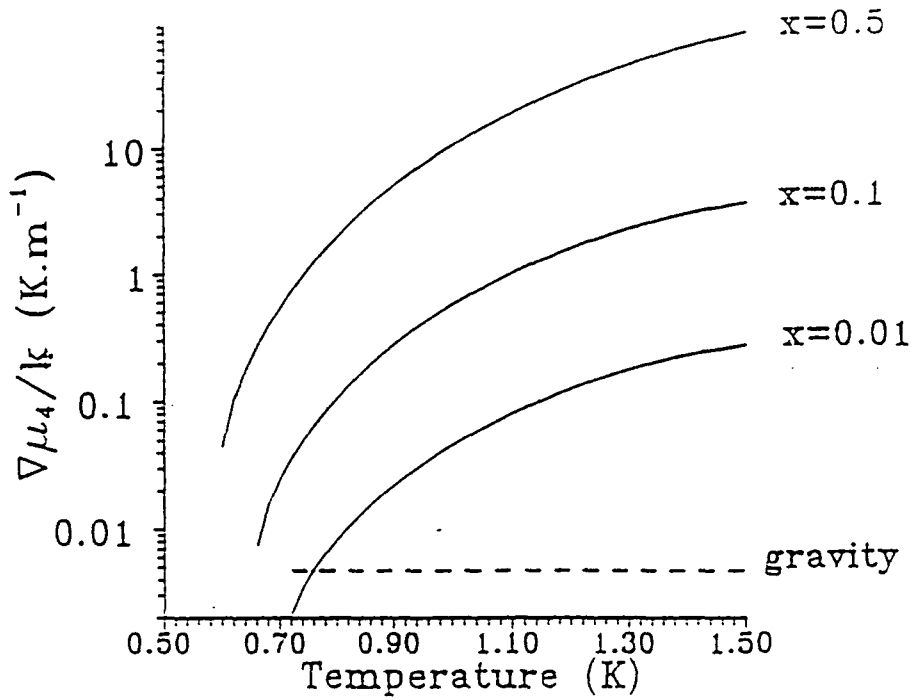


Figure 8: Plot of the chemical potential gradient associated with the thermal gradient induced by a typical heat flux $\dot{Q} = 2 \cdot 10^{-4} \text{W}$ in a tube of diameter $d = 3 \text{ mm}$, as a function of temperature and vapour concentration x . The dashed line corresponds to the temperature independent gradient due to gravity (see text). In contrast with the case of pure helium-4 plotted in figure 4, $\nabla\mu_4$ is positive if the hot end is above the cold one, and the effects of gravity and temperature gradients add up.

3.4. Helium mixtures: general solution

Let us now give examples of the general solution of the equations (15-17), in situations where the local values for the pressure P , the temperature T , and the concentrations x and X_{liq} , cannot be treated as constants. A numerical integration is thus required, and we shall assume that the lower (colder) end of the tube (for $z = 0$) sets the boundary conditions. This is the end in which the bulk liquid is stable, so that it will be sufficient to know its temperature T_C and the concentration of one of the phases, say that of the liquid X_{liq} , to compute the state of the whole system as a function of the applied heat flux \dot{Q} . We discussed in the previous section that the gradients of concentration and temperature are, over a very wide range of conditions, proportional to \dot{Q} and to d^{-2} . We thus define a

natural length z_0 :

$$z_0 = d\dot{Q}_0/\dot{Q} \quad (22)$$

where the characteristic heat flux \dot{Q}_0 is defined so as to be proportional to d . We arbitrarily choose to take for \dot{Q}_0 a value of order of a large fraction of the heat load driving a typical Rollin film:

$$\dot{Q}_0 = .025d \quad (23)$$

Values three to ten times larger than \dot{Q}_0 can be sustained by superfluid ^4He films,^[18] depending on temperature and wall cleanliness, so that \dot{Q}_0 is not necessarily an upper limit for the heating power.

As long as the approximations represented by equations (18) and (19) remain valid, we can predict a universal behaviour for the concentration x and the temperature T as a function of the reduced height z/z_0 . All the results will thus be plotted as a function of z/z_0 in the rest of this section, and no further reference will be made to the actual heating power or tube diameter, although standard values have been used to make the calculations. Note that the pressure difference between the tube ends does not obey the same rule, but it is generally so small that it will not be considered. However, larger pressure gradients can be obtained using tubes of very small diameters.

