



HAL
open science

Dynamique dans les fluides quantiques : Etude des excitations collectives dans un liquide de Fermi 2D

Ahmad Sultan

► **To cite this version:**

Ahmad Sultan. Dynamique dans les fluides quantiques : Etude des excitations collectives dans un liquide de Fermi 2D. Autre [cond-mat.other]. Université de Grenoble, 2012. Français. NNT : 2012GRENY019 . tel-00768021

HAL Id: tel-00768021

<https://theses.hal.science/tel-00768021>

Submitted on 20 Dec 2012

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Ahmad Sultan

Thèse dirigée par **Henri Godfrin**
et codirigée par **Sébastien Triqueneaux**

préparée au sein de l' **Institut Néel, CNRS, Grenoble**
et de l'**École doctorale de Physique, Grenoble**

Dynamique dans les Fluides Quantiques : Étude des excitations collectives dans un liquide de Fermi 2D

Thèse soutenue publiquement le **25 mai 2012**,
devant le jury composé de :

Mr. Jean-Pascal Brison

INAC/CEA et UJF, Grenoble, Président

Mr. George Pickett

Lancaster University, England, Rapporteur

Mr. Henry Glyde

University of Delaware, USA, Rapporteur

Mme Claire Lhuillier

Université Pierre et Marie Curie, Paris, Examinatrice

Mr. Helmut Schober

ILL, Grenoble, Examinateur

Mr. Henri Godfrin

Institut Néel, CNRS et UJF, Grenoble, Directeur de thèse



A la mémoire de mon grand père,

A mes parents et mes frères,

*"In physics, you don't have to go around making trouble
for yourself... Nature does it for you"*
Frank Wilczek

"All science is either physics or stamp collecting"
Ernest Rutherford

Avant Propos

En écrivant ces lignes mon voyage au sein de l'Institut Néel en tant qu'étudiant en thèse s'achève. Il a été riche et mouvementé. Au cours de ce voyage, j'ai connu trois phases : rêve, réalité et cauchemar.

Le rêve commence lorsque vous signez votre contrat de thèse... Un nouveau monde s'ouvre à vous. Vous rêvez déjà être au laboratoire en train de faire vos expériences, vous êtes plein de motivation, vous voulez accomplir beaucoup de projets... Finalement trois ans n'est-ce pas une période assez longue pour atteindre tous vos objectifs ?!

Mais ce n'est qu'en devenant citoyen du monde de la recherche au sein de l'Institut Néel que commence la confrontation avec la réalité. Dans un monde où seulement une poignée de techniciens sont au service de quelques centaines de chercheurs, il faut savoir "se retrousser les manches". Quitte à apprendre à faire de la mécanique, de la soudure ou de la brasure. On finit ainsi par faire soi-même les pièces de sa machine, le tableau de vannes ou même le circuit d'air comprimé... C'est ainsi qu'une course avec le temps s'engage, et même si l'aide technique vous fait défaut, vous avez au moins le soutien des membres de l'équipe.

Mais le voyage que vous imaginiez long arrive très vite à son terme. Vous êtes en troisième année de thèse. C'est à ce moment précisément que vous subissez la plus brutale des transitions de phases. Vous êtes alors amené à revoir à la baisse vos objectifs... Il ne reste que quelques mois pour sortir les résultats, finir tous les projets que vous avez commencés et écrire la thèse... Le cauchemar commence!!! Mais c'est souvent à ce moment là qu'une lueur d'espoir naît dans ce monde d'obscurité... les premiers résultats apparaissent... vous vous acharnez, et les choses commencent à se débloquer. Et même si vous n'avez pas tenu tous vos objectifs vous arrivez néanmoins à obtenir des résultats satisfaisants qui valorisent le travail effectué.

Et c'est alors que vous vous rendez compte que si cette thèse ne fait pas aujourd'hui 0 pages, c'est surtout grâce à toutes ces personnes qui ont été là pour vous aider à aller de l'avant. Et c'est pour cette raison que je tiens ici à les remercier.

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier M. Alain Schuhl, directeur de l'Institut Néel, et M. Etienne Wolf, directeur du département MCBT, pour m'avoir accueilli dans le laboratoire.

Je tiens aussi à remercier toutes ces personnes qui agissent dans les coulisses : le personnel technique et administratif du laboratoire et de la délégation régionale. Et en particulier Alexandra Gasparini qui s'est occupée de mon dossier administratif et des démarches auprès de la préfecture.

J'exprime toute ma gratitude à mon directeur de thèse Henri Godfrin. Sa disponibilité aux discussions, son enthousiasme, sa pédagogie ont été très bénéfiques pour moi tant au plan humain que professionnel. Je le remercie pour tous les bons conseils qu'il m'a donnés. Ces années passées à travailler sous sa direction resteront pour moi un très bon souvenir.

Je tiens à remercier Sébastien Triqueneaux pour avoir codirigé cette thèse malgré son emploi du temps chargé à l'Air Liquide, ainsi que tous les membres de l'équipe UBT, en particulier Eddy Collin dont l'aide m'a été très précieuse. En plus de ses compétences scientifiques, Eddy a su apporter dans

l'équipe de la bonne humeur ainsi qu'un bon stock de bière.

Je remercie les membres du Jury de thèse : M. George Pickett et M. Henry Glyde (rapporteurs), Mme Claire Lhuillier, M. Jean Pascal Brison et M. Helmut Schober, de m'avoir fait l'honneur d'y participer.

Merci encore à M. Helmut Schober pour m'avoir enseigné avec enthousiasme et pédagogie la diffusion neutronique.

Merci à tous ceux qui ont participé directement ou indirectement à cette thèse : l'équipe de physique théorique de l'Institut Kepler à Linz, Eckhart Krotscheck, Martin Panholzer, Helga Böhm ainsi que Hans Lauter pour m'avoir appris beaucoup sur la neutronique et la physique des surfaces.

A tous les chercheurs avec qui j'ai pu avoir des discussions très enrichissantes. Je pense à Björn Fak, Jacques Bossy, Gerard Vermeulen, Elsa Lhotel, Hervé Cercellier, Florence Lévy-Bertrand, Benjamin Canals, Virginie Simonet, Rafic Balou, Mehdi Amara, Julius Ranninger, Konrad Matho...

Ce travail n'aurait pu voir le jour sans le soutien financier de l'Air Liquide dans le cadre d'une bourse BDI avec le CNRS, celui de la Communauté Européenne-Infrastructures de Recherche-FP7 Capacities Specific Programme-MicroKelvin project 228464, et de l'ANR Franco-Autrichienne HighQ-Fermions.

A tous ces amis rencontrés sur le chemin de la physique : Nicolas Martin pour son humour et son soutien durant toutes ces années d'études effectuées ensemble, Pierre Hunger pour tous ces bons moments partagés au laboratoire ainsi que pour ses conseils précieux. A Audrey Grokowiack, Sylvain Hermelin, Maxime Leroux, Martial Defoort, Kunal Lulla, Jonathan Correa...

A tous ceux qui m'ont soutenu durant ces années de thèse. A Béa qui a corrigé une bonne partie des innombrables fautes d'orthographe dans ce manuscrit (malgré son intervention ainsi que celle d'Henri il en reste toujours pas mal). Merci à Veronique, Jean-Claude, Flo, Yohann pour leur soutien. Ainsi qu'à mes amis de Valence : Eric, Sandrine, Fabien, Miguel, Fred, Marie...

Je n'oublie pas de remercier ma famille. Mes parents qui de près ou de loin ont toujours su m'offrir leur soutien. A mon frère Tarek, le "Monsieur Solidworks" pour m'avoir initié à utiliser ce programme afin de dessiner les pièces de la dilution. A mon frère Ziad, le "Dark Vader" de la programmation, et dont les conseils étaient toujours les bienvenus lors de l'élaboration du programme d'analyse des données. A tous mes oncles, mes tantes, mes cousins et cousines, en particulier Andrea, Mirna et Edwina pour leurs encouragements. A mon grand-père à qui je dédie cette thèse et qui a disparu peu de temps avant la fin de l'écriture de ce manuscrit.

Ahmad Sultan

Table des matières

Introduction Générale	9
I. Techniques des basses températures	11
Introduction	13
1 La dilution préfroïdie par un tube à gaz pulsé	15
1.1 Introduction	16
1.2 Quelques notions de thermodynamique	16
1.2.1 Premier principe de la thermodynamique	16
1.2.2 Second principe de la thermodynamique	17
1.3 Le réfrigérateur à dilution classique : Principe de fonctionnement	17
1.3.1 Solutions diluées d' ^3He dans l' ^4He	17
1.3.2 La boîte à mélange	18
1.3.3 L'évaporateur	19
1.3.4 Les échangeurs à basses températures	19
1.3.5 La boîte à 1K	20
1.4 Le réfrigérateur à dilution pré-refroidi avec un tube à gaz pulsé	21
2 Circuit d'injection et pré-refroidissement	23
2.1 Introduction	24
2.2 Le tube à gaz pulsé	24
2.2.1 Principe de fonctionnement	24
2.2.2 Thermodynamique de la machine	25
2.2.3 Caractéristiques de la machine	27
2.2.4 Pré-refroidissement	27
2.3 Le circuit d'injection	29
2.3.1 Pression d'injection	29
2.3.2 L'ancien système d'injection	30
2.3.3 Le nouveau système d'injection	32
2.3.4 Les échangeurs sur le tube à gaz pulsé : conception	32
2.4 Échangeur Joule-Thomson	33
3 PTDR3 : Environnement et caractéristiques générales	35
3.1 Introduction	36
3.2 Sources de chaleur	36
3.2.1 Conduction thermique	36
3.2.2 Rayonnement	37
3.2.3 Convection	37

3.2.4	Vibrations	37
3.3	Thermodynamique de la machine	37
3.4	Puissance frigorifique	37
3.5	Condensation	39
3.6	Étage à désaimantation nucléaire	40
3.6.1	Principe de la désaimantation nucléaire	40
3.6.2	choix du matériau	40
3.6.3	Étage à désaimantation nucléaire sur un cryostat sans fluide cryogénique	41
3.6.4	Conclusion	42
4	Thermométrie	47
4.1	Introduction	48
4.2	Généralités	48
4.3	Les thermomètres résistifs	48
4.3.1	Les thermomètres métalliques	49
4.3.2	Les thermomètres résistifs de carbone	50
4.4	Le thermomètre à sel paramagnétique (CMN)	51
4.4.1	Principe Physique	51
4.4.2	Principe de la mesure	52
4.5	Le thermomètre à blocage de coulomb (CBT)	52
4.5.1	Modèle théorique pour une jonction de résistance R et de capacité C	52
4.5.2	Principe du CBT	53
	Conclusion	55
	II. Neutronique	57
	Introduction	59
5	La diffusion neutronique	61
5.1	Introduction	62
5.2	Le neutron	62
5.2.1	Spectroscopie neutronique	62
5.2.2	Quelques notions utiles	63
5.3	La diffusion nucléaire	64
5.3.1	La section efficace différentielle	64
5.3.2	La longueur de diffusion	65
5.3.3	L'équation maîtresse de la diffusion	65
5.3.4	Le facteur de structure dynamique et la fonction d'autocorrélation de la densité atomique	66
5.3.5	La diffusion cohérente et incohérente	66
5.3.6	Lien avec la théorie de la réponse linéaire	67
5.4	Diffusion inélastique sur des fluides quantiques	67
5.4.1	Cas de l' ^4He	67
5.4.2	Cas de l' ^3He	67
6	La spectroscopie temps de vol	69
6.1	Introduction	70
6.2	La spectroscopie temps de vol	70
6.2.1	Le principe de la mesure	70

6.2.2	Les spectromètres à temps de vol	71
6.2.3	Le choix d'un instrument adapté	72
6.3	L'instrument IN6	73
6.3.1	Le monochromateur	73
6.3.2	Le filtre Béryllium	74
6.3.3	Le chopper de Fermi	74
6.3.4	Le collimateur	75
6.3.5	Le chopper anti-overlap	75
6.3.6	Les détecteurs	75
6.3.7	Les moniteurs	76
6.4	La résolution de l'instrument	76
Conclusion		77
III. Les modes d'excitations collectives dans l'³He 2D		79
Introduction		81
7	La dynamique dans les fluides quantiques	83
7.1	Introduction	84
7.2	Système de bosons en interaction	84
7.2.1	L' ⁴ He	84
7.2.2	Les excitations observées dans l' ⁴ He superfluide	85
7.3	Systèmes de Fermions en interaction	86
7.3.1	L' ³ He	87
7.3.2	La théorie de Landau des liquides de Fermi	87
7.3.3	La dynamique dans un liquide de Fermi	89
7.3.4	Les excitations observées dans l' ³ He massif par diffusion inélastique de neutrons	90
7.4	L' ³ He bidimensionnel	91
7.4.1	Motivations	91
7.4.2	Le diagramme de phases de la première couche	92
7.4.3	Le diagramme de phases de la deuxième couche	93
8	Le graphite comme substrat et le diagramme de phases de l'³He 2D	95
8.1	Le Graphite exfolié	96
8.1.1	Le choix du substrat	96
8.1.2	La cellule expérimentale	96
8.2	Détermination de la densité et mise en œuvre	97
8.2.1	Isotherme d'adsorption	97
8.2.2	Détermination de la densité du film adsorbé par diffraction neutronique	98
8.2.3	Equipements et procédure expérimentale	100
8.3	La faisabilité de l'expérience	101
8.3.1	Le bruit de fond	101
8.3.2	L'effet de chauffage du à l'absorption des neutrons	101
8.3.3	Energie des neutrons et désorption	102
9	Traitement des données et résultats expérimentaux	103
9.1	Traitement des données expérimentales	104
9.1.1	Correction de l'efficacité des détecteurs	104
9.1.2	Soustraction du bruit de fond	104

9.1.3	Correction de la dépendance en énergie de l'efficacité des détecteurs	105
9.1.4	Correction de l'absorption	105
9.1.5	La propagation des erreurs	106
9.1.6	La transformation $S(Q, \omega)$	106
9.2	Résultats expérimentaux	108
9.3	Conclusion	109
10	Au delà de la théorie de Landau des liquides de Fermi	113
10.1	Introduction	114
10.2	Random phase Approximation	114
10.3	La théorie dynamique à N corps	114
10.3.1	Introduire les corrélations dans l'état fondamental du système	115
10.3.2	Introduire des corrélations dépendantes du temps	115
10.3.3	Théorie de la réponse linéaire	116
10.4	Comparaison entre la théorie et les résultats expérimentaux	116
10.5	Conclusion	118
	Conclusion	119
	Conclusion Générale	121
A	Diagramme d'Enthalpie de l'⁴He	123
B	Diagramme d'Enthalpie de l'³He	125
C	Diagramme d'Enthalpie de l'³He d'après Huang et al.	127
D	Schéma du tube à gaz pulsé PT405 et de son compresseur	129
E	Courbe de puissance-tube à gaz pulsé	131
F	Conductibilité thermique des matériaux	133
G	Résistance Thermique de contact	135
H	Articles	137
H.1	Observation of a roton collective mode in a two-dimensional Fermi liquid, Nature letter .	137
H.2	Two-dimensional Fermi liquids sustain surprising roton-like plasmons beyond the particle-hole band, Journal of physics, conference series.	137
H.3	Static structure factor of two-dimensional liquid ³ He adsorbed on graphite, Journal of low temperature physics (submitted and accepted)	137
	Bibliographie	165

Table des figures

1.1	Représentation d'un système formé d'un ensemble de sous-systèmes. Les flèches représentent les échanges d'énergies sous forme de travail (introduction de matière ou déplacement des parois) ou de chaleur [de Waele 2011]	16
1.2	Diagramme de phases de l' ³ He dans l' ⁴ He. En abscisse : le pourcentage d' ³ He dans le mélange et en ordonnée : la température en K	17
1.3	A droite : schéma d'un réfrigérateur à dilution classique, à gauche : schéma d'un réfrigérateur à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé	18
1.4	Schéma d'une boîte à mélange. Les flèches indiquent le sens de circulation de l' ³ He	18
1.5	a : photo de la partie dilution du réfrigérateur PTDR3, b : schéma d'un échangeur continu constitué d'un tube externe en cupro-nickel et d'un tube interne en laiton. Le tube interne est écrasé et enroulé en forme de ressort dans le but d'augmenter la surface d'échange de chaleur.	20
1.6	Diagramme d'enthalpie de l' ³ He	21
2.1	Schéma d'un tube à gaz pulsé classique [de Waele 2011]	24
2.2	A droite du tube, le gaz rentre avec une température T_H et ressort à une température supérieure à T_H , à gauche il rentre avec une température T_L et ressort à une température inférieure à T_L	27
2.3	A gauche : courbe de puissance du premier étage avec différentes charges sur le deuxième, à droite : courbe de puissance du deuxième étage avec différentes charges sur le premier	28
2.4	Évolution de la température des étages du tube à gaz pulsé et des plaques de la partie haute du réfrigérateur en fonction du temps lors du pré-refroidissement	28
2.5	Photo de la partie supérieure de PTDR3	29
2.6	schéma du réfrigérateur PTDR1 avec un double système d'injection	30
2.7	Diagramme d'enthalpie de l' ³ He. La courbe isotherme 4K représentée sur la figure montre que l'enthalpie devient minimale pour une pression de 4 bars	31
2.8	Schéma des échangeurs sur le tube à gaz pulsé	32
2.9	A gauche : schéma de l'échangeur JT de PTDR3. A droite : photo de l'échangeur JT de PTDR1. Au milieu la boîte en inox qui contient l'échangeur	33
3.1	Bilan thermique du cryostat : les flèches en bleu désignent les flux de chaleur par conduction entre les étages, les flèches rouges schématisent le rayonnement par les calorimètres.	36
3.2	A gauche : schéma du diagramme d'enthalpie du réfrigérateur à dilution avec l'impédance principale Z_1 non thermalisée sur l'évaporateur, à droite : schéma avec l'impédance Z_1 thermalisée sur l'évaporateur.	38
3.3	Courbe de puissance du réfrigérateur PTDR3, en abscisse la puissance appliquée à la boîte à mélange et en ordonnée la température d'équilibre élevée au carré.	38
3.4	Schéma du tableau de vanne de PTDR3	39
3.5	Schéma des amenées de courant de la température ambiante jusqu'à la bobine de champ en bas du cryostat	41

3.6	Photo du réfrigérateur PTDR1 après modification du circuit d'injection.	43
3.7	Photo du réfrigérateur PTDR2 développé durant la thèse de Thomas Prouvé [Prouvé 2007b].	44
3.8	Photo du réfrigérateur PTDR3 construit durant cette thèse.	45
4.1	Différents thermomètres utilisés à basses températures	48
4.2	Thermomètres de type Allen-Bradley, thermalisés à l'aide d'une plaque en cuivre à la boîte à mélange	49
4.3	Résistance de Platine (Pt100) en fonction de la température	50
4.4	Dépendance en température de la résistance R64 représentée en échelle log-log.	51
4.5	schéma du CMN, une bobine principale permet de faire varier le flux magnétique grâce à un courant alternatif, un dispositif de deux bobines dites de détection montées en série- opposition, permet de mesurer la réponse d'un CMN placé au centre de l'une d'entre elles.	51
4.6	A gauche : photo du thermomètre à blocage de coulomb fourni par Nanoway (Finlande). A droite : schéma d'une jonction tunnel (metal/oxyde/metal)	52
4.7	Mesure de la conductivité différentielle en fonction de la tension V à 45mK, la largeur à mi-hauteur de la courbe donne directement la température.	54
5.1	Diffusion d'un faisceau de neutron par un échantillon.	64
6.1	Schéma du triangle de diffusion qui illustre la conservation d'énergie et de vecteur d'onde lors de la diffusion inélastique du neutron	70
6.2	Illustration de la technique temps de vol : un faisceau incident monochromatique interagit avec l'échantillon. Les neutrons diffusés parcourent la distance L séparant l'échantillon du banc de détecteurs. La détermination de leur angle de diffusion grâce à la distribution angulaire des détecteurs, ainsi que leur temps de parcours permet de déduire leur énergie et leur vecteur d'onde.	71
6.3	Schéma d'un spectromètre de type temps de vol-temps de vol : un système de choppers permet de sélectionner un faisceau monochromatique. Après passage dans le deuxième chopper le temps est déclenché au niveau des détecteurs, les neutrons dont une partie at- teint les détecteurs après interaction avec l'échantillon, seront enregistrés selon leur temps d'arrivée.	71
6.4	Représentation de l'espace $(\hbar\omega, Q)$ accessible pour une longueur d'onde incidente de 5.12 Å. L'instrument IN6 est doté d'un banc de détecteurs distribués entre les angles 10° et 115° . Les lignes en bleu représentent les lignes à angle constant pour quelques valeurs d'angles. Seule la partie qui correspond à des transferts d'énergie positifs est représentée sur la courbe, car elle correspond à la création d'excitations dans l'échantillon.	72
6.5	Schéma de l'instrument IN6	73
6.6	schéma des trois cristaux monochromateurs d'IN6 qui permettent d'augmenter le flux et de focaliser ce dernier sur l'échantillon.	74
6.7	Le chopper de Fermi consiste en un tambourin avec une fente qui permet quand elle est en face du guide, de laisser passer les neutrons. Son sens de rotation est choisi de sorte à laisser passer les neutrons les plus lents avant les plus rapides permettant ainsi d'avoir une focalisation en temps au niveau de l'échantillon.	75
7.1	Le diagramme de phase P-T de l' ^4He	85
7.2	Les excitations dans l' ^4He superfluide ([Pines 1981]) : La ligne continue présente les me- sures expérimentales, les lignes en pointillés correspondent aux différentes théories dévelop- pées pour expliquer les résultats expérimentaux.	85
7.3	Courbe de dispersion de l' ^4He superfluide obtenue par diffusion inélastique de neutrons, dans le coin droit de l'image la relation de dispersion proposée par Landau.	86

7.4	Diagramme de phases P-T de l' ³ He en champ magnétique nul	87
7.5	Diagramme de phases de l' ³ He en fonction de la pression, la température et le champ magnétique.	88
7.6	A gauche représentation de l'oscillation de la sphère de Fermi qui se produit lors de la propagation d'un mode collectif d'excitation zéro-son. A droite représentation d'une excitation de type particule-trou qui consiste à faire passer une particule de l'autre coté de la surface de Fermi.	89
7.7	Les différents modes d'excitation d'un liquide de Fermi.	90
7.8	Les traits en rouge et bleu indiquent la région explorée par Scherm et al. en 1974, les points en rouge correspondent aux mesures effectuées par Skold et al. (Schéma tiré de la présentation de Bjorn Fåk à l'Institut Néel, Février 2012).	90
7.9	Le facteur de structure dynamique de l' ³ He, à T=30mK, mesuré expérimentalement par diffusion inélastique de neutron [Glyde 2000]	91
7.10	Diagramme de phase de l' ³ He bidimensionnel adsorbé en première couche	93
7.11	Diagramme de phase de l' ³ He bisimensionnel en deuxième couche. En ordonnée est représentée la densité du film en deuxième couche et en abscisse la température.	94
8.1	A gauche : schéma de la cellule expérimentale. A droite : structure des plans de graphite exfolié.	97
8.2	Isotherme d'adsorption à T=4.2K : en ordonnées volume introduit d' ⁴ He en cm ³ en condition standard de température et de pression, en abscisse pression mesurée en haut de la cellule expérimentale.	98
8.3	Caractérisation du substrat par diffraction neutronique. En ordonnée : la densité déduite en mesurant la distance interatomique. En abscisse : la densité calculée en considérant la surface du substrat constante (correspondant à l'échelle commensurable). Les croix représentent la courbe obtenue en adsorbant de l' ³ He, les carrés représentent celles obtenues pour des atomes d' ⁴ He et la ligne continue est la droite d'équation $\rho = \rho_{totale}$	99
8.4	Evolution de la surface d'adsorption : pour des petites densités seulement les sites de fort potentiel adsorption sont occupés. En augmentant la densité la surface effective du substrat augmente.	99
8.5	Montage utilisé afin de réaliser des isothermes d'adsorption.	100
8.6	Afin de rendre le potentiel d'adsorption plus homogène nous adsorbons d'abord une couche d' ⁴ He solide ensuite une couche d' ³ He liquide.	101
8.7	A gauche : spectre temps de vol du graphite ZYX mesuré sur IN6, en abscisse le temps d'arrivé des neutrons et en ordonné les 337 détecteurs répartis entre 10° et 115°, le canal 200 correspond au canal élastique. A droite : le facteur de structure dynamique du graphite ZYX.	101
9.1	Mesure de temps de vol avec un échantillon de vanadium ayant la même géométrie que notre cellule expérimentale. Nous remarquons que l'intensité des pics n'est pas la même pour tous les détecteurs. Cela est dû à l'écart d'efficacité entre ces derniers.	104
9.2	Facteur de structure dynamique du graphite	105
9.3	Courbe intensité en fonction du temps de vol des neutrons mesurée par le détecteur positionné au niveau de l'angle 84.1°, ce qui correspond à un vecteur d'onde élastique de 16.5 nm ⁻¹ . A gauche le signal mesuré par diffusion sur le graphite, graphite+ ⁴ He et graphite+ ⁴ He+ ³ He. A droite le signal du graphite+ ⁴ He et graphite+ ⁴ He+ ³ He après correction de l'absorption	106
9.4	Spectre en échelle logarithmique de l'intensité en fonction du temps de vol des neutrons mesuré au niveau de l'angle 78.33° (ce qui correspond à un vecteur d'onde élastique de 15.54 nm ⁻¹).	107

9.5	Trois coupes de $S(Q, \omega)$ située respectivement avant la bande PHB, dans la bande PHB et après la bande PHB. Ces coupes correspondent à des vecteurs d'onde $Q = 5.5 \text{ nm}^{-1}$, 11.5 nm^{-1} et 16.5 nm^{-1}	108
9.6	Le facteur de structure dynamique de l' ^3He bidimensionnel mesuré par diffusion inélastique de neutrons sur une couche de densité $4.7 \pm 0.2 \text{ atomes/nm}^2$	109
9.7	Coupes de $S(Q, \omega)$ à vecteur d'onde constant compris entre 3.5 et 10.5 nm^{-1}	110
9.8	Coupes de $S(Q, \omega)$ à vecteur d'onde constant compris entre 11.5 et 18.5 nm^{-1}	111
10.1	A gauche : le facteur de structure dynamique $S(k, E)$, mesuré expérimentalement par diffusion inélastique des neutrons, en fonction du vecteur d'onde k et de l'énergie E . Ces résultats expérimentaux correspondent à une couche de densité atomique $4.7 \pm 0.2 \text{ atomes/nm}^2$. Les lignes en bleu indiquent les limites de la bandes particules-trou. A droite : le facteur de structure dynamique calculé théoriquement avec la théorie dynamique à N corps pour une couche de densité atomique de 4.9 atomes/nm^2 . A cette densité l'énergie de Fermi est $E_F = 0.213 \text{ meV}$ et le vecteur d'onde de Fermi est $k_F = 5.55 \text{ nm}^{-1}$	117
10.2	Spectres à vecteur d'onde constant ($5.5, 12.5$ et 16.5 nm^{-1}). Les croix correspondent aux mesures expérimentales. La ligne rouge indique les résultats théoriques obtenus en appliquant la méthode RPA. Les résultats de la théories dynamique à N -corps sont représentés par la ligne verte. Les lignes bleues désignent les résultats théoriques convolués avec la résolution de l'instrument. La zone en bleu clair schématise la bande particule-trou.	117
10.3	La courbe en bleu représente le mode d'excitations collectives dans l' ^3He massif. La courbe en rouge correspond à celui observé dans l' ^3He 2D.	120
A.1	Diagramme d'enthalpie de l' ^4He P-H	123
B.1	Diagramme d'enthalpie de l' ^3He P-H, d'après Roubeau	125
C.1	Diagramme d'enthalpie de l' ^3He P-H, d'après Huang et al.	127
D.1	Á : droite le tube à gaz pulsé avec ses différents étages, à gauche : Le compresseur qui permet de comprimer l' ^4He , les deux systèmes sont reliés par des tubes en inox étanches et pouvant supporter de grandes pressions.	129
E.1	Courbe de puissance du tbe à gaz pulsé fournie par Cryomech	131
F.1	Conductibilité thermique des matériaux à basses températures ([?])	133
G.1	Résistance thermique de contact en fonction de la température	135

Introduction Générale

Il est d'usage de commencer une thèse par une introduction. Pourtant c'est souvent la dernière partie qu'on rédige. Il est aussi d'usage que dans une introduction, il faut savoir "vendre" son projet de thèse. Je m'efforcerais alors ici de répondre en premier temps à la question : pourquoi étudier les fluides quantiques ? Peut-être que la réponse qui m'attire le plus est celle de Laurent Schwartz, célèbre mathématicien français et créateur de la théorie des distributions, lorsqu'il répondit à la question : Pourquoi faire des mathématiques ?

