Etude thermodynamique et de R.M.N. des mélanges liquides d'hélium 3 polarisé dans l'hélium 4

Eric Stoltz

▶ **To cite this version:**

Eric Stoltz. Etude thermodynamique et de R.M.N. des mélanges liquides d'hélium 3 polarisé dans l'hélium 4. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1996. Français. NNT : . tel-00011910

HAL Id: tel-00011910
https://theses.hal.science/tel-00011910

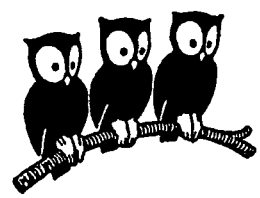
Submitted on 10 Mar 2006

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.

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ECOLE NORMALE
SUPÉRIEURE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6

spécialité: Physique des Solides.

présentée par

Mr **Eric STOLTZ**

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Paris 6

Sujet de la thèse:

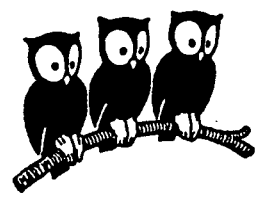
ETUDE THERMODYNAMIQUE ET DE R.M.N. DES MELANGES LIQUIDES D'HELIUM 3 POLARISE DANS L'HELIUM 4

Soutenue le 12 Décembre 1996 devant le jury composé de:

Mr Julien BOK
Mr Jacques DUPONT-ROC
Mr Jean JEENER
Mr Pierre-Jean NACHER
Mr Etienne ROLLEY
Mr Gerard VERMEULEN

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ECOLE NORMALE
SUPÉRIEURE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6

spécialité: Physique des Solides.

présentée par

Mr **Eric STOLTZ**

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Paris 6

Sujet de la thèse:

ETUDE THERMODYNAMIQUE ET DE R.M.N. DES MELANGES LIQUIDES D'HELIUM 3 POLARISE DANS L'HELIUM 4

Soutenue le 12 Décembre 1996 devant le jury composé de:

Mr Julien BOK
Mr Jacques DUPONT-ROC
Mr Jean JEENER
Mr Pierre-Jean NACHER
Mr Etienne ROLLEY
Mr Gerard VERMEULEN

Introduction.

L'hélium liquide occupe, en physique, une place exemplaire. Tout d'abord, ses deux isotopes, l'hélium 3 et l'hélium 4, obéissent à des statistiques quantiques différentes ; en effet, les propriétés d'un fluide dense d'hélium 4 illustrent celles d'un système condensé de bosons, alors qu'un fluide dense d'hélium 3 se comporte comme un système de Fermi dégénéré. De plus, l'hélium est constitué d'atomes particulièrement simples, dont les interactions sont connues et les propriétés bien documentées tant au niveau théorique qu'au niveau expérimental. Expérimentalement enfin, la possibilité de disposer, à basse température, de fluide d'hélium dont la pureté est exceptionnelle assure de pouvoir réaliser des études reproductibles et significatives.

Tant les phases denses de l'hélium 3 que celles de l'hélium 4, toutes abondamment caractérisées d'un point de vue expérimental, sont correctement décrites au moyen de modèles phénoménologiques (modèle à deux fluides pour l'hélium 4 superfluide, modèle de Landau d'un liquide de Fermi pour l'hélium 3 ou les solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4). Toutefois, ces modèles ne sont pas prédictifs dans la mesure où il n'existe pas de relation entre les paramètres macroscopiques et empiriques qu'ils font intervenir et les propriétés microscopiques. Eclaircir la globalité de ces modèles, à partir de considérations au niveau atomique, telle est la perspective générale dans laquelle s'inscrit cette thèse.

A cette fin, nous bénéficions de deux atouts expérimentaux. D'une part, l'existence des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4 assure une variation continue de la densité d'hélium 3 depuis celle du gaz jusqu'à celle du liquide. On peut en effet se représenter une solution diluée d'hélium 3 dans l'hélium 4 comme un gaz d'atomes d'hélium 3, immergé dans l'hélium 4 superfluide, la masse de chaque atome d'hélium 3 étant renormalisée en une masse effective plus grande pour tenir compte du déplacement des atomes d'hélium 4. L'intérêt particulier attaché à ce "pseudo-gaz" réside dans le fait que sa densité peut atteindre des valeurs importantes même à température nulle : en effet, contrairement au vrai gaz d'hélium 3,

ce "pseudo-gaz" ne se condense pas. Dans un tel système, les paramètres température et densité peuvent donc, dans une large mesure, être variés indépendamment, ce qui ouvre de grandes possibilités de voir se manifester des effets macroscopiques de statistique quantique.

D'autre part, la possibilité de faire varier la polarisation nucléaire des spins d'hélium 3, conjointement à l'obtention de basses températures (afin que la longueur d'onde thermique de de Broglie soit de l'ordre de la distance entre atomes ou de l'ordre de la portée des interactions entre atomes), doit permettre l'observation expérimentale d'effets liés à l'indiscernabilité des atomes. Cette affirmation de principe est toutefois assujettie à notre capacité à produire de fortes polarisations nucléaires (supérieures à 50%). Une technique permettant d'atteindre de telles polarisations nucléaires par pompage optique a été mise au point au laboratoire; des études récentes (voir appendice A), ont montré que l'on peut obtenir commodément des taux de polarisation nucléaire très élevés (jusqu'à 80%) dans des mélanges gazeux d'hélium 3 dans l'hélium 4 à température ambiante. Si le pompage optique est notre outil de prédilection au laboratoire, il convient toutefois de mentionner les méthodes alternatives qui permettent, elles aussi, de produire une polarisation nucléaire : la méthode dite de "brute force" qui requiert l'action conjuguée de très basses températures et de forts champs magnétiques ne s'applique commodément que dans le cas de concentrations en hélium 3 très faibles . Elle offre d'intéressantes possibilités d'étude d'un gaz dilué mais son domaine d'exploration reste limité. La méthode de fusion rapide d'un solide d'hélium 3 polarisé donne, quant à elle, à étudier les effets d'une forte polarisation nucléaire, mais en régime transitoire seulement ; les ambitions de cette méthode sont, malgré tout, très proches des nôtres. Enfin, une méthode originale de distillation, développée par G. Vermeulen, rend accessible l'étude des effets d'une forte polarisation nucléaire, en régime stationnaire, dans une solution diluée d'hélium 3 dans l'hélium 4 le long de la courbe de séparation de phase. Cette méthode nécessite l'emploi de basses températures et de fortes pressions. Les informations qu'on peut en retirer sont, à bien des égards, complémentaires des nôtres.

P.J. Nacher et G. Tastevin ont étudié, au cours des dix dernières années, les effets de la polarisation nucléaire sur les propriétés du gaz d'hélium 3 (observation d'ondes de spin dans l'hélium 3 gazeux polarisé, mesure de la pression de vapeur saturante de l'hélium 3 polarisé) et du liquide d'hélium 3 (mesure du temps de relaxation longitudinale). L'étude présentée ici sur les solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4 est, en quelque sorte, le prolongement naturel des études menées par le passé sur l'hélium 3 gazeux polarisé.

Cette étude repose sur une technique originale, développée par P.J. Nacher, qui permet de préparer des échantillons liquides fortement polarisés et à basse température (de l'ordre de $0.2K$). Cette technique consiste en la fabrication d'une orientation nucléaire dans le mélange gazeux à température ambiante suivie d'une liquéfaction d'une partie de l'échantillon. Une circulation entretenue des atomes d'hélium 3 entre le volume de pompage optique et la cellule d'étude à basse température permet de maintenir, en régime stationnaire, une forte polarisation nucléaire dans le liquide. Cette technique met en outre à profit les propriétés de non mouillage de l'hélium 3 sur le césium, métal alcalin très faiblement liant. La partie I traite en détail des divers aspects de cette technique expérimentale.

Dans les solutions polarisées d'hélium 3 dans l'hélium 4, des signaux RMN d'une grande richesse ont été observés. Ainsi, l'évolution libre de l'aimantation après une impulsion RMN se décompose en un spectre discret de fréquences, déplacées par rapport à la fréquence de Larmor. Ces raies de résonance correspondent à des modes spatiaux amortis d'aimantation. Nous pensons que ces effets proviennent de l'importance du champ dipolaire dans l'échantillon aimanté. Nous avons développé un modèle théorique des effets du champ dipolaire dans un échantillon de géométrie donnée. Ses prédictions sont en bon accord avec les traits majeurs de nos signaux expérimentaux. La partie II est intégralement consacrée à la présentation du modèle. La partie III présente les résultats expérimentaux. Dans le premier chapitre, ceux-ci sont confrontés au modèle précédent. Le second chapitre de cette même partie III décrit des résultats expérimentaux préliminaires concernant la description thermodynamique des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4 : l'observation de la séparation de phase dans des mélanges isotopiques polarisés et la mesure du potentiel chimique de l'hélium 4 en l'absence de polarisation nucléaire.

Partie I

Montage expérimental.

Chapitre 1

Préparation d'un échantillon liquide d'une solution d'hélium 3 polarisé dans l'hélium 4.

1.1 Une nouvelle source laser pour le pompage optique de l'hélium 3.

Le lecteur trouvera dans cette section des notes de lecture relatives à l'article (accepté pour publication dans la revue Applied Physics B) qui est présenté, dans son intégralité et en anglais, dans l'appendice A.

1.1.1 Une diode laser à $1.08\mu m$.

Cet article rapporte les résultats d'expériences réalisées au laboratoire sur le pompage optique de l'hélium 3 en utilisant une diode laser à la place du laser LNA, plus puissant (plusieurs $Watt$), qui est couramment utilisé à cette fin [Aminoff 89].

Les diodes laser en question ont été récemment développées par Spectra Diode Laboratories. Jusqu'à présent, à la longueur d'onde de $1.083\mu m$, la puissance maximale qu'elles peuvent délivrer est de $50mW$, lorsqu'elles opèrent en fonctionnement monomode. La fréquence

de la diode laser peut être continûment accordée sur toute la structure fine et hyperfine des raies $2^3S \rightarrow 2^3P$ de l'hélium 3 et de l'hélium 4 ; cet accord sélectif est obtenu simplement en contrôlant la température de la diode. De plus, une modulation rapide du courant d'alimentation de la diode peut provoquer un balayage, de petite amplitude (de l'ordre de $0.4GHz$) et de haute fréquence, de la fréquence laser : ce dispositif est utilisé pour pomper successivement, dans une séquence rapide, diverses classes de vitesse dans la largeur Doppler de l'hélium (qui est de l'ordre de $2GHz$ de largeur à mi hauteur).

1.1.2 Performances du pompage optique dans un gaz d'hélium 3 pur et dans des mélanges isotopiques.

Les expériences que nous avons réalisées montrent qu'en dépit de sa puissance limitée, cette nouvelle source laser est un outil efficace pour polariser l'hélium 3 dans un gaz d'hélium 3 pur aussi bien que dans un mélange gazeux d'hélium 3 dans l'hélium 4.

Pour l'ensemble des expériences décrites dans les articles des appendices A et B, l'hélium est contenu dans de petites cellules de verre scellées ; celles-ci sont cylindriques, de $5cm$ de diamètre et $5cm$ de hauteur. Elles sont remplies soit d'hélium 3 pur, soit d'un mélange gazeux d'hélium 3 dans l'hélium 4 ; leurs contenus diffèrent à la fois dans la composition du gaz et dans la pression totale, qui reste toutefois de l'ordre de $1torr$.

Dans le gaz d'hélium 3 pur, des polarisations nucléaires de l'ordre de 50% sont communément atteintes. Les meilleures conditions pour le pompage optique se situent à la limite du seuil d'extinction de la décharge et utilisent préférentiellement la raie C_8 à basse pression (en dessous de $1torr$) et la raie C_9 à plus forte pression. Par ailleurs, moduler la fréquence du laser s'est révélé être, dans le cas du gaz d'hélium 3 pur, un moyen commode d'augmenter les valeurs de la polarisation nucléaire d'environ 10%.

Dans le cas des mélanges isotopiques, le fait le plus marquant réside dans les fortes valeurs de polarisation nucléaire obtenues, celle-ci pouvant atteindre 80%, alors qu'elle ne dépasse pas 50% dans le gaz d'hélium 3 pur ; le lecteur pourra trouver dans le corps de l'article une explication physique à ce phénomène. Le pompage optique s'effectue, dans les mélanges isotopiques, préférentiellement sur la raie D_0 de l'hélium 4. Il est à noter que, dans ces mélanges, le temps de pompage est également plus court que dans le gaz pur. La modulation de la fréquence laser s'est avérée n'être d'aucun intérêt dans le cas des mélanges isotopiques.

Les résultats obtenus avec la diode laser, que nous venons de résumer brièvement ici, sont

très prometteurs ; ils ouvrent en particulier des perspectives nouvelles dans le domaine de l'Imagerie par Résonance Magnétique [Leduc 96]. Cependant, en dépit de la grande facilité d'utilisation de la diode laser, mais au regard de sa trop faible puissance actuelle, nous nous sommes servis du laser LNA pour l'ensemble des expériences sur les solutions liquides polarisées réalisées au cours de cette thèse.

1.2 Mesure optique de l'orientation nucléaire à température ambiante.

Dans cette section, nous commentons l'article (également accepté pour publication dans la revue Applied Physics B) concernant la mesure optique de la polarisation nucléaire d'un gaz d'hélium 3 optiquement pompé par l'analyse de la polarisation de la lumière qu'il émet. Cet article est reproduit, une fois encore en anglais, dans l'appendice B.

1.2.1 Analyse de la polarisation lumineuse : dispositif expérimental.

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

1.2.1.1 Principe de fonctionnement.

La polarisation circulaire de la lumière émise par la décharge est analysée au moyen d'un nouveau dispositif qui se substitue à l'ancien, constitué d'un photomultiplicateur et d'un polarimètre tournant, introduit par F.Laloë [Pavlovic 71]. L'actuel dispositif consiste en une lame quart-d'onde et un cube séparateur de polarisation, suivi de deux photodiodes qui détectent respectivement les composantes de polarisation σ_+ et σ_- de la raie sélectionnée par le filtre interférentiel.

L'amplitude de la décharge est modulée à $1kHz$ avec une profondeur de modulation de 30% ; les composantes modulées Σ et Δ de la somme et de la différence des photocourants sont mesurées à l'aide d'amplificateurs à détection synchrone. Le degré de polarisation circulaire de la lumière analysée s'écrit :

$$\mathcal{P} = \varepsilon \frac{\Delta}{\Sigma} \tag{1.1}$$

où ε vaudrait simplement 1 dans le cas d'un polarimètre idéal mais, dans la pratique, diffère légèrement de cette valeur en raison de diverses imperfections du dispositif réel (que nous allons expliciter maintenant).

Les deux paragraphes à venir, celui concernant la mesure des imperfections du polarimètre et celui concernant les éléments de l'électronique de détection font l'objet d'une analyse détaillée : les aspects qu'ils traitent ne sont en effet pas contenus dans l'article de l'appendice B.

1.2.1.2 Mesure des imperfections du polarimètre.

Les imperfections du polarimètre proviennent essentiellement à la fois de ses éléments optiques et de l'électronique de détection.

On peut modéliser le polarimètre de la façon réaliste suivante : appelons i_t et i_r les courants générés respectivement par les photodiodes D_t et D_r. Si le cube polarisateur séparait parfaitement deux polarisations orthogonales, i_t et i_r seraient simplement égaux aux courants i_+ et i_-, qui correspondent aux composantes, respectivement σ_+ et σ_- de la polarisation lumineuse. En fait, pour les cubes que nous avons utilisés, la polarisation S est presque parfaitement défléchie à 90° tandis que la polarisation P n'est transmise qu'à environ 95%, le reste étant défléchi. Par conséquent, i_t et i_r peuvent donc être écrits comme :

$$\begin{aligned} i_t &= g_t(1-\delta)I_p \\ i_r &= g_r(I_s + \delta I_p), \end{aligned} \tag{1.2}$$

où g_t et g_r sont les sensibilités des photodiodes respectivement, D_t et D_r, I_p et I_s les intensités de la lumière linéairement polarisée qui pénètre dans le cube polarisateur C et δ un paramètre sans dimension, de l'ordre de quelques pour cent, qui traduit l'asymétrie du cube. L'électronique de détection convertit les photocourants i_t et i_r en les tensions Δ et Σ (voir le paragraphe suivant). En négligeant tout signal de décalage sur chacune des deux voies, Δ et Σ s'expriment de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \Delta &= G_\Delta(i_t - i_r) \\ \Sigma &= G_{\Sigma t} i_t + G_{\Sigma r} i_r, \end{aligned} \tag{1.3}$$

formules dans lesquelles G_Δ exprime le facteur de conversion global sur la voie Δ, et $G_{\Sigma t}$ et $G_{\Sigma r}$ les facteurs de conversion des deux convertisseurs courant-tension nécessaires pour obtenir le signal Σ (voir le paragraphe suivant). Malgré le soin apporté pour apparier les résistances, un petit défaut d'équilibrage est susceptible d'exister. Il est mentionné dans le corps de l'article que, quand la lumière n'est pas polarisée, le polarimètre doit être positionné de façon à maximiser le signal Σ et à annuler le signal Δ. En fait, il est nécessaire de légèrement assombrir une lentille L sur le chemin du faisceau transmis ou du faisceau réfléchi pour remplir simultanément ces deux conditions. La condition $\Delta = 0$ conduit à l'équation suivante : $g_r(1+\delta) = g_t(1-\delta)$. En introduisant le taux de polarisation linéaire x défini comme $x = (I_p - I_s)/(I_p + I_s)$, l'expression du rapport Σ/Δ peut aisément être obtenue :

$$\frac{\Sigma}{\Delta} = \frac{G_{\Sigma t} - G_{\Sigma r}}{2G_\Delta} + \frac{G_\Sigma}{G_\Delta}\left(\frac{1}{x} + \delta\frac{1+x}{x}\right), \tag{1.4}$$

formule dans laquelle G_Σ est égal à $(G_{\Sigma t} + G_{\Sigma r})/2$.

On peut avoir accès au défaut d'équilibrage de l'électronique de détection en aveuglant les photodiodes l'une après l'autre ; quand D_t est aveugle, notre modèle prévoit que le rapport Δ/Σ est égal à $-G_\Delta/G_{\Sigma r}$ et, inversement, Δ/Σ est égal à $G_\Delta/G_{\Sigma t}$ quand D_r est aveugle. Les mesures que nous avons réalisées montrent que le défaut d'équilibrage est négligeable sur chaque dispositif : les deux rapports $G_\Delta/G_{\Sigma r}$ et $G_\Delta/G_{\Sigma t}$ ne diffèrent l'un de l'autre que de moins de 1%. Dans ce qui suit, nous supposerons par conséquent que $G_{\Sigma t} = G_{\Sigma r} = G_\Sigma$. De plus, le rapport G_Δ/G_Σ ne diffère de la valeur attendue de mille (voir le paragraphe suivant) que d'environ 2%. Le rapport Δ/Σ peut, en définitive, être écrit :

$$\frac{\Delta}{\Sigma} = \frac{G_\Delta}{G_\Sigma}\frac{x}{1+\delta(1+x)}. \tag{1.5}$$

La valeur du défaut de transmission δ du cube est déterminée en divisant les rapports Δ/Σ obtenus quand $x = +1$ ($\Delta/\Sigma = G_\Delta/G_\Sigma \times 1/(1+2\delta)$) et quand $x = -1$ ($\Delta/\Sigma = -G_\Delta/G_\Sigma$). Expérimentalement, des conditions de polarisation lumineuse sur la face d'entrée qui correspondent aux deux cas $x = \pm 1$ peuvent être générées en polarisant linéairement la lumière émise par la décharge, en utilisant un simple polariseur linéaire HN32 et en retirant la lame quart-d'onde du polarimètre. De tels mesures ont été effectuées ; elles conduisent à une valeur de δ de 4% quelle que soit la raie considérée.

En réalité, le polarimètre est conçu pour analyser des polarisations circulaires. Aussi, un modèle pertinent doit-il inclure les défauts de la lame quart-d'onde, notée QW dans le corps de l'article : nous pensons que ces défauts proviennent à la fois d'un positionnement imparfait de la lame quart-d'onde par rapport aux faces du cube C (positionnement caractérisé par l'angle β, égal à 45° dans des conditions idéales) ainsi que d'un mauvais retard induit par la lame quart-d'onde (retard caractérisé par l'angle θ égal à 90° pour un composant optique parfait opérant à la longueur d'onde voulue). Dans l'hypothèse où une lumière parfaitement circulairement polarisée, avec une polarisation exclusive (σ_+ *ou* σ_-) traverse une telle lame quart-d'onde non idéale, on peut aisément montrer que, à condition de négliger tous les autres défauts du polarimètre (à l'exception de ceux introduits par la lame quart-d'onde QW), le rapport Δ/Σ vaut simplement $G_\Delta/G_\Sigma \sin\theta \sin 2\beta$. Ceci indique que, dans le cas d'une lame quart-d'onde non idéale, la relation entre x et $\mathcal{P}$ ($\mathcal{P}$ est, rappelons-le, le taux de polarisation circulaire de la lumière analysée) s'écrit $x = \gamma\mathcal{P}$ où $\gamma = \sin\theta \sin 2\beta$. La formule 1.5 devient alors :

$$\frac{\Delta}{\Sigma} = \varepsilon(\mathcal{P})\mathcal{P}, \tag{1.6}$$

où

$$\varepsilon(\mathcal{P}) = \frac{G_\Delta}{G_\Sigma} \frac{\gamma}{1 + \delta(1 + \gamma\mathcal{P})}. \tag{1.7}$$

Parce que les taux de polarisation circulaire $\mathcal{P}$ que nous mesurons dans nos expériences pour les raies spectrales de l'hélium rouge et orange ($667.8nm$ et $587.6nm$) ne sont que de quelques pour cent seulement, ce qui nous intéresse est $\varepsilon(\mathcal{P} = 0)$, valeur que nous appellerons ε dans la suite (il s'agit du facteur de calibration déjà mentionné dans le texte) :

$$\varepsilon = \frac{G_\Delta}{G_\Sigma} \frac{\gamma}{1 + \delta}. \tag{1.8}$$

Ce facteur de calibration ε peut être déterminé en utilisant deux méthodes différentes.

Première méthode : elle consiste en la détermination de tous les paramètres G_Δ/G_Σ, γ et δ qui interviennent dans l'expression 1.8. Nous avons déjà expliqué comment G_Δ/G_Σ et δ ont été déterminés. Expliquons maintenant comment la valeur de $\gamma = \sin\theta \sin 2\beta$ peut être mesurée. Nous pouvons raisonnablement supposer que la lame quart-d'onde peut être positionnée avec une précision de l'ordre de 2° de sorte que $\sin 2\beta$ peut être pris égal à 1 (l'erreur que nous commettons ainsi est inférieure à 0.5%). La valeur de γ est déterminée en utilisant, une nouvelle fois, une analyse de polarisation linéaire. Nous avons envoyé sur

le polarimètre une lumière linéairement polarisée et avons fait tourner le polariseur linéaire dans son plan. Nous observons alors une modulation du rapport Δ/Σ. Les valeurs maximales de Δ/Σ peuvent être calculées et, en négligeant à nouveau tous les défauts du polarimètre autres que ceux de la lame quart-d'onde, elles s'écrivent :

$$\frac{\Delta}{\Sigma}_{\max} = \frac{G_\Delta}{G_\Sigma}\sqrt{\cos^2 2\beta + \cos^2\theta \sin^2 2\beta} \tag{1.9}$$

formule qui peut être approximée par :

$$\frac{\Delta}{\Sigma}_{\max} \simeq \frac{G_\Delta}{G_\Sigma}\cos\theta \sin 2\beta. \tag{1.10}$$

Ainsi, à partir des valeurs mesurées du rapport Δ/Σ, nous pouvons avoir accès à l'angle de retard θ, et par conséquent à γ et enfin à ε.

Seconde méthode : elle consiste en la mesure directe du rapport Δ/Σ quand la polarisation circulaire $\mathcal{P}$ est égale à ± 1. A partir de ces mesures, nous pouvons déduire les valeurs $\varepsilon(\mathcal{P}=+1)$ et $\varepsilon(\mathcal{P}=-1)$. La détermination de ε est alors immédiate puisque :

$$\frac{2}{\varepsilon} = \frac{1}{\varepsilon(\mathcal{P}=+1)} + \frac{1}{\varepsilon(\mathcal{P}=-1)}. \tag{1.11}$$

Expérimentalement, des conditions de polarisation lumineuse qui correspondent aux cas $\mathcal{P} = \pm 1$ sont obtenues avec une lumière circulairement et exclusivement polarisée, soit σ_+, soit σ_-. Aussi, avant d'entrer dans le polarimètre, la lumière de la décharge traverse-t-elle un polariseur circulaire fabriqué à partir d'un polariseur linéaire (une feuille de polaroïd HN32) suivi par une lame quart-d'onde dont la position est ajustée pour que ses lignes neutres soient à 45° de l'axe du polariseur linéaire. On tourne alors, dans son plan, le polariseur circulaire dont les deux deux éléments constitutifs tournent simultanément. Nous avons déjà dit que si la lumière incidente était parfaitement et exclusivement circulairement polarisée, le rapport Δ/Σ garderait une valeur constante inférieure à 1 pendant tout la durée de la rotation du polariseur circulaire. En fait, il apparaît que le rapport Δ/Σ est modulé. La valeur moyenne Δ/Σ_{moy} du rapport Δ/Σ est inférieure à 1 (typiquement de l'ordre de 0.85 à 0.95 suivant le dispositif considéré et la longueur d'onde sélectionnée) et l'amplitude de la modulation est typiquement de l'ordre de quelques pour cent. Nous avons interprété ces observations en considérant que les imperfections proviennent de la lame quart-d'onde QW du polarimètre naturellement, mais aussi de notre polariseur circulaire qui ne génère pas une lumière purement circulairement polarisée. Le taux de circularité de la lumière générée

par le polariseur circulaire peut être déterminé en insérant un analyseur linéaire entre le polariseur circulaire et le polarimètre et en le faisant tourner dans son plan. Contrairement à ce qu'on attend dans le cas d'une lumière purement circulairement polarisée, il est apparu sur les deux voies Δ et Σ une petite modulation d'où le taux de circularité de la lumière peut être déduit. Il est typiquement de l'ordre de 98%.

Les facteurs de calibration $\varepsilon(\mathcal{P}=+1)$ et $\varepsilon(\mathcal{P}=-1)$ sont obtenus à partir de ces mesures en divisant simplement la valeur moyenne Δ/Σ_{moy} du rapport Δ/Σ par le taux de circularité de la lumière. La valeur du facteur de calibration ε est alors déduite de la formule 1.11.

Nous avons déterminé le facteur de calibration ε en utilisant ces deux méthodes indépendantes : ε dépend à la fois du dispositif considéré et de la longueur d'onde sélectionnée et vaut typiquement 0.95.

1.2.1.3 Détails concernant l'électronique de détection.

Le principe de la détection électronique est assez simple : les deux photodiodes D_t et D_r délivrent deux courants que nous avons appelés i_t et i_r (égaux à i_+ à i_- dans l'hypothèse où à la fois le polarimètre et l'électronique de détection sont parfaits). Nous souhaitons mesurer simultanément la somme et la différence de ces deux courants. En fait, ce que nous mesurons avec l'électronique de détection telle qu'elle est décrite ici, ce sont des signaux proportionnels à la somme et à la différence de ces deux photocourants, signaux que nous avons appelés Δ et Σ.

Commençons par expliquer comment le signal Δ est généré. La différence des deux photocourants i_t et i_r est simplement obtenue en connectant les deux photodiodes de telle façon que leurs polarités soient inversées. La valeur d'un photocourant est estimée à $10^{-9}A$ et la différence des photocourants est de l'ordre de $10^{-11}A$. De plus, la technique de modulation requiert que les signaux soient détectés à l'aide d'amplificateurs à détection synchrone. Ceux dont nous disposons ne possèdent que des entrées en tension : les photocourants doivent donc être, au préalable, convertis en tension et amplifiés.

La conversion courant tension est réalisée en utilisant un amplificateur opérationnel et, comme éléments de rétroaction, l'association en parallèle d'une résistance R_f et d'une capacité C_f. Nous avons choisi pour l'amplificateur opérationnel le modèle AD745 commercialisé par Analog Devices, qui offre de remarquables performances de faible bruit (bruit d'entrée en courant de 5 $fA/\sqrt{Hz}$ et bruit d'entrée en tension de 3 $nV/\sqrt{Hz}$) ainsi qu'une large bande

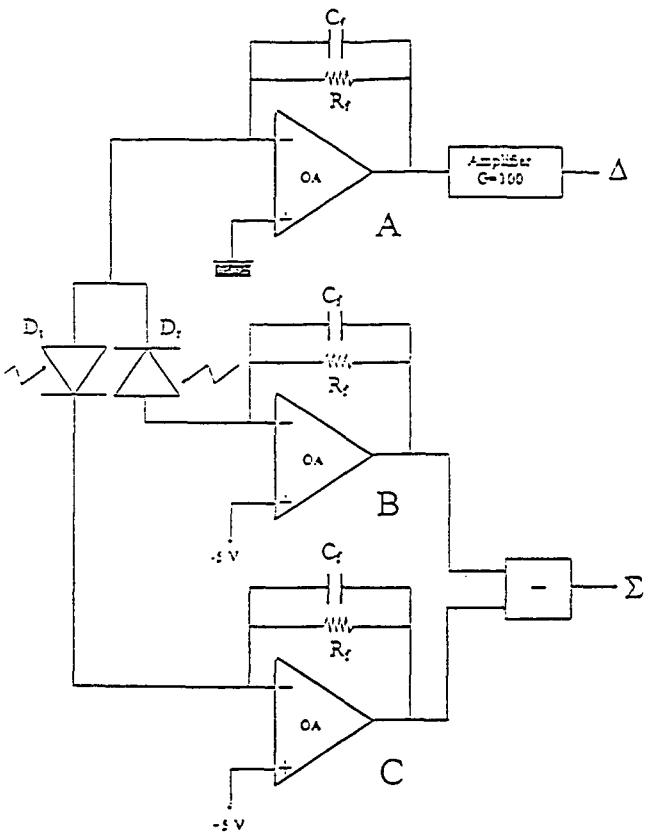


Figure 1.1: Schéma du dispositif électronique utilisé dans l'analyse de la polarisation circulaire de la lumière émise par le gaz polarisé. Les valeurs de R_f et de C_f sont respectivement $1M\Omega$ et $20pF$ pour le convertisseur A et $100k\Omega$ et $15pF$ pour les convertisseurs B et C.

passante ($20\ MHz$). Dans le cas du convertisseur courant-tension repéré par la lettre A (voir la figure 1.1), c'est la résistance $R_f = 1\ M\Omega$ qui détermine le facteur de conversion entre la tension de sortie et le courant d'entrée. Associée avec la capacité de rétroaction C_f, elle forme un filtre passe-bas dont la constante de temps est $R_f C_f$. Les photodiodes que nous avons utilisées peuvent être modélisées comme l'association en parallèle d'une résistance (appelée résistance de shunt R_{sh} de l'ordre de $0.1\ G\Omega$) et d'une capacité (appelée capacité terminale C_t de l'ordre de $400\ pF$). Le circuit est conçu avec une capacité de rétroaction $C_f = 20\ pF$, suffisamment petite pour faire en sorte que $1/(R_f C_f)$ soit très supérieure à la fréquence de modulation ($1\ kHz$) mais aussi suffisamment grande pour éviter le problème connu sous la terminologie de "gain peaking" ; ce phénomène se produit quand les capacités terminale C_t et de rétroaction C_f forment un amplificateur instable [Peyton]. Afin de réduire le bruit

d'entrée en tension, nous avons dû faire décroître la valeur de la capacité terminale C_t ; ceci est obtenu en appliquant une tension inverse de $5V$ à chaque photodiode. De plus, un soin particulier est apporté pour minimiser les erreurs d'offset : un "anneau de garde" comme il est décrit dans la référence [Peyton], assure que les courants de fuite s'écoulent dans l'anneau et pas dans l'entrée.

Avec ces précautions, la conversion courant-tension est rendue aussi fiable que possible. Elle s'effectue avec un facteur de conversion de $10^6 V/A$. Le bruit que nous avons mesuré avec ce dispositif est de l'ordre de $10^{-7} V/\sqrt{Hz}$ correspondant à un bruit d'entrée en courant équivalent de l'ordre de $10^{-13} A/\sqrt{Hz}$. Cette valeur, bien supérieure au bruit d'entrée en courant de l'amplificateur opérationnel ($5.10^{-15} A/\sqrt{Hz}$) et sensiblement supérieure au NEP (Noise Equivalent Power) de nos photodiodes ($10^{-14} A/\sqrt{Hz}$) est de l'ordre de grandeur du bruit Johnson généré par la résistance R_f, ce qui indique que, à 1 kHz, la source dominante de bruit dans notre circuit est la résistance de rétroaction R_f.

Finalement, un étage standard de pure amplification, de gain 100, est utilisé pour amener le facteur de conversion total sur la voie Δ à 10^8 V/A.

En ce qui concerne le signal Σ, un convertisseur courant-tension (noté B et C sur la figure 1.1) de facteur de conversion 10^5 V/A est utilisé pour chaque photodiode. Celles-ci étant connectées tête-bêche, c'est la différence de leurs tensions de sortie qui produit un signal proportionnel à la somme des photocourants. Une telle opération de soustraction est réalisée, de manière classique, en utilisant un seul amplificateur opérationnel ainsi que des résistances.

1.2.2 Calibration de la technique pour la raie orange ($587.6nm$).

La technique d'analyse de la polarisation lumineuse a été étudiée en grand détail dans le cas de la raie rouge de l'hélium à $667.8nm$ [Bigelow 92]. Nous avons montré que cette méthode peut être étendue au cas d'une autre raie de fluorescence de l'hélium : la raie orange à $587.6nm$. Nous avons calibré cette technique dans la gamme des pressions comprises entre 0.4 et $6.5torr$. Contrairement aux résultats de Bigelow et al. sur la raie rouge à $667.8nm$, nous trouvons un facteur de calibration M/P_{or} à partir duquel, en connaissant le taux de polarisation circulaire $\mathcal{P}_{or}$ de la raie orange à $587.6nm$, on peut calculer la polarisation nucléaire, qui dépend assez peu de la pression du gaz mais sensiblement des conditions de décharge (voir le tableau 1 de l'appendice B). Comme il est discuté en conclusion de

l'article de l'appendice B, l'utilisation de l'une ou l'autre des raies spectrales, voire des deux simultanément, pourra être préférée suivant les circonstances expérimentales.

1.3 Cryogénie.

1.3.1 Dispositif expérimental.

Les expériences sur les solutions d'hélium 3 dans l'hélium 4 effectuées au cours de cette thèse ont été menées dans le réfrigérateur à dilution construit par G. Vermeulen et M. Cornut et dont les caractéristiques sont détaillées dans la thèse de cette dernière [Cornut 93]. Le réfrigérateur, entièrement conçu et réalisé au laboratoire, est aussi peu magnétique que possible. Il est, de plus, très souple d'utilisation, le refroidissement depuis la température ambiante jusqu'à sa température minimale de fonctionnement ne nécessitant que quelques heures. Cette température minimale est de l'ordre de $0.04K$. Elle ne constitue certes pas une performance exceptionnelle pour un réfrigérateur à dilution, mais ne représente pas non plus une limitation à la température la plus basse atteinte par l'échantillon ; celle-ci n'est en effet limitée que par la difficulté d'avoir de bons contacts thermiques à travers le verre dont sont faites les cellules (voir le paragraphe 1.4).

Un déménagement global de l'expérience nous a permis un changement de configuration par rapport à celle décrite dans la thèse de M. Cornut [Cornut 93] : l'insert qui porte tous les organes vitaux du réfrigérateur à dilution et la cellule expérimentale est désormais fixe. Il n'y a plus besoin à chaque intervention de le désolidariser des lignes de pompage puisque c'est désormais le vase cryogénique qui est amovible. Ce vase est lui aussi nouveau : nous avons substitué aux anciens vases à liquides cryogéniques en verre un vase fabriqué par Precision Cryogenics Systems totalement amagnétique puisqu'il est en aluminium et fibre de verre. C'est à la fois un vase à azote et un vase à hélium, les deux compartiments étant isolés par du vide. Il possède une garde d'azote qui permet une grande économie d'hélium lors du refroidissement de l'expérience. Seule modification apportée au réfrigérateur même, la puissance frigorifique du pot à $1K$ a été diminuée passant de $100mW$ à environ $30mW$. Certes, la liquéfaction de l'hélium au moment du démarrage du réfrigérateur prend de ce fait plus de temps qu'auparavant mais il nous est désormais possible d'utiliser pour le circuit du pot à $1K$ une pompe de plus faible débit et d'autre part la consommation globale en hélium se trouve diminuée. Dans cette nouvelle configuration, l'autonomie, dilution en route, entre

deux transferts d'hélium successifs est d'environ 36 heures.

1.3.2 Mesure des températures.

1.3.2.1 Nature des thermomètres utilisés.

Pour toutes les mesures que nous avons réalisées sur les solutions d'hélium 3 dans l'hélium 4, nous avons déterminé les températures des différentes parties de l'expérience au moyen de résistances au carbone. Celles-ci sont entourées d'un fil de cuivre servant à la connexion thermique et noyées dans une résine époxyde (Stycast 2850 FT). Le fil de cuivre est enroulé autour de la cellule et maintenu en place par du vernis GE 7031 (General Electric). Insistons donc bien sur le fait que tous les thermomètres sont situés hors de la cellule : nous ne pouvons que mesurer la température des différentes parties du pyrex et non de l'échantillon liquide lui-même. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

Le tableau ci-dessous résume les caractéristiques des différents types de résistances utilisées.

Type	Valeur 300 K	Températures usuelles
Allen-Bradley	$\sim 100\Omega$	entre 1 et 10 K
Allen-Bradley	$\sim 22\Omega$	entre 0.5 et 5 K
Matsushita	$\sim 100\Omega$	entre 0.1 et 1 K

Table 1.1: Caractéristiques des thermomètres utilisés.

Nous avons disposé sur les branches verticales de la cellule (voir paragraphe 1.4.3) des résistances Allen-Bradley 22Ω, et au niveau de la zone la plus froide de la cellule (la zone d'étude) une résistance Matsushita.

Ces résistances sont mesurées avec un simple montage "2 fils" à l'aide d'un pont de mesure de résistances AVS 46 (RV-Elektroniikka) dont les précautions ordinaires d'emploi sont expliquées dans la thèse de M. Cornut [Cornut 93]. En particulier, la puissance nécessairement introduite pour la mesure des résistances est de l'ordre de $1nW$ et ne perturbe pas les mesures de température.

1.3.2.2 Calibration des thermomètres.

La calibration de tous nos thermomètres Allen-Bradley a été une nouvelle fois effectuée en décembre 1994 par la mesure des pressions de vapeur saturante de l'hélium 4 et de l'hélium 3, entre 0.4 et $4K$. Pour tous nos thermomètres Allen-Bradley, l'écart à la calibration précédente (effectuée en 1993) n'excède pas, jusqu'à $2K$ environ, la valeur de $5mK$. L'expression mathématique que nous avons utilisée pour effectuer la conversion résistance / température s'écrit :

$$T = T_0 \left[\log_{10}\left(\frac{R}{R_0}\right)\right]^{-\alpha} \tag{1.12}$$

Cette expression, contrairement aux formules de conversion totalement empiriques utilisées précédemment [Cornut 93] présente, comme le fait remarquer Siqueira [Siqueira 91] [Schoepe 89] [Koike 85], l'heureux avantage de reposer sur des bases physiques. En effet, la résistance du germanium dopé obéit à une loi du type "loi d'activation" puisqu'elle vaut $R(T) = R_0 \exp\left(\frac{T}{T_0}\right)^{\alpha}$ avec $\alpha = 1/2$. Que dans le cas de nos résistances au carbone, la loi qui régit l'évolution de la résistance soit un peu différente (en particulier le coefficient α s'écarte très sensiblement de la valeur $\alpha = 1/2$) ne doit pas pour autant condamner cette interprétation en terme d'énergie d'activation. En outre, cette expression est extrêmement commode puisqu'elle est inversible et ne fait appel qu'à trois paramètres. Pour mémoire, le tableau suivant rassemble les paramètres T_0, R_0 et α obtenus après analyse de la calibration de décembre 1994 des dix résistances Allen-Bradley 22Ω que nous avons utilisées dans nos expériences.

Il est à noter que dans cette analyse, le coefficient α est fixé à la valeur 0.7. L'écart en température maximal entre ce type de conversion et une conversion empirique du type d'un polynôme de degré 6 s'est avéré inférieur à $2mK$, jusque vers $2K$, soulignant ainsi la pertinence de cette nouvelle approche.

Pour les mesures purement thermiques réalisées sur les solutions non polarisées d'hélium 3 dans l'hélium 4 (voir paragraphe 8.2), mesures dont la gamme de température descend jusqu'à $80mK$ environ, nous avons utilisé, pour la mesure des températures les plus froides, deux résistances Matsushita dont il a fallu établir une calibration jusqu'à d'aussi basses températures (où l'étalonnage par la mesure de la pression de vapeur d'hélium n'est plus possible). Cette calibration a été effectuée a posteriori à l'aide de deux résistances au germanium mesurées en "4 fils" (Lake Shore Cryotronics GR-200A), l'une vendue calibrée entre

Résistance	α	R_0 (Ω)	T_0 (mK)
AB1	0.7	21.915	3108
AB2	0.7	22.799	3020
AB3	0.7	21.691	3060
AB4	0.7	21.116	3181
AB5	0.7	22.201	3059
AB6	0.7	23.196	2949
AB7	0.7	21.486	3164
AB8	0.7	23.251	3114
AB9	0.7	23.375	3094
AB10	0.7	22.990	3035

Table 1.2: Paramètres des calibrations des résistances Allen-Bradley 22 Ω.

$50mK$ et $5K$ et l'autre pas.

Il nous a fallu prendre des précautions particulières pour mesurer de façon convenable des températures inférieures à $100mK$ avec ces résistances au germanium :

-la première de ces précautions consiste à suffisamment bien thermaliser à la fois le corps des résistances et leurs fils de mesure. En pratique, nous avons enfoui sur toute leur longueur les résistances dans une pièce en cuivre autour de laquelle nous avons enroulé et collé au vernis GE les quatre fils de mesure. L'ajustement des trous dans la pièce de cuivre doit être assez serré, le contact thermique entre le corps de la résistance et la pièce de cuivre étant assuré à l'aide d'un peu de graisse Apiezon AP 100.

-la deuxième précaution consiste à éviter que les résistances ne se réchauffent à cause des champs radiofréquence qui règnent autour de l'expérience. A cet égard, utiliser des fils blindés se révèle indispensable de même que veiller à ce que le circuit de mesure ne présente aucune boucle de masse. En outre, le pont de mesure de résistances fonctionnant sur le principe d'un amplificateur à détection synchrone opérant à la fréquence de $25Hz$, nous avons implanté sur chacun des quatre fils de mesure un filtre passe-bas du modèle de celui représenté sur la figure 1.2. Lorsque les résistances à mesurer sont de l'ordre de $1k\Omega$ (correspondant à une température d'environ $100mK$), un tel filtre élimine une grande partie des champs radiofréquence parasites. Rappelons qu'un filtrage est également en place pour tous les autres thermomètres (Allen-Bradley et Matsushita) ; il n'est constitué que par une simple capacité

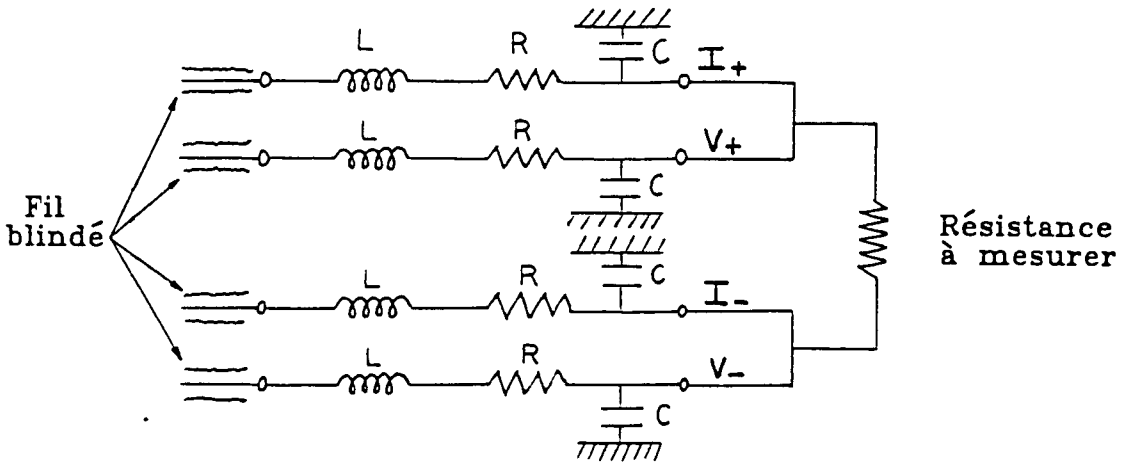


Figure 1.2: Filtre réalisé pour la mesure des résistances au germanium (R=10$k\Omega$, L=4.7mH, C=10nF). L'ensemble des composants est dans un blindage métallique au plus près du cryostat.

de $1nF$ placée à $300K$ en parallèle avec la résistance à mesurer. Ces mesures ont permis d'étalonner la résistance au germanium non calibrée et de préciser la calibration, dans la gamme des plus basses températures, des résistances Matsushita et des Allen- Bradley 22Ω que nous avons utilisées dans nos expériences. Les paramètres de la conversion résistance / température pour les résistances Matsushita sont donnés dans le tableau suivant.

Résistance	α	R_0 (Ω)	T_0 (mK)
Ma 47	-0.50	136.65	235.1
Ma 26	-0.55	151.13	216.6

Table 1.3: Paramètres de la calibration des résistances Matsushita.

1.3.2.3 Discussion : précision ou sensibilité.

Comme nous l'avons déjà dit, dans le cadre de nos expériences sur les solutions polarisées contenues dans les cellules en verre, on ne mesure en fait que la température du verre et non celle de l'échantillon liquide lui-même. Cette limitation n'est en pratique pas gênante en raison de la faiblesse des courants de chaleur qui circulent dans la cellule au niveau de la région de mesure RMN. Elle peut en revanche entâcher d'une erreur pouvant aller jusqu'à une centaine de mK les mesures de température faites au niveau des branches verticales de

la cellule où, dans certaines conditions, peuvent être entretenus à dessein de forts courants de chaleur (voir paragraphe 8.1).

Ce manque d'exactitude sur la mesure de la température de l'échantillon liquide n'est, à ce stade, guère gênant pour les mesures réalisées sur les solutions polarisées : ni celles réalisées sur les effets du champ dipolaire pour lesquelles la détermination absolue de la température est accessoire, ni celles projetées sur les effets de la polarisation nucléaire sur le potentiel chimique de l'hélium 4 pour lesquelles seule une bonne sensibilité est requise et où, là encore, la précision absolue est moins importante. Il en va tout autrement des mesures thermodynamiques (mesures du potentiel chimique de l'hélium 4) effectuées sur les solutions non polarisées (voir le paragraphe 8.2) ; celles-ci requièrent en effet la meilleure précision absolue possible, et justifient le soin tout particulier que nous avons apporté à la thermométrie pour ces expériences.

1.4 Les doubles cellules.

1.4.1 Introduction.

Notre méthode de préparation d'un échantillon liquide d'une solution fortement aimantée d'hélium 3 dans l'hélium 4 repose sur l'action conjuguée du pompage optique de l'hélium 3 en phase gazeuse, qui permet d'accumuler des noyaux d'hélium 3 dans un état de spin déterminé, et d'un refroidissement, dont l'effet est de provoquer la liquéfaction d'une fraction de l'échantillon. Cette méthode n'est pas nouvelle ; elle a déjà été utilisée pour la préparation d'échantillons liquides d'hélium 3 pur polarisé [Tastevin 88], et même de solutions d'hélium 3 polarisé dans l'hélium 4 [Tastevin 92b]. Un pas décisif a été franchi lorsque put être maintenue en régime stationnaire une importante polarisation nucléaire dans des solutions liquides d'hélium 3 dans l'hélium 4 [Candela 94]. Les expériences effectuées au cours de cette thèse ont toutes été réalisées selon ce mode d'opération en régime stationnaire.

1.4.2 Caractéristiques géométriques.

Toutes les expériences sur les solutions polarisées d'hélium 3 dans l'hélium 4 ont été réalisées dans deux cellules expérimentales, appelées cellule $n^0 1$ et cellule $n^0 2$, et représentées respectivement figures 1.3 et 1.4 (sur la figure 1.4, seule la partie inférieure de la cellule

est représentée). Toutes deux, intégralement fabriquées en pyrex, comportent un volume de pompage optique à température ambiante, de forme cylindrique, de $5cm$ de diamètre et $10cm$ de hauteur, une partie à basse température, que nous appellerons la cellule d'étude, destinée à contenir le liquide, et deux tubes de connexion permettant la circulation du gaz. Elles diffèrent géométriquement à la fois dans la forme de la cellule d'étude et dans les tubes de connexion qui n'ont ni les mêmes longueurs ni les mêmes diamètres.

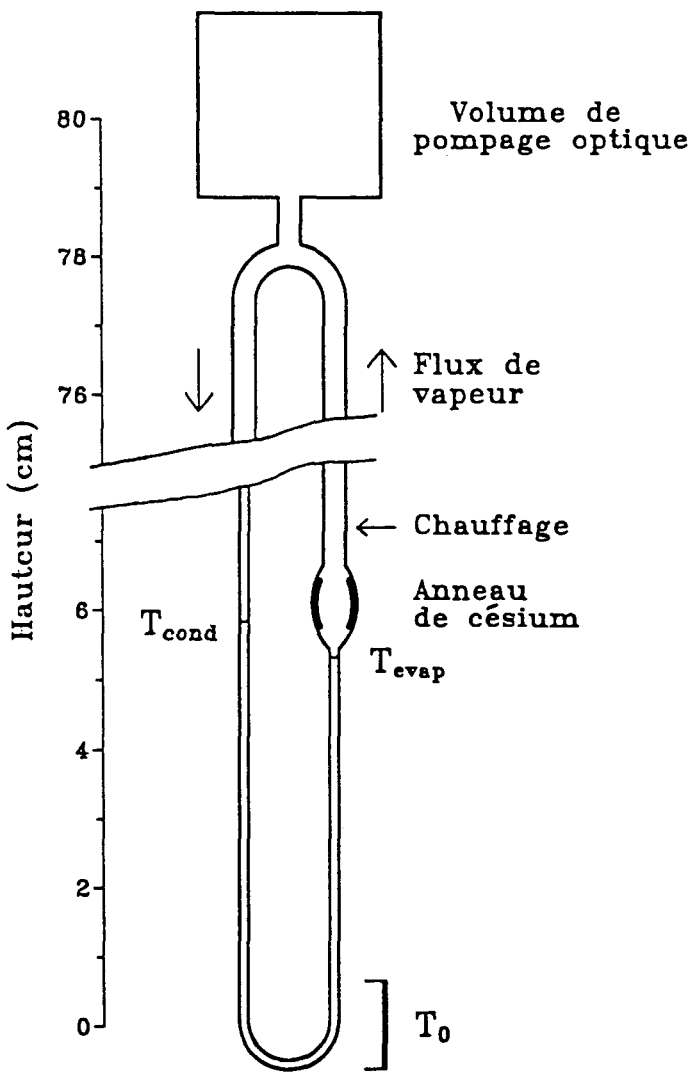


Figure 1.3: Schéma d'ensemble de la cellule expérimentale n°1, en forme de tube en U.

La cellule d'étude de la cellule $n^0 1$ a la forme d'un tube en U très étiré, fabriqué à partir de tubes capillaires de verre de rayon intérieur $0.3mm$. Le rayon de courbure du tube en U lui-même est d'environ $7.5mm$ et les branches verticales sont distantes d'environ $15mm$.

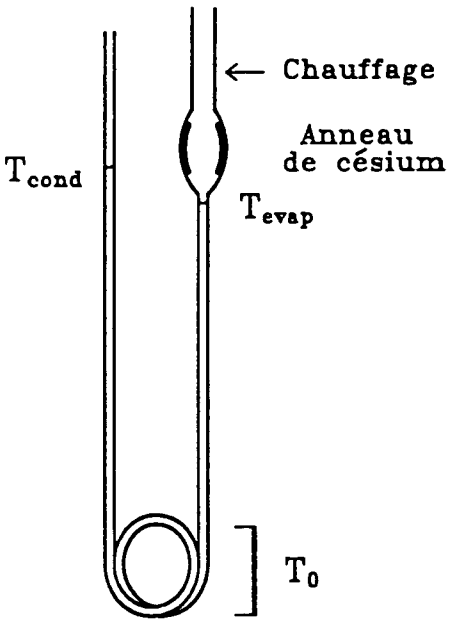


Figure 1.4: Schéma de la cellule d'étude de la cellule expérimentale n°2, en forme de tortillon circulaire.

La cellule d'étude de la cellule $n^0 2$ a, quant à elle, la forme d'un tortillon circulaire d'un tour et demi dont le rayon de courbure est comparable à celui du tube en U. Il est fabriqué à partir de tubes capillaires de mêmes dimensions que ceux utilisés pour la cellule $n^0 1$.

De nombreuses précautions sont prises au moment du soufflage, nettoyage et remplissage des cellules [Nacher 87]. Le détail des quantités d'hélium introduites sera donné plus loin. Conjointement à l'hélium, une petite quantité de césium métallique est introduite dans chaque cellule. Le césium se substitue à l'hydrogène moléculaire précédemment employé [Tastevin 87] ; son rôle sera décrit et analysé dans un paragraphe spécifique.

1.4.3 Thermalisation des cellules au réfrigérateur.

A l'entrée dans la boîte à vide, les deux branches verticales de la cellule sont à une température de l'ordre de $4K$. Une première connexion thermique à l'évaporateur permet d'abaisser la température quelques centimètres au dessus du niveau du liquide dans chaque branche de la cellule. Une seconde connexion thermique, cette fois-ci à la boîte à mélange, fixe la température la plus froide de la cellule d'étude. Chacune de ces connexions est réalisée par une dizaine de fils de cuivre de diamètre $0.35mm$ enroulés sur chaque branche de la cellule et

collés au vernis GE. Les connexions thermiques vers la boîte à mélange sont différentes pour les deux cellules étudiées : elles sont situées à la jonction des branches verticales et du fond du tube en U pour la cellule $n^0 1$, et sur les deux parties horizontales inférieures du tortillon circulaire pour la cellule $n^0 2$.

Ces thermalisations imposent une carte de température à la cellule d'étude ; au niveau des thermalisations situées sur les branches verticales, la température est de l'ordre de $1K$. La partie de chacune des cellules comprise entre les deux thermalisations vers la boîte à mélange (qui contient la portion horizontale inférieure pour la cellule $n^0 1$ et la portion horizontale supérieure pour la cellule $n^0 2$) se trouve être, quant à elle, la zone la plus froide de l'échantillon ; nous la considèrerons comme isotherme et appellerons sa température T_0. Les faibles conductivités thermiques de l'échantillon liquide lui-même [Ptukha 61] et du pyrex qui le contient autorisent le liquide, présent dans cette partie de la cellule, à n'être refroidi que jusqu'à la température de $0.18K$. La gamme de températures où évolue ordinairement T_0 est comprise entre 0.18 et $0.5K$.

Le profil des températures ainsi défini par les thermalisations conditionne la distribution des atomes dans nos cellules fermées.

1.4.4 Distribution des atomes d'hélium 3 dans une cellule.

Nous présentons ici les grandes lignes d'un modèle de distribution d'un nombre donné d'atomes entre une phase liquide et une phase vapeur dans une cellule fermée. Ce modèle permet en particulier d'estimer les conditions de concentration et de pression des deux côtés des interfaces liquide vapeur ainsi que la concentration en hélium 3 dans la partie la plus froide de l'échantillon.

La distribution des atomes dans le liquide, qui est superfluide aux températures considérées, est conditionnée par le fait que le potentiel chimique de l'hélium 4, $\mu_4(x_3, T)$, est uniforme dans tout le liquide. Cette condition impose une relation entre les valeurs locales de la concentration x_3 en hélium 3 dans le liquide, et la température T. La carte des températures le long de l'échantillon est calculée à partir des conductivités thermiques de l'hélium liquide et de la cellule qui le contient. En ce qui concerne la phase vapeur, la pression et la composition de la vapeur saturante sont déterminées par la température et la composition du liquide à l'interface liquide-vapeur en considérant les mélanges d'hélium comme des solutions régulières (voir paragraphe 8.2.4).

Ce calcul est détaillé dans une large mesure dans la thèse de M.Cornut [Cornut 93] ; il fait appel à des grandeurs thermodynamiques des solutions d'hélium 3 dans l'hélium 4 (telles que la pression osmotique) ainsi qu'à des propriétés relatives à l'hélium 4 pur (telles que la pression des excitations de l'hélium 4 ou pression fontaine), grandeurs que nous avons extraites des références [Ghozlan 79] et [Sudraud 78]. Ce modèle utilise en outre, comme paramètres, le volume de la cellule ainsi que les quantités respectives des deux isotopes introduites dans la cellule au moment du remplissage.

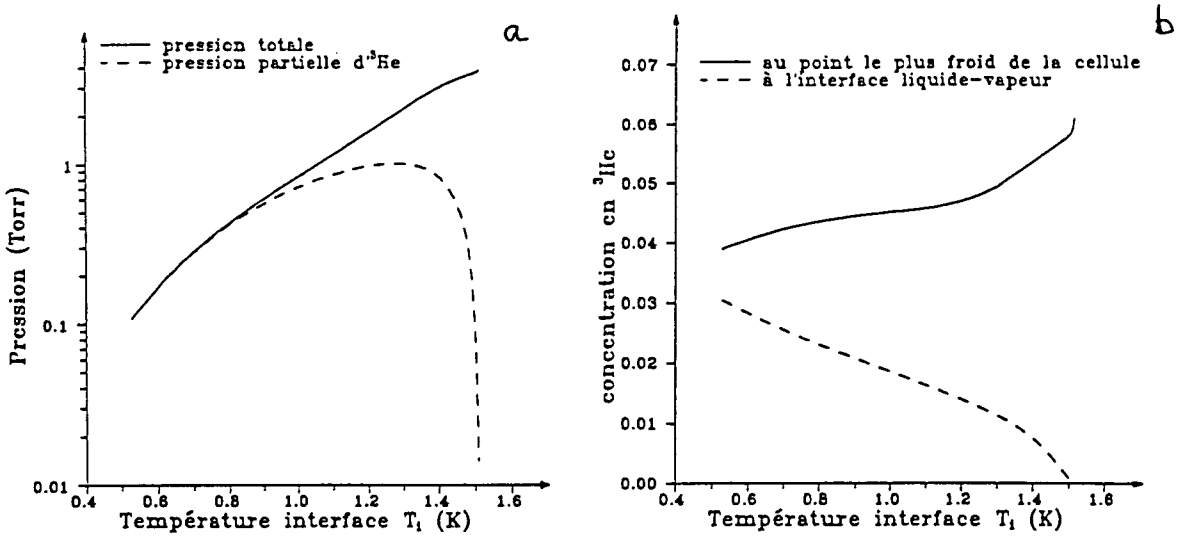


Figure 1.5: a: Résultats du calcul des pressions totale et partielle en ^{3}He au niveau de l'interface liquide-vapeur. b: Résultats du calcul de la concentration en ^{3}He dans le liquide au niveau de l'interface liquide-vapeur et au point le plus froid de la cellule.