Results obtained for a ^3He concentration $X_{liq.} = 0.02$ in the bulk liquid at the cold end are plotted in figure 9 (left). The five curves in each graph correspond to cold end temperatures T_C ranging from 0.6 to 1.4 Kelvin. The vapour concentration $x(z/z_0)$ is plotted on a logarithmic scale. Each curve is a straight line that corresponds to an exponential decrease of the concentration with height. The decay length depends on the cold end temperature T_C , and is of the order of the scaling height z_0 , that was defined independantly.(***) The intercepts $x(z = 0)$ correspond to the concentrations of the saturated vapour pressures. They depend on the temperature simply because we have chosen to keep $X_{liq.}$ constant.

(***) In equation (23) defining z_0 , the value chosen for \dot{Q}_0 depends on superfluidity breakdown in a ^4He film. The concentration decay length found here, or in the approximation of equation (19), has a completely different origin. It results from the combined effects of different physical phenomena, mutual diffusion and viscous flow in a gaseous mixture.

The corresponding temperature profiles are plotted in the same figure (right). Steep temperature profiles can be obtained at the lower temperatures, while the temperature rise appears to saturate at large heights. This can be related to the fact that the concentration x changes by orders of magnitude with height, and affects the effective thermal impedance of the system (figure 6). Let us mention that, in contrast with the concentration profile, the temperature profile cannot be fit to a simple law, such as an exponential difference to a limiting value at large reduced height.

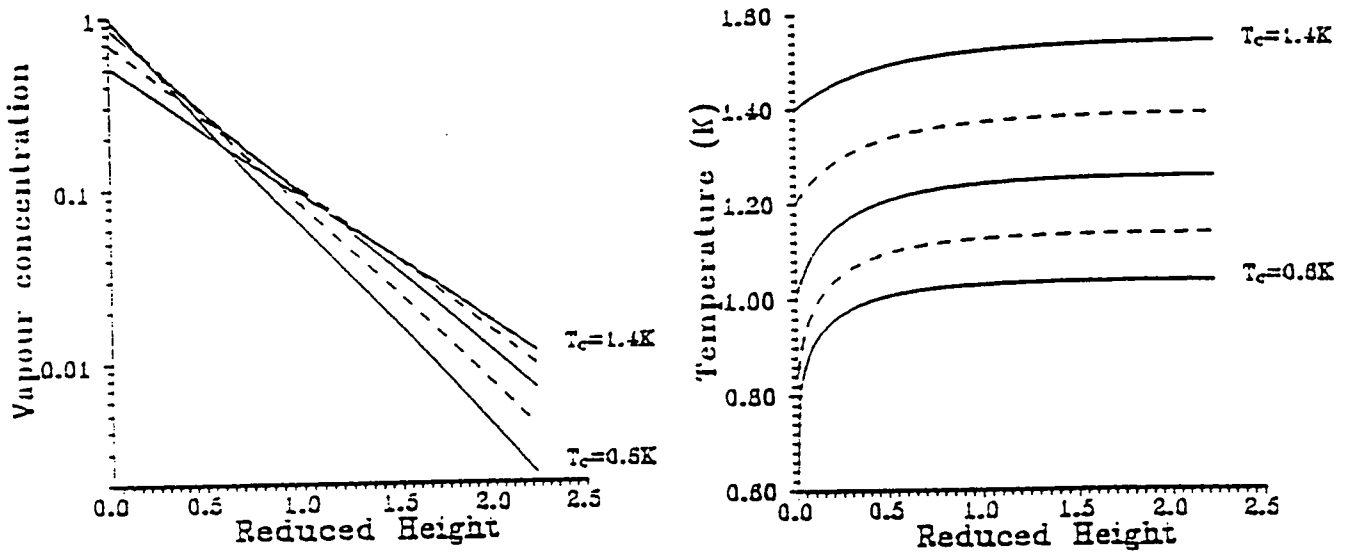


Figure 9: Plots of the vapour concentration x (left), the temperature T (center) and the temperature differences $T_\infty - T$ to their asymptot (right, see text) as a function of the reduced height z/z_0 . Alternating solid and dashed lines correspond to base temperatures $T_C = 0.6, 0.8, 1, 1.2$ and 1.4 Kelvin. The liquid concentration at the cold end is $X_{liq} = 0.02$. The plotted results have been obtained for $d = 3$ mm, $\dot{Q} = 10 \mu\text{W}$ and $h = 5$ cm, so that $z_0 = 2.25$ cm.