Il disait : Il faut certainement faire des mathématiques. Les mathématiques, ça sert à la physique. La physique, ça sert à fabriquer des réfrigérateurs. Les réfrigérateurs, ça sert à y mettre des langoustes. Et les langoustes, ça sert aux mathématiciens qui les mangent et sont alors dans de bonnes dispositions pour faire des mathématiques, qui servent à la physique, qui sert à fabriquer des réfrigérateurs, qui servent à y mettre des langoustes...

Bien que les fluides quantiques ne servent pas à fabriquer des réfrigérateurs ménagers pour y mettre des langoustes, il existe néanmoins de multiples raisons pour lesquels il est important de les étudier. En voici quelques-unes :

- Il y a d'abord l'intérêt que représente leur compréhension pour la physique fondamentale. En effet, ${}^4\text{He}$ appartient à la famille des bosons et ${}^3\text{He}$, est quant à lui un fermion. Plusieurs travaux expérimentaux et théoriques ont permis de révolutionner notre compréhension de ces deux systèmes. Cela a eu un impact considérable sur différents domaines de la physique. L'exemple le plus frappant de cette influence est la théorie de Landau des liquides de Fermi qui a été essentiellement développée pour ${}^3\text{He}$ et qui voit aujourd'hui son application partout en physique.
- Il y a aussi l'aperçu que peut nous offrir l'Helium sur les phénomènes cosmiques. En effet, après le Big Bang, l'univers s'est refroidi en subissant des transitions de phases. Les modèles qui sont proposés actuellement pour décrire ces transitions ont été inventés en physique de la matière condensée pour expliquer la transition liquide-superfluide ou conducteur-supraconducteur. Tout comme l'univers en se refroidissant, ${}^3\text{He}$, en devenant superfluide subit une transition et un certain nombre de symétries sont alors spontanément brisées. Plus étonnant encore, ${}^3\text{He}$ possède dans sa phase superfluide, une combinaison de symétries mathématiques très proches de celles envisagées pour décrire l'univers. Pour toutes ces raisons, certaines équipes de recherche l'ont choisi pour effectuer des expériences qu'on pourrait qualifier de "cosmologie expérimentale".
- Enfin, il y a le grand nombre d'applications qui existent grâce aux fluides quantiques. Nous pouvons évoquer à titre d'exemple, leur utilisation comme fluides cryogéniques pour l'obtention de basses températures, ou aussi leur contribution en physique des particules où l'introduction des détecteurs bolométriques d' ${}^3\text{He}$ a permis de rechercher les particules cosmiques. Enfin il y a aussi la bonne connaissance de la courbe de fusion de ${}^3\text{He}$ qui a permis de définir une échelle de température dans le domaine sub-kelvin.

Les excitations dans l'³He-liquide de Fermi bidimensionnel

L'³He liquide a été étudié "en long et en large" depuis que les laboratoires ont pu s'en procurer en quantités suffisantes. La simplicité de son hamiltonien et sa surface de Fermi parfaitement sphérique ont toujours fait de lui le candidat parfait pour des expériences permettant d'explorer le comportement des liquides de Fermi. Plusieurs tentatives fructueuses pour expliquer ces expériences ont abouti au développement de travaux théoriques dont l'élégante théorie de Landau des liquides de Fermi qui a permis de mieux comprendre ces systèmes. Seule ombre au tableau, cette théorie ne s'applique qu'aux basses températures et pour des petits vecteurs d'ondes.

Le but principal de cette thèse est d'étudier les excitations du liquide de Fermi bidimensionnel à des grands vecteurs d'onde, puis de trouver une théorie capable d'expliquer les résultats expérimentaux. Une telle expérience nécessite l'existence de deux ingrédients : les basses températures et la diffusion neutronique. La présence d'un environnement favorable à l'ILL où tous ces ingrédients étaient disponibles ont permis de mener à terme ce projet.

Cette thèse est composée de trois parties. Dans la première partie nous exposons le travail de développement d'un réfrigérateur à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé, effectué durant cette thèse. Une telle machine a été construite en vue d'une possible commercialisation. L'absence de boîte à 1K, et la facilité de sa mise en marche, rendent ce type de dilution parfaitement adapté pour les expériences de diffusion inélastique de neutrons.

La deuxième partie de cette thèse traite du formalisme de la diffusion neutronique et de la technique de mesure "temps de vol" qui a rendu possible l'étude de notre système.

Enfin la troisième partie est dédiée à l'³He bidimensionnel. Nous présenterons les motivations de ce projet ainsi que les résultats expérimentaux obtenus grâce à notre analyse des données. Enfin nous comparerons nos résultats à une théorie qui s'applique au delà de la théorie de Landau des liquides de Fermi, développée par nos collaborateurs de l'Institut Kepler, à Linz.

I. Techniques des basses températures

Introduction

Les basses températures constituent un ingrédient essentiel pour l'étude des fluides quantiques. Dans le cadre de nos expériences réalisées à l'ILL, il était indispensable de refroidir l'échantillon à des températures inférieures à 100mK, ce qui permettait d'avoir $k_B T$ inférieure aux énergies des excitations recherchées. De plus, la pression de vapeur de l' ^3He est presque nulle à ces températures ; de ce fait tout l' ^3He présent dans la cellule est entièrement adsorbé sur le substrat.

Les réfrigérateurs à dilution sont les seules machines qui permettent d'obtenir en continu des températures aussi basses. C'est pour cette raison que l'un des objectifs de cette thèse était, mis à part le sujet principal mentionné dans le titre de ce manuscrit, le développement d'un cryostat à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé en vue d'une commercialisation possible dans l'avenir.

Ce type de machine présente plusieurs avantages. Elle ne nécessite pas de transfert d' ^4He , contrairement à une dilution classique, ce qui peut être très avantageux pour des expériences d'astrophysique qui souvent ont lieu loin du laboratoire. De plus, ces cryostats sont adaptés pour des expériences de diffusion inélastique de neutrons. En effet, pour ces expériences utilisant un faisceau de neutrons le temps est précieux, l'utilisation de ces machines pourrait éviter de perturber régulièrement les mesures, le temps d'effectuer un transfert d'hélium.

L'équipe UBT, sous la direction d'Henri Godfrin, et en collaboration avec Air liquide s'est intéressée à ce type de machine depuis la fin des années 90. Elle a pu ainsi fabriquer le premier prototype PTDR1 (Pulse-tube Dilution Refrigerator), et le commercialiser en 2001. PTDR1 permettait d'atteindre des températures inférieures à 10mK et d'obtenir une puissance de l'ordre de $200\mu\text{W}$ à 100mK. Mais il fallait, néanmoins 24h pour refroidir la machine jusqu'à 4K et 8h pour condenser le mélange. Le travail s'est poursuivi avec la thèse de Thomas Prouvé [Prouvé 2007b]. Un autre Prototype PTDR2 fut fabriqué. Des tests sur le tube à gaz pulsé ont été réalisés et ont prouvé qu'il était possible d'extraire de la puissance "gratuite" de ce dernier. Des intercepts ont été alors installés sur le tube à gaz pulsé permettant ainsi d'extraire de la puissance ailleurs que sur les deux étages de la machine. Ce travail, qui a permis de déposer un brevet, a montré qu'il était possible de rajouter des échangeurs dans la partie injection et réduire ainsi le temps de condensation.

Un des objectifs de cette thèse était d'améliorer le circuit d'injection de PTDR1 pour pouvoir réduire le temps de condensation du mélange, et de construire une nouvelle machine PTDR3 avec des échangeurs optimisés en vue d'une commercialisation. Une réduction de la masse totale du réfrigérateur et un système d'injection performant ont permis d'optimiser la machine. Son temps de pré-refroidissement a été réduit à 17h ainsi que son temps de condensation qui est aujourd'hui de 2h. PTDR3 est aujourd'hui parfaitement opérationnel, il atteint une température minimale de 20 mK et nous estimons qu'en ajoutant des échangeurs discrets sa température descendra à 5mK. De plus, des lignes de courant ont été installées et testées dans le vide, dans le but d'avoir dans l'avenir un étage à désaimantation nucléaire qui permettra d'effectuer des expériences à des températures de l'ordre de $500\mu\text{K}$.

Dans le premier chapitre de cette partie nous présenterons brièvement le principe de fonctionnement

d'un réfrigérateur à dilution ainsi que la différence entre une dilution classique et une dilution pré-refroidie avec un tube à gaz pulsé.

Le tube à gaz pulsé ainsi que les échangeurs de la partie injection feront l'objet du deuxième chapitre. Nous nous intéresserons au tube à gaz pulsé et aux puissances qu'on pourrait extraire à chaque étage. Nous décrirons le circuit d'injection et les différents échangeurs de chaleur de cette partie du réfrigérateur.

Dans le troisième chapitre nous présenterons les principales caractéristiques de PTDR1 et PTDR3 ainsi que leurs performances.

Finalement, le quatrième chapitre sera dédié à la thermométrie. Nous présenterons les différents types de thermomètres que nous avons calibré et utilisé pour pouvoir avoir une lecture précise de la température de chaque partie de la machine.

Chapitre 1

La dilution préfroidie par un tube à gaz pulsé

Sommaire

1.1	Introduction	16
1.2	Quelques notions de thermodynamique	16
1.2.1	Premier principe de la thermodynamique	16
1.2.2	Second principe de la thermodynamique	17
1.3	Le réfrigérateur à dilution classique : Principe de fonctionnement	17
1.3.1	Solutions diluées d' ^3He dans ^4He	17
1.3.2	La boîte à mélange	18
1.3.3	L'évaporateur	19
1.3.4	Les échangeurs à basses températures	19
1.3.5	La boîte à 1K	20
1.4	Le réfrigérateur à dilution pré-refroidi avec un tube à gaz pulsé	21

1.1 Introduction

Nous commencerons ce chapitre par un rappel de quelques notions de thermodynamique. Nous présenterons ensuite, de manière résumée le principe de fonctionnement d'un réfrigérateur à dilution. Dans la dernière partie, nous discuterons de la différence entre un réfrigérateur classique et un réfrigérateur pré-refroidi par un tube à gaz pulsé. Nous montrerons que cette différence réside principalement dans la partie injection.

1.2 Quelques notions de thermodynamique

1.2.1 Premier principe de la thermodynamique

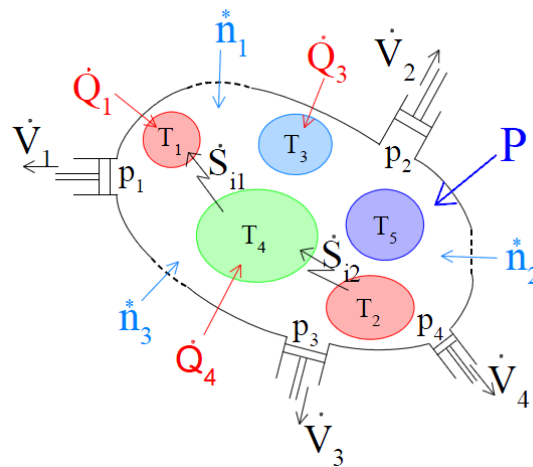


FIGURE 1.1 – Représentation d'un système formé d'un ensemble de sous-systèmes. Les flèches représentent les échanges d'énergies sous forme de travail (introduction de matière ou déplacement des parois) ou de chaleur [de Waele 2011]

Pour écrire le premier principe de la thermodynamique de manière générale, nous considérons le système ouvert de la figure 1.1. Il est formé d'un ensemble de sous-systèmes pouvant échanger de l'énergie entre eux et avec l'extérieur. Les différents modes de transfert d'énergie sont :

1. La variation de l'enthalpie en ajoutant ou en supprimant des particules. Le débit d'enthalpie dans le système s'exprime comme le produit de l'enthalpie molaire H_{mK} par le débit \dot{n}^* exprimé en moles/s :

$$\dot{H}_k^* = \dot{n}_k^* H_{mk}.$$
2. Le travail dû à l'existence de parois amovibles : $-P_k \frac{dV_k}{dt}$
3. Enfin, chaque système peut échanger avec l'extérieur de l'énergie sous forme de flux de chaleur \dot{Q}

Le premier principe de la thermodynamique s'écrit :

$$\frac{dU}{dt} = \sum_k \dot{Q}_k + \sum_k \dot{H}_k^* - \sum_k P_k \frac{dV_k}{dt} + P \quad (1.1)$$

où P est une puissance appliquée au système par son environnement. Cette formulation n'est pas la plus générale, mais elle est suffisante pour traiter des problèmes liés à la thermodynamique d'un réfrigérateur à dilution.

1.2.2 Second principe de la thermodynamique

Durant un processus de transformation irréversible l'entropie d'un système isolé croît [de Waele 2011] :

$$\frac{dS}{dt} = \sum_k \frac{\dot{Q}}{T} + \sum_k \dot{S}_k^* + \sum_k \dot{S}_{ik} \quad (1.2)$$

avec $\dot{S}_{ik} \geq 0$ et $\dot{S}_k^* = \dot{n}_k S_{mk}$ le flux d'entropie.

1.3 Le réfrigérateur à dilution classique : Principe de fonctionnement

1.3.1 Solutions diluées d'³He dans l'⁴He

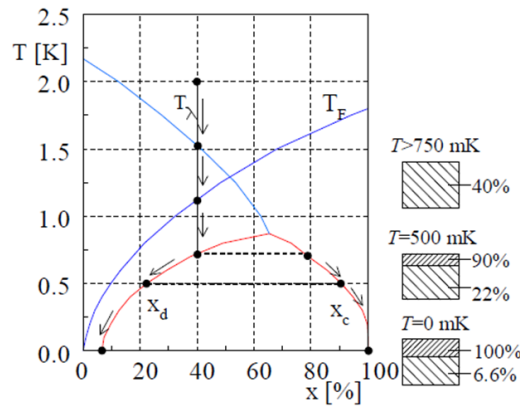


FIGURE 1.2 – Diagramme de phases de l'³He dans l'⁴He. En abscisse : le pourcentage d'³He dans le mélange et en ordonnée : la température en K

Pour comprendre le principe de fonctionnement d'un réfrigérateur à dilution (voir figure 1.3), il convient de commencer par le diagramme de phases de la figure 1.2. La ligne représentée en bleu clair sur la figure est la ligne de transition liquide superfluide pour l'⁴He. Pour une proportion d'³He de 0 % dans l'⁴He, ce dernier devient superfluide à 2.17 K.

La ligne en bleu foncé indique la température à laquelle l'³He devient liquide de Fermi dégénéré. Ce diagramme montre qu'à basse température, une séparation de phases se produit : on obtient une phase riche en ³He qu'on appelle la phase concentrée, et une phase riche en ⁴He appelée phase diluée.

L'enthalpie de l'³He dans la phase diluée est supérieure à celle dans la phase concentrée. En pompant l'³He de la phase diluée, on rompt l'équilibre osmotique. On induit ainsi un débit d'³He entre les deux phases. La puissance frigorifique se calcule comme le produit du débit \dot{n}_3^* par la différence d'enthalpie.

$$\dot{Q} = \dot{n}_3^* \cdot \Delta H = \dot{n}_3^* (94.5 \cdot T_d^2 - 12.5 \cdot T_c^2) \sim 82 \cdot \dot{n}_3^* \cdot T^2 \quad (1.3)$$

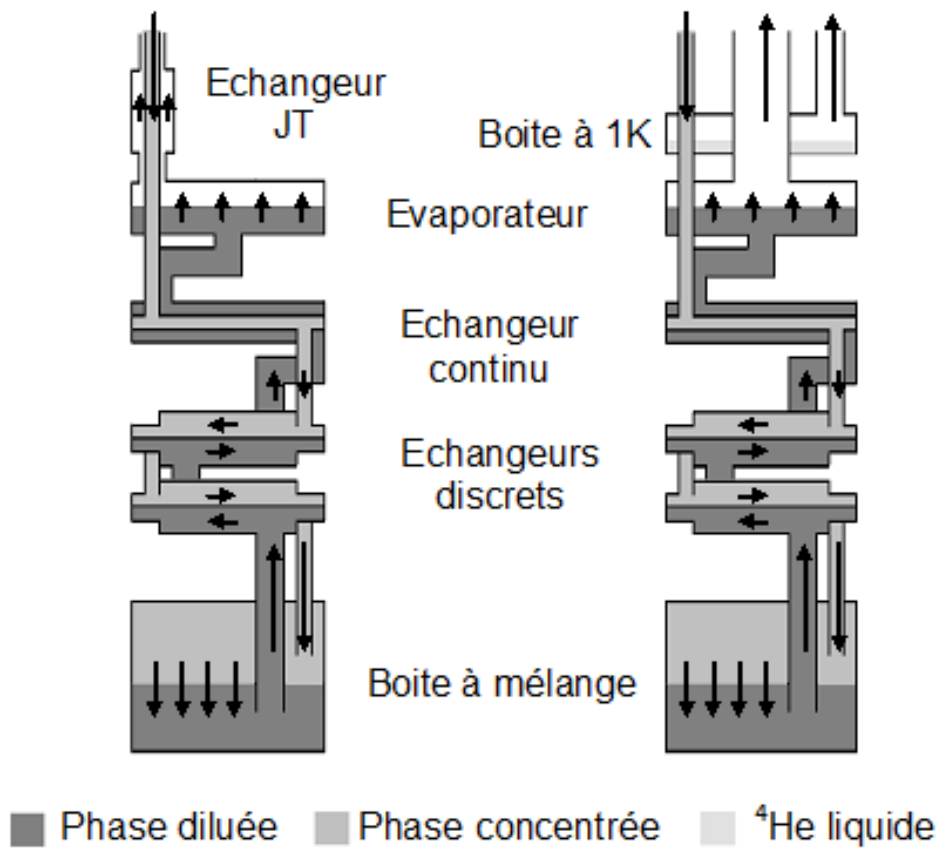


FIGURE 1.3 – A droite : schéma d'un réfrigérateur à dilution classique, à gauche : schéma d'un réfrigérateur à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé

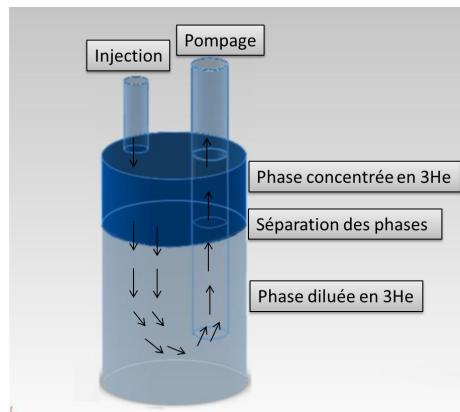


FIGURE 1.4 – Schéma d'une boîte à mélange. Les flèches indiquent le sens de circulation de l'³He

1.3.2 La boîte à mélange

La boîte à mélange est la partie la plus froide d'un réfrigérateur à dilution. C'est à ce niveau que se produit la séparation de phases. Ce refroidissement peut aussi s'interpréter comme une détente de l'³He de la phase concentrée dans la phase diluée. En effet, à basses températures, le volume molaire de l'³He dans la phase concentrée est de 36 cm^3 et devient égal à 426 cm^3 dans la phase diluée.

L'équation 1.3 nous permet d'obtenir la puissance frigorifique dans cette partie du réfrigérateur. Néanmoins, nous avons considéré dans la dernière partie de cette expression que $T_c = T_d$. En pratique,

T_c est supérieure à T_d . La température de la boîte à mélange est définie par la température de la phase diluée, car c'est à ce niveau que nous installons un fritté de poudre d'argent pour augmenter la surface d'échange de chaleur. En négligeant les entrées de chaleur, et en remplaçant T_d dans l'expression 1.3 par T_{BM} , nous obtenons :

$$T_{BM} = 0.36T_c \quad (1.4)$$

Nous déduisons que pour abaisser la température de la boîte à mélange, il faut abaisser la température de l' ^3He introduit dans cette dernière. Ce qui peut être fait au moyen d'échangeurs de chaleur.

1.3.3 L'évaporateur

L'évaporateur est la partie du réfrigérateur qui permet d'extraire l' ^3He de la phase diluée. Cela donne lieu à un gradient de pression osmotique au sein du mélange et permet d'obtenir un flux d' ^3He . Le rôle premier de l'évaporateur est d'assurer un débit important d' ^3He afin d'avoir une grande puissance frigorifique, et en même temps d'assurer un débit d' ^4He le plus faible possible.

La formule de Langmuir permet d'estimer la vitesse d'évaporation d'un liquide à sa surface :

$$\dot{n}_3^* = A \cdot \sqrt{\frac{1}{2\pi M_3 RT}} (P(T) - P_0) \quad (1.5)$$

où A est la surface du liquide, $P(T)$ la tension de vapeur à la température T , P_0 la pression au dessus du liquide, M_3 la masse molaire de l' ^3He et \dot{n}_3^* le débit d' ^3He .

On en déduit qu'une surface de l'ordre de quelques cm^2 suffit pour obtenir des débits de l'ordre de quelques centaines de $\mu\text{moles/s}$. Pour contrôler ce dernier il faut appliquer une puissance au niveau de l'évaporateur. Pour cela revenons au premier principe de la thermodynamique et considérons le système réfrigérateur à dilution. L' ^3He pénètre dans le système considéré avec une pression de 0.5bar et une température de 1.2K (grâce à la thermalisation à la boîte à 1K). Il ressort avec une pression de 0bar et une température de 0.7K, le bilan d'enthalpie devient alors :

$$P = \dot{n}_3^* (H(0.7, 0\text{bar}) - H(1.2\text{K}, 0.5\text{bar})) = \dot{n}_3^* \cdot 29\text{J/mol} \quad (1.6)$$

On constate qu'il est nécessaire d'appliquer une puissance de quelques mW pour assurer un débit de l'ordre de la centaine de $\mu\text{moles/s}$. Ce qui peut être fait grâce à une résistance chauffante installée sur l'évaporateur.

Enfin il reste la réduction du débit d' ^4He . En effet, nous risquons d'avoir un débit important de ce dernier à cause du film d' ^4He superfluide qui remonte les parois du tube de l'évaporateur. Pour limiter cet effet certains réfrigérateurs sont équipés de brûleurs de films qui permettent d'évaporer le superfluide et de le recondenser dans l'évaporateur. Nous avons opté pour une autre solution qui est la réduction du diamètre du tube de pompage sur une petite longueur (diaphragme) de manière à ne pas créer un gradient de pression important. Le débit d' ^4He dans le film étant proportionnel au périmètre mouillé du tube, on l'estime à quelques dizaines de $\mu\text{moles.s}^{-1}.\text{cm}^{-1}$. Grâce à un débitmètre que nous avons développé nous pouvons déterminer le débit total d' $^3\text{He} + ^4\text{He}$. Le débit d' ^3He pouvant être déduit en mesurant la puissance frigorifique, nous estimons à 10% le pourcentage d' ^4He qui circule dans le réfrigérateur.