La figure 1.5 présente les résultats du calcul de la distribution des atomes d'hélium 3 entre les phases liquide et vapeur, en fonction de la température de l'interface liquide-vapeur T_i. Ce calcul a été réalisé pour une température de la zone froide T_0, fixée à $0.4K$, et pour le jeu de paramètres correspondant aux conditions expérimentales de remplissage de la cellule $n^0 2$. Il apparaît en particulier sur la figure 1.5b que chauffer l'interface provoque une augmentation de la concentration en hélium 3 dans les volumes les plus froids de la cellule d'étude (courbe en trait plein), aux dépens des autres régions (la concentration en hélium 3 dans le liquide à l'interface est représentée en trait pointillé). Cet effet est connu sous le nom d'effet "heatflush". La figure 1.5a montre corrélativement combien la composition de la phase vapeur change brutalement, passant d'hélium 3 presque pur à de l'hélium 4 presque

pur, lorsque l'on fait varier la température de l'interface de $0.8K$ à $1.4K$.

Nous aurons l'occasion de revenir sur l'effet "heatflush" au cours du paragraphe 8.2 car nous l'avons mis à profit pour mesurer le potentiel chimique de l'hélium 4 dans des solutions *non* polarisées d'hélium 3 dans l'hélium 4.

Sur la figure 1.5a, on peut encore remarquer que si les deux interfaces liquide-vapeur présents dans chacune des branches verticales de la cellule d'étude ne sont pas à la même température, une différence de pression existe entre ces deux interfaces : c'est là une des clés du succès de nos expériences que nous éclaircirons au paragraphe 1.4.6.

1.4.5 Remplissage des cellules.

Les quantités d'hélium 3 et d'hélium 4 introduites au moment du remplissage sont choisies à l'aide des résultats du modèle que nous venons de présenter, de la manière suivante : la quantité totale d'hélium introduite sous forme gazeuse est telle qu'elle donne, lorsque presque tout le gaz est liquéfié, un volume de liquide qui remplit l'intégralité du volume V_{etude} de la cellule d'étude (le reste de la cellule est alors rempli de vapeur). La proportion relative des deux isotopes conditionne, quant à elle, la concentration en hélium 3 dans la zone la plus froide du liquide ainsi que la relation entre la température de l'interface liquide-vapeur et la pression de la vapeur saturante. Notre souhait est de pouvoir étudier, dans la gamme de températures T_0 comprises entre 0.2 et $0.5K$, des solutions polarisées d'hélium 3 dans l'hélium 4, dont la concentration moyenne serait de l'ordre de quelques pourcents. Par ailleurs, les exigences du pompage optique sont telles que les meilleures performances sont obtenues lorsque la pression dans le volume de pompage optique est légèrement inférieure à $1torr$, la liquéfaction du gaz polarisé se produisant alors à une température de l'ordre de $1K$.

Ces différentes contraintes expérimentales permettent de justifier des conditions de remplissage de nos cellules. Celles-ci sont résumées dans le tableau suivant.

Cellule expérimentale	V_{etude} (mm^3)	^{3}He (μmol)	^{4}He ($mmol$)
Cellule n^0 1	15	35	1.5
Cellule n^0 2	45	90	2.5

Table 1.4: Remplissage des cellules expérimentales.

On peut aisément remarquer que la proportion d'hélium 3 dans la cellule $n^0 2$ est supé-

rieure à celle dans la cellule $n^0 1$. Cette augmentation de la quantité d'hélium 3 répond à la possibilité envisagée d'accroître, afin de pouvoir traverser la limite de la séparation de phase, la concentration en hélium 3 du liquide dans la zone la plus froide de la cellule d'étude. La forme elle-même de la cellule d'étude de la cellule $n^0 2$ est conçue à cette fin : le tortillon circulaire est en effet prévu pour que soit recueillie et analysée, dans sa partie horizontale supérieure, la phase riche en hélium 3 qui surnage, parce qu'elle est plus légère, au dessus de la phase diluée. Les expériences concernant la séparation de phase (procédure expérimentale et observations préliminaires) sont rapportées dans le paragraphe 8.1.

1.4.6 Circulation des atomes d'hélium 3.

Un aspect important de la technique que nous utilisons consiste à maintenir une circulation continue des atomes d'hélium 3 entre le volume de pompage optique et l'échantillon liquide. Celle-ci doit s'effectuer à un rythme suffisamment rapide, pour passer outre les processus de relaxation de spin, et permettre un transfert efficace de la polarisation nucléaire de l'hélium 3, obtenue par pompage optique en phase gazeuse, à l'échantillon liquide.

1.4.6.1 Origine de la circulation.

Le flux de vapeur est entretenu par une différence de pression de vapeur saturante au niveau des deux interfaces liquide-vapeur présents dans chaque branche verticale de la cellule. Comme nous l'avons déjà mentionné, cette différence est elle-même induite par une différence de température des interfaces. Ces deux températures, notées T_{evap} et T_{cond} sur les figures 1.3 et 1.4, peuvent être contrôlées indépendamment au moyen de petits chauffages, simples enroulements bifilaires de fil résistif de manganine (NW 36 commercialisé par Lake Shore) autour d'un petit mandrin de cuivre de $3mm$ de diamètre et $6mm$ de longueur. Le fil résistif est replié en deux et "tortillé" avant d'être enroulé, afin de minimiser le champ magnétique créé par le courant de chauffage. Un fil de cuivre de diamètre $0.35mm$, dont une extrémité est collée à la cellule par du vernis GE et l'autre brasée dans le mandrin, permet d'apporter à la cellule la chaleur dissipée par le fil résistif de manganine. Il faut toujours s'assurer que $T_{evap} > T_{cond}$, de telle sorte que l'hélium 3 est évaporé de manière continue au niveau de l'interface dont la température est T_{evap}, et condensé au niveau de l'autre interface dont la température est T_{cond}. En fait, la figure 1.5a révèle qu'une différence de pression de l'ordre de $0.1torr$ peut être générée par une faible différence de température entre T_{evap} et T_{cond} ;

ainsi, T_{evap} et T_{cond} sont toutes deux de l'ordre de $1K$.

1.4.6.2 Calcul du débit molaire d'hélium 3.

Nous allons montrer dans ce paragraphe, qu'en présence d'une différence de pression entre les deux interfaces, il apparaît une circulation atomique, essentiellement limitée par l'impédance à l'écoulement de la vapeur dans les parties les plus chaudes des tubes de connexion.

Nous supposons dans notre description que l'on peut négliger les pertes de charge résultant de la viscosité dans la phase liquide : cela revient à faire les hypothèses que, d'une part, la vitesse du superfluide reste très inférieure à la vitesse critique, et que, d'autre part, les effets de friction sont suffisamment faibles (cette supposition sera justifiée a posteriori). En outre, nous négligeons toute variation de potentiel chimique aux interfaces : la pression à chaque interface est donc exactement égale à la pression de la vapeur saturante. Dans ces conditions, la différence de pression entre les deux interfaces provoque à la fois une différence de niveau entre les deux interfaces, et un écoulement de la phase vapeur.

Nous verrons que la différence de niveau entre les deux interfaces constitue une limitation ultime, au-delà de laquelle notre processus de fabrication de la polarisation nucléaire en régime stationnaire ne peut plus être opérationnel, et qu'elle conditionne par conséquent la différence de pression qui doit donc être scrupuleusement contrôlée.

Dans l'immédiat, nous allons calculer le débit d'atomes d'hélium 3 dans la cellule afin d'en déduire une constante de temps caractéristique de la circulation. L'écoulement du mélange gazeux d'hélium 3 dans l'hélium 4, caractérisé par les vitesses v_3 et v_4 de chaque isotope se fait, dans un tube dont le diamètre est de l'ordre de $1mm$, à petit nombre de Reynolds [Nacher 94]. Il peut se ramener à un écoulement unidimensionnel (les grandeurs qui décrivent le système ne dépendant que de la position s le long du tube) de Poiseuille d'un gaz pur de vitesse v_0, égale au barycentre des vitesses v_3 et v_4 de chaque isotope pondéré de leurs masses volumiques partielles. Pour un tel écoulement, on peut écrire l'équation suivante :

$$\frac{dP}{ds} = -32\frac{\eta(s)v_0(s)}{d^2(s)}, \tag{1.13}$$

formule qui donne le gradient de pression dP/ds entre deux points de l'écoulement gazeux en fonction de la viscosité $\eta(s)$ du mélange d'hélium 3 dans l'hélium 4 et du diamètre $d(s)$ du tube. En considérant la vapeur comme un gaz parfait, le débit molaire total Q_{vap}, indépendant de la position s, est égal à :

$$Q_{vap} = \frac{\pi d^2(s) v_0(s) P(s)}{4RT(s)}. \tag{1.14}$$

De 1.13 et 1.14 résulte l'équation qui relie la différence de pression de vapeur saturante entre les deux interfaces au débit Q_{vap} et permet donc de connaître la conductance de la cellule expérimentale :

$$P^2_{evap} - P^2_{cond} = -\frac{256R}{\pi} Q_{vap} \int \frac{\eta(s)T(s)}{d^4(s)} ds. \tag{1.15}$$

Dans cette dernière formule, P_{evap} et P_{cond} désignent les pressions aux interfaces où respectivement l'hélium s'évapore et se condense. L'intégrale du rapport $\eta(s)T(s)/d^4(s)$ est calculée le long de la cellule expérimentale où la température varie (de $300K$ dans le volume de pompage optique jusqu'à $0.2K$ au point le plus froid de la cellule d'étude) ainsi que la section des tubes employés.

Dans le calcul, nous avons choisi pour la viscosité des mélanges gazeux d'hélium 3 et l'hélium 4, la formule simple $\eta\,(T) = 5.02\ 10^{-7}\ T^{0.647}$ [Keesom], exprimée dans les unités du système international $(Pa.s)$, et essentiellement valable pour des températures supérieures à $2K$. Nous pouvons finalement donner une valeur numérique pour l'intégrale de la formule 1.15 en segmentant la cellule expérimentale en différentes portions dont le diamètre est connu et la température estimée. Dans le régime de circulation généralement entretenu, où les pressions aux interfaces P_{evap} et P_{cond} sont de l'ordre du $torr$ et leur différence légèrement inférieure à $0.1torr$, l'ordre de grandeur du débit molaire en hélium 3, $Q_{^3He}$, qui est égal par définition à xQ_{vap} (où x désigne la fraction moyenne en hélium 3 dans la phase vapeur) est de respectivement $0.03\mu mol.s^{-1}$ pour la cellule $n^0 1$ et $5\mu mol.s^{-1}$pour la cellule $n^0 2$. En tenant compte des quantités totales N_3 d'hélium 3 contenues dans les cellules (voir le tableau 1.4), un ordre de grandeur du temps caractéristique de circulation N_3/xQ_{vap} est $1200s$ pour la cellule $n^0 1$ et seulement $180s$ pour la cellule $n^0 2$ pour laquelle des diamètres supérieurs ont été choisis pour les tubes de connexion .

On peut justifier rétrospectivement l'hypothèse de l'absence de pertes de charge dans la phase liquide. Connaissant désormais le débit molaire d'hélium 3 dans la cellule, on peut calculer par la formule de Poiseuille 1.13, la différence supplémentaire de pression aux interfaces, générée par l'écoulement de la phase liquide. Elle s'avère être très faible devant $0.1torr$ (elle est de l'ordre de $3.10^{-7}torr$), résultat qui provient essentiellement du fait que la densité du liquide, beaucoup plus forte que celle du gaz, intervient au dénominateur dans

l'expression de la différence de pression 1.15. Ainsi, c'est dans le gaz, à forte température, que se produit l'essentiel du frottement visqueux. A cet égard, les sections des tubes dans les parties chaudes de la cellule sont choisies de façon à répartir sur toute la longueur de la cellule les pertes par frottement visqueux.

1.4.6.3 Vérification expérimentale.

Pour caractériser expérimentalement la circulation d'atomes d'hélium 3 dans la cellule $n^0 2$, nous avons étudié l'évolution temporelle de l'aimantation dans la cellule d'étude, en enregistrant la réponse du système à une série d'impulsions radiofréquence de petit angle de basculement (voir partie III). A partir d'une situation stable, correspondant à une aimantation donnée dans la cellule d'étude, l'aimantation est brutalement retournée dans le volume de pompage optique. Nous avons mesuré le temps nécessaire pour détecter, de manière stable, cette nouvelle aimantation dans la cellule d'étude ; il vaut environ $200s$, mesure qui confirme l'évaluation que nous en avons faite. Le temps typique de circulation dans la cellule $n^0 1$, déduit de mesures analogues [Candela 94], est beaucoup plus long puisqu'il vaut environ $1500s$. C'est précisément dans le but de diminuer ce temps de circulation, afin de s'affranchir totalement des phénomènes de relaxation de l'aimantation, que les diamètres et les longueurs des tubes de connexion ont été choisis dans la cellule $n^0 2$.

1.4.7 Rôle du césium dans les cellules.

Un atout essentiel de nos cellules expérimentales réside dans l'utilisation de césium métallique. Comme nous l'avons déjà dit, la cellule est scellée après qu'on a introduit l'échantillon gazeux d'hélium bien évidemment, mais aussi une petite quantité de césium. Le césium est fondu et mis en contact avec toutes les parois intérieures de la cellule, puis transformé en un anneau qui recouvre les parois de la petite olive représentée en coupe sur les figures 1.3 et 1.4.

Le premier enjeu de l'utilisation du césium vient du fait qu'il n'est pas mouillé par l'hélium 4 liquide en-dessous d'une température de l'ordre de $2K$ ([Nacher 91], [Taborek 92] et pour plus de détails [Demolder 95]). Nous avons déjà mentionné que la différence de pression entre les deux interfaces, qui entraîne l'hélium dans un mouvement de circulation, provoque aussi tout naturellement une différence de niveau entre les deux interfaces notée Δh. Pour une différence de pression ΔP de l'ordre de $0.1 torr$, l'application de la loi de

l'hydrostatique $\Delta P = \rho g \Delta h$ conduit à une différence de niveau Δh de l'ordre de $1cm$. Il est tout à fait essentiel que, en présence de cette différence de niveau, l'olive contenant l'anneau de césium soit placée le plus près possible au dessus de l'interface où l'hélium 3 s'évapore. En effet, un film superfluide recouvre les parois froides du tube situées au dessus de cet interface. Le rôle de l'anneau de césium est précisément d'interrompre ce film superfluide. En l'absence de l'anneau de césium, ce film ramperait vers des régions de plus forte température, où il serait brûlé. L'hélium 4 ainsi évaporé refluerait alors vers le liquide froid, confinant les atomes d'hélium 3 dans le liquide ou dans la vapeur juste au dessus de l'interface. Ce processus, connu sous le nom d'effet HEVAC (helium vapor compression), a fait l'objet d'études détaillées [Nacher 94]. Il en ressort qu'en présence de cet effet, la concentration en hélium 3 dans la vapeur au dessus de l'interface liquide varie avec l'altitude z comme une loi exponentielle du type $\exp(-cz/d)$, où c est un nombre sans dimension explicité dans la référence [Nacher 94] et d le diamètre du tube. En interrompant le film superfluide au niveau de l'olive, dont le diamètre intérieur est bien supérieur à celui du tube capillaire, l'anneau de césium permet de restreindre l'étendue de la région où "sévit" l'effet HEVAC à quelques mm de hauteur, et limite du même coup la diminution de la concentration en hélium 3 dans la vapeur au-dessus de l'interface à un facteur de l'ordre de 2 ou 3. Bien sûr, le césium ne joue un rôle utile dans le processus de circulation que si celle-ci s'effectue dans le sens que nous avons décrit au paragraphe 1.4.6.1. Si en revanche, $T_{evap} < T_{cond}$, l'effet HEVAC, très important dans la branche dépourvue d'anneau de césium, fait que la vapeur circulée est de l'hélium 4 quasiment pur.

Un autre aspect de l'utilisation de césium, tout aussi crucial pour le succès de nos expériences, tient au traitement de surface qu'a subi le verre lors du déplacement du césium le long de la cellule ; il permet probablement le dépôt d'un film très mince sur les parois de la cellule qui demeure transparente. A l'issue de ce traitement, l'échantillon n'est plus en contact qu'avec des parois traitées au césium ou avec l'anneau de césium lui-même. L'expérience a montré que ces deux types de surface constituent des surfaces faiblement liantes, qui provoquent de faibles taux de relaxation de surface de l'aimantation ([Tastevin 92a] et [Candela 94]). Tout récemment, ont été réalisées au laboratoire des mesures de temps de relaxation de l'aimantation longitudinale T_1 dans des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4 [Tastevin 96] : des temps de décroissance de l'aimantation supérieurs à $10^4 s$ ont été mesurés dans des solutions liquides d'hélium 3 dans l'hélium 4 dont la concentration

en hélium 3 est de l'ordre de 1%, laissant à penser que ce sont les interactions dipolaires volumiques qui sont responsables de la relaxation plus rapide de l'aimantation à plus forte concentration. A titre d'exemple, dans une solution dont la concentration est de l'ordre de 10%, un temps typique de décroissance T_1 de 2000s a été mesuré.

Ainsi, le second enjeu de l'utilisation du césium résulte de la propriété qu'il a d'être faiblement liant, ce qui permet d'inhiber la relaxation des spins nucléaires sur les parois de la cellule.

Chapitre 2

Détection radioélectrique de l'aimantation.

2.1 Le champ magnétique statique B_{ext}.

2.1.1 Production d'un champ adapté aux doubles cellules.

Toutes les expériences sur les solutions polarisées se déroulent en présence d'un champ magnétique statique dans lequel s'effectuent à la fois le pompage optique, le transfert de la polarisation à basse température et le détection par RMN.

Dans les doubles cellules présentées au paragraphe 1.4, le volume de pompage optique est distant de la cellule d'étude où s'effectuent les mesures RMN d'environ $80cm$. Outre l'homogénéité de $\mathbf{B}_{ext}$ sur l'axe défini par le tube de jonction, ce type de cellule impose de fortes contraintes sur l'importance des variations spatiales du champ dans les régions occupées à la fois par le volume de pompage optique et la cellule d'étude. Dans le volume de pompage optique, la relaxation nucléaire du niveau fondamental que ces variations spatiales provoquent doit rester faible devant celle due à la décharge pour que le pompage optique soit efficace. Dans la cellule d'étude, l'objectif est de minimiser les inhomogénéités du champ magnétique afin de permettre une bonne détection RMN des modes d'aimantation (voir paragraphe 7.4).

En ce qui concerne le volume de pompage optique, on peut montrer [Abragam] que la relaxation longitudinale due aux gradients de champ s'effectue sur un temps caractéristique dont l'expression est :

$$T_{1_\nabla} = \frac{1 + (\gamma B_{ext} \tau_D)^2}{\gamma^2 \delta B_{ext}^2 \tau_D} \tag{2.1}$$

où τ_D est le temps de diffusion d'un atome dans le volume considéré, B_{ext} la norme du champ magnétique moyen et δB_{ext} une mesure de ses variations spatiales sur la cellule. γ est le facteur gyromagnétique d'un atome d'hélium 3 égal à $-3.24\ 10^7 Hz.T^{-1}$. La formule 2.1 ne peut être appliquée que quand l'amplitude des variations du champ magnétique sur tout le volume reste faible de telle sorte que le moyennage par le mouvement peut avoir lieu pendant le temps de diffusion de spin τ_D (c'est l'hypothèse du rétrécissement par le mouvement que traduit l'inégalité $\gamma \delta B_{ext} \tau_D \ll 1$). Dans le volume de pompage optique à température ambiante, le temps de diffusion τ_D est de l'ordre de $1ms$. Aussi, dès que le champ magnétique $\mathbf{B}_{ext}$ excède $10^{-4}T$, le terme $(\gamma B_{ext} \tau_D)^2$ de la formule 2.1 est-il bien supérieur à 1 de sorte que cette formule peut finalement s'écrire de manière simplifiée :

$$T_{1_\nabla} = \left(\frac{B_{ext}}{\delta B_{ext}}\right)^2 \tau_D \tag{2.2}$$

Les variations du champ magnétique ont deux origines : les variations du champ magnétique dans l'environnement du laboratoire lui-même, indépendantes du champ $\mathbf{B}_{ext}$, et les variations proportionnelles au champ $\mathbf{B}_{ext}$. Dans l'hypothèse raisonnable où ces dernières sont dominantes, la formule 2.2 montre que T_{1_∇} est indépendant de $\mathbf{B}_{ext}$. Un temps de relaxation T_{1_∇} supérieur à $1000s$ dans le volume de pompage optique se traduit par un rapport $(\delta B_{ext}/B_{ext})^2$ inférieur à 10^{-6} qui impose une homogénéité meilleure que 10^{-3} sur une distance d'environ $10cm$ parallèlement à l'axe et d'environ $3cm$ perpendiculairement à l'axe. Pour produire le champ magnétique statique $\mathbf{B}_{ext}$, nous avons réalisé un ensemble de sept bobines circulaires en utilisant des cornières de dural de $20mm$ de profondeur et $40mm$ de largeur que nous avons recuites à la flamme, cintrées et enfin soudées. Dans chacune d'entre elles, nous avons bobiné 144 tours de fil de cuivre émaillé de diamètre $2mm$. Une alimentation (modèle ASF 400 de la marque Fontaine, stable à mieux que 10^{-3}, $80V$ sous $5A$) permet d'obtenir un champ magnétique de $3mT$ sans refroidissement nécessaire des bobines. Les mesures relatées dans la référence [Candela 94] ont été réalisées dans un champ magnétique qui n'excédait pas $0.4mT$. L'intérêt d'un champ magnétique plus fort réside, comme nous

la verrons au paragraphe 2.2, dans le fait que l'amplitude du signal RMN détecté dans la cellule d'étude est proportionnelle au champ magnétique extérieur. De plus, il est plus facile d'écranter le bruit radioélectrique à des fréquences de $100kHz$ que à $10kHz$.

Les rayons des bobines, leur disposition, symétrique par rapport à la bobine centrale, et les courants qui doivent les parcourir ont été déterminés numériquement pour obtenir une inhomogénéité relative suffisamment faible. La configuration retenue est celle représentée sur la figure 2.1 qui montre une vue d'ensemble de l'expérience à l'échelle 1/10 : y sont figurés le vase cryogénique, la ligne de pompage du réfrigérateur à dilution et la double cellule sur l'axe de laquelle sont alignées les sept bobines du champ magnétique appliqué. Le diamètre important de ces bobines (de 53 à $80cm$) nous assure d'une faible variation radiale du champ. L'ensemble de ces bobines est monté sur une armature en dural rigide qui assure la stabilité mécanique du champ $\mathbf{B}_{ext}$. Les deux bobines inférieures sont facilement démontables, ce qui préserve un accès commode aux parties vitales de l'expérience. La figure 2.2 représente, dans les conditions optimales de courant et de positionnement des bobines, la carte de champ calculée au niveau de l'axe du système.

2.1.2 Homogénéité du champ statique. Bobines de gradient de champ.

Pour caractériser l'homogénéité du champ magnétique ainsi fabriqué, nous avons procédé à des mesures RMN de temps de relaxation transversale T_2 dans une cellule cylindrique (diamètre $51mm$ et hauteur $50mm$) remplie de $3torr$ d'hélium 3 que nous avons déplacé à notre gré le long de l'axe du champ magnétique. Ces mesures, effectuées à température ambiante, sont particulièrement informatives dans la région où, dans une expérience à basse température doit se trouver la cellule d'étude (voir la figure 2.1) : dans cette zone, en effet, tout doit être mis en oeuvre pour réduire les inhomogénéités du champ magnétique.

Himbert et al. [Himbert 89] ont montré que, dans le cadre de la théorie du rétrécissement par le mouvement, le taux de relaxation transversale provoqué par un gradient de champ magnétique ∇B_{ext} peut s'écrire :

$$\frac{1}{T_{2_\nabla}} = 4.57\ 10^{-2} (\gamma \bigtriangledown B_{ext})^2 \frac{R^4}{D} \tag{2.3}$$

où R est le rayon de la cellule sphérique qu'ils ont employée et D le coefficient de diffusion

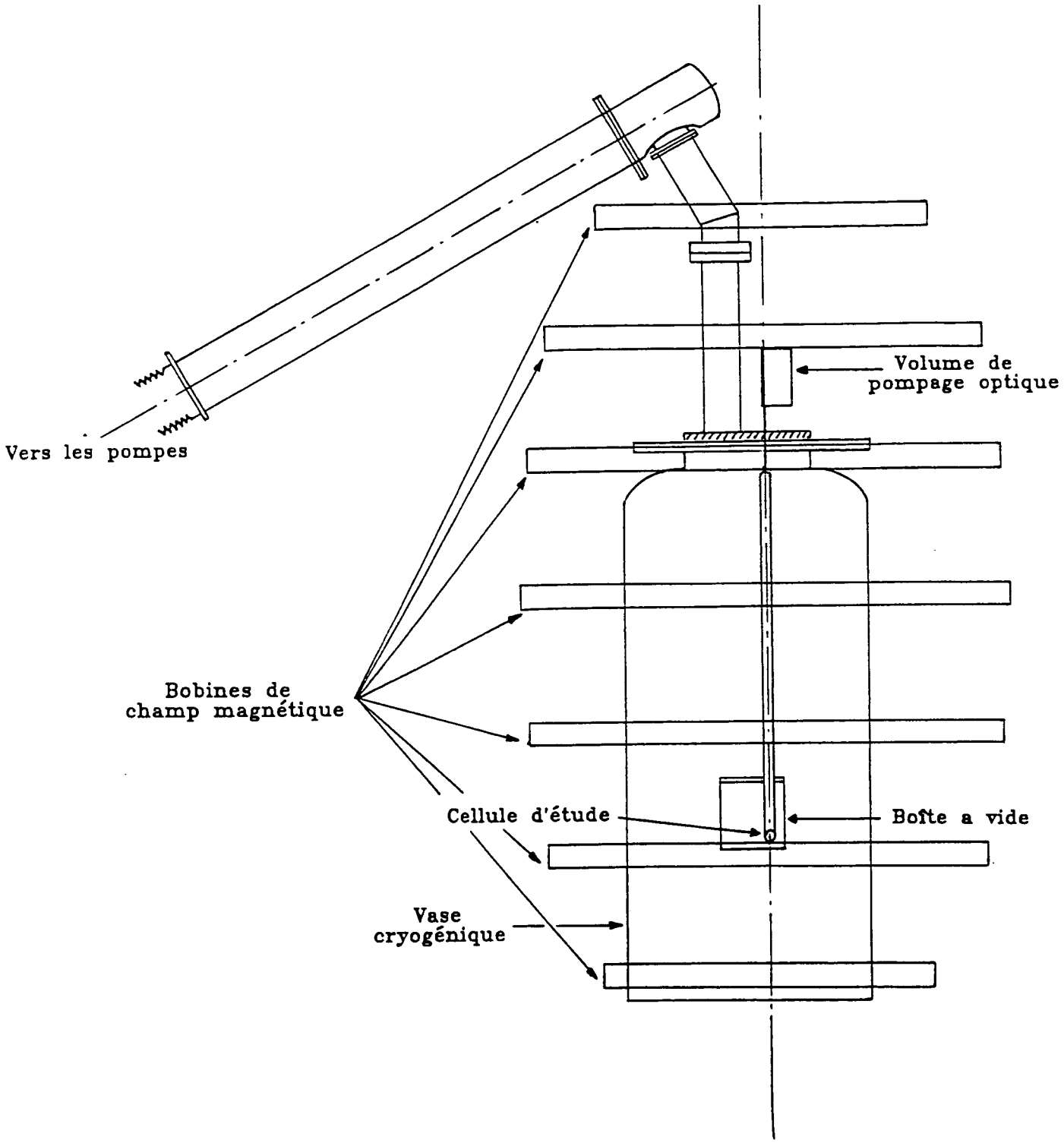


Figure 2.1: Vue d'ensemble de l'expérience à l'échelle 1/10.

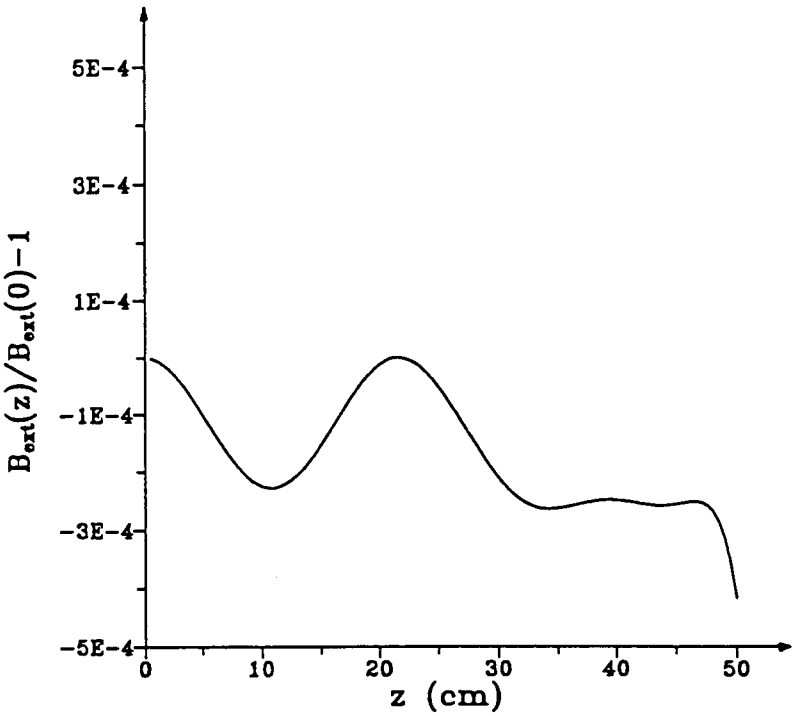


Figure 2.2: Carte de champ calculée pour l'ensemble des sept bobines de la figure 2.1. Cette carte est symétrique et nous n'en avons représenté qu'une moitié.

d'aimantation. La formule 2.3 montre que la réduction des inhomogénéités du champ magnétique provoque un accroissement de T_{2_∇}. A température ambiante et à une pression de $1torr$: $D_{1t}^{300K} = 1440cm^2.s^{-1}$ pour un gaz d'hélium 3 pur. Comme D est inversement proportionnel à la pression, $D_{3t}^{300K} = D_{1t}^{300K}/3$. De plus, pour appliquer la formule 2.3 qui n'est strictement valide que dans le cas d'une sphère, nous prendrons pour notre cellule cylindrique un rayon effectif de $2.9cm$

S'il est facile d'assurer le positionnement vertical des sept bobines de champ à mieux qu'un millimètre près, en revanche, leur centrage sur l'axe de la double cellule est plus délicat. Lorsqu'une disposition géométrique satisfaisante des sept bobines semble trouvée, il s'avère possible d'augmenter encore l'homogénéité locale du champ magnétique. Les bobines sont connectées en série, donc en principe traversées par des courants identiques. Des dérivations indépendantes et réglables permettent un ajustement du courant qui circule dans chaque bobine. Cet ajustement, plus commode à réaliser qu'un positionnement géométrique précis, permet d'augmenter l'homogénéité locale du champ B_{ext}. Cette opération étant réalisée, les temps de relaxation transversale T_2 que nous avons mesurés dans la cellule d'hélium 3 à tem-

pérature ambiante, à l'endroit de la cellule d'étude, sont de l'ordre de $5s$, ce qui correspond, d'après la formule 2.3, à un gradient résiduel de l'ordre de $3.10^{-7}T.cm^{-1}$.

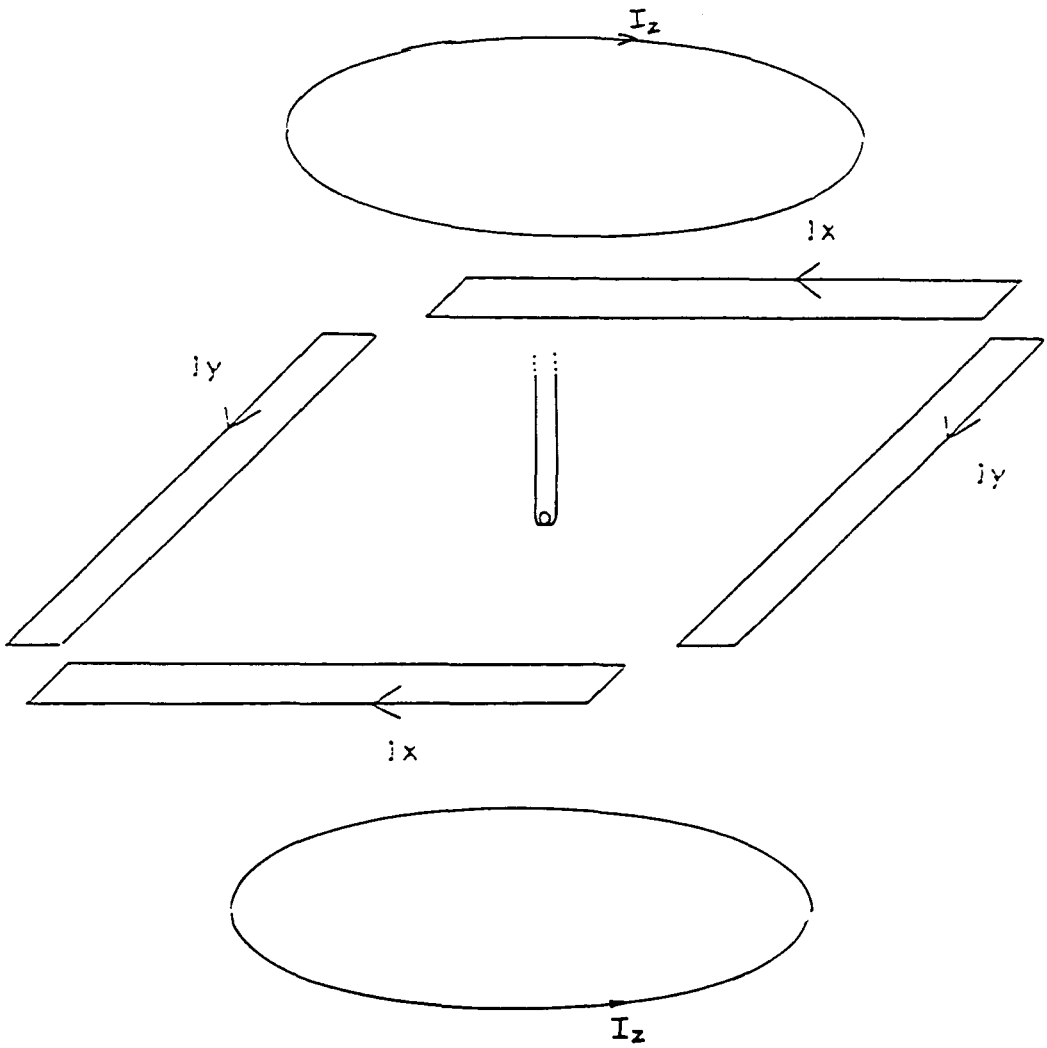


Figure 2.3: Vue de la cellule d'étude et des bobines de gradient.

Cette valeur est sensiblement plus grande que les variations spatiales au niveau de l'échantillon du champ magnétique créé par l'environnement du laboratoire. Nous avons donc réalisé un ensemble de bobines situées au voisinage de la région qui accueille la cellule d'étude et destinées à créer de purs gradients de champ longitudinal par rapport aux trois directions de l'espace. Ces bobines sont représentées sur la figure 2.3 : les bobines $\nabla_x B_{ext}$ et $\nabla_y B_{ext}$ sont identiques et constituées pour chaque direction de deux enroulements de 80 tours de fil de cuivre de diamètre $0.5mm$. Les bobines $\nabla_z B_{ext}$ sont, quant à elles, circulaires et comprennent

deux enroulements de 140 tours du même fil de cuivre. Chaque paire de bobines, parcourue par un courant électrique I_x, I_y ou I_z crée un champ dont la composante verticale ne dépend (linéairement au premier ordre) que de x, y ou z respectivement. Chaque courant permet donc de compenser indépendamment une composante de $\mathbf{grad}(B_{z,ext})$. L'ajustement de ces courants a permis d'obtenir, dans le cellule test d'hélium 3 à température ambiante, des valeurs du temps de relaxation transversale T_2 pouvant atteindre jusqu'à $100s$. Les inhomogénéités résiduelles, qui sont de l'ordre de 0.6 $10^{-7}T.cm^{-1}$, sont alors ramenées au niveau des gradients de champ magnétique habituels du laboratoire. Il est à noter que ce sont ces mêmes bobines de gradients de champ que nous avons utilisées pour imposer des gradients contrôlés aux modes d'aimantation (voir le paragraphe 7.4).

2.2 Le dispositif RMN.

Pour créer et détecter une aimantation transverse dans la cellule d'étude, nous utilisons la technique de résonance magnétique nucléaire (RMN) pulsée. Nous avons employé dans un premier temps un dipositif classique à bobines croisées ([Tastevin 87], [Cornut 93], [Candela 94]). Dans nos expériences, de nombreux modes d'aimantation bien localisés et dont la durée de vie est de l'ordre de la seconde conduisent à des signaux RMN souvent difficiles à interpréter. Ceci nous a conduit à apporter une touche d'inventivité et un soin tout particulier dans la réalisation du circuit de détection afin d'opérer une détection spatialement sélective des modes d'aimantation et de contrôler les effets du couplage entre l'aimantation transverse et le circuit électrique de détection. L'ensemble du dispositif RMN qui accompagne la cellule n^02 est schématisé sur la figure 2.4 : nous allons entreprendre maintenant la description de ses différents éléments.

2.2.1 Les bobines inductrices.

Le dispositif inducteur comporte deux bobines en forme de "selle de cheval" (voir figure 2.4), d'une vingtaine de tours chacune, qui ont été connectées en série dans nos expériences. Elles génèrent un champ radiofréquence (RF) $\mathbf{B_1}$, qui est perpendiculaire au champ magnétique statique $\mathbf{B}_{ext}$. Leur géométrie résulte d'un compromis entre deux exigences. Exigence d'encombrement d'une part, les bobines devant être logées à l'intérieur de la boîte à vide du réfrigérateur à dilution qui n'est ni particulièrement spacieuse (c'est un cylindre de $12cm$ de

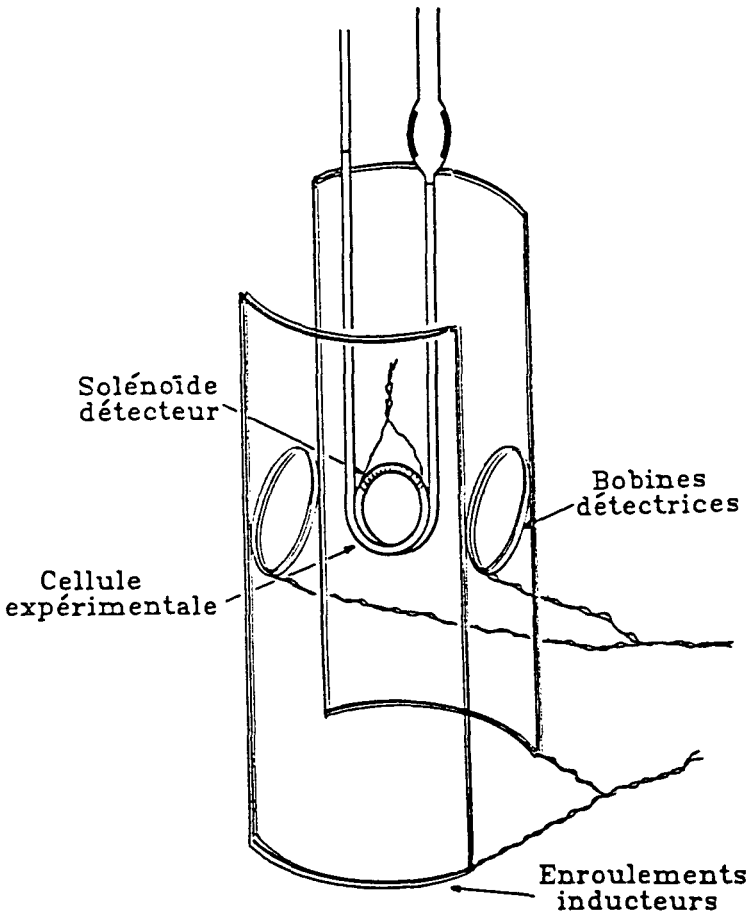


Figure 2.4: Vue d'ensemble du dispositif RMN accompagnant la cellule en forme de tortillon circulaire.

diamètre et de $15cm$ de hauteur), ni particulièrement vide (elle renferme déjà les organes vitaux du réfrigérateur : sa boîte à mélange, son échangeur de chaleur, son pot à $1K$, son évaporateur, mais aussi de nombreux thermomètres et bien évidemment la cellule d'étude) ; les bobines que nous avons employées sont néanmoins assez grandes, puisqu'elles s'inscrivent dans un rectangle de $9cm$ de longueur et $4cm$ de largeur. Exigence d'homogénéité maximale du champ radiofréquence au niveau de la cellule d'étude d'autre part, afin que l'impulsion radiofréquence provoque un angle de basculement des spins uniforme, et prépare ainsi une aimantation transverse homogène ; dans nos conditions expérimentales, la variation du champ radiofréquence sur la cellule d'étude n'excède pas quelques pour cent.

2.2.2 Le circuit de détection.

Nous avons détecté l'évolution de l'aimantation transverse dans la cellule $n^0 2$ au moyen de deux dispositifs différents.

2.2.2.1 Les bobines détectrices.

Le premier dispositif de détection est le plus classique [Candela 94]. Il consiste en une paire de bobines, chacune de 140 tours de fil de cuivre émaillé très fin, et dont le diamètre est d'environ $20mm$ (voir figure 2.4). Ces bobines détectrices sont placées à angle droit des enroulements inducteurs ; leur orthogonalité est ajustée finement, une fois en position, de façon à minimiser le signal parasite directement capté par les bobines détectrices lors d'une impulsion radiofréquence. Cette précaution s'avère cependant, en général, insuffisante ; le signal parasite capté par les bobines détectrices lors d'une impulsion radiofréquence sature en effet, pendant un laps de temps trop long, la chaîne de détection. Pour y remédier, nous avons employé un interrupteur rapide (HCT 4066) dont l'utilisation nous a été suggérée par la référence [Fillipov 94]. Piloté par la commande d'impulsions radiofréquence, il met en court-circuit pendant la durée d'une impulsion, et les bobines détectrices, et le circuit électronique de détection, tout en établissant entre ces deux éléments un chemin de grande impédance. Inversement, en dehors d'une impulsion, il relie par une ligne de faible impédance les bobines détectrices au reste du cicuit de détection, permettant ainsi au signal capté par les bobines d'être analysé. Dans toutes nos expériences, et quel que soit le dispositif employé pour détecter l'aimantation transverse (bobines, ou, comme on le verra plus loin, solénoïde), cet interrupteur a rendu inutile la bobine compensatrice de flux précédemment utilisée pour annuler le signal parasite pendant une impulsion radiofréquence [Tastevin 87]. Nous avons d'abord placé cet interrupteur dans le bain d'hélium du vase cryogénique. Sans précautions particulières relatives à ses fils de connexion, il s'est révélé être, à cet endroit, une source de bruit pour la RMN trop importante, si bien que, lors des expériences ultérieures, nous l'avons utilisé en dehors du cryostat, juste en amont de l'électronique de détection.

Les bobines détectrices sont connectées en série et sont disposées le plus près possible de la cellule d'étude afin de capter un signal généré par la précession des spins, d'amplitude maximale. Un moyen à la fois commode et classique de disposer de signaux électriques assez grands consiste à utiliser un circuit de détection résonant : un condensateur de capacité C, placé en parallèle avec les bobines de détection (d'inductance L), permet d'accorder le

circuit à la fréquence de Larmor ω_L des spins. Il suffit pour cela que $LC\omega_L^2 = 1$. Dans ces conditions, en appelant e la force électromotrice induite aux bornes des bobines par la précession des spins et Q la surtension du circuit (L, C) résonant, la tension recueillie aux bornes du condensateur vaut $u = Qe$. Si l'intérêt d'un tel circuit résonant est indiscutable, puisqu'il offre très facilement au signal une amplification d'un facteur Q (qui peut atteindre 40), il faut cependant rester vigilant quant aux effets secondaires que son utilisation implique. Il existe en effet des couplages entre l'aimantation transverse et un tel circuit de détection, couplages que G. Tastevin a étudiés en détail dans le cadre de ses expériences sur l'hélium 3 polarisé [Tastevin 87]. Ces couplages, lorqu'ils restent faibles, produisent un déplacement $\delta\omega$ de la fréquence de précession de l'aimantation et une variation supplémentaire de son taux d'amortissment $1/\tau$. Ces effets parasites sont susceptibles d'entâcher d'erreur à la fois la mesure de la fréquence de précession de l'aimantation transverse (et par suite la mesure du taux de polarisation nucléaire dans la phase liquide, voir paragraphe 7.3.2) et celle de son taux d'amortissement (voir paragraphe 7.5.2). Il convient donc de les quantifier et de les rendre aussi faibles que possible, nettement inférieurs aux effets que nous voulons mesurer.

Sous certaines conditions, qui sont de fait rencontrées dans les expériences (la fréquence propre du circuit de détection est égale à la fréquence de Larmor des atomes d'hélium 3, et son temps de réponse caractéristique est court devant le temps de relaxation transversale T_2), les calculs que G. Tastevin a effectués conduisent aux expressions suivantes pour $\delta\omega$ et $1/\tau$:

$$|\delta\omega| = \frac{\alpha\beta}{2L}\mathcal{M}_0 V_{ech} \tag{2.4}$$

$$|1/\tau| = \frac{\alpha\beta}{2L}\frac{Q}{2}\mathcal{M}_0 V_{ech} \ . \tag{2.5}$$

Dans ces formules, $\mathcal{M}_0$ désigne l'aimantation longitudinale (par unité de volume) des atomes d'hélium 3 contenus dans le volume V_{ech} de la cellule d'étude que le dispositif récepteur (bobines de détection ou solénoïde) peut entièrement détecter. L est l'inductance du dipositif récepteur et α et β deux coefficients de couplage. Leur signification physique est largement détaillée dans la thèse de G. Tastevin [Tastevin 87]. Dans le cas où le dispositif récepteur est constitué de deux bobines connectées en série, et disposées de part et d'autre de la cellule d'étude, on peut montrer que, dans les unités du système international, les coefficients α et β s'écrivent :

$$|\alpha| = n\mu_0\gamma\frac{R^2}{(l^2+R^2)^{3/2}}, \tag{2.6}$$

$$|\beta| = \frac{|\alpha|}{\gamma}, \tag{2.7}$$

n désignant le nombre de tours de chaque bobine, R leur rayon et l la moitié de la distance qui les sépare. Le tableau ci-dessous reporte les valeurs numériques obtenues pour la paire de bobines détectrices que nous avons utilisée : le circuit électrique est accordé sur la fréquence des spins à $79.5kHz$.

Capacité C	Inductance L	Surtension Q	$\|\alpha\|$ (S.I.)	$\|\beta\|$(S.I.)	$\|\alpha\beta\|$ /4L
3.6 nF	1.1 mH	16	1.4 10^5	4.3 10^{-3}	1.4 10^5

Table 2.1: Caractéristiques du circuit électrique de détection constitué de la paire de bobines détectrices.

En ce qui concerne le moment magnétique total $\mathcal{M}_0 V_{ech}$ des atomes d'hélium 3, il est égal à :

$$\mathcal{M}_0 V_{ech} = \mu_n N M \tag{2.8}$$

où μ_n est le moment magnétique d'un atome d'hélium 3 (μ_n = 1.8 $10^{-26} J.T^{-1}$), N le nombre d'atomes d'hélium 3 contenus dans la cellule d'étude de volume V_{ech} et M le taux de polarisation nucléaire (c'est un nombre sans dimension tel que -1 $\leq M \leq$ 1). Le nombre N d'atomes d'hélium 3 peut s'exprimer comme :

$$N = x\rho V_{ech}\mathcal{N} \tag{2.9}$$

où x est la fraction molaire en hélium 3 dans la solution, ρ la densité molaire de la solution et $\mathcal{N}$ la constante d'Avogadro. Finalement, $\mathcal{M}_0$ peut s'écrire

$$\mathcal{M}_0 = \mu_n \mathcal{N} \rho (xM). \tag{2.10}$$

La densité molaire ρ de la solution est tirée des données de Kierstead [Kierstead 76] ; à une température de $0.6K$ et pour une concentration en hélium 3 de 10%, elle vaut 3.6 $10^4 mol.m^{-3}$. Le volume V est estimé, dans le cas de la paire de bobines détectrices, à $4.10^{-9}m^3$. La valeur du produit (xM) est, quant à elle, directement déduite de nos expériences ; elle est typiquement de l'ordre de 0.03. Ainsi, à des températures de l'ordre de $0.6K$, $\mathcal{M}_0 V_{ech}$ est

de l'ordre de 3.10^{-8} (S.I.). Si nous utilisons l'ensemble de ces valeurs expérimentales pour estimer les effets de réaction du circuit constitué par la paire de bobines détectrices sur l'aimantation, nous obtenons typiquement pour le déplacement en fréquence et la variation du taux d'amortissement :

$$\delta\omega = 8.10^{-3}s^{-1} \tag{2.11}$$

$$\frac{1}{\tau} = 7.10^{-2}s^{-1}. \tag{2.12}$$

Nous verrons qu'une telle variation du taux d'amortissement (qui est l'effet le plus marqué puisqu'il vaut $Q/2$ fois le déplacement de fréquence $\delta\omega$) n'est pas complètement négligeable devant la valeur du taux d'amortissement de l'aimantation transverse (voir paragraphe 7.5).

2.2.2.2 Le solénoïde détecteur.

Les bobines détectrices que nous venons de décrire et de caractériser sont, de par leur géométrie, sensibles à l'aimantation transverse qui existe dans tout le volume de la cellule d'étude. Afin d'étudier l'évolution de l'aimantation transverse dans la seule région où l'échantillon est à la fois isotherme et le plus froid, et de caractériser, avec un meilleur rapport signal sur bruit, les modes d'aimantation présents dans cette zone (voir la partie II relative à l'origine des modes et la partie III traitant de leur caractérisation expérimentale), nous avons utilisé, sur une suggestion de J. Dupont-Roc, un dispositif de détection de l'aimantation très sélectif, puisqu'il est directement implanté sur la zone froide de l'échantillon, c'est-à-dire sur la partie horizontale supérieure du tortillon circulaire de la cellule $n^0 2$.

La première génération de ce nouveau dispositif de détection consistait en un enroulement de 200 tours de fil de cuivre très fin ($0.2mm$ de diamètre), directement bobinés sur une longueur de $12mm$, autour de la circonférence du tube de verre. Un condensateur permettait, comme dans le cas des bobines détectrices, d'accorder la fréquence du circuit sur la fréquence de précession des spins. Une telle configuration a dû être abandonnée tant les effets du couplage entre ce petit solénoïde et l'aimantation transverse étaient importants ; de fait, pour un sens donné de la composante longitudinale de la polarisation nucléaire, même lorsque sa valeur ne dépasse pas quelques pour cent, le seuil maser a été couramment franchi avec ce dispositif (la réaction du circuit fait plus que compenser l'amortissement intrinsèque, engendrant une précession spontanée de l'aimantation). A l'inverse, pour l'autre sens de la

composante longitudinale (l'obtention d'un sens ou l'autre ne dépend que de la façon dont le pompage optique est effectué), de très forts amortissements de l'aimantation ont été mesurés, rendant du même coup impossible toute mesure fiable des taux d'amortissement intrinsèques des modes d'aimantation. Les calculs suivants mettent en lumière la force du couplage entre les spins et ce premier solénoïde. On peut aisément montrer que dans le cas d'un solénoïde, les coefficients géométriques α et β, dont il a été précédemment fait mention s'écrivent, dans les unités du système international :

$$\alpha = \frac{n}{d}\mu_0\gamma, \tag{2.13}$$

$$\beta = \frac{n}{d}\mu_0\frac{d/2}{\sqrt{r^2+(d/2)^2}}, \tag{2.14}$$

où n désigne le nombre de tours du solénoïde, d la longueur sur laquelle il est bobiné, et r son rayon. Un nouveau tableau indique les valeurs numériques obtenues pour ce premier solénoïde lorsque le circuit est accordé à une fréquence de $79kHz$ avec un condensateur de capacité C.

Capacité C	Inductance L	Surtension Q	$\|\alpha\|$(S.I.)	$\|\beta\|$(S.I.)	$\|\alpha\beta\|/4$L
33 nF	0.12 mH	9.7	$6.8\ 10^5$	$1.9\ 10^{-2}$	$2.6\ 10^7$

Table 2.2: Caractéristiques du circuit électrique de détection constitué du premier solénoïde détecteur.

Pour une aimantation totale $\mathcal{M}_0 V_{ech}$ comparable à celle que nous avons calculée précédemment, nous obtenons, pour la variation du taux d'amortissement due au couplage entre ce premier solénoïde et les spins, la valeur de $7.1s^{-1}$ dont l'ordre de grandeur interdit toute mesure sur les modes d'aimantation.

Attachés à l'idée d'une détection sélective des modes d'aimantation grâce à un solénoïde local, nous nous sommes efforcés de minimiser les effets du couplage entre les spins et le circuit de détection. L'enjeu est donc de réduire la variation du taux d'amortissement

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\alpha\beta Q}{4L}\mathcal{M}_0 V_{ech} \tag{2.15}$$

induite par ce couplage, tout en maintenant la tension détectée aux bornes du circuit, $u = Qe$, à un niveau appréciable pour ne pas détériorer le rapport signal sur bruit. La force électromotrice e, induite aux bornes du dispositif détecteur, est égale à l'opposé de la variation

temporelle du flux capté. Celui-ci étant proportionnel à l'aimantation transverse $\mathcal{M}_+$, il résulte que e est proportionelle à $n\mathcal{M}_+\omega$, n étant le nombre de tours de fil du circuit détecteur et ω la fréquence RMN, qui varie linéairement avec le champ magnétique $\mathbf{B}_{ext}$. Finalement :

$$u \sim Qn\mathcal{M}_+\omega. \tag{2.16}$$

La solution que nous avons adoptée est identique à celle qu'avait choisie G. Tastevin pour observer des ondes de spin dans l'hélium 3 polarisé gazeux [Tastevin 87] : elle consiste à utiliser un solénoïde à plus faible nombre de tours ($n = 60$ au lieu de 200) et à mettre en série dans le circuit à la fois une capacité de faible valeur C', et une inductance L', de valeur $4mH$, bobinée à spires et couches non jointives pour réduire la capacité répartie. Pour obtenir une bonne surtension, nous avons placé cette inductance dans une zone de basse température, suffisamment loin de la cellule expérimentale, toutefois, pour éviter qu'elle ne capte un signal dû à la précession de l'aimantation transverse. En pratique, elle a été placée dans le bain d'hélium 4 et hors de la boîte à vide. Cette nouvelle configuration présente le double avantage de réduire le couplage d'un facteur $(L + L')/L$ et d'accroître d'un facteur C/C' la tension utile, puisqu'elle est désormais prélevée aux bornes d'une capacité de plus faible valeur. Le tableau suivant indique les caractéristiques de ce nouveau circuit. La capacité d'accord n'y est pas indiquée : en pratique, en effet, si on veut travailler en champ fort (fréquence RMN autour de $80kHz$) pour bénéficier d'un bon rapport signal sur bruit (d'après la formule 2.13, la tension aux bornes du circuit est proportionnelle à la fréquence RMN), l'accord du circuit se fait sur la seule capacité répartie du câble coaxial, qui est de l'ordre de quelques centaines de pF.

Inductance L	Surtension Q	$\lvert\alpha\rvert$(S.I.)	$\lvert\beta\rvert$(S.I.)	$\lvert\alpha\beta\rvert$ /4(L+L')
4 mH	30	$1.7\ 10^5$	$2\ 10^{-3}$	$2.1\ 10^4$

Table 2.3: Caractéristiques du circuit électrique de détection constitué du second solénoïde détecteur.

Dans cette nouvelle configuration, la réaction du circuit est, en principe, réduite de trois ordres de grandeur. Elle est en outre réduite d'un ordre de grandeur par rapport à la réaction de la paire de bobines détectrices décrites au paragraphe 2.2.2.1. Elle permet d'envisager des mesures de taux d'amortissement des modes d'aimantation.

Nous verrons au paragraphe 7.5.1 que des mesures permettent de confirmer les estimations

que nous venons de faire des effets du couplage entre l'aimantation et le circuit de détection (que celui-ci soit constitué des deux bobines détectrices seules ou du solénoïde accompagné de son inductance de grande valeur).

2.2.2.3 Le dispositif électronique.

La procédure expérimentale employée pour exciter et détecter une aimantation est la suivante : nous envoyons sur les bobines inductrices une impulsion radiofréquence à une fréquence de l'ordre de $80kHz$, correspondant à la fréquence de Larmor d'un atome d'hélium 3 placé dans un champ magnétique statique $\mathbf{B}_{ext}$ d'environ $2.5mT$. Le rôle de cette impulsion est de créer, à partir de l'aimantation longitudinale, une petite composante transverse. La durée Δt de cette impulsion et son intensité sont choisies pour que l'angle de basculement de l'aimantation soit assez faible (typiquement, l'amplitude $\mathbf{B}_1$ du champ oscillant est de $2.10^{-6}T$ et Δt de $0.5ms$ pour un angle de basculement d'environ $\pi/32$ radians) : la perte d'aimantation longitudinale résultante est alors négligeable (0.5% pour un tel angle).

La force électromotrice induite par la précession de l'aimantation transverse est recueillie aux bornes du dispositif de détection (bobines ou solénoïde). Elle est initialement de l'ordre de $1mV$ et décroît avec une constante de temps T_2, qui est de l'ordre de $1s$ dans nos expériences. Ce signal est directement envoyé dans un amplificateur à détection synchrone où il est mélangé à un signal de référence, dont la fréquence est proche de la fréquence de Larmor ω_L. Les amplitudes en phase et en quadrature de phase du signal résultant sont enregistrées de manière échantillonnée dans un micro-ordinateur en vue d'une analyse ultérieure ; celle-ci sera décrite au paragraphe 7.2. C'est ce même micro-ordinateur qui gère la commande de basculement de l'aimantation.

Partie II

Etude théorique de l'effet du champ dipolaire dans un échantillon fortement aimanté.

Chapitre 3

Effet du champ dipolaire dans un échantillon uniformément aimanté contenu dans un tube cylindrique droit et infini.