We have also studied the way the concentration and temperature profiles depend on the concentration $X_{liq.}$ at the cold end, for a cold end temperature $T_C = 0.8 K$. The results are plotted in figure 10 for values of $X_{liq.}$ ranging from 10^{-4} to 0.1. In all situations a dramatic compression effect for 3He is present, accompanied by a very large temperature increase with z for the higher concentrations.

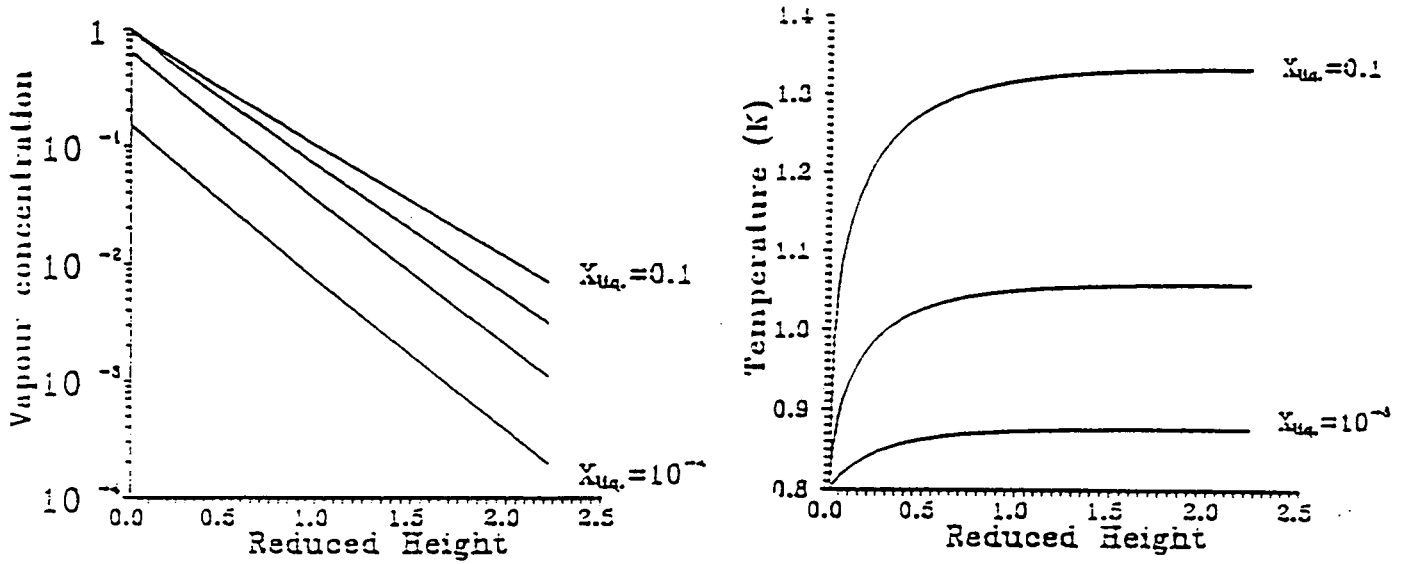


Figure 10: The same functions x , T and $T_\infty - T$ as in figure 9 are plotted as a function of the reduced height in the tube. Here the base temperature is kept constant ($T_C = 0.8 K$), while the liquid concentration is varied. The actual computation parameters are the same as in figure 9.

Film thickness profiles have been computed, using the method described in the previous section. The results are plotted in figure 11. They show that for all the situations plotted in figures 9 and 10, a rather drastic thinning occurs over a very short distance, usually of order $z_0/10$. Beyond that distance above the bulk liquid level, a fairly constant thickness is found. The film is thick enough to be expected to retain superfluidity (in excess of a few layers), but it is significantly thinner than the usual, gravity controlled, saturated films.