1.3.4 Les échangeurs à basses températures

Nous avons vu précédemment que pour abaisser la température de la dilution, il faut amener l' ^3He le plus froid possible dans la boîte à mélange. Pour satisfaire cette condition, nous utilisons un échangeur

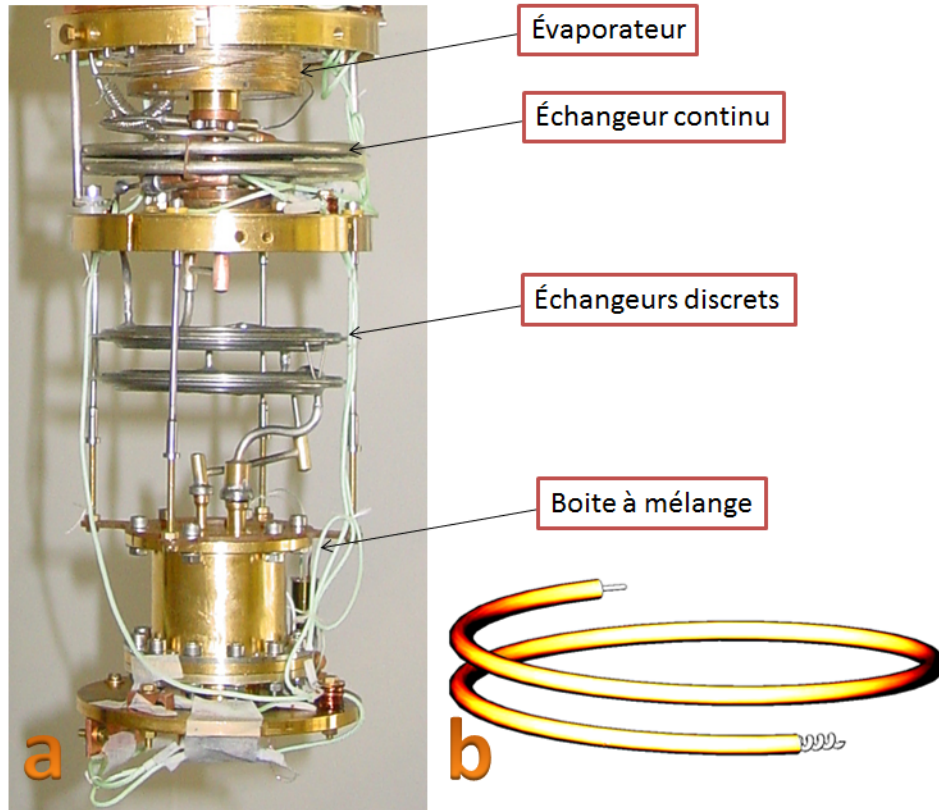


FIGURE 1.5 – a : photo de la partie dilution du réfrigérateur PTDR3, b : schéma d'un échangeur continu constitué d'un tube externe en cupro-nickel et d'un tube interne en laiton. Le tube interne est écrasé et enroulé en forme de ressort dans le but d'augmenter la surface d'échange de chaleur.

continu formé d'un tube interne en laiton de dimensions 1.5/2mm, écrasé et enroulé dans un tube en Cupro-Nickel de diamètre externe 4.5mm et 4mm de diamètre interne.

Ces dimensions permettent d'avoir un échangeur très peu impédant évitant ainsi un gradient de pression à ce niveau du réfrigérateur. Néanmoins, l'échangeur continu ne permet pas à lui seul d'avoir les températures minimales au niveau de la boîte à mélange. En effet, à basses températures, l'échange de chaleur se fait par l'intermédiaire des phonons suivant une loi semblable à la loi de Stefan :

$$\frac{\dot{Q}}{S} = \alpha(T_2^4 - T_1^4) = \frac{\Delta T}{R_K} \quad (1.7)$$

Nous avons considéré que $T_2 = T_1 + \Delta T$ avec $\Delta T \ll T_2$ et $R_K = \frac{1}{4\alpha T^3}$ étant la résistance de Kapitza.

A basses températures il faut donc augmenter considérablement la surface d'échange. Pour cela nous utilisons des échangeurs d'argent. Ils contiennent de la poudre d'argent compactée. Quelques valeurs de résistance de Kapitza entre l'argent et l' ^3He sont données dans le tableau 1.1.

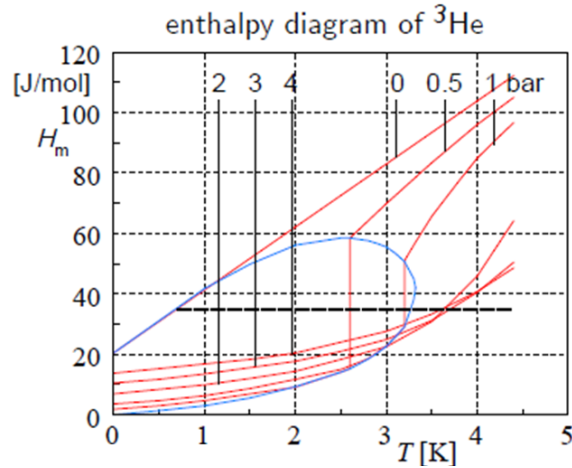
1.3.5 La boîte à 1K

L' ^3He injecté dans un réfrigérateur à dilution classique est d'abord refroidi à 4K grâce à une thermalisation avec le bain. Si nous laissons l' ^3He pénétrer à cette température dans la dilution nous constaterons qu'à cause du premier principe de la thermodynamique, un tel réfrigérateur ne pourra jamais fonctionner.

$$P = \dot{n}_3(H(0.7, 0\text{bar}) - H(4\text{K}, 0, 5\text{bar})) = \dot{n}_3 \cdot (-64\text{J/mol}) \quad (1.8)$$

R_K (m^2K/W)	T(mK)
40	100
80	80
500	40
$2 \cdot 10^4$	10
$8 \cdot 10^4$	4
$2 \cdot 10^5$	2

TABLE 1.1 – D’après [Andres 1975]


 FIGURE 1.6 – Diagramme d’enthalpie de l’ ^3He

Il faut donc extraire de la chaleur d’une telle machine pour mettre en route la dilution. L’élément qui nous permet d’équilibrer ce bilan d’enthalpie est la boîte à 1K. Cette boîte est remplie d’ ^4He liquide provenant du bain. Une pompe primaire connectée à la boîte fait abaisser sa pression et donc sa température. En s’évaporant, l’ ^4He absorbe de l’énergie :

$$\dot{n}_4 L + \dot{n}_3 \Delta H = 0 \quad (1.9)$$

Où \dot{n}_4 est le débit d’ ^4He dans la boîte, L , la chaleur latente d’évaporation de l’ ^4He , le débit d’ ^3He est \dot{n}_3 et ΔH la différence d’enthalpie d’un atome d’ ^3He entre son état avant l’échangeur et celui d’après.

Nous déduisons de la figure 1.6 que pour refroidir l’ ^3He à 1.2K, il faut une puissance $\dot{Q} = 93 \cdot \dot{n}_3$. La chaleur latente d’ ^4He à 1K étant de 80 J/mol, il faut donc un débit de 120 $\mu\text{moles/s}$ d’ ^4He pour refroidir 100 $\mu\text{moles/s}$ d’ ^3He .

1.4 Le réfrigérateur à dilution pré-refroidi avec un tube à gaz pulsé

La conception d’un réfrigérateur à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé ne nécessite pas de modifications au niveau de la partie dilution. La seule différence réside dans la partie haute du réfrigérateur où l’utilisation du tube à gaz pulsé permet de pré-refroidir le mélange jusqu’à de 4K, permettant ainsi de se passer du bain d’ ^4He . Néanmoins, cela pose certaines difficultés :

1. Le tube à gaz pulsé a une faible puissance frigorifique comparée à celle délivrée par un bain d’ ^4He . Pour résoudre ce problème il est alors nécessaire d’optimiser les échanges thermiques dans cette

partie du réfrigérateur.

2. Le deuxième problème posé est l'absence de boîte à 1K. En effet, l'équation 1.8 démontre que la boîte à 1K est une partie indispensable dans un réfrigérateur à dilution. Dans la mesure où on veut développer un cryostat qui fonctionne sans helium liquide, il faut trouver une autre alternative pour pré-refroidir l'injection à des températures inférieures à 4K. La solution serait d'utiliser un échangeur Joule-Thomson. Bien qu'il soit moins efficace qu'une boîte à 1K, ce système a le net avantage d'être facile à mettre en place. Nous verrons dans le chapitre suivant qu'il permet de refroidir suffisamment le mélange pour ne pas altérer le fonctionnement de la dilution.

Dans la figure 1.3 est représenté le schéma d'une dilution classique avec une boîte à 1K, ainsi que celui d'une dilution fonctionnant avec un échangeur Joule-Thomson. Deux conceptions de systèmes d'injection pour nos réfrigérateurs ont été retenues. Elles seront discutées dans le chapitre suivant.

Chapitre 2

Circuit d'injection et pré-refroidissement

Sommaire

2.1	Introduction	24
2.2	Le tube à gaz pulsé	24
2.2.1	Principe de fonctionnement	24
2.2.2	Thermodynamique de la machine	25
2.2.3	Caractéristiques de la machine	27
2.2.4	Pré-refroidissement	27
2.3	Le circuit d'injection	29
2.3.1	Pression d'injection	29
2.3.2	L'ancien système d'injection	30
2.3.3	Le nouveau système d'injection	32
2.3.4	Les échangeurs sur le tube à gaz pulsé : conception	32
2.4	Échangeur Joule-Thomson	33

2.1 Introduction

Nous aborderons d'abord dans ce chapitre la partie "haute température" ($T > 4\text{K}$). Nous présenterons le principe de fonctionnement du tube à gaz pulsé, ainsi que ses caractéristiques. Nous décrirons les différentes parties du circuit d'injection et les différents échangeurs permettant d'utiliser le maximum de puissance fournie par le tube à gaz pulsé dans le but de refroidir le mélange. La dernière partie sera dédiée à l'échangeur JT. C'est une partie essentielle du réfrigérateur, elle permet de remplacer la boîte à 1K dont l'utilisation est courante pour des réfrigérateurs à dilution classiques.

2.2 Le tube à gaz pulsé

Les tubes à gaz pulsé sont des machines robustes et génèrent très peu de vibrations (essentiellement à basses fréquences, 1 à 2Hz). Ils permettent d'obtenir des températures cryogéniques en continu pouvant atteindre pour certaines machines commercialisées de nos jours 2.8K. Le tube à gaz pulsé utilisé pour pré-refroidir les réfrigérateurs à dilution discutés dans ce manuscrit est le PT405 commercialisé par Cryomech.

Cette machine est composée de deux étages. Le premier fournit une puissance de 25W à 55K, tandis que le deuxième fournit 500mW à 4K.

2.2.1 Principe de fonctionnement

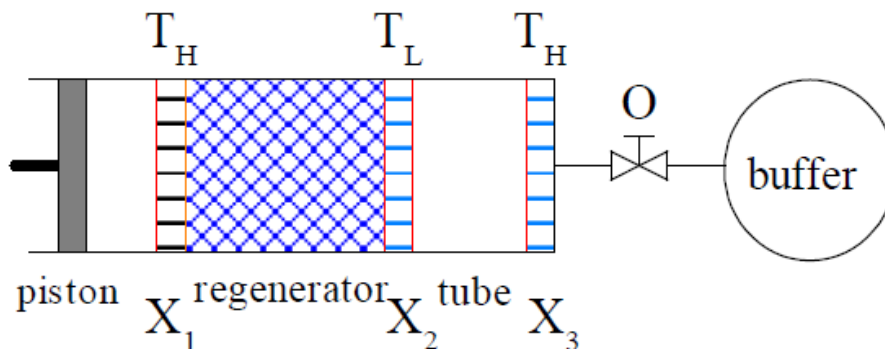


FIGURE 2.1 – Schéma d'un tube à gaz pulsé classique [de Waele 2011]

Le tube à gaz pulsé opère selon un cycle de Stirling composé de compressions et détentes isothermes et de deux transformations isochores. Il contient de l'Helium toujours sous pression (entre 5 et 25 bars pour le PT405). Cette pression élevée permet d'opérer dans une région du diagramme de phases loin du point critique, l'hélium reste alors à l'état gazeux durant tout le cycle.

Pour comprendre le fonctionnement du tube à gaz pulsé, nous considérons le schéma de la figure 2.1 :

1. À gauche nous avons un piston qui permet de comprimer le gaz. En réalité, cette compression est assurée par un compresseur consommant une puissance de quelques kW (voir annexe D). Grâce à ce piston l'hélium est comprimé jusqu'à 25 bars. La chaleur dégagée lors de la compression est évacuée par de l'huile qui est refroidie, à son tour, par de l'eau industrielle. L'échange de chaleur se fait au niveau de l'échangeur X_1 qui est à la température T_H .
2. Ensuite, nous avons un régénérateur qui est composé de matériaux poreux ayant une grande capacité calorifique (comparée à celle de l'hélium). La porosité du matériau est réalisée de sorte à ne pas le rendre très impédant dans le but d'éviter tout gradient de pression dans le régénérateur.

Néanmoins elle permet d'augmenter la surface d'échange de chaleur de façon à avoir une résistance thermique de contact négligeable. De plus, dans un régénérateur idéal, la conduction thermique axiale est faible. Le choix du matériau est donc un critère très important. Les régénérateurs constituent un facteur limitant lorsqu'on souhaite atteindre des basses températures. Un des problèmes est que la plupart des matériaux ont des capacités calorifiques qui diminuent de manière conséquente avec la température tandis que l'hélium conserve une capacité calorifique importante.

3. Juste après le régénérateur se trouve l'échangeur thermique X_2 . C'est l'échangeur froid qui est à la température T_L .
4. Ensuite se trouve le tube appelé aussi "tube à pulsation". Cette partie est la partie froide de la machine cryogénique, elle se trouve dans un vide d'isolation. Quand le gaz atteint cette partie du réfrigérateur cryogénique, il n'échange pas de chaleur avec l'extérieur. Il subit une série de compressions et de détente adiabatiques.
5. A l'extrémité du tube se trouve un échangeur X_3 à la température T_H .
6. Le système est relié par un capillaire à un volume tampon. Ce dernier est choisit de manière à avoir une variation de pression négligeable durant le cycle ($P_0 = Cste$). Une vanne permet en position fermée d'empêcher le mouvement des atomes entre le volume et le tube lors des compressions et des détente successives qui ont lieu dans ce dernier. Elle laisse échapper le gaz vers le volume tampon (tube) quand elle est ouverte, lors d'une compression (détente).

Le principe de fonctionnement de cette machine cryogénique est le suivant :

Au début, la vanne est fermée. Le piston se déplace vers la droite pour comprimer le gaz. Ce dernier, se trouvant dans le régénérateur voit sa pression augmenter mais conserve une température constante grâce à la thermalisation avec le matériau poreux.

Dans un second temps, le piston continue son mouvement vers la droite mais avec la vanne ouverte. Le gaz se trouvant dans le régénérateur entre dans le tube, en passant par X_2 , sa température est T_H . Une fois dans le tube il ne peut plus évacuer sa chaleur, tout changement de sa pression entraîne une modification de sa température.

L'étape suivante est la détente du gaz. La vanne est maintenant fermée et le piston se déplace vers la gauche. Étant toujours dans le tube, le gaz n'échange pas de chaleur avec l'extérieur, sa pression diminue ainsi que sa température.

La vanne s'ouvre ensuite, entraînant un déplacement du gaz vers le régénérateur. Il repasse ainsi par l'échangeur X_2 avec une température inférieure à T_H . Il enlève ainsi de la chaleur à l'échangeur, c'est de cette manière qu'on obtient du froid dans cette partie du réfrigérateur. Le cycle se termine quand le gaz revient dans le régénérateur, sa température est alors à nouveau T_H .

2.2.2 Thermodynamique de la machine

Pour comprendre le fonctionnement du tube à gaz pulsé nous allons considérer le problème du point de vue de la thermodynamique mais d'abord nous allons faire les considérations suivantes :

1. Nous considérons le gaz comme parfait ($V_m = \frac{RT}{P}$) et de ce fait nous pouvons déduire son entropie molaire (S_m) ainsi que son enthalpie molaire (H_m).

$$dS_m = \frac{C_P}{T} dT - \left(\frac{\partial V_m}{\partial T} \right)_P dP \quad (2.1)$$

$$S_m(p, T) = C_P \ln \frac{T}{T_0} - R \ln \frac{P}{P_0} \quad (2.2)$$

$$dH_m = T dS_m + V_m dP \quad (2.3)$$

$$H_m = C_P \cdot T \quad (2.4)$$

2. Nous considérons aussi que le régénérateur est idéal i.e la surface au niveau de laquelle s'effectue l'échange de chaleur est très grande ce qui permet de négliger la résistance thermique.
3. Dans le régénérateur ainsi que dans les échangeurs, l'état initial et l'état final sont les mêmes, les transformations sont donc isentropiques. Ce n'est qu'au niveau de la vanne que le gaz subit un changement de pression ce qui implique une création d'entropie (\dot{S}_0).

$$\overline{\dot{S}_0} = R \cdot \overline{\dot{n}} \cdot \ln \frac{P_t}{P_0} \quad (2.5)$$

Dans l'échangeur X_3 Le gaz se déplace vers la droite avec une température T_H puis vers la gauche avec une température supérieure à cette dernière à cause de la compression (cf. 2.2). En appliquant le second principe de la thermodynamique sur l'échangeur X_3 nous déduisons la puissance cédée au niveau de cet échangeur.

$$\overline{\dot{S}_3^*} = -\overline{\dot{S}_0} = -R \cdot \overline{\dot{n}} \cdot \ln \frac{P_t}{P_0} \quad (2.6)$$

$$\overline{\dot{S}_3^*} = \frac{\dot{Q}_H}{T_a} \quad (2.7)$$

$$\text{ce qui implique que : } \dot{Q}_H = T_H \cdot \overline{\dot{S}_0} \quad (2.8)$$

Le flux d'enthalpie molaire ($\overline{\dot{H}_3^*}$) durant un cycle entier de durée totale t_c se déduit du premier principe.

$$\overline{\dot{H}_3^*} = \frac{1}{t_c} \int_0^{t_c} \overline{\dot{n}} H_m(T) \cdot dt \quad (2.9)$$

$$= \overline{\dot{n}} \cdot C_P \cdot T \quad (2.10)$$

$$= \dot{Q}_H \quad (2.11)$$

Nous pouvons faire le même raisonnement sur l'échangeur X_2 , le gaz se déplace à droite à la température T_L et refait le trajet dans le sens inverse, après avoir subi une détente, à une température inférieure à T_L arrachant ainsi une quantité de chaleur $\dot{Q}_L/T_L = -T_L \dot{S}_r^*$ où \dot{S}_r^* est le débit d'entropie arrivant du régénérateur.

Le calcul thermodynamique pour chacune des parties du tube à gaz pulsé est détaillé dans l'article [de Waele 2011], il permet de déduire l'expression du rendement de la machine.

$$\xi = \frac{T_L}{T_H} \quad (2.12)$$

Pour le PT405 T_H est de 300K et T_L est de 3.5K, ce qui nous permet de déduire que le COP est de 1.34% .

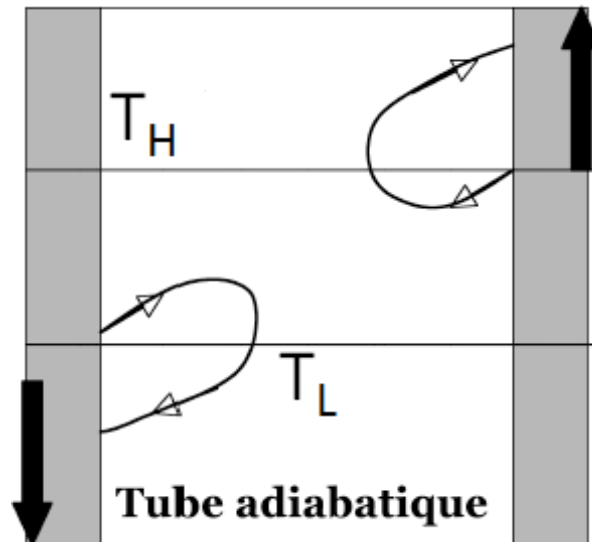


FIGURE 2.2 – A droite du tube, le gaz rentre avec une température T_H et ressort à une température supérieure à T_H , à gauche il rentre avec une température T_L et ressort à une température inférieure à T_L

2.2.3 Caractéristiques de la machine

En réalité le PT405 n'a pas la géométrie représentée sur la figure 2.1. En effet, cette géométrie en ligne avec la partie froide au milieu est peu pratique, elle rend la source froide difficile d'accès. Le PT405 possède une géométrie en U, la partie source froide se trouvant à l'extrémité. De plus le PT405 est un réfrigérateur bi-étagé utilisant deux cycles déphasés l'un par rapport à l'autre. Il est donc possible d'extraire de la puissance frigorifique au niveau de chacun de ses deux étages.

Avant de se servir de cette machine pour pré-refroidir le réfrigérateur à dilution, il fallait d'abord connaître ses caractéristiques et déterminer exactement les puissances frigorifiques qu'on pourrait extraire. Les sources froides du PT405 ne sont pas indépendantes, une charge thermique sur un des étages entrainera automatiquement un changement de la température de l'étage en question ainsi que celle de l'autre étage. Pour connaître la puissance disponible à chaque étage en fonction de la température nous avons placé sur chacun de ces derniers un chauffage et un thermomètre. Ce travail a été effectué pour la première fois durant la thèse de Thomas Prouvé ([Prouvé 2007b]) et nous avons pu vérifier au cours de cette thèse la reproductibilité des résultats. Les courbes sont représentées sur la figure 2.3.

La première information, qu'on peut extraire de ces courbes est la puissance délivrée par chacun des étages en fonction de la température. Cette information est très précieuse dans la mesure où toute partie reliant différents étages du réfrigérateur (tube de pompes, amenées de courants ...) doit prendre en compte les charges thermiques supportées par chacun des éléments. De plus ces courbes ont permis de se rendre compte d'une caractéristique très surprenante. En effet, les meilleures performances de la machine sont obtenues lorsqu'on charge le premier étage avec une puissance de l'ordre de 22W, une caractéristique très utile pour la conception de la dilution.

2.2.4 Pré-refroidissement

Le temps de refroidissement de la machine à vide d'après la notice du concepteur est d'1h. Mais en pratique, le tube à gaz pulsé est connecté à une masse importante (dilution + écrans), ce qui augmente considérablement le temps nécessaire pour atteindre la température de base. Un optimum doit être alors

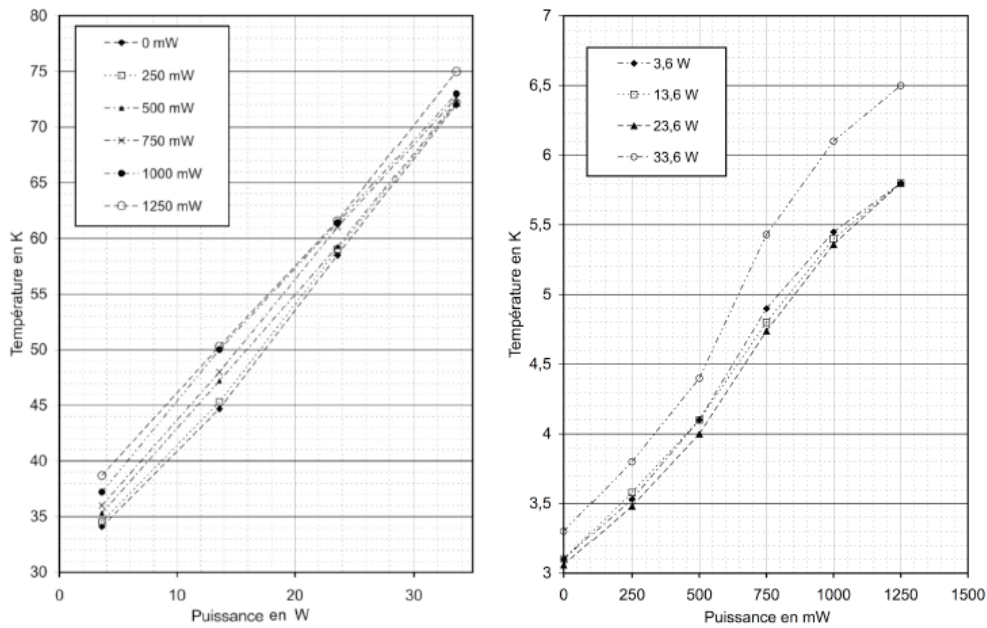


FIGURE 2.3 – À gauche : courbe de puissance du premier étage avec différentes charges sur le deuxième, à droite : courbe de puissance du deuxième étage avec différentes charges sur le premier

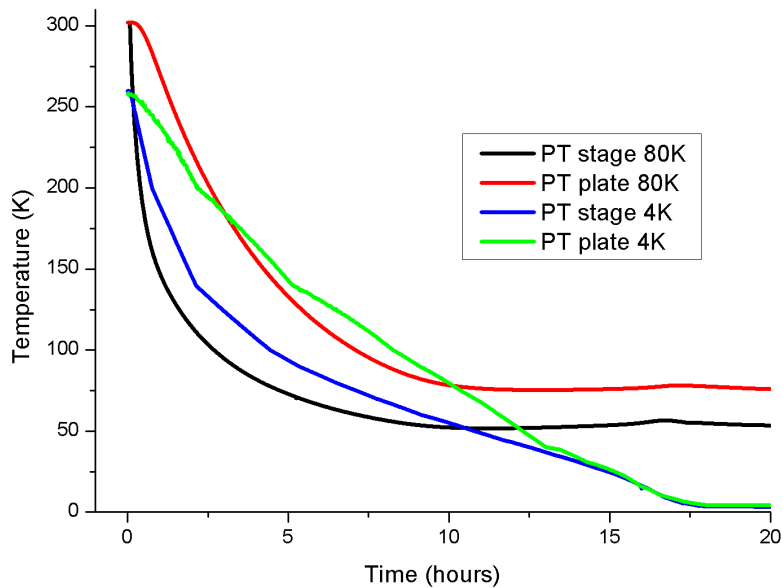


FIGURE 2.4 – Évolution de la température des étages du tube à gaz puls et des plaques de la partie haute du réfrigérateur en fonction du temps lors du pré-refroidissement

trouvé. En effet, réduire considérablement la masse des écrans et des tubes connectants les différentes parties du réfrigérateur peut altérer la tenue mécanique du réfrigérateur. De plus les tresses de thermalisation utilisées pour relier le tube à gaz pulsé aux différents écrans doivent être bien dimensionnées pour éviter les écarts de température importants :

$$\Delta T = R_{th} \cdot \dot{Q} \quad (2.13)$$

Où $R_{th} = \frac{l}{\lambda S}$ est la résistance thermique du matériau, avec l : longueur du matériau, S : sa section et λ la conductivité thermique et \dot{Q} est la puissance en W. Plus sa valeur est élevée, plus le diamètre des tresses de thermalisation doit être conséquent.