3.1 Introduction.

La partie II du mémoire, qui comprend les chapitres 3, 4 et 5, est toute entière consacrée à l'analyse théorique de l'effet des interactions dipolaires au sein d'un échantillon fortement aimanté. Dans le cadre des expériences sur l'hélium polarisé menées ces dernières années au laboratoire, cet effet a déjà été invoqué pour expliquer des déplacements par rapport à la fréquence de Larmor observés lors d'expériences RMN sur l'hélium 3 liquide pur ([Tastevin 87]) ou dissous dans l'hélium 4 ([Cornut 93]). Cet effet des interactions dipolaires n'était que partiellement compris avant ce travail, et en outre diverses améliorations des conditions expérimentales ont permis l'observation systématique de signaux RMN plus riches (voir la partie III de ce mémoire). Ces deux circonstances ont motivé le développement de modèles destinés à expliquer qualitativement l'effet des interactions dipolaires sur la précession de l'aimantation et à rendre compte quantitativement de nos observations expérimentales. Comme nous

le verrons par la suite, cet effet dépend crucialement de la forme de l'échantillon. A cet égard, les modèles que nous développons dans cette partie sont adaptés pour reproduire, de la manière la plus réaliste possible, la géométrie de celui-ci : ils prennent en particulier en compte le fait que, dans les expériences décrites dans la partie III, l'hélium polarisé est contenu dans un tube étroit et courbé.

3.2 Calcul du champ dipolaire.

Même si le cas d'un échantillon uniformément aimanté contenu dans un tube cylindrique droit et infini est bien éloigné de la réalité de nos expériences, il n'en est pas moins riche d'enseignements tant sur le plan de la démarche adoptée pour la résolution qu'au niveau des résultats obtenus.

Dans un échantillon uniformément aimanté de forme ellipsoïdale, le champ dipolaire est uniforme [Stratton 41]. Puisqu'un cylindre droit et infini peut être considéré comme un ellipsoïde dont le grand axe aurait une longueur infinie, le champ dipolaire dans un échantillon uniformément aimanté contenu dans un tube cylindrique est lui aussi uniforme. Pour en connaître la valeur, il suffit de la calculer en un point de l'axe du cylindre : ces calculs ont déjà été effectués dans la thèse de M. Cornut [Cornut 93]. En appelant $\vec{\mathcal{M}}$ l'aimantation (par unité de volume) de l'échantillon, ils montrent que le champ dipolaire en tout point d'un cylindre uniformément aimanté s'écrit :

$$\mathbf{B}_{dip} = \frac{\mu_0}{6}\left\{3\left(\vec{\mathcal{M}}\,.\mathbf{k}\right)\mathbf{k} - \vec{\mathcal{M}}\right\} \tag{3.1}$$

où $\mathbf{k}$ désigne un vecteur unitaire le long de l'axe du cylindre. Une autre écriture utile fait apparaître le vecteur polarisation $\mathbf{M}$ ($|\mathbf{M}| \leq 1$) :

$$\mathbf{B}_{dip} = \frac{\mu_0 \mu_n n_3}{6}\left\{3\left(\mathbf{M}.\mathbf{k}\right)\mathbf{k} - \mathbf{M}\right\}, \tag{3.2}$$

formule dans laquelle μ_n est le moment magnétique du noyau d'hélium 3 et n_3 la densité volumique d'atomes d'hélium 3. Cette expression du champ dipolaire, qui exclut le terme local engendré par la présence d'un moment magnétique au point considéré, est propre à représenter l'effet sur un atome donné des interactions magnétiques avec l'ensemble des autres atomes. La même démarche sera employée dans les chapitres suivants pour établir des expressions du champ dipolaire dans des situations différentes.

En accord avec les conditions expérimentales généralement réalisées, les modèles présentés dans la suite supposeront que le champ dipolaire reste faible devant le champ magnétique appliqué (voir la partie expérimentale 2.1 consacrée au champ magnétique : $\mathbf{B}_{ext} \sim 10^{-3}T$) - on peut estimer à au plus $10^{-4}T$ le champ dipolaire dans un liquide d'hélium 3 complètement polarisé - mais qu'il domine les variations du champ magnétique provoquées par les gradients de champ statique sur toute l'étendue de l'échantillon (les gradients de champ statique sont estimés à $10^{-7}T.cm^{-1}$ et s'exercent au niveau de la cellule d'étude sur des longueurs de l'ordre de $1cm$). Cette hiérarchie rend de fait inexploitables les quelques traitements spécifiques dans lesquels le champ dipolaire n'est introduit que de manière perturbative : systèmes d'hélium 3 solide [Deville 79] [Osheroff 87], ferrites [Walker 57].

3.3 Evolution temporelle de l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$.

L'évolution temporelle de l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$ de l'échantillon est régie par l'équation de Bloch :

$$\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}}{\partial t} = \gamma \vec{\mathcal{M}} \wedge \mathbf{B}_{eff}, \tag{3.3}$$

dans laquelle γ désigne le facteur gyromagnétique de l'hélium 3 et $\mathbf{B}_{eff}$ le champ effectif à l'intérieur de l'échantillon. $\mathbf{B}_{eff}$ est évidemment la superposition du champ magnétique appliqué $\mathbf{B}_{ext}$, dont nous supposons dans cette partie qu'il est uniforme et selon l'axe vertical Oz (nous négligerons les contributions à $\mathbf{B}_{eff}$ créées par les gradients de champ statique) et du champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$ créé par l'échantillon lui-même, champ que nous venons de calculer. A l'instar de ce qui est fait dans les références [Tastevin 87] [Cornut 93], nous allons résoudre l'équation 3.3 dans le référentiel de Larmor qui tourne autour de l'axe Oz, à la fréquence de Larmor $\omega_L = -\gamma \mathbf{B}_{ext}$. Dans ce référentiel, l'équation d'évolution de l'aimantation s'écrit :

$$\left(\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}}{\partial t}\right)_{Larmor} = \gamma \vec{\mathcal{M}} \wedge \mathbf{B}_{dip}, \tag{3.4}$$

équation que nous pouvons résoudre dans le cadre d'une approximation séculaire puisque :

$$|\mathbf{B}_{ext}| \gg |\mathbf{B}_{dip}| \tag{3.5}$$

Cette approximation revient à remplacer le champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$ par sa valeur moyenne temporelle sur un tour du référentiel de Larmor [Cohen]. L'équation 3.3 devient finalement :

$$\left.\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}}{\partial t}\right|_{Larmor} = \frac{\gamma\mu_0}{2}\,\vec{\mathcal{M}} \wedge \left\langle \left(\vec{\mathcal{M}}\,.\mathrm{k}\right)\mathrm{k} \right\rangle_t . \tag{3.6}$$

En appelant θ l'angle entre l'axe Oz (parallèle à $\mathbf{B}_{ext}$) et l'axe du cylindre (repéré par le vecteur $\mathbf{k}$ dont il faut souligner qu'il est un vecteur tournant dans le référentiel tournant), on peut aisément montrer que :

$$\left\langle \left(\vec{\mathcal{M}}\,.\mathrm{k}\right)\mathrm{k} \right\rangle_t = \frac{\sin^2\theta}{2}\,\vec{\mathcal{M}} + \frac{3\cos^2\theta - 1}{2}\mathcal{M}_z\mathrm{z}, \tag{3.7}$$

où $\mathcal{M}_z = \mu_n n_3 M_z$ désigne l'aimantation longitudinale. Finalement, il apparaît que l'évolution libre de l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$ correspond à une précession autour du champ appliqué $\mathbf{B}_{ext}$ à une fréquence

$$\omega = \omega_L - \frac{\gamma\mu_0\mathcal{M}_z}{4}\left(3\cos^2\theta - 1\right) \tag{3.8}$$

(dans l'ensemble de ce mémoire, on appellera par abus de langage fréquences des grandeurs qui sont en fait des pulsations). Pour un cylindre vertical ($\theta = 0$), le déplacement de fréquence par rapport à la fréquence de Larmor vaut $\omega_v - \omega_L = -\gamma\mu_0\mathcal{M}_z/2$ et pour un cylindre horizontal ($\theta = \pi/2$), il vaut $\omega_h - \omega_L = \gamma\mu_0\mathcal{M}_z/4$. Les valeurs numériques des paramètres intervenant dans ces diverses formules seront données au paragraphe 7.3.2. Il est à remarquer également que pour un cylindre orienté par rapport à $\mathbf{B}_{ext}$ de telle façon que $\cos^2\theta = 1/3$, l'aimantation dans tout le cylindre précesse autour de $\mathbf{B}_{ext}$ exactement à la fréquence de Larmor ω_L.

Cette dernière constatation, aussi surprenante soit-elle, provient de la présence en facteur du terme $(3\cos^2\theta - 1)$. Nous allons montrer de manière plus générale que la seule approximation séculaire suffit à justifier l'apparition de ce terme. Considérons un échantillon de forme quelconque, aimanté (mais non nécessairement de manière uniforme) et placé dans un champ magnétique appliqué uniforme qui domine le champ dipolaire. L'effet d'un dipôle magnétique $\vec{\mathcal{M}}\,(P')\,d^3r'$ situé en un point P' de l'échantillon sur l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}\,(P)$ en un autre point P de l'échantillon distinct de P' s'écrit dans le référentiel de Larmor et dans le cadre de l'approximation séculaire :

$$\left.\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}(P)}{\partial t}\right|_{Larmor} = \frac{\gamma\mu_0}{4\pi}\vec{\mathcal{M}}(P)\wedge\frac{\left\langle 3\left(\vec{\mathcal{M}}(P').\mathbf{u}\right)\mathbf{u} - \vec{\mathcal{M}}(P')\right\rangle_t}{PP'^3}d^3r', \tag{3.9}$$

où $\mathbf{u} = \frac{\mathbf{PP'}}{PP'}$ est un vecteur unitaire de la droite reliant les points P et P' et comme précédemment la notation $\langle\rangle_t$ désigne la valeur moyenne temporelle sur un tour du référentiel de Larmor. Le vecteur $\mathbf{u}$ étant, lui aussi, un vecteur tournant à la fréquence $-\omega_L$ dans le référentiel de Larmor, la valeur moyenne $\left\langle\left(\vec{\mathcal{M}}(P').\mathbf{u}\right)\mathbf{u}\right\rangle_t$ s'écrit :

$$\frac{\sin^2\theta(P,P')}{2}\vec{\mathcal{M}}(P') + \frac{3\cos^2\theta(P,P')-1}{2}\mathcal{M}_z(P')\mathbf{z}, \tag{3.10}$$

où $\theta(P,P')$ désigne l'angle que fait la droite (PP') avec l'axe Oz. L'équation 3.9 devient finalement :

$$\left.\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}(P)}{\partial t}\right|_{Larmor} = \frac{\gamma\mu_0}{4\pi PP'^3}\frac{3\cos^2\theta(P,P')-1}{2}\vec{\mathcal{M}}(P)\wedge\left\{3\mathcal{M}_z(P')\mathbf{z} - \vec{\mathcal{M}}(P')\right\}, \tag{3.11}$$

expression dans laquelle l'approximation séculaire a fait sortir le facteur $(3\cos^2\theta(P,P')-1)$. Les résultats du paragraphe précédent montrent que dans le cas d'un cylindre droit et infini, l'intégration des contributions élémentaires conduit à la formule 3.8 où apparaît un facteur global $(3\cos^2\theta - 1)$ (θ désigne dans ce cas là l'angle entre l'axe du cylindre et l'axe Oz). Une telle intégration analytique n'est en général pas possible et on fera dans la suite usage d'approximations simplificatrices.

3.4 Stabilité. Limites du modèle.

La pertinence d'un tel modèle, dans lequel l'aimantation est uniforme et le reste, peut aisément être remise en cause. En effet, le champ magnétique appliqué peut engendrer, s'il n'est pas uniforme, des inhomogénéités d'aimantation. Mais, à l'inverse, la diffusion de spin tend à gommer de telles inhomogénéités.

Outre les inhomogénéités de champ appliqué, il peut également exister des inhomogénéités du champ dipolaire. En effet, si l'échantillon n'est pas contenu dans une forme aussi simple que le cylindre droit et infini dont nous venons de parler ou si l'aimantation n'est pas uniforme (nous verrons par la suite que c'est le cas expérimentalement), alors le champ dipolaire dans l'échantillon n'est pas uniforme. Ceci a également pour effet de générer des inhomogénéités d'aimantation.

Expérimentalement, nos cellules sont faites de longs et étroits tubes de verre et nous avons vu que l'homogénéité du champ appliqué $\mathbf{B}_{ext}$ est très bonne. Dans les deux modèles que nous allons présenter dans les paragraphes suivants, on supposera que la diffusion de spin, rapide sur de courtes distances comme le rayon du tube a, préserve très efficacement l'homogénéité de l'aimantation sur de telles distances. On négligera par conséquent toute variation de l'aimantation dans un plan transverse et on ne s'intéressera qu'à l'évolution de l'aimantation moyenne dans un tel plan. Cette hypothèse nous permettra de négliger toute variation transverse du champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$. Dans le cadre de ces modèles à une dimension, l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$ et le champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$ ne dépendent que de la position s le long du cylindre qui contient l'échantillon.

Une approche rigoureuse et détaillée permettrait de fonder quantitativement les modèles unidimensionnels employés dans cette partie tout en y apportant les corrections résultant des petites inhomogénéités transverses. Dans cette perspective, nous avons amorcé un calcul qui prend en compte les dépendances radiales de l'aimantation et du champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$. Il n'est pas exposé dans ce mémoire.

Chapitre 4

Effet du champ dipolaire dans un tube long et étroit en forme de U : un modèle qualitatif et didactique.

4.1 Hypothèses du modèle.

Ce modèle, déjà en partie expliqué dans la référence [Stoltz 95], a pour objet d'expliquer, au moins de manière qualitative, les effets de couplages dipolaires dans un échantillon contenu dans un tube en forme de U de rayon intérieur a, de rayon de courbure R ($R \gg a$) et prolongé par de longues branches verticales (voir la figure 4.1). Nous comprendrons, à l'exposé de ce modèle, que sa validité peut être étendue au cas d'un échantillon contenu dans un tube torique de même diamètre et de même rayon de courbure.

Ce modèle repose sur certaines hypothèses simplificatrices :

- C'est un modèle discret ; on peut en effet montrer qu'il existe une longueur l_0 telle que le champ dipolaire moyen dans un élément cylindrique de longueur l_0 est parallèle à l'aimantation moyenne de l'élément (voir la figure 4.2). L'échantillon peut alors être mentalement divisé en une série de tels petits éléments cylindriques qui ont individuellement cette propriété particulière d'isotropie. l_0 est de l'ordre de grandeur de a, et nous pouvons donc supposer que l'aimantation est uniforme dans tout élément. Chaque élément sera enfin

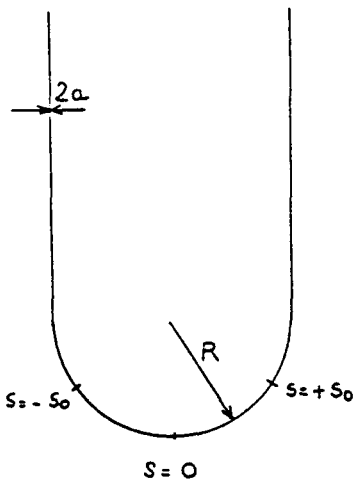


Figure 4.1: Caractéristiques géométriques du tube en U.

remplacé dans le raisonnement par un moment magnétique ponctuel.

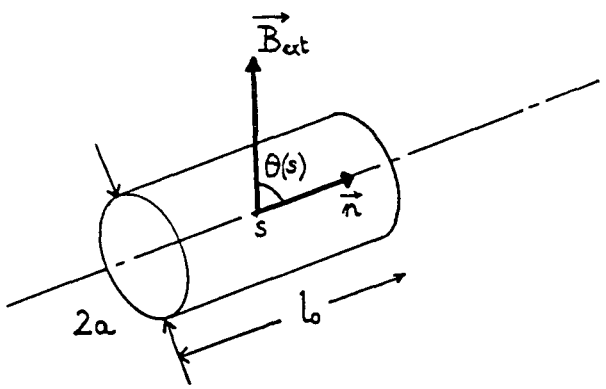


Figure 4.2: Cylindre élémentaire. La longueur l_0 est telle que le champ dipolaire dans l'élément est en moyenne parallèle à l'aimantation interne.

- La seconde hypothèse est plus abrupte dans la mesure où elle suppose que le champ dipolaire créé dans l'élément repéré par la position s par le reste de l'échantillon ne dépend en fait que de l'aimantation des deux éléments voisins de l'élément considéré. Ce couplage aux premiers voisins constitue bien sûr une hypothèse outrageusement simplificatrice ; il est en effet bien connu que le champ dipolaire en $1/r^3$ induit des couplages à longue portée. Cependant, cette approximation permet de prendre en compte, au moins en partie, les variations spatiales de l'aimantation le long du tube.

Dans le cadre de ces hypothèses, nous pouvons écrire le champ dipolaire au niveau de l'élément repéré par la position s sous la forme approchée suivante :

$$\mathbf{B}_{app}(s) = \alpha\mu_0 \vec{\mathcal{M}}(s) + \beta\mu_0 \left\{ 3 \left[\left(\vec{\mathcal{M}}(s+l_0) + \vec{\mathcal{M}}(s-l_0) \right) . \mathbf{n} \right] \mathbf{n} - \vec{\mathcal{M}}(s+l_0) - \vec{\mathcal{M}}(s-l_0) \right\}, \tag{4.1}$$

où α et β sont de simples coefficients numériques sans dimension de l'ordre de l'unité et $\mathbf{n}$ un vecteur unitaire le long de l'axe de l'élément considéré. Le retour à des variables continues s'opère à ce niveau en remarquant que :

$$\vec{\mathcal{M}}(s+l_0) \simeq \vec{\mathcal{M}}(s) + l_0 \frac{\partial \vec{\mathcal{M}}}{\partial s}(s) + \frac{l_0^2}{2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{M}}}{\partial s^2}(s). \tag{4.2}$$

4.2 Solutions stationnaires de l'équation de Bloch.

L'équation de Bloch une nouvelle fois écrite dans le référentiel de Larmor et dans le cadre de l'approximation séculaire conduit alors à :

$$\left(\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}(s)}{\partial t} \right)_{Larmor} = \gamma\beta\mu_0 \frac{3\cos^2\theta(s) - 1}{2} \vec{\mathcal{M}}(s) \wedge \left[\left(\mathcal{M}_z(s) + \frac{l_0^2}{2} \Delta\mathcal{M}_z(s) \right) \mathbf{z} - \frac{l_0^2}{6} \Delta \vec{\mathcal{M}}(s) \right], \tag{4.3}$$

où le symbole Δ représente le laplacien et la signification de l'angle $\theta(s)$ est clairement explicitée sur la figure 4-2. Il est à noter que la longueur l_0 de chaque élément est déterminée de telle façon que le terme "local" $\alpha\mu_0 \vec{\mathcal{M}}(s)$ de l'équation 4.1, qui est parallèle à $\vec{\mathcal{M}}(s)$, ne contribue pas à l'évolution de l'aimantation.

Dans un souci de simplicité, nous allons restreindre notre discussion à l'étude de l'évolution de l'aimantation après qu'une impulsion RMN de petit angle a été appliquée. Dans ces conditions, le module de la composante transverse de l'aimantation (traditionnellement représentée par la notation complexe $\mathcal{M}_+(s)$) reste toujours inférieur au module de la composante longitudinale $\mathcal{M}_z(s)$ de l'aimantation. L'évolution de la composante transverse de l'aimantation obéit alors à l'équation :

$$\left(\frac{\partial \mathcal{M}_+(s)}{\partial t} \right)_{Larmor} = i\omega(s) \left\{ \mathcal{M}_+(s) + \frac{l_0^2}{6} \Delta\mathcal{M}_+(s) + \frac{l_0^2}{3} \mathcal{M}_+(s) \frac{\Delta\mathcal{M}_z(s)}{\mathcal{M}_z(s)} \right\} \tag{4.4}$$

où

$$\omega(s) = \frac{1}{2}\gamma\beta\mu_0\mathcal{M}_z(s)\left(3\cos^2\theta(s) - 1\right). \tag{4.5}$$

Intéressons nous à présent au cas particulier où l'aimantation longitudinale est uniforme. Alors $\frac{\partial\mathcal{M}_+(s)}{\partial t}_{Larmor}$ se réduit à :

$$\frac{\partial\mathcal{M}_+(s)}{\partial t}_{Larmor} = i\omega(s)\left\{\mathcal{M}_+(s) + \frac{l_0^2}{6}\Delta\mathcal{M}_+(s)\right\}. \tag{4.6}$$

Nous verrons que cette hypothèse s'avère en fait peu réaliste au vu de nos conditions expérimentales : en effet, même si la polarisation nucléaire M_z reste uniforme dans tout le volume de la cellule d'étude, des variations importantes de la densité n_3 d'atomes d'hélium 3 peuvent résulter d'inévitables gradients de température le long de la cellule ou d'une séparation de phase dans le mélange liquide d'hélium 3 dans l'hélium 4, produisant ainsi des variations spatiales de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$.

L'équation 4.6 peut être résolue en cherchant les solutions $\mathcal{M}_+(s,t)$ sous la forme de modes stationnaires $\mathcal{M}_n(s)\exp(i\Omega_n t)$. Ces modes vérifient alors l'équation suivante :

$$-\frac{l_0^2}{6}\Delta\mathcal{M}_n(s) + \left(\frac{\Omega_n}{\omega(s)} - 1\right)\mathcal{M}_n(s) = 0 \tag{4.7}$$

en tout point repéré par l'abscisse curviligne s, à l'exception du point s_0 tel que $\omega(s_0) = 0$, c'est-à-dire $\cos^2\theta(s_0) = 1/3$ (voir la figure 4-1).

4.3 Discussion.

4.3.1 Modes stationnaires confinés dans le fond du tube en U.

L'équation 4.7 peut apparaître comme formellement semblable à une équation de Schrödinger à une dimension. Poursuivant cette analogie avec la mécanique quantique, le problème consiste donc à trouver toutes les fréquences propres Ω_n pour lesquelles il existe des solutions $\mathcal{M}_n$ "d'énergie zéro" dans le "potentiel réduit" $V(s) = \frac{\Omega_n}{\omega(s)} - 1$. Comme indiqué sur la figure 4.1, l'origine $s = 0$ est choisie au point le plus bas du tube en U.

Dans la partie inférieure du tube en U où $\mid s \mid < s_0$, pour que des solutions stationnaires "d'énergie zéro" existent, le potentiel $V(s)$ doit, d'une part, tendre vers $+\infty$ quand s tend vers $\pm s_0$ et, d'autre part, atteindre une valeur négative au fond du puits de potentiel en

$s = 0$. Ces deux conditions permettent d'écrire pour les fréquences propres Ω_n des modes stationnaires la double inégalité suivante :

$$-\omega(0) < \Omega_n < 0 \tag{4.8}$$

($\omega(0)$ est la valeur de $\omega(s)$ calculée au point $s = 0$).

Le mode dont la fréquence est la plus proche de la borne inférieure $-\omega(0)$ est aussi celui qui est le plus localisé autour de l'origine. Par analogie avec la mécanique quantique, nous qualifierons ce mode de mode fondamental. Corrélativement, un mode est d'autant plus excité que sa fréquence correspond à un rapport $\mid \frac{\Omega_n}{\omega(0)} \mid$ de plus en plus petit.

Puisque $\frac{l_0}{R} \ll 1$, on peut utiliser une approximation harmonique du potentiel V au voisinage de l'origine. Celle-ci conduit naturellement à une distribution équirépartie des fréquences des modes les moins excités : l'écart entre les fréquences correspondant à deux modes pairs (ou impairs) successifs vaut $0.44\frac{l_0}{R}$. Pour les modes plus excités, qui ne sont pas confinés dans la région où $s \ll s_0$, un tel développement harmonique n'est plus possible et les fréquences viennent s'accumuler vers la valeur 0.

La figure 4.3 résume en les schématisant les résultats que nous venons de décrire : y sont figurées l'allure du potentiel $V(s)$ et des premiers modes propres $\mathcal{M}_0(s)$, $\mathcal{M}_2(s)$ ainsi que la distribution des fréquences propres prévue dans le cadre de l'approximation harmonique.

On peut également montrer que l'effet de petits gradients de champ magnétique extérieur est simplement de distordre le potentiel $V(s)$, d'en déplacer le fond du puits sans en changer la courbure. Dans ces conditions, les modes d'aimantation continuent d'exister en "se translatant" légèrement.

Pour un échantillon qui serait contenu dans un tore, le même raisonnement donne un spectre comparable (modes peu excités équirépartis, modes plus excités qui se resserrent, confinés (de moins en moins) au voisinage de $s = \pi R/2$).

En conclusion, le champ dipolaire dans un tube courbé a pour effet de piéger des "modes d'aimantation" au voisinage des points correspondant à $\cos^2\theta = 0$ ou 1 ; ces modes sont des distributions spatiales assez localisées de $\mathcal{M}_+$ qui précessent uniformément.

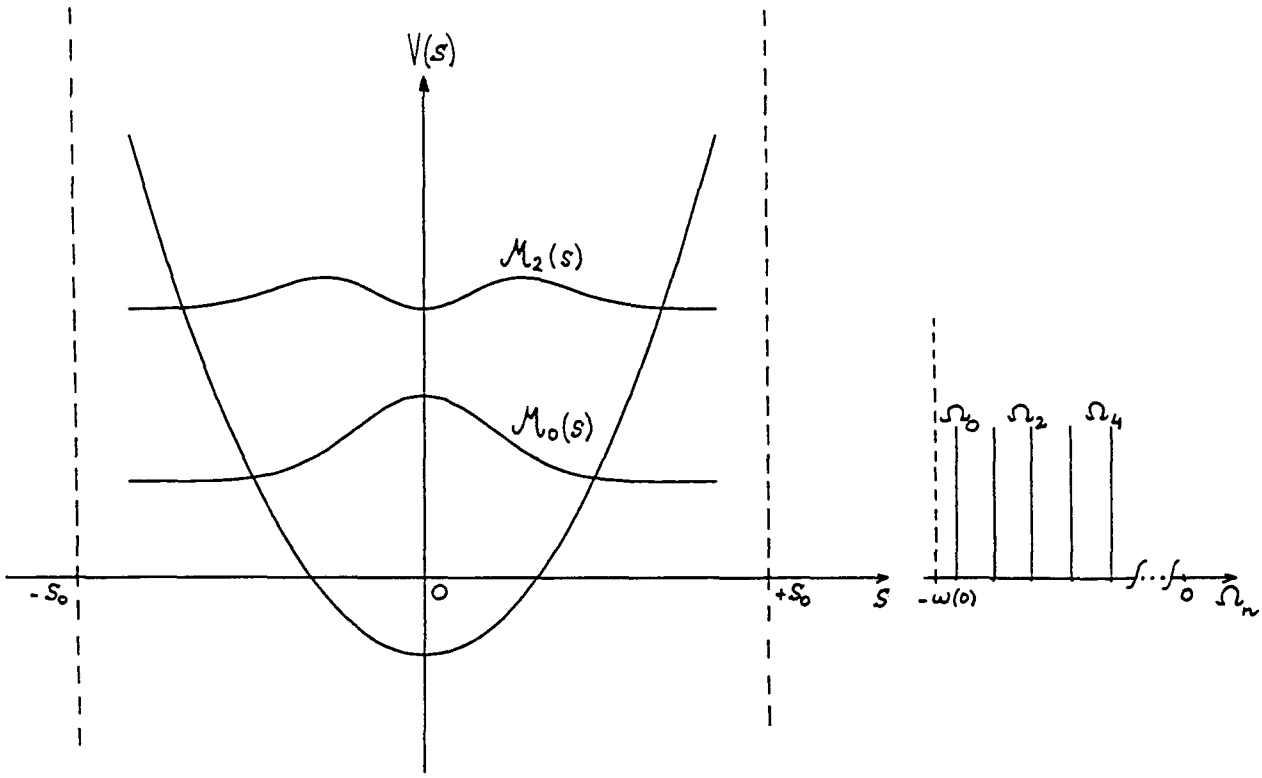


Figure 4.3: Allure du potentiel et des premiers modes d'aimantation dans le fond du tube en U. Distribution des fréquences propres. Seuls les modes pairs d'aimantation sont considérés : ce sont ceux que nous avons expérimentalement observés.

4.3.2 Modes semi confinés dans les branches verticales du tube en U.

Il est également intéressant de discuter la résolution de l'équation 4.7 dans la partie du tube en U correspondant à $\mid s \mid > s_0$. Pour les mêmes raisons que précédemment, l'existence de modes stationnaires "d'énergie zéro" dans cette partie du tube en U se traduit par la double inégalité portant sur les fréquences des modes :

$$0 < \Omega_n < 2\omega(0). \tag{4.9}$$

Si le potentiel peut confiner des modes dans la partie courbée du tube en U, sa valeur est en revanche constante dans les branches verticales ce qui interdit un quelconque confinement de modes dans cette région. On peut se représenter (comme sur la figure 4.4) les modes semi

confinés qui existent néanmoins comme le résultat d'un raccordement entre un "demi mode d'oscillateur harmonique" localisé entre $s = s_0$ et $s = \pi R/2$ et une onde plane s'étendant dans toute la branche verticale.

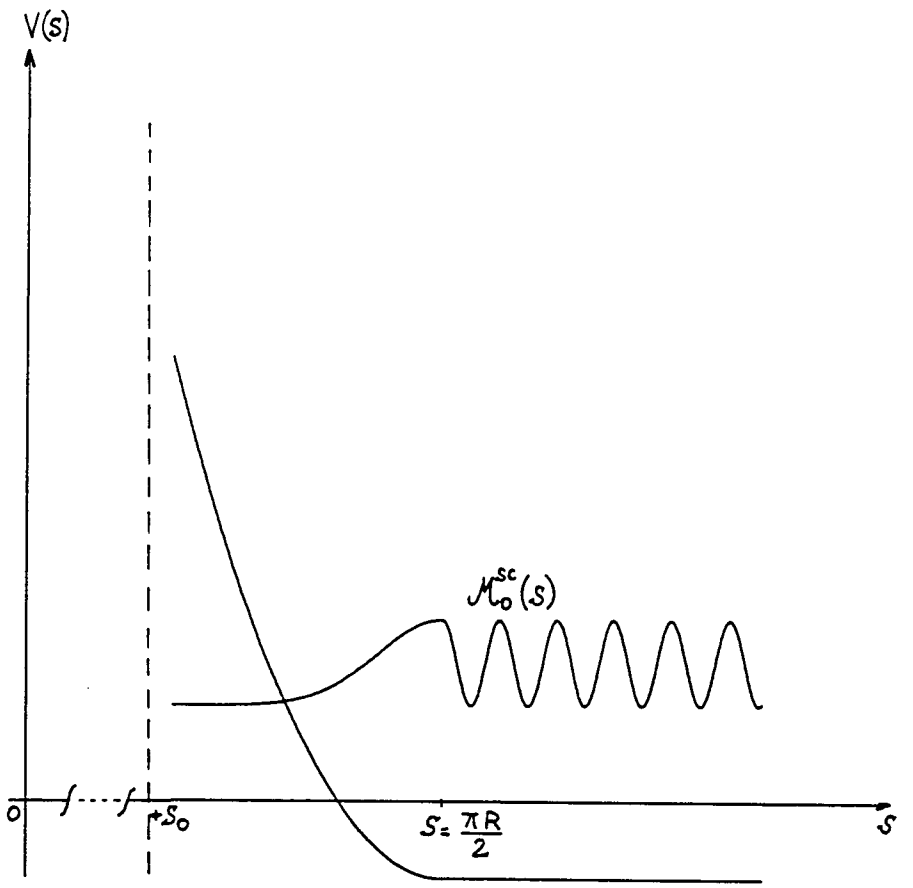


Figure 4.4: Allure du potentiel et du premier mode d'aimantation au niveau des branches verticales du tube en U.

De manière un peu plus réaliste, la présence simultanée de gradients de champ extérieur et de gradients d'aimantation peut provoquer un redressement ou un affaissement de la ligne constante du potentiel dans les branches verticales entraînant respectivement un vrai confinement des modes semi confinés au voisinage du point $s = \pi R/2$ ou bien le rejet à l'infini des modes dans les branches verticales.

Ainsi, ce modèle naïf permet de comprendre comment, sous l'effet de couplages dipolaires, l'aimantation d'un échantillon contenu dans un tube en forme de U se structure en modes propres de précession. La courbure les confine essentiellement au fond du tube en U alors que

dans les branches verticales, la localisation des modes survient comme le fruit de l'action de gradients de champ appliqué et/ou d'inhomogénéités d'aimantation. Ce résultat sera d'ailleurs confirmé pour un modèle plus réaliste au paragraphe 5.4.1.2 En outre, ce modèle prédit que la distribution des fréquences des modes est un spectre discret composé de deux familles de raies réparties autour de la fréquence de Larmor. S'il est vrai que les caractéristiques que nous venons d'énoncer constitueront les traits majeurs de nos observations expérimentales, il n'en reste pas moins que le manque de finesse dans l'écriture du champ dipolaire ne nous permet d'accorder qu'une confiance qualitative dans ce modèle.

Chapitre 5

Effet du champ dipolaire dans un tube long et étroit en forme de U : un modèle plus quantitatif.

5.1 Forme générale.

Le modèle que nous allons utiliser ici est, comme nous l'avons précédemment justifié, un modèle à une dimension : les composantes longitudinale et transverse de l'aimantation (respectivement $\mathcal{M}_z$ et $\mathcal{M}_+$) sont supposées ne dépendre que de la position s le long du tube qui contient l'échantillon.

Les effets physiques dont nous aurons à tenir compte, outre les effets du champ dipolaire lui-même, sont la diffusion d'aimantation dans le liquide, les effets liés à la présence de gradients de champ extérieur ainsi que du couplage au circuit de détection. Ces termes contribuent de manière différente à l'évolution de la composante transverse de l'aimantation $\mathcal{M}_+$. En revanche, nous pourrons négliger l'effet d'entraînement induit par la circulation des atomes d'hélium 3 dans nos expériences.

Une démarche analogue à celle présentée dans les paragraphes précédents conduit pour la composante transverse de l'aimantation $\mathcal{M}_+$ à une équation de Bloch qui, une fois encore écrite dans le référentiel de Larmor et en négligeant les termes non séculaires, peut se mettre

sous la forme globale suivante :

$$\frac{\partial \mathcal{M}_+(s)}{\partial t}_{Larmor} = i\mathcal{L}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z] + \mathcal{D}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]. \tag{5.1}$$

Le premier terme $i\mathcal{L}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]$ résulte de processus qui ont pour effet de déplacer la fréquence de précession tandis que le second $\mathcal{D}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]$ traduit les effets d'amortissement.

5.2 Différentes expressions pour le champ dipolaire dans le tube en U.

Nous commençons par écrire une expression approchée du terme dominant de l'équation 5.1, terme dipolaire qui est à l'origine de l'existence des modes magnétiques. L'effet moyen du champ dipolaire sur une section, repérée par la position s le long du tube, est caractérisé par un champ $\mathbf{B}_{dip}(s)$ pour lequel nous utilisons des formules approchées analytiquement commodes. Nous allons établir deux expressions approximatives différentes pour décrire le champ dipolaire sur l'axe d'un tube en U contenant un échantillon quasi-uniformément aimanté (l'adverbe quasi réfère à l'uniformité de l'aimantation dans toute section de l'échantillon). Par rapport au trop simple couplage entre premiers voisins évoqué au chapitre 4, l'objectif de ces nouvelles expressions est de prendre en compte de manière plus soignée les contributions au champ dipolaire provenant de l'échantillon tout entier. Le fait d'utiliser la valeur du champ sur l'axe du tube n'est toutefois justifié que lorsque les variations des grandeurs caractéristiques du système aimanté (aimantation, champ dipolaire) sont très faibles sur des distances de l'ordre de a.

5.2.1 Approximation du cylindre tangent.

Nous verrons dans la suite (voir l'équation 5.4) que le champ dipolaire en un point donné d'un échantillon quasi-uniformément aimanté contenu dans un tube droit et infini résulte essentiellement des contributions au voisinage de ce point, sur une échelle caractéristique de l'ordre du rayon intérieur a du tube. Il en résulte que la géométrie exacte de l'échantillon, sur des distances très supérieures à a, n'a qu'un effet modéré sur le champ local et peut donc être négligée. Puisque le rayon de courbure R du tube en U est très supérieur à son rayon intérieur a , l'approximation qui consiste à substituer au vrai champ dipolaire, calculé au centre d'une section repérée par la position s, le champ, calculé au centre de la même

section, créé par un cylindre infini, tangent au tube en U au point s et de même distribution d'aimantation que l'échantillon initial, semble dès lors assez naturelle. Cette approximation simplifie grandement l'analyse en introduisant une erreur qui n'est que du second ordre en a/R. La figure 5.1 permet de visualiser l'approximation du cylindre tangent et de préciser les notations employées.

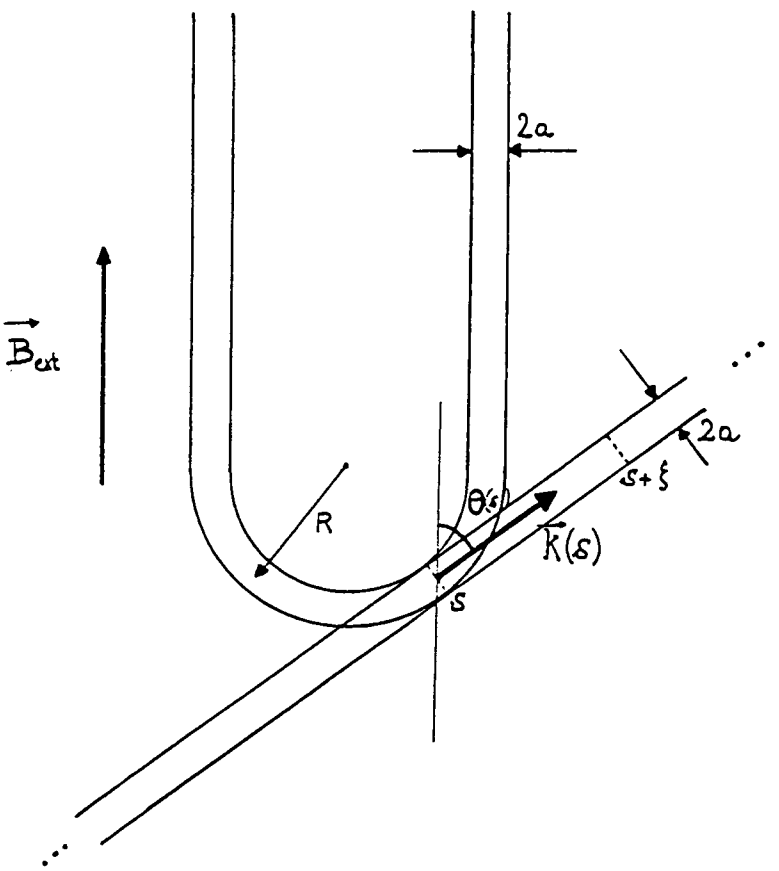


Figure 5.1: Approximation du cylindre tangent.

Il s'agit donc de calculer sur l'axe du cylindre le champ dipolaire créé par un cylindre droit, infini, dans lequel l'aimantation n'est supposée dépendre que du point s considéré et de la position ξ le long du cylindre. A cette fin, nous écrivons que l'aimantation dans le cylindre droit, en tout point d'une section repérée par la position $s+\xi$, peut être écrite sous la forme :

$$\vec{M}(s+\xi) = \vec{M}(s) + \Delta_1(s,\xi), \tag{5.2}$$

où $\mathbf{\Delta}_1$ mesure la différence entre les valeurs des aimantations sur les sections repérées par les positions $s+\xi$ et s. En un point s donné, la contribution au champ dipolaire de l'aimantation uniforme $\vec{\mathcal{M}}\ (s)$ a déjà été calculée en première partie de ce chapitre. Rappelons qu'elle s'écrit :

$$\mathbf{B}_{dip,\vec{\mathcal{M}}(s)}(s) = \frac{\mu_0}{6}\left\{3\left(\vec{\mathcal{M}}\ (s).\mathrm{k}(s)\right)\mathrm{k}(s) - \vec{\mathcal{M}}\ (s)\right\}, \tag{5.3}$$

où $\mathrm{k}(s)$ désigne un vecteur unitaire le long du cylindre tangent au tube en U au point s. La contribution au champ dipolaire de $\mathbf{\Delta}_1(s,\xi)$ peut se calculer par exemple en appliquant simplement la formule classique dite du dipôle ; le terme en $\mathbf{\Delta}_1(s,\xi)$ ne donne pas lieu à un terme de contact puisque $\lim_{\xi\to 0}\mathbf{\Delta}_1(s,\xi) = \mathbf{0}$. On trouve que :

$$\mathbf{B}_{dip,\mathbf{\Delta}_1}(s) = \frac{\mu_0}{4}\int_{-\infty}^{+\infty}\left[3\left(\mathbf{\Delta}_1(s,\xi).\mathrm{k}(s)\right)\mathrm{k}(s) - \mathbf{\Delta}_1(s,\xi)\right]\frac{a^2}{\left(a^2+\xi^2\right)^{3/2}}d\xi. \tag{5.4}$$

Finalement, dans le cadre de l'approximation du cylindre tangent, l'expression approximative que nous pouvons donner pour le champ dipolaire calculé au centre de la section repérée par la position s, s'écrit comme la superposition des deux contributions $\mathbf{B}_{dip,\vec{\mathcal{M}}}$ et $\mathbf{B}_{dip,\mathbf{\Delta}_1}$ que nous venons successivement de calculer :

$$\mathbf{B}_{dip}(s) = \frac{\mu_0}{6}\left\{3\left(\vec{\mathcal{M}}\ (s).\mathrm{k}(s)\right)\mathrm{k}(s) - \vec{\mathcal{M}}\ (s)\right\}$$

$$+\frac{\mu_0}{4}\int_{-\infty}^{+\infty}\left[3\left(\mathbf{\Delta}_1(s,\xi).\mathrm{k}(s)\right)\mathrm{k}(s) - \mathbf{\Delta}_1(s,\xi)\right]\frac{a^2}{\left(a^2+\xi^2\right)^{3/2}}d\xi. \tag{5.5}$$

5.2.2 Approximation asymptotique.

Une autre expression du champ dipolaire au centre d'une section repérée par la position s nous a été suggérée par Donald Candela de l'Université du Massachussets lors de son séjour au laboratoire :

$$\mathbf{B}_{dip}(s) = \mu_0\int_{-\infty}^{+\infty}ds'\left[3\left(\vec{\mathcal{M}}\ (s').\mathrm{k}'(s,s')\right)\mathrm{k}'(s,s') - \vec{\mathcal{M}}\ (s')\right]$$

$$\times\left[\frac{1}{4}\frac{a^2}{\left(R^2(s,s')+a^2\right)^{3/2}} - \frac{1}{3}\delta(s'-s)\right], \tag{5.6}$$

expression dans laquelle s' désigne une position courante le long du vrai tube en U, $R(s,s')$ la distance séparant les centres des sections repérées par ces positions respectives, et $\mathrm{k}'(s,s')$

un vecteur unitaire de la droite reliant les centres des sections en question. (La figure 5.2 explicite les notations employées). Si cette nouvelle expression 5.6 ne peut pas être justifiée au moyen d'un raisonnement rigoureux, elle correspond cependant exactement à la formule du champ dipolaire dans le cas du tube droit et infini et rend également compte exactement des contributions au champ dipolaire de parties du tube très éloignées l'une de l'autre ($|s'-s| \gg a$). Pour ces raisons, elle est digne d'intérêt et a fait l'objet d'études au même titre que l'expression 5.5 dérivée de l'approximation du cylindre tangent.

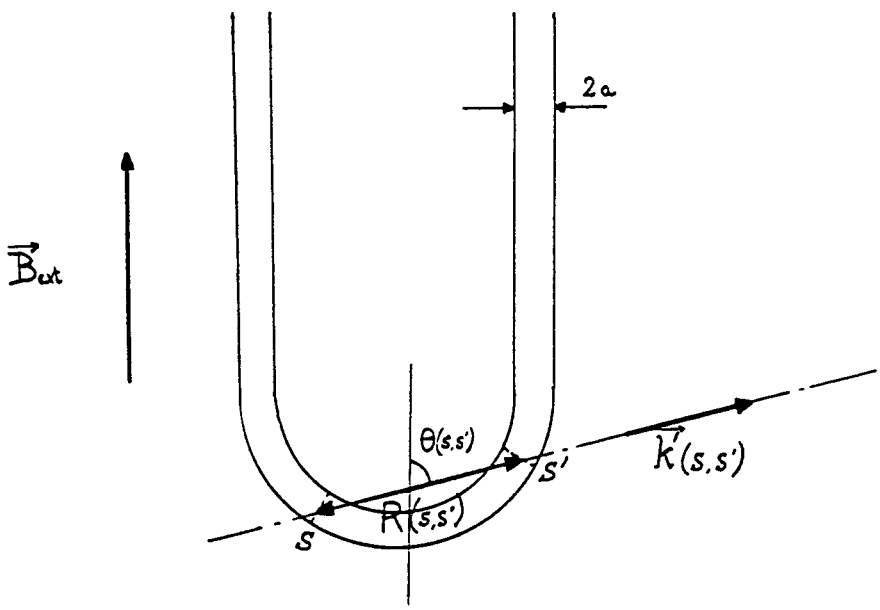


Figure 5.2: Approximation asymptotique.

5.2.3 Ecriture de la contribution du terme dipolaire à l'équation de Bloch.

Par la suite, nous avons en général privilégié pour la présentation des calculs dans ce mémoire l'expression de $\mathbf{B}_{dip}$ correspondant à l'approximation du cylindre tangent (équation 5.5), mais systématiquement comparé les résultats des deux approximations. Dans l'équation 5.1, le terme $\mathcal{L}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]$ est alors égal à la somme des deux termes $\mathcal{L}_1^{dip}$ et $\mathcal{L}_2^{dip}$ suivants :

$$\mathcal{L}_1^{dip} = \frac{a^2}{2}\Delta(s)\int_{-\infty}^{+\infty}\mathcal{M}_+(s+\xi)\frac{d\xi}{(a^2+\xi^2)^{3/2}} \tag{5.7}$$

$$\mathcal{L}_2^{dip} = a^2\frac{\mathcal{M}_+(s)}{\mathcal{M}_z(s)}\Delta(s)\int_{-\infty}^{+\infty}[\mathcal{M}_z(s+\xi)-\mathcal{M}_z(s)]\frac{d\xi}{(a^2+\xi^2)^{3/2}}, \tag{5.8}$$

où

$$\Delta(s) = \frac{\gamma\mu_0\mathcal{M}_z(s)}{4}\left(1-3(\mathbf{k}(s).\mathbf{z})^2\right) = \frac{\gamma\mu_0\mathcal{M}_z(s)}{4}\left(1-3\cos^2\theta(s)\right)\ . \tag{5.9}$$

L'équation de Bloch pour la composante longitudinale de l'aimantation $\mathcal{M}_z$ s'écrit quant à elle :

$$\left.\frac{\partial\mathcal{M}_z(s)}{\partial t}\right|_{Larmor} = i\frac{a^2}{4}\frac{\Delta(s)}{\mathcal{M}_z(s)}$$

$$\times\left[\mathcal{M}_+(s)\int_{-\infty}^{+\infty}\mathcal{M}_-(s+\xi)\frac{d\xi}{(a^2+\xi^2)^{3/2}} - \mathcal{M}_-(s)\int_{-\infty}^{+\infty}\mathcal{M}_+(s+\xi)\frac{d\xi}{(a^2+\xi^2)^{3/,2}}\right]; \tag{5.10}$$

où $\mathcal{M}_-$ est le nombre complexe conjugué de $\mathcal{M}_+$. Ces expressions sont obtenues à partir de l'équation de Bloch 3.4 en utilisant l'approximation séculaire mentionnée au paragraphe 3.3 et en projetant respectivement dans le plan perpendiculaire à $\mathbf{B}_{ext}$ et sur $\mathbf{B}_{ext}$. A ce stade, il est aisé de constater que le module du vecteur aimantation $\vec{\mathcal{M}}$ se conserve localement : l'effet du champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$ sur l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$ est donc exclusivement un effet de rotation. Il en est toujours ainsi lorsque l'évolution de $\vec{\mathcal{M}}$ est régie par des termes qui ne contribuent qu'à $i\mathcal{L}$.

5.3 Quelques ingrédients réalistes supplémentaires.

L'équation de Bloch 5.1 du paragraphe précédent comporte, outre les effets du champ dipolaire, les effets d'inhomogénéités de champ appliqué et de la diffusion d'aimantation, ainsi que ceux nés d'un couplage avec le circuit de détection RMN.

Appelons $\delta\mathbf{B}_{ext}(s)$ les inhomogénéités locales du champ appliqué, repérées par rapport à la valeur moyenne $\mathbf{B}_{ext}$ de ce champ sur toute l'étendue de l'échantillon. De telles inhomogénéités, appliquées volontairement ou non, introduisent une contribution supplémentaire au terme $\mathcal{L}[\mathcal{M}_+,\mathcal{M}_z]$ de l'équation 5.1 notée $\mathcal{L}^{\delta B}$:

$$\mathcal{L}^{\delta B} = -\gamma\delta B_{ext,z}(s)\mathcal{M}_+(s). \tag{5.11}$$

La diffusion d'aimantation, qui n'affecte pas les inhomogénéités spatiales de la densité volumique d'atomes d'hélium 3 mais nivelle les inhomogénéités spatiales de la polarisation nucléaire M, donne une contribution au terme $\mathcal{D}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]$ qui s'écrit sous la forme :

$$\mathcal{D}^{diff} = -D\mu_n n_3 \frac{\partial^2 M_+(s)}{\partial s^2}, \tag{5.12}$$

où D est le coefficient de diffusion de l'aimantation. Il est à noter que, dans cette étude nous supposons que la diffusion est purement classique, c'est-à-dire que le coefficient D est réel. Nous négligeons donc les effets d'ondes de spin du type Legget-Rice. C'est une hypothèse légitime dans le régime de "haute" température dans lequel nous travaillons (voir la partie expérimentale consacrée à la cryogénie). Les effets quantiques d'ondes de spin dans l'hélium 3 gazeux ont été étudiés par G.Tastevin [Tastevin 87] et par J.Owers-Bradley [Owers-Bradley 83] dans les solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4 superfluide. Dans le cas où cette approximation de diffusion classique n'est pas valable, il suffit de substituer au coefficient réel D, un autre coefficient de diffusion, complexe cette fois, et dépendant de la polarisation nucléaire. On pourrait alors étudier le couplage entre les ondes de spin et les modes magnétiques.

Enfin, G. Tastevin a montré dans sa thèse [Tastevin 87] qu'un couplage faible de l'aimantation avec les bobines de détection RMN (voir la partie expérimentale consacrée au dispositif RMN) se solde à la fois par un déplacement de la fréquence de précession de l'aimantation et par une variation de son taux d'amortissement. Sous certaines conditions qui sont réalisées dans les expériences (le circuit électrique de détection a une fréquence propre égale à la fréquence de Larmor et un temps de réponse caractéristique court devant le temps de relaxation T_2 de la composante transverse de l'aimantation), les effets de couplage s'écrivent assez simplement pour donner une contribution à l'équation de Bloch 5.1 $i\mathcal{L}^{dc} + \mathcal{D}^{dc}$ avec

$$i\mathcal{L}^{dc} + \mathcal{D}^{dc} = K(2i + Q)\mathcal{M}_z(s) \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{M}_+(\xi) d\xi. \tag{5.13}$$

Le coefficient de couplage K dépend de la géométrie du circuit de détection et de ses caractéristiques électriques et Q désigne la surtension du circuit à résonance. Tant que les effets du couplage aux bobines de détection restent inférieurs à ceux des interactions dipolaires, le terme 5.13 provoquera, pour chacun des modes d'aimantation, un déplacement de fréquence et un amortissement aisément calculables. La formule 5.13 qui donne au même ordre d'approximation le déplacement de fréquence et l'amortissement résultant du couplage faible

avec un circuit à résonance est plus complète que les résultats des références [Richards 88] [Chupp 94] sur les masers Zeeman.

Avant de résoudre l'équation de Bloch 5.1, il convient de noter qu'elle ne décrit la précession de l'aimantation qu'en l'absence du champ radiofréquence $\mathbf{B}_1$ qui provoque son basculement. Pendant la durée de l'impulsion, l'équation de Bloch dans le référentiel de Larmor fait intervenir la somme du champ $\mathbf{B}_1$ et du champ dipolaire $\mathbf{B}_{dip}$ à la place du seul champ $\mathbf{B}_{dip}$. Comme $\mathbf{B}_1$ et $\mathbf{B}_{dip}$ peuvent être du même ordre de grandeur, il faudrait faire une étude détaillée et en particulier le traitement séculaire serait à reprendre pendant la durée d'une impulsion radiofréquence.

5.4 Résolution de l'équation de Bloch.

5.4.1 En l'absence d'amortissement ($\mathcal{D} = 0$).

Considérons dans un premier temps que, compte tenu de nos conditions expérimentales, les effets du champ dipolaire dominent tous les autres termes introduits au paragraphe précédent.

De plus, comme dans la description du modèle de l'oscillateur harmonique, nous limitons la discussion au cas d'impulsions RMN de petits angles de basculement pour lesquelles $|\mathcal{M}_\pm| \ll |\mathcal{M}_z|$. Cette hypothèse permet de découpler les équations d'évolution de $\mathcal{M}_z$ et $\mathcal{M}_+$; conformément à l'équation 5.10, l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ reste constante et nous supposons qu'elle est uniforme sur toute l'étendue de l'échantillon.

L'équation de Bloch se réduit alors à :

$$\frac{\partial \mathcal{M}_+(s)}{\partial t} = i\mathcal{L}_1^{dip}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]. \tag{5.14}$$

Nous étudierons par la suite quelle peut être l'influence de chacun des termes que nous négligeons ici.

La recherche de solutions stationnaires non amorties $\mathcal{M}_+(s,t) = \mathcal{M}_n(s)\exp(i\Omega_n t)$ à l'équation de Bloch ainsi simplifiée conduit à l'équation suivante :

$$\Omega_n \mathcal{M}_n(s) = \frac{a^2}{2}\Delta(s)\int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{M}_n(s+\xi)\frac{d\xi}{(a^2+\xi^2)^{3/2}}. \tag{5.15}$$

Dans ces conditions, les modes propres d'aimantation $\mathcal{M}_n(s)$ ne sont pas amortis, et pour chaque mode, la phase de $\mathcal{M}_+$ est uniforme sur toute l'étendue de l'échantillon. Nous allons

maintenant déterminer les modes propres d'aimantation $\mathcal{M}_n(s)$ solutions de l'équation 5.15 ainsi que leurs fréquences associées en utilisant deux méthodes différentes.

5.4.1.1 Méthode variationnelle.

Riches des enseignements que nous avons pu tirer du modèle qualitatif présenté au chapitre 4, nous avons utilisé une méthode qui consiste à rechercher les modes propres $\mathcal{M}_n(s)$ solutions de l'équation 5.15 dans le fond du tube en U (pour lequel $|s| < s_0$), sous la forme des modes propres de l'oscillateur harmonique. Nous n'avons mené le calcul que pour le mode fondamental $\mathcal{M}_0^{var}(s) = A_0 \exp(-s^2/\lambda_0^2)$. La constante A_0 est déterminée de façon que le mode $\mathcal{M}_0^{var}$ soit de norme unité, et le paramètre variationnel λ_0 par l'extremum du produit scalaire $\Omega_0 \langle \mathcal{M}_0^{var} | \mathcal{M}_0^{var} \rangle = \Omega_0 = \langle \mathcal{M}_0^{var} | F(\mathcal{M}_0^{var}) \rangle$ où F désigne l'opérateur intégral qui à $\mathcal{M}_n(s)$ associe la valeur

$$a^2/2 \; \Delta(s) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\mathcal{M}_n(s+\xi)}{(a^2+\xi^2)^{3/2}} d\xi. \tag{5.16}$$

Pour une valeur du rapport a/R de 3.10^{-2}, valeur qui se révèlera pertinente pour décrire la géométrie de nos cellules, l'optimisation numérique du critère variationnel conduit à une largeur du mode fondamental de $0.17R$ $(= 5.7a)$. Ce résultat confirme que les modes sont bien localisés dans la partie horizontale qui constitue le fond du tube en U. La grandeur

$$1 - F(\mathcal{M}_0^{var}) / (\Omega_0 \mathcal{M}_0^{var}) \tag{5.17}$$

permet de quantifier l'erreur commise en approximant le vrai mode fondamental d'aimantation $\mathcal{M}_0$ par le mode fondamental de l'oscillateur harmonique $\mathcal{M}_0^{var}$. Elle vaut au point le plus bas du tube en U (pour $s = 0$) 0.6%.

On pourrait étendre la méthode pour trouver les modes succesifs. Néanmoins, l'impossibilité de résoudre de manière analytique les critères variationnels nous a fait opter pour une méthode de résolution plus commode et plus puissante que nous allons décrire maintenant.

5.4.1.2 Méthode numérique d'inversion.

Détermination des fréquences et des modes propres solutions de l'équation simplifiée 5.14 :

La méthode consiste à calculer les valeurs des composantes transverse et longitudinale de l'aimantation, respectivement $\mathcal{M}_+$ et $\mathcal{M}_z$, en un nombre $N = 2S + 1$ de points distincts symétriquement équirépartis sur le tube puis à discrétiser l'équation de Bloch $\partial \mathcal{M}_+(s)/\partial t =$

$i\mathcal{L}_1^{dip}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z]$. La version discrétisée de l'équation de Bloch peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\partial \mathcal{M}_{+,j}}{\partial t} = i \sum_{k=-S}^{k=+S} l_{j,k} \mathcal{M}_{+,k}, \tag{5.18}$$

où l'élément de la matrice carrée L de dimension $N \times N$ vaut

$$l_{j,k} = \frac{a^2}{2} \frac{\gamma \mu_0 \mathcal{M}_{z,j}}{4} (1 - 3\cos^2 \theta_j) \frac{e_N}{[a^2 + (k-j)^2 e_N^2]^{3/2}}, \tag{5.19}$$

formule dans laquelle θ_j désigne l'angle entre l'axe Oz et l'axe du cylindre tangent au point j, et e_N la distance (qui est constante) entre deux des N points utilisés pour la discrétisation. (Rappelons pour éviter toute confusion dans ces écritures aux nombreux indices, que i désigne toujours le nombre complexe de carré -1). En remarquant que, dans le fond du tube en U, $\theta_j = je_N/R + \pi/2$, l'élément $l_{j,k}$ s'écrit encore :

$$l_{j,k} = \frac{a^2}{2} \frac{\gamma \mu_0 \mathcal{M}_{z,j}}{4} (1 - 3\sin^2 \frac{je_N}{R}) \frac{e_N}{[a^2 + (k-j)^2 e_N^2]^{3/2}}. \tag{5.20}$$

A ce stade, il est très important de remarquer que la matrice L a tous ses coefficients réels mais qu'elle n'est pas symétrique. L'expression 5.20 montre que l'absence de propriété de symétrie a deux origines : d'une part, la présence du terme $\mathcal{M}_{z,j}$ en facteur et d'autre part le terme en $\sin^2 je_N/R$ provenant dans le modèle du cylindre tangent de l'approximation séculaire.