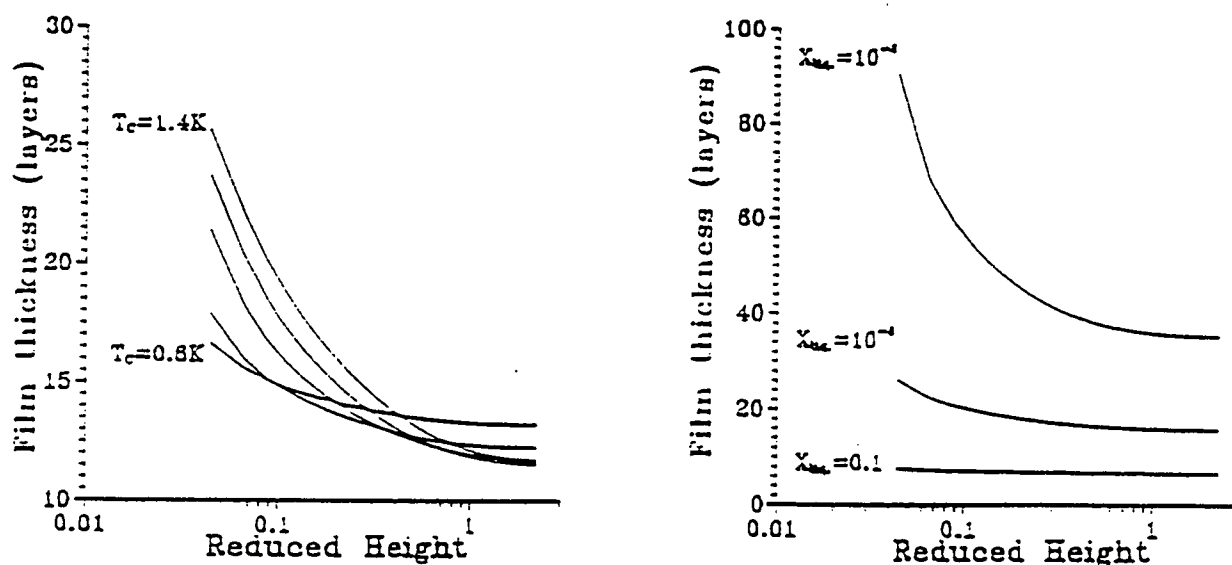


Figure 11: Plot of the film thickness profiles corresponding to the situation of figure 9 (left) and figure 10 (right). Note that the reduced heights are plotted using a logarithmic scale: the film thinning occurs very abruptly above the lower end of the tube.

Let us finally present the results obtained for changes in pressure along the tube. We have computed the total pressure P as a function of the reduced height for various concentrations, including $X_{liq} = 0$. The pressure changes are plotted in figure 12 for two values of the cold end temperature T_C .