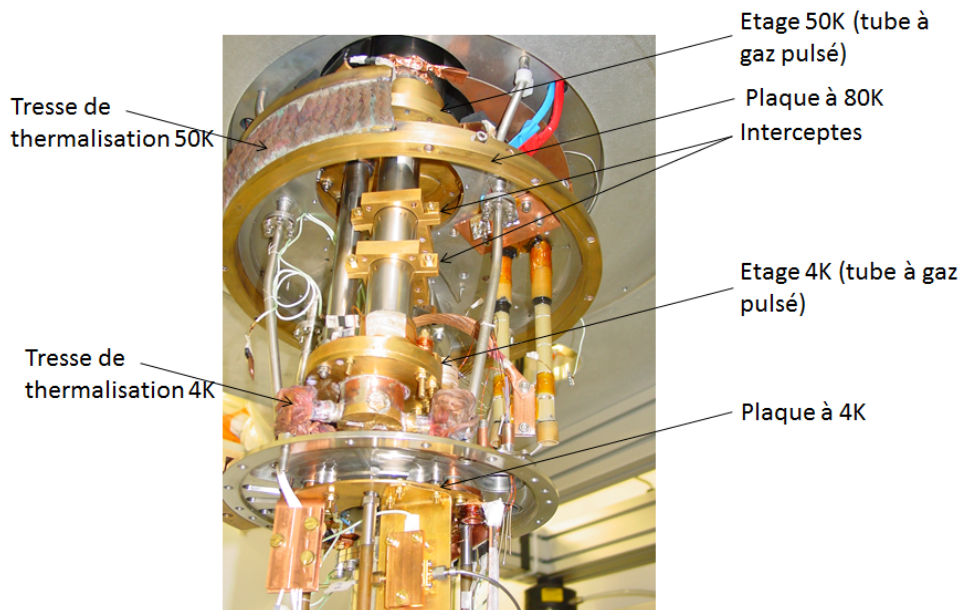


FIGURE 2.5 – Photo de la partie supérieure de PTDR3

Les tresses de thermalisation sont représentées sur la figure 2.5. A 50K, le tube à gaz pulsé a une grande puissance frigorifique, c'est pour cette raison que le diamètre des tresses à cette température ont un diamètre plus important que celles se trouvant à 4K. La figure 2.4 montre que la plaque et l'étage 4K sont bien connectés thermiquement, ils atteignent la même température de base. A 50K le tube à gaz pulsé fournit une puissance de l'ordre de 15W, ce qui explique l'écart température entre la plaque et l'étage dans cette partie du réfrigérateur. Le temps de pré-refroidissement de PTDR3 est de 17h tandis que celui de PTDR1 était de 24h. En effet, lors de la construction de PTDR3 sa masse globale a été réduite par rapport à PTDR1.

2.3 Le circuit d'injection

2.3.1 Pression d'injection

Le diagramme de la figure 2.7 montre que l'enthalpie de l' ^3He devient plus faible à des pressions de l'ordre de 4bars. Il en est de même pour l' ^4He . Pour profiter de cet effet, nous utilisons un compresseur au moment de la condensation dans le but de circuler de gros débits ($\sim 1\text{mmole/s}$) de mélange tout en chargeant au minimum le tube à gaz pulsé.

Une fois le mélange condensé, nous nous passons du compresseur réduisant la pression de condensation jusqu'à des valeurs inférieures à 1bar. Les réfrigérateurs à dilution doivent fonctionner de préférence en sous-pression, ce qui permet au cas où une fuite se déclare d'éviter l'éventuelle perte d'une partie du mélange. Un piège azote permet de nettoyer une éventuelle infiltration d'air dans le circuit évitant ainsi un bouchage du réfrigérateur. Néanmoins, les pompes de circulation d'hélium laissent souvent échapper de l'hydrogène. La température du piège azote n'étant pas suffisante pour adsorber l'hydrogène, les réfrigérateurs sont souvent équipés d'un second piège à la température de l'hélium liquide. Dans la mesure où nous voulions nous passer totalement de l'utilisation d'hélium liquide, nous avons opté pour

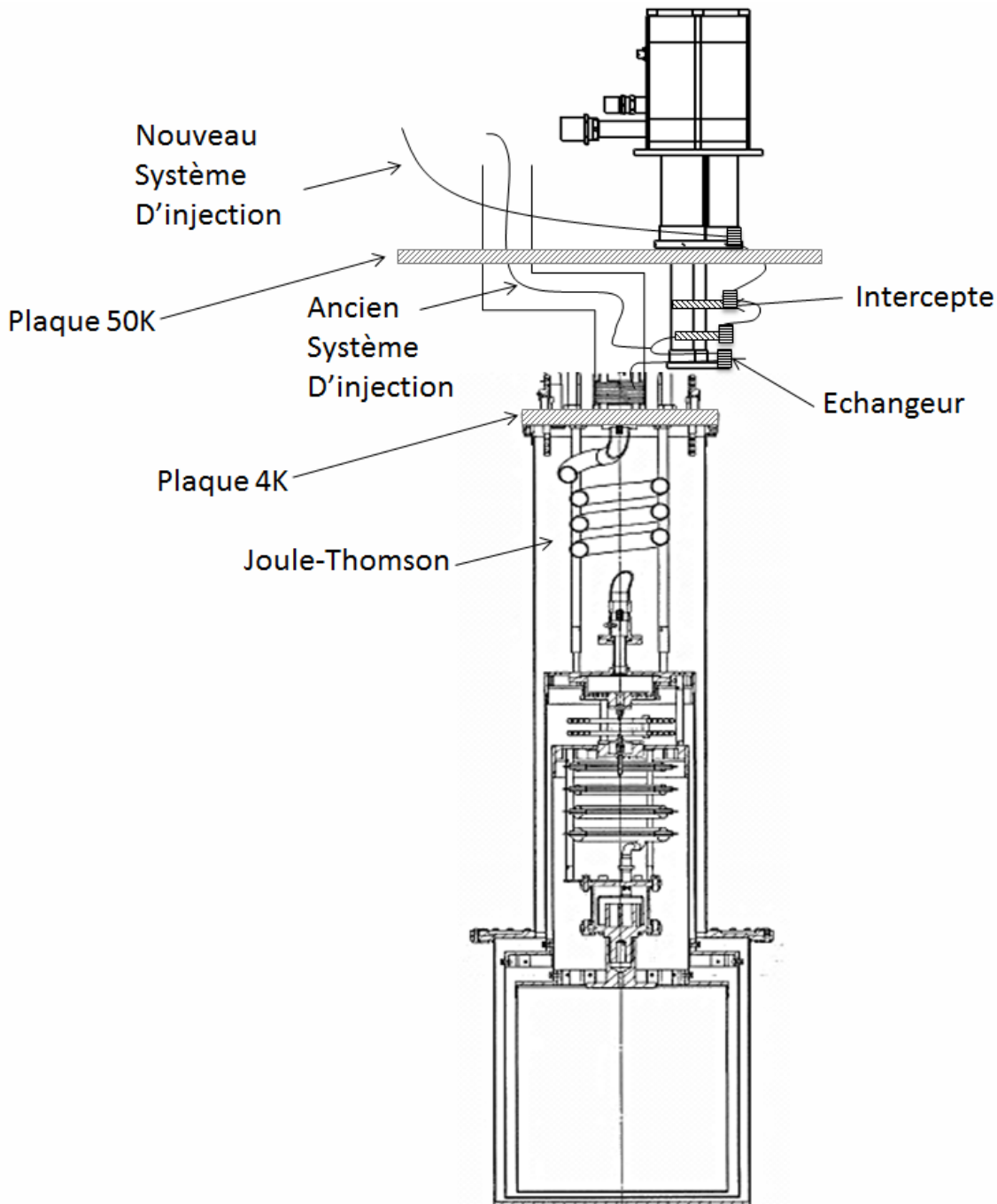


FIGURE 2.6 – schéma du réfrigérateur PTDR1 avec un double système d'injection

un purificateur de gaz commercialisé l'entreprise "Aeronex". Il piège par chimisorption les traces de dioxygène, d'eau, de monoxyde de carbone et surtout de dihydrogène.

2.3.2 L'ancien système d'injection

L'ancien système d'injection consistait à faire refroidir l' ^3He injecté dans le réfrigérateur par les vapeurs sortant de l'évaporateur grâce à un échangeur à contre-flux installé dans le tube de pompage d' ^3He (voir figure 2.6). Ensuite la température de l'injection est abaissée grâce à un échangeur installé à 4K. Cet échangeur était initialement vissé sur la plaque située à 4K de PTDR1. Mais cela représentait un inconvénient. En effet lors de la condensation, la charge thermique sur la plaque était importante ce

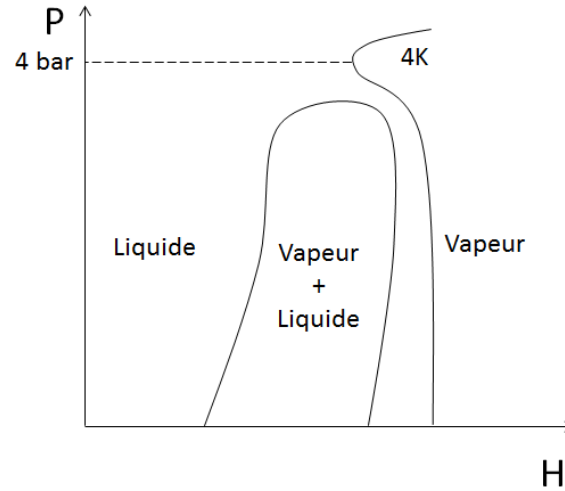


FIGURE 2.7 – Diagramme d'enthalpie de l' ^3He . La courbe isotherme 4K représentée sur la figure montre que l'enthalpie devient minimale pour une pression de 4 bars

qui avait pour effet de découpler thermiquement la plaque de l'étage, rendant ainsi la thermalisation du mélange moins efficace. Afin de résoudre ce problème, nous avons décidé de déplacer l'échangeur et le visser directement sur le tube à gaz pulsé.

Pour étudier l'efficacité de l'ancien système d'injection, il suffit de se livrer à un petit calcul de thermodynamique afin de déterminer la température de l' ^3He après chaque échangeur, ces derniers étant considérés comme parfaits. Quand l' ^3He pénètre dans le premier échangeur il est à 300K, c'est donc un gaz parfait. Le premier principe de la thermodynamique se réduit à l'expression suivante :

$$\Delta H_{pompage} = \Delta H_{injection} \quad (2.14)$$

$$\frac{5}{2}R(T - 2.8) = \frac{5}{2}R(300 - T) \quad (2.15)$$

$$T = 150K \quad (2.16)$$

L'enthalpie d'un gaz parfait étant $H = \frac{5}{2}RT$.

$\Delta H_{pompage}$ est le bilan d'enthalpie de l' ^3He coté pompage, qui est dû à la chaleur absorbée par ce dernier lors de son réchauffement de 2.8K à T. Nous considérons que la température des vapeurs à la sortie de l'échangeur Joule-Thomson est de 2.8K. A la fin de ce chapitre nous démontrons que cette considération est exacte si un échange parfait a lieu dans la partie Joule-Thomson.

$\Delta H_{injection}$ est le bilan d'enthalpie de l' ^3He coté injection. Cette différence d'enthalpie est due à la chaleur cédée lors de son refroidissement dans le tube de pompage.

L' ^3He injecté poursuit son trajet dans l'échangeur 4K où il va perdre de son enthalpie grâce à la puissance frigorifique du tube à gaz pulsé. Connaissant la température de l'injection avant l'échangeur, nous pouvons facilement déduire la charge thermique à 4K.

$$\dot{Q} = \dot{n}_3 [H(150K, 0.5bars) - H(4K, 0.5bars)] \quad (2.17)$$

Pour un débit de 100 $\mu\text{moles/s}$, la chaleur cédée est de 300 mW, bien inférieure à la puissance que peut supporter l'étage du tube à gaz pulsé à 4K et qui est de l'ordre de 500mW.

Les calculs effectués montrent que ce circuit d'injection est parfaitement adapté à ce type de réfrigérateur. Il a d'ailleurs été expérimenté et validé. Seule ombre au tableau, la condensation du mélange nécessite un temps très long de l'ordre de 8 heures. En effet, lors de la condensation, l'évaporateur est vide et la thermalisation de l'injection dans le tube de pompage est inefficace. Pour remédier à ce problème, nous avons conçu et réalisé un nouveau système d'injection.

2.3.3 Le nouveau système d'injection

Pour améliorer les performances de la machine surtout au moment de la condensation nous avons décidé d'utiliser le maximum de puissance frigorifique que peut délivrer le tube à gaz pulsé, en particulier au niveau de l'étage 50K. Les dizaines de Watts disponibles à ce niveau sont largement suffisantes pour abaisser la température du mélange injecté de 300K à 50K. Un calcul similaire à 2.17 montre que le refroidissement du mélange au moment de la condensation (1mmole d' ^3He et d' ^4He) de 50K à 4K nécessite une puissance frigorifique supérieure à 700mW. Cette puissance doit être disponible au niveau du deuxième étage du réfrigérateur ce qui risquerait d'augmenter sa température. Afin de diminuer cette charge thermique, il fallait chercher d'autres sources de "froid". La solution consiste à extraire de la puissance ailleurs que sur les deux étages du tube à gaz pulsé. C'est ainsi en plaçant des "intercepts" au niveau du régénérateur (cf. figure 2.8) nous pouvons obtenir de la puissance frigorifique "gratuite". Cela est dû au fait que le régénérateur n'est pas parfait. Sa conduction axiale non négligeable favorise l'existence d'un flux de chaleur entre le premier et le second étage du tube à gaz pulsé. Cela a pour effet de diminuer les performances de la machine cryogénique. Plusieurs études théoriques, la première réalisée Shaowei Zhu et son équipe en 2002 ([Zhu 001]) et une seconde par A.T.A.M De Waele en 2011 (cf. [de Waele 2011]) prévoient qu'il est possible d'intercepter ce flux sans dégrader les performances du tube à gaz pulsé. La première vérification expérimentale de ces théories a été effectuée pour durant la thèse de Thomas Prouvé ([Prouvé 2007b]). Les mesures ont démontré qu'il était possible d'extraire quelques centaines de mW de puissance au niveau de chacun des deux intercepts placés à 12K et 8K.

2.3.4 Les échangeurs sur le tube à gaz pulsé : conception

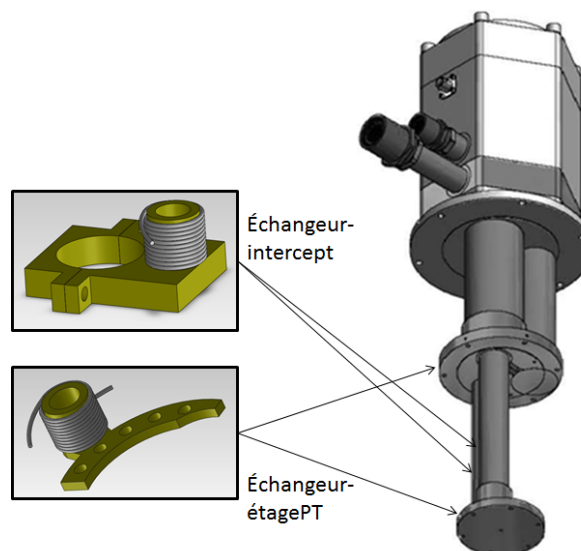


FIGURE 2.8 – Schéma des échangeurs sur le tube à gaz pulsé

Pour dimensionner des échangeurs de chaleur efficaces, il faut tenir compte de plusieurs facteurs :

1. D'abord ils doivent avoir une faible résistance de contact avec la source froide afin d'évacuer une puissance thermique importante sans se découpler thermiquement. C'est par ailleurs pour cette raison que la surface de contact échangeur-tube à gaz pulsé fait de l'ordre de 10 cm^2 . De plus, ces surfaces ont été dorées afin d'éviter la formation d'une couche d'oxyde pouvant altérer la conduction thermique.
2. Ensuite, il faut que le gradient thermique de température dans l'échangeur soit le plus faible possible. En effet, l'échangeur est constitué d'un tube en cuivre afin d'améliorer la conduction thermique. Le capillaire d'injection est enroulé et soudé sur ce dernier. Les dimensions du tube sont choisies de sorte à avoir un gradient de température négligeable sur la longueur.
3. Le dernier critère permet de choisir la longueur ainsi que la section du capillaire. En effet, il faut que ^3He ait suffisamment de temps pour se thermaliser avant de sortir de l'échangeur : le temps de diffusion dans le capillaire (τ_D) doit être largement inférieur au temps de parcours du gaz dans le capillaire ($\tau_{parcours}$).

$$\tau_D \ll \tau_{parcours} \quad (2.18)$$

$$\frac{r_i^2}{D} \ll \frac{2 * \pi * L * r_i^2}{n_3 * V_m(T)} \quad (2.19)$$

Où r_i est le rayon interne du capillaire, L sa longueur et $V_m(T)$, le volume molaire de ^3He à la température T .

La relation 2.19 permet de déduire la longueur de capillaire nécessaire pour refroidir un débit donné à une température T .

2.4 Échangeur Joule-Thomson

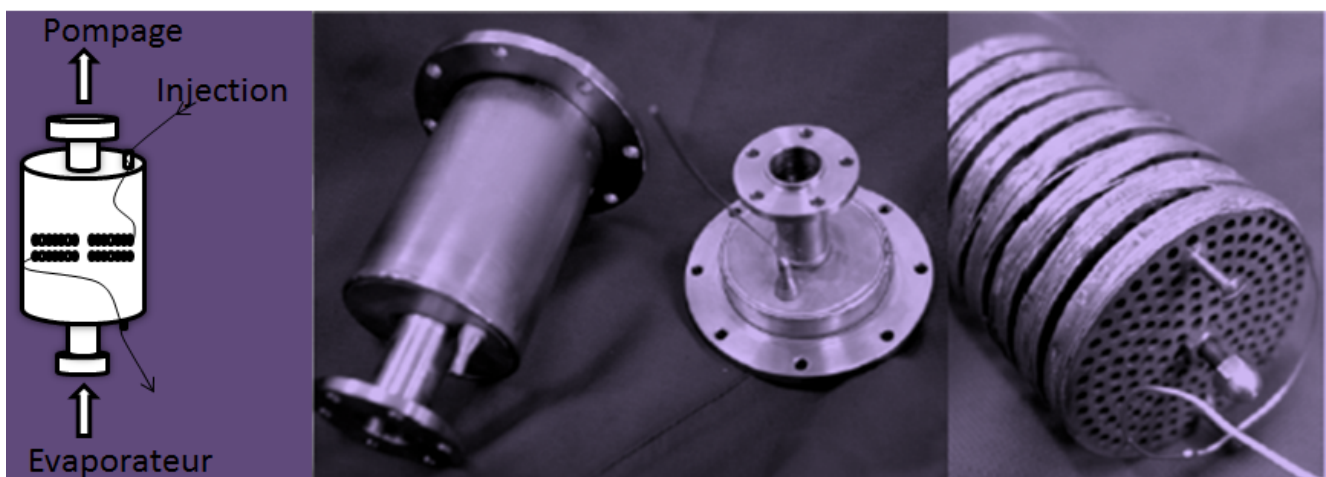


FIGURE 2.9 – A gauche : schéma de l'échangeur JT de PTDR3. A droite : photo de l'échangeur JT de PTDR1. Au milieu la boîte en inox qui contient l'échangeur

Grâce aux échangeurs de chaleurs du tube à gaz pulsé, ^3He pénètre dans l'échangeur Joule-Thomson avec une température de 4K. En toute rigueur, on devrait se limiter à l'appeler échangeur car il ne se

produit pas à ce niveau de détente Joule-Thomson, mais un usage malheureux auquel nous nous plions veut que cet échangeur soit appelé échangeur Joule-Thomson.

Une fois dans l'échangeur Joule Thomson le gaz injecté se refroidit grâce aux vapeurs froides de l'évaporateur. L'échangeur du réfrigérateur PTDR2 utilisait des disques en cuivre perforé afin de thermaliser au mieux le capillaire (cf. 2.9). Cet échangeur avait l'avantage d'être très efficace mais il était très massif et très difficile à fabriquer. Nous avons décidé de changer la conception de ce dernier afin de le rendre beaucoup plus léger et facile à mettre en oeuvre. Pour cela nous avons utilisé un capillaire enroulé en spirale dans le tube de pompage comme le montre la figure 2.9, de façon à perturber l'écoulement des vapeurs d' ^3He et favoriser l'échange de chaleur.

Après son passage dans l'échangeur JT, l' ^3He de l'injection doit poursuivre son parcours dans un échangeur situé au niveau de l'évaporateur. Si l'échange de chaleur dans l'échangeur JT est mauvais, la charge thermique sur l'évaporateur devient importante. C'est d'ailleurs un excellent moyen pour vérifier l'efficacité de ce dernier. Pour connaître la température de l' ^3He à la sortie de l'échangeur nous appliquons une fois encore le premier principe de la thermodynamique.

$$H(0\text{bar}, T_{eq}) - H(0\text{bar}, 0.7\text{K}) = H(0.5\text{bar}, 4\text{K}) - H(0.5\text{bar}, T_{eq}) \quad (2.20)$$

$$\frac{5}{2} \cdot R(T_{eq} - 0.7) = H(0.5\text{bar}, T_{eq}) - 99 \quad (2.21)$$

$$H(0.5\text{bar}, T_{eq}) = -20.785T_{eq} + 84.45 \quad (2.22)$$

En se servant du diagramme d'enthalpie de l' ^3He , nous déduisons que la température de l' ^3He à la sortie de l'échangeur JT est de 2.8K. Nous avons comparé la température de l'évaporateur de PTDR3 avec celle de PTDR2 qui était équipé de l'ancien échangeur JT et nous avons déduit que les deux échangeurs étaient tout aussi efficaces l'un que l'autre. Néanmoins le nouvel échangeur a l'avantage d'être peu massif et beaucoup plus facile à réaliser.

Chapitre 3

PTDR3 : Environnement et caractéristiques générales

Sommaire

3.1	Introduction	36
3.2	Sources de chaleur	36
3.2.1	Conduction thermique	36
3.2.2	Rayonnement	37
3.2.3	Convection	37
3.2.4	Vibrations	37
3.3	Thermodynamique de la machine	37
3.4	Puissance frigorifique	37
3.5	Condensation	39
3.6	Étage à désaimantation nucléaire	40
3.6.1	Principe de la désaimantation nucléaire	40
3.6.2	choix du matériau	40
3.6.3	Étage à désaimantation nucléaire sur un cryostat sans fluide cryogénique	41
3.6.4	Conclusion	42

3.1 Introduction

Les différentes parties du réfrigérateur ont été étudiées séparément dans les chapitres précédents. Nous avons présenté les solutions choisies pour optimiser chacune de ces parties. Dans ce chapitre, nous discuterons de l'environnement extérieur de l'appareil et des solutions que nous avons mises en place afin de réduire les fuites thermiques. Nous présenterons le diagramme d'enthalpie de la dilution et les caractéristiques de la machine. La dernière partie sera dédiée aux tests en cours de réalisation et dont le but est d'installer un étage à désaimantation nucléaire sur ce type de machine. Un tel étage permettra d'obtenir des températures de l'ordre de $500 \mu\text{K}$, jamais atteintes pour des réfrigérateurs fonctionnant sans fluide cryogénique.

3.2 Sources de chaleur

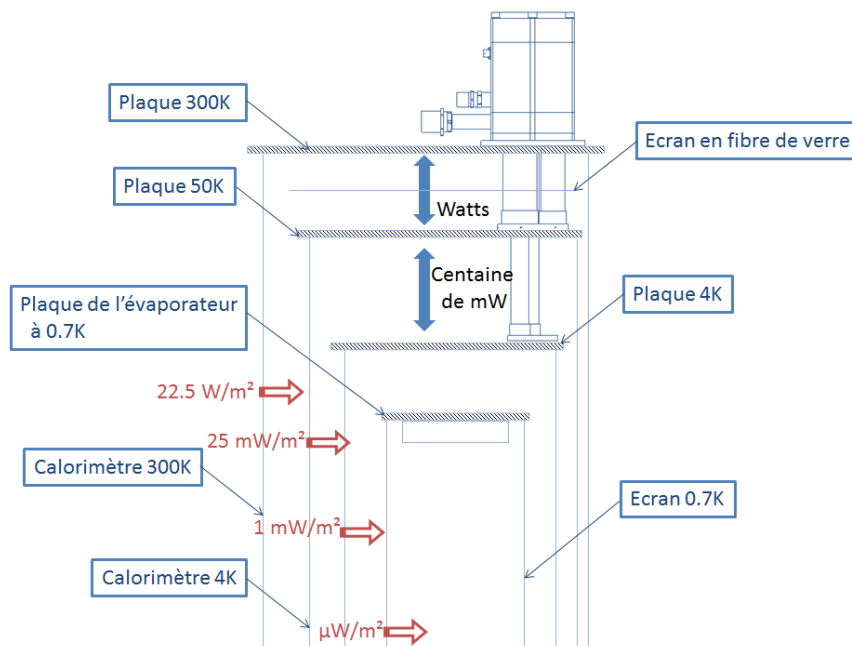


FIGURE 3.1 – Bilan thermique du cryostat : les flèches en bleu désignent les flux de chaleur par conduction entre les étages, les flèches rouges schématisent le rayonnement par les calorimètres.