Cette deuxième source de non-symétrie disparaît lorsque l'on considère l'expression asymptotique du champ dipolaire (voir formule 5.6) : en effet, le terme angulaire en $3\cos^2\theta - 1$ qui demeure alors sous le signe intégral fait apparaître l'angle entre l'axe Oz et la corde reliant deux points du tube repérés par les indices j et k. L'élément général de la matrice L s'écrit alors :

$$l_{j,k} = \frac{a^2}{2} \frac{\gamma \mu_0 \mathcal{M}_{z,j}}{4} (1 - 3\sin^2 \frac{(j+k)e_N}{2R}) \frac{e_N}{[a^2 + (k-j)^2 e_N^2]^{3/2}}. \tag{5.21}$$

La première source de non-symétrie citée, à savoir la dépendance spatiale de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$, ne disparaît que dans le cas très particuler que nous considérons maintenant, où l'aimantation est uniforme. Dans un cas plus général, l'aimantation n'est pas uniforme et la matrice L n'est pas symétrique. Faut-il s'en étonner? Il nous semble que non, dans la mesure où la matrice L provient de la simple écriture de l'équation de Bloch et ne résulte pas de considérations relatives aux forces magnétiques.

La formule 5.18 peut être réécrite de manière plus condensée :

$$\frac{\partial \vec{\mathcal{M}}_+}{\partial t} = iL\, \vec{\mathcal{M}}_+, \tag{5.22}$$

où $\vec{\mathcal{M}}_+$ n'est plus une fonction de la variable continue s mais apparaît désormais comme un vecteur à N composantes. La méthode générale de résolution d'une telle équation matricielle différentielle consiste à diagonaliser la matrice L qu'on peut alors écrire sous la forme $L = P\Omega P^{-1}$, où Ω est la matrice diagonale des valeurs propres de L et P la matrice $N \times N$ des vecteurs propres de L (exprimés dans la base canonique). En notant $\mathbf{G}$ le vecteur à N composantes déduit de $\vec{\mathcal{M}}_+$ par la relation $\mathbf{G} = P^{-1}\, \vec{\mathcal{M}}_+$, l'équation 5.22 est équivalente à :

$$\frac{\partial \mathbf{G}}{\partial t} = i\Omega\mathbf{G}, \tag{5.23}$$

qui se résout de manière évidente en $G_k = \exp(i\Omega_k t)$, pour $1 \leq k \leq n$, où Ω_k désigne la $k$ième valeur propre de L. Le vecteur $\mathbf{G}$ et la matrice P étant déterminés, l'aimantation transverse $\vec{\mathcal{M}}_+$ est donnée par la relation $\vec{\mathcal{M}}_+ = P\mathbf{G}$ qui montre que $\vec{\mathcal{M}}_+$ se décompose sur les vecteurs propres de L. Chaque composante a une dépendance temporelle donnée par la fonction oscillante $\exp(i\Omega_k t)$ associée.

Bien que la matrice L ne soit pas symétrique, il s'avère qu'elle est diagonalisable et que dans les deux cas considérés (approximation du cylindre tangent ou approximation asymptotique), les valeurs propres sont toutes réelles. Ceci assure en particulier qu'aucune instabilité n'est générée par le champ dipolaire. La figure 5.3 reproduit les spectres des fréquences obtenues par diagonalisation de la matrice L dans l'approximation du cylindre tangent. Les résultats obtenus pour l'approximation asymptotique sont très similaires en ce qui concerne les fréquences des premiers modes propres. Ils ne sont pas représentés sur la figure 5.3 car on pourrait difficilement les distinguer à cette échelle.

Puisque L n'est pas symétrique, la matrice de changement de base P n'est pas orthogonale ($P^t \neq P^{-1}$). Deux vecteurs propres $\mathcal{M}_m$ et $\mathcal{M}_n$ associés à deux valeurs propres distinctes de L, Ω_m et Ω_n, ne sont donc (en général) pas orthogonaux au sens du produit scalaire :

$$\langle \mathcal{M}_m \,|\mathcal{M}_n\rangle = \sum_{j=-S}^{j=+S} \mathcal{M}_{m,j}\, \mathcal{M}_{n,j} \tag{5.24}$$

(dont l'extension naturelle s'écrit $\int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{M}_m(s)\mathcal{M}_n(s)ds$ dès que l'on retourne à la variable continue s). Pour la matrice non symétrique L, des considérations algébriques simples mon-

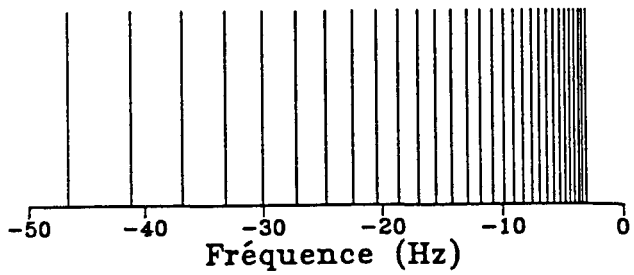


Figure 5.3: Fréquences des premiers modes d'aimantation pour une valeur du paramètre a/R=0.03. Les simulations sont effectuées avec une discrétisation faisant intervenir N=151 points. Nous avons vérifié que ce nombre est suffisant pour que les résultats n'en dépendent pas.

trent que c'est avec $\tilde{\mathcal{M}}_m$, vecteur propre de L^t associé à la valeur propre Ω_m et $\mathcal{M}_n$, vecteur propre de L associé à la valeur propre Ω_n ($\Omega_m \neq \Omega_n$) que la relation d'orthogonalité $\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_m \mid \mathcal{M}_n \right\rangle = \delta_{m,n}$ est vérifiée. Si on appelle E l'espace engendré par les vecteurs $(\mathcal{M}_k)_{1\leq k\leq N}$, l'espace engendré par les vecteurs $(\tilde{\mathcal{M}}_k)_{1\leq k\leq N}$ est alors l'espace dual de E et nous appellerons dorénavant par abus de langage un vecteur propre $\tilde{\mathcal{M}}_k$ un mode dual.

Une procédure classique de décomposition de L en valeurs singulières [Numerical Rec.] permet de déterminer simultanément pour chaque valeur propre de L les vecteurs propres associés de L et L^t.

Les figures 5.4 et 5.5 illustrent les résultats obtenus pour les modes propres d'aimantation par la méthode numérique de discrétisation et d'inversion. Sur la figure 5.4, on retrouve le mode fondamental d'aimantation, avec son allure gaussienne. Sa largeur à un facteur $1/e$ de la hauteur maximale vaut $0.165R$, valeur tout à fait comparable à celle trouvée par la méthode variationnelle (voir paragraphe 5.4.1.1). Le tracé en trait plein représente le mode fondamental d'aimantation et le tracé en petits traits pointillés son mode dual. Ces deux tracés ne coïncident pas car ils correspondent à une matrice L écrite dans le cadre de l'approximation du cylindre tangent, qui demeure non-symétrique même si l'on suppose, comme ici, l'aimantation longitudinale uniforme. En revanche, l'approximation asymptotique conduit, lorsque $\mathcal{M}_z$ est uniforme, à une matrice symétrique. Le mode fondamental d'aimantation et son dual se superposent exactement : c'est le tracé en traits pointillés moyens de la figure 5.4

qui vient s'insérer tout naturellement entre les deux autres tracés. On peut tirer les mêmes conclusions de l'étude de la figure 5.5 qui représente les variations spatiales du premier mode excité pair d'aimantation.

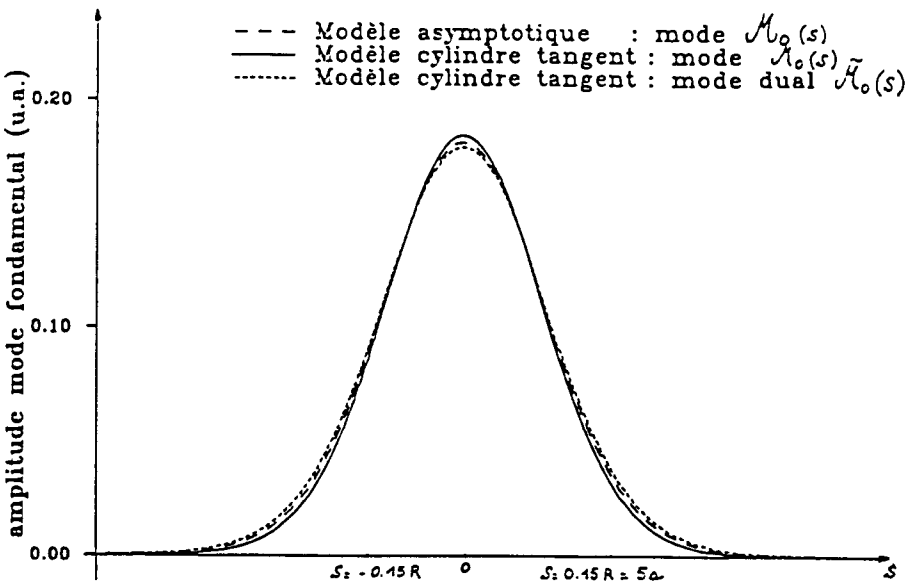


Figure 5.4: Mode fondamental d'aimantation. Le mode $\mathcal{M}_0$ correspond physiquement à une distribution d'aimantation. Le mode dual n'est qu'un accessoire de calcul.

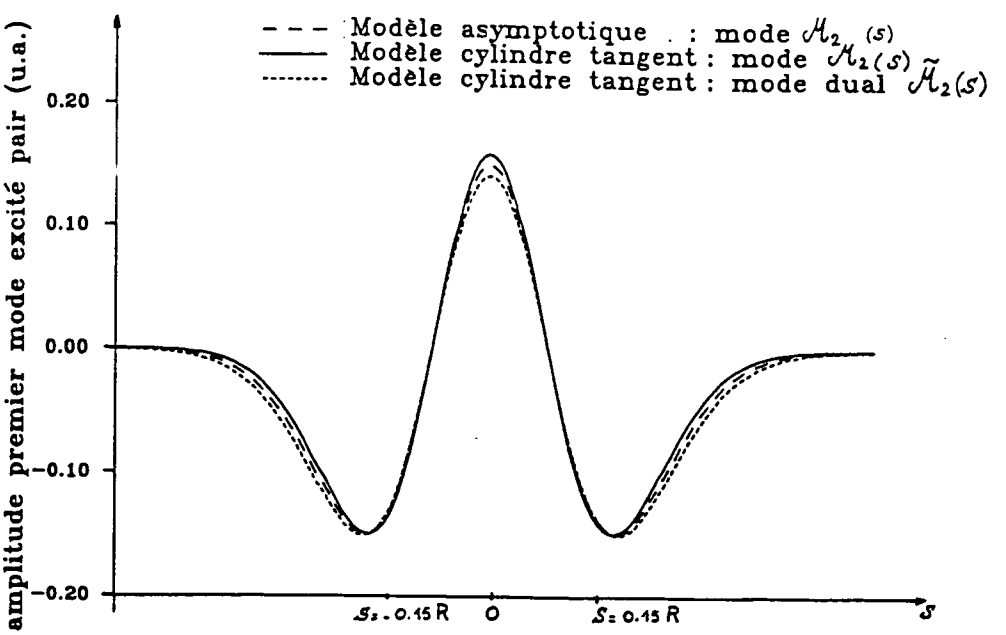


Figure 5.5: Premier mode excité pair d'aimantation.

Effet d'un gradient de champ appliqué :

Dans cette partie, nous considérons toujours que l'aimantation longitudinale est uniforme et étudions l'effet d'un gradient de champ appliqué au niveau des branches verticales du tube en U. En l'absence de telles inhomogénéités du champ appliqué, les calculs numériques que nous avons menés montrent que les modes d'aimantation s'étendent dans toute la branche verticale. Le résultat de ce calcul est représenté sur la figure 5.6a. Le mode fondamental ne semble s'étendre que sur une longueur finie du tube ; ceci n'est qu'un artefact dû à la nécessité de prendre un intervalle de longueur finie dans l'étape de discrétisation.

La présence d'un gradient de champ statique que nous prenons dans la direction du champ appliqué et que nous notons $\partial B_z/\partial z$ se traduit par l'apparition d'une contribution supplémentaire

$$\mathcal{L}^{\delta B} = -\gamma \partial B_z/\partial z \; R(1-\sin\theta(s))\mathcal{M}_+(s) \tag{5.25}$$

dans l'équation de Bloch, qui, une fois discrétisée, ajoute au terme général de la matrice L un terme diagonal qui s'écrit :

$$g_{j,j} = -\gamma \; \partial B_z/\partial z \; R(1-\cos(je_N/R)) \tag{5.26}$$

et qui laisse la matrice non symétrique. La figure 5.6b montre qu'un gradient vertical $\partial B_z/\partial z$ de $+10^{-7}T.cm^{-1}$ rejette le mode fondamental vers l'infini (c'est-à-dire, dans nos simulations, à l'extrémité que nous avons choisie pour le tube) alors qu'un gradient de sens contraire et de même intensité suffit à le localiser près du point de départ des branches verticales (au point $s = \pi R/2$) (voir la figure5.6c).

Ainsi, près des branches verticales, des inhomogénéités de champ appliqué peuvent-elles pallier l'absence de courbure pour confiner des modes d'aimantation comme nous l'avions annoncé au paragraphe 4.3.2.

Effet d'un gradient d'aimantation longitudinale :

Considérer que l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ peut ne pas être uniforme nous amène à prendre en compte le terme $\mathcal{L}_2^{dip}$ donné par l'expression 5.7 dans l'équation de Bloch qui régit l'évolution de l'aimantation transverse $\mathcal{M}_+$. Celui-ci fournit une contribution supplémentaire au terme général de la matrice L. Cette contribution, qui est diagonale et à valeurs réelles, s'écrit dans le cadre de l'approximation du cylindre tangent :

$$m_{j,j} = \frac{\gamma\mu_0 a^2}{4}(1-3\sin^2\frac{je_N}{R})\sum_{k=-S}^{k=+S}(\mathcal{M}_z(k)-\mathcal{M}_z(j))\,\frac{e_N}{[a^2+(k-j)^2e_N^2]^{3/2}}. \tag{5.27}$$

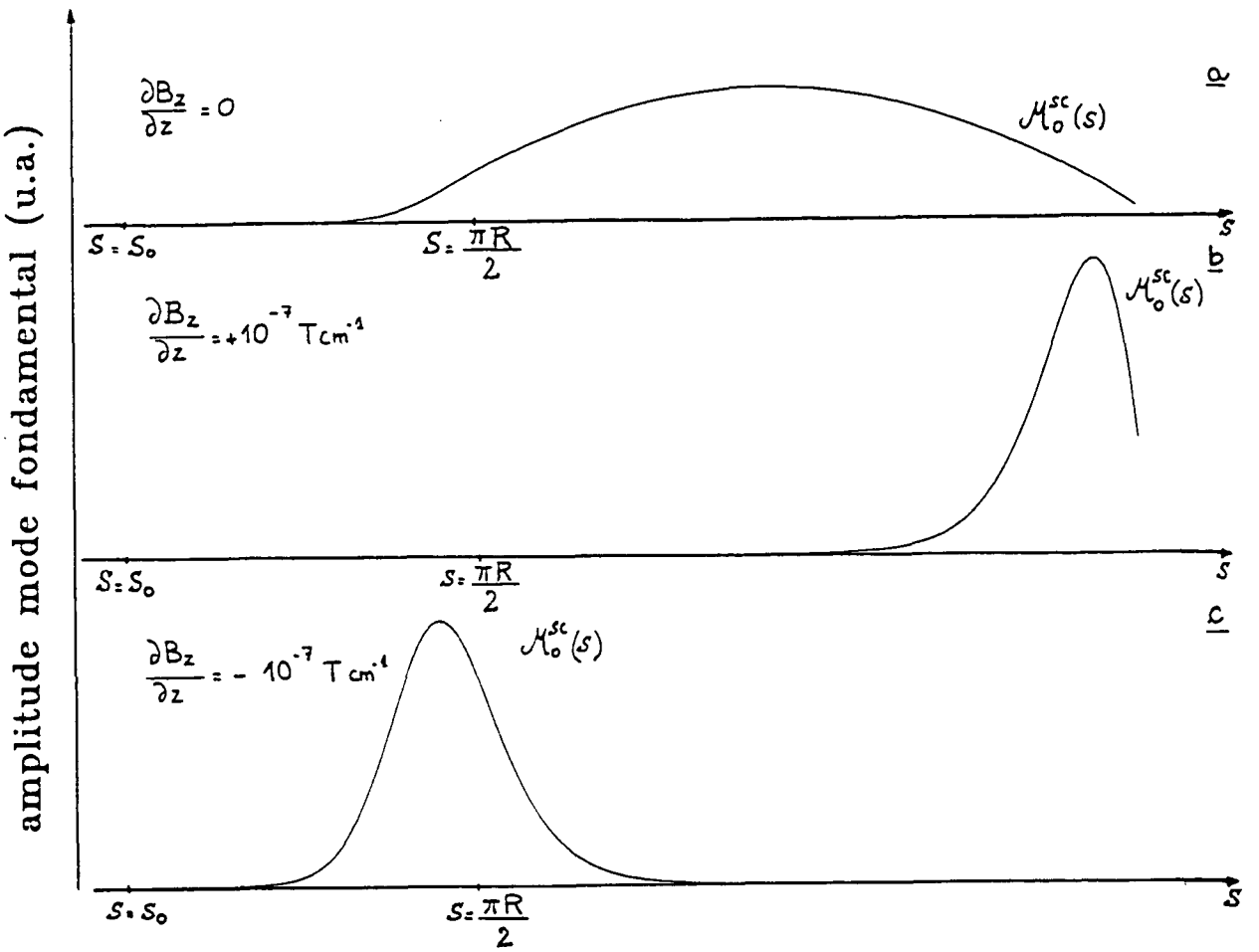


Figure 5.6: Effet d'un gradient de champ appliqué sur le premier mode semi confiné.

Afin de discriminer les effets de la courbure des effets d'inhomogénéités d'aimantation longitudinale sur la localisation des modes, nous avons entrepris, dans un premier temps, des calculs sur un tube droit. Cette situation est une extension naturelle du cas du tube en U : il suffit en effet de faire tendre le rayon de courbure R du tube vers l'infini. Dans ces conditions, le terme $\mathcal{L}_1^{dip}$ seul s'est avéré inefficace pour localiser un quelconque mode. Nous avons alors étudié l'influence d'inhomogénéités d'aimantation longitudinale et pris en compte le terme $\mathcal{L}_2^{dip}$. Dans le cas limite du tube droit, les écritures du terme $m_{j,j}$, correspondant à l'approximation du cylindre tangent et à l'approximation asymptotique, se rejoignent pour donner l'unique expression suivante :

$$m_{j,j} = \frac{\gamma \mu_0 a^2}{4} \sum_{k=-S}^{k=+S} (\mathcal{M}_z(k) - \mathcal{M}_z(j)) \frac{e_N}{[a^2 + (k-j)^2 e_N^2]^{3/2}}. \tag{5.28}$$

Nous avons utilisé deux distributions différentes d'aimantation longitudinale, l'une triangulaire, l'autre gaussienne, toutes deux de largeur $10a$ (a est le rayon intérieur du tube) et centrées sur le point qui auparavant était le fond du tube en U. De telles distributions d'aimantation longitudinale ont rendu possible la localisation de modes propres au voisinage du maximum d'aimantation. Le tracé en petits traits pointillés de la figure 5.7 montre le mode fondamental (le mode dual n'est pas tracé) confiné par une aimantation longitudinale gaussienne ($\mathcal{M}_0^{rect}$). La largeur de ce mode est comparable à celle du mode confiné par la courbure, qui est redessiné en trait plein.

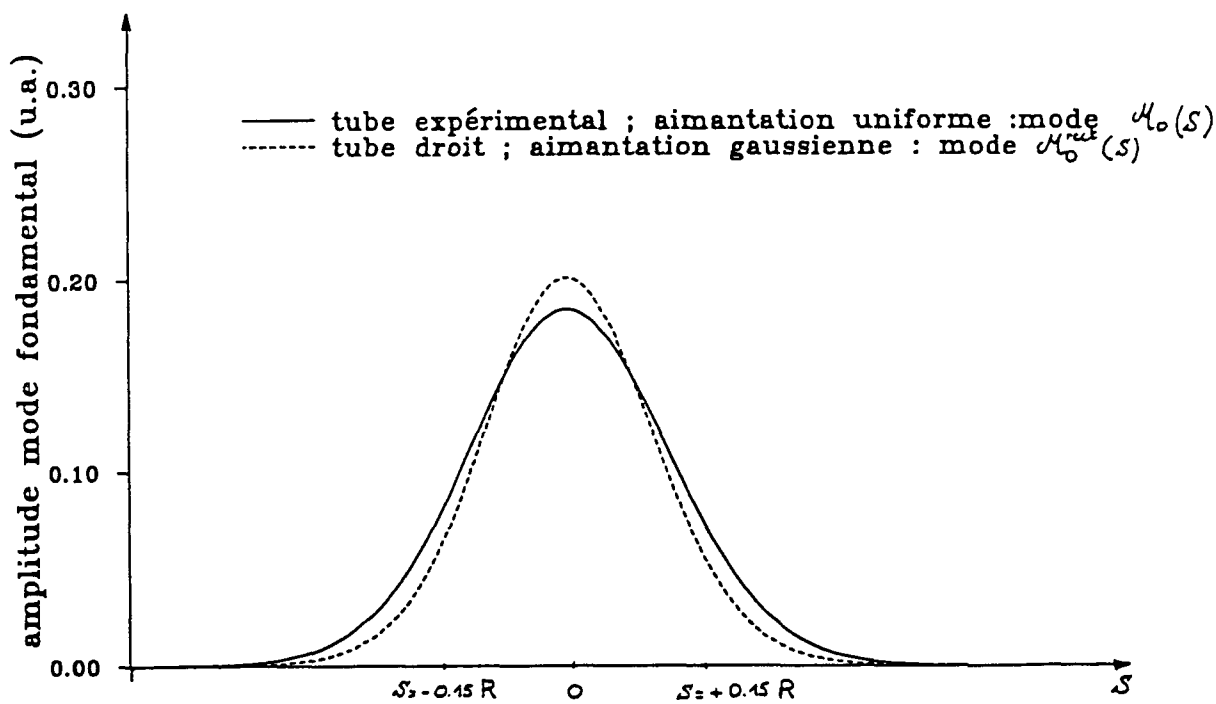


Figure 5.7: Effet d'un gradient d'aimantation longitudinale.

Conscients du rôle localisateur que peut jouer un gradient d'aimantation longitudinale sur les modes d'aimantation, nous avons mené des calculs de modes qui conjuguent, près des branches verticales du tube en U, les actions simultanées de gradients de champ extérieur et de gradients d'aimantation longitudinale. Nous avons supposé que l'aimantation longitudinale est uniforme dans tout le fond du tube en U (pour $|s| \leq \pi R/2$), puis décroît linéairement dans les branches verticales avant de s'annuler à une distance $2s_0$ après le début de la branche verticale (c'est-à-dire au point $s = 2s_0 + \pi R/2$). Si la forme analytique

que nous avons choisie pour la décroissance de l'aimantation est arbitraire, il n'en reste pas moins que la décroissance en elle-même est des plus plausibles : en effet, la thermalisation imposée à l'échantillon fait qu'il se réchauffe le long des branches verticales du tube en U induisant dans ces branches verticales une décroissance de la densité d'atomes d'hélium 3 et par suite une décroissance de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z = \mu_n n_3 M_z$ (voir la partie expérimentale consacrée aux doubles cellules). La figure 5.8 reflète la compétition entre un gradient de champ extérieur et un gradient d'aimantation longitudinale : en présence d'une telle aimantation longitudinale linéairement décroissante, l'effet délocalisateur du gradient de champ appliqué de $+10^{-7} T.cm^{-1}$ (voir la figure 5.6b) est contrebalancé par l'effet du gradient d'aimantation longitudinale, et le mode fondamental se trouve confiné près du point $s = \pi R/2$.

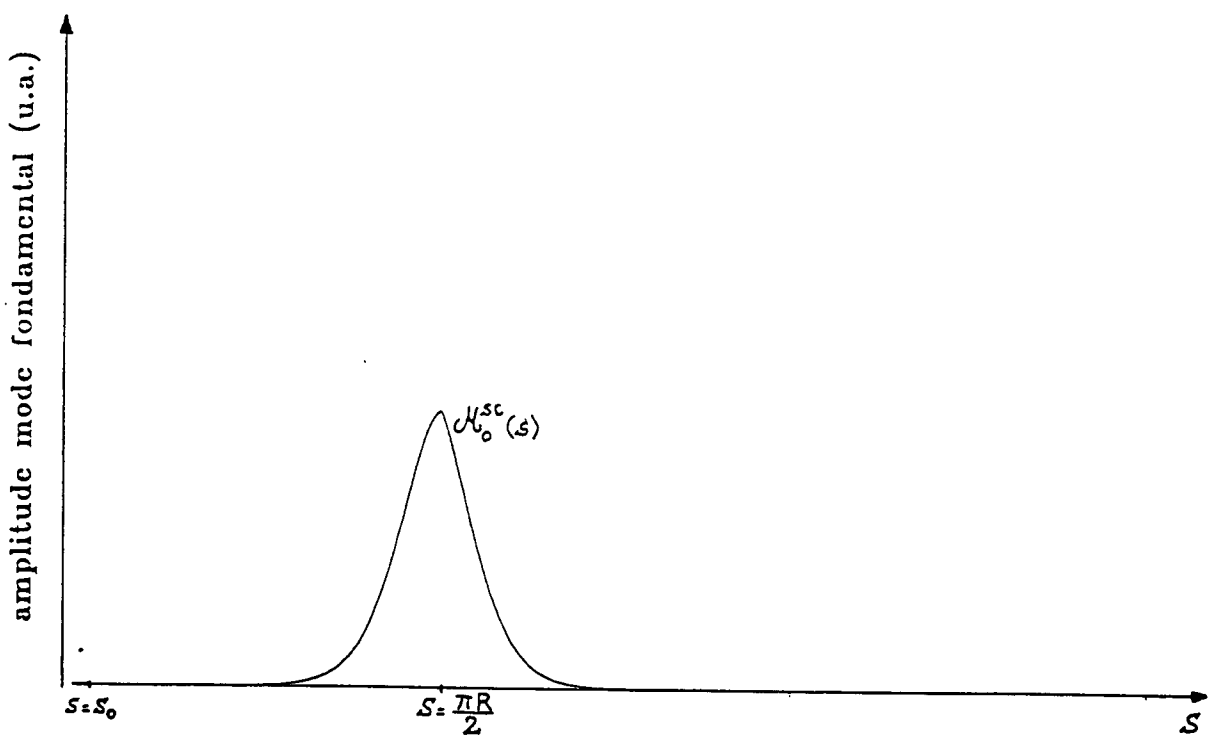


Figure 5.8: Compétition entre un gradient de champ appliqué et un gradient d'aimantation longitudinale.

5.4.2 Effets de l'amortissement lié à $\mathcal{D}^{diff}$.

Dans nos expériences, nous nous sommes efforcés de réduire au maximum les couplages aux bobines réceptrices RMN tout en maintenant le rapport signal sur bruit à un niveau satisfaisant de détection (voir la partie expérimentale consacrée au dispositif RMN à ce propos). De ce fait, la principale source d'amortissement dont nous aurons à tenir compte dans ce chapitre est la diffusion d'aimantation. On s'attend d'ailleurs à ce qu'elle joue un rôle déterminant, en raison des inhomogénéités spatiales des modes d'aimantation. Dans des conditions expérimentales ordinaires, les spectres de la transformée de Fourier des signaux de précession libre, que l'on peut voir par exemple dans la partie III, laissent clairement apparaître plusieurs modes de diffusion dont la largeur reste toujours bien inférieure à l'écart en fréquence entre deux modes successifs. Ainsi, et à moins que la polarisation nucléaire ne soit maintenue à une trop faible valeur ou que de trop forts gradients du champ extérieur ne soient appliqués, les effets dipolaires dominent les effets de la diffusion d'aimantation.

5.4.2.1 Approche pertubative.

Compte tenu des ordres de grandeurs des différents phénomènes, une façon de traiter l'effet de la diffusion d'aimantation consiste à introduire dans l'équation de Bloch le terme $\mathcal{D}^{diff}$ comme une perturbation des termes $\mathcal{L}_1^{dip}$ et $\mathcal{L}_2^{dip}$ qui représentent les effets dipolaires. En l'absence d'amortissement, les modes propres M_n^0 et les fréquences propres Ω_n^0 sont ceux de la matrice L, dont l'élément général $l_{j,k}$ est donné par l'expression 5.20. Un calcul de perturbation au premier ordre fournit les corrections à apporter aux modes non perturbés M_n^0 et à leurs fréquences Ω_n^0 . Ce calcul consiste à introduire pour chaque mode une phase qui dépend légèrement de la position s, et un taux d'amortissement qui reste toujours inférieur à la fréquence propre du mode ; ainsi, le $n$ième mode que l'on écrivait $\mathcal{M}_n^0(s)\exp(i\Omega_n^0 t)$ est désormais cherché sous la forme :

$$\left(\mathcal{M}_n^0(s) + iI_n(s)\right)\exp(i\Omega_n^0 - \gamma_n)t \tag{5.29}$$

comme solution de l'équation de Bloch :

$$\left.\frac{\partial \mathcal{M}_+(s)}{\partial t}\right|_{Larmor} = i\mathcal{L}_1^{dip}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z] + i\mathcal{L}_2^{dip}[\mathcal{M}_+, \mathcal{M}_z] + \mathcal{D}^{diff}[\mathcal{M}_+]. \tag{5.30}$$

En cherchant la partie imaginaire I_n du $n$ième mode comme un développement étendu à l'ensemble de tous les modes non perturbés $\mathcal{M}_k^0$ ($I_n = \sum_k \varepsilon_{n,k}\mathcal{M}_k^0$), quelques lignes d'un

calcul élémentaire conduisent à l'équation suivante :

$$\sum_k \varepsilon_{n,k}\Omega_k^0\,\mathcal{M}_k^0 - \gamma_n\mathcal{M}_n^0 - D\frac{\partial^2\mathcal{M}_n^0}{\partial s^2} - \Omega_n I_n = 0. \tag{5.31}$$

On détermine respectivement γ_n et $\varepsilon_{n,k}$ en faisant le produit scalaire du "vecteur " que constitue le membre de gauche de l'équation 5.31 ci-dessus par le "vecteur" dual $\tilde{\mathcal{M}}_n^0$ d'une part et par un autre vecteur dual non perturbé $\tilde{\mathcal{M}}_p^0$ d'autre part. On obtient successivement :

$$\gamma_n = -D\frac{\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_n^0 \middle| \frac{\partial^2\mathcal{M}_n^0}{\partial s^2}\right\rangle}{\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_n^0 \middle| \mathcal{M}_n^0\right\rangle}, \tag{5.32}$$

qui peut s'écrire plus simplement :

$$\gamma_n = -D\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_n^0 \middle| \frac{\partial^2\mathcal{M}_n^0}{\partial s^2}\right\rangle \tag{5.33}$$

puisque les modes non perturbés $\mathcal{M}_n^0$ sont normalisés, et :

$$\varepsilon_{n,k} = \frac{D}{\Omega_k^0 - \Omega_n^0}\frac{\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_k^0 \middle| \frac{\partial^2\mathcal{M}_n^0}{\partial s^2}\right\rangle}{\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_k^0 \middle| \mathcal{M}_k^0\right\rangle}, \tag{5.34}$$

qui se simplifie là encore en :

$$\varepsilon_{n,k} = \frac{D}{\Omega_k^0 - \Omega_n^0}\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_k^0 \middle| \frac{\partial^2\mathcal{M}_n^0}{\partial s^2}\right\rangle, \tag{5.35}$$

cette dernière formule n'étant valable que pour $k \neq n$. Au prix d'un changement global de phase on peut choisir le terme $\varepsilon_{n,n}$ nul. Dans les expressions 5.32 à 5.35, D désigne le coefficient de diffusion dont nous avons déjà parlé.

Reprenant la méthode numérique de discrétisation, nous avons calculé la partie imaginaire I_0 du mode fondamental ainsi que les amortissements γ_0 et γ_2 des modes fondamental et premier excité pair. Du point de vue numérique, le calcul des expressions γ_n et $\varepsilon_{n,k}$ est immédiat, le produit scalaire faisant intervenir une somme discrète sur l'ensemble des N points utilisés pour la discrétisation. Ainsi, par exemple, γ_0 sera-t-il calculé de la manière suivante :

$$\gamma_0 = -D\sum_{j=-S}^{+S} \tilde{\mathcal{M}}_{0,j}^0\left(\mathcal{M}_{0,j+1}^0 + \mathcal{M}_{0,j-1}^0 - 2\mathcal{M}_{0,j}^0\right). \tag{5.36}$$

Pour des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4, le coefficient de diffusion D dépend à la fois de la concentration et de la température. Pour l'ensemble des expériences décrites

dans le paragraphe 7.5, l'ordre de grandeur de ce coefficient est $10^{-7}m^2.s^{-1}$, valeur caractéristique que nous prenons ici pour nos simulations. Nous avons de plus pris $3\Delta(0) = 150Hz$ pour l'écart maximal entre les deux familles de modes (modes localisés au fond du tube en U et modes semi confinés dans les branches verticales), ce qui corrrespond également à des conditions expérimentales caractéristiques. On suppose ainsi que l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ est uniforme. Pour ces valeurs des paramètres, la diffusion d'aimantation peut effectivement être considérée comme une perturbation des couplages dipolaires.

Dans ces conditions, les taux d'amortissement que nous avons calculés pour les modes fondamental et premier excité pair sont respectivement $\gamma_0 = 0.03s^{-1}$ et $\gamma_2 = 0.20s^{-1}$. Ils sont indépendants de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$. Sur la figure 5.9, sont représentées les parties imaginaires du mode fondamental correspondant à l'approximation du cylindre tangent (trait plein) et à l'approximation asymptotique (trait pointillé). Une nouvelle fois, les deux approximations conduisent à des résultats tout à fait semblables. Par rapport à la figure 5.4, la dilatation de l'échelle verticale d'un facteur 40 met bien en évidence le fait que $|I_0| \ll |\mathcal{M}_0^0|$ et souligne du même coup la pertinence de l'utilisation d'une méthode perturbative pour déterminer l'amortissement d'un nombre fini de modes (les premiers modes d'aimantation). Enfin, on peut constater sur cette figure que la partie imaginaire I_0 du mode fondamental ressemble qualitativement au premier mode excité pair ; le terme $\varepsilon_{0,2}$ dans le développement de la partie imaginaire du mode fondamental a, comme on pouvait s'y attendre, le plus fort poids.

Nous avons alors poussé le développement en perturbation au second ordre. A ce degré d'approximation, la partie réelle R_n du $n$ième mode d'aimantation n'est plus simplement un mode propre non perturbé $\mathcal{M}_n^0$, mais une combinaison linéaire de tous ces modes propres non perturbés que nous notons :

$$R_n = \mathcal{M}_n^0 + \sum_{k \neq n} \rho_{n,k} \mathcal{M}_k^0. \tag{5.37}$$

La partie imaginaire I_n du $n$ième mode est, quant à elle, identique à celle déterminée dans le calcul de perturbation au premier ordre :

$$I_n = \sum_k \varepsilon_{n,k} \mathcal{M}_k^0 . \tag{5.38}$$

Un calcul simple montre alors que :

$$\rho_{n,k} = \varepsilon_{n,k} (\gamma_k - \gamma_n) / \left(\Omega_k^0 - \Omega_n^0\right), \tag{5.39}$$

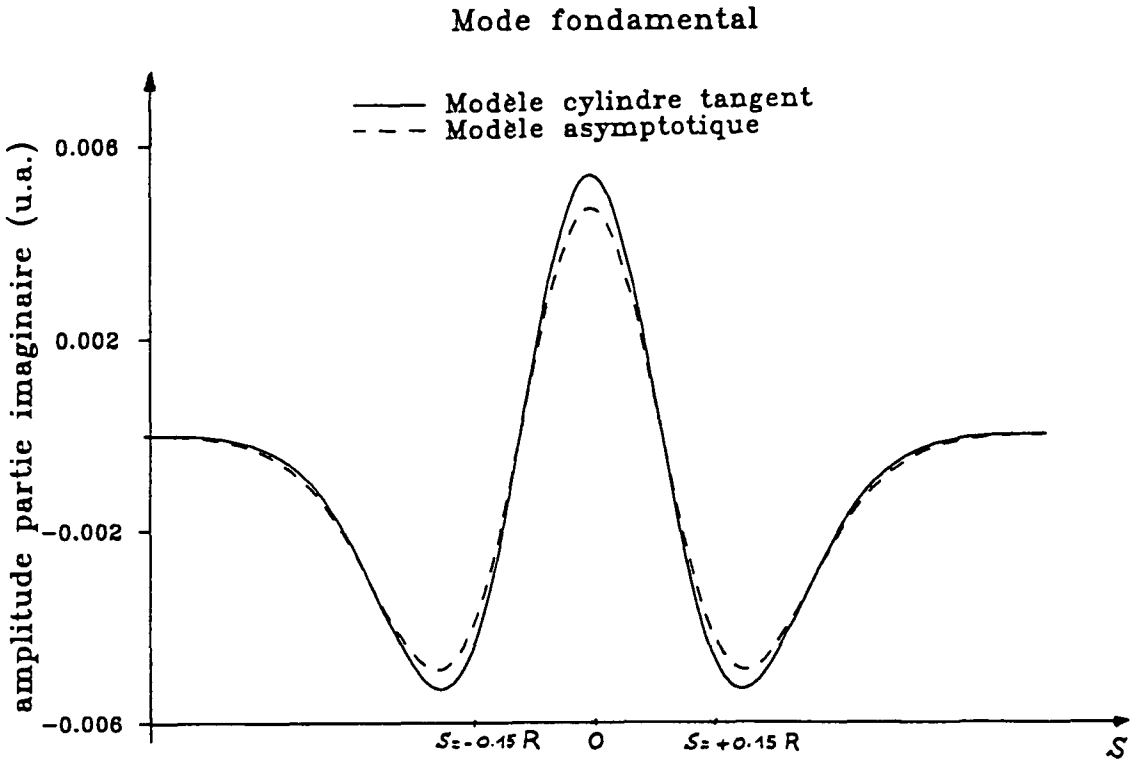


Figure 5.9: Partie imaginaire du mode fondamental. Noter la dilatation d'échelle verticale par rapport à la partie réelle du mode fondamental de la figure 5.4.

formule dans laquelle nous négligeons le changement des fréquences propres Ω_k induit à cet ordre d'approximation. On peut constater en particuler que $|\rho_{n,k}| \ll |\varepsilon_{n,k}|$. Nous avons concentré notre attention sur les corrections à apporter à cet ordre d'approximation au taux d'amortissement γ_n du $n$ième mode d'aimantation. Les calculs montrent que celui-ci peut se mettre sous la forme :

$$\gamma_n = \gamma_n^{(1)} + \gamma_n^{(2)}. \tag{5.40}$$

$\gamma_n^{(1)}$ est le taux d'amortissement que nous avons calculé au premier ordre en perturbation : $\gamma_n^{(1)} = -D\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_n^0 \middle| \frac{\partial^2 \mathcal{M}_n^0}{\partial s^2} \right\rangle$, et $\gamma_n^{(2)}$ est la correction déterminée au second ordre en perturbation. Son expression est donnée par la formule suivante :

$$\gamma_n^{(2)} = -\sum_{k \neq n} \frac{D_{k,n}}{\Omega_{k,n}} \left[\frac{D_{n,k}\left(D_{n,n} - D_{k,k}\right)}{\Omega_{k,n}} + \sum_{k' \neq n;\ k' \neq k} \frac{D_{k,k'} D_{k'n}}{\Omega_{k',n}} \right], \tag{5.41}$$

dans laquelle $D_{k,k'}$ est une écriture condensée qui représente le produit scalaire $D\left\langle \tilde{\mathcal{M}}_k^0 \middle| \partial^2 \mathcal{M}_{k'}^0 / \partial s^2 \right\rangle$ pour deux quelconques modes propres non perturbés repérés par

les indices k et k'. L'expression 5.15 montre clairement que, pour un mode d'aimantation donné, son écart en fréquence Ω, par rapport à la fréquence de Larmor, est proportionnel à l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$. Ainsi, la correction au second ordre en perturbation du taux d'amortissement est proportionnelle à $1/\mathcal{M}_z^2$. Le modèle prédit par conséquent que le taux d'amortissement d'un mode donné tend asymptotiquement vers la valeur constante $\gamma^{(1)}$ lorsque croît la composante longitudinale de l'aimantation $\mathcal{M}_z$. Le résultat de ce traitement perturbatif n'est bien sûr valable que lorsque $\mathcal{M}_z$ est assez élevée pour que $\gamma^{(2)} \ll \gamma^{(1)}$.

5.4.2.2 Approche intégralement numérique.

De même que nous avons su déterminer les modes propres d'aimantation et leurs fréquences propres par diagonalisation de la matrice L qui traduit les effets du champ dipolaire et dont l'expression de l'élément général est donné par l'équation 5.20, une façon de traiter l'effet de la diffusion d'aimantation consiste à rechercher les modes propres et les fréquences propres de la matrice $iL + D^{diff}$. Il est aisé de vérifier que la matrice qui tient compte de la diffusion d'aimantation est une matrice carrée $N \times N$, D^{diff} s'écrit de la manière suivante :

$$D^{diff} = \frac{D}{e_N^2} \begin{pmatrix} 2 & -1 & & 0 \\ -1 & \ddots & \ddots & \\ & \ddots & \ddots & -1 \\ 0 & & -1 & 2 \end{pmatrix}. \tag{5.42}$$

La matrice L n'ayant aucune propriété particulière de symétrie, la matrice $iL+D^{diff}$ n'est pas hermitienne. Les résultats que nous présentons dans la suite proviennent de calculs réalisés (à l'aide du logiciel Matlab) avec un coefficient de diffusion D égal à $0.5\ 10^{-6} m^2 s^{-1}$ (plus élevé ici que dans les exemples du paragraphe 5.4.2.1) et une valeur du paramètre a/R égale à 0.043. La figure 5.10 donne à comparer le module du mode fondamental d'aimantation en l'absence (trait plein) et en présence (trait pointillé) du terme de diffusion d'aimantation dans la même hypothèse d'aimantation longitudinale uniforme que dans l'approche perturbative. La figure 5.11 représente quant à elle la phase de ce mode ; on voit qu'elle ne varie que légèrement sur l'étendue du mode. L'évolution du spectre des fréquences propres associées aux quelques premiers modes d'aimantation est représentée figure 5.12. On peut ainsi constater que si l'effet le plus important de la diffusion d'aimantation est d'amortir les modes d'aimantation, il ne faut pas oublier qu'elle provoque aussi un léger décalage des fréquences propres de précession de chaque mode ; en trait plein est représenté le spectre de la matrice iL et en trait

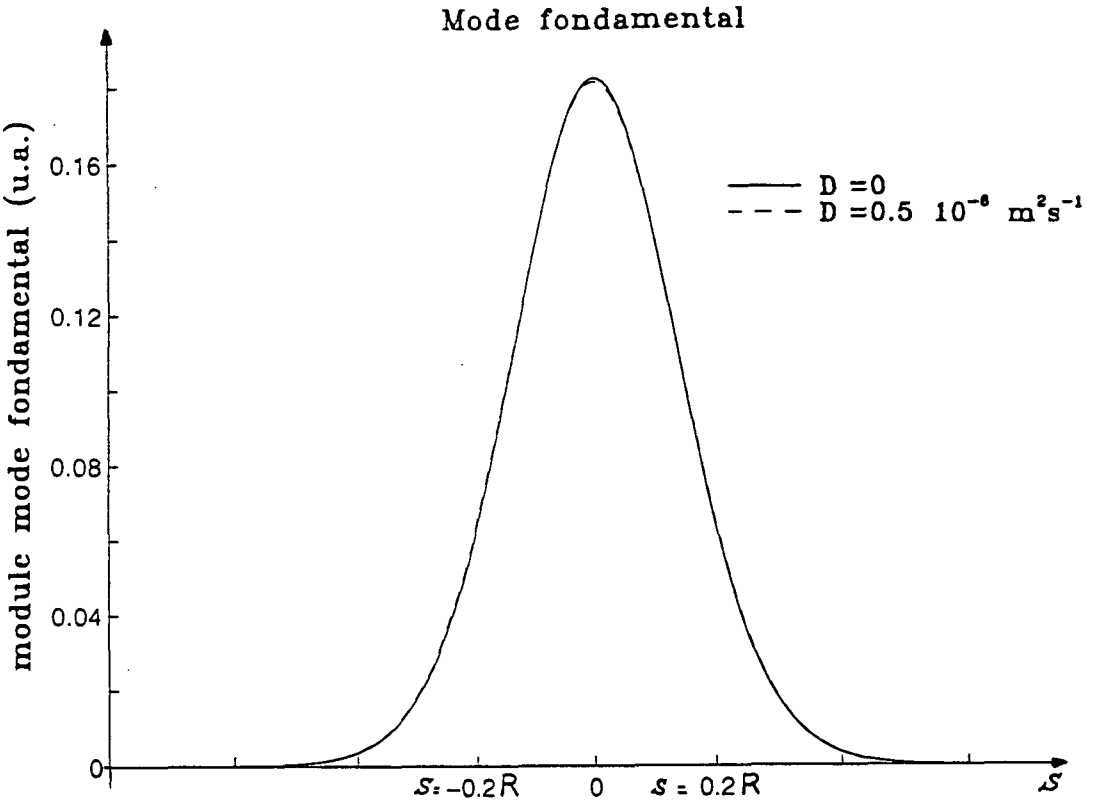


Figure 5.10: Module du mode fondamental d'aimantation.

pointillé celui de la matrice $iL + D^{diff}$. Enfin, tout en maintenant le coefficient de diffusion D à sa valeur de 0.5 $10^{-6} m^2 s^{-1}$, nous avons fait varier le poids relatif des termes de couplages dipolaires et de diffusion d'aimantation en modifiant, dans les calculs, le paramètre $\Delta(0)$ qui est directement proportionnel à l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ (formule 5.9). L'effet de cette variation sur les taux d'amortissement des trois premiers modes pairs d'aimantation est représenté sur la figure 5.13. Les valeurs des fréquences propres et des taux d'amortissement trouvés par cette méthode intégralement numérique diffèrent de moins de 1% des valeurs trouvées pour les mêmes paramètres par la méthode perturbative du paragraphe 5.4.2.1. Enfin, le comportement asymptotique des taux d'amortissement pour de grandes valeurs de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ est compatible avec la prédiction du calcul de perturbation au second ordre.

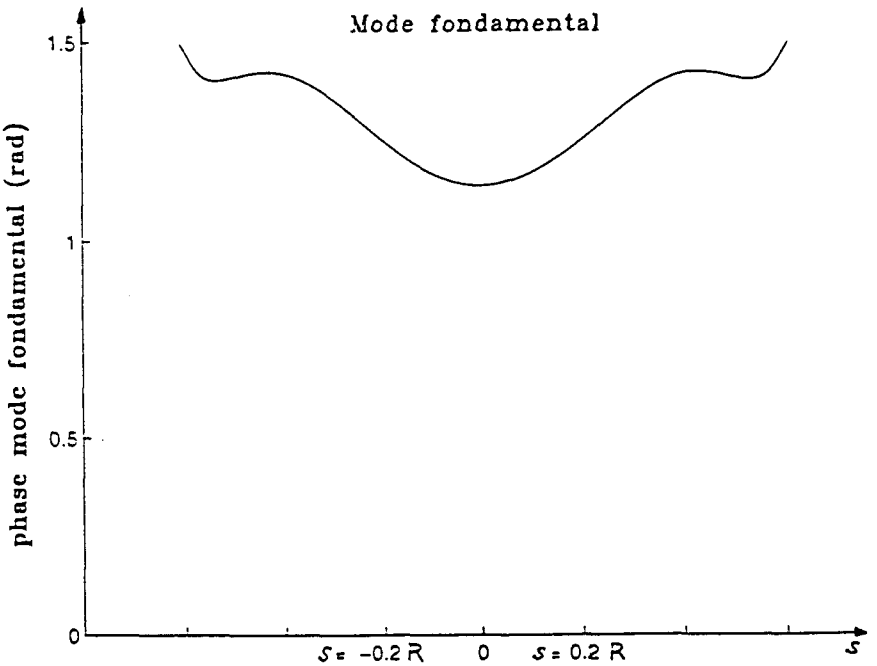


Figure 5.11: Variation de la phase du mode fondamental (la phase globale est arbitraire).

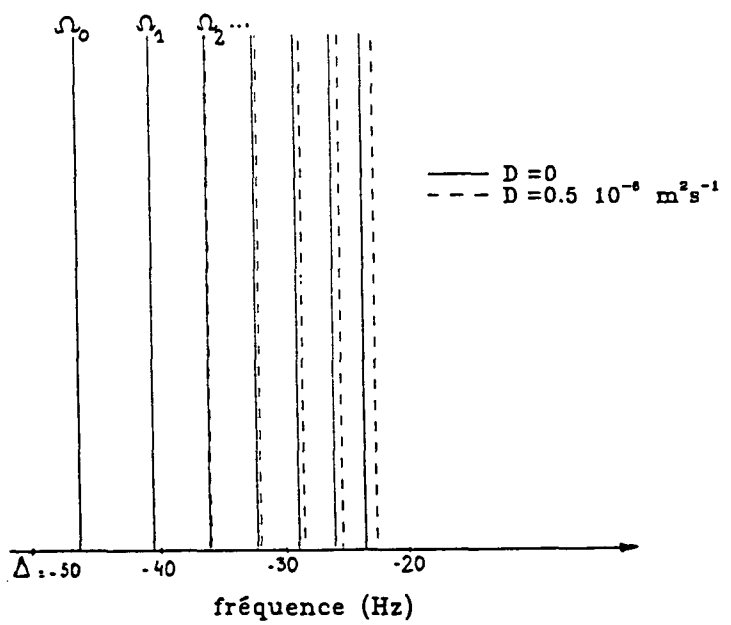


Figure 5.12: Fréquences propres des premiers modes d'aimantation.

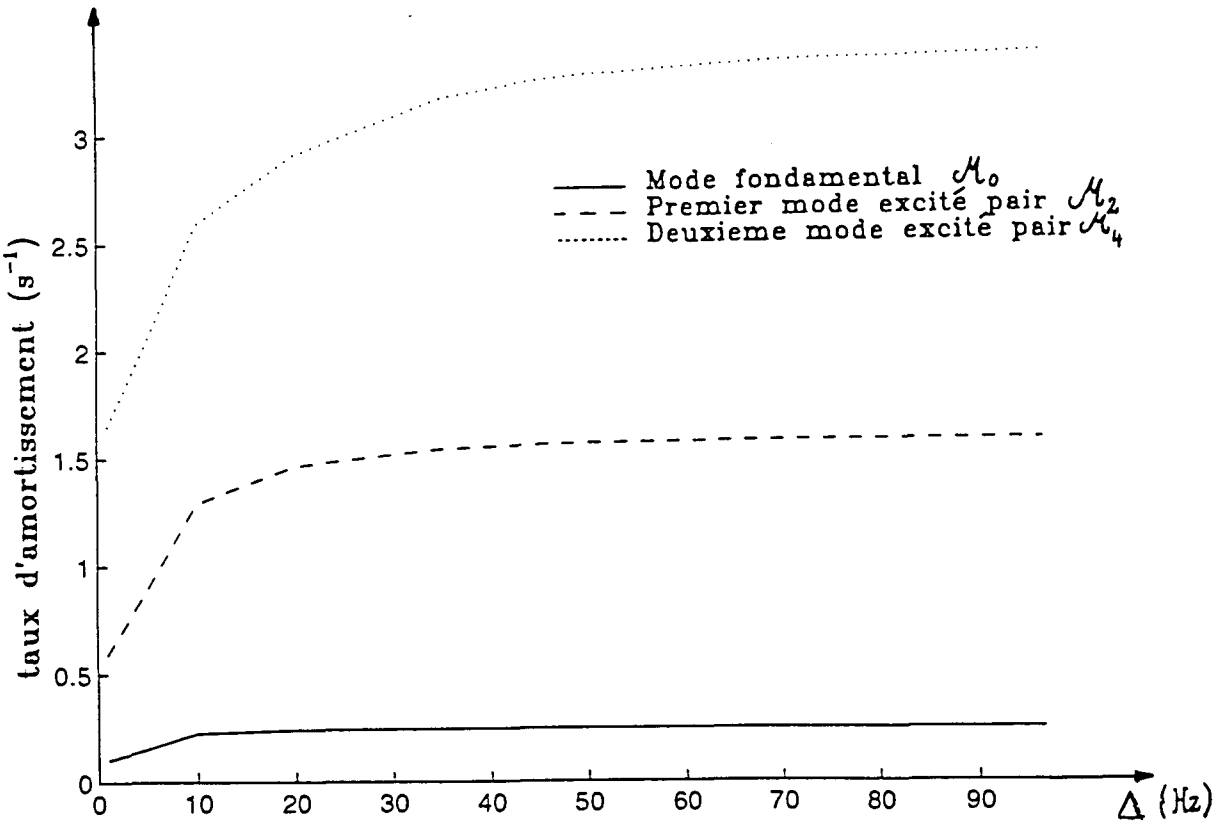


Figure 5.13: Variation des taux d'amortissement des premiers modes d'aimantation.

5.5 Calcul de spectres en fréquence de signaux de précession libre.

Dans ce bref paragraphe, nous expliquons comment, à partir des modes amortis d'aimantation, il est possible de tracer le spectre en fréquence (amplitude de la transformée de Fourier) d'un signal de précession libre. Dans nos expériences, l'impulsion de radiofréquence qui fait basculer une partie de l'aimantation longitudinale dans le plan perpendiculaire à la direction du champ appliqué $\mathbf{B}_{ext}$ prépare une condition initiale d'aimantation transverse homogène. Cette aimantation initiale peut être décomposée sur les différents modes propres d'aimantation avec des poids donnés par la projection d'une fonction uniforme sur les modes propres. Les signaux RMN sont observés au moyen de bobines essentiellement sensibles à la

valeur moyenne de l'aimantation : la détection fait donc intervenir une seconde projection des modes sur une fonction uniforme. Le poids de chaque mode dans le spectre en transformée de Fourier d'un signal de précession libre fait donc intervenir les carrés de ces projections. Nous ne nous sommes intéressés qu'aux modes pairs d'aimantation dans toute la présentation de ces modèles car ils sont les seuls à être excités et détectés. La figure 5.14 représente un tel spectre calculé, ne correspondant qu'aux modes localisés dans le fond d'un tube en U : l'amplitude du spectre en fréquence d'un signal de précession libre y est portée en fonction de l'écart en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor. Pour les paramètres que nous avons utilisés et qui sont les mêmes que précédemment ($\Delta(0) = 50Hz$, $D = 0.1\ 10^{-6}m^2s^{-1}$, $a/R = 3.10^{-2}$), tous les déplacements de fréquence par rapport à la fréquence de Larmor sont négatifs. Un spectre complet ferait apparaître des contributions supplémentaires provenant des modes localisés dans les branches verticales du tube. Ces contributions ont, elles aussi, été calculées : les déplacements par rapport à la fréquence de Larmor sont positifs et approximativement deux fois plus grands que ceux présentés ici.

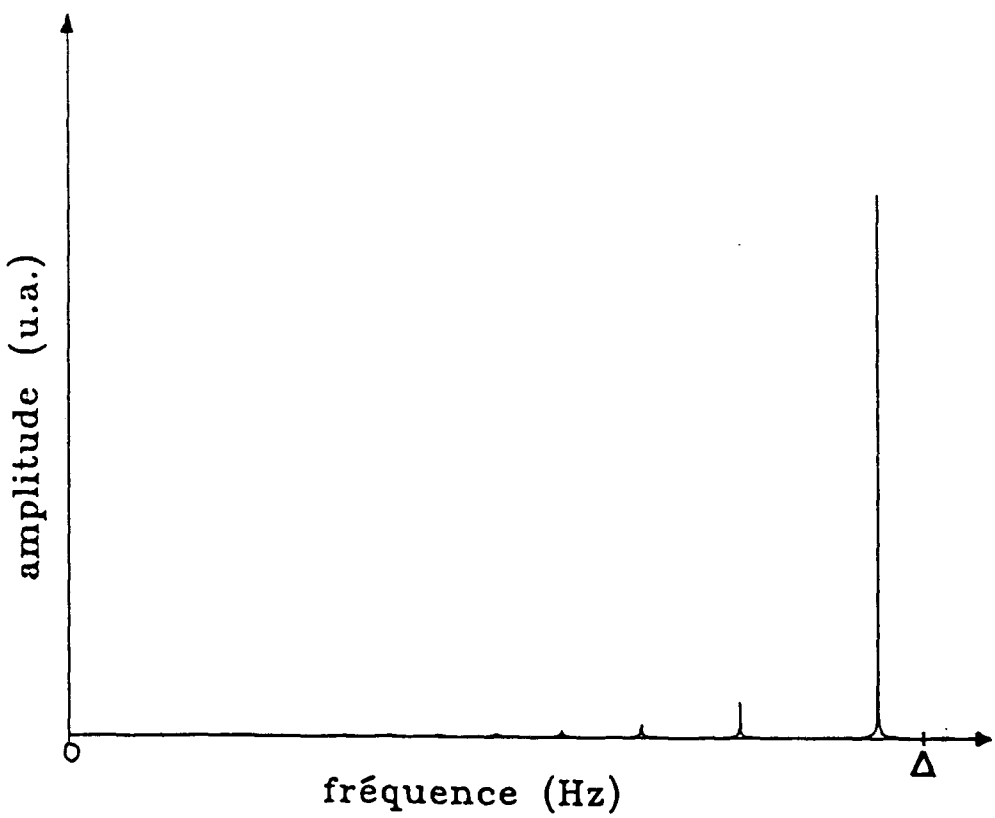


Figure 5.14: Calcul du spectre en fréquence d'un signal de précession libre.

Chapitre 6

Discussion.

Les modèles que nous avons développés dans ce chapitre concernent l'effet des couplages dipolaires dans un échantillon fortement aimanté contenu dans un tube en forme de U. Les résultats de ces modèles sont aisément transposables dans le cas d'une géométrie différente de la cellule d'étude (tore, tortillon circulaire ou toute autre forme pourvu que l'approximation qui consiste à négliger les variations de toute grandeur caractéristique sur des distances de l'ordre de a et qui nous ramène finalement à des modèles unidimensionnels puisse être justifiée) ou dans le cas de situations expérimentales plus complexes (mélanges liquides démixés).