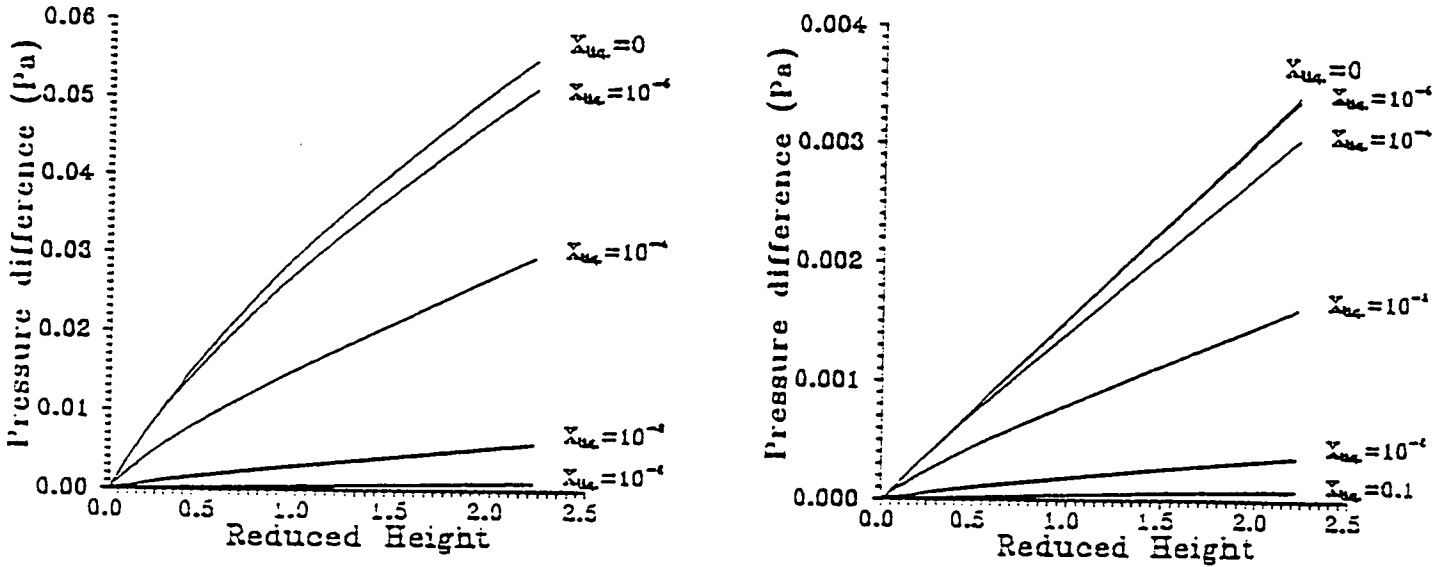


Figure 12: Pressure difference between the hot and cold end of a tube, as a function of its reduced height, for $T_C = 0.6$ K (left) and $T_C = 0.8$ K (right). It is larger for a lower temperature T_C (left), and for the lowest helium-3 concentrations ($X_{liq} = 0$ corresponds to pure helium-4).

The striking feature is that the presence of ^3He in the system, even in small proportions, can drastically decrease the pressure difference between the tube ends. Note that we have plotted differences with respect to the pressure P_0 at the cold end. Since this pressure is higher for the larger concentrations at any given temperature, the effect of the concentration on the relative variations $(P - P_0)/P_0$ are even more spectacular. One may thus conclude that the presence of ^3He in a helium heat pipe produces a huge increase in the thermal impedance, but, at the same time, a drastic reduction in the effective flow impedance. Both effects are indeed related to the presence of a large concentration gradient, that is a consequence of the HEVAC effect.

4. CONCLUSION

We have developed a simple model to describe the steady state hydrodynamic situation in a ^3He - ^4He gaseous mixture, assuming it is in local equilibrium with a superfluid film. When applied to a system enclosed in a cylindrical tube, this model allows to derive a certain number of simple results, that can be used to discuss the domain in which the model is expected to be valid. In particular, the main assumption required for these calculations, namely the presence of a superfluid film, is consistent with the results we have derived for the film thickness over a very wide range of conditions. In addition, the corrections that would result from the effects we have neglected can conveniently be discussed using the predictions for a simple closed tube. The accuracy of these predictions can for instance be questioned if the heat flux in the system is too large, of order of the maximum heat load a ^4He superfluid film can sustain.

The main feature of the predictions of the model is that very large concentration differences can be obtained between the ends of a ^3He - ^4He heat pipe by using a moderate heat flux. This compression effect can be compared to the heat flush effect that occurs in a liquid ^3He - ^4He mixture.^[25] In both systems ^3He atoms are compressed by refluxing ^4He atoms, but the details of the effects, and in particular the temperature dependence, is quite different.

In a forthcoming article we shall present results obtained by applying this model to different physical situations. Experimental measurements of HEVAC effects in ^3He - ^4He mixtures are under completion and will be published in a third article.

It is a pleasure to thank Jacques Dupont-Roc, Mike Hayden and Geneviève Tastevin for fruitful discussions and useful comments about this work.

APPENDIX: Thickness of an unsaturated ^3He - ^4He film.

For a static film in the attracting potential of a wall, the equilibrium position of the interface is at a distance r_0 of the wall, such that the liquid and the vapour are just at the usual saturated conditions. For a superfluid film, the chemical potential μ_4 for ^4He atoms is uniform in steady state. In the presence of external forces resulting from a potential $U(r, z)$, the equation of the interface is thus:

$$\nabla_z (U(r_0, z) + \mu_4^0[x(z), T(z)]) = 0, \quad (\text{A} - 1)$$

where $\mu_4^0(x, T)$ is the chemical potential of ^4He atoms in a ^3He - ^4He solution facing a vapour of ^3He concentration x at a temperature T , for bulk saturated conditions.