Dans un réfrigérateur à dilution il existe plusieurs sources de chaleur : conduction, convection, rayonnement, vibrations. Afin de limiter leur effet, nous avons dressé un bilan thermique du réfrigérateur et pris les mesures nécessaires.

3.2.1 Conduction thermique

A cause des tubes connectant les différentes parties du réfrigérateur, la conduction constitue une source importante de chaleur. Le flux de chaleur entre deux parties dont les températures respectives sont T_1 et T_2 , tel que $T_2 < T_1$, s'exprime par la loi de Fourier :

$$\dot{Q} = \frac{S}{L} \cdot \int_{T_2}^{T_1} \lambda(T) \cdot dT \quad (3.1)$$

Pour diminuer ce flux, il faut réduire la section S du tube, augmenter sa longueur L et utiliser un matériau ayant une très faible conductivité thermique λ . Les parties les plus froides de la machine sont tenues mécaniquement par des tubes en fibre de verre. Les différents tubes du circuit d'hélium ainsi que

les tubes de pompage sont en inox car ce dernier est un mauvais conducteur thermique. De plus, un très bon vide est nécessaire dans le calorimètre car le gaz résiduel peut constituer une source importante de chaleur. Actuellement nous avons un flux de chaleur par conduction de 4W entre l'étage à 300K et l'étage à 55K, et 80mW entre ce dernier et l'étage à 4K. Le calcul montre qu'avec les solutions adoptées ce flux devient négligeable entre les parties les plus froides de la dilution.

3.2.2 Rayonnement

La chaleur apportée par rayonnement peut être limitée en plaçant des écrans sur les différentes parties du réfrigérateur. Nous calculons qu'à 300K le calorimètre émet un rayonnement de 22.5W/m^2 , à 55K il devient de 25mW/m^2 . Ces puissances sont bien plus importantes que ce que peut supporter le tube à gaz pulsé à chacun de ses étages respectivement. Pour remédier à ce problème une dizaine de couches de super-isolant a été rajoutée sur les écrans de 55K et 4K. Une plaque supplémentaire a été installée entre celles de 55K et de 300K. L'écran à 4K rayonne une puissance de 1mW/m^2 vers l'intérieur du réfrigérateur. Pour que ce flux de chaleur n'atteigne pas la boîte à mélange nous plaçons un écran sur l'évaporateur. Enfin, nous avons installé des écrans dans les tubes, surtout le tube de pompage d' ^3He , afin d'éviter que le rayonnement émis à 300K n'atteigne l'évaporateur.

3.2.3 Convection

En fonctionnement normal, les parties froides du réfrigérateur sont en bas, configuration ne permettant pas la convection. Lors du pré-refroidissement la source froide (tube à gaz pulsé) est en haut, et la convection du gaz d'échange dans le calorimètre favorise le refroidissement de la dilution jusqu'à environ 4K.

3.2.4 Vibrations

Bien que les vibrations causées par l'utilisation d'un tube à gaz pulsé ne soient pas un problème pouvant affecter la température du réfrigérateur car ce sont des vibrations de basse fréquence (2Hz), le réfrigérateur peut capter un spectre large de fréquences provenant de l'environnement. Différentes solutions existent pour découpler mécaniquement le cryostat de l'environnement, nous avons opté pour l'utilisation d'amortisseurs à air comprimé.

3.3 Thermodynamique de la machine

Pour concevoir et construire un réfrigérateur à dilution il faut se référer au diagramme d'enthalpie qui fournit la proportion de liquide et de gaz dans chaque partie de la machine.

Au début, le gaz d' ^3He est introduit dans l'échangeur JT, son enthalpie diminue et il rentre dans une région biphasique. Ensuite il continue son parcours à travers l'impédance principale Z1 qui permet d'abaisser sa pression. Dans certains réfrigérateurs, et c'est le cas de PTDR3, l'impédance est connectée sur l'évaporateur ce qui permet d'obtenir à sa sortie de l' ^3He liquide. Néanmoins, ce dernier ne doit pas avoir une pression nulle, sinon il risque de se ré-évaporer. C'est pour cette raison qu'une autre impédance Z2 est installée dans l'échangeur continu afin de créer une perte de charge. A basse température, l' ^3He acquiert une pression et une enthalpie faibles et reste dans la phase liquide.

3.4 Puissance frigorifique

PTDR3 a les mêmes caractéristiques que PTDR1 et PTDR2, il atteint une température minimale de 20mK avec un échangeur continu. Sa puissance frigorifique est de $100\mu\text{W}$ à 100mK. En rajoutant deux échangeurs d'argent nous pourrions atteindre des températures inférieures à 10mK, cela fut réalisé dans

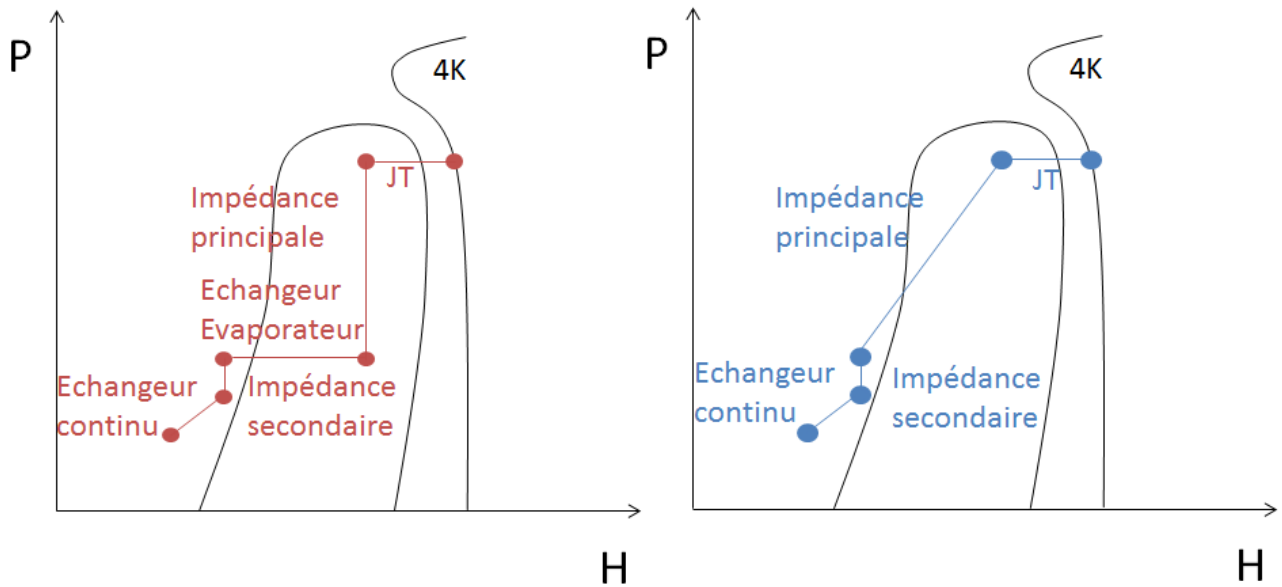


FIGURE 3.2 – A gauche : schéma du diagramme d'enthalpie du réfrigérateur à dilution avec l'impédance principale $Z1$ non thermalisée sur l'évaporateur, à droite : schéma avec l'impédance $Z1$ thermalisée sur l'évaporateur.

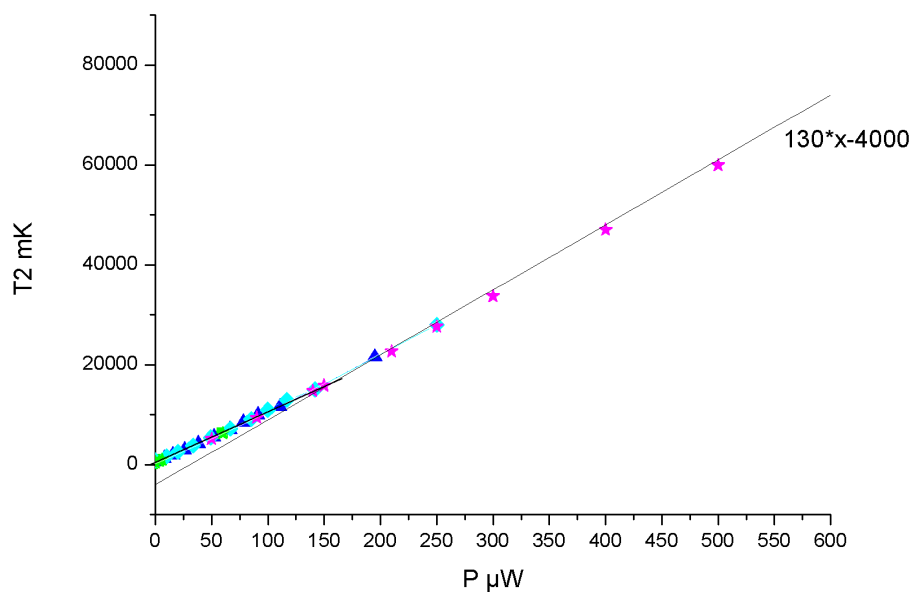


FIGURE 3.3 – Courbe de puissance du réfrigérateur PTDR3, en abscisse la puissance appliquée à la boîte à mélange et en ordonnée la température d'équilibre élevée au carré.

le passé pour PTDR1 et PTDR2. La courbe de puissance est mesurée avec un débit constant d' ^3He de $100\mu\text{moles/s}$. Cette courbe suit globalement une loi en T^2 . A basse température la charge thermique sur la boîte est très importante par rapport à la puissance frigorifique, et le bilan d'enthalpie doit prendre en compte non seulement les entrées de chaleur externes, mais également la température d'entrée de la phase concentrée, bien plus élevée que celle de la boîte à mélange.

3.5 Condensation

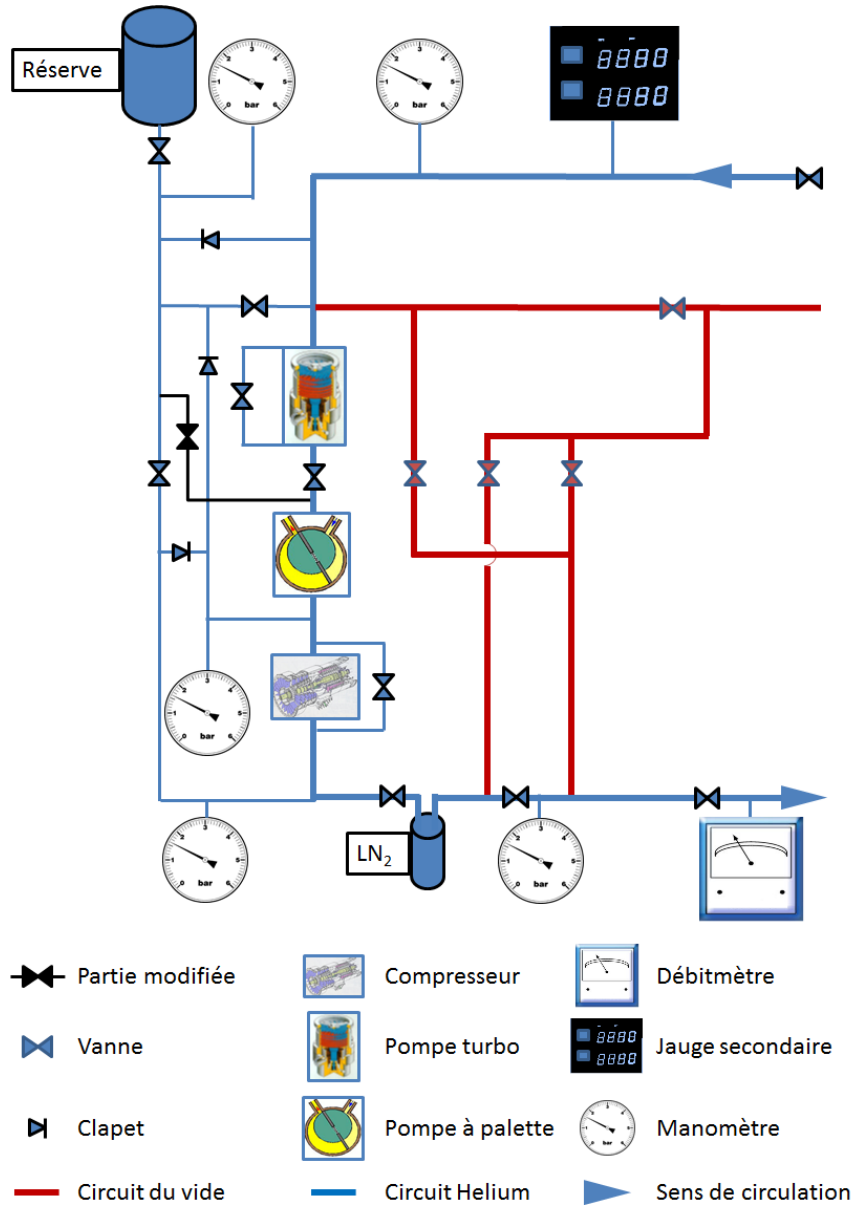


FIGURE 3.4 – Schéma du tableau de vanne de PTDR3

Pour limiter la charge thermique sur l'évaporateur au moment de la condensation nous avons effectué une modification au niveau du tableau de vannes représenté dans la figure 3.4. Avec l'ancien système de circulation représenté en bleu il n'était possible d'injecter le mélange qu'en aval du groupe de pompage, ce qui avait pour effet d'augmenter la pression dans le tube de l'évaporateur et d'envoyer du gaz chaud sur ce dernier élevant ainsi sa température. La modification apportée au tableau de vannes est représentée dans la figure 3.4. Elle permet d'injecter le contenu de la réserve entre les pompes primaire et turbo, afin de garder l'évaporateur le plus froid possible, améliorant ainsi le temps de condensation.

3.6 Étage à désaimantation nucléaire

3.6.1 Principe de la désaimantation nucléaire

Un étage à désaimantation nucléaire est constitué de fils et de lames de cuivre connectés à la dilution par un interrupteur thermique, le tout étant placé dans une bobine. L'entropie des spins nucléaires du cuivre dans le régime paramagnétique est

$$S = R \ln(2I + 1) \quad (3.2)$$

où $2I + 1$ est le nombre d'orientations possibles du spin nucléaire avec $I = 1/2$. Le refroidissement par désaimantation nucléaire consiste en deux étapes :

1. D'abord une transformation isotherme. En fermant l'interrupteur thermique nous thermalisons l'étage à la boîte à mélange de la dilution. Un accroissement du champ magnétique de 0 à B_i entraîne un dégagement de la chaleur.

$$Q = nT_i \int_0^{B_i} \left(\frac{\partial S}{\partial B} \right)_{T_i} dB \quad (3.3)$$

Cette quantité de chaleur est absorbée par la boîte à mélange.

2. La deuxième étape consiste en une transformation adiabatique. L'interrupteur thermique est ouvert cette fois et l'entropie reste constante durant la transformation. En réduisant le champ magnétique, nous diminuons la température.

$$S(B_i/T_i) = S(B_f/T_f) \quad \Rightarrow \quad \frac{B_i}{T_i} = \frac{B_f}{T_f} \quad (3.4)$$

3.6.2 choix du matériau

En théorie n'importe quel matériau possédant un moment magnétique peut faire l'affaire, mais en pratique il faut tenir compte de plusieurs paramètres :

1. D'abord la conductivité thermique du matériau doit être assez importante, ce qui permet d'écartier bon nombre de composés qui deviennent supraconducteurs à basses températures.
2. Ensuite il faut un matériau ayant un moment magnétique nucléaire raisonnable (pour le ^{63}Cu $\mu/\mu_N = 2.3$).
3. De plus un bon couplage entre les électrons et les spins nucléaires est indispensable. Cette propriété est déterminée par constante de Korringa K .
4. De même une bonne capacité calorifique est recommandée, sinon le temps de l'expérience se réduit et cette dernière devient alors compromise. Par ailleurs le champ magnétique maximal est choisi de façon à se placer au niveau de l'anomalie Schottky. Cette anomalie correspond au maximum de capacité calorifique des spins nucléaires.

5. Enfin le matériau doit avoir de préférence une structure cubique, car dans le cas contraire des interactions magnétiques de type quadrupolaires contribuent au champ magnétique effectif.

Le seul matériau qui respecte toutes ces contraintes est le cuivre. C'est bien pour cette raison qu'il est pratiquement le seul à être utilisé dans la construction d'étages à désaimantation nucléaire.

3.6.3 Étage à désaimantation nucléaire sur un cryostat sans fluide cryogénique

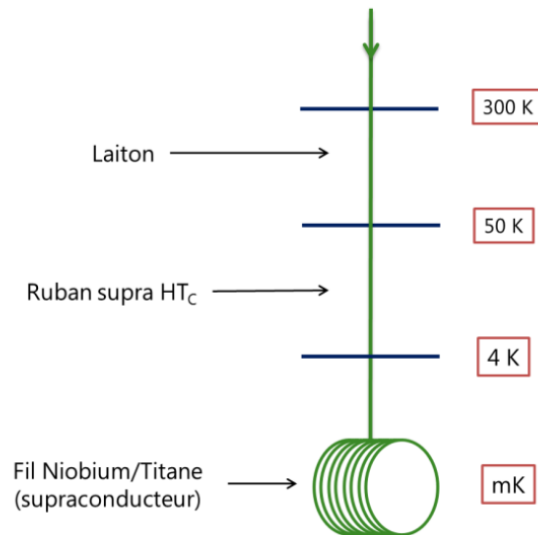


FIGURE 3.5 – Schéma des amenées de courant de la température ambiante jusqu'à la bobine de champ en bas du cryostat

La construction d'un étage à désaimantation nucléaire sur une dilution sans fluide cryogénique n'est pas une mince affaire. La difficulté réside dans la conception d'une bobine et d'amenées de courant pouvant fonctionner dans le vide sans charger le réfrigérateur.

Pour satisfaire cette condition nous avons choisi les solutions suivantes :

1. Entre le tube à gaz pulsé et la bobine un fil supraconducteur en NbTi a été installé. Il est thermalisé sur l'étage à 4K du tube à gaz pulsé, ensuite sur tout l'écran de l'évaporateur.
2. Entre les deux étages du tube à gaz pulsé : un supraconducteur HT_c permet de conduire le courant. Il est thermalisé sur les "intercepts".
3. Entre 300K et 55K nous avons opté pour l'utilisation de plaques en laiton car leur résistance thermique reste pratiquement constante quand la température varie. Les dimensions de ces plaques ont été choisies en tenant compte de l'effet Joule ainsi que du flux de chaleur par conduction entre 300K et 55K.

$$P_{Joule} = \rho \cdot \frac{L}{S} \cdot I^2 \quad (3.5)$$

$$P_{conduction} = \frac{S}{L} \int_{55}^{300} \lambda \cdot dT \quad (3.6)$$

Nous en déduisons qu'avec une longueur de 15cm, une épaisseur de 1mm et une largeur de 3cm, nous obtenons une charge de quelques Watts sur l'étage à 55K, ce qui est satisfaisant.

4. La bobine est constituée de fils de NbTi multifilamentaires. Ce dernier a une matrice en cuivre, ce qui permet d'assurer sa bonne thermalisation. De plus, si une partie du supraconducteur subit une transition vers l'état normal, le courant passera par la matrice de cuivre, évitant ainsi d'avoir une grande charge thermique sur l'évaporateur.

Le champ magnétique sur l'axe (oz) d'un solénoïde épais peut facilement être calculée. Son expression est la suivante :

$$H_0(z) = \frac{\mu_0 \cdot J_{eff}}{2} \left(\left| z + \frac{L}{2} \right| \left[\operatorname{arcsinh} \left(\frac{D_e}{2z + L} \right) - \operatorname{arcsinh} \left(\frac{D_i}{2z + L} \right) \right] \right. \\ \left. + \left| z - \frac{L}{2} \right| \left[\operatorname{arcsinh} \left(\frac{D_i}{2z + L} \right) - \operatorname{arcsinh} \left(\frac{D_e}{2z + L} \right) \right] \right) \quad (3.7)$$

où μ_0 est la perméabilité du vide, D_i , D_e et L sont respectivement les diamètres intérieur, extérieur et la longueur de la bobine. $J_{eff} = \tau \cdot \frac{I}{S}$ est la densité effective du courant, τ_{eff} est le taux de foisonnement de la bobine, S la section du fil et I le courant qui la parcourt.

De cette formule nous déduisons la carte de champ magnétique produit par le solénoïde. Nous avons constaté qu'à une distance de 10cm de ce dernier le champ magnétique reste non négligeable (~ 100 mT) ce qui risque d'induire des courants de Foucault dans le réfrigérateur. La puissance générée par ces courants dans un métal de volume V et de résistance R est donnée par l'expression suivante :

$$\dot{Q} = \frac{GV\dot{B}^2}{R} \quad (3.8)$$

où G est un facteur géométrique.

$$G = \begin{cases} \frac{r^2}{8} & \text{pour un cylindre de rayon } r \\ \frac{d^2}{16} \cdot \frac{k^2}{1+k^2} & \text{pour un rectangle de largeur } w \text{ et d'épaisseur } d, k = w/d \end{cases} \quad (3.9)$$

Pour réduire cet effet nous avons rajouté des bobines de compensation aux extrémités du solénoïde réduisant ainsi le champ magnétique à l'extérieur de ce dernier. Nous avons de plus prévu de blinder avec un supraconducteur (Niobium) les parties métalliques du réfrigérateur qui sont connectées à la boîte à mélange.

3.6.4 Conclusion

L'étage à désaimantation nucléaire n'est pas encore disponible, néanmoins les tests effectués ont permis de montrer qu'il est possible d'avoir des champs magnétiques importants sur ce type de réfrigérateurs à dilution. La finalisation de ce projet est en cours, elle permettra d'obtenir pour la première fois des températures de l'ordre de $500\mu\text{K}$ avec un cryostat sans fluides cryogéniques.



FIGURE 3.6 – Photo du réfrigérateur PTDR1 après modification du circuit d'injection.

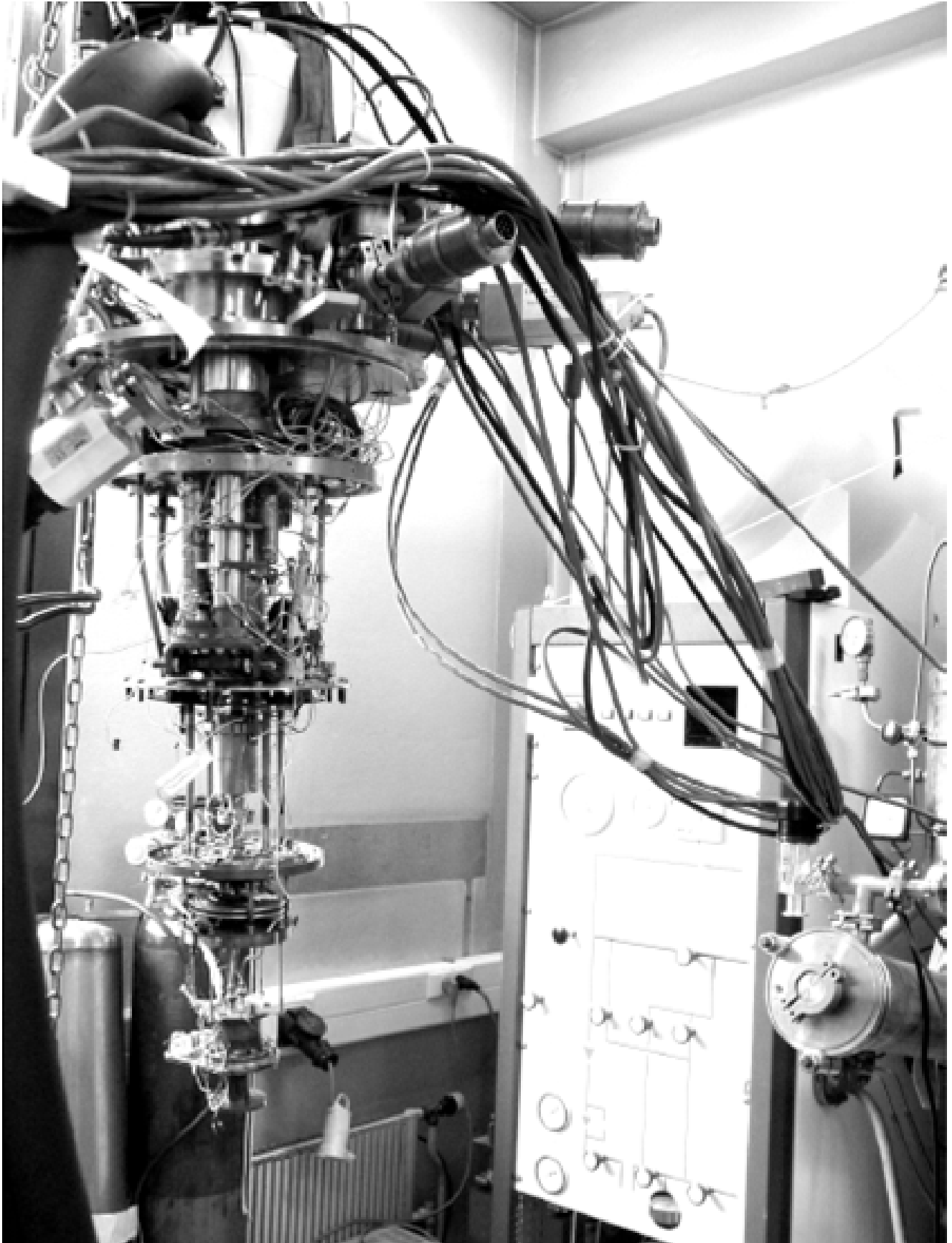


FIGURE 3.7 – Photo du réfrigérateur PTDR2 développé durant la thèse de Thomas Prouvé [Prouvé 2007b].