Si la vocation du modèle que nous avons présenté dans le chapitre 4 de cette partie II est d'expliquer qualitativement l'effet des couplages dipolaires, l'objectif déclaré du modèle du chapitre 5 est de prédire ou, tout du moins, rendre possible l'interprétation quantitative de résultats d'expériences. En ce sens, nous verrons par la suite (voir partie III) qu'on peut tout à la fois se féliciter d'un succès et déplorer un échec ; succès non seulement dans la compréhension générale des phénomènes mis en jeu mais aussi dans l'accord quantitatif avec les caractéristiques géométriques de la cellule expérimentale, succès encore dans la détermination des fréquences de précession des modes d'aimantation, dans la description des effets secondaires (application de gradients de champ extérieur, existence d'inhomogénéités d'aimantation longitudinale, couplage de l'aimantation au circuit de détection RMN) et dans la possibilité qui s'offre désormais à nous de mesurer précisément l'aimantation nucléaire dans

la phase liquide ; échec cependant non tant dans la détermination de l'ordre de grandeur des taux d'amortissement des premiers modes d'aimantation que dans la prédiction de leur comportement lorsqu'évolue l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$, et dans la frustrante impossibilité qui en découle de déduire de façon fiable de nos expériences le coefficient de diffusion d'aimantation dans des mélanges liquides d'hélium 3 dans l'hélium 4.

Partie III

Résultats expérimentaux.

Chapitre 7

Caractérisation des modes amortis d'aimantation.

7.1 Allure qualitative générale du spectre en fréquence d'un signal de précession libre.

Pour étudier par RMN l'évolution de l'orientation nucléaire dans les solutions d'hélium 3 dans l'hélium 4 contenues dans nos deux cellules, nous avons utilisé les dispositifs électriques décrits dans le paragraphe 2.2. Une petite aimantation transverse est produite à partir de l'aimantation longitudinale par une impulsion radiofréquence résonante, à la fréquence de Larmor. La précession de cette aimantation transverse induit une force électromotrice dans le dispositif récepteur (bobines ou solénoïde). C'est ce signal que nous détectons, en le comparant dans un amplificateur à détection synchrone, à un signal de référence dont la fréquence est très proche de la fréquence de Larmor (voir le paragraphe 2.2.2.3).

La figure 7.1 donne un exemple de signal RMN, obtenu, grâce à la paire de bobines détectrices, dans l'échantillon de la cellule $n^0 1$ (celle dont la cellule d'étude a la forme d'un tube en U) : il correspond à la composante du signal électrique en phase par rapport au signal de référence. La fréquence de référence est, dans cette expérience, de l'ordre de $13kHz$. L'angle de basculement de l'aimantation, déterminé par l'impulsion radiofréquence, est de

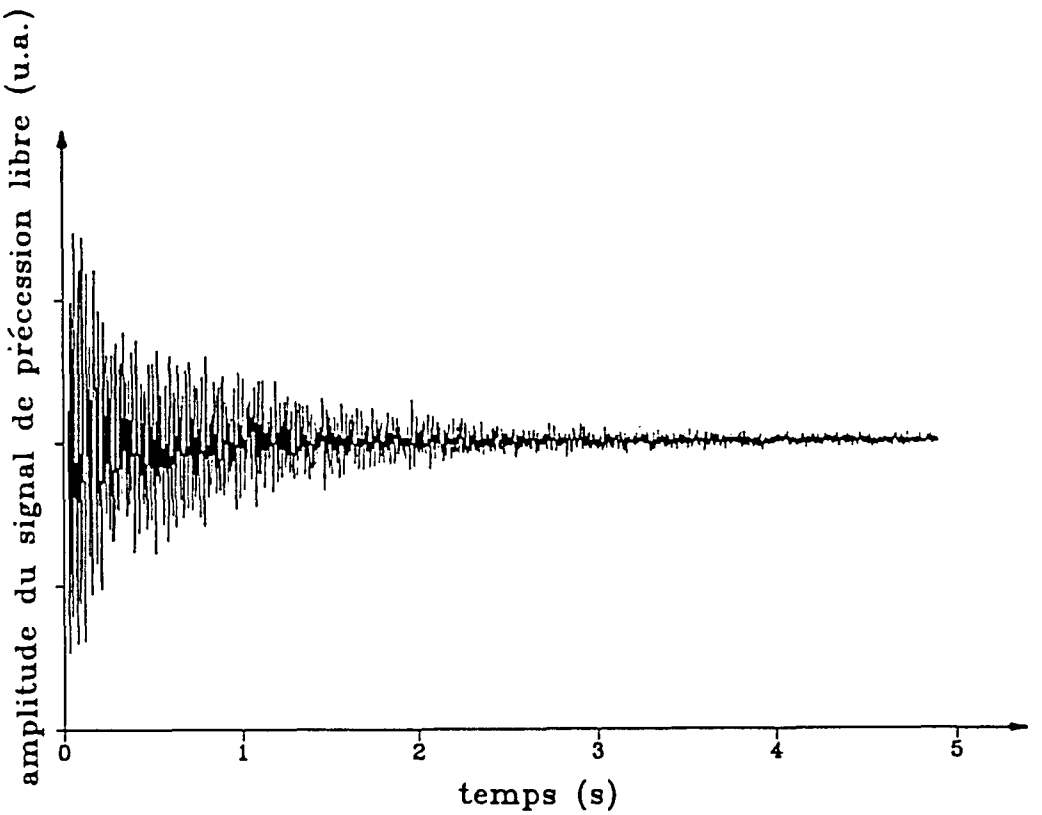


Figure 7.1: Signal électrique enregistré aux bornes des bobines détectrices correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans la cellule d'étude en forme de U.

l'ordre de $\pi/32$ radians. De tels signaux ont fait l'objet d'une analyse numérique ultérieure, et nous nous sommes en particulier intéressés au spectre en fréquence du signal enregistré. La figure 7.2 représente à cet égard l'amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre de la figure 7.1. La première remarque qu'appelle un tel spectre est qu'il n'est pas simple : il est en effet composé de deux groupes de raies assez étroites, signe que la précession de l'aimantation dans l'échantillon se fait à diverses fréquences bien déterminées et pas simplement à la seule fréquence de Larmor, comme on aurait naïvement pu l'imaginer.

Candela et al. ont d'ailleurs montré, dans une première série d'expériences sur la même cellule $n^0 1$ que ces deux groupes de raies tendaient à se rassembler vers la même valeur de fréquence ω_0 lorsque l'angle de basculement approchait de $\pi/2$ [Candela 94]. Ils ont également remarqué que le fait de retourner la polarisation nucléaire (en tournant la lame quart d'onde d'un quart de tour par exemple, voir paragraphe 1.1) provoquait une transformation du

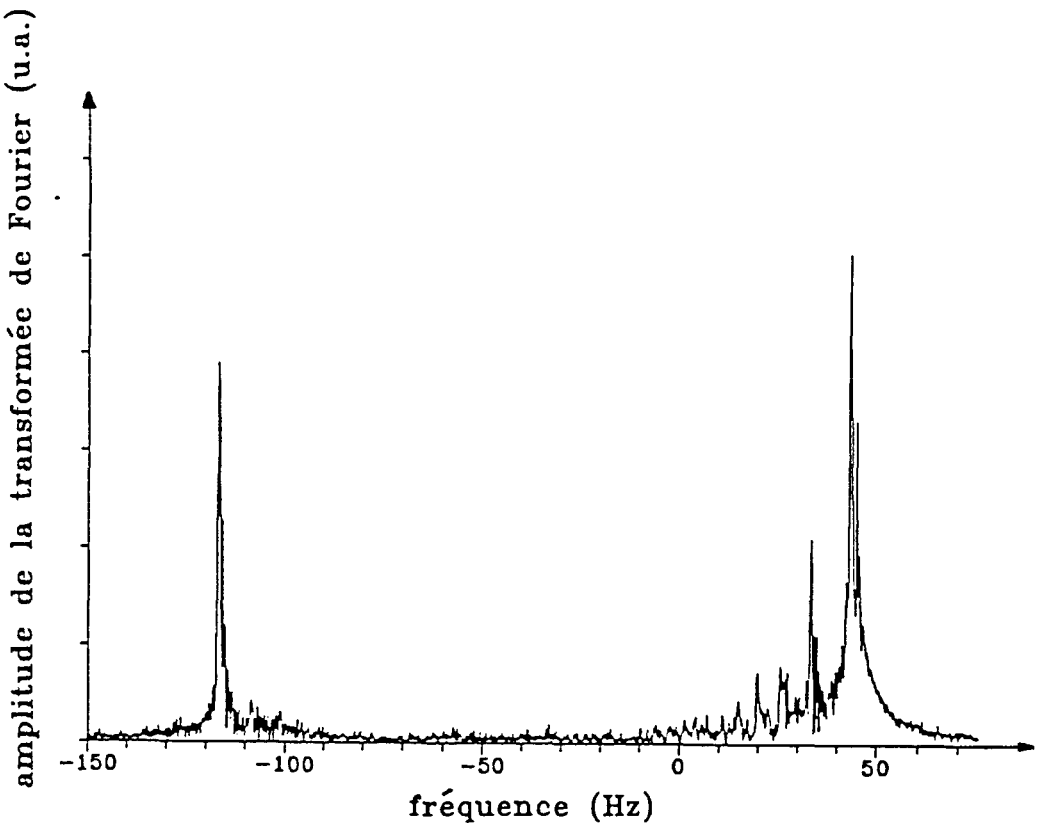


Figure 7.2: Amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre de la figure 7.1.

spectre, simple réflexion de lui-même par rapport à la fréquence de "rassemblement" ω_0. De plus, ils ont observé des changements importants dans la physionomie de la partie gauche du spectre lorsqu'un gradient de champ était appliqué dans la direction du champ magnétique extérieur $\mathbf{B}_{ext}$; ces changements pouvaient aller jusqu'à la disparition pure et simple du groupe de raies concerné.

Lors de l'étude de cette même cellule $n^0 1$, il nous a été donné à maintes reprises de faire des observations similaires. Riches des enseignements tirés de l'étude théorique de l'effet du champ dipolaire dans un échantillon fortement aimanté (le lecteur se réfèrera en particulier au modèle qualitatif décrit dans le chapitre 4), nous identifions la fréquence de "rassemblement" comme étant la fréquence de Larmor, fréquence à laquelle s'opérerait la précession de l'aimantation transverse si la partie séculaire du champ dipolaire était nulle. Cette condition est précisément réalisée aussitôt après une impulsion radiofréquence d'angle de basculement

$\pi/2$ puisqu'alors l'aimantation longitudinale est nulle. De plus, parce que le groupe de raies situées sur la droite du spectre a un déplacement en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor qui n'est que la moitié de ce qu'il est pour l'autre groupe, nous l'attribuons aux modes d'aimantation localisés dans le fond du tube en U. En ce qui concerne l'autre groupe de raies, celui qui occupe la partie gauche du spectre, son déplacement en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor, et son comportement en présence d'un gradient de champ appliqué dans la direction du champ extérieur sont les deux facteurs déterminants qui le désignent, sans ambiguïté, comme étant produit par les modes d'aimantation qui existent dans les branches verticales du tube en U. Les modèles développées dans la deuxième partie, qui mettent tous en avant que les déplacements de fréquence sont proportionnels à la valeur locale de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ (voir la formule 5.15), permettent, en outre, d'expliquer l'inversion totale du spectre observée lorsque la polarisation nucléaire est retournée.

Ainsi se dessine donc l'interprétation qualitative des spectres des signaux de précession libre obtenus dans nos échantillons, après de petites impulsions de radiofréquence. Si les grands traits qui en ressortent (spectre discret, divers groupes de raies très fines répartis de part et d'autre de la fréquence de Larmor) sont bien maîtrisés, il nous faut maintenant mettre en place des outils sûrs afin de mener une interprétation quantitative des mesures que nous avons effectuées.

7.2 Traitements numériques des données.

7.2.1 Fluctuations de la fréquence de Larmor.

7.2.1.1 Observations expérimentales.

La figure 7.4 représente la transformée de Fourier, obtenue dans les mêmes conditions que celles de la figure 7.2, du signal de précession libre de la figure 7.3 (il s'agit en fait de la transformée de Fourier du mélange, filtré à la sortie de la détection synchrone, du signal induit dans les bobines détectrices et du signal de référence, voir la formule 7.2). Ce signal a été observé non plus dans l'échantillon de la cellule $n^0 1$, mais dans celui de la cellule $n^0 2$ (celle dont la cellule d'étude a la forme d'un tortillon circulaire) et recueilli non plus aux bornes des bobines détectrices comme pour les figures 7.1 et 7.2, mais aux bornes du solénoïde détecteur

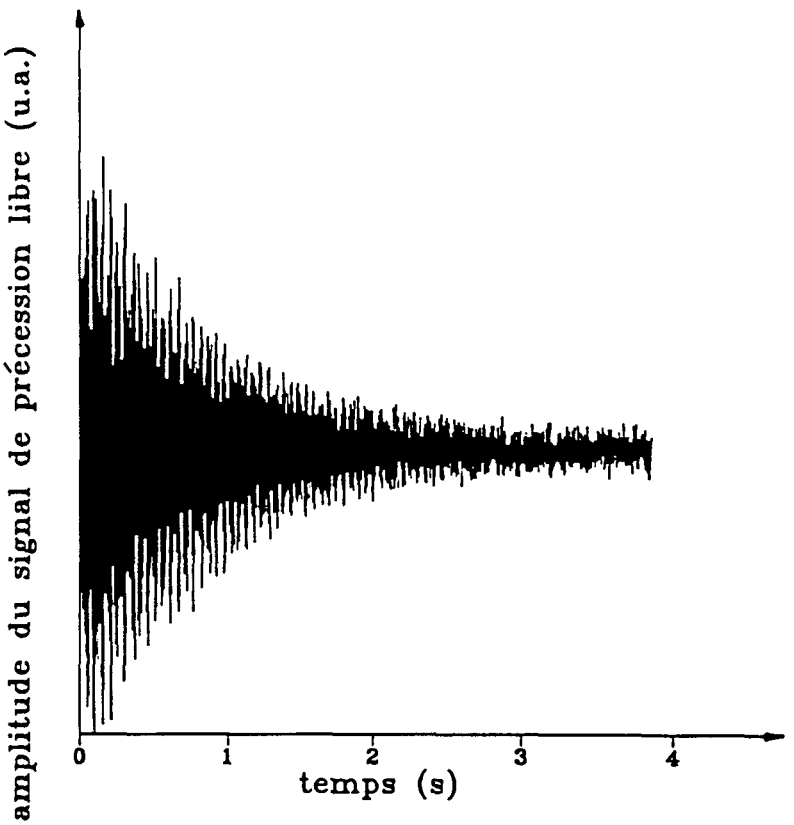


Figure 7.3: Signal électrique enregistré aux bornes du solénoïde détecteur correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans la cellule d'étude en forme de tortillon circulaire.

décrit au paragraphe 2.2.2.2. C'est un spectre beaucoup plus simple que celui de la figure 7.2 : en effet, en vertu de la sélectivité spatiale de la détection qu'opère le solénoïde, il n'apparaît plus qu'une seule famille de raies, qui correspondent aux modes d'aimantation localisés dans la partie horizontale supérieure du tortillon circulaire. La sensibilité de la détection est, elle aussi, accrue puisque la fréquence du champ radiofréquence RMN est d'environ $85kHz$, plus de six fois supérieure à la fréquence utilisée dans les expériences des figures 7.1 et 7.2.

Ces nouvelles conditions de détection, meilleure sélectivité et meilleure sensibilité, nous permettent de caractériser avec plus d'acuité les spectres des signaux de précession libre. Le spectre de la figure 7.4 est, à ce titre, exemplaire : si, en effet, on peut y distinguer clairement plusieurs raies, chacune correspondant à un mode d'aimantation, on s'aperçoit aussi que ces raies sont anormalement larges ; anormalement dans le sens où, d'une part, la forme des raies est irrégulière et où, d'autre part, cet élargissement semble bien supérieur à

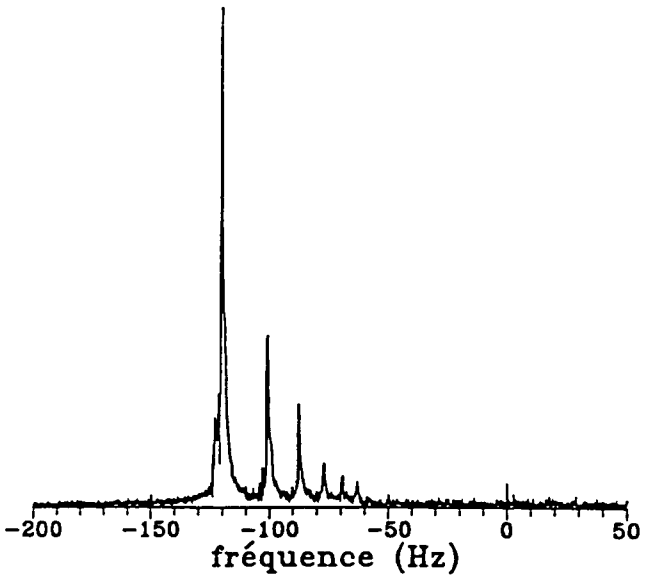


Figure 7.4: Amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre de la figure 7.3 avant la procédure de recalage des fréquences de précession.

l'élargissement résultant de l'amortissement temporel du signal de précession libre lui-même (voir la figure 7.3). Cet élargissement, qui n'est pas identique pour des expériences successives pourtant similaires, est attribué à des variations erratiques des fréquences de précession pendant l'enregistrement des signaux. Dans les paragraphes qui vont suivre, nous allons porter notre attention sur cet effet, qui est hautement indésirable, puisque non seulement il gêne la détermination des différentes fréquences de précession, mais encore et surtout interdit toute mesure relative à la largeur des raies. Nous allons, dans un premier temps, en décrire l'origine physique puis présenter deux méthodes différentes d'analyse numérique des données, dont l'objectif est de nous permettre de nous affranchir de cet effet.

7.2.1.2 Origines du phénomène.

A la source de ces fluctuations, nous avons suspecté la stabilité de l'alimentation qui délivre le courant qui circule dans les sept bobines, montées en série, qui induisent le champ magnétique appliqué $\mathbf{B}_{ext}$. Dans le souci de compenser ces fluctuations, au moins au niveau de la cellule d'étude, nous avons réalisé une boucle d'asservissement du courant d'alimentation en utilisant un enroulement supplémentaire de quelques tours monté sur les bobines de gradient vertical. Le principe en est simple : la tension générée aux bornes d'une résistance

étalon de 0.1Ω par le courant délivré par l'alimentation est, à tout instant, comparée à une tension fixe délivrée par un générateur stable à 10^{-5}. Un courant proportionnel au signal d'erreur est envoyé dans l'enroulement compensateur, afin d'effectuer la régulation. Par le biais d'expériences RMN, nous nous sommes assurés expérimentalement de l'efficacité de la boucle de rétroaction ainsi conçue. En provoquant manuellement de petites fluctuations de l'intensité du courant qui alimente les bobines de $\mathbf{B}_{ext}$, nous avons constaté sur différents spectres en fréquence de signaux de précession libre, obtenus après de petites impulsions radiofréquence réglées sur la fréquence correspondant à la valeur moyenne du champ appliqué, que la régulation opérée par l'enroulement compensateur ramène toujours à la même valeur la fréquence de précession d'un mode donné. Cependant, il est également apparu sur ces spectres que les raies demeurent aussi larges et irrégulières que celles de la figure 7.4, ce qui atteste de la persistance des fluctuations magnétiques. Celles-ci ne trouvent donc pas leur origine dans une stabilité défaillante du générateur de courant qui alimente les bobines du champ appliqué $\mathbf{B}_{ext}$.

Puisqu'à la base de ces instabilités des fréquences de précession on ne trouve pas les fluctuations du courant, il faut donc nécessairement y voir des fluctuations du champ magnétique lui-même. De telles fluctuations sont parfaitement envisageables dans un environnement magnétique comme celui du laboratoire, où le déplacement de masses métalliques à proximité de l'expérience, les courants électriques des expériences voisines ou tout simplement le départ d'un RER dans la gare toute proche du Luxembourg peuvent provoquer des à-coups non négligeables du champ magnétique. L'origine des fluctuations magnétiques, qui semble désormais élucidée, rend difficile la recherche d'une solution expérimentale qui pourrait les parer : en effet, l'utilisation d'un cylindre supraconducteur pour écranter les fluctuations du champ magnétique [Tastevin 87] n'est pas envisageable dans le cadre de notre expérience, au regard de simples problèmes géométriques de centrage. Les remèdes que nous avons choisi d'apporter agissent en aval de l'expérience elle-même : ils consistent en des traitements numériques des données qui, s'ils ne permettent pas d'éradiquer les fluctuations magnétiques, permettent, et c'est là l'essentiel, d'éliminer leur effet direct et d'interpréter quantitativement nos résultats.

7.2.2 Méthode numérique de recalage des fréquences de précession.

Nous présentons dans ce paragraphe une méthode numérique qui permet en quelques étapes de retracer l'évolution temporelle de la fréquence de précession d'un mode donné et de corriger de cette variation le spectre initial, afin d'en produire un nouveau, plus lisible, dans lequel toutes les fréquences ont été recalées sur la position qu'elles auraient eu par rapport à la fréquence de Larmor si cette dernière était restée parfaitement fixe. Nous allons illustrer notre démarche en l'appliquant au spectre de la figure 7.4, dont le processus de transformation sera jalonné de différentes figures.

Commençons par préciser les notations employées dans la suite en modélisant un signal de précession libre. Dans un souci de simplicité, nous nous limitons au cas idéal où le signal n'est constitué que de deux modes d'aimantation et n'est pas entaché de bruit. En appelant respectivement A_0 et A_2 les amplitudes des deux modes d'aimantation détectés (on suppose que l'impulsion de radiofréquence n'excite que les modes pairs d'aimantation), γ_0 et γ_2 leurs taux d'amortissement et $\delta\omega_0$ et $\delta\omega_2$ leurs déplacements en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor ω_L, le signal de précession libre tel qu'il parvient à l'entrée de la détection synchrone s'écrit :

$$V_{in}(t) = V_0 \exp(-\gamma_0 t) \cos(\omega_L + \delta\omega_0)\, t + V_2 \exp(-\gamma_2 t) \cos(\omega_L + \delta\omega_2) t. \qquad (7.1)$$

Cette expression donne la valeur du signal de précession libre après une impulsion de basculement, prise par convention comme origine des temps; pour $t < 0$, $V_{in}(t) = 0$. Dans la détection synchrone, ce signal est mélangé, en phase et en quadrature de phase, avec le signal de référence à la fréquence $\omega_{réf}$, mélange que nous traduisons en multipliant le signal $V_{in}(t)$ par le nombre complexe $\exp(i\omega_{réf}t)$. Cette multiplication fait apparaître, pour la seule contribution du mode fondamental, des composantes aux fréquences $\omega_L + \omega_{réf} + \delta\omega_0$ et $\omega_L - \omega_{réf} + \delta\omega_0$. Un filtre passe-bas intégré dans la détection synchrone permet de ne retenir que les contributions basse fréquence ; la bande passante est supposée néanmoins assez large pour avoir le même gain pour toutes ces contributions. Ainsi, les deux signaux en quadrature à la sortie de la détection synchrone peuvent être considérés comme les composantes d'un nombre complexe, que par abus de langage, nous continuerons d'appeler le signal de précession libre :

$$u(t) = \exp(i \int_0^t \omega_L(t')dt' - i\omega_{ref}t) \left[A_0 \exp(-\gamma_0 t) \exp(i\delta\omega_0 t) + A_2 \exp(-\gamma_2 t) \exp(i\delta\omega_2 t)\right]. \tag{7.2}$$

Maintenant que les notations utilisées sont explicitées, nous pouvons décrire la procédure de recalage des fréquences de précession. La première étape consiste à choisir, dans l'espace de Fourier, une fenêtre de fréquences dans laquelle nous avons la conviction de n'avoir sélectionné qu'une seule raie élargie. Pour le spectre de la figure 7.4, nous ciblons notre étude sur la fenêtre $[-140.0Hz; -107.7Hz]$ correspondant à toute l'étendue de la raie de plus fort poids. Nous sélectionnons, ce faisant, le mode fondamental d'aimantation dont nous verrons qu'il est aussi celui qui s'amortit le plus lentement (voir paragraphe 7.5) : le choix de ce mode fondamental s'avèrera, à la lumière de la procédure d'analyse, être toujours le plus judicieux.

Nous opérons ensuite, sur cet ensemble limité de valeurs, une transformée de Fourier inverse qui produit, de manière numérique bien sûr, un signal $u_0(t)$. Ce signal restitue l'évolution temporelle du mode d'aimantation correspondant à la raie sélectionnée ; très schématiquement, la raie sélectionnée correspondant dans notre exemple au mode fondamental d'aimantation dont l'amplitude, le taux d'amortissement et la fréquence sont respectivement A_0, γ_0 et $\widetilde{\omega}_L + \delta\omega_0$. $\delta\omega_0$ représente le déplacement de fréquence par rapport à la fréquence notée $\widetilde{\omega}_L(t)$:

$$\widetilde{\omega}_L(t) = \omega_L(t) - \omega_{ref}, \tag{7.3}$$

différence entre la fréquence de Larmor instantanée et la fréquence de référence. Ce que restitue cette étape, c'est le signal $A_0 \exp(-\gamma_0 t) \exp(i \int_0^t \widetilde{\omega}_L(t')dt' + i\delta\omega_0 t)$ dont l'écriture même traduit l'existence des fluctuations magnétiques en faisant apparaître une dépendance temporelle de la fréquence de Larmor $\omega_L(t)$. Il faut noter que l'apodisation du spectre empêche $u_0(t)$ d'avoir des variations très rapides et qu'en particulier les premiers instants du signal ne peuvent être reconstitués.

La procédure d'analyse s'intéresse alors, dans un premier temps, au logarithme du module du signal $u_0(t)$. La figure 7.5 représente, pour l'exemple que nous considérons, le tracé de cette grandeur en fonction du temps. Est également figurée sur ce graphe la droite de régression linéaire, celle qui, selon des critères de type "moindres carrés", rend compte au mieux des données expérimentales. Ses paramètres (pente et ordonnée à l'origine) constituent de bonnes

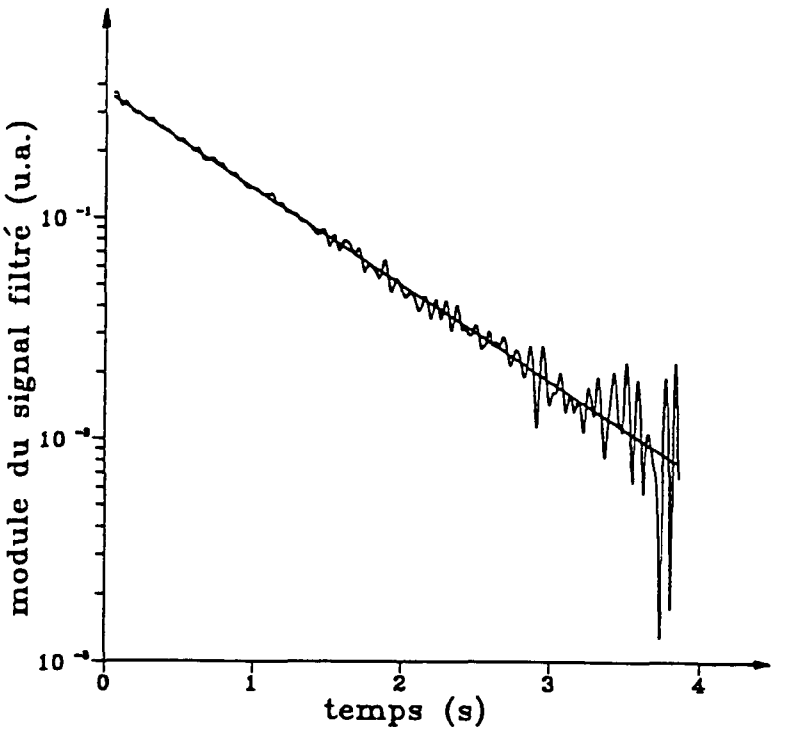


Figure 7.5: Logarithme du module du signal de précession libre ne correspondant qu'à la précession du mode fondamental d'aimantation.

approximations des grandeurs A_0 et γ_0 puisque, dans le cadre de notre modèle, le logarithme du module du signal $u(t)$ évolue linéairement en fonction du temps et vaut $\ln A_0 - \gamma_0 t$. Pour le mode fondamental que nous avons isolé pour l'étude du spectre de la figure 7.4, cette procédure fournit un taux d'amortissement dont la valeur est $1.01 s^{-1}$.

Dans un deuxième temps, nous portons l'analyse sur la fréquence instantanée du signal $u(t)$, qui dans notre modélisation simple vaut $(\widetilde{\omega}_L\ (t) + \delta\omega_0)$. L'idée de notre analyse consiste à effectuer d'abord la moyenne temporelle de la fréquence instantanée du signal $u(t)$; nous considérons l'écart à la valeur moyenne ainsi trouvée, noté $\Delta\omega(t)$, comme étant une bonne approximation des fluctuations de la fréquence de Larmor $\omega_L(t)$. En pratique, afin de tenir compte du rapport signal sur bruit expérimental, bien meilleur au début qu'à la fin de l'enregistrement, la moyenne temporelle que nous effectuons est pondérée de l'amplitude du signal. Comme par ailleurs, nous avons le souci d'apporter la même correction à *tous* les modes, il convient de sélectionner, comme base de l'analyse, celui qui précesse le plus longtemps, c'est-à-dire celui qui est amorti le plus lentement. La figure 7.6 représente les

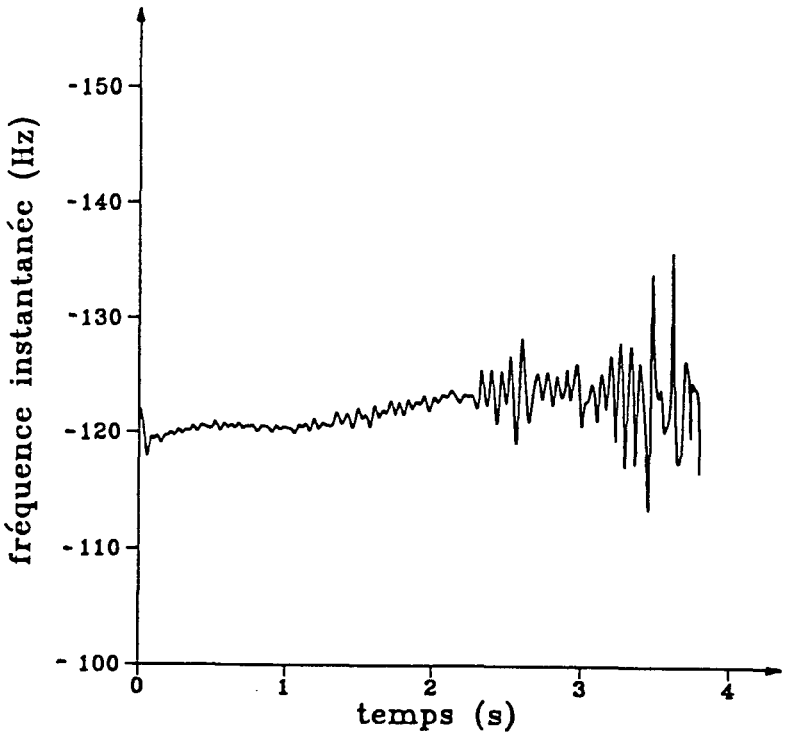


Figure 7.6: Fréquence instantanée du mode fondamental.

variations temporelles de la fréquence de Larmor déterminées par cette procédure sur le mode fondamental, lors du traitement du spectre de la figure 7.4. On constate qu'elles sont de l'ordre de $3Hz$ (ce qui correspond à des variations du champ magnétique de l'ordre de $0.1\mu T$).

L'étape ultime consiste en le recalage simultané de toutes les fréquences du spectre : celui-ci est obtenu en multipliant l'intégralité du signal temporel enregistré par le nombre complexe $\exp(i\int_0^t \Delta\omega(t')dt')$, $\Delta\omega(t)$ étant, comme nous l'avons déjà dit, l'écart entre la fréquence $\tilde{\omega}_L(t) + \delta\omega_0$ et sa valeur moyenne. L'effet d'une telle multiplication est de soustraire à *tous* les modes d'aimantation détectés les fluctuations parasites de la fréquence de Larmor $\omega_L(t)$.

La figure 7.7 présente le spectre de la figure 7.4 après le recalage : toutes les raies se trouvent affinées. Il devient alors possible à la fois de pointer les fréquences des modes d'aimantation et de mesurer les largeurs des raies qui, selon le modèle qui vient d'être exposé, ne sont plus fonction que du seul amortissement de l'aimantation transverse dans chaque mode.

Ce traitement donne, pour les deux principaux modes d'aimantation, des résultats (dé-

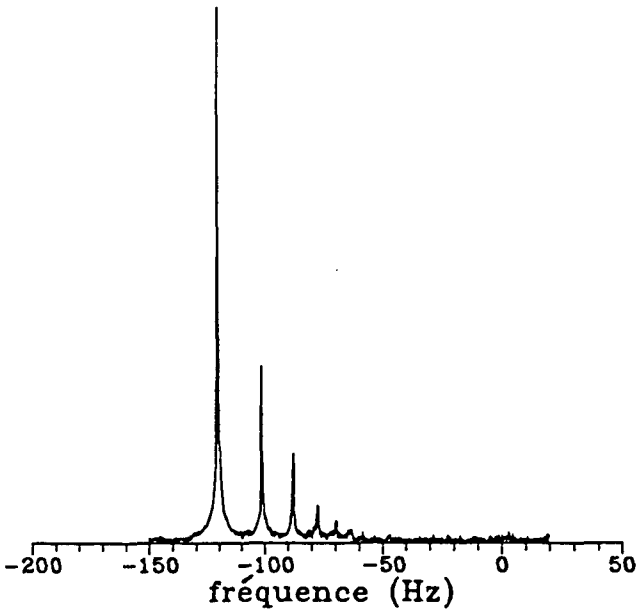


Figure 7.7: Amplitude de la transformée de Fourier du module du signal de précession libre de la figure 7.3 à l'issue de la procédure de recalage des fréquences de précession.

placement en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor, largeur de raie) que viendront corroborer d'autres résultats, issus d'une analyse différente des données (voir le paragraphe suivant). En ce sens, la méthode de recalage fiable et satisfaisante. Il convient néanmoins d'en connaître les limites. Le premier grief qu'on peut opposer à notre méthode d'analyse est de nature conceptuelle : en effet, si la définition de la valeur moyenne dont nous utilisons le résultat pour extraire les fluctuations instantanées de la fréquence de Larmor $\omega_L(t)$ est raisonnable, elle n'en est pas moins arbitraire. De plus, le fait de compenser, de la même manière pour *tous* les modes d'aimantation, les fluctuations de la fréquence de Larmor qui ont été déterminées par l'analyse d'*un seul* mode, peut provoquer des distorsions du signal ; de fait, il semble que la raie qui correspond au mode sur lequel nous avons basé notre analyse ressorte affinée de manière plus régulière. Les autres limitations de cette analyse sont d'ordre pratique. Cette méthode ne peut en effet être utilisée que s'il est possible de déterminer, a priori, une fenêtre de fréquences qui englobe toutes les variations de l'amplitude de la transformée de Fourier imputables à un unique mode d'aimantation, à l'exclusion de celles générées par les autres modes. S'il se trouve que des fluctuations magnétiques ont lieu pendant la durée de l'enregistrement, d'amplitude telle qu'il n'est pas possible de séparer sans ambiguïté deux raies sur le spectre en fréquence, alors la procédure de recalage du spectre

que nous venons de décrire ne peut être appliquée. L'autre objection que nous voulons formuler repose sur le caractère en partie arbitraire du choix de la fenêtre de fréquence. Il existe en effet une petite latitude de variation d'un opérateur à l'autre et nous avons constaté qu'elle peut se matérialiser par une variation du taux d'amortissement obtenu, qui n'excède toutefois pas 1%.

7.2.3 Méthode numérique d'analyse du carré du module du signal temporel.

Nous décrivons dans ce paragraphe une méthode alternative d'analyse des données visant, une nouvelle fois, à nous affranchir des effets indésirables liés aux fluctuations de la fréquence de Larmor, pour déterminer, in fine, les paramètres pertinents relatifs aux modes d'aimantation (leurs déplacements en fréquence et leurs largeurs). Contrairement à la méthode de recalage qui opère sur le spectre d'un signal, son point de départ est le signal temporel de précession libre lui-même (il est toujours sous-entendu que ce signal est mélangé au signal de référence et filtré dans la détection synchrone) qui est un nombre complexe défini par son module et sa phase.

La première étape de cette nouvelle procédure consiste à multiplier ce nombre complexe par son conjugué, c'est-à-dire à prendre le carré du module du signal temporel, ce qui résulte dans l'élimination définitive des fluctuations de la fréquence de Larmor. La modélisation que nous proposons maintenant permet d'asseoir les raisonnements qui sont à la base de l'action de cette procédure d'analyse : la procédure agissant sur l'ensemble du signal, la modélisation, contrairement à celle qui a été faite au paragraphe précédent, doit comprendre au départ tous les modes qui contribuen au signal. Nous reprenons l'expression 7.2 établie dans le cas simple où seuls deux modes d'aimantation sont détectés :

$$u(t) = \exp(i \int_0^t \omega_L(t')dt' - i\omega_{ref}t) \left[A_0 \exp(-\gamma_0 t) \exp(i\omega_0 t) + A_2 \exp(-\gamma_2 t) \exp(i\omega_2 t)\right].$$

L'hypothèse qui consiste à ne prendre en compte que deux modes d'aimantation n'est pas restrictive et nous verrons comment on peut, au vu des conclusions de l'analyse d'un spectre à deux raies, élargir aisément le champ de la procédure à un spectre plus fourni. De plus, nous introduirons ultérieurement dans notre analyse un modèle du bruit expérimental. Comme peut le faire apparaître un spectre non traité tel celui de la figure 7.4, un mode d'aimantation a d'autant moins de poids dans le signal de précession qu'il est d'ordre plus élevé. Cette simple

constatation permet d'établir la hiérarchie des amplitudes suivante :

$$A_0 \gg A_2. \tag{7.4}$$

Le carré du module de $u(t)$ s'écrit alors :

$$\begin{aligned} u(t)u^*(t) &= |A_0 \exp(-\gamma_0 t)\exp(i\omega_0 t) + A_2 \exp(-\gamma_2 t)\exp(i\omega_2 t)|^2 \qquad (7.5) \\ &= \left(A_0^2 \exp(-2\gamma_0 t) + A_2^2 \exp(-2\gamma_2 t) \; + 2A_0A_2 \exp(-(\gamma_0+\gamma_2)t)\cos((\omega_0-\omega_2)t)\right), \end{aligned}$$

formule dans laquelle la fréquence de Larmor et, par voie de conséquence, sa variation temporelle n'apparaissent plus.

L'étape suivante consiste à prendre la transformée de Fourier du carré du module de $u(t)$. Il apparaît dans le domaine des fréquences positives deux composantes : l'une à la fréquence nulle dont l'amplitude est la transformée de Fourier de la somme des deux exponentielles amorties $A_0^2\exp(-2\gamma_0 t)$ et $A_2^2\exp(-2\gamma_2 t)$ et l'autre à la fréquence $|\omega_0-\omega_2|$. Remarquons que le carré du module de la transformée de Fourier de la fonction réelle $A_0^2\exp(-2\gamma_0 t)$ est la lorentzienne $A_0^2/(4\gamma_0+\omega^2)$, fonction de la variable ω. Expérimentalement, le signal temporel de précession libre n'est enregistré que pendant un laps de temps déterminé ; notre modèle tient compte de ce fait en multipliant le signal $u(t)$ de l'expression (7.2) par la fonction indicatrice de l'intervalle $[t_{début}, t_{fin}]$. Concrètement, on effectue donc des transformées de Fourier discrètes sur un intervalle de temps fini. L'analyse des signaux prend en compte ces effets numériques. Ainsi, dans l'espace de Fourier, la contribution au pic de fréquence nulle du terme $A_0^2\exp(-2\gamma_0 t)$ s'écrit :

$$A_0^2 \sum_{t_i=t_{début}}^{t_i=t_{fin}} \exp(-2\gamma_0 t_i)\exp(-i\omega_i t_i) \tag{7.6}$$

En définitive, le module de la transformée de Fourier du signal $u(t)u^*(t)$ est constitué, dans la partie des fréquences positives, de deux raies. Nous ferons l'hypothèse dans l'étape d'analyse suivante que, en vertu des poids relatifs des modes d'aimantation ($A_0 \gg A_2$), la raie à fréquence nulle se réduit à la contribution du terme $A_0^2\exp(-2\gamma_0 t)$. L'autre raie est décalée en fréquence d'une grandeur $|\omega_0-\omega_2|$ et provient des contributions croisées des deux modes d'aimantation (voir la formule 7.5). Les figures 7.8 et 7.9 représentent en trait plein la transformée de Fourier du carré du module du signal de la figure 7.3. Rappelons qu'il s'agit du signal de précession libre enregistré à une fréquence de l'ordre de $85kHz$,

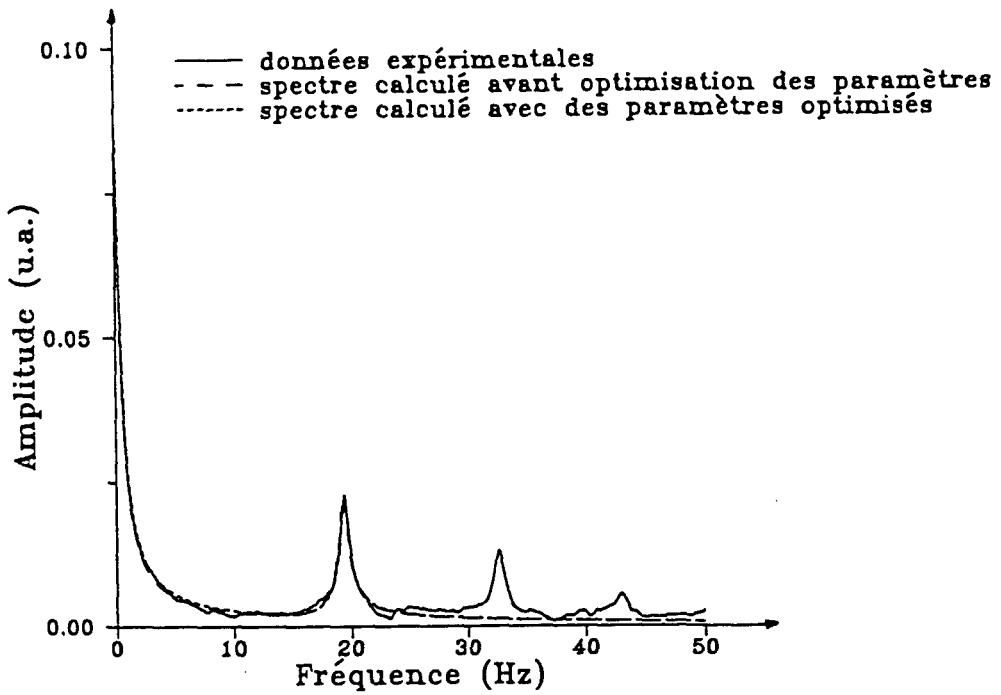


Figure 7.8: Amplitude (ou module) de la transformée de Fourier du carré du module du signal de précession libre de la figure 7.3. Sa variation étant symétrique par rapport à la fréquence nulle, seul est représenté le domaine des fréquences positives. Sont également représentés les ajustements calculés du signal expérimental.

grâce au solénoïde de détection, dans l'échantillon polarisé de la cellule $n^0 2$. La figure 7.8 fait clairement apparaître un pic à fréquence nulle et plusieurs pics satellites de moindre importance. Le premier de ces pics, celui dont la fréquence est la plus basse et l'amplitude la plus grande est le pic annexe déplacé en fréquence que prédit notre modèle : il est dû au mélange des fréquences des deux premiers modes d'aimantation. Il est aisé de deviner que les autres pics satellites sont provoqués par des battements de fréquence avec des modes d'aimantation d'ordre supérieur : ils ne peuvent être obtenus dans le cadre de notre modèle à deux modes. Nous comprendrons à la lumière des étapes suivantes de notre démarche, que l'impossibilité de discerner l'origine des contributions croisées des pics satellites constitue la limitation majeure de cette méthode d'analyse. En particulier, le fait de pouvoir désigner un pic satellite comme résultant des battements de deux modes identifiés suppose un nombre raisonnable de pics satellites. La méthode d'analyse que nous présentons ici est donc mieux adaptée à l'interprétation des signaux enregistrés aux bornes du solénoïde, qui ne détecte

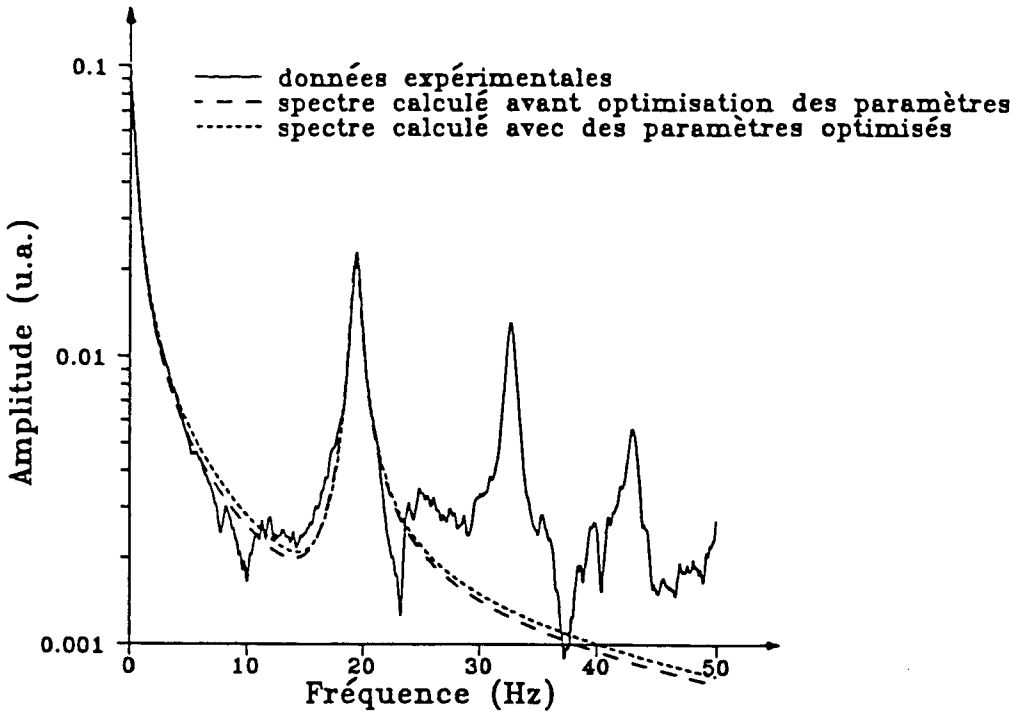


Figure 7.9: Amplitude de la transformée de Fourier du carré du module du signal de précession libre de la figure 7.3. Toutes les courbes sont celles de la figure 7.8, représentées ici en échelle logarithmique.

que quelques modes, qu'à ceux enregistrés à l'aide de la paire de bobines détectrices qui font intervenir de nombreux modes d'aimantation. Les spectres en fréquence du module de ces derniers, qui font apparaître une multitude de pics satellites, sont généralement inextricables et la méthode ne peut être commodément appliquée.

Pour déterminer les paramètres pertinents du mode fondamental d'aimantation (A_0, γ_0), nous utilisons le pic à fréquence nulle dans le spectre du module du signal de précession libre, en supposant négligeables les contributions en A_2^2, A_4^2 des modes excités d'aimantation. Le spectre du carré du module du signal $u(t)$ est un nombre complexe. Le taux d'amortissement γ_0 est obtenu par un ajustement, ne faisant intervenir qu'un seul paramètre, de la phase calculée de ce nombre complexe à la phase expérimentale ($\gamma_0 = 1.043 s^{-1}$). L'amplitude A_0 est déterminée, de manière analogue, par un ajustement à la valeur expérimentale de l'aire sous la courbe du module du spectre de $u(t)u^*(t)$ ($A_0 = 0.41$). Il s'agit là encore d'un ajustement à un paramètre. Il est à noter qu'il fait intervenir la valeur du taux d'amortissement γ_0 précédemment déterminée.

Les paramètres $|\omega_0 - \omega_2|$, A_2 et γ_2 sont, quant à eux, tirés de l'analyse du premier pic satellite. Cette analyse porte sur la différence entre le spectre de $u(t)u^*(t)$ et l'estimation de la contribution du mode fondamental d'aimantation. Elle commence par la localisation du premier pic satellite sur l'axe des fréquences. Connaissant ainsi le déplacement en fréquence $|\omega_0 - \omega_2|$ entre les deux modes d'aimantation, nous ramenons, dans un deuxième temps, ce pic décalé en fréquence à la fréquence nulle. C'est une opération que nous effectuons dans l'espace temporel : le signal est multiplié par $\cos(\omega_0 - \omega_2)t$ ce qui transforme le terme croisé de l'expression (7.5) en :

$$\frac{A_0 A_2}{2} \exp(-(\gamma_0 + \gamma_2)t) \cos^2(\omega_0 - \omega_2)t. \tag{7.7}$$

Une nouvelle transformation de Fourier du signal résultant fait apparaître une raie à la fréquence nulle, issue du battement entre les deux modes d'aimantation. Nous calquons l'analyse de ce pic, ramené à la fréquence nulle, sur celle que nous avons déjà effectuée. Nous déterminons ainsi sa largeur $\gamma_0 + \gamma_2$ ainsi que son amplitude $A_0 A_2/4$. Connaissant γ_0 et A_0, nous en déduisons γ_2 et A_2. En pratique, nous itérons une fois de plus ce processus pour déterminer les paramètres (amplitude, taux d'amortissement, déplacement en fréquence) du mode suivant d'aimantation qui intervient dans le signal de précession libre. Il est illusoire de vouloir pousser plus avant cette analyse. En effet, d'un point de vue expérimental, le rapport signal sur bruit dont nous disposons ne nous permet pas d'envisager des mesures fiables et significatives sur plus de trois modes d'aimantation. Par ailleurs, du point de vue de la modélisation, il est délicat de prédire une hiérarchie des termes croisés plus lointains, en l'absence de laquelle l'identification des pics satellites est des plus problématiques.

La dernière étape de notre analyse des données consiste en une optimisation numérique des paramètres que nous venons de déterminer (cette optimisation est réalisée au moyen de programmes empruntés à Numerical Recipes [Numerical Rec.]). Celle-ci repose sur la minimisation du critère d'erreur suivant :

$$\sum_{\omega_i} \left| \widetilde{uu^*}_{exp}(\omega_i) - \widetilde{uu^*}_{\{P\}}(\omega_i) \right|^2 \tag{7.8}$$

Dans cette formule, $\widetilde{uu^*}_{exp}(\omega_i)$ est une notation symbolique qui représente la valeur en un point donné de l'axe des fréquences de la transformée de Fourier du module du signal de précession libre enregistré pendant l'expérience, tandis que la notation $\widetilde{uu^*}_{\{P\}}(\omega_i)$ représente l'estimation de la transformée de Fourier du module du signal de précession libre que nous

avons modélisée (voir équation 7.2), estimation qui est faite au même point ω_i de l'axe des fréquences et à l'aide du jeu de paramètres que nous venons de déterminer et qui, symboliquement, est représenté par l'écriture $\{P\}$. La somme discrète est calculée sur des bandes de fréquences comprenant les premiers pics. Outre les cinq paramètres naturels A_0, γ_0, A_2, γ_2 et $|\omega_0 - \omega_2|$, l'optimisation est réalisée avec un sixième paramètre destiné à tenir compte du bruit expérimental. Nous avons vérifié que le spectre de celui-ci ne présente pas de fréquence caractéristique ni d'échelle caractéristique de fréquence. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi, pour tenir compte du paramètre bruit expérimental dans le module de la transformée de Fourier de $u(t)u^*(t)$, une simple constante positive. Les valeurs optimisées des paramètres A_0, γ_0, A_2, γ_2 et $|\omega_0 - \omega_2|$ diffèrent en général fort peu des estimations initiales ; à titre d'exemple, γ_0 après optimisation vaut $1.024 s^{-1}$ et A_0, 0.39 pour l'exemple traité plus haut. Ce sont ces valeurs qui sont retenues comme résultats de l'analyse. La qualité de l'ajustement peut d'ailleurs être contrôlée visuellement (voir la figure 7.9).

7.3 Interprétation quantitative des déplacements en fréquence des spectres RMN.

7.3.1 Validité du modèle quantitatif de l'effet du champ dipolaire.

Les mesures dont il est question dans cette section ont été réalisées sur l'échantillon de liquide polarisé d'hélium 3 dans l'hélium 4 de la cellule $n^0 2$ (celle dont la cellule d'étude a la forme d'un tortillon circulaire), en utilisant le solénoïde comme dispositif de détection RMN et en analysant les signaux de précession libre au moyen de la procédure d'analyse du module du signal temporel expliquée au paragraphe précédent. L'excitation des modes pairs d'aimantation est produite par les enroulements inducteurs connectés en série (décrits au paragraphe 2.2.1) à une fréquence de l'ordre de 85 kHz. La détection est, quant à elle, assurée par le solénoïde détecteur branché en série avec son inductance de forte valeur (voir paragraphe 2.2.2.2), la surtension Q du circuit (LC) résonant valant environ 30.

Nous avons comparé les résultats de cette configuration d'excitation globale et de détection sélective des modes d'aimantation à son complémentaire, la configuration d'excitation

sélective et de détection globale des modes d'aimantation ; cette dernière est mise en œuvre très simplement, en envoyant l'impulsion de radiofréquence qui provoque le basculement d'une partie de l'aimantation longitudinale dans l'enroulement du solénoïde, et en détectant la précession de l'aimantation transverse grâce à la paire de bobines détectrices décrites au paragraphe 2.2.2.1. Si l'effet de cette dernière manipulation est bien celui attendu (seuls les modes au sommet du tortillon circulaire sont excités et donc détectés), ses performances se sont avérées moins bonnes que celles de la méthode jumelle en termes de rapport signal sur bruit et de couplage de l'aimantation transverse au circuit de détection (lorsque la détection utilise convenablement le solénoïde, ce couplage est non seulement moins important mais aussi plus facile à estimer). Nous avons donc tout naturellement opté pour la méthode d'excitation globale et de détection sélective qui utilise le solénoïde comme dispositif de détection RMN.

A titre d'exemple de spectre d'un signal de précession libre obtenu dans ces conditions, nous avons déjà montré la figure 7.7 issue de la procédure de recalage de la fréquence de précession du mode fondamental d'aimantation. Sur la figure 7.10, qui reproduit exactement

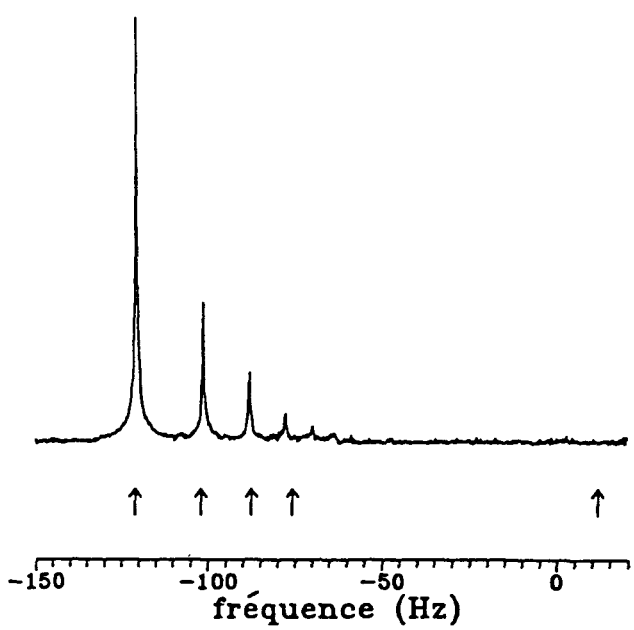


Figure 7.10: Comparaison entre un spectre expérimental (celui de la figure 7.7) et les fréquences calculées des premiers modes d'aimantation. La flèche à droite de la figure repère la position de la fréquence de Larmor (voir équation 7.3).

le même spectre, sont de plus figurées par des flèches verticales des fréquences calculées, caractéristiques du battement entre le signal de précession libre et le signal de référence, fréquences qui correspondent en réalité aux fréquences propres des modes pairs d'aimantation. Les modèles développés dans la deuxième partie nous ont montré que le calcul de ces fréquences ne fait intervenir que deux paramètres : d'une part, le rapport géométrique a/R (a désigne le rayon intérieur de la cellule d'étude et R le rayon de courbure du tortillon circulaire) et, d'autre part, la différence entre la fréquence de Larmor d'un atome d'hélium 3 dans le champ magnétique considéré et la fréquence du signal de référence. Nous allons, dans un premier temps, donner les paramètres du calcul qui nous a permis de déduire les fréquences propres des modes d'aimantation, en décrivant la façon dont, expérimentalement, ils sont déterminés avant de commenter l'accord entre les résultats expérimentaux et les simulations numériques. Rappelons que celles-ci ont été menées avec la méthode de discrétisation et d'inversion numérique présentée au paragraphe 5.4.1.2.

Nous avons procédé à des séries d'enregistrements de signaux de précession libre, au fur et à mesure que l'aimantation décroissait dans l'échantillon (pour permettre cette décroissance, la circulation d'hélium 3 était interrompue). Chacune de ces séries correspond à des conditions données de température et de concentration en hélium 3 du liquide polarisé. Nous verrons au paragraphe 8.1.3 comment ces deux paramètres peuvent être modifiés et contrôlés. Les expériences que nous relatons ont été effectuées pour trois jeux différents des paramètres température et concentration en hélium 3 ; série 1 : $0.29K$ et 12% en hélium 3, série 2 : $0.36K$ et 15% en hélium 3, série 3 : $0.36K$ et 11% en hélium 3. Dans chaque série, la décroissance du module de l'aimantation est provoquée à partir d'une condition initiale d'extremum d'aimantation, par l'application d'impulsions radiofréquence de grand angle de basculement (de l'ordre de $\pi/3$). En fait, dans nos expériences, nous alternons ces impulsions de grand angle et des impulsions de mesure, de petit angle de basculement (typiquement $\pi/32$). Entre deux impulsions successives, qu'elles soient de grand ou de petit angle de basculement, nous attendons quelques secondes, le temps pour l'aimantation transverse ainsi générée de disparaître. Après chaque impulsion de petit angle de basculement, un signal de précession libre est enregistré, correspondant à une valeur de l'aimantation de plus en plus faible.