In order to derive the variation of pressure near the wall, one must add to equations (3) and (4) the effect of the external forces acting on the atoms. If the attraction of a helium atom to the wall can be described using a Van der Waals potential $U = -C_3/r^3$, the pressure at the interface is given by:

$$P(z, r_0) = P(z, \infty) \exp(-C_3/kTr_0^3) \quad (\text{A} - 2)$$

where $C_3/k = 26 \text{ K}/(\text{layer})^3$, taking the thickness of a layer to be 3.58\AA .^[19] On the other hand, the forces acting on atoms of different isotopes are the same, and no diffusion current is driven by the presence of the attracting wall. This can be explicitly checked on the complete form of equation (2), that contains an additional term in the curly braces of the right hand side:^[9]

$$-\frac{n}{P} \frac{x(1-x)}{xm_3 + (1-x)m_4} (m_4 F_3 - m_3 F_4), \quad (\text{A} - 3)$$

where F_3 and F_4 are the forces acting on ^3He and ^4He atoms respectively, and n is the number density of atoms. When there is no flow, and no temperature gradient, one has the additional relation:

$$\nabla P - n[xF_3 + (1-x)F_4] = 0 \quad (\text{A} - 4)$$

and equation (2) becomes:

$$\nabla x + \frac{n}{P} x(1-x)(F_4 - F_3) = 0. \quad (\text{A} - 5)$$

The concentration x is thus independent of r , as opposed to the total pressure. Note that in all the preceding discussion we have not considered the effect of gravity. It is actually responsible for the finite thickness of films, and for a very weak change in the concentration x with altitude. One could add to the relevant equations the effect of the weight of the atoms in order to derive the correct altitude variation of P and x . Instead, we will simply use equation (A-1), and the liquid vapour equilibrium characteristics of ^3He - ^4He mixtures, to derive an estimated thickness r_0 . It will be meaningful only when r_0 is found larger than the thickness of a few atomic layers, so that the interaction potential has the assumed form, and smaller than the usual gravity limited thickness of a saturated film.

Assuming that the pressure $P(z, \infty)$, the concentration x and the temperature T have been found solving equations (3), (4) and (8), we infer from the preceding discussion that we only need to know the saturated vapour pressure $P_{sat}(x, T)$, or the corresponding chemical potential $\mu_4^0(x, T)$, to get the thickness r_0 of the film. In order to make explicit calculations, we shall assume that a ^3He - ^4He mixture behaves as a regular solution, so that the partial vapour pressures p_3 and p_4 of ^3He and ^4He in equilibrium with a liquid of molar concentration $X_{liq.}$ are given by:

$$p_3 = X_{liq.} p_3^{sat} \exp \left\{ (1 - X_{liq.})^2 W/kT \right\} \quad (\text{A} - 6)$$

$$p_4 = (1 - X_{liq.}) p_4^{sat} \exp \left\{ X_{liq.}^2 W/kT \right\} \quad (\text{A} - 7)$$

p_3^{sat} and p_4^{sat} are the saturated vapour pressures of the pure components, and are computed using standard expansions.^[20] The heat of mixing, W , is chosen to reproduce as well as possible the experimental data. We have chosen to take $W/k = 1.54$ Kelvin,^[21] and have left aside virial corrections to the pressure. Other formulas, and slightly different values for W have been suggested,^[22,23] but we have checked numerically that these changes do not significantly affect the predicted variation of total pressure with the vapour concentration x . This fact is actually not surprising since a more general formula relates the pressure and the concentrations at equilibrium:^[24]

$$\frac{\partial P}{\partial x} = \frac{x - X_{liq.}}{x(1 - x)} \quad (\text{A} - 8)$$

When ^3He - ^4He mixtures are considered, the vapour concentration x is in general much larger than that of the liquid, so that equation (A-8) can be integrated directly, leading to the result:

$$P = p_4^{\text{sat}}/(1-x) \quad \text{if } X_{\text{liq.}} \ll 1. \quad (\text{A} - 9)$$

On the other hand, the value of equilibrium liquid concentration depends on the choice of the heat of mixing W in the parametrization of equations (A-5) and (A-6), and so does the exact way the pressure tends to p_3^{sat} when x gets close to 1. We have thus used this parametrization to compute the concentration in the liquid, $X_{\text{liq.}}$, by numerically solving the condition on the vapour concentration at the interface:

$$\frac{x}{1-x} = \frac{X_{\text{liq.}} p_3^{\text{sat}}}{1 - X_{\text{liq.}} p_4^{\text{sat}}} \exp \{ (1 - 2X_{\text{liq.}})W/kT \}. \quad (\text{A} - 10)$$

The chemical potential in a saturated liquid of concentration $X_{\text{liq.}}$ can be deduced from equation (A-7), as a function of the chemical potential $\mu_4^0(T)$ of pure ^4He at the same temperature:

$$\mu_4^0(x, T) = \mu_4^0(T) + kT \text{Log} \{ 1 - X_{\text{liq.}} \} + W X_{\text{liq.}}^2. \quad (\text{A} - 11)$$

This last formula can be further simplified when the concentration $X_{\text{liq.}}$ is small enough, and becomes independant of the heat of mixing W :

$$\mu_4^0(x, T) = \mu_4^0(T) - kT X_{\text{liq.}} \quad \text{if } X_{\text{liq.}} \ll 1. \quad (\text{A} - 12)$$

REFERENCES

(†) Unité de recherche de l'Ecole Normale Supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS (URA 18).