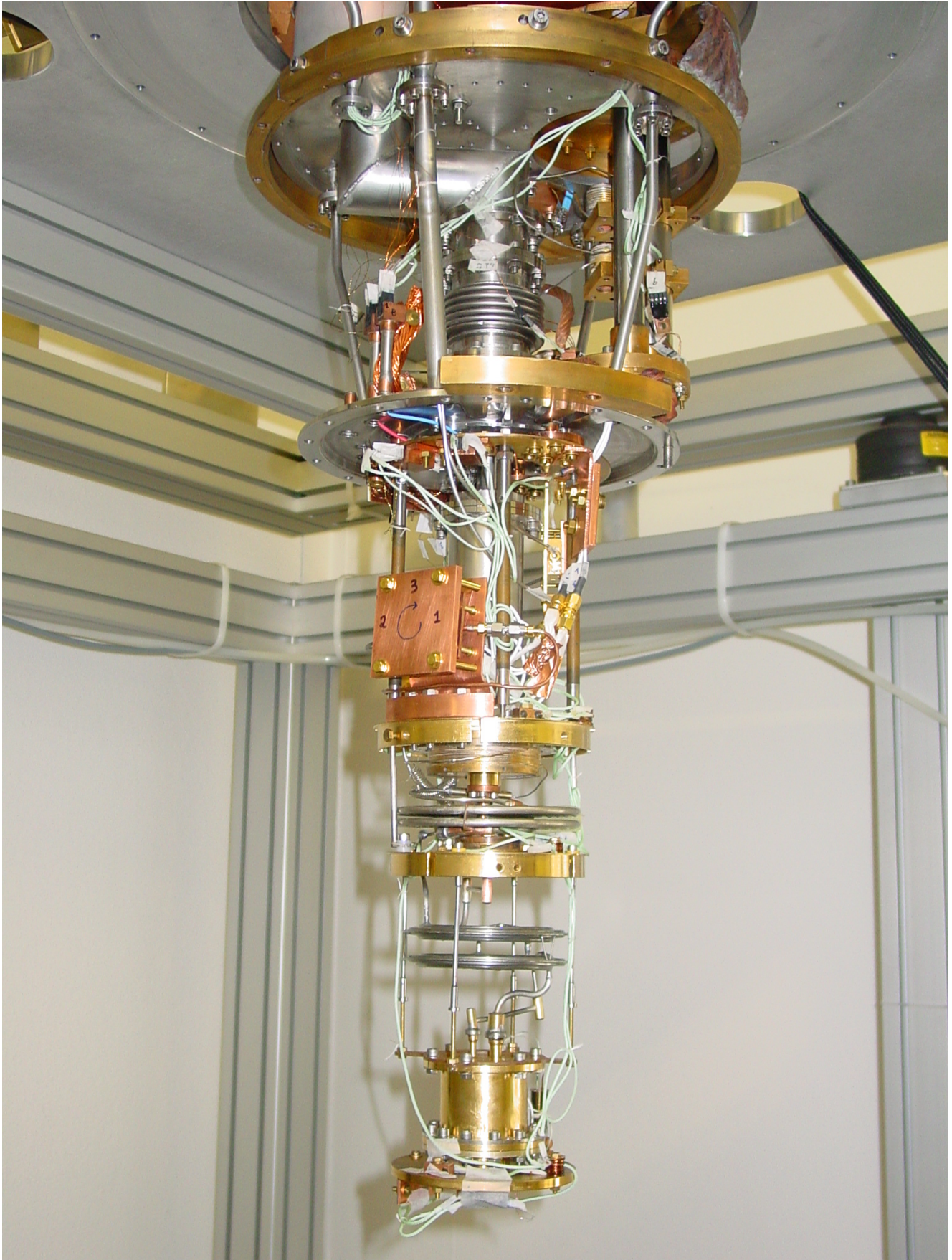


FIGURE 3.8 – Photo du réfrigérateur PTDR3 construit durant cette thèse.

Chapitre 4

Thermométrie

Sommaire

4.1	Introduction	48
4.2	Généralités	48
4.3	Les thermomètres résistifs	48
4.3.1	Les thermomètres métalliques	49
4.3.2	Les thermomètres résistifs de carbone	50
4.4	Le thermomètre à sel paramagnétique (CMN)	51
4.4.1	Principe Physique	51
4.4.2	Principe de la mesure	52
4.5	Le thermomètre à blocage de coulomb (CBT)	52
4.5.1	Modèle théorique pour une jonction de résistance R et de capacité C	52
4.5.2	Principe du CBT	53

4.1 Introduction

Nous avons vu dans les chapitres précédents que disposer d'une machine permettant d'obtenir des basses températures requiert un travail de dure labeur et une bonne connaissance des multiples phénomènes physiques qui peuvent limiter les performances de telles machines. Néanmoins avoir une mesure précise de telles températures est tout aussi complexe. Nous présenterons dans ce chapitre les différents types de thermomètres que nous avons utilisés et étalonnés dans le but d'avoir une mesure fiable sur chaque étage du cryostat.

4.2 Généralités

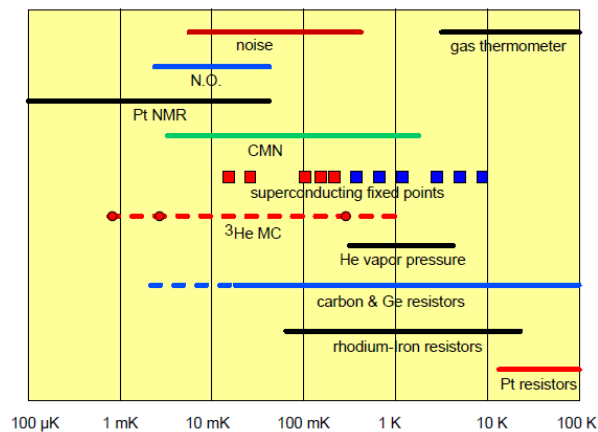


FIGURE 4.1 – Différents thermomètres utilisés à basses températures

Tout composé ayant une propriété physique mesurable (x) dépendant de la température et régie par une loi dont on peut s'assurer de la validité peut a priori faire partie de la famille des thermomètres. Néanmoins il faut que ce dernier ait une très bonne sensibilité déterminée par le rapport $\frac{T}{x} \cdot \frac{\Delta x}{\Delta T}$.

Dans la figure 4.1 nous présentons une liste des thermomètres les plus utilisés en laboratoire ainsi que les gammes de températures pour lesquels ils sont les plus adaptés.

Nous distinguons deux types de thermomètres : les thermomètres primaires qui possèdent une propriété physique variant avec la température et dont la loi physique est bien connue. Ces thermomètres n'ont pas besoin de calibration même si des corrections sont souvent nécessaires. Leur utilisation sert à établir les échelles de températures ainsi qu'à calibrer d'autres types de thermomètres que nous qualifions de secondaires.

Il est impossible de trouver un thermomètre adapté pour toute la gamme de température allant de l'ambiante jusqu'aux millikelvins. Pour cette raison nous avons été amenés à calibrer et utiliser différents types de thermomètres.

4.3 Les thermomètres résistifs

Les thermomètres résistifs sont les plus courants. Contrairement à d'autres types de thermomètres leur utilisation est très facile. Avec un simple pont de Wheatstone et une mesure en quatre fils, ils permettent d'avoir accès à la température avec une précision de l'ordre de 1%. Mais il faut tenir compte de certaines

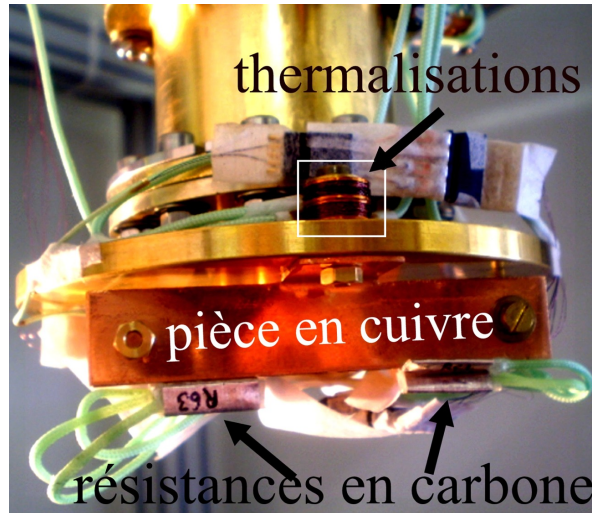


FIGURE 4.2 – Thermomètres de type Allen-Bradley, thermalisés à l’aide d’une plaque en cuivre à la boîte à mélange

précautions. En effet, au niveau de l’interface entre le thermomètre et la partie du réfrigérateur dont on veut mesurer la température il y a une résistance thermique de contact. La valeur de cette dernière est difficile à déterminer mais nous trouvons dans la littérature [Guglielmo 2008] qu’elle a une dépendance en température en T^{-3} .

$$R_c \sim 10^3 \cdot T^{-3} [K^2 m^2 / W] \quad (4.1)$$

Si nous voulons mesurer la température avec une précision $\frac{\Delta T}{T} \sim 1\%$, il faut donc limiter le courant de mesure dans la résistance pour réduire la puissance par effet Joule.

$$P(T) < \frac{\Delta T}{A \cdot R_c} = 10^{-3} T^4 \quad (4.2)$$

$$I_{20mK} < \sqrt{\frac{P(20mK)}{R_{elec}}} \sim 100nA \quad (4.3)$$

$$(4.4)$$

où A est la surface de contact de l’ordre du cm^2 , I_{20mK} est le courant qu’il faut injecter dans la résistance pour mesurer une température de 20mK et R_{elec} est la résistance électrique du thermomètre à 20mK, elle vaut quelques dizaines de $k\Omega$. Nous déduisons qu’il faut alors injecter un courant de quelques dizaines de nA.

Un autre type de chauffage peut aussi se produire grâce aux lignes de mesure à l’extérieur du cryostat qui captent un spectre large de radio-fréquence, c’est pour cette raison que nous installons des filtres RLC en haut du cryostat pour éviter tout découplage thermique de la résistance.

4.3.1 Les thermomètres métalliques

Sur les étages supérieurs du réfrigérateur nous avons installé des résistances de Platine (Pt 100) qui ont une dépendance presque linéaire en température au-dessus de 50K. Plusieurs lois empiriques permettent d’exprimer la dépendance en température de la résistance.

$$R(T) = R_0 [1 + A \cdot T + B \cdot T^2 + C \cdot T^3 (T - 100)] \quad (4.5)$$

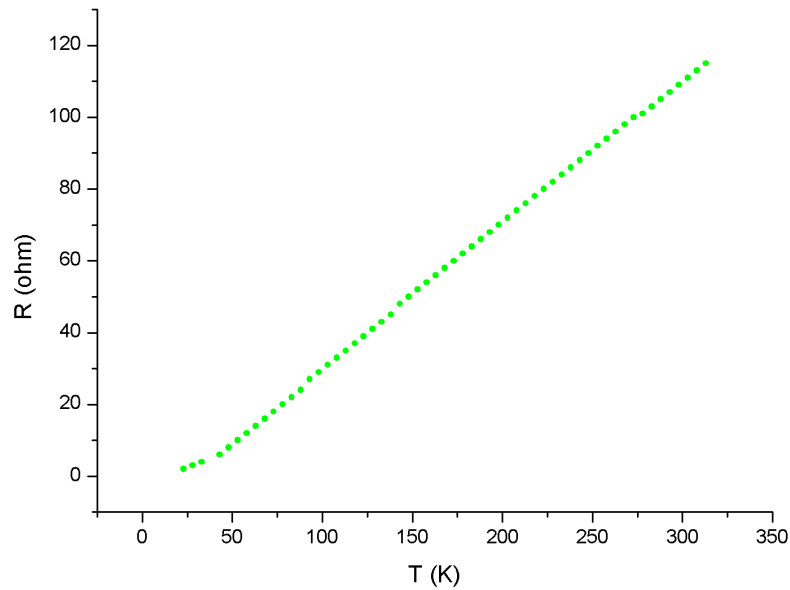


FIGURE 4.3 – Résistance de Platine (Pt100) en fonction de la température

4.3.2 Les thermomètres résistifs de carbone

Ils sont composés d'un agglomérat de grains de carbone graphitisé. La conduction dans ces résistances est due aux porteurs de charge qui peuvent migrer dans le réseau. Entre les grains, la conduction est limitée par l'effet tunnel. La résistance de ces matériaux augmente quand la température diminue. En effet, lorsqu'on abaisse la température, $k_B T$ devient faible devant la barrière de potentiel séparant deux grains de carbone, ce qui a pour effet d'augmenter la valeur de la résistance. Là aussi des formules empiriques permettent d'exprimer cette dépendance.

Pour les résistances Allen Bradley (4.6)

$$T = a + b \cdot R^{0.4} + c \cdot R^{0.8} + d \cdot R^{-1} + e \cdot R^{-2} \quad (4.7)$$

$$+ f \cdot R^{-3} + g \cdot R^{-4} + h \cdot R^{-5} \quad (4.8)$$

Pour les résistances de type Speer (4.9)

$$\frac{1}{T} = A + \frac{A}{\ln R} + C \ln R \quad \text{Pour } T < 4.2K \quad (4.10)$$

$$\ln T = \sum_{i=0}^n \frac{A_i}{(\ln R)^i} \quad \text{Pour } T < 100K \quad (4.11)$$

Pour déterminer toutes les constantes des équations précédentes, il faut calibrer ces thermomètres avec des thermomètres primaires. Sur la figure 4.4 nous présentons le montage que nous avons effectué pour calibrer différents thermomètres de carbone. Le mode de fabrication de ces thermomètres est présenté en annexe.

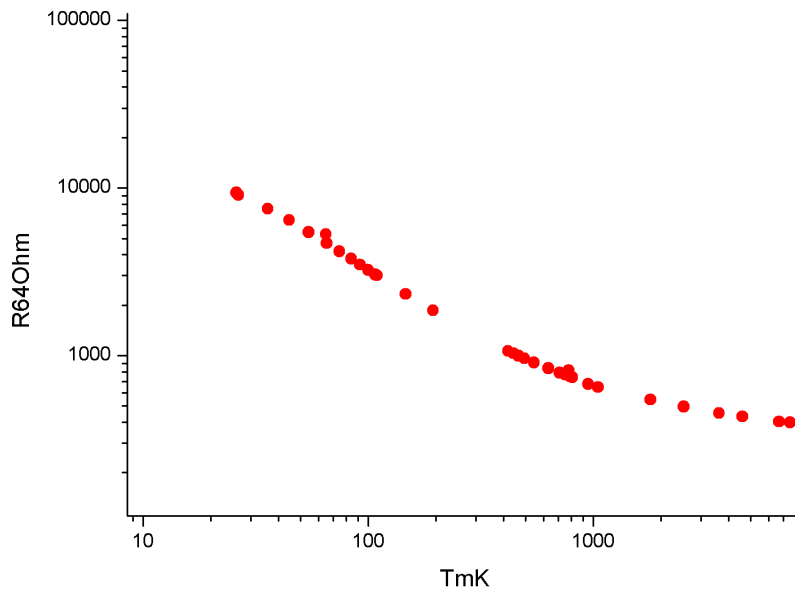


FIGURE 4.4 – Dépendance en température de la résistance R64 représentée en échelle log-log.

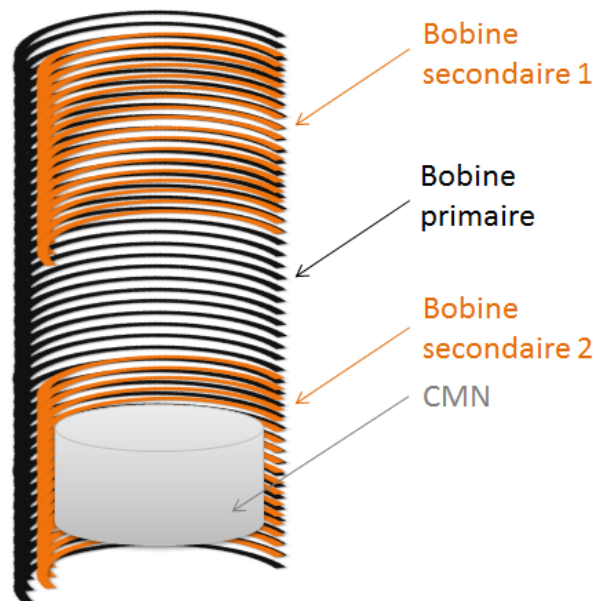


FIGURE 4.5 – schéma du CMN, une bobine principale permet de faire varier le flux magnétique grâce à un courant alternatif, un dispositif de deux bobines dites de détection montées en série-opposition, permet de mesurer la réponse d'un CMN placé au centre de l'une d'entre elles.

4.4 Le thermomètre à sel paramagnétique (CMN)

4.4.1 Principe Physique

Le principe du thermomètre paramagnétique est de mesurer la température grâce à la mesure de la susceptibilité magnétique, qui suit la loi de Curie-Weiss. Lorsque le Nitrate de Cérium Magnésium (CMN) de formule chimique $(Mg(H_2O)_6)_3(Ce(NO_3)_6)_2$, est inséré dans un champ magnétique, son aimantation

s'exprime :

$$M = \chi_{dia} \cdot H + \frac{C}{T - \Delta} \cdot H \quad (4.12)$$

où H est l'excitation magnétique induite par une bobine, $\chi_{dia} \cdot H$ est la partie diamagnétique que nous négligerons par la suite et $\frac{C}{T - \Delta} \cdot H$ est la loi de Curie-Weiss. Vers 2mK le CMN s'ordonne magnétiquement, ce qui constitue une limite de température inférieure pour l'utilisation de ce type de thermomètres.

4.4.2 Principe de la mesure

Nous injectons dans une bobine d'excitation un courant alternatif $I(\omega) = I_0 e^{i\omega t}$, ce qui permet de générer un champ magnétique $H = n \cdot L \cdot I(\omega)$ qui est le produit du nombre de spires par unité de longueur par la longueur de la bobine et le courant dans cette dernière. A l'intérieur de cette bobine primaire se trouvent deux bobines secondaires dont les fils sont enroulés en sens opposé afin d'avoir une mutuelle inductance nulle en absence d'échantillon. En pratique, les bobines se contractent à basse température, et cette quantité n'est pas exactement nulle. Ainsi en utilisant un pont mutuelle inductance nous avons accès à $M = M_0 + \frac{C}{T - \Delta}$. La première partie de cette expression désigne la réponse du système en absence d'échantillon. Il suffit de quelques points (au moins 3) pour calibrer un tel thermomètre.

Les cristaux de CMN sont écrasés en poudre fine et mélangés à une poudre d'argent dans le but de bien les thermaliser.

4.5 Le thermomètre à blocage de coulomb (CBT)

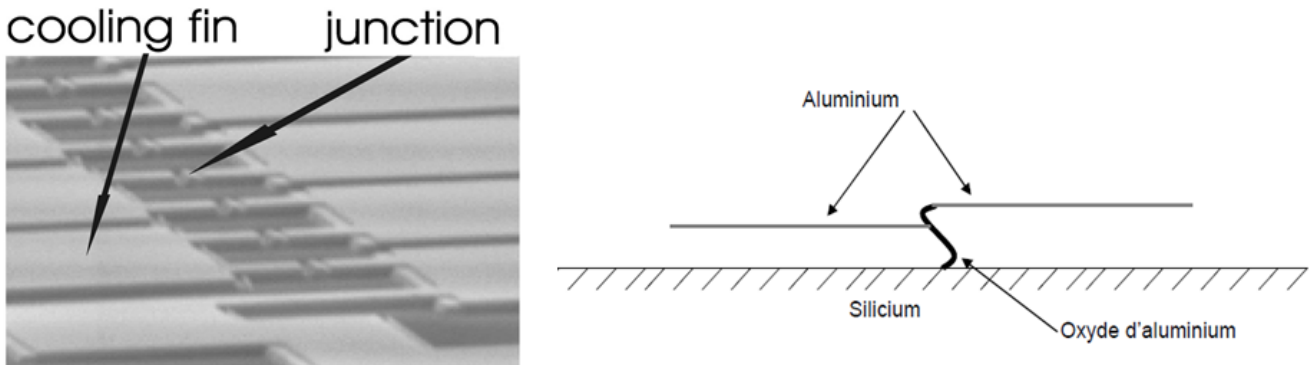


FIGURE 4.6 – A gauche : photo du thermomètre à blocage de coulomb fourni par Nanoway (Finlande). A droite : schéma d'une jonction tunnel (metal/oxyde/metal)

Le CBT est un nouveau type de thermomètre, développé depuis quelques années. Son utilisation présente plusieurs avantages : c'est un thermomètre primaire, il est relativement précis et n'est pas sensible au champ magnétique régnant dans l'environnement expérimental. Il consiste en une chaîne d'îlots conducteurs (Al) séparés par un isolant (Al_2O_3). Les propriétés de transport dans la chaîne dépendent de la température. Pour comprendre le principe de ce thermomètre nous allons considérer le cas d'une jonction.

4.5.1 Modèle théorique pour une jonction de résistance R et de capacité C

Nous considérons n électrons présents sur l'îlot. Le traversée d'un électron dans un sens (+) ou dans l'autre (-) entraîne une modification de l'énergie électrostatique.

$$\delta E^+ = E(n) - E(n+1) = \frac{(n+1)^2 e}{2C} - \frac{ne}{2C} = -(n+1/2) \frac{e^2}{2C} \quad (4.13)$$

$$\delta E^- = E(n) - E(n-1) = (n-1/2) \frac{e^2}{2C} \quad (4.14)$$

$$\delta E^\pm(n) = (n \pm 1/2) \frac{e^2}{2C} \quad (4.15)$$

La variation de l'énergie libre associée est :

$$\delta F^\pm = \pm \frac{eV}{2} + \delta E^\pm(n) \quad (4.16)$$

Le premier terme de l'équation 4.16 désigne l'énergie électrostatique due à l'application d'un potentiel V. La fraction d'électrons qui traversent la jonction par effet tunnel s'exprime :

$$\Gamma^\pm(n) = \frac{1}{e^2 R} \cdot \gamma(\delta F^\pm) \quad (4.17)$$

$$\text{où } \gamma(X) = \frac{X}{1 - e^{\frac{-X}{k_B T}}} \quad (4.18)$$

Nous supposons que nous sommes dans le régime de blocage de Coulomb i.e $E_C = \frac{e^2}{2C} \ll k_B \cdot T$. En combinant les équations 4.16 et 4.17 nous obtenons :

$$\Gamma^\pm(n) = \frac{1}{e^2 R} \left[\gamma\left(\pm \frac{eV}{2}\right) + \delta E^\pm \cdot \dot{\gamma}\left(\pm \frac{eV}{2}\right) \right] \quad (4.19)$$

Soit $\sigma(n)$ la probabilité que n électrons soient présents sur l'îlot. Le courant I s'exprime alors :

$$I = e \sum_n \sigma(n) [\Gamma^+(n) - \Gamma^-(n)] \quad (4.20)$$

$$I = \frac{1}{eR} \left\{ \left[\gamma\left(\frac{eV}{2}\right) - \gamma\left(\frac{-eV}{2}\right) \right] - E_C \left[\dot{\gamma}\left(\frac{eV}{2}\right) - \dot{\gamma}\left(\frac{-eV}{2}\right) \right] \right\} \quad (4.21)$$

Nous obtenons 4.21 en combinant les deux équations 4.15 et 4.20 et en utilisant $\sum_n \sigma(n) = 1$ et $\sum_n n\sigma(n) = 0$, dans la dernière expression nous supposons que la jonction est totalement symétrique.

4.5.2 Principe du CBT

Pour N jonctions métal-isolant-métal ayant chacune une résistance 2R et une capacité C, la conductance différentielle est décrite par l'expression :

$$\frac{G}{G_T} = \frac{dI}{dV} \quad (4.22)$$

où G_T est un facteur de normalisation.

$$\frac{G}{G_T} = \left[1 - \frac{E_{C_{eff}}}{k_B T} \right] g\left(\frac{E_C}{k_B T}\right) \quad (4.23)$$

la fonction g(x) s'exprime :

$$g(x) = \frac{x \cdot \sinh(x) - 4 \cdot \sinh^2(x/2)}{8 \cdot \sinh^2(x/2)} \quad (4.25)$$

Sur la figure 4.7 nous représentons la courbe de la conductance normalisée pour un échantillon de 40 jonctions (N=40) en fonction de la tension de polarisation V à une température donnée (45K). C'est une courbe en cloche dont la largeur à mi-hauteur dépend directement de la température $V_{1/2} = 5.439 \frac{N k_B T}{e}$.