Sur les spectres en transformée de Fourier correspondant à ces signaux, on mesure la différence entre les fréquences des deux modes principaux, que l'on porte en fonction de la fréquence de battement du mode fondamental. La figure 7.11 représente un tel tracé obtenu

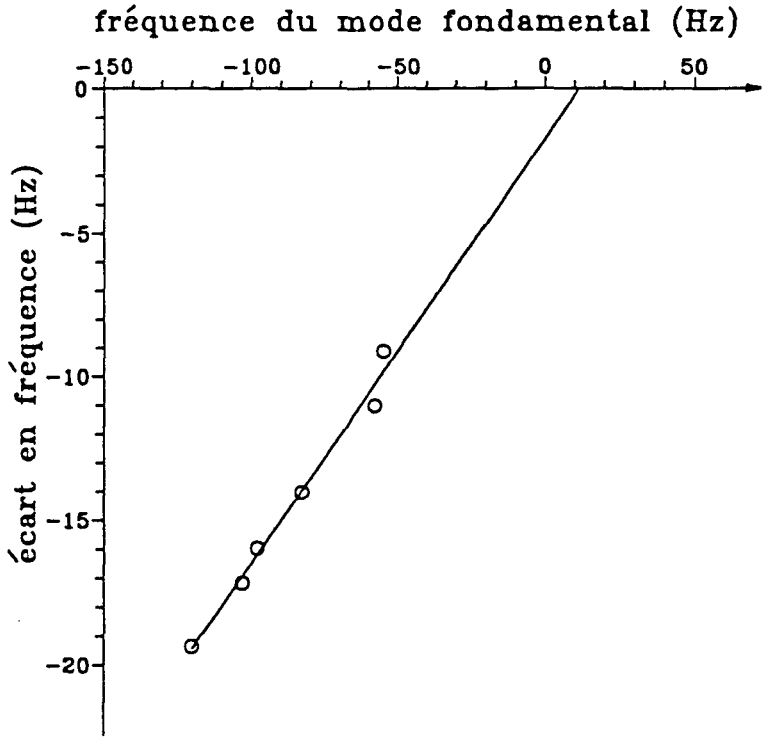


Figure 7.11: Ecart entre les déplacements en fréquence des deux modes principaux d'aimantation en fonction du déplacement en fréquence du mode fondamental.

dans les conditions expérimentales de la série 3 ; les points expérimentaux s'alignent sur une droite. Cette dépendance linéaire est prévue dans le cadre des modèles développés en deuxième partie, puisqu'à la fois la fréquence de battement d'un mode donné et la différence des fréquences entre deux modes sont proportionnelles à la polarisation nucléaire. La dispersion des données résulte des fluctuations du champ magnétique évoquées au paragraphe 7.2.1 ; on constate d'ailleurs que les données sont d'autant plus dispersées que l'écart en fréquence entre les deux modes principaux est faible, correspondant à des mesures pour lesquelles, en raison de la diminution de la polarisation nucléaire, le rapport signal sur bruit est dégradé. La différence entre la fréquence de référence et la fréquence de Larmor dans le champ considéré (différence que l'on notera de manière abrégée diff. dans le tableau ci-dessous) est donnée par l'intersection de la droite de régression linéaire avec l'axe des abscisses. La pente de cette droite correspond au rapport $(\Omega_0 - \Omega_2)/\Omega_0$, qui n'est censé dépendre, d'après les modèles de la seconde partie, que du rapport géométrique a/R.

Le tableau suivant résume les résultats obtenus dans les différentes conditions de tempé-

rature et de concentration en hélium que nous avons étudiées ; deux valeurs sont indiquées pour chaque série, correspondant aux deux orientations possibles de la polarisation nucléaire initiale qui sont obtenues pour des pompages optiques dans des sens opposés.

Série	Pente	diff. (Hz)	$\|\Delta\|$ (Hz)	M_z
1	0.141	-0.7	131	0.47
1	0.166	10.5	98	0.35
2	0.173	-9.5	130	0.38
2	0.156	21.8	120	0.35
3	0.147	11.6	139	0.405
3	0.153	41.0	111	0.32

Table 7.1: Résultats expérimentaux obtenus dans différentes conditions de température et de concentration en ^{3}He. Les deux premières colonnes correspondent aux paramètres des droites résultant de notre analyse des données à la manière de celle de la figure 7.10. Le calcul de la polarisation nucléaire M_z dépend en particulier de Δ et de la fraction molaire en ^{3}He : il sera détaillé dans le paragraphe suivant.

En tenant compte de l'ensemble des résultats expérimentaux, les simulations numériques des spectres en fréquence que nous avons effectuées montrent que les pentes mesurées correspondent à un facteur géométrique a/R égal à 0.028 ± 0.003. Ce nombre est en accord raisonnable avec les dimensions mesurées sur la cellule expérimentale elle-même : en effet, le rayon intérieur nominal du tube capillaire est $a = 0.3mm$ (avant de le chauffer et de le cintrer pour le transformer en un tortillon circulaire) et le rayon de courbure du tortillon est $R = 8mm$.

Les fréquences des premiers modes pairs d'aimantation, représentées sur la figure 7.10 par des flèches, sont calculées avec, comme paramètres, le rapport géométrique $a/R = 0.028$ et une différence entre les fréquences de référence et de Larmor égale dans ce cas précis à $11.61Hz$; la détermination du facteur d'échelle Δ est détaillée au paragraphe 7.3.2 suivant. L'accord entre les fréquences calculées et les fréquences mesurées est très encourageant : la description des phénomènes observés à l'aide de notre modèle quantitatif de la partie II est jusqu'ici tout à fait satisfaisante.

7.3.2 Mesure du taux de polarisation nucléaire dans la phase liquide.

En utilisant les paramètres que nous venons de déterminer (rapport géométrique a/R et position de la fréquence de Larmor par rapport à la fréquence de référence), on peut aisément convertir la fréquence du mode fondamental d'aimantation Ω_0 en pourcentage de polarisation nucléaire. En effet, rappelons que les modèles développés dans la partie II montrent que l'échelle caractéristique des déplacements de fréquence est donnée par

$$\Delta = \frac{\gamma \mu_0 \mu_n n_3}{4} M_z, \tag{7.9}$$

formule dans laquelle γ désigne le rapport gyromagnétique d'un atome d'hélium 3 ($\gamma = -3.24\ 10^7 Hz.T^{-1}$), μ_0 la permittivité du vide ($\mu_0 = 4\pi\ 10^{-7} T^2.m^3.J^{-1}$), μ_n le moment magnétique nucléaire d'un atome d'hélium 3 ($\mu_n = 1.08\ 10^{-26} J.T^{-1}$), n_3 la densité atomique en hélium 3 de la solution liquide étudiée ($n_3 = 10^3 \mathcal{N} c_3$, où $\mathcal{N}$ est le nombre d'Avogadro et c_3 la concentration en hélium 3 exprimée en $mol.l^{-1}$) et M_z le taux de polarisation nucléaire (nombre sans dimension dont la valeur absolue est inférieure à 1). En effectuant les applications numériques, la relation 7.9 devient :

$$M_z = 0.0151 \frac{\Delta}{c_3}. \qquad (Hz/mol. \cdot l^{-1}) \tag{7.10}$$

La valeur de Δ est tirée de nos mesures en appliquant à la fréquence du mode fondamental Ω_0 un facteur d'échelle déduit de nos simulations numériques ; par exemple, les simulations que nous avons effectuées avec comme paramètre géométrique $a/R = 0.03$ montrent que les fréquences des deux premiers modes pairs d'aimantation sont respectivement $\Omega_0 = 0.93\Delta$ et $\Omega_2 = 0.72\Delta$. Dans ce cas, on obtient $\Delta = 1.075\Omega_0$. Les résultats que nous obtenons ainsi pour la polarisation nucléaire dans la phase liquide, dans les différentes conditions expérimentales que nous avons étudiées (pour lesquelles la concentration en hélium 3 est raisonnablement bien connue) sont présentés dans la dernière colonne du tableau 7.1. La polarisation nucléaire est de l'ordre de 40%, valeur comparable aux mesures faites antérieurement [Candela 94].

7.4 Effets de gradients de champ magnétique.

7.4.1 Existence de gradients de champ magnétique à proximité de la cellule d'étude.

La figure 7.12 représente le spectre en transformée de Fourier d'un signal de précession libre

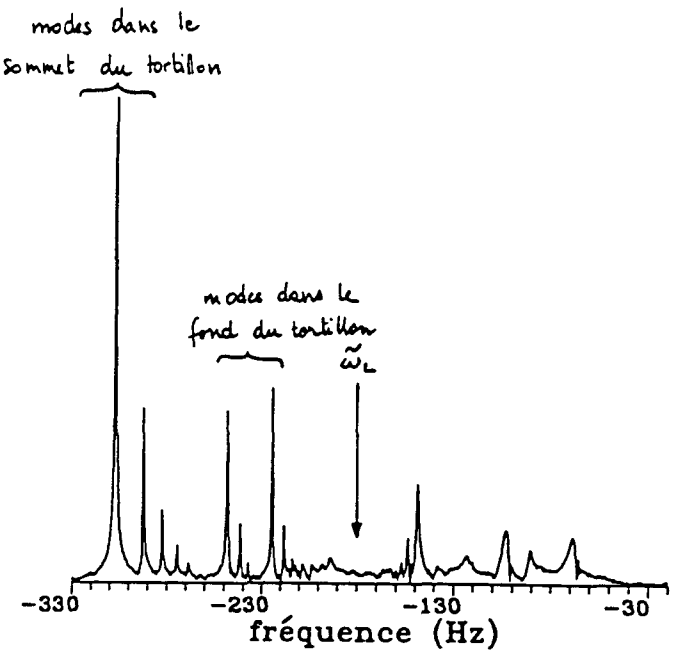


Figure 7.12: Amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre enregistré aux bornes des bobines détectrices dans la cellule d'étude en forme de tortillon circulaire.

(enregistré sur l'échantillon de la cellule $n^0 2$) induit après une impulsion globale générée à la fréquence de $79kHz$ par les enroulements inducteurs. L'aimantation transverse est cette fois-ci détectée de manière globale par la paire de bobines détectrices qui est sensible à l'aimantation existant dans tout le volume de la cellule d'étude.

L'analyse d'un tel spectre est grandement facilitée par les exemples déjà rencontrés d'une détection globale dans le tube en U (7.2) et d'une détection sélective au sommet du tortillon circulaire (7.7). La partie gauche du spectre (à gauche de la flèche qui pointe la fréquence de Larmor dans le champ considéré) correspond aux modes d'aimantation dans les parties horizontales du tortillon circulaire ; on peut attribuer la famille qui comprend les cinq modes les plus déplacés par rapport à la fréquence de Larmor aux modes d'aimantation localisés dans le sommet du tortillon. C'est parce que cette zone est la plus froide de la cellule

d'étude que la concentration en hélium 3 y est la plus grande (voir la partie expérimentale consacrée aux doubles cellules), et que l'aimantation et par conséquent les déplacements en fréquence y sont les plus forts. Les deux groupes de raies suivants, pour lesquels on peut discerner l'ébauche d'une famille discrète de fréquences, proviennent des modes localisés dans les deux parties horizontales inférieures du tortillon circulaire ; les déplacements en fréquence de ces modes sont moindres, simplement en raison de la configuration des thermalisations posées le long de la cellule d'étude qui impose une température plus élevée à ces zones. Enfin, l'ensemble des raies situées à droite de la fréquence de Larmor est attribué aux modes confinés (dans les parties verticales du tortillon circulaire) et semi confinés (dans les branches verticales du tube, au point de raccordement entre les tubes de connexion et la cellule d'étude). Il est en général assez mal résolu.

Revenons quelques instants sur les deux familles jumelles qui attestent de l'existence de modes d'aimantation dans les parties horizontales inférieures du tortillon circulaire. Contre toute attente, les fréquences de précession des modes appartenant à chaque famille ne sont pas dégénérées ; on voit en effet distinctement les deux familles, séparées en fréquence d'une dizaine de Hertz. Il ne nous semble pas raisonnable d'imputer une telle différence à un déséquilibre de concentration en hélium 3 (né, par exemple, d'un déséquilibre de température), ni à un déséquilibre de polarisation nucléaire entre les deux parties horizontales du tortillon. En ce qui concerne l'éventualité d'un déséquilibre de concentration, elle semble peu probable : c'est en effet le même fil de thermalisation qui entoure les deux parties horizontales inférieures de la cellule d'étude, assurant de ce fait celles-ci d'être à la même température. La possibilité d'un déséquilibre de polarisation nucléaire constitue, elle aussi, une explication assez improbable car la circulation des atomes d'hélium 3 est suffisamment rapide (voir la partie 1.4.6 consacrée aux doubles cellules) pour l'emporter, sur de petites distances, sur les phénomènes de relaxation nucléaire. Nous pensons plutôt trouver l'interprétation de cette observation expérimentale dans l'existence d'inhomogénéités de champ magnétique sur la cellule ; en effet, un gradient horizontal de l'ordre de $3.10^{-7} T.cm^{-1}$ peut expliquer que les fréquences de Larmor dans les parties horizontales (distantes d'environ $1cm$) soient décalées l'une par rapport à l'autre d'une dizaine de Hertz, provoquant ainsi la levée de dégénérescence, que nous observons, des fréquences de précession.

L'existence de gradients de champ magnétique horizontaux aux environs de la cellule d'étude est l'hypothèse vers laquelle nous nous tournons pour expliquer cette levée de dégé-

nérescence car une expérience nous a convaincus que s'exercent, sur l'étendue de la cellule, des gradients verticaux de champ magnétique. En effet, dans l'expérience de retournement de la polarisation nucléaire, que nous avons mise à profit pour estimer le temps caractéristique de circulation dans la cellule, nous avons suivi, au cours du retournement, l'évolution des déplacements en fréquence du mode fondamental localisé au sommet du tortillon et du mode fondamental localisé dans une des parties horizontales inférieures. Cette expérience a révélé qu'il existe une différence, que l'on peut chiffrer à environ $20Hz$, entre la fréquence de Larmor dans le sommet du tortillon et celle dans la branche horizontale inférieure considérée, différence que nous ne pouvons expliquer que par la présence d'un gradient vertical de champ statique. Un tel gradient modifie en effet la valeur du champ magnétique extérieur $\mathbf{B}_{ext}$ qui n'a plus la même valeur au sommet du tortillon circulaire qu'au fond. L'ordre de grandeur du gradient vertical à incriminer est comparable à celui du gradient horizontal. Ce sont des valeurs importantes, en considération des efforts consentis pour optimiser, à l'aide d'études RMN sur une cellule d'hélium 3 à température ambiante, l'homogénéité du champ magnétique statique (voir la partie expérimentale consacrée au champ magnétique statique). Parmi les causes possibles d'une telle dégradation de l'homogénéité du champ statique, nous pouvons citer la présence, à proximité de la cellule d'étude, de soudures à l'étain, matériau supraconducteur aux températures où nous travaillons, dont le diamagnétisme résultant peut provoquer des distorsions locales du champ magnétique. Néanmoins, comme nous en acquerrons la conviction dans le paragraphe suivant, de tels gradients de champ statique ne gênent en rien ni la détection des modes d'aimantation, ni les mesures quantitatives qui leur sont associées.

7.4.2 Application de gradients contrôlés de champ magnétique.

Parmi les premières expériences que nous avons effectuées dans la cellule en U afin d'identifier la provenance des modes magnétiques, il faut citer l'application de gradients contrôlés de champ magnétique grâce aux bobines de gradients décrites dans le paragraphe 2.1.2. Il s'est révélé en particulier que l'application de forts gradients verticaux provoquait la disparition d'une famille entière de modes, que nous avons identifiés dès lors comme les modes semi confinés dans les branches verticales du tube.

Les expériences que nous avons effectuées sur la cellule $n^0 2$ ont essentiellement une vertu démonstrative ; elles s'interprètent fort bien dans le cadre des modèles développés dans

la deuxième partie. Ces expériences concernent l'étude de la transformation du spectre en fréquence d'un signal de précession libre alors qu'un gradient de champ est appliqué en permanence.

Les résultats de cette étude sont représentés sur les figures 7.13a et 7.13b. Les détails

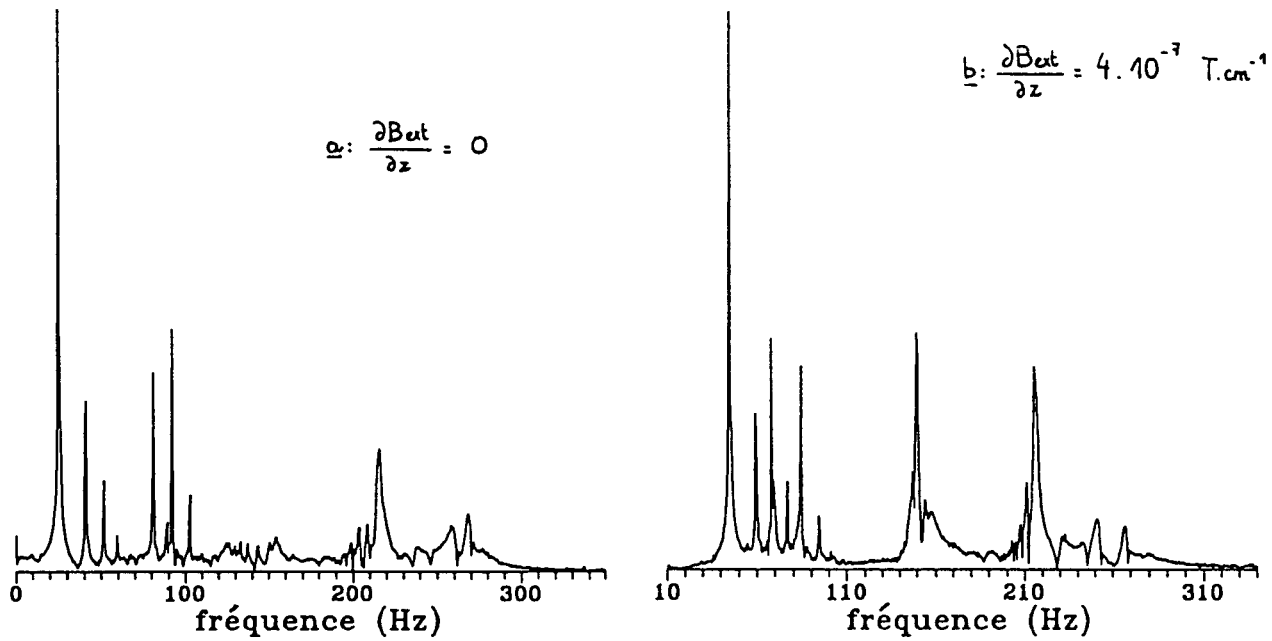


Figure 7.13: Influence de l'application d'un gradient vertical de champ magnétique sur le spectre en fréquence d'un signal de précession libre.

concernant la famille de modes les plus déplacés vers la gauche sont représentés sur les figures 7.14a et 7.14b. Ces signaux ont été enregistrés à la fréquence de $88.5kHz$ en utilisant naturellement la paire de bobines détectrices. Les figures 7.13a et 7.14a correspondent à des mesures en l'absence de tout gradient appliqué de champ magnétique alors que pour les figures 7.13b et 7.14b, un gradient vertical d'environ $4.10^{-7}T.cm^{-1}$ est maintenu pendant toute la durée de la précession libre. Le point le plus marquant issu de la comparaison de ces spectres est l'absence de modification notable des caractéristiques des modes principaux ; il s'agit là de spectres typiques obtenus tant que les gradients appliqués n'excèdent pas 20 à $30.10^{-7}T.cm^{-1}$, quelle que soit la direction dans laquelle ils s'exercent. Ces observations rassurent quant à l'effet des gradients de champ que nous ne pouvons pas contrôler. Elles s'interprètent à l'aide d'un argument que nous avons déjà mentionné : l'effet d'un gradient de champ est simplement de translater le fond du puits de potentiel dans lequel se trouvent

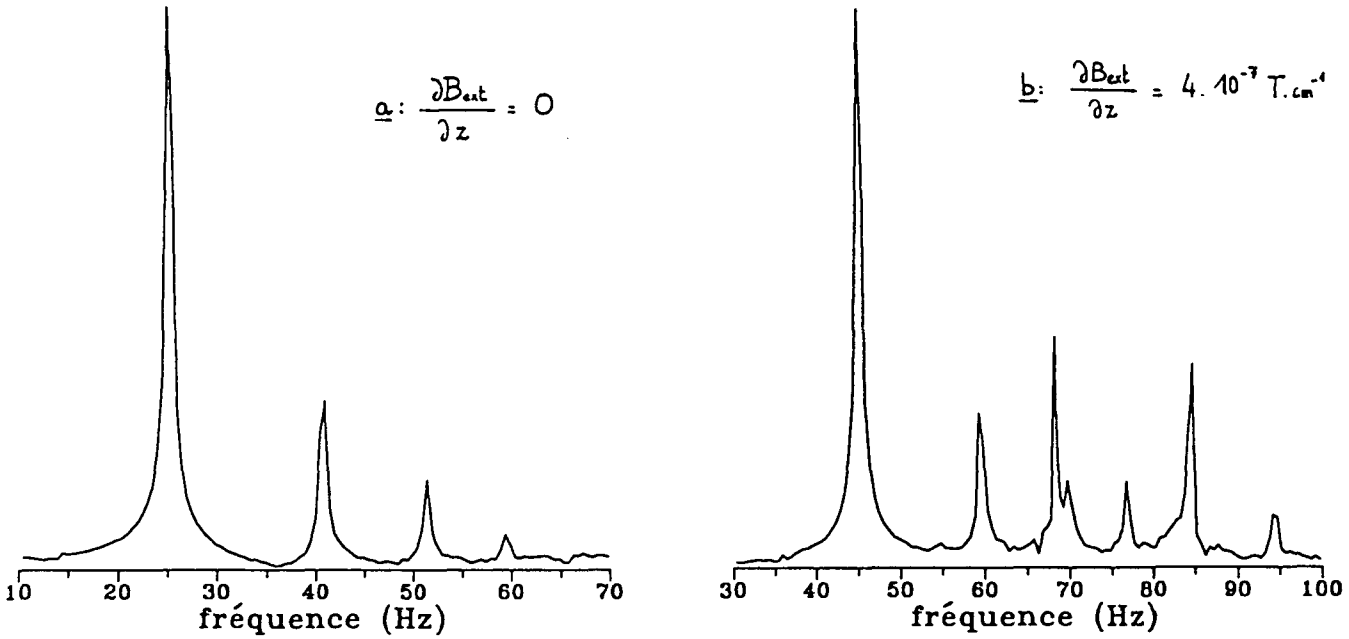


Figure 7.14: Influence de l'application d'un gradient vertical de champ magnétique sur le spectre en fréquence d'un signal de précession libre. Détail de la figure précédente représentant les modes localisés au sommet du tortillon circulaire. Sur la figure b, on voit apparaître en outre des modes localisés dans le fond du tortillon circulaire.

piégés les modes, ce qui n'apporte, tant que le gradient reste assez faible, aucune modification sensible. En revanche, lorsque le gradient est tel qu'il tend à translater les modes d'une distance de l'ordre de s_0, il ne peut plus être traité comme une simple perturbation des effets dipolaires, et c'est un traitement différent qu'il faudrait alors entreprendre. De fait, il apparaît expérimentalement que pour des gradients appliqués supérieurs à $30.10^{-7}T.cm^{-1}$, la structure du spectre en modes d'aimantation est complètement bouleversée et plus du tout reconnaissable.

7.5 Mesures des taux d'amortissement des modes d'aimantation.

Nous avons vu, dans la partie consacrée à l'analyse numérique des données, qu'un spectre tel que celui représenté sur la figure 7.7 peut être très bien décrit en supposant que le signal de précession libre est la somme de termes oscillants exponentiellement amortis (c'est-à-dire que

la fréquence de chacun des termes est un nombre complexe de la forme $\Omega_n + i\gamma_n$, Ω_n désignant la fréquence de précession du mode en question et γ_n son taux d'amortissement). Les modèles développés dans la partie II soulignent que différents processus peuvent influencer le taux d'amortissement d'un mode d'aimantation.

7.5.1 Mesure des effets du couplage au circuit de détection.

Nous avons tout d'abord réalisé dès mesures pour déterminer l'influence des effets du couplage entre l'aimantation transverse et le circuit de détection sur les temps de vie des modes d'aimantation.

Le taux supplémentaire d'amortissement de l'aimantation transverse, induit par le couplage à la paire de bobines détectrices, a été déterminé expérimentalement de la façon suivante : nous avons enregistré des signaux de précession libre que nous avons analysés à l'aide de la procédure de transformée de Fourier du module du signal temporel décrite plus haut, dans le but de quantifier le taux d'amortissement du mode fondamental. Ces signaux ont été détectés par le solénoïde local (dans des conditions données de résonance et de surtension), en accordant ou pas à la fréquence de Larmor le circuit électrique constitué de la paire de bobines détectrices (qui est simultanément présent, même s'il ne joue en l'occurrence aucun rôle de détection). Nous avons interprété les résultats en supposant que les processus d'amortissement de l'aimantation tranverse sont indépendants et que l'on peut par conséquent écrire que :

$$\frac{1}{\tau_{mesuré}} = \frac{1}{\tau_{diff}} + \frac{1}{\tau_{BD}} + \frac{1}{\tau_{Sol}}, \tag{7.11}$$

formule dans laquelle $1/\tau_{mesuré}$ désigne le taux d'amortissement du mode fondamental effectivement mesuré, $1/\tau_{diff}$ le taux d'amortissement intrinsèque du mode dû à la diffusion de spin et $1/\tau_{BD}$ et $1/\tau_{Sol}$ les taux supplémentaires d'amortissement du mode fondamental induits par le couplage de l'aimantation transverse respectivement à la paire de bobines détectrices (BD) et au solénoïde détecteur (Sol). Nous avons par ailleurs fait l'hypothèse que, lorsque les bobines détectrices ne sont pas accordées, la contribution $1/\tau_{BD}$ au taux d'amortissement mesuré peut être négligée. La simple mesure de la différence entre les taux d'amortissement du mode fondamental, mesurés à la résonance des bobines et hors de la résonance, permet de connaître la contribution $1/\tau_{BD}$. Celle-ci est estimée à $6.10^{-2}s^{-1}$, mesure qui est en bon accord avec le calcul mené dans le paragraphe 2.2.2 consacré à la description du dispositif RMN ($1/\tau_{BD,calculé} = 7.10^{-2}s^{-1}$).

Pour mesurer la contribution $1/\tau_{Sol}$, nous aurions pu adopter la même méthode. Nous avons cependant préféré mesurer $1/\tau_{Sol}$ en faisant varier la surtension Q du circuit électrique de détection tout en le maintenant à résonance. Cette mesure constitue une démonstration expérimentale plus pertinente de la formule 2.5 issue de la thèse de G. Tastevin. Il s'agit cette fois de mesurer le taux d'amortissement du mode fondamental lorsque la surtension Q du circuit constitué du solénoïde détecteur est volontairement abaissée, par l'ajout de résistances de quelques $k\Omega$ en parallèle avec le circuit. (Ces résistances, en augmentant les pertes, diminuent la surtension). Notons que pour cette nouvelle expérience, les bobines détectrices ne jouent absolument aucun rôle ; elles sont maintenues hors résonance. La figure

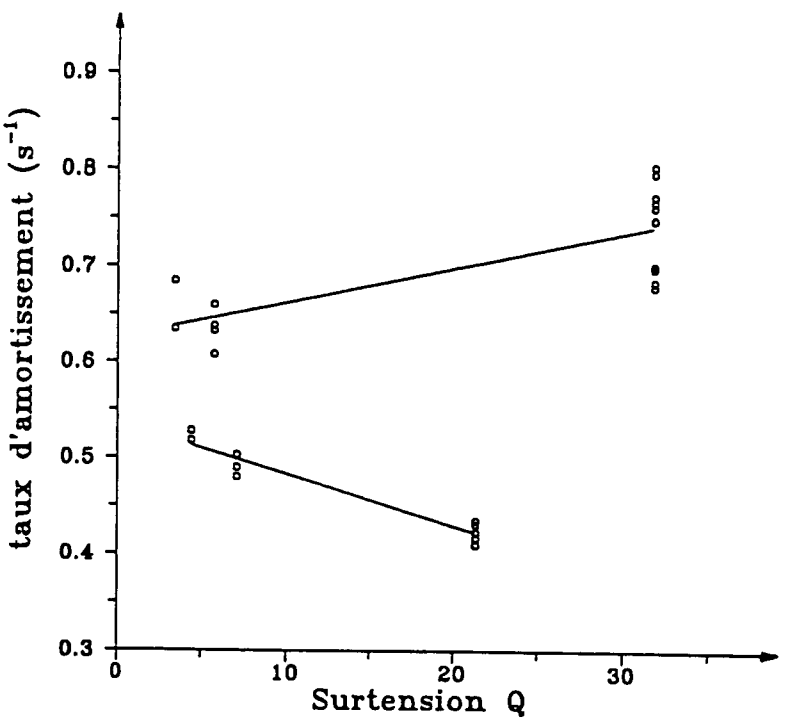


Figure 7.15: Mesure du taux d'amortissement du mode fondamental en fonction de la surtension Q du circuit de détection. Les deux familles de résultats, et les droites qui y sont ajustées, correspondent aux deux sens de la polarisation nucléaire pour lesquels le couplage induit un amortissement plus rapide ou, au contraire, réduit (sens dans lequel une instabilité maser serait observable).

7.15 montre les résultats obtenus pour le taux d'amortissement du mode fondamental en fonction de la surtension Q du circuit détecteur, pour les deux orientations possibles de la polarisation nucléaire. Dans chaque série de points expérimentaux, la polarisation nucléaire

est maintenue à une valeur donnée. On constate sur la figure 7.15 que, paradoxalement, les points expérimentaux sont plus dispersés lorsque la surtension est plus forte et que par conséquent la détection des modes d'aimantation est assurée dans les meilleures conditions de signal sur bruit. Nous avons vérifié qu'il ne s'agit pas d'une erreur systématique liée aux inévitables fluctuations de la polarisation nucléaire dans une série donnée (qui peuvent dépasser 10%), fluctuations qui engendrent à leur tour des fluctuations du taux d'amortissement intrinsèque, lié à la diffusion du mode fondamental (voir la dépendance du taux d'amortissement du mode fondamental en fonction de l'aimantation sur la figure 7.16, dépendance qui sera analysée ultérieurement). Sur la figure 7.15 sont également représentées les droites de régression linéaires obtenues pour chaque famille de points expérimentaux. Elles traduisent le fait que la contribution $1/\tau_{Sol}$ due au couplage entre l'aimantation transverse et le solénoïde détecteur est, comme prévu par le modèle de G. Tastevin [Tastevin 87], proportionnelle à la surtension Q du circuit. La valeur absolue de la pente moyenne mesurée est $3.10^{-3}s^{-1}$. Elle correspond de manière assez satisfaisante à l'estimation numérique que nous en avons faite dans le chapitre consacré au dispositif RMN : la valeur de la pente que nous avons trouvée alors pour une solution liquide d'hélium 3 dans l'hélium 4 dont la concentration en hélium 3 est d'environ 15% et la polarisation nucléaire d'environ 40%, est, en application de la formule $\alpha\beta\mathcal{M}_0/4L$, de 2.1 $10^{-3}s^{-1}$.

Pour l'ensemble des résultats reportés dans la suite, la détection de l'aimantation transverse a été assurée par le solénoïde détecteur à une fréquence d'environ $85kHz$ pour laquelle la surtension du circuit est de l'ordre de 30. Dans ces conditions et pour une solution liquide d'hélium 3 dans l'hélium 4 de concentration en hélium 3 15% et de polarisation nucléaire 40%, la contribution $1/\tau_{Sol}$ est de l'ordre de $0.13s^{-1}$.

7.5.2 Mesure des taux d'amortissement des deux premiers modes d'aimantation.

Désormais capables d'extraire la seule contribution de la diffusion de spin de la mesure des taux d'amortissement des modes d'aimantation, nous avons utilisé les expériences de décroissance progressive de l'aimantation $\mathcal{M}_z$ (déjà décrites dans la partie consacrée à l'interprétation quantitative des déplacements en fréquence des spectres RMN) réalisées pour les trois séries de conditions expérimentales déjà mentionnées. Rappelons que les spectres des signaux enregistrés durant la décroissance forcée de l'aimantation ont déjà été utilisés pour

réaliser la figure 7.11. Les taux d'amortissement γ_0 et γ_2 des deux premiers modes d'aiman-

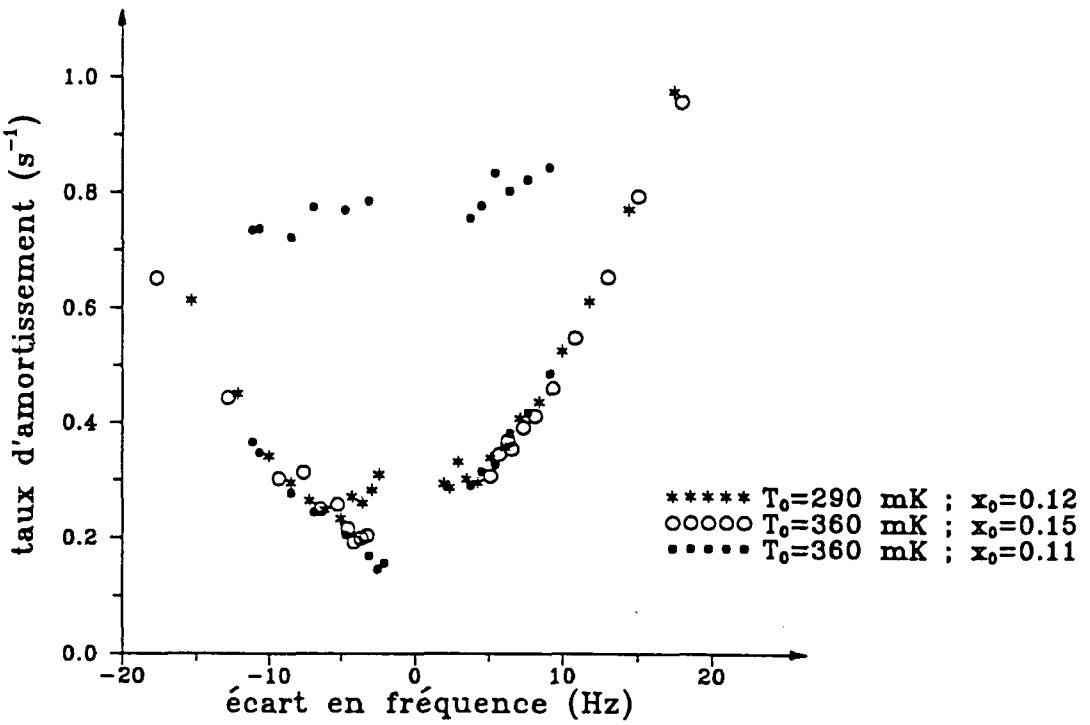


Figure 7.16: Mesure des taux d'amortissement du mode fondamental (valeurs inférieures, pour les trois séries de mesures) et du premier mode excité pair (valeurs supérieures, ici portées pour une seule série de mesures) d'aimantation en fonction de l'écart en fréquence de ces deux modes principaux.

tation (ceux qui précessent le plus longtemps) sont portés sur la figure 7.16 en fonction de la différence $\Omega_0 - \Omega_2$ des fréquences propres de précession de ces modes. Nous avons vu que cette différence est proportionnelle à l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$; elle n'est pas affectée par les fluctuations résiduelles de la fréquence de Larmor. Les mesures des taux d'amortissement sont presque identiques pour les trois séries de conditions de température et de concentration en hélium 3 que nous avons étudiées. La variation du taux d'amortissement du mode fondamental en fonction de l'aimantation longitudinale $\mathcal{M}_z$ est assez marquée et presque parabolique. La partie impaire des variations des taux d'amortissement est compatible, aussi bien pour γ_0 que pour γ_2, avec la contribution $1/\tau_{Sol}$ (qui est proportionnelle à $\mathcal{M}_z$) : ceci signifie que, si l'on élimine l'effet du couplage au circuit de détection, les taux d'amortissement mesurés ne sont pas sensibles à l'orientation de la polarisation nucléaire.

De plus, le taux d'amortissement γ_2 du premier mode excité pair d'aimantation (qui n'est représenté sur la figure 7.16 que pour un seul jeu de température et de concentration) a une dépendance bien moins accentuée en fonction de la polarisation nucléaire, et, de ce fait, le rapport γ_2/γ_0 varie de manière significative avec la polarisation nucléaire.

Ces résultats contrastent très nettement avec ceux des modèles présentés dans la partie II. Rappelons en effet que, dans le cadre du modèle quantitatif du cylindre tangent, il est prévu que les taux d'amortissement des modes d'aimantation sont simplement proportionnels au coefficient de diffusion de spin D avec seulement une petite correction (provenant d'un calcul en perturbation au second ordre) proportionnelle à $1/|\mathcal{M}_z|^2$. Le coefficient D, qui dépend à la fois de la température et de la concentration en hélium 3, a été extrapolé à partir des données de la référence [Anderson 66]. Pour les trois séries de mesure de la figure 7.16, les taux d'amortissement calculés pour le mode fondamental sont respectivement $\gamma_{0,cal} = 0.05s^{-1}$, $0.033s^{-1}$ et $0.044s^{-1}$, tandis que $\gamma_{2,cal}/\gamma_{0,cal} = 6.3$. Si l'ordre de grandeur des taux d'amortissement mesurés ($\gamma_{0,mes} = 0.25s^{-1}$ et $\gamma_{2,mes} = 0.7s^{-1}$ pour de faibles valeurs de la polarisation nucléaire) est raisonnable en comparaison des valeurs que nous avons calculées, nous ne trouvons cependant pas l'accord quantitatif cherché entre nos calculs et les résultats de la figure 7.16 ; l'amortissement que nous mesurons est toujours plus fort que celui que nous calculons. En ce qui concerne le rapport γ_2/γ_0, les modèles développés dans la partie II prédisent qu'il est à la fois indépendant de la polarisation nucléaire et du coefficient de diffusion de spin D.

Ces dernières observations constituent autant de démentis indiscutables apportés au modèle quantitatif de la deuxième partie. Elles révèlent probablement les limites de ce modèle à une dimension. Il est vrai que dans le genre de situations que nous rencontrons, où les modes d'aimantation ont une extension spatiale égale à quelques fois le rayon intérieur du tube a, des variations relativement importantes de l'aimantation transverse surviennent de fait sur des distances de l'ordre de a. Négliger toute variation sur une section perpendiculaire à l'axe du tube (et par conséquent négliger tout amortissement supplémentaire résultant de la diffusion de spin dans ces directions transversales) est donc sans aucun doute une hypothèse trop brutale.

Chapitre 8

Caractérisation thermodynamique des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4.

8.1 Observation de la séparation de phase dans des mélanges polarisés.

8.1.1 Détection RMN de la séparation de phase.

Les expériences dont il est question dans ce chapître ont toutes été réalisées sur l'échantillon liquide contenu dans la cellule $n^0 2$. Nous verrons que la température T_0 de la partie la plus froide de la cellule d'étude ainsi que la concentration en hélium 3 x_0 dans cette zone, sont deux paramètres expérimentaux que l'on peut, dans une large mesure, faire varier indépendamment (voir le paragraphe 8.1.3). Il est bien connu que dans un mélange liquide d'hélium 3 dans l'hélium 4 porté à une température T_0, la concentration en hélium 3 x_0, ne peut être augmentée indéfiniment ; en effet, il arrive un point où une séparation de phase survient dans le liquide, produisant une solution très riche en hélium 3, qui flotte, parce qu'elle est plus légère, au dessus d'une solution diluée d'hélium 3 dans l'hélium 4. A partir de cette concentration x_0 de démixion, un apport supplémentaire d'atomes d'hélium 3 ne résulte qu'en un

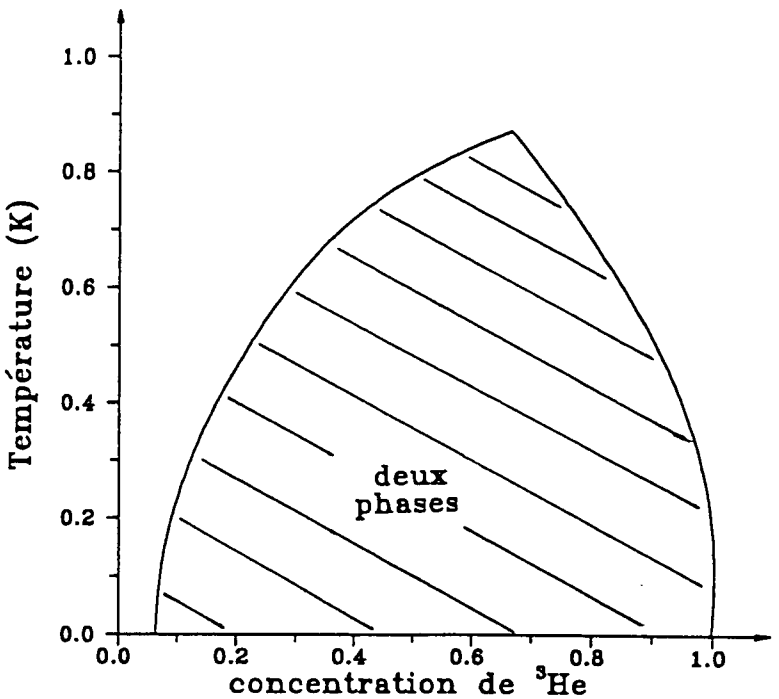


Figure 8.1: Diagramme de phase des mélanges ^{3}He-^{4}He, d'après [Ifft 67] pour $T < 0.4K$ et [Kierstead 76] pour $T > 0.4K$.

accroissement de la phase riche en hélium 3. Le diagramme classique donnant la dépendance en température des concentrations des deux phases qui peuvent coexister est représenté sur la figure 8.1.

Dans une première génération d'expériences, nous avons observé la transition de phase dans un mélange liquide polarisé à environ 20%, à une température de l'ordre de $500mK$ [Nacher 95]. Pour ces premières expériences, la circulation d'atomes d'hélium 3 était interrompue. Nous avons depuis amélioré les conditions de thermalisation de la cellule et pouvons provoquer la séparation de phase dans un mélange liquide à une température comprise entre 250 et $500mK$. Cette séparation de phase peut être obtenue sans interrompre la circulation des atomes d'hélium 3 dans une solution dont la polarisation nucléaire peut, avant séparation, atteindre 50%. La figure 8.2 met en évidence l'influence de la séparation de phase sur les spectres en transformée de Fourier de signaux de précession libre. Ces trois spectres correspondent, de haut en bas, à des signaux de précession libre qui ont été enregistrés avec le solénoïde détecteur pour des concentrations en hélium 3 croissantes, tous à la même tem-

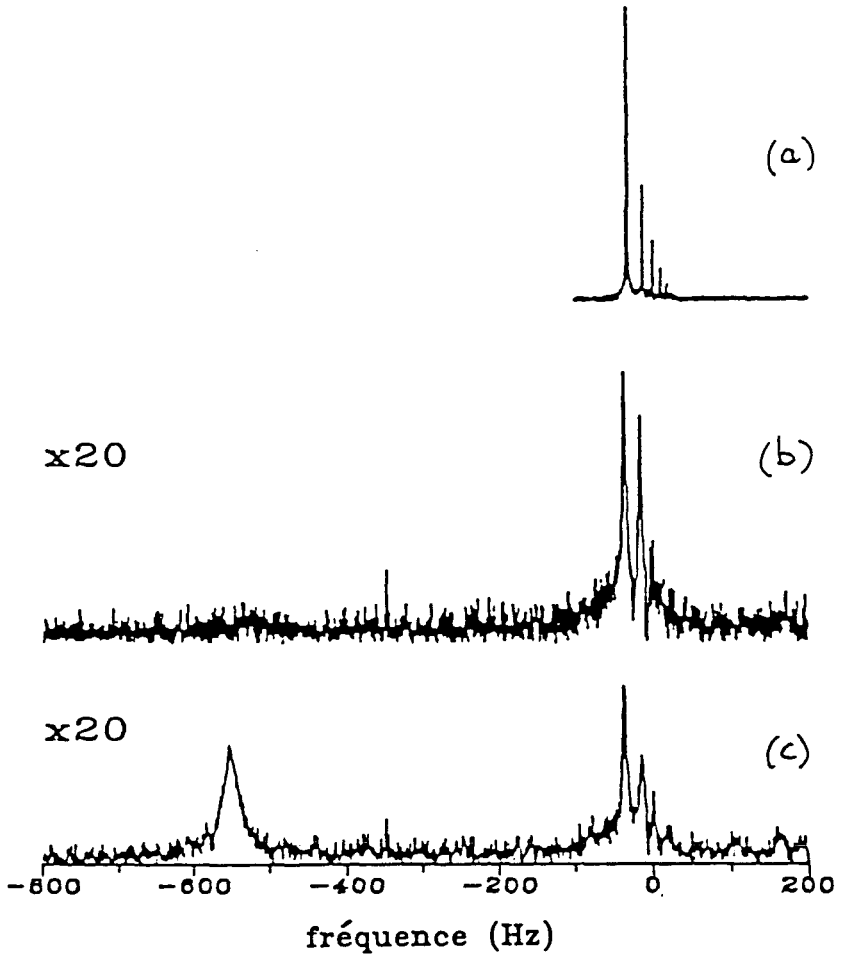


Figure 8.2: Spectres RMN obtenus à la température de 290mK. De haut en bas, une augmentation de la température de l'interface est utilisée pour accroître la concentration en ^{3}He au point le plus froid de la cellule jusqu'à ce que survienne la séparation de phase.

pérature T_0 de $290mK$. Pour la plus basse concentration en hélium 3 (spectre de la figure 8.2a), on obtient un spectre très similaire à celui de la figure 7.7. Pour une concentration plus grande en hélium 3, le taux d'amortissement des modes localisés dans le sommet du tortillon circulaire augmente considérablement (spectre de la figure 8.2b). Au fur et à mesure que la concentration en hélium 3 augmente dans le sommet du tortillon circulaire, la structure originelle en modes étroits et bien séparés s'estompe peu à peu et disparaît presque (noter le changement d'échelle verticale sur la figure 8.2) alors que simultanément apparaît une raie plus large et beaucoup plus déplacée par rapport à la fréquence de Larmor (figure 8.2c). L'aire sous cette raie est comparable à celle qui subsiste pour l'ensemble de la structure la

moins déplacée.

On peut utiliser le déplacement en fréquence de cette nouvelle raie pour déterminer un ordre de grandeur de l'aimantation que détecte le solénoïde. Sachant que pour des modes localisés dans une partie horizontale du tube, l'échelle du déplacement de fréquence est donnée par la grandeur

$$\Delta = \frac{\gamma \mu_0 \mathcal{M}_z}{4}, \tag{8.1}$$

un aussi grand déplacement de fréquence signale que la densité d'aimantation est nécessairement importante. Ceci impose des bornes inférieures à la concentration en hélium 3 (30% pour une polarisation nucléaire de 100%) et à la polarisation nucléaire (37% pour une concentration de 100%). Puisqu'à la température T_0 de $290mK$ considérée, la concentration maximale en hélium 3 de la solution diluée est de l'ordre de 12% (voir la figure 8.1 ; il s'agit ici d'une valeur déterminée en extrapolant les mesures réalisées par Edwards et al. [Ifft 67] sur des mélanges d'hélium 3 dans l'hélium 4 *non* polarisés), une phase riche en hélium 3 est nécessairement présente dans le sommet du tortillon circulaire, attestant de la séparation de phase La concentration de cette phase étant proche de 100%, sa polarisation nucleaire peut a priori être estimée à 40% environ d'aprés les ordres de grandeur que nous venons de donner. Le poids respectif des raies pourrait être utilisé pour déterminer la fraction d'atomes d'hélium 3 dans chaque phase (en gardant cependant à l'esprit que les polarisations nucléaires dans les deux phases peuvent être différentes en raison, d'une part, des différences de susceptibilité magnétique entre les deux phases et, d'autre part, de l'existence, dans la phase riche en hélium 3, de processus de relaxation de l'aimantation beaucoup plus efficaces).

Le modèle quantitatif de la deuxième partie peut, une nouvelle fois, être utilisé pour calculer les modes d'aimantation (leurs déplacements en fréquence par rapport à la fréquence de Larmor et leurs taux d'amortissement) dans un tube rempli, en partie, d'une phase riche en hélium 3 fortement aimantée et, pour le reste, d'une solution diluée. Dans les simulations numériques que nous avons réalisées, la phase riche en hélium 3 est censée occuper le tiers supérieur du tortillon circulaire ($|s| \leq s_0/3$), région dans laquelle l'aimantation est, dans cet exemple, supposée quatre fois supérieure à ce qu'elle est ailleurs ($s_0/3 < |s| < s_0$). La variation d'aimantation entre la phase riche en hélium 3 et la phase diluée est en marche d'escalier. La figure 8.3 représente un spectre en transformée de Fourier calculé dans de telles conditions. Le pic à l'extrême droite du spectre correspond au mode fondamental

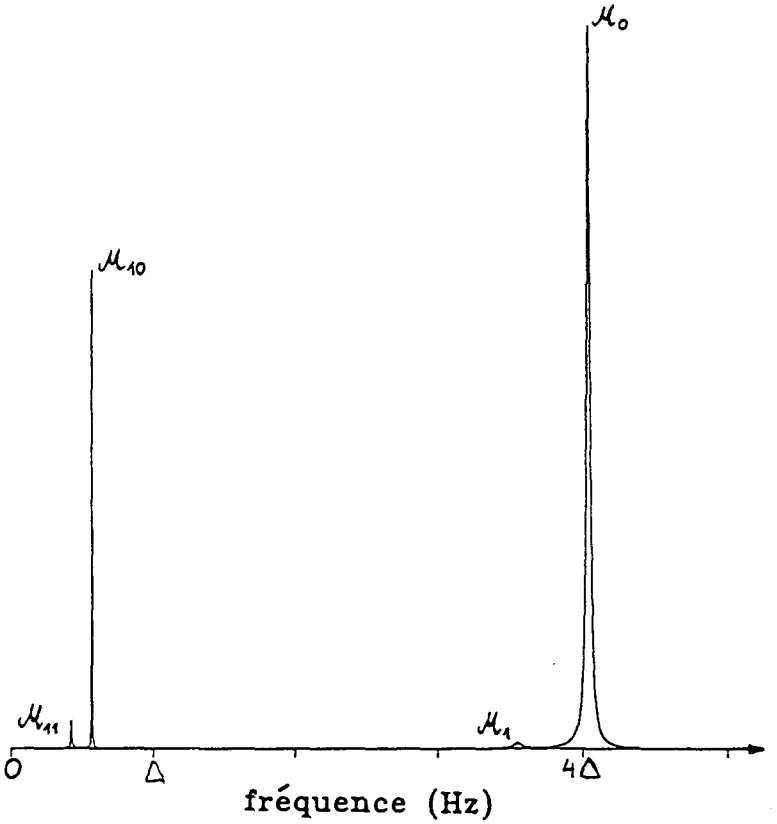


Figure 8.3: Amplitude calculée (en unités arbitraires) de la transformée de Fourier d'un signal de précession libre dans le cas d'un mélange démixé.

d'aimantation confiné dans la région de forte aimantation ; son déplacement en fréquence est de l'ordre de 4Δ (Δ caractérise le déplacement qui aurait lieu dans une phase diluée homogène). Il convient de noter que les modes localisés dans la région de la solution diluée ont un déplacement en fréquence inférieur à celui représenté sur le spectre calculé de la figure 5.14 ; ceci ne peut s'interpréter qu'en disant que ce sont des modes beaucoup plus excités qui sont localisés dans cette région. La figure 8.4 atteste du bien-fondé de cette interprétation : les dix premiers modes d'aimantation sont confinés dans la partie fortement aimantée et ce n'est qu'à partir du onzième qu'ils pénètrent dans la solution diluée. Les résultats de ces calculs constituent une interprétation satisfaisante des spectres expérimentaux. Néanmoins, une fois encore, les taux d'amortissement calculés ne correspondent pas de manière quantitative avec les largeurs de pics mesurées.

Une fois la séparation de phase réalisée, l'amplitude de la raie large et très déplacée décroît de manière exponentielle en un temps caractéristique de l'ordre de 20 minutes. Nous attri-

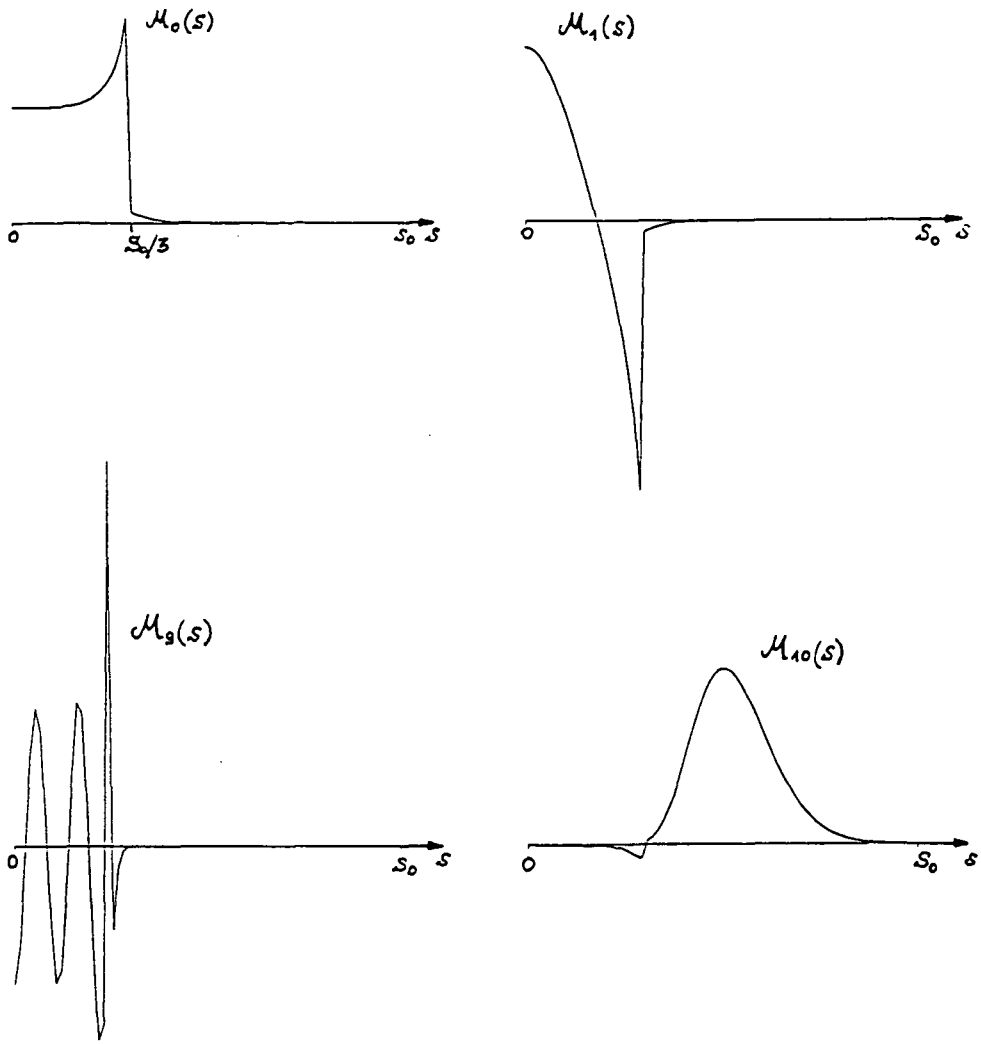


Figure 8.4: Amplitude calculée (en unités arbitraires) des quelques premiers modes significatifs d'aimantation dans le cas d'un mélange démixé.

buons cette relaxation plus rapide à des processus de relaxation intrinsèques à la phase riche en hélium 3, tels que la relaxation dipôle-dipôle, qui contribuent à une décroissance moyenne de l'aimantation sur tout l'échantillon plus rapide que dans une solution diluée homogène. Cependant, si une circulation d'atomes d'hélium 3 à travers le volume de pompage optique est maintenue à un taux suffisamment rapide, une polarisation nucléaire d'environ 20% peut être entretenue, en régime stationnaire, dans une solution liquide démixée d'hélium 3 dans l'hélium 4.

8.1.2 Contrôle thermique de la séparation de phase.

L'ensemble des situations expérimentales que nous avons pu rencontrer peut être discuté de manière très commode en termes des températures qui contrôlent la distribution des atomes d'hélium 3 dans le liquide. De manière schématique, seules les températures T_0 (température de la zone froide de la cellule d'étude) et T_i (température moyenne aux deux interfaces liquide-vapeur) (voir la partie 1.4 consacrée aux doubles cellules) constituent des paramètres pertinents. En particulier, nous ne considérons pas ici la petite différence de température ($\sim 50mK$) entre les deux interfaces qui, par ailleurs, nous le savons, joue un rôle déterminant dans la circulation des atomes d'hélium 3. Les triangles pleins de la figure 8.5 indiquent pour différentes températures de l'interface T_i, la plus basse température T_0 que peut atteindre le liquide. Celle-ci ne peut être rendue inférieure à $180mK$; c'est bien supérieur à la température

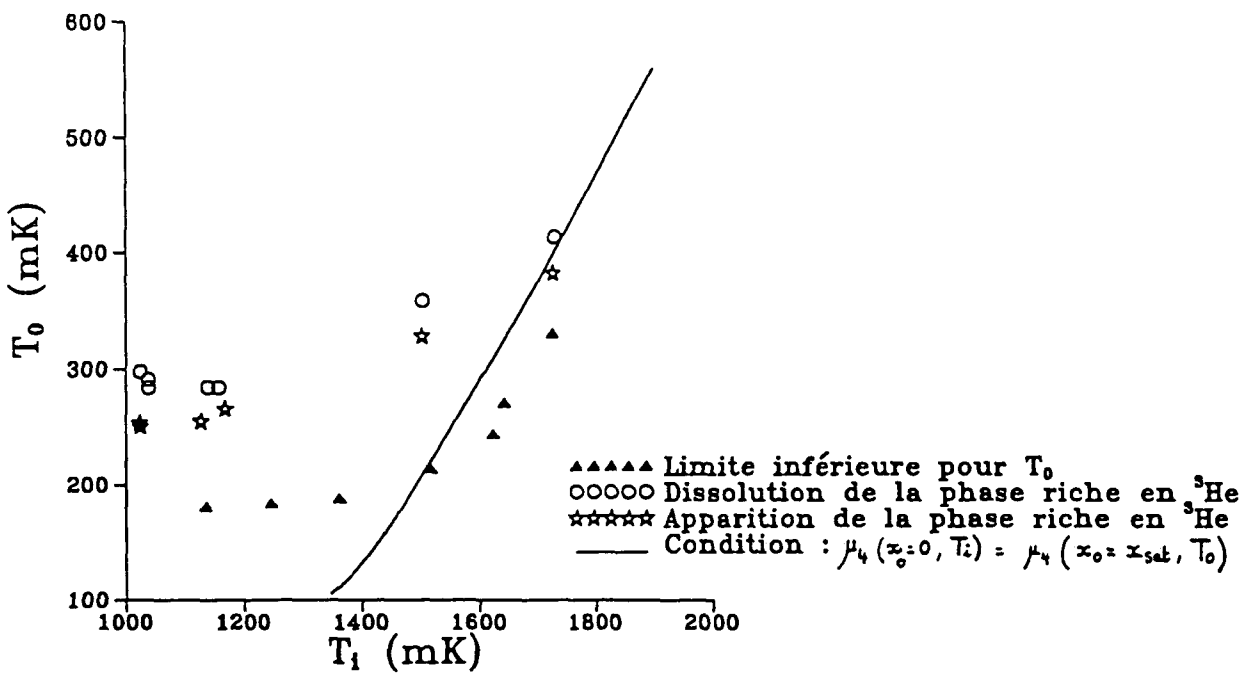


Figure 8.5: Observation de différents phénomènes dans la cellule pour des combinaisons différentes de la température T_0 du point le plus froid de la cellule et de la température moyenne T_i de l'interface.

de base du réfrigérateur à dilution (qui est de l'ordre de $40mK$) mais nous avons déjà dit que ce sont des problèmes liés aux mauvais contacts thermiques à travers le verre qui limitent la température de l'échantillon.