[1] P. Dunn D.A. Treay, "Heat Pipes", Pergamon Press, Oxford (1978).

[2] A. Matthey, Ph. D. Thesis, Amsterdam (1987).

[3] I.F. Silvera and J.T.M. Walraven, Phys. Rev. Lett. 44, 164 (1980).

[4] M. Mertig, A.V. Levkovitch, V.G. Luppov and Y. Pilipenko, *Rev. Sci. Instrum.* 63, 2220, (1992).

[5] Various workers have mentioned the possibility of film effects on the vapour composition, in particular when measuring the liquid vapour equilibrium phase diagram of helium mixtures. See for instance:

J.G. Daunt, R.E. Probst, H.L. Johnston, L.T. Aldrich and A.O. Nier, *Phys. Rev.* 72, 502 (1947).

H.A. Fairbank, C.T. Lane, L.T. Aldrich and A.O. Nier, *Phys. Rev.* 73, 729 (1948).

D.H.N. Wansink, K. W. Taconis and A. Staas, *Physica* 22, 449 (1956).

[6] G. Tastevin, *J. Low Temp. Phys.* 89, 317 (1992).

[7] M. Cornut, P.J. Nacher and G. Vermeulen, *J. Low Temp. Phys.* 89, 527 (1992).

[8] J.O. Hirschfelder, C.F. Curtiss and R.B. Bird, *Molecular Theory of Gases and Liquids*, Chapter 7, M. Goeppert Mayer ed., John Wiley and Sons (1964).

[9] *Ibid.*, chapter 8.

[10] V.M. Kontorovitch, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 30, 805 (1956) [Translated *Sov. Phys. JETP* 3, 770, (1956)].

[11] D.L. Goodstein and P.G. Saffman, *J. Low Temp. Phys.* 18, 435 (1975).

[12] S. Franchetti, *Nuovo Cimento* 10, 622 (1958).

[13] D.T. Eckholm and R.B. Hallock, *J. Low Temp. Phys.* 42, 339 (1981).

[14] E.W. Becker, R. Misenta and F. Schmeissner, *Phys. Rev.* 93, 244 (1954).

[15] P.J. Nacher, Thesis, Paris (1985).

M. Himbert, Thesis, Paris (1987).

M. Himbert, J. Dupont-Roc, M. Leduc and P.J. Nacher, *Proc. 18th Int. Conf. on Low Temperature Physics, Kyoto (1987)*; *Jap. Journal App. Phys.*, 26, supp. 26-3, 211 (1987).

[16] R. Radebaugh, "Thermodynamic properties of ^3He - ^4He solutions with applications to the ^3He - ^4He dilution refrigerator", NBS technical note 362 (1967).

[17] R.A. Buckingham and R.A. Scriven, *Proc. Phys. Soc. [Lond.]* A65, 376 (1952).

[18] J.G. Daunt and K. Mendelssohn, *Proc. Roy. Soc. London A* 170, 423 (1939).

[19] E.S. Sabisky and C.H. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* 30, 1122 (1973).

- [20] R.L. Rusby and M. Durieux, *Cryogenics* 24, 363 (1984).
- [21] R. de Bruyn Ouboter, J.J.M. Beenakker and K.W. Taconis, *Physica* 25, 1162 (1959).
- [22] S.G. Sydoriak and T.R. Roberts, *Phys. Rev.* 118, 901 (1960).
- [23] A.K. Sreedhar and J.G. Daunt, *Phys. Rev.* 117, 891 (1960).
- [24] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, "Statistical Physics", §97, Pergamon Press.
- [25] C.T. Lane, H.A. Fairbank, L.T. Aldrich and A.O. Nier, *Phys. Rev.* 71, 911 (1947) and 73, 729 (1948).