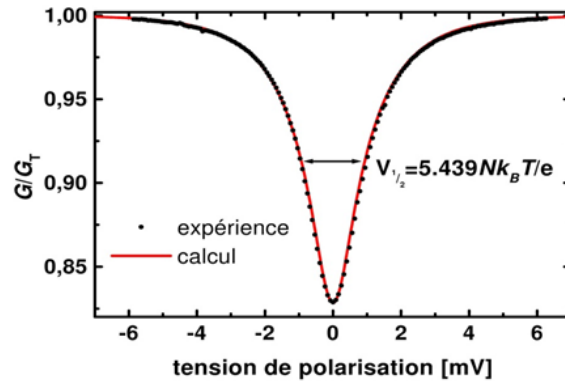


FIGURE 4.7 – Mesure de la conductivité différentielle en fonction de la tension V à 45mK, la largeur à mi-hauteur de la courbe donne directement la température.

Cette caractéristique fait du CBT un thermomètre primaire. L'échantillon que nous avons utilisé dans le cadre de cette thèse est fourni par Nanoway sous la dénomination de sensor 0.1. Il est constitué de 4 chaînes disposées en parallèle, dont chacune est formée de 10 jonctions en série ($Al/AlO_x/Al$).

Conclusion

Nous présenterons dans cette conclusion un résumé du travail d'instrumentation effectué au cours de cette thèse :

1. Durant ces 3 années, nous avons conçu et réalisé un réfrigérateur pré-refroidi par un tube à gaz pulsé PTDR3. Ce dernier a une température minimale de 20mK obtenue sans l'utilisation d'échangeurs discrets. Sa puissance frigorifique est de $100\mu\text{W}$ à 100mK. Lors de la conception des différentes parties du cryostat nous avons opté pour des pièces moins massives et faciles à fabriquer, nous disposons donc aujourd'hui d'un cryostat optimisé et commercialisable.
2. La réduction de la masse totale de la machine nous a permis d'avoir une durée de pré-refroidissement de 17h, elle est donc bien plus performante que ses ancêtres PTDR1 et PTDR2. Néanmoins nous pensons qu'il est possible de réduire davantage ce temps en installant des brides et des écrans moins massifs au niveau de chacun des étages.
3. Le tableau de vannes de PTDR3 a subi lui aussi des modifications par rapport à celui de PTDR1 et PTDR2. De plus le circuit d'injection de PTDR3 dispose d'échangeurs optimisés sur le tube à gaz pulsé. Ces modifications ont permis de réduire le temps de condensation jusqu'à 2h. La validation de ce nouveau système nous a amenés à équiper PTDR1 d'un double circuit d'injection. Nous avons pu comparer les deux circuits sur la même machine et avons déduit que le nouveau système était bien plus performant : il permet d'avoir une charge thermique plus faible sur l'étage à 4K et réduit considérablement le temps de condensation du mélange.
4. Les deux cryostats PTDR1 et PTDR3 disposent aujourd'hui d'un purificateur de gaz par chimisorption (Aeronex) qui remplace le piège helium, permettant ainsi de se passer complètement d'helium liquide.
5. PTDR3 dispose aujourd'hui d'un débitmètre de "fabrication locale". En effet, dans le but d'avoir une lecture fiable et précise du débit d' ^3He , nous avons développé un débitmètre (cf. Annexe), et l'avons installé sur la partie injection de la machine. Cela a été essentiel pour la caractérisation de PTDR3. Nous avons déduit qu'au moment de la condensation le débit maximal de circulation est d'1 mmole/s.
6. La section des tubes de pompage a été modifiée. Il est maintenant possible d'obtenir un très bon vide en pompant le calorimètre durant un temps raisonnable de l'ordre de 3h.
7. L'objectif aujourd'hui est de développer un étage à désaimantation nucléaire sur PTDR3 afin d'obtenir des températures de l'ordre de $500\mu\text{K}$. Nous avons réalisé des tests qui ont permis de prouver qu'il est possible d'avoir une bobine de champ magnétique de 5T fonctionnant dans le cryostat sans limiter les performances de la machine.

8. Nous avons pu enfin vérifier à plusieurs reprises la grande loi de la cryogénie : Quand on prévoit un temps pour un projet, lors de sa réalisation ce temps se voit automatiquement multiplié par un facteur π .

II. Neutronique

Introduction

Depuis sa découverte par James Chadwick en 1932, le neutron constitue un outil puissant pour explorer la matière condensée. Sa neutralité, ainsi que son énergie après modération, font de lui une sonde volumique qui permet de renseigner sur les propriétés structurales et dynamiques de la matière.

Afin d'étudier les excitations dans l' ^3He bidimensionnel adsorbé sur le graphite, nous avons opté pour l'utilisation de neutrons froids. Leur gamme d'énergie comprise entre 0.1 et 10 meV ont permis d'avoir accès à des événements dynamiques microscopiques de l'ordre du meV . Ces mesures ont été rendues possibles grâce à l'instrument IN6 qui utilise la technique dite "temps de vol". Elle consiste à envoyer un faisceau monochromatique et à mesurer les variations d'énergie et de vecteur d'onde du neutron après interaction avec l'échantillon, permettant ainsi de déduire la relation de dispersion dans la matière étudiée.

L' ^3He est sans doute l'un des systèmes les plus difficiles à étudier par diffusion neutronique à cause de sa grande section efficace d'absorption des neutrons. Afin d'avoir un bon rapport signal sur bruit, le choix d'un instrument disposant d'un flux important de neutrons incidents s'avère un point essentiel.

Dans cette partie nous revoyons les briques fondamentales de la diffusion inélastique des neutrons non polarisés et nous discuterons de la méthode "temps de vol". Dans le chapitre 5 nous établirons l'équation maîtresse de la diffusion neutronique qui va nous permettre de faire le lien entre la section efficace de diffusion et les transitions entre les niveaux d'excitations dans le cadre de l'approximation de Born. Ensuite nous présenterons le lien entre le facteur de structure dynamique et la théorie de la réponse linéaire. Enfin nous discuterons le cas de l' ^4He et de l' ^3He .

La méthode "temps de vol" fera l'objet du chapitre 6. Nous présenterons les critères qui permettent de montrer que l'instrument IN6 est adapté pour ce type d'expériences. Nous décrirons brièvement les différentes parties de l'instrument ainsi que le calcul de résolution. Une bonne compréhension de l'instrument IN6 a été une étape essentielle afin de développer un programme d'analyse des données expérimentales. Ce dernier nous permet de soustraire le bruit, de corriger l'absorption et d'obtenir le facteur de structure dynamique de l' ^3He bidimensionnel.

Pour les abonnés à la diffusion inélastique des neutrons, nous concluons cette partie avec un résumé partiel de toutes les idées abordées.

Chapitre 5

La diffusion neutronique

Sommaire

5.1	Introduction	62
5.2	Le neutron	62
5.2.1	Spectroscopie neutronique	62
5.2.2	Quelques notions utiles	63
5.3	La diffusion nucléaire	64
5.3.1	La section efficace différentielle	64
5.3.2	La longueur de diffusion	65
5.3.3	L'équation maîtresse de la diffusion	65
5.3.4	Le facteur de structure dynamique et la fonction d'autocorrélation de la densité atomique	66
5.3.5	La diffusion cohérente et incohérente	66
5.3.6	Lien avec la théorie de la réponse linéaire	67
5.4	Diffusion inélastique sur des fluides quantiques	67
5.4.1	Cas de l' ^4He	67
5.4.2	Cas de l' ^3He	67

5.1 Introduction

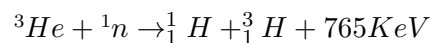
Le but de ce chapitre est de présenter de manière résumée le formalisme de base de la diffusion neutronique. Nous établirons l'équation maîtresse de la diffusion neutronique qui nous permettra de déduire le facteur de structure dynamique. Nous verrons le lien entre ce facteur de structure accessible expérimentalement et la partie imaginaire de la susceptibilité généralisée calculée dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire. Enfin nous discuterons le cas de l⁴He et de l³He. Le premier possède un spin zéro ce qui donne lieu à une diffusion totalement cohérente. Dans le cas de l³He, l'existence d'un spin 1/2 ne permet pas de négliger le terme correspondant à la diffusion incohérente dans le facteur de structure dynamique. Ce chapitre est inspiré d'ouvrages spécialisés : [Schober 2008b], [Squires 1978], [Glyde 1994], [Marshall 1971]...

5.2 Le neutron

5.2.1 Spectroscopie neutronique

Pour qu'une particule soit utilisée comme sonde pour explorer la matière condensée elle doit obéir à plusieurs critères.

1. Tout d'abord elle doit interagir avec le système cible. Le changement de vecteur d'onde de la particule sonde ainsi que la variation de son énergie (seulement dans le cas d'une diffusion inélastique) après interaction avec un échantillon reflète les propriétés structurales ou dynamiques du système étudié. La probabilité d'une telle interaction doit être non nulle, mais elle ne doit pas être non plus très importante. Faute de quoi, les diffusions multiples (processus de création de deux excitations successivement) deviennent très fréquents, ce qui a pour conséquence de brouiller l'information sur les excitations créées dans le système. Pour remédier à ce problème le volume de l'échantillon ne doit pas être choisis très grand afin de réduire la probabilité de ces événements. Il faut ainsi arriver à un optimum, en effet un petit volume d'échantillon implique un signal peu intense après diffusion, tandis qu'un volume conséquent entraînera une augmentation de la probabilité du phénomène de diffusion multiple.
2. La particule sonde ne doit pas être absorbée par le système étudié. Une forte absorption réduit considérablement le nombre de particules diffusées et par conséquent la statistique sur le phénomène recherché. Dans le cadre de nos expériences, cette condition n'est pas satisfaite, l³He absorbe les neutrons via la réaction :



Afin de lutter contre la faiblesse de la statistique que cet effet entraîne, des soins particuliers ont été pris lors de l'analyse des données. Cela fera l'objet du chapitre 9 dédié aux résultats expérimentaux.

3. Enfin, il faut que la particule sonde ait une longueur d'onde adaptée. Cette dernière détermine l'échelle spatiale et l'énergie des excitations accessibles expérimentalement. Nous verrons dans le chapitre suivant que le choix d'une longueur d'onde de 5.12 Å pour les neutrons incidents nous a permis d'avoir accès à la région du diagramme de phases que nous souhaitons explorer.

Sauf exception pour le deuxième critère, le neutron est la sonde la plus adaptée pour étudier la dynamique dans l³He bidimensionnel. De plus, il a l'avantage par rapport à d'autres sondes (les rayons X par exemple) d'interagir directement avec les noyaux via l'interaction forte et de fournir une bien meilleure résolution pour l'énergie des excitations recherchées.

Il est important de préciser, même si cela ne fait pas l'objet de cette thèse, que le neutron possède un moment magnétique, il est par ailleurs utilisée pour étudier le magnétisme électronique et nucléaire de certains échantillons.

5.2.2 Quelques notions utiles

Une fois produit dans un réacteur nucléaire par fission de ^{235}U , les neutrons sont très énergétiques, leur énergie est de l'ordre du MeV. Pour pouvoir les utiliser dans des expériences de diffusion neutronique, il faut déplacer leur spectre d'énergie en les thermalisant avec un milieu thermique de température (T). En effet, quand un gaz de neutron est en équilibre thermique avec un milieu, la probabilité de le trouver dans un état $|\vec{k}\rangle$, est donnée par la distribution de Maxwell-Boltzmann.

$$p(\vec{k}) = \frac{1}{k_T^3 \cdot \sqrt{\pi^3}} \cdot e^{-\frac{k^2}{k_T^2}} \quad (5.1)$$

L'énergie et le moment moyens du neutron sont définis respectivement par $E_T = \frac{1}{2m} \hbar^2 k_T^2 = k_B T$ et $\hbar k_T = \sqrt{2m \cdot k_B \cdot T}$, m étant la masse du neutron. Ainsi on obtient des neutrons dont l'énergie est comprise entre 100 et 500 meV en employant une source chaude. Dans un réacteur comme l'ILL, elle consiste en une sphère de graphite maintenue à une température de 2600 °C. Par choc élastique les neutrons perdent de leur énergie et deviennent des neutrons chauds. Pour obtenir des neutrons thermiques (100 meV < E < 500 meV) des canaux sont installés dans le modérateur (eau lourde) permettant ainsi de récupérer des neutrons dont l'énergie a été réduite par une série de chocs élastiques avec l'élément deutérium contenu dans ce dernier. On estime qu'il faut ~ 25 collisions pour qu'un neutron devienne thermique. Afin de réduire d'avantage leur énergie et obtenir des neutrons froids, l'ILL est équipé de deux sources froides i.e récipients plongeants dans le modérateur et contenant du deutérium maintenu à l'état liquide ($\sim 20\text{K}$). Certains instruments à l'ILL utilisent même des neutrons ultrafroids (neutrons de très faible vitesse de l'ordre de 5 m/s) appelés UCN (ultra cold neutrons).

Afin de classifier les neutrons nous rappelons les relations importantes découlant de la dualité onde corpuscule et liant température (T), vecteur d'onde (k), longueur d'onde (λ), énergie (E) et vitesse (v).

$$\vec{p} = \hbar \vec{k} \quad ; \quad k = h/\lambda \quad ; \quad E = \hbar k^2/2m \quad (5.2)$$

$$E(\text{meV}) = 2.0725 \cdot k^2(\text{\AA}^{-1}) = 81.82 \cdot \lambda^{-2}(\text{\AA}) = 5.227 \cdot v^2(\text{Km/s}) = 0.08617 \cdot T(\text{K}) \quad (5.3)$$

ou encore

$$\lambda(\text{\AA}) = 2\pi/k(\text{\AA}^{-1}) = 9.0451/\sqrt{E(\text{meV})} = 3.956/v(\text{Km/s}) \quad (5.4)$$

En appliquant ces formules nous obtenons les valeurs des longueurs d'onde, température présentées dans le tableau 5.1.

neutrons	énergie (meV)	longueur d'onde (Å)	température (K)
épi-thermiques	> 500	< 0.4	> 6000
chauds	100-500	1-0.4	1200-6000
thermiques	10-100	3-1	120-1200
froids	0.1-10	30-3	1-120
ultra-froids	< 10 ⁻⁴	900	10 ⁻³

TABLE 5.1 – Classification des neutrons suivant leur énergie

5.3 La diffusion nucléaire

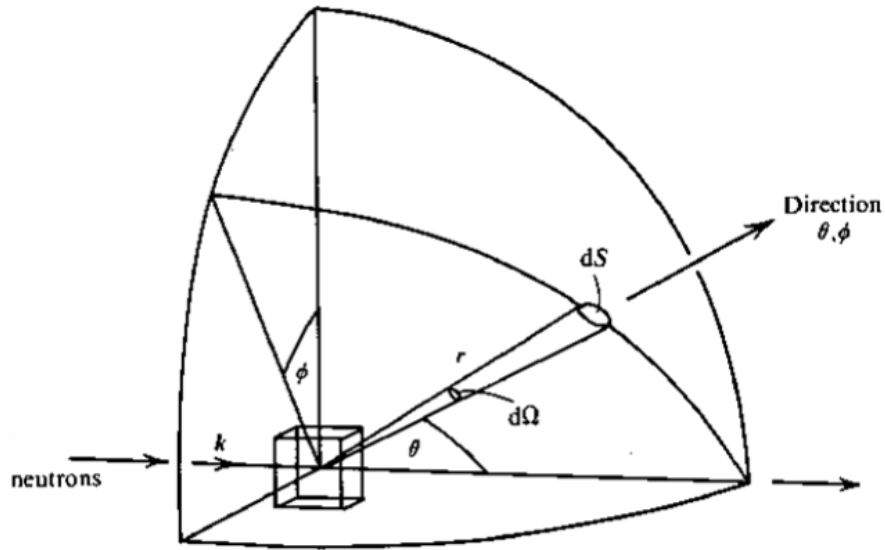


FIGURE 5.1 – Diffusion d'un faisceau de neutron par un échantillon.

5.3.1 La section efficace différentielle

Lors d'une expérience de diffusion neutronique nous avons accès au nombre de particules diffusées dans un angle solide $d\Omega$ autour d'une direction (θ, φ) .

$$dN = \phi \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'\rangle}} \right) \cdot d\Omega \cdot dE_{|\vec{k}'\rangle} \quad (5.5)$$

où ϕ est le flux de neutrons incidents, $\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_{|\vec{k}'\rangle}}$ est la section efficace différentielle qui donne la probabilité qu'un neutron ayant une énergie comprise entre $E_{|\vec{k}'\rangle}$ et $E_{|\vec{k}'\rangle} + dE_{|\vec{k}'\rangle}$ soit diffusé dans un angle solide $d\Omega$ autour de la direction (θ, φ) .

dN peut aussi se déduire de la règle d'or de Fermi en introduisant la probabilité qu'un neutron se trouvant initialement dans un état $|\vec{k}\rangle$ soit diffusé après interaction avec un potentiel V dans un état $|\vec{k}'\rangle$.

$$\begin{aligned} dN &= \sum_{|\vec{k}\rangle, |\vec{k}'\rangle} P_{|\vec{k}\rangle} W_{|\vec{k}\rangle, |\vec{k}'\rangle} \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{|\vec{k}\rangle, |\vec{k}'\rangle} P_{|\vec{k}\rangle} |\langle \vec{k} | V | \vec{k}' \rangle|^2 \rho(\vec{k}') \cdot \delta(\hbar\omega + E_{|\vec{k}\rangle} - E_{|\vec{k}'\rangle}) \end{aligned} \quad (5.6)$$

$\rho(\vec{k}')$ est la densité des neutrons diffusés confinés dans un volume L^3 :

$$\rho(\vec{k}') = \frac{L^3}{(2\pi)^3} \cdot d^3 k' = \frac{L^3 k'^2}{(2\pi)^3} \cdot \frac{m \cdot dE_{|\vec{k}'\rangle}}{\hbar k'} \quad (5.7)$$

$\delta(\hbar\omega + E_{|\vec{k}\rangle} - E_{|\vec{k}'\rangle})$ exprime la condition de conservation de l'énergie $\hbar\omega = E_{|\vec{k}\rangle} - E_{|\vec{k}'\rangle} = \frac{\hbar k^2}{2m} - \frac{\hbar k'^2}{2m}$

5.3.2 La longueur de diffusion

Nous considérons le cas d'un noyau lié sans spin se trouvant sur un site r_i . Le potentiel d'interaction neutron-noyau est un potentiel central $V_i(r)$ écranté et dont le rayon d'écran est r_0 . Un point fondamental pour traiter ce type d'interaction est de considérer l'interaction de courte portée et d'étudier l'état du neutron loin du point d'impact. La résolution de l'équation de Schrödinger nous conduit à la fonction d'onde (de classe $C^2(\mathbb{R})$) suivante pour le neutron.

$$\psi(r)|_{r \ll r_0} = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} + f_i(\theta, k') \frac{e^{i\vec{k}' \cdot \vec{r}}}{r} \quad (5.8)$$

L'amplitude de diffusion $f_i(\theta, k')$ se développe en harmoniques sphériques. Elle a la dimension d'une longueur. En traitant le problème pour des longueurs d'ondes $\lambda \gg r_0$, de ce développement seules les ondes de type s restent non négligeables et $f_i(\theta, k')$ se réduit à une constante b_i appelée longueur de diffusion.

Le choix d'un potentiel effectif donnant une diffusion de type s isotrope paraît évidente, c'est le pseudo-potential de Fermi :

$$V_{eff}(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \cdot b_i \cdot \delta(r) \quad (5.9)$$

Nous avons considéré l'interaction de type sphère dure avec un noyau i dont la position ne varie pas en fonction du temps. Dans ce cas $\psi(r < b_i) = 0$ et $b_i = r_0$. La section efficace se déduit facilement :

$$\sigma = \int \int \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'|}} d\Omega dE_{|\vec{k}'|} = 4\pi b_i^2 = 4\pi r_0^2. \quad (5.10)$$

La section efficace que nous avons calculée est 4 fois plus importante que la valeur à laquelle nous nous attendons dans le cas d'une sphère classique. En général la longueur de diffusion n'est pas toujours égale à r_0 . Dans le cas réel, elle est plus petite que le rayon d'écran, elle est positive pour un potentiel répulsif et son signe dépendra de la portée et la profondeur du potentiel dans le cas d'une interaction attractive.

5.3.3 L'équation maîtresse de la diffusion

Le potentiel d'interaction avec N noyaux dont la position dépend du temps s'écrit maintenant :

$$V_{eff}(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_i^N b_i \cdot \delta(\vec{r} - R_i(\vec{t})) \quad (5.11)$$

où \vec{R}_i est la position du noyau i . En considérant que le flux de neutrons incident est $\phi = \frac{\hbar k}{mL^3}$, nous déduisons des expressions 5.5 et 5.6 l'équation maîtresse de la diffusion neutronique.

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'|}} = \frac{k'}{k} \cdot \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \sum_{i,j=1}^N \langle b_i b_j e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(\vec{t})} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(\vec{0})} \rangle dt \quad (5.12)$$

\vec{Q} est le transfert de moment dans l'échantillon : $\hbar\vec{Q} = \hbar\vec{k} - \hbar\vec{k}'$.

Dans le cas où la longueur de diffusion ne dépend pas de la position, l'expression 5.12 devient :

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'|}} = \frac{k'}{k} \cdot \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \sum_{i,j=1}^N \langle b_i b_j \rangle \langle e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(\vec{t})} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(\vec{0})} \rangle dt \quad (5.13)$$

Pour N noyaux identiques, $b_i = b_j = b$.

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'\rangle}} = \frac{k'}{k} N \frac{\sigma}{4\pi} S(\vec{Q}, \omega)$$

avec $S(\vec{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi \cdot N} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \sum_{i,j=1}^N \langle e^{i\vec{Q}R_i(t)} e^{i\vec{Q}R_j(0)} \rangle dt$ (5.14)

La beauté de cette équation réside dans le fait qu'elle contient deux termes : $\frac{k'}{k} N \frac{\sigma}{4\pi}$ est un terme qui dépend de l'interaction de la sonde avec l'échantillon, le deuxième terme $S(\vec{Q}, \omega)$ ne dépend que de l'échantillon. C'est le facteur de structure dynamique du système.

5.3.4 Le facteur de structure dynamique et la fonction d'autocorrélation de la densité atomique

Le facteur de structure dynamique de l'expression 5.14 est une fonction réelle. Sa dépendance en Q renseigne sur la position des noyaux dans le système. Sa dépendance en ω donne des informations sur la dynamique du système en question. Nous verrons dans le chapitre suivant que cette quantité est mesurable, néanmoins pour effectuer le voyage de l'espace des phases (\vec{Q}, ω) au monde réel (\vec{r}, t) il suffit d'appliquer la double transformée de Fourier.

$$G(\vec{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\vec{Q} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{i\omega t} S(\vec{Q}, \omega) \quad (5.15)$$

$G(\vec{r}, t)$ est appelée fonction d'autocorrélation. En introduisant l'opérateur densité $\rho(\vec{r}, t)$ qui donne la probabilité de trouver un diffuseur dans un élément de volume d^3r autour de \vec{r} et en remarquant que :

$$\int d^3\vec{r} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \cdot \rho(\vec{r}, t) = \sum_i -i\vec{Q} R_i(t) \quad (5.16)$$

Nous déduisons que $G(\vec{r}, t)$ est une fonction d'autocorrélation de la densité atomique :

$$G(\vec{r}, t) = \int d^3\vec{r} \langle \rho(\vec{0}, 0) \rho(\vec{r}, t) \rangle \quad (5.17)$$

Dans la limite où $k_B T \ll \hbar \omega$, cette fonction se définit comme la probabilité de trouver un noyau à l'instant t , à la position \vec{r} sachant qu'il était initialement ($t=0$) dans la position $\vec{0}$.

5.3.5 La diffusion cohérente et incohérente

Nous avons supposé dans l'expression 5.14 que les diffuseurs étaient tous identiques. En pratique, cela n'est pas toujours le cas. La diffusion nucléaire dépend alors de la composition isotopique et des états de spin des noyaux. La section efficace s'écrit alors comme la somme de deux termes : un terme résultant de la diffusion cohérente qui dépend de la longueur de diffusion moyenne des diffuseurs et un terme de diffusion incohérente qui dépend de l'écart-type caractérisant la dispersion des longueurs de diffusion par rapport à la moyenne.

$$\begin{aligned} \langle b_i b_j \rangle &= \langle b \rangle^2 + \delta_{i,j} (\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2) \\ &= \frac{\sigma_{coh}}{4\pi} + \delta_{i,j} \frac{\sigma_{incoh}}{4\pi} \end{aligned} \quad (5.18)$$

$$(5.19)$$

La section efficace différentielle de diffusion s'écrit alors :

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'\rangle}} = \frac{k'}{k} N \left(\frac{\sigma_{coh}}{4\pi} S(\vec{Q}, \omega) + \frac{\sigma_{incoh}}{4\pi} S_{self}(\vec{Q}, \omega) \right) \quad (5.20)$$

$$\text{où } S_{self}(Q, \omega) = \frac{1}{2\pi \cdot N} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \sum_{i=1}^N \langle e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(t)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(0)} \rangle dt \quad (5.21)$$

5.3.6 Lien avec la théorie de la réponse linéaire

Dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire, la susceptibilité dynamique $\chi(\vec{Q}, \omega)$ détermine la réponse d'un système à une petite perturbation. En effet, lorsqu'un système est soumis à un champ perturbatif $h(\vec{r}, t)$, cela entraîne une fluctuation de densité $\delta\rho(\vec{r}, t)$. Dans l'espace (\vec{Q}, ω) nous pouvons écrire :

$$\delta\rho(\vec{Q}, \omega) = \rho\chi(\vec{Q}, \omega)h_{ext}(\vec{Q}, \omega) \quad (5.22)$$

Une relation permet de relier le facteur de structure dynamique accessible expérimentalement à la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi(\vec{Q}, \omega)$, calculée dans le cadre de la réponse linéaire.

$$S(\vec{Q}, \omega) = -\frac{\hbar}{\pi} \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}} \text{Im} \left[\chi(\vec{Q}, \omega) \right] \quad (5.23)$$

Le facteur de structure dynamique dépend de la température qui détermine la population des excitations présentes dans l'échantillon.