Quand on augmente suffisamment la température de l'interface (jusqu'à ce que T_i atteigne des températures de l'ordre de $1.5K$), les atomes d'hélium 3 sont entièrement chassés de cette région, où ne subsiste plus que de l'hélium 4 pur liquide. Nous avons déjà mentionné que comme le mélange liquide est partout superfluide, le potentiel chimique de l'hélium 4 est uniforme dans tout le liquide. Il est alors déterminé par la simple donnée de la température T_i. Son uniformité, qui se traduit par la relation

$$\mu_4(T_i, x_0 = 0) = \mu_4(T_0, x_0 = x_{sat}) \tag{8.2}$$

(où x_{sat} désigne la concentration en hélium 3 de la phase diluée le long de la courbe de séparation de phase), impose alors une relation entre la température T_0 et la concentration x_0 dans la zone la plus froide de la cellule d'étude. Comme x_0 ne peut excéder dans ce mélange une valeur déterminée au-delà de laquelle survient la séparation de phase, la température T_0 est contrainte à ne pas descendre en-dessous d'une température minimale limite. Dans des mélanges non polarisés, cette température limite a été mesurée avec une grande précision en-dessous de $200mK$ [Ghozlan 79]. Nous avons étendu, dans une expérience indépendante dont les résultats font l'objet d'une analyse spécifique et détaillée au paragraphe 8.2, ces mesures à la gamme de températures T_0 comprises entre 100 et $800mK$. Les résultats correspondant sont figurés par la ligne en trait plein de la figure 8.5. Dans cette figure, les points figurés par des triangles et qui sont à droite de la ligne sont donc nécessairement inexacts; nous pensons que la mesure de la température T_i des interfaces, qui est faite à l'extérieur du tube qui contient l'échantillon et au voisinage des dispositifs de chauffage des interfaces, est en fait surestimée. En revanche, les erreurs sur la mesure de T_0 sont sans doute bien plus faibles (quelques mK) compte tenu de la façon dont la thermalisation et la mesure de température sont faites.

Les cercles ouverts ainsi que les étoiles de la figure 8.5 correspondent aux conditions de température dans lesquelles se produit la transition de phase (celle-ci est observée par RMN comme nous l'avons décrit précédemment). La disparition de la phase riche en hélium 3, qui conduit à la re-homogénéisation du mélange liquide, est symbolisée par les cercles de la figure 8.5 ; elle est obtenue soit en augmentant la température T_0 de la zone la plus froide de la cellule d'étude, soit en diminuant la température T_i des interfaces liquide-vapeur, ce qui provoque un relâchement de l'effet "heatflush" et une diminution de la concentration x_0 au sommet du tortillon circulaire. La démixion (symbolisée par les étoiles de la figure 8.5) est

obtenue, quant à elle, par les changements de température inverses de ceux que nous venons de décrire.

Une hystérésis marquée semble accompagner la séparation de phase du mélange liquide d'hélium 3 dans l'hélium 4. A notre avis, ce sont les cercles ouverts (re-homogénéisation) qui sont caractéristiques des conditions de température de la séparation de phase. Nous attribuons en effet l'hystérésis à la difficulté de nucléer, lorsque la température T_0 diminue, la première goutte de la solution très riche en hélium 3. Jusqu'à présent, les études préliminaires que nous avons pu mener sur la séparation de phase ne mettent en évidence aucun effet systématique de la polarisation nucléaire sur la séparation de phase.

8.1.3 Contrôle des conditions expérimentales.

Nous avons mis à profit le fait de pouvoir détecter avec une bonne précision la séparation de phase dans les mélanges liquides pour quantifier la concentration en hélium 3 x_0, au sommet du tortillon circulaire. En ce sens, les séries de mesure notées $n^0 1$ et $n^0 2$ (voir le paragraphe 7.3.1) sont effectuées sur des solutions liquides saturantes c'est-à-dire à la limite de la séparation de phase pour la température T_0 considérée. Les chiffres que nous avançons pour la concentration x_0, correspondant aux températures T_0 de 290 et $360mK$, sont issus des mesures de Edwards et al. [Ifft 67] sur des solutions *non* polarisées ; ces concentrations valent respectivement 12 et 15%. Nous négligeons ce faisant la faible dépendance escomptée de la concentration saturante en fonction de la polarisation nucléaire ; celle-ci n'est d'ailleurs estimée que dans des situations fort différentes [Rodrigues]. La série de mesures $n^0 3$ correspond, comme la série $n^0 2$, à une température T_0 de $360mK$. L'abaissement quantitatif de la concentration en hélium 3 de la solution au sommet du tortillon circulaire est obtenu par une diminution brutale de la température T_i de l'interface, accompagné d'un suivi par RMN du déplacement de la fréquence du mode fondamental par rapport à la fréquence de Larmor. Ce déplacement, comme le prédisent les modèles de la deuxième partie, est proportionnel à l'aimantation transverse détectée, c'est-à-dire au produit de la concentration en hélium 3 x_0 et du taux de polarisation nucléaire. La température T_0 ainsi que les conditions du pompage optique étant inchangées pendant l'opération, la simple mesure du rapport des déplacements en fréquence du mode fondamental, avant et après la "détente", permet de dire de combien la concentration de la solution a été diminuée par rapport à la solution saturante. C'est ainsi que nous avançons le chiffre de 11% pour la concentration x_0 lors de la série de mesures $n^0 3$.

8.2 Mesure du potentiel chimique de l'hélium 4 dans des mélanges *non* polarisés.

8.2.1 Introduction.

L'un des objectifs importants de l'étude des solutions polarisées d'hélium 3 dans l'hélium 4 est la mesure des modifications de leurs propriétés thermodynamiques sous l'effet d'une forte polarisation nucléaire. Diverses méthodes permettent, de manière plus ou moins directe, de mesurer le potentiel chimique μ_4 de l'hélium 4 dans les solutions. Il s'agit, dans les solutions assez froides et diluées pour être superfuides, d'une grandeur particulièrement intéressante à mesurer compte tenu de sa nécessaire uniformité. Laissant de côté les mesures calorimétriques, délicates dans le cas des mélanges isotopiques (qui ont une très mauvaise conductivité thermique), citons trois méthodes usuelles de mesures:

1. les mesures de pression osmotique, pour lesquelles un manomètre différentiel permet de mesurer, à basse température, la pression osmotique de l'hélium 3 par référence avec un bain d'hélium 4 pur. Les deux liquides sont à la même température, et sont connectés par une "superfuite" afin d'être au même potentiel chimique μ_4. Pour une expérience effectuée à une température T, avec une concentration x en hélium 3, et à une pression extérieure P, on mesure une pression osmotique Π_{osm} telle que :

$$\mu_4^0(P,T) = \mu_4(P + \Pi_{osm}, T, x) \tag{8.3}$$

où μ_4^0 désigne le potentiel chimique de l'hélium 4 pur. Utilisant la relation

$$\left.\frac{\partial \mu_4}{\partial P}\right|_{T,x} = V_4(P,T,x) \tag{8.4}$$

qui fait intervenir le volume molaire de l'hélium 4 dans le liquide, la mesure de la pression osmotique permet de déterminer le potentiel chimique μ_4 à partir des quantités bien connues μ_4^0 et V_4 puisque :

$$\mu_4(P,T,x) = \mu_4^0(P,T) - \Pi_{osm} V_4$$

Cette méthode a été utilisée par plusieurs auteurs, qui ont caractérisé les solutions à basse température ($T \leq 200mK$) et/ou faible concentration en hélium 3 (quelques pour cent) [Landau 69][Landau 70][Wilson 70]. Tout récemment, l'effet d'une polarisation

nucléaire M sur la pression osmotique a été mis en évidence [Rodrigues]. Il s'agit dans ce dernier cas de mesures ayant le même objectif que les nôtres, mais effectuées dans des conditions très différentes ($T \sim 10mK$, $P \sim 10 - 16\ atm$, $M \leq 15\%$).

2. les mesures utilisant l'effet "heat-flush", initialement introduites par London [London 68], et depuis régulièrement utilisées [Ghozlan 79][Klundert 77][Cornut 93]. Pour ces mesures, la situation expérimentale est comparable à celle rencontrée dans les cellules décrites dans le paragraphe 1.4 : au sein d'un mélange superfluide (de potentiel chimique μ_4 uniforme), un courant de chaleur maintient une différence de température, et donc de concentration, entre différentes parties du liquide. Si le chauffage est suffisant, la partie la plus chaude contient de l'hélium 4 quasi-pur et atteint une température, notée T_{pur}, qui suffit à déterminer le potentiel chimique de la solution, $\mu_4 = \mu_4^0(P, T_{pur})$.

3. les mesures de pression de vapeur saturante ; à l'équilibre liquide-vapeur, les potentiels chimiques sont égaux pour toutes les phases, et la mesure de la pression et de la composition isotopique de la vapeur suffit, en principe, à déterminer les potentiels chimiques μ_3 et μ_4 de la phase liquide. Bien que séduisante, cette méthode présente plusieurs inconvénients ; elle ne s'applique évidemment qu'au liquide non pressurisé ($P = P_{sat}$), et aux températures assez élevées pour que la pression de vapeur saturante P_{sat} soit mesurable ($T \geq 0.3$ à $0.8K$ suivant la concentration en hélium 3). Enfin, la mesure précise de la composition de la vapeur en présence d'un film superfluide est très délicate à cause des effets importants du reflux de vapeur (effet HEVAC, voir le paragraphe 1.4.7 et [Nacher 94]).

La seconde technique est la plus simple à mettre en oeuvre dans nos cellules contenant des solutions polarisées, même si pour l'instant leurs caractéristiques géométriques n'ont pas été adaptées à une mesure précise des températures du liquide. Nous décrivons dans la suite une expérience préliminaire, effectuée dans un dispositif annexe, qui a un double objectif :

- mesurer le potentiel chimique $\mu_4(P, T, x)$ dans un domaine de températures ($T \geq 0.2K$) où très peu de données existent pour des concentrations importantes, et où sont effectuées nos expériences sur les solutions polarisées ;

- tester la résolution et la précision que permet d'obtenir cette méthode, afin d'évaluer si les effets d'une forte polarisation nucléaire seront aisément observables.

8.2.2 Montage expérimental.

Afin de restreindre l'étendue des mesures à effectuer et de pouvoir comparer nos résultats à ceux de [Ghozlan 79] et [Klundert 77], nous avons principalement travaillé avec une proportion suffisante d'hélium 3 pour que coexistent une phase diluée superfluide et une phase concentrée, riche en hélium 3. Outre son intérêt particulier, cette situation a l'avantage de relier de façon univoque la concentration x de la phase diluée et sa température T_0, du moins à pression P donnée. Les mesures dont les résultats seront donnés plus loin, ont été faites sur un mélange contenu dans une cellule métallique, représentée sur la figure 8.6. Insistons sur le fait que l'hélium contenu dans cette cellule annexe n'est jamais soumis au pompage optique, et que sa polarisation nucléaire peut être considérée comme nulle dans le très faible champ magnétique où nous opérons (dans le champ terrestre présent lors de ces expériences, $M \sim 10^{-7}$).

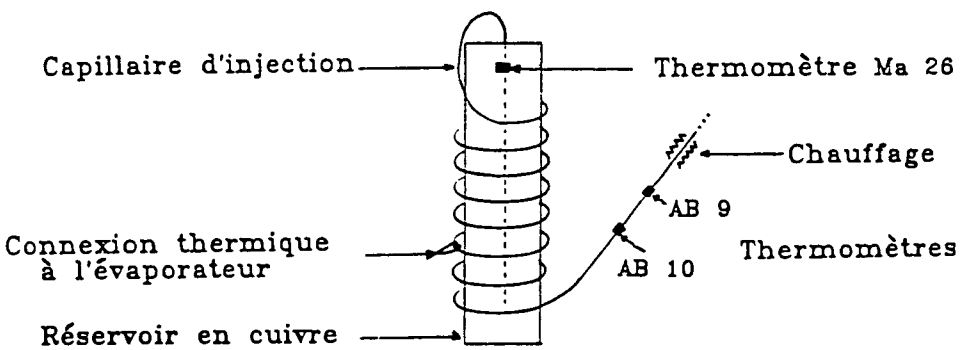


Figure 8.6: Schéma du dispositif de mesure du potentiel chimique μ_4 par la méthode de London. Un chauffage porte l'extrémité du tube en hélice à une température T_{pur}, où de l'hélium 4 pur est en équilibre de pression et de potentiel chimique avec le mélange contenu dans le réservoir en cuivre. Ce dernier, à la température T_0, est en général constitué de deux phases à coexistence. La cellule est placé à l'intérieur d'un écran froid (à T_0), qui la protège des sources parasites de chaleur.

La cellule comporte un réservoir cylindrique en cuivre, thermiquement connecté à la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution ; son volume est assez grand pour que les effets de tension interfaciale soient négligeables. La température T_0 du liquide n'est pas directe-

ment mesurée, mais celle du réservoir est indiquée par une résistance Matsushita (Ma26, voir le paragraphe 1.3.2). Un tube capillaire en cupro-nickel (diamètres 0.7/0.4 mm), d'une longueur de 50 cm environ, connecte l'intérieur du réservoir à une ligne d'injection qui sert au remplissage de la cellule avec du mélange isotopique prélevé sur le circuit du réfrigérateur (cette ligne est thermiquement ancrée sur le pot à 1K et sur l'évaporateur, afin de limiter le flux de chaleur arrivant sur la cellule d'expérience).

Le tube capillaire est enroulé en hélice afin de rendre la cellule aussi compacte que possible (voir la figure 8.6) ; les différences de pression hydrostatique entre les différentes régions de la cellule pourront ainsi être négligées. Attaché au tube capillaire en un point distant d'environ 40 cm du réservoir, un chauffage permet de chasser l'hélium 3 vers les régions plus froides. Deux thermomètres (des résistances Allen-Bradley de valeur nominale 22Ω, AB9 et AB10, voir le paragraphe 1.3.2) permettent de mesurer la température du tube capillaire à 1 et 2 cm de ce chauffage. Les distances entre ces éléments étant très supérieures à l'épaisseur de la paroi, on admettra que les températures mesurées sont celles du liquide à leur niveau. Nous avons vérifié que dès que le chauffage est suffisant (quelques μW), les deux températures sont égales (à un ou deux mK près, correspondant aux erreurs de calibration des thermomètres). Cette température commune ne dépend que très peu du chauffage appliqué (cela est visible sur la figure 8.8). L'absence de différence de température est révélatrice de l'absence d'hélium 3 dans cette région (seul l'hélium 4 quasi pur a une très bonne conductivité thermique), et nous appellerons dans la suite T_{pur} cette température commune.

Nous avons placé une connexion thermique vers l'évaporateur au tiers de la distance entre le chauffage et le réservoir. Elle permet de fixer à environ $0.8K$ la température de ce point, et donc d'imposer un courant de chaleur constant (et faible) vers le réservoir froid, indépendamment du chauffage appliqué pour atteindre une température T_{pur} à l'extrémité du tube capillaire. Prenant en compte les divers paramètres du système (contrainte d'uniformité de μ_4, conductivité thermique des solutions et des matériaux [Cornut 93]) on peut calculer numériquement la variation de la concentration en hélium 3 et de la température le long du tube capillaire. La figure 8.7 représente des résultats de ce calcul pour des courants de chaleur égaux à $100nW$ (courbes pointillées) et $1\mu W$ (traits continus). Ce dernier cas représente un régime typique de fonctionnement en "μ_4-mètre", et l'on peut déduire que l'ancrage thermique vers l'évaporateur (à $0.8K$) limite à $100nW$ la puissance parvenant au

réservoir de liquide froid.

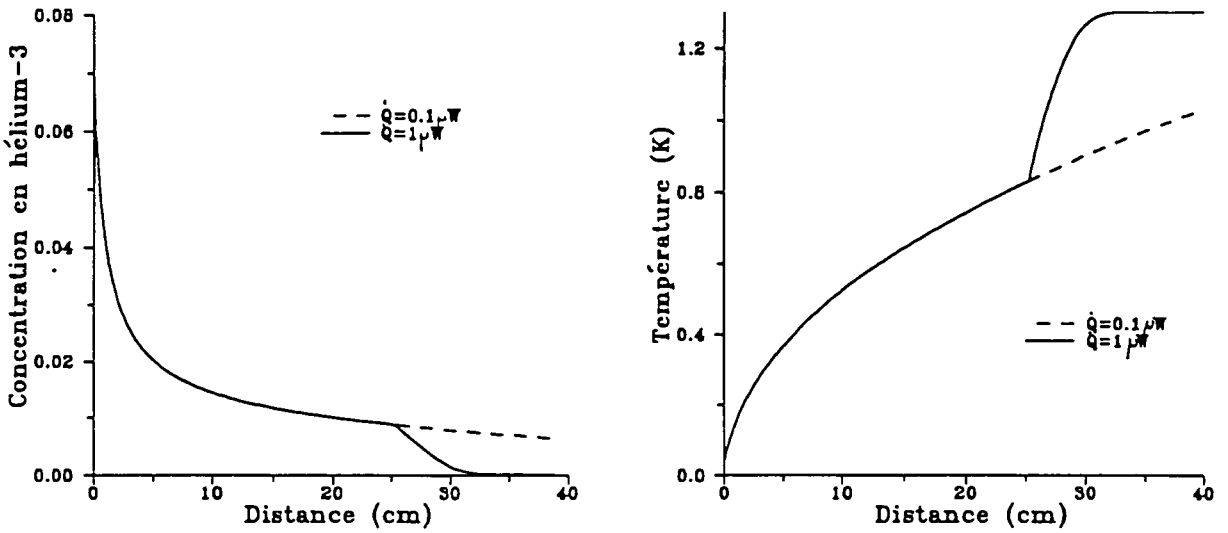


Figure 8.7: Variation calculée de la concentration et de la température le long du tube capillaire rempli d'un mélange de μ_4 uniforme, en présence d'un courant de chaleur variable. La température du point à une distance de 25 cm du réservoir est supposé constante. Le calcul est fait pour T_0=50mK, x_0=x_{sat}, $P = 0$.

8.2.3 Résultats des mesures.

Nous avons effectué plusieurs séries de mesures, faisant à chaque fois varier la composition du mélange, la température T_0, le chauffage appliqué à l'extrémité du capillaire, et la pression P du mélange, lue à température ambiante sur la ligne de remplissage de la cellule. Notre objectif lors de ces mesures était d'avoir accès aux variations du potentiel chimique μ_4 avec la température T_0 le long de la courbe de coexistence. Pour éviter la nucléation de vapeur aux points les plus chauds du capillaire, il est important que la pression P soit au moins égale à $P_{sat}(T_{pur})$. Pour déduire de nos mesures la valeur de μ_4 à pression donnée, par exemple $P = 0$ ou $P = P_{sat}(T_0)$, nous avons été conduits à mesurer également l'influence de la pression sur μ_4. Pour diverses valeurs de T_0, nous avons mesuré T_{pur} en faisant varier P entre quelques dizaines et quelques centaines de millibars. Un exemple de résultats est donné sur la figure 8.8, où l'on voit les effets indépendants de P et du chauffage utilisé pour chasser l'hélium 3.

Ce dernier a une influence systématique de l'ordre de 0.3mK pour une puissance de chauffage de 10μW. Cet effet est très faible devant nos incertitudes de calibration de températures, et sera négligé dans la suite. En revanche, il y a un net effet de la pression sur

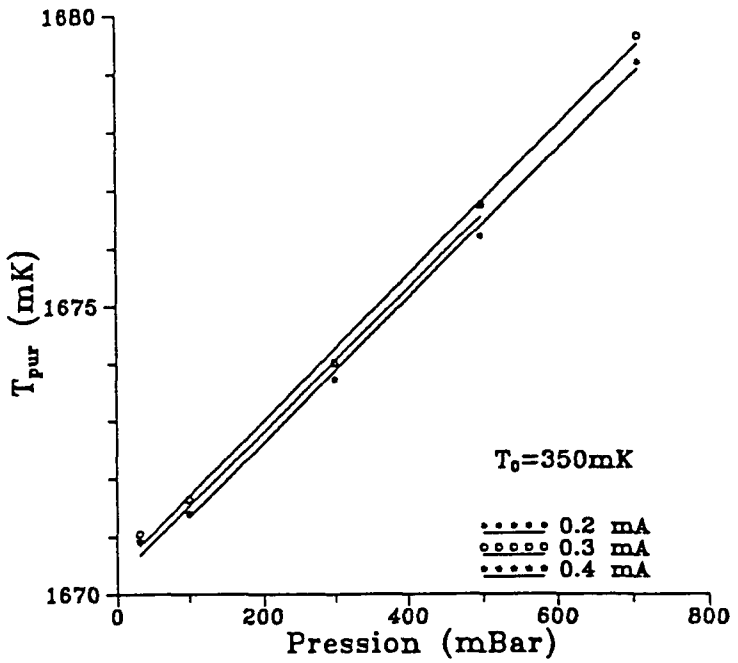


Figure 8.8: Exemple de variations de la température T_{pur} avec la pression P, et avec le chauffage appliqué (dans une résistance chauffante de 60 Ω).

la température T_{pur} mesurée, qui est résumé dans le tableau 8.1. Cet effet, assez faible pour être aisément corrigé dans nos résultats, sera brièvement discuté plus bas.

T_0 (mK)	$T_{pur}(P=0)$ (mK)	dT_{pur}/dP (mK/Bar)
125	1287	18.0 ±0.3
250	1556	15.48 ±0.24
350	1670	12.73 ±0.30
450	1785	11.18 ±0.24
550	1878	10.40 ±0.18
630	1975	8.7 ±0.45

Table 8.1: Effet de la pression à diverses températures.

L'ensemble des résultats obtenus pour la variation de la température T_{pur} en fonction de T_0 (à basse pression $P \sim 0$) est donné sur la figure 8.9. Les cercles représentent les mesures faites avec un mélange assez riche en hélium 3 pour que coexistent deux phases à T_0. Les résultats figurés par des points ont été obtenus pour trois mélanges moins riches, pour lesquels une phase unique subsiste pour une température assez élevée (au-dessus d'environ

400, 450, et 600 mK pour ces trois mélanges). Dans cette phase non saturée, la pression osmotique est abaissée, et la température T_{pur} l'est donc également, ainsi que le montre la figure 8.9. La courbe continue représente les mesures à basse température faites par Varoquaux [Ghozlan 79] ; nos résultats aux plus basses températures s'en écartent sensiblement, sans doute à cause d'un problème de thermométrie dans nos mesures. Nous n'avons donc cherché à représenter analytiquement nos mesures que dans le domaine $T \geq 180mK$; la courbe pointillée est donnée par la formule :

$$T_{pur}(K) = 1.1337 + 2.0493T_0 - 1.7702T_0^2 + 0.9845T_0^3. \tag{8.5}$$

Bien que la courbe soit également compatible avec nos résultats les plus froids, la formule 8.5 ne doit pas être utilisée à basse température.

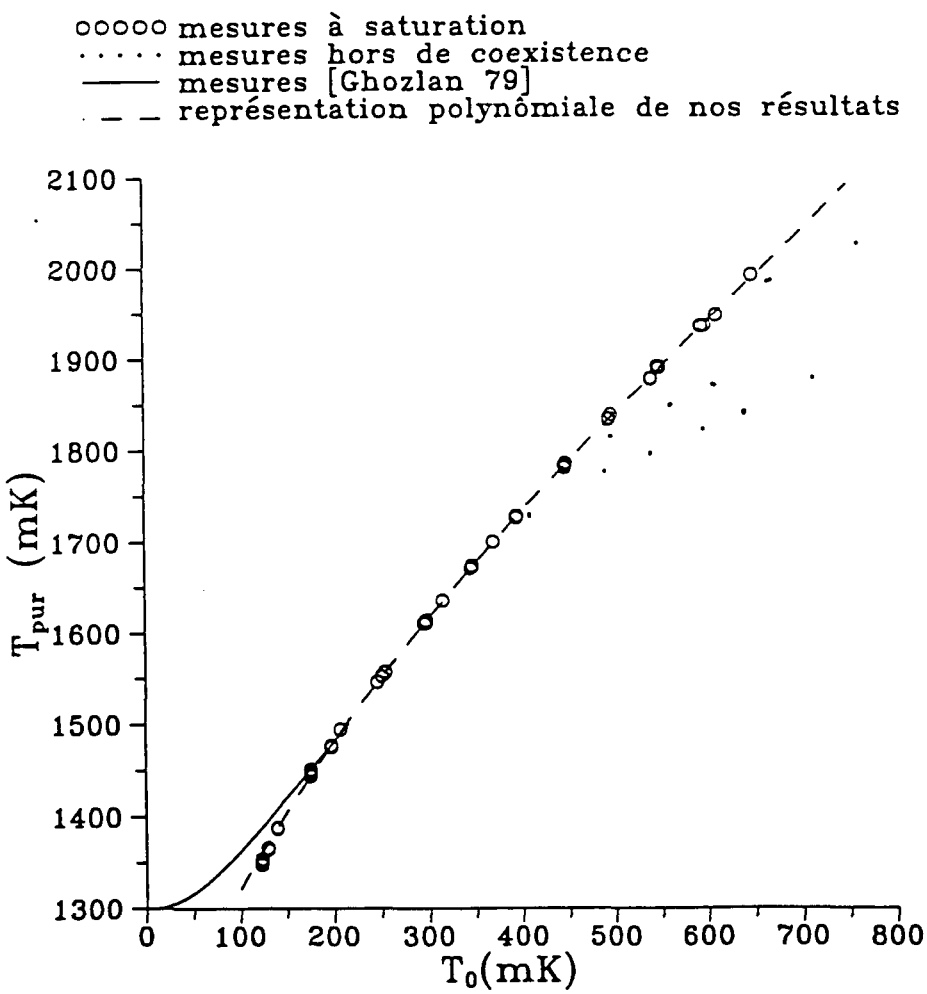


Figure 8.9: Variation de la température T_{pur} avec T_0.

8.2.4 Discussion.

L'effet de la pression P sur les températures T_{pur}, tel qu'il apparaît sur la figure 8.8 et dans le tableau 8.1, résulte de plusieurs modifications induites par la pression. Tout d'abord, la compression du liquide à T_0 modifie à la fois la concentration saturante $x_{sat}(T_0)$ et la densité du liquide : il en résulte une modification complexe de la pression osmotique, où les effets statistiques et les effets d'interaction peuvent jouer des rôles comparables. D'autre part, dans l'hélium 4 pur lui-même (à T_{pur}), μ_4 dépend de la pression (par la formule 8.4) à température donnée. On trouve dans la littérature des mesures des grandeurs thermodynamiques permettant d'estimer ces différentes contributions, au moins dans une partie du domaine de température. Elles ne permettent pas de prédire avec précision les pentes dT_{pur}/dP, à cause de la quasi-compensation d'effets de signes contraires ; l'ordre de grandeur est néanmoins compatible avec nos résultats.

La comparaison des valeurs de T_{pur} avec les mesures antérieures, qui toutes s'accordent assez bien sur une pression osmotique saturante à $T = 0$ de 22 à 23 $mbar$, correspondant à T_{pur} compris entre 1292 et 1300 mK, montre bien que nos mesures aux plus basses températures posent problème. La mesure de T_{pur} est commode et peu sujette à des erreurs aussi importantes. En revanche, la mesure de la température T_0, surtout aux plus basses températures, est plus délicate. Elle est faite en utilisant une résistance Matsushita, qui n'avait (au moment de ces expériences) été étalonnée que contre la pression de vapeur saturante de l'hélium 3, c'est à dire au-dessus de $400mK$ (voir le paragraphe 1.3.2). Confrontés à la difficulté d'extrapoler de façon fiable cette calibration pour pouvoir interpréter les expériences décrites ici, nous avons acquis une résistance étalonnée et entrepris *a posteriori* une calibration de nos thermomètres. C'est le résultat de cette procédure qui est présenté, et il est clair, au vu des résultats, qu'il conviendra de refaire certaines des mesures car nous pensons que ses fils de mesure, insuffisamment thermalisés, maintenaient la résistance Matsushita plus chaude que le liquide à mesurer. Il est connu que les effets de tels problèmes ont une très rapide variation avec la température, et ont des conséquences spectaculaires aux plus basses températures où les impédances des contacts thermiques divergent.

Il existe, à notre connaissance, une seule publication relative à des mesures à "haute" température [Klundert 77]. La méthode utilisée par ces auteurs est proche de la nôtre, à la différence que le liquide étudié était celui contenu dans la chambre à mélange du réfrigérateur à dilution et non dans une cellule indépendante. Il est malheureusement difficile de

reconstituer les résultats de ce travail, car la publication ne donne pas les résultats en termes de T_{pur}, mais traduits sous forme de pression osmotique. Les auteurs disent avoir mesuré des températures T_{pur} variant de 1.3 à $1.8K$, et avoir utilisé les données de pression fontaine tabulées par Radebaugh [Radebaugh 67]; comme celles-ci sont limitées à $T_{pur} \leq 1.5K$, il est de fait impossible de reconstituer avec précision les résultats de [Klundert 77]. Nous avons néanmoins porté sur la figure 8.10 ceux de nos résultats obtenus à saturation, et la courbe correspondant à la formule $\Pi_{osm} = 16.9 + 640T_0^2$ (Π en Torr, T_0 en mK) citée par [Klundert 77] comme décrivant bien leur mesures.

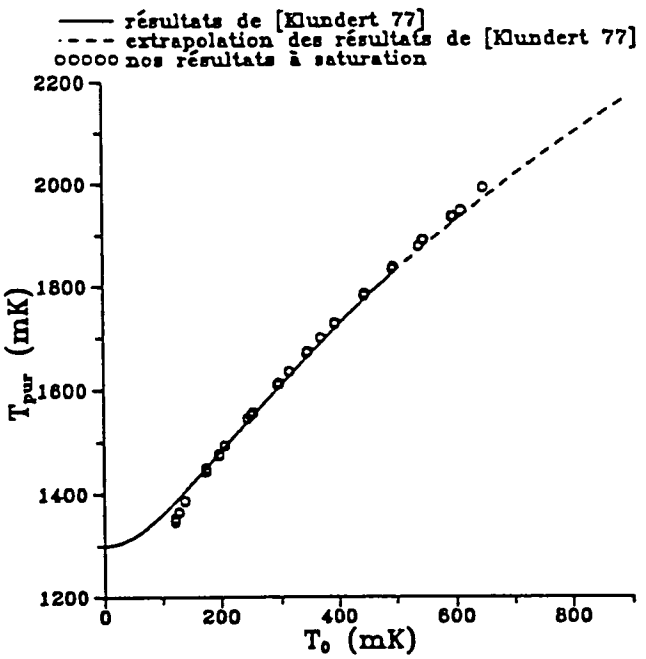


Figure 8.10: Comparaison des mesures à saturation de la figure précédente avec la formule simple de [Klundert 77].

Au regard du problème de correspondance entre T_{pur} et μ_4, il n'est pas clair si on ne doit considérer cette courbe que pour $T_{pur} \leq 1.5K$, ou bien jusqu'à $T_{pur} = 1.8K$. Nous avons malgré tout porté (courbe pointillée) la variation de T_{pur} jusqu'à T_λ, température de transition superfluide au-dessus de laquelle cette méthode de mesure ne peut s'appliquer. Nous avons conservé la même formule pour Π_{osm}, et utilisé les données de [Sudraud 78] (valables jusqu'à $2K$) pour convertir la température T_{pur} en pression fontaine ou en potentiel chimique μ_4. Il nous paraît surprenant qu'une forme si simple (mais sans justification sauf aux très basses températures) puisse si bien décrire les résultats expérimentaux dans une si large gamme de températures et concentrations. On pourrait sans mal améliorer encore cette correspondance

en changeant légèrement les paramètres empiriques données dans [Klundert 77].

Une dernière façon de comparer nos résultats aux données de la littérature consiste à analyser les mesures de pression de vapeur saturante des solutions en termes de potentiels chimiques. Les données existantes ([Sydoriak 60]) ont été interprétées en considérant que les mélanges d'hélium sont des solutions régulières, caractérisées par une énergie de mélange $W/R = 1.54K$ [dBO59]. Cette valeur, ajustée sur un ensemble de mesures à assez hautes températures ($T_0 \geq 0.9K$), n'est d'ailleurs pas universellement acceptée (voir l'appendice A2 de [Nacher 94]), et nous avons essayé d'utiliser pour μ_4 la formule correspondant aux solutions régulières

$$\mu_4(T_0, x) = \mu_4^0(T_0) + RT_0 \,\mathrm{Log}(1-x) + Wx^2, \tag{8.6}$$

en laissant toutefois l'énergie W libre de varier, c'est à dire de dépendre de T_0 le long de la courbe de séparation de phases, où nous avons travaillé. La formule 8.6, traduite en termes de températures pour être plus commodément comparée à nos résultats, a été utilisée pour tracer les courbes de la figure 8.11.

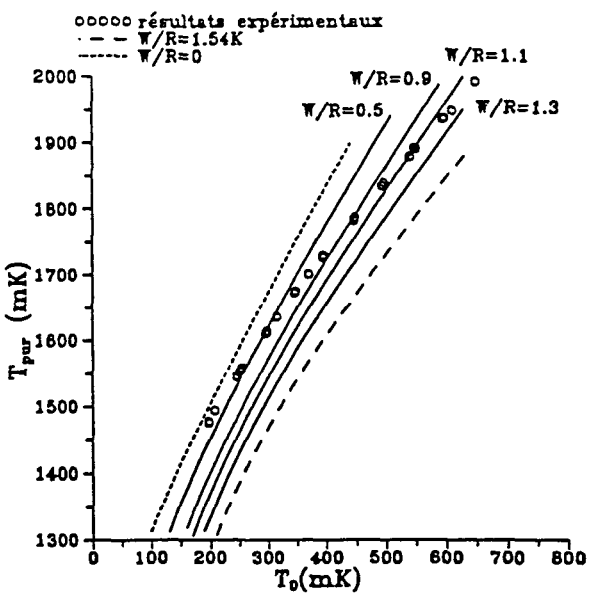


Figure 8.11: Comparaison de nos mesures avec les prédictions d'un modèle de solution régulière. Différentes valeurs de W/R (équation 8-6) ont été utilisées: 0, 0.5, 0.9, 1.1, 1.3 et $1.54K$.

Pour chaque valeur de T_0, une valeur de W/R correspond à nos mesures; l'ensemble de ces

valeurs est reporté sur la figure 8.12, ainsi que la valeur $1.54K$ admise à haute température ($T_0 \geq 0.9K$), et la valeur nulle tirée des mesures à basse température de [Ghozlan 79] plutôt que des nôtres.

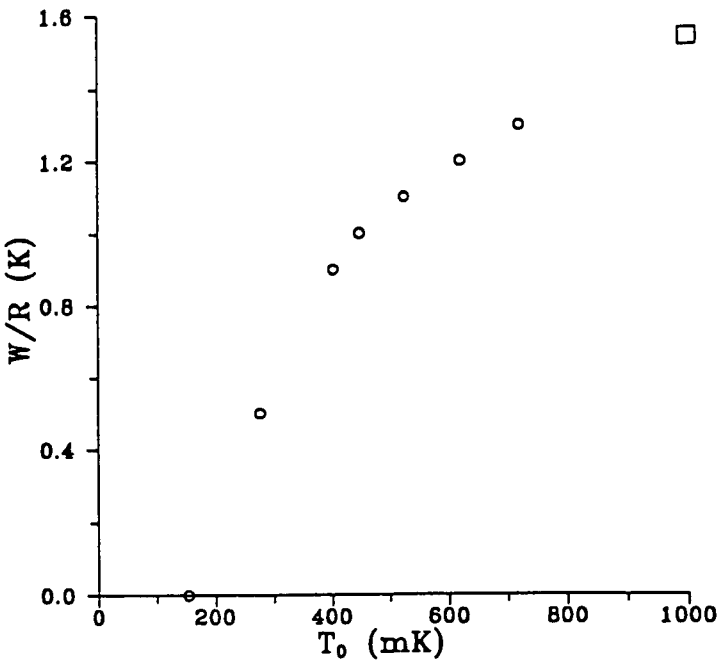


Figure 8.12: Dépendance de W/R avec la température déduite de nos mesures le long de la courbe de coexistence.

Bien sûr, comme ces mesures sont faites le long de la courbe de coexistence, la dépendance en température de W/R peut cacher une dépendance implicite en concentration, et ces résultats ne sauraient être utilisés sans précautions pour prédire une pression et une composition de vapeur saturante au-dessous d'un Kelvin. Ils prouvent en revanche que la simple extrapolation des mesures faites à plus haute température [Sydoriak 60] peut conduire à des prédictions très inexactes.

En conclusion, nous pensons que la méthode introduite par London et que nous avons utilisée est un outil commode et puissant d'investigation thermodynamique pour les solutions superfluides. Sous réserve de disposer de mesures de températures bien étalonnées (ce qui est maintenant le cas au laboratoire), il est relativement aisé de faire des mesures absolues de potentiel chimique. La méthode est utilisable dans une large gamme de pression, température et concentration, et peut fournir des données qui permettraient de caractériser la thermodynamique des solutions dans un domaine plus étendu que celui, limité aux basses températures et aux faibles concentrations, décrit dans [Ebner 71] et [Kuerten 85].

Cette méthode offre, en outre, une grande sensibilité aux faibles variations de μ_4, et devrait permettre de mesurer la dépendance vis à vis de la polarisation nucléaire, au delà de la variation linéaire en M^2, qui est reliée à la susceptibilité magnétique en champ "faible" (c'est à dire jusqu'à une dizaine de Tesla!), lorsque M est limité à quelque pour cent.

Conclusion.

Nous avons développé, au cours de cette thèse, une méthode permettant de préparer, dans une gamme de températures pouvant s'étendre de 200 mK jusqu'à 1 K environ, des échantillons liquides d'hélium 3 dans l'hélium 4 à la fois bien polarisés (polarisation nucléaire de l'ordre de 50%) et assez concentrés (concentration en hélium 3 variant de quelques pour cent à une quantité suffisante pour que survienne la séparation de phase). Dans toutes ces situations, une polarisation importante peut être entretenue en régime stationnaire grâce à une méthode thermique efficace pour faire circuler les atomes d'hélium 3 entre la zone de pompage optique et l'échantillon liquide. Nous avons montré que, dans des conditions expérimentales optimales, la polarisation nucléaire préparée par pompage optique laser peut atteindre 80% et que les taux de production d'aimantation sont importants à forte puissance laser; en outre, les temps de relaxation nucléaire en phase diluée d'un échantillon liquide (dans nos cellules césiées) peuvent être très longs. En conséquence, on s'attend à pouvoir maintenir bien polarisés des volumes importants (de l'ordre du centimètre-cube) de mélange liquide par cette méthode.

L'aimantation de ces échantillons est contrôlée par RMN. Les spectres des signaux de précession libre qui font suite à une impulsion radiofréquence de petit angle de basculement sont d'une étonnante richesse: il apparait en effet que, sous l'effet des couplages dipolaires entre les différentes parties de l'échantillon, l'aimantation transverse s'organise en modes amortis. Nous avons caractérisé ces modes d'aimantation d'un point de vue aussi bien théorique qu'expérimental. Les principales caractéristiques des signaux observés peuvent être interprétées à l'aide d'un modèle unidimensionnel simple permettant de prendre en compte les effets à distance du champ dipolaire résultant de la forte aimantation nucléaire du liquide polarisé. La densité d'aimantation, tant en phase homogène que lorsque les deux phases coexistent, peut en particulier être précisément déduite des caractéristiques spectrales des signaux de précession libre.

Un certain nombre d'expériences simples à mettre en oeuvre doivent, nous l'espérons, constituer autant de vérifications supplémentaires des modèles que nous avons développés: excitation et détection des modes impairs d'aimantation, déplacement, au moyen de gradients de champ appliqué, du lieu où est piégé le mode fondamental d'aimantation en vue de mesurer son extension spatiale.

En ce qui concerne le désaccord quantitatif entre les prédictions du modèle simple exposé dans ce mémoire et les mesures d'amortissement des modes magnétiques, deux voies sont envisageables pour tenter de réconcilier théorie et expérience. D'une part, l'effort doit être porté sur les calculs qui permettraient de justifier la validité du modèle à une dimension. D'autre part, une étude comparable à celle que nous avons faite doit être menée dans des cellules de caractéristiques géométriques différentes où les modes magnétiques auraient une extension spatiale nettement supérieure à toute dimension transverse, ayant ainsi un caractère unidimensionnel plus affirmé.

A plus long terme, le groupe travaillant sur les fluides quantiques envisage de réaliser, sur des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4, une mesure de l'effet d'une forte polarisation nucléaire sur le potentiel chimique de l'hélium 4. Nous avons démontré la faisabilité de cette étude, et avons en particulier mesuré ce potentiel chimique dans des solutions non polarisées. Il reste à modifier nos cellules expérimentales afin d'améliorer tous les contacts thermiques avec le liquide polarisé et de disposer de mesures de température fiables. Il sera alors possible de mener cette étude le long de la courbe de séparation de phase par la technique que nous avons mise en oeuvre. Cette méthode présente néanmoins l'inconvénient de mélanger deux effets : la dépendance de la pression osmotique vis à vis de la polarisation nucléaire et la variation, toujours en fonction de la polarisation nucléaire, de la concentration saturante. Dans ces conditions, une mesure indépendante de la concentration en hélium 3 présenterait un intérêt tout particulier. Elle permettrait en outre d'étendre utilement ces mesures dans les solutions homogènes non saturées. La détermination de la concentration en hélium 3, que nous suggérons de faire au moyen d'une mesure capacitive, paraît envisageable compte tenu de nos résultats, puisque l'on peut à présent espérer maintenir fortement polarisés, par notre méthode, des échantillons de volume suffisant.

Références bibliographiques

[Abragam] A. Abragam, *Principles of Nuclear Magnetism*, Oxford Science Publications, 1961.

[Aminoff 89] C.G. Aminoff, C. Larat, M. Leduc et F. Laloë, *Rev. Phys. Appl.* **24**, 827 (1989).

[Anderson 66] A.C. Anderson, D.O. Edwards, W.R. Roach, R.E. Sarwinsky et J.C. Wheatley, *Phys. Rev. Let.* **17**, 367 (1966).

[Bigelow 92] N.P. Bigelow, P.J. Nacher et M. Leduc, *J. Phys. France* **2**, 215 (1992).

[Candela 94] D. Candela, M.E. Hayden et P.J. Nacher, *Phys. Rev. Let.* **73**, 2587 (1994).

[Chupp 94] T.E. Chupp, R.J. Hoare, R.L. Walsworth et B. Wu, *Phys. Rev. Let.* **72**, 2363 (1994).

[Cohen] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, *Mécanique Quantique*, Hermann, 1973.

[Cornut 93] M. Cornut, Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble I, 1993.

[dBO59] R. de Bruyn Ouboter, J.J.M. Beenakker, and K.W. Taconis, *Physica* **25** (1959) 1162.

[Demolder 95] B. Demolder Thèse de Doctorat de l'Université de Paris XI, 1995.

[Deville 79] G. Deville, M. Bernier et J.M. Delrieux, *Phys. Rev.* **B19**, 5666 (1979).

[Ebner 71] C. Ebner and D.O. Edwards, *Phys. Reports* **2C** (1971) 77.

[Fillipov 94] Y. Fillipov, I. Sergeyev et S. Uchaikin, *Cryogenics* **34**, 413 (1994).

[Ghozlan 79] A. Ghozlan et E. Varoquaux, *Ann. Phys. France* **4**, 239 (1979).

[Himbert 89] M. Himbert, J. Dupont-Roc et C. Lhuillier, *Phys. Rev.* **A39**, 6170 (1989).

[Ifft 67] E.M. Ifft, D.O. Ewards, R.E. Sarwinski et M.M. Skertic, *Phys. Rev. Let.* **19**, 831 (1967).

[Keesom] W.H. Keesom, *Helium*, Elsevier, 107 (1942).

[Kierstead 76] H.A. Kierstead, *J. Low Temp. Phys.* **24**, 497 (1976).

[Klundert 77] L.J.M. Van de Klundert, M.R.E. Bos, J.A.M. Van der Meij et H.A. Steffens, *Phys. Let.* **62A**, 487 (1977).

[Koike 85] Y. Koike, T. Fukase, S. Morita, M. Okamura et N. Mikoshiba, *Cryogenics* **25**, 499 (1985).

[Kuerten 85] J.G.M. Kuerten, C.A.M. Castelijns, A.T.A.M. de Waele and H.M. Gijsman, *Cryogenics* **25** (1985) 419.

[Landau 69] J. Landau, J.T. Tough, N.R. Brubaker, and D.O. Edwards, *Phys. Rev. Lett.* **23** (1969) 283.

[Landau 70] J. Landau, J.T. Tough, N.R. Brubaker, and D.O. Edwards, *Phys. Rev.* **A2** (1970) 2472.

[Leduc 96] M. Leduc et E. Otten, *La Recherche* **287**, 41 (1996).

[London 68] H. London, D. Phillips and G.P. Thomas, Proc. LT11, St Andrew (1968) 649.

[Nacher 87] P.J. Nacher, Thèse de Doctorat d'Etat, Paris, 1987.

[Nacher 91] P.J. Nacher et J. Dupont-Roc, *Phys. Rev. Let.* **67**, 2966 (1991).

[Nacher 94] P.J. Nacher, M. Cornut et M.E. Hayden, *J. Low Temp. Phys.* **97**, 417 (1994).

[Nacher 95] P.J. Nacher et E. Stoltz, *J. Low Temp. Phys.* **101**, 311 (1995).

[Numerical Rec.] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling et B.P. Flannery, *Numerical Recipes in Fortran*, Cambridge University Press, 1992.

[Osheroff 87] D.D. Osheroff et M.C. Cross, *Phys. Rev. Let.* **59**, 94 (1987).

[Owers-Bradley 83] J.R. Owers-Bradley, H. Chocolacs, R.M. Mueller, C. Buchal, M. Kubota et F. Pobell, *Phys. Rev. Let.* **51**, 2110 (1983).

[Pavlovic 71] M. Pavlovic et F. Laloë, *J. Phys. France* **31**, 173 (1970), F. Laloë, Thèse de Doctorat d'Etat, Paris, *Ann. Phys. France* **6**, 5 (1971).

[Peyton] A.J. Peyton et V. Walsh, *Analog Electronics with Op Amps*, chapitre 4, Cambridge University Press, 1993.

[Ptukha 61] T.P. Ptukha, *Soviets Phys. JETP* **13**, 1112 (1961).

[Radebaugh 67] R. Radebaugh, NBS Tecnical Note **362** (1967).

[Richards 88] M.G. Richards, B.P. Cowan, M.F. Secca et K. Makin, *J. Phys.* **B21**, 665 (1988).

[Rodrigues] A. Rodrigues et G. Vermeulen, soumis *J. Low Temp. Phys.* .

[Rusby 84] R.L. Rusby and M. Durieux, *Cryogenics* **24** (1984) 363.

[Schoepe 89] W. Schoepe, K. Uhlig et K. Neumaier, *Cryogenics* **29**, 467 (1989).

[Siqueira 91] M.L. Siqueira, R.J. Viana et R.E. Rapp, *Cryogenics* **31**, 796 (1991).

[Stoltz 95] E. Stoltz, J. Tannenhauser et P.J. Nacher, *J. Low Temp. Phys.,AC* **101**, 839 (1995).

[Stratton 41] J.A. Stratton, *Electromagnetic Theory*, Mc Graw Hill B.C. Inc., 1941.

[Sudraud 78] M. Sudraud et E.J. Varoquaux, *Physica* **94B**, 303 (1978).

[Sydoriak 60] S.G. Sydoriak and T.R. Roberts, *Phys. Rev.* **118** (1960) 901.

[Taborek 92] P. Taborek et J.E. Rutledge, *Phys. Rev. Let.* **68**, 2184 (1992).

[Tastevin 87] G. Tastevin, Thèse de Doctorat de l'Université de Paris VI, 1987.

[Tastevin 88] G. Tastevin, P.J. Nacher, L. Wiesenfeld, M. Leduc et F. Laloë, *J. Phys. France* **49**, 1 (1988).

[Tastevin 92a] G. Tastevin, *J. Low Temp. Phys.* **89**, 669 (1992).

[Tastevin 92b] G. Tastevin, *J. Low Temp. Phys., AC* **89**, 317 (1992).

[Tastevin 96] G. Tastevin, B. Villard et P.J. Nacher, *Czech. J. Phys.* **46**, 237 (1996).

[Walker 57] L.R. Walker, *Phys. Rev.* **105**, 390 (1957).

[Wilson 70] M.F. Wilson and J.T. Tough, *Phys. Rev.* **A1** (1970) 914.

Appendice A

Article à paraître dans Applied Physics B (Lasers and Optics)

Appl. Phys. B ▮▮, ▮▮▮-▮▮▮ (1996)

Mastercopy
Please insert your corrections in this copy and send this copy to the publisher

Applied Physics B Lasers and Optics
© Springer-Verlag 1996

High nuclear polarization in ^{3}He and ^{3}He–^{4}He gas mixtures by optical pumping with a laser diode

E. Stoltz, M. Meyerhoff, N. Bigelow*, M. Leduc, P.-J. Nacher, G. Tastevin

Laboratoire Kastler Brossel, **Département de Physique de l'Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, F75231 Paris
(Fax: □ □ □; E-mail: □ □ □)

Received: 26 February 1996/Accepted: 11 June 1996

Abstract. New diode lasers delivering 50 mW output power at 1083 nm are shown to be efficient sources for optical pumping of helium. They can polarize nuclei in a ^{3}He gas up to $M = 50\%$ over the pressure range 0.4–1.6 torr. Larger nuclear polarizations M of ^{3}He nuclei, of order 80%, can be obtained in ^{3}He–^{4}He mixtures when the laser frequency is tuned to a ^{4}He line. A standard optical measurement of nuclear polarization M has been extended to the case of ^{3}He–^{4}He mixtures. The effect of various parameters on the steady-state polarization M and on the pumping time T_p is discussed.

PACS: 32.80B; 67.65

Laser diodes operating at wavelengths close to 1083 nm have recently been developed by Spectra Diode Laboratories [1]. So far, these laser sources are rated to deliver 50 mW of output power in single-mode operation. Taking advantage of the good monochromaticity provided by their DBR (distributed Bragg reflector) technology, one can use these lasers for experiments involving the $2^3S \rightarrow 2^3P$ line of the helium atom [2]. Optical pumping using a laser diode has been demonstrated in ^{4}He [3], and in ^{3}He at low pumping power [4].

In the present work, we have tested the efficiency of these devices to polarize nuclear spins in a ^{3}He gas by optical pumping of the 2^3S metastable state. Laser diodes offer many advantages over the more powerful lamp-pumped LNA lasers (several watts of output power) which are currently used for ^{3}He optical pumping [5]. They are compact, easy to use, commercially available and comparatively inexpensive. Despite their limited power, they are expected to provide fairly high nuclear polarizations: optical pumping through the 2^3S metastable state is a highly nonlinear process, and pumping powers in the milliwatt range generally provide significant polarizations [6–8].

The present work also serves to demonstrate the predicted efficiency of optical pumping in ^{3}He–^{4}He mixtures [8, 9]. The addition of ^{4}He to ^{3}He gas can lead to higher nuclear polarizations of ^{3}He, provided the optical pumping operates on ^{4}He atoms. In this case, the electronic polarization created by the optical pumping in the metastable state of ^{4}He atoms is first transferred to the metastable state of ^{3}He atoms by metastability exchange collisions with ground state ^{3}He atoms. The polarization is then fed into the ground state of ^{3}He atoms via further exchange collisions [8, 9]. The larger light absorption probability of ^{4}He atoms contributes to make this indirect process more efficient in many situations.

We report here results for the steady-state nuclear polarization M_z, and for the pumping time constant T_p, obtained both for pure ^{3}He and for isotopic mixtures when experimental parameters are varied (such as helium pressure and isotopic composition, discharge intensity, laser characteristics).

1 Optical pumping setup

The experiment is sketched in Fig. 1. The optically pumped helium is enclosed in Pyrex glass cylinders, 5 cm in diameter and 5 cm in length. These cells are filled either with pure ^{3}He gas, or with ^{3}He–^{4}He mixtures at pressures in the torr range. A weak RF discharge is used to populate the 2^3S metastable state. The light emitted by the laser diode is collected by a collimating lens L' ($f = 8$ mm), positioned so as to produce a slightly diverging beam. The pumping beam thus illuminates a large fraction of the cell volume. Since correcting for the elliptical radiation pattern of the laser was found to have almost no effect on pumping characteristics, most experiments are performed with a non-circular beam, having a size in the cell of order 1×3 cm^2. The linear polarization of the light emitted by the diode is transformed into a circular polarization by the

*Permanent address: Department of Physics and Astronomy and Laboratory for Laser Energetics, University of Rochester, Rochester, N.Y. 14627, USA
**Laboratoire associé au Centre National de la Recherche Scientifique et à l'Université P. M. Curie

3	4	C	C	8	9	3	B
Journal number			Manuscript number				

Dispatch: 1/8/96 Journal: APB
No. of Pages: ≤ 5 MACMILLAN
Editor

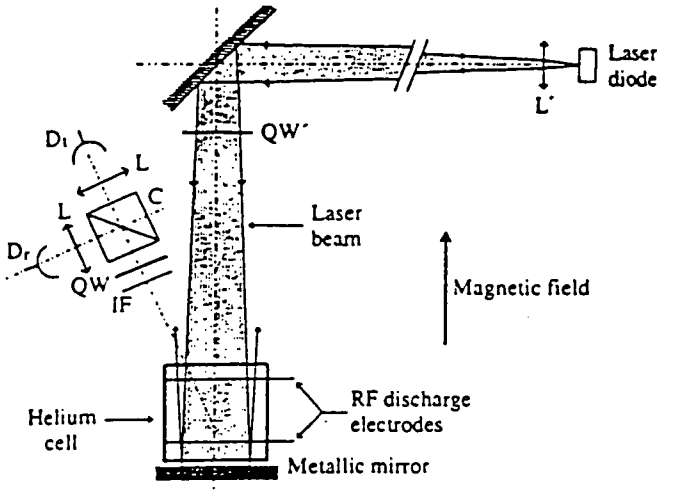


Fig. 1. Sketch of the experimental setup. The helium gas is enclosed in a cylindrical glass cell. A weak RF discharge is sustained by a high-voltage applied to external electrodes. The 1083 nm light emitted by the laser diode is collected by the collimator L' and circularly polarized by the quarter wave plate QW'. The circular polarization of the visible light emitted by the discharge is analyzed by a static polarimeter. It is observed at a small angle with respect to the vertical common axis of the magnetic field and pumping beam; the efect of this angle on the observed polarization is negligible

low-order quartz quarter wave plate QW' and propagates in the cell along a vertical static magnetic field of order 0.3 mT. Since, the beam absorption is low in many experimental situations, a metallic mirror is used to reflect the transmitted light back through the cell.

The laser diode has a single-mode operation, with a measured line width of order 3 MHz. The laser frequency can be continuously tuned without mode hopping over the entire fine and hyperfine structure of $2^3S \rightarrow 2^3P$ lines of ^{3}He and ^{4}He atoms. Tuning is obtained by controlling the diode temperature. In addition, a small amplitude high-frequency swing of the laser wavelength can be driven by modulating the intensity of the current fed to the laser diode. This is used to optically pump successively in a rapid sequence various velocity classes of atoms within the Doppler profile.

2 Optical detection of the nuclear polarization

The nuclear polarization M of ^{3}He atoms is measured optically, by monitoring the circular polarization $\mathscr{P}$ of the light emitted by the discharge [10]. The polarimeter which we have used is sketched in Fig. 1 and described in more detail elsewhere [11]. It consists of a quarter wave plate QW and a polarizing beam splitting cube C followed by two photodiodes D_r and D_t which detect the σ_+ and σ_- polarization components of the line selected by the interference filter IF. The discharge amplitude is modulated at 1 kHz with a modulation depth of order 30%, and the modulated components Σ and Δ of the sum and difference of the photocurrents are measured using lock-in amplifiers. The degree of circular polarization of the analyzed light is $\mathscr{P} = \varepsilon\Delta/\Sigma$, where ε would simply be 1 for an ideal polarimeter, but slightly differs from 1 due to various imperfections of the actual device. The present polarimeter offers several advantages over the widely used original device of [10]. It is more compact and easier to make, is not affected by magnetic fields, and is insensitive to ambient or pumping stray light.

Polarization analysis was performed on the red line (at a wavelength of 668 nm), and nuclear polarization M was deduced using the pressure-dependent $M/\mathscr{P}$ ratios measured in [12]. For pure ^{3}He, this method provides a good accuracy of the measured polarizations (better than 1%), except for the weakest discharges at high pressures which emit very little light [11].

In the case of isotopic mixtures, no calibration of optical signals existed so far. Since a fraction of the collected light is emitted by ^{4}He atoms, and hence is unpolarized, a smaller overall circular polarization is expected to be monitored for the same nuclear polarization of ^{3}He atoms. We have performed a series of pulsed NMR measurements in cells containing either pure ^{3}He, or ^{3}He–^{4}He mixtures in order to compare optical signals with an independent determination of the nuclear polarization. The discharge light polarization $\mathscr{P}$ was monitored during the polarization build-up. When a steady state was reached, a $\pi/2$ pulse was applied to the gas in the cell. Free induction signals were then recorded, having a decay time of many seconds [13]. All cells were of identical shape and volume, and the same set of crossed NMR coils was used for all measurements: the initial amplitude of all free induction signals was thus assumed to be simply proportional to MP_3, where P_3 is the ^{3}He partial pressure in the cell. The ratio $[M/\mathscr{P}]_{mix}$ observed in a ^{3}He–^{4}He mixture of total pressure P_{tot} and ^{3}He concentration $x = P_3/P_{tot}$ was found to be given by

$$[M/\mathscr{P}]_{mix}(P_{tot}, x) = (1/x)\cdot[M/\mathscr{P}]_{pure}(P_{tot}),$$

where the ratio $[M/\mathscr{P}]_{pure}(P_{tot})$ has the value which would be observed in a pure ^{3}He gas of pressure P_{tot} [12]. Measurements have been performed in a gas of concentration $x = 0.25$, with an accuracy of 5–10%, depending on the pressure. We have also tried a lower concentration ($x = 0.1$), but the accuracy was poorer. To some extent, the optical detection method can thus also be used to measure the nuclear polarization M in an isotopic mixture. Its main drawback is that signal-to-noise ratio deteriorates for low ^{3}He concentrations, but it is very convenient to monitor the time evolution of M, and measure the pumping and relaxation time constants T_p and T_1.

3 Optical pumping results

We present results obtained with five cells listed in Table 1, which differ only by the gas composition and pressure. We have not made an exhaustive study, but have compared polarization dynamics for a limited number of samples under the same laser diode beam size and power (50 mW). For each cell, we have recorded the discharge light polarization $\mathscr{P}$ while the pumping beam was successively applied and blocked. Polarization build-up followed a simple exponential approach towards its asymptotic

Table 1. Gas composition of the studied samples. All cells have the same shape and volume, of order 100 cm^3. Cells P1, P2 and P3 are filled with pure ^{3}He gas, while cells M1 and M2 contain an isotopic mixture with 25% ^{3}He. Cells M1 and M2 contain the same amount of ^{3}He as cells P1 and P2, respectively; cells P3 and M1 are filled with the same total pressure

Cell	^{3}He pressure (torr)	^{4}He pressure (torr)
P1	0.4	0
P2	0.8	0
P3	1.6	0
M1	0.4	1.2
M2	0.8	2.4

value, in contrast to the more complicated increase obtained using a more powerful laser [8]. Pumping time constants T_p, and relaxation time constants T_1 (for the polarization decay induced by the running discharge when the pumping beam is blocked), were deduced from the time evolution of $\mathcal{P}$. The steady-state value of the nuclear polarization, M_z was also derived for each recording. For each cell, different discharge intensities were tried, including weak levels close to extinction threshold. All results are plotted in the figures as a function of P_3/T_1. This is a relevant parameter which increases with the discharge level and is related to the loss rate of nuclear magnetization [11].

We have first studied the consequences of laser monochromaticity on the optical pumping efficiency. Pumping with a high spectral density (and/or an unexpanded laser beam) can reduce M_z, due the saturation of the transition of atoms in a single velocity class [14]. We have compared results obtained using a free running laser diode, and with an applied 20 MHz modulation of the injected current, which caused a laser frequency swing over about 0.4 GHz. This amplitude, a large fraction of the Doppler width (2 GHz fwhm for ^{3}He), as well as the sweep rate, were found sufficient to compensate for the high spectral purity of the laser diode. Over the studied range of discharge intensities, we obtained a relative increase in M_z of order 8% in cell P1 and 3% in cell P3 when the laser current was modulated. This pressure dependence is believed to result from the collision-induced orientation transfer between atoms of different velocities: at higher pressures, collisions are efficient enough to fight saturation effects, and no improvement comes from modulating the laser frequency (at least for the moderate power provided by the present diode). In contrast, no significant increase was observed for the isotopic mixtures (cells M1 and M2). For all the results presented below, the laser frequency was modulated only for experiments on pure ^{3}He, but not on isotopic mixtures. Note that the required modulation to obtain the largest polarizations should be determined again if different experimental conditions were used (e.g. more powerful laser, different beam size or cell geometry).

Different pumping transitions were studied for each cell. For pure ^{3}He cells, the laser was tuned on the C_8 or C_9 line ($2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$ transitions of ^{3}He) [7]. For ^{3}He–^{4}He mixtures, pumping on the D_0 line (same $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$ transition for ^{4}He) was found to be more efficient. Figure 2 shows the nuclear polarization obtained in pure

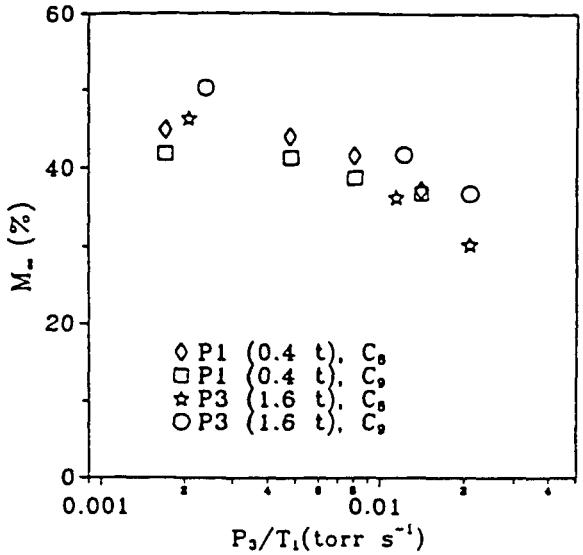


Fig. 2. Steady-state nuclear polarization M_z obtained in cells P1 and P3, which contain pure ^{3}He, plotted as a function of the discharge intensity characteristic parameter P_3/T_1. Using the C_8 line is slightly more efficient at low pressure, while the C_9 line should be preferred at higher pressures. The laser power entering the cell is 50 mW

^{3}He with cells P1 and P3. The largest values of M_z, ranging between 40% and 50%, were obtained for the weakest discharge levels. At the low pressure of 0.4 torr (cell P1), pumping with the C_8 line gives the highest values for M_z, while the C_9 line is more efficient at higher pressure (cell P3). Similar results had previously been observed and explained [7]. Another interesting feature concerns the pumping times T_p, which have been found to be significantly shorter in all situations when the C_9 line was used, even at low pressure where it resulted in lower values of M_z. In all of the following, we shall only present results obtained using the C_9 line for pure ^{3}He (cells P1 to P3). For the rather dilute mixtures which we have studied (cells M1 and M2), pumping using the D_0 line was faster and also led to higher polarizations.

Figure 3 displays the steady state polarizations M_z obtained in all five cells for various discharge levels. The most striking result is that the addition of ^{4}He (in cells M1 and M2) allows one to obtain significantly larger polarizations, up to 80% despite the limited laser power. This confirms earlier observations [8] and agrees with the calculations of [9].

The pumping time T_p which characterizes the polarization increase towards M_z often plays an important role in experiments. It depends both on the discharge intensity, which is characterized by P_3/T_1, and on the laser power, which was kept constant for all experiments. In Fig. 4, we have chosen to plot the combined quantity $M_z P_3/T_p$, which is closely related to the rate of production of magnetization. The largest rate was obtained in the mixture cell M1 (note the logarithmic vertical scale). It results from the largest values of M_z, but also from the fastest pumping times of all five cells. For all cells, larger production rates were obtained when the discharge level was increased. Despite the loss in polarization M_z (see

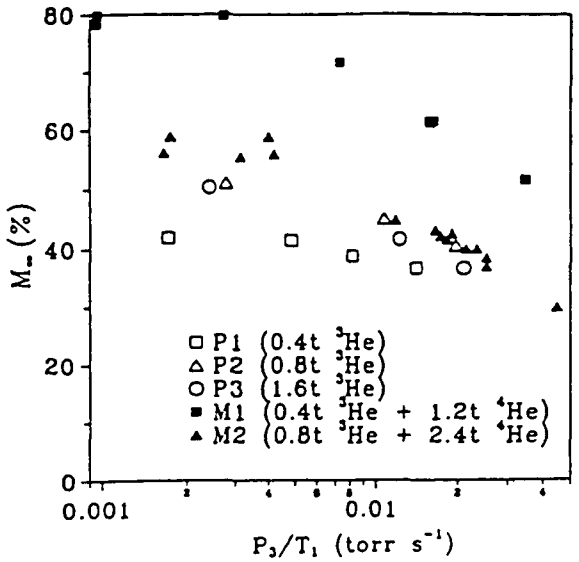


Fig. 3. Comparison of the steady-state nuclear polarizations M_x obtained in different cells, plotted as a function of the discharge intensity characteristic parameter P_3/T_1. A higher polarization is obtained in ^{3}He–^{4}He mixtures (closed symbols) than in pure ^{3}He (open symbols). The D_0 line was used for optical pumping of mixtures, the C_9 line for pure ^{3}He

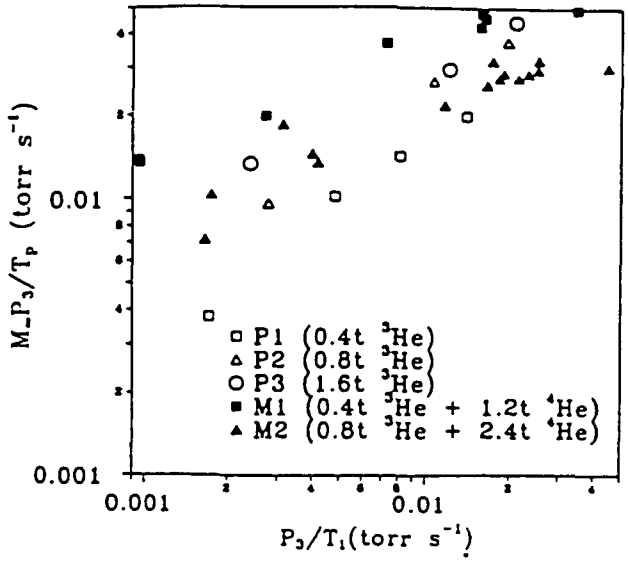


Fig. 4. The measured pumping time T_p and steady-state polarization M_x are combined in a single quantity $M_x P_3/T_p$ related to the production rate of magnetization, as a function of the discharge intensity characteristic parameter P_3/T_1. For a given cell, $M_x P_3/T_p$ increases with discharge intensity, but not as steeply as with a linear dependence (note the two logarithmic scales). Here M_x is expressed as a number smaller than 1 instead of percents

Fig. 3), the increase of the metastable state density, and hence of the laser absorption, efficiently reduces the pumping time. Note however that the production rates do not increase so steeply for the strongest discharge levels. The production rate of nuclear magnetization by the optical pumping process obviously depends on the experimental conditions, but also on the polarization M which is desired. For a given value of M/M_x, the production rate is simply proportional to $M_x P_3/T_p$. If, for instance, one is satisfied with only two-thirds of the steady-state polarization M_x which is plotted in Fig. 3 (this can be still as high as 50%), an interaction time of order $1.1T_p$ with the pumping beam is sufficient. The graph in Fig. 4 also gives the production rate of magnetization, provided the vertical axis is suitably scaled. For instance, if one chooses again $M/M_x = \frac{2}{3}$, the vertical full scale corresponds to a rate of order 10^{17} nuclear spins per second in the 100 cm^3 cells we have studied.

4 Discussion

In summary, we have shown that a 50 mW laser diode operating at 1083 nm is a rather efficient tool to polarize ^{3}He nuclei by direct optical pumping. The use of ^{3}He–^{4}He mixtures can often be preferred if isotopic purity is not required. In mixtures, larger polarizations (up to $M_x = 80\%$) can be obtained, with shorter pumping times.

Commercially available laser diodes already have interesting potential applications in the field of polarized ^{3}He. They are clearly the ideal pumping sources for ^{3}He magnetometers [15]. They can also be considered as an easy tool for the production of compressed polarized helium targets [16], with applications to nuclear [17] and high-energy physics, as well as to neutron spin polarimetry [18]. In the latter case, the admixture of ^{4}He to ^{3}He does not cause any problem, ^{4}He atoms being transparent to neutrons. As the factor of merit of the polarized target is the relevant parameter, the potential advantage of using isotopic mixtures (in which significantly larger polarizations are easily obtained) for neutron spin filters is here demonstrated.

All these target experiments are very demanding in terms of nuclear polarizations and pumping time. More powerful laser diodes are highly desirable and, should they become available, would probably replace currently used lamp-pumped LNA lasers. Possible techniques to obtain a more powerful version of the existing laser diode could be to manufacture monolithic master oscillators and power amplifiers, or laser diode arrays. Our results suggest that the limitations introduced in the optical pumping efficiency by the single-mode operation of laser diodes can easily be overridden by a fast modulation of the laser frequency, and we believe that high-power diodes would be very appealing for the future applications.

Let us finally mention the recent application of polarized ^{3}He to magnetic resonance imaging (MRI). Highly polarized noble gases (^{129}Xe or ^{3}He), when introduced into the lungs of an animal [19–21], or inhaled by a living volunteer [22, 23], can provide clear images of the lungs and show brighter images than conventional proton MRI techniques. So far, the polarized ^{3}He gas used in these preliminary experiments was produced either by direct optical pumping of pure ^{3}He followed by a mechanical compression [16, 23], or by spin exchange with optically pumped rubidium [22]. A high-power laser diode array has been used for the optical pumping of rubidium, but the limited efficiency of the spin exchange mechanism has restricted the production rate to about 10^{17} nuclear spins

per second [22]. In the present work, we have obtained comparable production rates with a 50 mW laser diode. However, as in the work of reference [23], a subsequent compression is required for use in MRI. Admixture of ^{4}He would not be a problem for biological imaging applications, and it can clearly improve the efficiency of optical pumping. Since even moderate polarizations can be sufficient if the production rate is fast enough, laser diodes operating at 1083 nm may become a tool very well-suited to such applications in a medical environment.

References

1. J.S. Major, D.F. Welch: Electron. Lett. 29, 2121 (1993)
2. C. Bohler, B.I. Marton: Opt. Lett. 19, 1346 (1994)
3. C.D. Wallace, D.L. Bixler, T.J. Monroe, F.B. Dunning, G.K. Walters: Rev. Sci. Instrum. 66, 265 (1995)
4. B. Chéron, H. Gilles, J. Hamel, M. Leduc, O. Moreau, E. Noël: J. Phys. III (France) 5, 1287 (1995)
5. C.G. Aminoff, C. Larat, M. Leduc, F. Laloë: Rev. Phys. Appl. 24, 827 (1989)
6. F.D. Colegrove, L.D. Schearer, G.K. Walters: Phys. Rev. 132, 2561 (1963)
7. P.J. Nacher, M. Leduc: J. Physique (France) 46, 2057 (1985)
8. C. Larat, Thèse, Université Paris 6 (France), 1991
9. C. Larat, P.J. Nacher, M. Leduc: in preparation.
10. M. Pinard, J. Van der Linde: Can. J. Phys. 52, 1615 (1974)
11. E. Stoltz, B. Villard, M. Meyerhoff, P.J. Nacher: Appl. Phys. B
12. N. Bigelow, P.J. Nacher, M. Leduc: J. Phys. II (France) 2, 2159 (1992)
13. The lifetime of the transverse magnetization was only limited by static field gradients when the discharge was turned off, but was much shorter whenever the discharge was running. In the latter case, precession lifetime of nuclear spins at the Larmor frequency of the ground state was also limited by metastability exchange collisions
14. M. Elbel, C. Larat, P.J. Nacher, M. Leduc: J. Phys. France 51, 39 (1990)
15. O. Moreau: Thèse, Université de Caen (France), 1995
16. J. Becker et al.: Nuclear Inst. Methods A346, 45 (1994)
17. M. Meyerhoff et al.: Physics Lett. B327, 201 (1994)
18. J. Becker et al.: J. Neutron Res. 1996
19. M. Albert et al.: Nature 370, 199 (1994)
20. H. Middleton et al.: Magn. Reson. Med. 33, 271 (1995)
21. R.D. Black et al.: Radiology (in press)
22. J.R. MacFal et al.: Radiology (submitted)
23. M. Ebert et al.: Lancet

Appendice B

Article à paraître dans Applied Physics B (Lasers and Optics)

Appl. Phys. B 63, III–III (1996)

Mastercopy
Please insert your corrections in this copy and send this copy to the publisher

Applied Physics B Lasers and Optics
© Springer-Verlag 1996

Polarization analysis of the light emitted by an optically pumped ^{3}He gas

Eric Stoltz, Bérengère Villard, Michael Meyerhoff, Pierre-Jean Nacher

Laboratoire Kastler Brossel*, Département de Physique de l'Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, F75231 Paris
(Fax: ■ ■ ■, E-mail: ■ ■ ■)

Received: 26 February 1996/Accepted: 11 June 1996

Abstract. Optical measurements of the nuclear polarization M of an optically pumped pure ^{3}He gas have been performed. They consist in monitoring the circular polarization of various helium lines emitted by the discharge. We have demonstrated the possibility to use the orange line (587.6 nm) to measure M and we have calibrated this technique over the pressure range 0.4–6.5 Torr. The circular polarization of the light has been analyzed using a new device which includes a static polarimeter and photodiodes as light sensors. The intensity of the discharge was modulated and the detection was made at the frequency of modulation.

PACS.: 32.50F; 67.65; 07.60F

Optical pumping is an efficient way to prepare out of equilibrium nuclear polarization of ^{3}He in a helium gas. Large values of nuclear polarization M (M up to 80% [1]) are obtained using a laser in a low-pressure gas (pressure P_3 of order 1 Torr) at room temperature. The measurement of the nuclear polarization M can be done using a direct magnetic measurement (static magnetometry [2] or Nuclear Magnetic Resonance NMR [3]). Optical measurements are also widely used to measure the nuclear polarization. They require a discharge to populate excited ^{3}He levels but the same discharge as for the optical pumping can be used. Among these optical techniques, the absorption of 1.08 μm resonant light (the same transition as for optical pumping) is a good way to measure Zeeman populations in the 2^3S_1 state and deduce the nuclear polarization M [1], but this method requires a probe laser. Another technique, easier to use, consists in monitoring the rate of circular polarization of the light emitted by the discharge. It has been studied in great detail in the case of red helium $3^1D \rightarrow 2^1P$ line at 667.8 nm [1]. Actually, the use of other fluorescence helium lines is also possible and worth studying. In a pioneering work [4], Laloë introduced an analysis of the polarization distribution of the emission spectrum and checked whether the various atomic lines were polarized when optical pumping was performed using a discharge lamp. The theoretical analysis of [4] can only be applied to spin singlet states in ^{3}He, because they are valid only when the hyperfine structure of the initial state of the transition is much smaller than its fine-structure splitting. Moreover, the actual polarization of a given line is reduced by cascading and collision effects; this was demonstrated for three lines [5] corresponding to the decay of n^1D states ($n = 5, 4, 3$), including the previously mentioned red line.

In this work we have studied the polarization of the visible lines which are intense enough to easily provide accurate measurements. The only significantly polarized lines are the usual red line and the orange $3^3D \rightarrow 2^3P$ line at 587.6 nm. We report results concerning the circular polarization of the orange line in nuclearly polarized pure ^{3}He under a large range of experimental conditions (^{3}He pressure, nuclear polarization, discharge conditions). For these measurements, we have used a static polarimeter which is also described and discussed in the first part of this paper.

1 Experimental setup

Figure 1 shows the experimental setup which consists of two distinct parts: the optical pumping system (including the helium cell) and the polarization analysis system for the light emitted by the discharge.

1.1 Cell and optical pumping system

The helium cells we have used in the present experiment are the same as the ones used in the experiment reported in [1]; they consist of pyrex cylinders, 5 cm in length and 5 cm in diameter, filled with ^{3}He and sealed after filling.

* Laboratoire associé au Centre National de la Recherche Scientifique et à l'Université P. M. Curie

3 4 0 0 8 9 4 B
Journal number | Manuscript number
Dispatch: 19/8/96 Journal: APB
No. of Pages: 6 pages
MACMILLAN
Editor
India

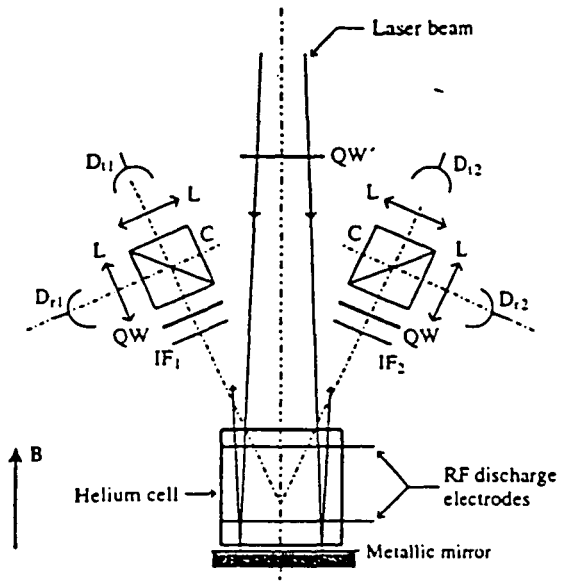


Fig. 1. Schematic view of the experimental setup. The ^{3}He gas is enclosed in a cylindrical glass cell. A weak rf discharge is sustained by a high voltage applied to external electrodes. The 1083 nm light of the laser beam is circularly polarized by the quarter-wave plate QW'. Two static polarimeters are used to analyze the circular polarization of the visible light emitted by the discharge at a small angle with respect to the vertical common axis of the magnetic field and pumping beam. Each polarimeter consists of a line selecting filter IF, a quarter-wave plate QW, a polarizing beam splitting cube C, and two lenses L (f = 51 mm) which produce images of the center of the cell onto the silicon photodiodes D_t and D_r (Hamamatsu S1337-66BR)

A rf discharge is induced in the cell by two thin wire electrodes wrapped around the circumference of the cell, one at each end. Most of the measurements described in this paper are performed using a 3.3 MHz discharge frequency. We have checked that data obtained with two frequencies 3.3 and 15 MHz are identical.

The cell is centered in a static magnetic field B, of order 0.3 mT, co-axial with the axis of the cell. The field is homogeneous enough that we can perform an efficient optical pumping. Working in such a low field ensures that the measured values of the circular polarization $\mathscr{P}$ only slightly differ from the relevant values in the zero field limit. The field dependence results from the partial decoupling of the nuclear and electronic variables due to the competition of the Zeeman and hyperfine terms in the atomic Hamiltonian [4]. In the low field magnitude we have used, the corrections on the $\mathscr{P}$ values are known to be less than 1% for the red line [1, 4]. They are expected to be even smaller for the orange line because the hyperfine terms are larger for triplet states.

The optical pumping beam propagates along the field axis. It is generated either by a 50 mW laser diode which can provide a fair amount of polarization [6] or by the more powerful LNA laser used in [1].

Finally, a set of crossed induction–detection NMR coils (not shown in Fig. 1) is installed in the vicinity of the cell. By saturating the NMR transition, we are able to establish the $M = 0$ state. Pulsed NMR measurements can also be performed to monitor the nuclear polarization M.

1.2 Polarization analysis of the discharge light

The light emitted by the helium cell is observed at a small angle α from the magnetic field B (α less than 10°). An efficient technique to analyze the circular polarization of the collected light was introduced by Laloë [4]. It consists in using a photomultiplier and a polarimeter made of a quarter-wave plate continuously rotating at a frequency Ω on an air cushion bearing followed by a linear polarizer. The signal is detected on a lock-in amplifier at the frequency 2Ω.

In this work, we have used a different device to analyze the circular polarization of the light. It is more compact ($16 \times 16 \times 5$ cm^3), made from amagnetic materials, and it does not need any compressed air. The circular polarization of the light is analyzed using a polarimeter consisting of a quarter-wave plate QW followed by a polarizing beam splitting cube C. The optical axes of the quarter-wave plate stand at an angle of 45° to the sides of the polarizing cube, so that an incident circularly polarized light is either transmitted or internally reflected by the cube. The light from the central region of the discharge is imaged onto two photodiodes D_t and D_r. A bandpass interference filter IF is used to select a single fluorescence line. The sensitivity of the photodiodes abruptly falls down above 1 μm, making the device essentially insensitive to the pumping light at 1.08 μm. Applying the pumping beam does not affect the detection signals provided $M = 0$ (for instance when the laser is mistuned).

The rate of circular polarization $\mathscr{P}$ of the light we wish to measure is defined as

$$\mathscr{P} = \frac{I(\sigma_+) - I(\sigma_-)}{I(\sigma_+) + I(\sigma_-)}, \tag{1}$$

where $I(\sigma_+)$ (respectively $I(\sigma_-)$) is the intensity of the σ_+ (respectively σ_-) polarized light emitted by the discharge. The originally σ_+ polarized light illuminates one photodiode, whereas the σ_- polarized light creates a current in the other photodiode. Signals proportional to the sum and the difference of the two photocurrents, respectively Σ and Δ, are generated using simple electronics [7].

Were we working with perfect optical components and an ideal detection electronics, the polarization rate would simply be written as $\mathscr{P} = \Delta/\Sigma$. Actually, various imperfections are, in practice, unavoidable. First, there exists some interference between the rf discharge and the detection electronics. Special care was exercised to reduce this interference to small contributions to Δ and Σ (of order 2%) which are measured by blocking the light entering the polarimeter. Second, the imperfect balance of the detection also introduces an offset to Δ, which is measured when $M = 0$ (before measurements, when no pumping laser beam reaches the cell and light is then still unpolarized, the polarimeter is positioned so as to maximize Σ, and almost cancel Δ). Finally the imperfections of the polarizer, wave plate and polarizing cube as well as the defects of the detection electronics have to be considered. They can be accounted for using a simple scaling factor ε which is found to vary from 0.93 to 0.96 depending on the device and the wavelength [8].

The device described here can be used to monitor the circular polarization of a steady discharge. This method was used by Moreau [9] with a somewhat similar device. However, this detection is extremely sensitive to stray light and requires a dark environment. Instead, we prefer to modulate the intensity of light of the discharge: this is obtained by simply modulating the amplitude of the rf excitation. The signals Δ and Σ are thus modulated and phase-sensitive detectors are used to measure the amplitudes of the modulations, which we shall also call Δ and Σ for simplicity. Since $\mathscr{P}$ only depends on ratios of Δ and Σ, (1) also applies to the modulated parts of the signals.

A complete rectangular chopping of the discharge produces large detected signals, but the optical pumping process is slightly less efficient than for a steady discharge. Deeply modulated discharges generally create a faster relaxation of the nuclear polarization, which results in a relative loss of M of a few percent. We have checked however that despite this decrease in M, the ratio $M/\mathscr{P}$ is unaffected by the discharge modulation. In most cases, we have used a 30% sine modulation of the rf excitation which affects the optical pumping process only in a negligible way. As for the frequency of the modulation, we have tried different values. A fast modulation does not affect the number of atoms in the metastable state which have a long lifetime (of order 1 ms), limited only by diffusion to the walls of the cell. This would most resemble an unmodulated discharge, which leads to the highest M values. Practical limitations of our detection electronics (bandwidth, voltage noise gain) have led us to choose modulation frequencies from 1 to 10 kHz. Within this frequency range, results on two cells filled with 0.8 and 3.15 Torr of ^{3}He have not shown any effect of the frequency of modulation on the nuclear polarization M. All the measurements presented in the following have been performed using a 1 kHz amplitude modulation of the discharge.

Although more intricate, the modulation technique allows us to get rid of the drawbacks of a daylight shielding, and it contributes to increase the signal to noise ratio eliminating the low-frequency components of the noise.

2 Experimental results

2.1 Experimental procedure

In order to compare the circular polarizations $\mathscr{P}$ for both the red and the orange lines under a large range of experimental conditions (^{3}He pressure, nuclear polarization, discharge conditions), we use two similar polarimeters fitted with different interference filters. For each cell filled with a given ^{3}He pressure and for a given discharge level, we perform a sequence of operations, yielding data traces for the output signals Δ and Σ of each device. From these signals, we calculate the values of the circular polarization $\mathscr{P}$ of each line. Figure 2b shows the evolution of the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ of the orange line during such a measurement sequence. The data have been obtained for a very weak discharge in a cell filled with 0.8 Torr of pure ^{3}He.

During a measurement sequence, the discharge is kept at a constant level and the Σ output signals of each device, Σ_{red} and Σ_{or}, which measure the total amount of light of each line generally fluctuate by less than 1%. The Δ signals, respectively Δ_{red} and Δ_{or} for each device, are recorded using a microcomputer; the sampling period is 50 ms, much shorter than the chosen time constant of the lock-in amplifiers (1 s).

A typical measurement sequence of the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ is shown in Fig. 2. The laser beam is tuned to an efficient pumping transition [6] and one waits until the nuclear polarization reaches its steady state value M_x. Δ_{red} and Δ_{or} are recorded while M is kept unchanged; they remain constant and so does the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ (part 1 in Fig. 2). After a minute or so, the pumping beam is blocked. The nuclear polarization begins to decay with a time constant T_1 which depends on the discharge level, and is typically of the order of 1 min. During this time, the signals Δ_{red} and Δ_{or}, and therefore $\mathscr{P}_{or}$, decrease with the same time constant T_1 (part 2 in Fig. 2). The nuclear polarization of the gas is then driven to zero using a continuous wave, saturating NMR excitation for a few seconds. The Δ signals abruptly fall back to their initial offset values, and are recorded for a few minutes. During this time, the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ is equal to zero (part 3 in Fig. 2.). The pumping beam is then turned on again, illuminating the cell. The circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ increases as the nuclear polarization builds up with a time constant T_p (part 4 in Fig. 2). The values we use for T_1 and T_p are the results of the analysis of parts 2 and 4 based on exponential fits of our data.

Figure 2 shows the ratio $\mathscr{P}_{or}/\mathscr{P}_{red}$ of the circular polarizations of the orange and red lines during the same measurement sequence. Within the accuracy of our mea-

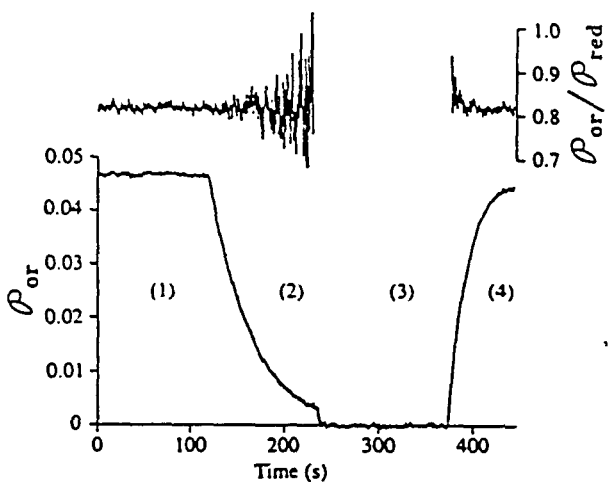


Fig. 2. (*lower trace*): time evolution of the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ emitted on the orange line (587.5 nm). Part 1: steady-state situation, pumping beam applied; part 2: the beam is blocked, the polarization decays exponentially with a time constant T_1; at $t = 240$ s, the remaining nuclear polarization is destroyed, and $M = 0$ during all of part 3; the pumping beam is then applied again (part 4), and the polarization recovers exponentially its steady-state value. (*upper trace*): ratio $\mathscr{P}_{or}/\mathscr{P}_{red}$ of the circular polarizations of the orange and red (668 nm) lines. It remains constant within experimental accuracy, so that both $\mathscr{P}_{or}$ and $\mathscr{P}_{red}$ are proportional to the nuclear polarization M (see text)

surements, this ratio remains constant, independent of the nuclear polarization M. Bigelow et al. [1] have demonstrated that, for given experimental conditions (^{3}He pressure, discharge level), the circular polarization $\mathscr{P}_{red}$ of the red line is proportional to M (M ranging from 15% to 75%) to a good accuracy. Our measurements, as in Fig. 2, reveal that the circular polarizations $\mathscr{P}$ of the red and orange lines are proportional to each other at every moment. We can thus conclude that the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ of the orange line is also proportional to the nuclear polarization M. The conversion factor $M/\mathscr{P}$ for the orange line may thus be measured for one single value of M. We have chosen this value to be the steady-state value M_x already mentioned because the signals $\Delta_{red}(M_x)$ and $\Delta_{or}(M_x)$ are determined with a better accuracy than for transient values of the nuclear polarization.

As mentioned in the introduction, we wish to be able to use the circular polarization of lines other than the red one to measure the nuclear polarization M of a helium gas. With this object, we have to determine the conversion factor $M/\mathscr{P}$ for these lines. This determination is the main point of this work.

2.2 Intermediate results. Discussion of the experimental conditions: ^{3}He pressure, discharge level

The measurements of the circular polarizations $\mathscr{P}$ of the red and orange lines incidentally enable us to know the intensities of light of these lines, which are proportional to the signals Σ. The measured ratio Σ_{or}/Σ_{red} is about 0.7 for all the ^{3}He pressures and the discharge levels. It is appreciably lower than quoted in usual references [10], but is consistent with a more recent measurement [11].

We have measured the relaxation rate $1/T_1$ in different cells filled with ^{3}He pressures P_3 ranging from 0.4 to 6.45 Torr. For a given ^{3}He pressure P_3, $1/T_1$ increases almost linearly with Σ (by a factor of order 20 when the intensity of the red line increases by a factor of 10). Both quantities $1/T_1$ (or P_3/T_1) and Σ are thus just as convenient to characterize the discharge level, but the relaxation rates can be preferred as intrinsic quantities which do not depend on the sensitivity of a detection device. In order to compare results obtained for different pressures, we have chosen to characterize the discharge level by the ratio P_3/T_1. One reason for this choice is that, for a given cell volume, it is the relevant parameter which measures the loss rate of magnetization in the gas, just balanced by the net angular momentum deposited by the pumping beam. Another reason is that the threshold below which discharges vanish correspond to comparable values of P_3/T_1 for all cells, of order 2×10^{-3} Torr s^{-1}, and all cells have thus been studied over a common range of values of P_3/T_1. When the pressure is varied, and for a given value of the ratio P_3/T_1, the intensity of the collected light decreases as the pressure is increased. For instance, Σ is divided by about 10 when the cell containing 0.4 Torr is replaced by the 4.5 Torr cell. The last remark, combined with the fact that both signals Δ and Σ are proportional to the intensity of light of the considered line, points out that the signal to noise ratio may deteriorate when working closer and closer to the threshold in a cell of higher and higher ^{3}He pressure. This explains the absence of measurements in the following at very low relaxation rates for the cells containing 4.5 and 6.45 Torr of pure ^{3}He.

Nevertheless, in a cell filled with a given ^{3}He pressure, it may not be so astute to work with a high discharge level, too far from the threshold of the discharge. For low-pressure cells (less than 1.6 Torr), when a 50 mW laser diode is used for optical pumping [6], M_x decreases from an average value of about 50% for a weak discharge (P_3/T_1 of order 2×10^{-3} Torr s^{-1}) down to 30% for a bright discharge (P_3/T_1 of order 3×10^{-2} Torr s^{-1}). The values of M_x for high-pressure cells (greater than 1.6 Torr) are much smaller and exhibit the same behavior as P_3/T_1 increases. So, for a given pressure of ^{3}He in the cell, although the total amount of light received by the photodiodes increases as P_3/T_1 also increases, the nuclear polarization M_x appreciably decreases. Therefore, one should not expect a tremendous improvement in the signal to noise ratio using bright discharges.

To summarize, the most precise measurements should be obtained for rather strong discharges in low-pressure cells (less than 1.6 Torr). The signal to noise ratio may become embarrassing in high-pressure cells (greater than 1.6 Torr) which emit little and poorly polarized light on each considered line.

2.3 Results concerning the polarization of the orange line

We report here the results of the conversion factor $M/\mathscr{P}_{or}$ for the orange line. The values of M_x are deduced from the measurement of the circular polarization $\mathscr{P}_{red}$ of the red line applying the conversion factor $M/\mathscr{P}_{red}$ for the red line given in [1]. We simply divide M_x by the steady-state value of the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ of the orange line to get $M/\mathscr{P}_{or}$.

The dependence on pressure of the conversion factor $M/\mathscr{P}_{or}$ for the orange line has been investigated between 0.4 and 6.45 Torr. For each studied cell at a given ^{3}He pressure, we have measured the values of $M/\mathscr{P}_{or}$ as a function of P_3/T_1. Results obtained for two cells containing respectively 0.8 and 4.5 Torr of ^{3}He are shown in Fig. 3. We have plotted the values of the conversion factor $M/\mathscr{P}_{or}$ vs P_3/T_1 on a semilogarithmic scale. These results are obtained using a laser diode of 50 mW output power for the optical pumping in the low-pressure cell. For the 4.5 Torr cell, the LNA laser of total power 1.5 W is also used in order to enhance the nuclear polarization M_x and therefore the signal to noise ratio. The most striking point is that, for the 0.8 Torr cell, the conversion factor $M/\mathscr{P}_{or}$ for the orange line depends on the discharge level. Actually, low-pressure cells (up to 3.15 Torr) all exhibit the same kind of marked dependence on P_3/T_1. This dependence has not found any explanation yet. This observation is all the more surprising as it is in total contrast with previous measurements made on the red line [1]. In the present experiment, pulsed NMR measurements have also been performed. Combined with circular polarization analyses, they confirm that, for a given ^{3}He pressure, the ratio $M/\mathscr{P}_{red}$ for the red line does not depend on the discharge intensity and that the ratio $M/\mathscr{P}_{or}$ for the orange line does depend on it. For higher ^{3}He pressures, as 4.5 Torr for

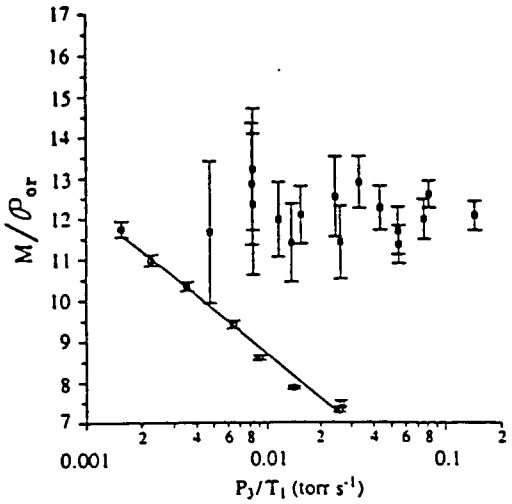


Fig. 3. Ratio of the nuclear polarization M to the circular polarization $\mathscr{P}_{or}$ of the 587.5 nm orange line, plotted for various discharge intensities, characterized by the normalized relaxation rate P_3/T_1. Open circles: the ^{3}He pressure is $P_3 = 0.8$ Torr. The best-fitting straight line in this semilogarithmic plot is only a convenient way to represent data. Similar plots are obtained for pressures $P_3 \leq 3.15$ Torr. Filled squares: $P_3 = 4.5$ Torr. The accuracy of each measurement is limited by the weakness of the light emitted by the discharge at this higher pressure. In contrast with the low-pressure situation, the ratio $M/\mathscr{P}_{or}$ seems to be independent of the discharge intensity

instance, the conversion factor $M/\mathscr{P}_{or}$ for the orange line, within the accuracy of our measurements, remains roughly constant as we change the level of the discharge.

In Fig. 3 are also shown the experimental error bars; they arise from the measured signal to noise ratio. As may be expected from the observations of Sect. 2.2, whatever the discharge level, the uncertainty on $M/\mathscr{P}_{or}$ is much larger for the 4.5 Torr cell (the most pessimistic uncertainty is about 28%) than for the 0.8 Torr cell (4% in the worst conditions). We also note that for a given cell, the uncertainty on $M/\mathscr{P}_{or}$ depends on the discharge level. The loss of signal due to the declining nuclear polarization for high-level discharges is more than counterbalanced by the increase of the signal caused by the rising intensity of light.

The systematic dependence of $M/\mathscr{P}_{or}$ on P_3/T_1 observed in low-pressure cells (up to 3.15 Torr) happens to be reasonably linear when plotted on a semilogarithmic scale. The conversion factor $M/\mathscr{P}_{or}$ can therefore be written as

$$M/\mathscr{P}_{or} = (M/\mathscr{P}_{or})_{threshold} + s \log\left(\frac{P_3/T_1}{2\times 10^{-3}}\right). \quad (2)$$

The parameters $(M/\mathscr{P}_{or})_{threshold}$ and s are displayed in Table 1 for different sample pressures. The value $(M/\mathscr{P}_{or})_{threshold}$ given in column 2 corresponds to $P_3/T_1 = 2\times 10^{-3}$ Torr s^{-1}, a value close to the threshold of the discharge. The slopes s given in column 3 are obtained from least-square fits. An example of such a fit is represented in Fig. 3. Up to 3.15 Torr, the slope s is roughly constant and of order $s = -1.5$. Estimated error

Table 1. Results concerning the ratio $M/\mathscr{P}_{or}$ for the orange line, obtained for various ^{3}He pressures P_3. The parameters $(M/\mathscr{P}_{or})_{threshold}$ and s of (2) are given as well as experimental error bars on $M/\mathscr{P}_{or}$ for discharge levels near threshold

P_3 (Torr)	$(M/\mathscr{P}_{or})_{threshold}$	Slope s	Error bar
0.4	10.65	− 1.39	0.15
0.8	11.20	− 1.56	0.2
1.0	12.43	− 1.85	0.3
1.6	12.75	− 1.38	0.4
3.15	14.58	− 1.42	0.6
4.5	12.36	0	1.5
6.45	13	0	4

bars on the value of $M/\mathscr{P}_{or}$ for discharge levels close to threshold are given in column 4.

2.4 Results concerning other spectral lines

As mentioned in the introduction, only some of the lines are expected to be both fairly bright and polarized. Among the lines having the larger intensity, and beside the red and orange lines, we have made polarization measurements on the green (502 nm) and infrared (706 and 728 nm) lines, for which no polarization had been previously observed [4].

The infrared lines are emitted by atoms in the 3^1S of 3^3S state. In the singlet state, the electronic angular momentum is $J = 0$, and cannot be oriented. For the triplet state, the electron spin can be oriented by hyperfine coupling, but the total fluorescence light (including all fine-structure components) is not polarized by this process [4]. These reasons explain that we have not observed any polarization of the infrared lines in spite of the large nuclear polarization of the ground-state atoms.

We also measured the circular polarization of the green line studying only two different cells containing 0.8 and 3.15 Torr of ^{3}He. For large values of the nuclear polarization M (of order 20% or more) and various discharge levels, the circular polarization $\mathscr{P}_{gr}$ of the green line is very low, of order 0.1%. The green line is emitted by the 3^1P state, in which hyperfine coupling could in principle induce a polarization of the fluorescence line. Nevertheless, the very short lifetime and the weak hyperfine structure splitting of the level can explain the low values observed for $\mathscr{P}_{gr}$ [4]. The signal to noise ratios on such measurements are rather poor and our determination of $M/\mathscr{P}_{gr}$ is fairly inaccurate, but we think that the use of the green line to measure the nuclear polarization is of no practical value because of the low polarization of the light, at least for the experimental conditions we have studied.

3 Conclusion

The present work provides another method of measurement of the ^{3}He nuclear polarization which is simple to operate and is calibrated over a pressure range of 0.4–6.5 Torr. It consists in analyzing the circular polarization of the orange line at 587.6 nm. In a previous work [1], the

measurement of the nuclear polarization was based on the analysis of the polarization of the red line at 667.8 nm. The authors found a conversion factor $M/\mathcal{P}_{red}$ which greatly depends on the ^{3}He pressure in the cell ($M/\mathcal{P}_{red}$ ranging from 6 at 0.15 Torr up to 17.5 at 6.5 Torr) but does not depend on the discharge conditions (rf frequency, discharge level). For the orange line studied in this work, the conversion factor $M/\mathcal{P}_{or}$ we have measured only slightly depends on the sample pressure, as can be seen in Table 1, but exhibits a clear dependence on the discharge level. This dependence can be regarded as a major drawback of the use of the orange line and may lead one to prefer the analysis of the circular polarization of the red line. However, if the ^{3}He pressure in the cell is ill-known, one may reap benefit from the fact that $M/\mathcal{P}_{or}$ is rather insensitive to the ^{3}He pressure and use the orange line to monitor the nuclear polarization. Besides, although the orange line is a little less intense than the red one, its circular polarization for a given nuclear polarization is larger at high pressures. Such considerations, in terms of signal to noise ratio, may also be favorable to the use of the orange line when working at high ^{3}He pressures. Naturally, if the ^{3}He pressure in the cell is rather low and precisely known, one would better keep using the red line to measure the nuclear polarization.

Another possibility would consist in selecting both red and orange lines using a simple color glass filter which transmits more light than an interference filter. Provided the filter is chosen adequately to eliminate light from the unpolarized lines, this method would significantly enhance the signals.

Actually, the detection method has to be matched to the accuracy required for the nuclear polarization measurements. The best absolute accuracy would probably be obtained using an absorption technique [1]. If one only wants a good sensitivity using a simple device, the circular polarization analysis as described in this paper should be preferred. The device to analyze the polarization presented here is compact, easy to handle and the signal to noise ratios obtained with it are comparable to those obtained using a rotating polarimeter.

In conclusion, we want to stress the point that if the present numbers are to be used under different experimental conditions, much care must be taken to correctly interpret the data. In particular, the imperfections of the optical analyzers must be measured separately. In addition, we have not studied the influence of the shape or the size of the cell. Considering that the discharge conditions may depend on the geometry of the cell, the conversion factor $M/\mathcal{P}_{or}$ we give for the orange line may not be universal.

References

1. N.P. Bigelow, P.J. Nacher and M. Leduc: J. Phys. II France 2, 2159 (1992)
2. C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, S. Haroche and F. Laloë: Rev. Phys. Appl. 5, 102 (1970)
3. W. Lorenzon, T.R. Gentile, H. Gao and R.D. McKeown: Phys. Rev. A 47, 468 (1993)
4. M. Pavlovic and F. Laloë: J. Phys. France 31, 173 (1970); F. Laloë, Thèse d'état (Paris), Ann. Phys. France 6, 5 (1971)
5. M. Pinard and J. van der Linde: Can. J. Phys. 52, 1615 (1974)
6. E. Stoltz, M. Meyerhoff, N.P. Bigelow, M. Leduc, P.J. Nacher and G. Tastevin: submitted to Appl. Phys. B
7. Details on the electronics, and especially on the low noise current to voltage conversion will be given in E. Stoltz, PhD thesis, and will be mailed on request
8. The polarimeter imperfections essentially arise from its optical elements. In addition to the inaccurate retardation of the quarter-wave plate, one must take into account the fact that the transmission of the polarizing cube does not exceed 95%. Therefore, a non-negligible contribution of the orthogonal polarization is found in the reflected beam. All (small) defects can be accounted for using a simple model, leading to a scaling factor ε. Details on this model, and on the method we have used to measure the various defects, will be given in E. Stoltz, PhD thesis, and will be mailed on request.
9. O. Moreau: Thèse de l'Université de Caen (1995) p. 65
10. American Institute of Physics Handbook, Third Edition (McGraw-Hill, New York 1972) 7.32; Handbook of Chemistry and Physics, 68th edition (CRC Press, Boca Raton 1987) E. 239
11. C. Mies: Diplomarbeit Institut für Physik, Mainz, Germany (1992) p. 55

Table des matières

I Montage expérimental. 4

1 Préparation d'un échantillon liquide d'une solution d'hélium 3 polarisé dans l'hélium 4. 5

1.1 Une nouvelle source laser pour le pompage optique de l'hélium 3. 5

1.1.1 Une diode laser à $1.08\mu m$. 5

1.1.2 Performances du pompage optique dans un gaz d'hélium 3 pur et dans des mélanges isotopiques. 6

1.2 Mesure optique de l'orientation nucléaire à température ambiante. 7

1.2.1 Analyse de la polarisation lumineuse : dispositif expérimental. 7

1.2.1.1 Principe de fonctionnement. 7

1.2.1.2 Mesure des imperfections du polarimètre. 8

1.2.1.3 Détails concernant l'électronique de détection. 12

1.2.2 Calibration de la technique pour la raie orange ($587.6nm$). 14

1.3 Cryogénie. 15

1.3.1 Dispositif expérimental. 15

1.3.2 Mesure des températures. 16

1.3.2.1 Nature des thermomètres utilisés. 16

1.3.2.2 Calibration des thermomètres. 17

1.3.2.3 Discussion : précision ou sensibilité. 19

1.4 Les doubles cellules. 20

1.4.1 Introduction. 20

1.4.2 Caractéristiques géométriques. 20

1.4.3 Thermalisation des cellules au réfrigérateur. 22

1.4.4 Distribution des atomes d'hélium 3 dans une cellule. 23
1.4.5 Remplissage des cellules. 25
1.4.6 Circulation des atomes d'hélium 3. 26
1.4.6.1 Origine de la circulation. 26
1.4.6.2 Calcul du débit molaire d'hélium 3. 27
1.4.6.3 Vérification expérimentale. 29
1.4.7 Rôle du césium dans les cellules. 29

2 Détection radioélectrique de l'aimantation. 32
2.1 Le champ magnétique statique $\mathbf{B}_{ext}$. 32
2.1.1 Production d'un champ adapté aux doubles cellules. 32
2.1.2 Homogénéité du champ statique. Bobines de gradient de champ. . . . 34
2.2 Le dispositif RMN. 38
2.2.1 Les bobines inductrices. 38
2.2.2 Le circuit de détection. 40
2.2.2.1 Les bobines détectrices. 40
2.2.2.2 Le solénoïde détecteur. 43
2.2.2.3 Le dispositif électronique. 46

II Etude théorique de l'effet du champ dipolaire dans un échantillon fortement aimanté. 47

3 Effet du champ dipolaire dans un échantillon uniformément aimanté contenu dans un tube cylindrique droit et infini. 48
3.1 Introduction. 48
3.2 Calcul du champ dipolaire. 49
3.3 Evolution temporelle de l'aimantation $\vec{\mathcal{M}}$. 50
3.4 Stabilité. Limites du modèle. 52

4 Effet du champ dipolaire dans un tube long et étroit en forme de U : un modèle qualitatif et didactique. 54
4.1 Hypothèses du modèle. 54
4.2 Solutions stationnaires de l'équation de Bloch. 56

4.3 Discussion. 57
4.3.1 Modes stationnaires confinés dans le fond du tube en U. 57
4.3.2 Modes semi confinés dans les branches verticales du tube en U. 59

5 Effet du champ dipolaire dans un tube long et étroit en forme de U : un modèle plus quantitatif. 62

5.1 Forme générale. 62
5.2 Différentes expressions pour le champ dipolaire dans le tube en U. 63
5.2.1 Approximation du cylindre tangent. 63
5.2.2 Approximation asymptotique. 65
5.2.3 Ecriture de la contribution du terme dipolaire à l'équation de Bloch. . 66
5.3 Quelques ingrédients réalistes supplémentaires. 67
5.4 Résolution de l'équation de Bloch. 69
5.4.1 En l'absence d'amortissement ($\mathcal{D} = 0$). 69
5.4.1.1 Méthode variationnelle. 70
5.4.1.2 Méthode numérique d'inversion. 70
5.4.2 Effets de l'amortissement lié à $\mathcal{D}^{diff}$. 79
5.4.2.1 Approche pertubative. 79
5.4.2.2 Approche intégralement numérique. 83
5.5 Calcul de spectres en fréquence de signaux de précession libre. 86

6 Discussion. 88

III Résultats expérimentaux. 90

7 Caractérisation des modes amortis d'aimantation. 91

7.1 Allure qualitative générale du spectre en fréquence d'un signal de précession libre. 91
7.2 Traitements numériques des données. 94
7.2.1 Fluctuations de la fréquence de Larmor. 94
7.2.1.1 Observations expérimentales. 94
7.2.1.2 Origines du phénomène. 96
7.2.2 Méthode numérique de recalage des fréquences de précession. 98

7.2.3 Méthode numérique d'analyse du carré du module du signal temporel. 103
7.3 Interprétation quantitative des déplacements en fréquence des spectres RMN. 108
7.3.1 Validité du modèle quantitatif de l'effet du champ dipolaire. 108
7.3.2 Mesure du taux de polarisation nucléaire dans la phase liquide. . . . 113
7.4 Effets de gradients de champ magnétique. 114
7.4.1 Existence de gradients de champ magnétique à proximité de la cellule d'étude. 114
7.4.2 Application de gradients contrôlés de champ magnétique. 116
7.5 Mesures des taux d'amortissement des modes d'aimantation. 118
7.5.1 Mesure des effets du couplage au circuit de détection. 119
7.5.2 Mesure des taux d'amortissement des deux premiers modes d'aimantation. 121

8 Caractérisation thermodynamique des solutions diluées d'hélium 3 dans l'hélium 4. 124
8.1 Observation de la séparation de phase dans des mélanges polarisés. 124
8.1.1 Détection RMN de la séparation de phase. 124
8.1.2 Contrôle thermique de la séparation de phase. 130
8.1.3 Contrôle des conditions expérimentales. 132
8.2 Mesure du potentiel chimique de l'hélium 4 dans des mélanges *non* polarisés. 133
8.2.1 Introduction. 133
8.2.2 Montage expérimental. 135
8.2.3 Résultats des mesures. 137
8.2.4 Discussion. 140

Appendice A 151

Appendice B 157

Liste des figures

1.1 Schéma du dispositif électronique utilisé dans l'analyse de la polarisation circulaire de la lumière émise par le gaz polarisé. 13
1.2 Filtre réalisé pour la mesure des résistances au germanium. 19
1.3 Schéma d'ensemble de la cellule expérimentale n°1, en forme de tube en U. . 21
1.4 Schéma de la cellule d'étude de la cellule expérimentale n°2, en forme de tortillon circulaire. 22
1.5 a: Résultats du calcul des pressions totale et partielle en ^{3}He au niveau de l'interface liquide-vapeur. b: Résultats du calcul de la concentration en ^{3}He dans le liquide au niveau de l'interface liquide-vapeur et au point le plus froid de la cellule. 24

2.1 Vue d'ensemble de l'expérience à l'échelle 1/10. 35
2.2 Carte de champ calculée pour l'ensemble des sept bobines de la figure 2.1. . . 36
2.3 Vue de la cellule d'étude et des bobines de gradient. 37
2.4 Vue d'ensemble du dispositif RMN accompagnant la cellule en forme de tortillon circulaire. 39

4.1 Caractéristiques géométriques du tube en U. 55
4.2 Cylindre élémentaire considéré. 55
4.3 Allure du potentiel et des premiers modes d'aimantation dans le fond du tube en U. Distribution des fréquences propres. 59
4.4 Allure du potentiel et du premier mode d'aimantation au niveau des branches verticales du tube en U. 60

5.1 Approximation du cylindre tangent : coordonnées utilisées. 64

5.2 Approximation asymptotique : coordonnées utilisées. 66
5.3 Fréquences des premiers modes d'aimantation pour une valeur du paramètre a/R=0.03. 73
5.4 Mode fondamental d'aimantation. 74
5.5 Premier mode excité pair d'aimantation. 74
5.6 Effet d'un gradient de champ appliqué sur le premier mode semi confiné. . . 76
5.7 Effet d'un gradient d'aimantation longitudinale. 77
5.8 Compétition entre un gradient de champ appliqué et un gradient d'aimantation longitudinale. 78
5.9 Partie imaginaire du mode fondamental. 82
5.10 Module du mode fondamental d'aimantation. 84
5.11 Variation de la phase du mode fondamental. 85
5.12 Fréquences propres des premiers modes d'aimantation. 85
5.13 Variation des taux d'amortissement des premiers modes d'aimantation. . . . 86
5.14 Calcul du spectre en fréquence d'un signal de précession libre. 87

7.1 Signal électrique enregistré aux bornes des bobines détectrices correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans la cellule d'étude en forme de U. 92
7.2 Amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre de la figure 7.1. 93
7.3 Signal électrique enregistré aux bornes du solénoïde détecteur correspondant à la précession libre de l'aimantation transverse dans la cellule d'étude en forme de tortillon circulaire. 95
7.4 Amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre de la figure 7.3 avant la procédure de recalage des fréquences de précession. 96
7.5 Logarithme du module du signal de précession libre ne correspondant qu'à la précession du mode fondamental d'aimantation. 100
7.6 Fréquence instantanée du mode fondamental. 101
7.7 Amplitude de la transformée de Fourier du module du signal de précession libre de la figure 7.3 à l'issue de la procédure de recalage des fréquences de précession. 102

7.8 Amplitude de la transformée de Fourier du carré du module du signal de précession libre de la figure 7.3. 105
7.9 Amplitude de la transformée de Fourier du carré du module du signal de précession libre de la figure 7.3 (en échelle logarithmique). 106
7.10 Comparaison entre un spectre expérimental (celui de la figure 7.7) et les fréquences calculées des premiers modes d'aimantation. 109
7.11 Ecart entre les déplacements en fréquence des deux modes principaux d'aimantation en fonction du déplacement en fréquence du mode fondamental. . 111
7.12 Amplitude de la transformée de Fourier du signal de précession libre enregistré aux bornes des bobines détectrices dans la cellule d'étude en forme de tortillon circulaire. 114
7.13 Influence de l'application d'un gradient vertical de champ magnétique sur le spectre en fréquence d'un signal de précession libre. 117
7.14 Influence de l'application d'un gradient vertical de champ magnétique sur le spectre en fréquence d'un signal de précession libre (détail de la figure précédente). 118
7.15 Mesure du taux d'amortissement du mode fondamental en fonction de la surtension Q du circuit de détection. 120
7.16 Mesure des taux d'amortissement du mode fondamental et du premier mode excité pair d'aimantation en fonction de l'écart en fréquence de ces deux modes principaux. 122

8.1 Diagramme de phase des mélanges ^{3}He-^{4}He 125
8.2 Spectres RMN obtenus à la température de 290mK. 126
8.3 Amplitude calculée de la transformée de Fourier d'un signal de précession libre dans le cas d'un mélange démixé. 128
8.4 Amplitude calculée des quelques premiers modes significatifs d'aimantation dans le cas d'un mélange démixé. 129
8.5 Observation de différents phénomènes dans la cellule pour des combinaisons différentes de la température T_0 du point le plus froid de la cellule et de la température moyenne T_i de l'interface. 130
8.6 Schéma du dispositif de mesure du potentiel chimique μ_4 par la méthode de London. 135

8.7 Variation calculée de la concentration et de la température le long du tube capillaire rempli d'un mélange de μ_4 uniforme, en présence d'un courant de chaleur variable. 137
8.8 Exemple de variations de la température T_{pur} avec la pression P, et avec le chauffage appliqué. 138
8.9 Variation de la température T_{pur} avec T_0. 139
8.10 Comparaison des mesures à saturation de la figure précédente avec la formule simple de [Klundert 77]. 141
8.11 Comparaison de nos mesures avec les prédictions d'un modèle de solution régulière. 142
8.12 Dépendance de W/R avec la température déduite de nos mesures le long de la courbe de coexistence. 143

Résumé

Le pompage optique laser des mélanges gazeux d'hélium peut fournir, dans un champ magnétique faible, de fortes valeurs de polarisation nucléaire. Une technique thermique efficace qui permet la circulation des atomes d'hélium 3 dans la cellule expérimentale rend possible le transfert, en régime stationnaire, de la polarisation nucléaire du gaz à un échantillon liquide à basse température. La relaxation sur les parois de la cellule est efficacement réduite par l'utilisation de césium métallique. Dans de tels échantillons, fortement aimantés et anisotropes, c'est le champ dipolaire qui contrôle l'évolution de l'aimantation. Des modes amortis d'aimantation sont observés par une technique de RMN pulsée. L'analyse détaillée de leur fréquence et de leur taux d'amortissement donne des informations sur la densité d'aimantation et le coefficient de diffusion de spin dans des mélanges polarisés. Les expériences relatées ici sont réalisées à des températures supérieures à 0.2K dans des mélanges dont la concentration en hélium 3 est au moins de l'ordre de quelques pour cents. Quand survient la séparation de phase, la phase riche en hélium 3 renferme une forte densité d'aimantation. Des résultats préliminaires concernant l'observation de la séparation de phase et la mesure du potentiel chimique de l'hélium 4 sont également donnés dans cette thèse.

Abstract

Laser optical pumping in low magnetic field provides very high nuclear polarizations in gaseous helium mixtures. The transfer of polarized helium 3 atoms to a cold, liquid sample operates in steady states thanks to an efficient thermal technique which drives a circulation of helium 3. Wall relaxation in glass cells is efficiently reduced by using cesium coatings. In highly magnetized samples, dipolar fields control the spin dynamics in anisotropic volumes and weak external magnetic field inhomogeneities. Long-lived magnetostatic modes are observed by pulsed NMR. Detailed analysis of their frequency and damping gives information on magnetization density and spin diffusion coefficient in polarized mixtures. Experiments are performed above 0.2K on mixtures with helium 3 concentrations of the order of a few percent or larger. When phase separation occurs, the helium 3 rich phase retains a high polarization. Preliminary results concerning the observation of the phase separation as well as the measurement of the chemical potential of helium 4 are also reported in this thesis.