5.4 Diffusion inélastique sur des fluides quantiques

5.4.1 Cas de l'⁴He

Les atomes d'⁴He étant des particules bosoniques sans spin, il en résulte une diffusion totalement cohérente, l'expression de la section efficace est donnée par l'expression 5.14. Néanmoins, dans le cas de l'hélium superfluide, certaines théories ([Miller 1962]) suggèrent que la section efficace s'écrit comme la somme de deux composantes ([Glyde 1994]) : un signal étroit lié à la création d'une excitation élémentaire dans le système et un signal plus large du à une création simultanée de plusieurs excitations. Mais à basse température la durée de vie du mode devient grande et le facteur de structure de l'⁴He se réduit à la composante étroite :

$$S(\vec{Q}, \omega) = 1 + \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} Z(Q) [\delta(\omega - \omega_Q) - \delta(\omega + \omega_Q)] \quad (5.24)$$

où ω_Q et $Z(Q)$ sont respectivement la fréquence et le poids du mode.

5.4.2 Cas de l'³He

Dans le cas de l'³He les choses se compliquent un peu. En effet les atomes d'³He disposent d'un spin nucléaire, la longueur de diffusion dépend donc de l'orientation du spin nucléaire :

$$b_i = \langle bi \rangle + B\vec{\sigma} \cdot \vec{I}_i \quad (5.25)$$

$B\vec{\sigma} \cdot \vec{I}_i$ correspond à l'interaction dipolaire entre le spin nucléaire du noyau d'³He \vec{I}_i et celui du neutron $\vec{\sigma}$. Il en résulte qu'après interaction, une fraction non négligeable des neutrons est émise vers les détecteurs par diffusion incohérente.

Chapitre 6

La spectroscopie temps de vol

Sommaire

6.1	Introduction	70
6.2	La spectroscopie temps de vol	70
6.2.1	Le principe de la mesure	70
6.2.2	Les spectromètres à temps de vol	71
6.2.3	Le choix d'un instrument adapté	72
6.3	L'instrument IN6	73
6.3.1	Le monochromateur	73
6.3.2	Le filtre Béryllium	74
6.3.3	Le chopper de Fermi	74
6.3.4	Le collimateur	75
6.3.5	Le chopper anti-overlap	75
6.3.6	Les détecteurs	75
6.3.7	Les moniteurs	76
6.4	La résolution de l'instrument	76

6.1 Introduction

Nous présenterons dans ce chapitre le principe de la spectroscopie temps de vol. Parmi le large choix d'instruments disponibles qui utilisent cette technique, nous avons choisi de réaliser cette expérience sur l'instrument IN6, et ce pour différentes raisons que nous exposerons ci après. Nous présenterons les différentes parties de ce spectromètre, ainsi que ses caractéristiques et sa résolution [Ollivier 2008].

6.2 La spectroscopie temps de vol

La spectroscopie temps de vol consiste à déduire la vitesse d'une particule et donc son énergie, en mesurant le temps qu'elle met à parcourir une distance donnée. Cette méthode simple a marqué l'histoire de la physique. Elle fut utilisée la première fois par H. Fizeau pour mesurer avec précision le temps de parcours d'un faisceau lumineux pulsé entre Suresne et Montmartre, lui permettant ainsi de déduire sa vitesse. En 1935, trois ans après la découverte du neutron par Chadwick, cette méthode fut intégrée pour la première fois dans le domaine des neutrons. Dunning et ses collaborateurs ont pu grâce à cette technique de mesure confirmer les prédictions de Fermi qui suggérait que l'énergie des neutrons à la sortie d'un modérateur était bien plus faible que celle des neutrons produits de fission de l' ^{235}U .

6.2.1 Le principe de la mesure

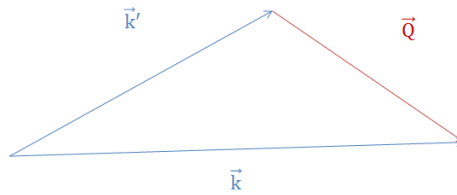


FIGURE 6.1 – Schéma du triangle de diffusion qui illustre la conservation d'énergie et de vecteur d'onde lors de la diffusion inélastique du neutron

Le but d'une mesure temps de vol est de déduire le facteur $S(Q, W)$ de l'échantillon. Nous considérons des neutrons incidents monochromatiques dont l'énergie est $E_{|\vec{k}\rangle} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$. Après interaction l'énergie de ces neutrons devient $E_{|\vec{k}'\rangle} = \frac{\hbar^2 k'^2}{2m}$. Durant ce processus, il y a eu un transfert de vecteur d'onde \vec{Q} et un transfert d'énergie $\hbar\omega$.

$$\vec{Q} = \vec{k} - \vec{k}' \quad (6.1)$$

$$\hbar\omega = E_{|\vec{k}\rangle} - E_{|\vec{k}'\rangle} \quad (6.2)$$

Au niveau des détecteurs nous avons accès au nombre de neutrons diffusés par unité de temps dt , dans un angle solide $d\Omega$. Cette information est directement reliée au facteur de structure dynamique discuté dans le chapitre précédent.

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial t} &= \frac{dE_{|\vec{k}'\rangle}}{dt} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'\rangle}} \\ &= \frac{N\sigma}{2\pi\sqrt{E_{|\vec{k}\rangle}}} \left(\frac{m}{2}\right)^{3/2} \frac{L^3}{t^4} \cdot S(\vec{Q}, \omega) \end{aligned} \quad (6.3)$$

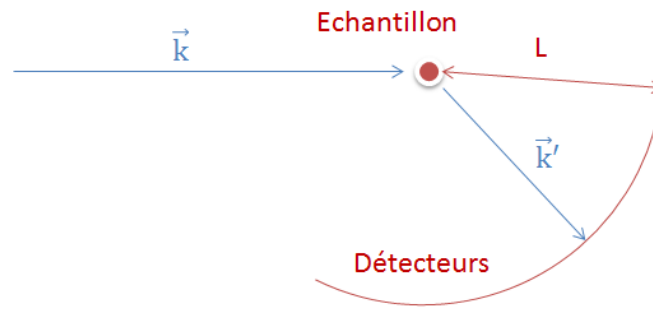


FIGURE 6.2 – Illustration de la technique temps de vol : un faisceau incident monochromatique interagit avec l'échantillon. Les neutrons diffusés parcourent la distance L séparant l'échantillon du banc de détecteurs. La détermination de leur angle de diffusion grâce à la distribution angulaire des détecteurs, ainsi que leur temps de parcours permet de déduire leur énergie et leur vecteur d'onde.

6.2.2 Les spectromètres à temps de vol

Afin d'avoir une bonne résolution lors de la mesure, les spectromètres à temps de vol doivent avoir des tailles conséquentes. En effet en utilisant la dualité onde-corpuscule, nous pouvons relier la vitesse du neutron à la longueur d'onde :

$$\lambda(\text{\AA}) \cdot V(\text{Km/s}) = 3.95603 \quad (6.4)$$

De la formule 6.4 nous déduisons que pour avoir une résolution sur la vitesse de quelques %, il faut une distance de quelques mètres séparant l'échantillon du détecteur si la résolution sur la mesure du temps de détection du neutron diffusé est de quelques dizaines de μs .

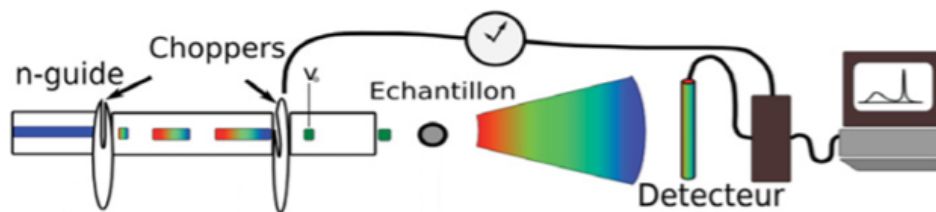


FIGURE 6.3 – Schéma d'un spectromètre de type temps de vol-temps de vol : un système de choppers permet de sélectionner un faisceau monochromatique. Après passage dans le deuxième chopper le temps est déclenché au niveau des détecteurs, les neutrons dont une partie atteint les détecteurs après interaction avec l'échantillon, seront enregistrés selon leur temps d'arrivée.

Les spectromètres à temps de vol sont composés de deux parties : dans la première, on prépare un faisceau de neutrons monochromatiques, tandis que la deuxième partie permet d'avoir accès au nombre de neutrons diffusés en fonction du temps et de l'angle de diffusion. Il existe un large choix de spectromètres à temps de vol :

1. Les spectromètres temps de vol - temps de vol : la sélection de la longueur d'onde du faisceau incident est obtenue au moyen d'un système de chopper. Un exemple de ce type de spectromètre est IN5 installé sur un guide de neutrons froids à l'ILL. Le premier chopper (disques, couvert d'un matériau absorbant, muni d'une fente de la taille du guide) permet de hacher le faisceau incident en tournant avec une certaine fréquence (figure 6.3). Le deuxième chopper installé plus loin tourne à la même fréquence mais avec un déphasage par rapport au premier. Seuls les neutrons qui parcourent la distance séparant les deux choppers avec un temps égal au déphasage temporel entre ces derniers atteignent l'échantillon. L'analyse se fait elle aussi par temps de vol, les neutrons

sont enregistrés selon leur instant d'arrivée. Le banc de détecteurs permet, de plus, de donner la distribution angulaire des neutrons détectés.

2. Les spectromètres temps de vol hybride à géométrie directe (IN6) : la sélection de la longueur d'onde des neutrons incidents se fait par diffraction sur un crystal selon la loi de Bragg, et la détection se fait par temps de vol.
3. Les spectromètre temps de vol à géométrie inverse : ce type de spectromètres est très rare. Ils sont utilisés pour étudier des évènements dont on connaît l'énergie. Le faisceau incident monochromatique est préparé par temps de vol et le faisceau diffusé atteint un crystal analyseur avant d'arriver au détecteur. L'orientation du crystal permet de fixer l'énergie des neutrons à détecter.

6.2.3 Le choix d'un instrument adapté

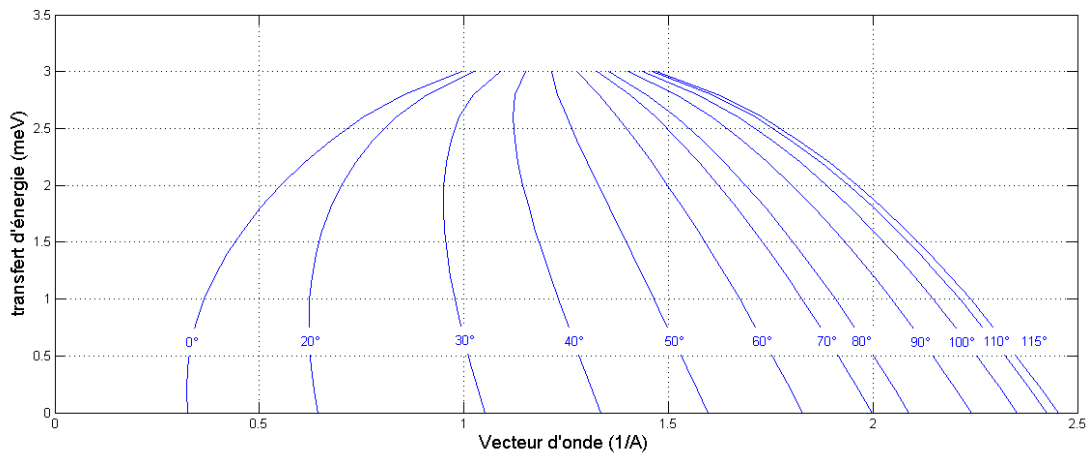


FIGURE 6.4 – Représentation de l'espace $(\hbar\omega, Q)$ accessible pour une longueur d'onde incidente de 5.12 \AA . L'instrument IN6 est doté d'un banc de détecteurs distribués entre les angles 10° et 115° . Les lignes en bleu représentent les lignes à angle constant pour quelques valeurs d'angles. Seule la partie qui correspond à des transferts d'énergie positifs est représentée sur la courbe, car elle correspond à la création d'excitations dans l'échantillon.

Parmi le large choix d'instruments qui existent dans les réacteurs de neutrons, le spectromètre IN6 semblait être le plus adapté et ce pour différentes raisons :

1. Le premier critère est de définir la gamme spatiale et temporelle dans laquelle se situe le phénomène recherché afin de choisir la longueur d'onde incidente. Dans la mesure où nous souhaitons étudier les excitations dans $l^3\text{He}$ 2D et les comparer à celles observées dans le passé dans $l^3\text{He}$ massif (chapitre 7), il fallait choisir une longueur d'onde qui nous permette d'avoir accès à la région du diagramme de phases dans laquelle se situent les modes d'excitations de ce dernier. L'instrument IN6 permettait de sélectionner des longueurs d'onde pour les neutrons incidents qui permettent d'obtenir la partie de $S(Q, \hbar\omega)$ que nous souhaitons explorer. En effet, l'équation 6.2 relie le moment transféré à l'énergie des excitations créées dans l'échantillon.

$$Q^2 = \frac{2\pi}{\lambda} \left(1 - \frac{\hbar\omega}{2E_{|k\rangle}} - \sqrt{1 - \frac{\hbar\omega}{E_{|k\rangle}} \cos(\phi)} \right) \quad (6.5)$$

Une longueur d'onde de 5.12 \AA nous a semblé très adaptée pour ce type d'expériences. En se servant de l'équation 6.5 nous pouvons représenter la partie de $S(\vec{Q}, \hbar\omega > 0)$ accessible à cette longueur d'onde (figure 6.4).

2. Le deuxième critère important est le flux de neutrons incidents. L' ^3He a une grande section efficace d'absorption, c'est pour cette raison qu'il est nécessaire d'avoir un flux important afin d'augmenter la statistique sur le phénomène étudié. IN6 dispose d'un triple monochromateur afin d'augmenter le flux. Cette technique permet d'obtenir au niveau de l'échantillon un flux de $8.9 \cdot 10^4 \text{ n/cm}^2/\text{s}$.
3. IN6 permet de plus de faire des mesures avec une très bonne résolution en énergie qui est de l'ordre de $70 \mu\text{eV}$ au niveau du pic élastique, pour une longueur d'onde de 5.12 \AA . Nous verrons dans le chapitre 9 que la largeur des excitations recherchées est plus grande que la résolution de l'instrument.

6.3 L'instrument IN6

L'instrument IN6 est composé d'un triple monochromateur, de trois moniteurs, d'un filtre Béryllium, de deux choppers et de trois bancs de détecteurs couvrant les angles de 10° à 115° (figure 6.5).

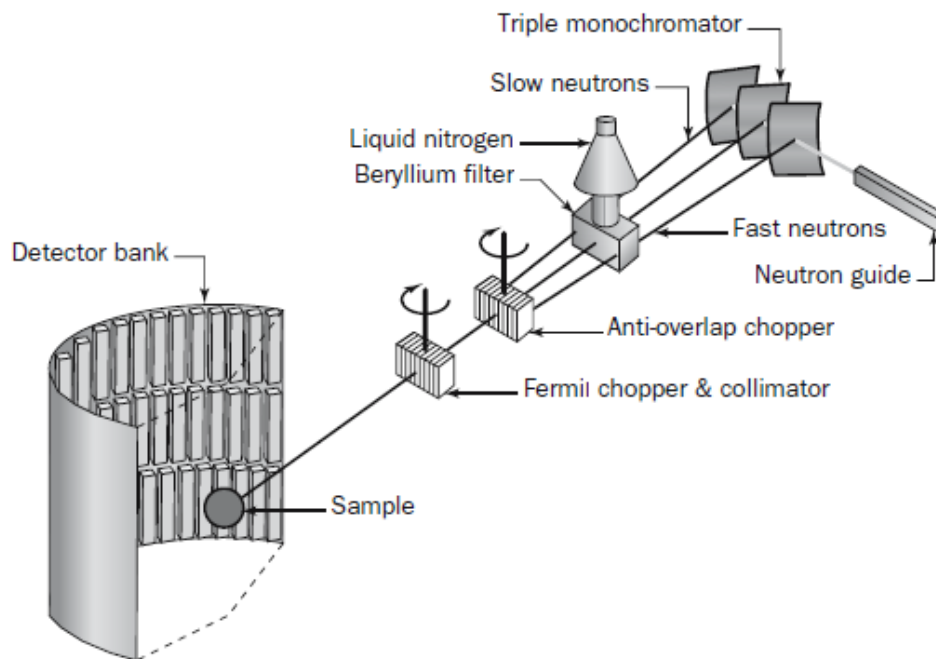


FIGURE 6.5 – Schéma de l'instrument IN6

6.3.1 Le monochromateur

Ne pouvant pas disposer de bout de guide l'instrument IN6 ne pouvait pas utiliser un système de chopper pour sélectionner la longueur d'onde du faisceau incident. Afin d'augmenter le flux, il dispose de trois cristaux monochromateurs. Dans le but de converger le faisceau vers l'échantillon ces trois monochromateurs n'ont pas le même angle de diffraction ce qui en résulte une différence entre les longueurs d'ondes des trois faisceaux. La longueur d'onde incidente est choisie grâce à loi de Bragg.

$$n\lambda_0 = 2d_{hkl} \cdot \sin\theta \quad (6.6)$$

Les longueurs d'onde des trois faisceaux de neutrons sont : $\lambda_0 - \Delta\lambda/2$, λ_0 et $\lambda_0 + \Delta\lambda/2$. $\Delta\lambda$ se déduit de la loi de Bragg :

$$\Delta\lambda = 2d_{hkl} \cdot \cos\theta \cdot \phi/2 \quad (6.7)$$

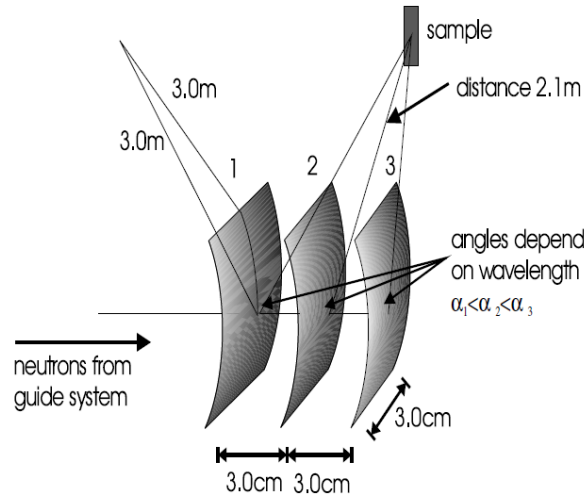


FIGURE 6.6 – schéma des trois cristaux monochromateurs d'IN6 qui permettent d'augmenter le flux et de focaliser ce dernier sur l'échantillon.

où θ est l'angle au niveau du crystal du milieu et ϕ est l'écart entre les angles du premier et dernier monochromateur. A cause de cette divergence dans le faisceau incident, certains neutrons vont atteindre l'échantillon avant d'autres. Afin de résoudre ce problème le chopper de Fermi a pour rôle de laisser passer les neutrons lents avant les plus rapides.

6.3.2 Le filtre Béryllium

L'équation 6.6 montre qu'après diffraction nous sélectionnons des neutrons qui ont une longueur d'onde λ_0 ainsi que des neutrons avec une longueur d'onde λ_0/n . Afin d'éliminer ces harmoniques on utilise un filtre en béryllium qui permet de couper les longueurs d'onde inférieures à 4 Å. Pour des longueurs d'onde supérieures à cette valeur la transmission des neutrons est de l'ordre de 80 %. Le Béryllium est utilisé sous forme de frittée et refroidi à l'azote afin d'éviter la diffusion des neutrons par les phonons.

6.3.3 Le chopper de Fermi

La fonction première du chopper de Fermi est de hacher le faisceau afin d'obtenir des paquets de neutrons. Son sens de rotation est choisi de manière à laisser passer en premier les neutrons les plus lents (figure 6.7). Le retard des neutrons rapides par rapport aux plus lents provoqué par le chopper de Fermi est donné par la relation suivante :

$$\Delta t = \frac{\phi}{2\pi\nu} \quad (6.8)$$

où ν est la fréquence de rotation du chopper de Fermi. Pour des neutrons diffusés élastiquement au niveau de l'échantillon, nous pouvons déduire de la relation 6.4 l'écart de temps entre les neutrons les plus lents et les plus rapides :

$$\Delta t' = \frac{m}{\hbar} \cdot L_{FD} \cdot \lambda_0 \cdot \tan^{-1}\theta \cdot \phi/2 \quad (6.9)$$

L_{FD} est la distance qui sépare le chopper de Fermi et le banc de détecteurs. La condition de focalisation en temps revient à imposer que $\Delta t = \Delta t'$. Ce qui permet de trouver la fréquence de rotation qu'il faut imposer au chopper de Fermi.

$$\nu = \left(\pi \cdot \frac{m}{\hbar} \cdot L_{FD} \cdot \lambda_0 \cdot \tan^{-1}\theta \right)^{-1} \quad (6.10)$$

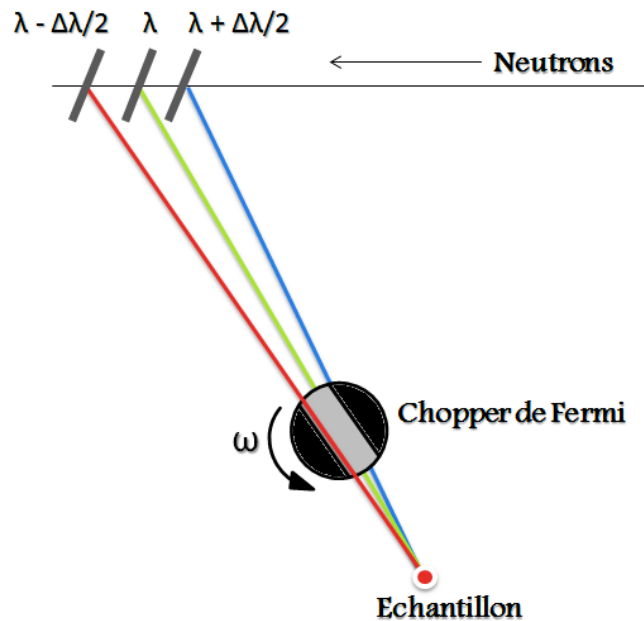


FIGURE 6.7 – Le chopper de Fermi consiste en un tambourin avec une fente qui permet quand elle est en face du guide, de laisser passer les neutrons. Son sens de rotation est choisi de sorte à laisser passer les neutrons les plus lents avant les plus rapides permettant ainsi d’avoir une focalisation en temps au niveau de l’échantillon.

Cette fréquence de rotation permet d’améliorer la résolution au niveau du pic élastique, mais pour des transferts d’énergies de plus en plus grands cette résolution se dégrade. Il est aussi possible de focaliser sur un mode d’excitation dont on connaît l’énergie. Dans ce cas la relation 6.10 devient :

$$\nu = \left(\pi \cdot \frac{m}{\hbar} \cdot \lambda \cdot \tan^{-1} \theta \left(L_{FS} + \left(\frac{\lambda'}{\lambda} \right)^3 L_{SD} \right) \right)^{-1} \quad (6.11)$$

L_{FS} est la distance chopper échantillon, L_{SD} la distance échantillon détecteur, λ la longueur d’onde du faisceau incident et λ' celle des neutrons diffusés.

6.3.4 Le collimateur

A l’intérieur du chopper de Fermi des feuilles d’aluminium perforées et de gadolinium d’épaisseurs respectives 0.2mm et 0.025mm, permettent la collimation du faisceau. L’absorption dans le gadolinium à pour effet de diminuer la divergence du faisceau à 0.034 rad.

6.3.5 Le chopper anti-overlap

IN6 est doté d’un deuxième chopper dont la vitesse est réglée afin d’éviter tout recouvrement entre deux paquets de neutrons au niveau des détecteurs c’est à dire empêcher que les neutrons qui perdent beaucoup d’énergie au moment de la diffusion arrivent en même temps que les neutrons les plus rapides du paquet suivant.

6.3.6 Les détecteurs

Les neutrons finissent leur parcours dans un banc de 337 détecteurs d’ ^3He couvrant des angles entre 10° et 115° . La détection se fait via la réaction $^3\text{He}(n,p)t$. Deux ions sont produits après capture du neutron par le noyau d’ ^3He . Ils ionisent le milieu lors de leur passage dans un gaz sous pression CF_4 .

Un champ électrique présent dans le détecteur induit un effet d'avalanche et les électrons sont collectés au niveau de l'anode. Ces détecteurs ont une très bonne efficacité, néanmoins cette dernière dépend de l'énergie des neutrons capturés. De plus l'efficacité relative entre différents détecteurs n'est pas la même. Il fallait donc tenir compte de ces effets lors de l'analyse des données.

6.3.7 Les moniteurs

Afin de connaître les variations du flux incident dans l'instrument, des moniteurs ont été installés. Ce sont des détecteurs de faible efficacité. En capturant une faible fraction des neutrons, ils permettent de rendre compte des variations de flux durant l'expérience. Afin de traiter correctement les données, le signal mesuré est toujours normalisé par rapport au flux incident déduit grâce au comptage au niveau du moniteur.

6.4 La résolution de l'instrument

Le facteur de structure que nous obtenons expérimentalement grâce à une mesure de temps de vol est le produit de convolution du facteur de structure de l'échantillon et de la fonction de résolution de l'instrument.

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|k'}\rangle} &= N \frac{k'}{k} \frac{\sigma}{4\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S(\vec{Q}, \omega') R(\omega - \omega') d\omega' \\ &= N \frac{k'}{k} \frac{\sigma}{4\pi} S(\vec{Q}, \omega) \otimes R(\omega) \end{aligned} \quad (6.12)$$

La résolution se calcule en prenant en compte l'incertitude sur le temps de parcours des neutrons ([Ollivier 2008]) :

$$\frac{\delta \hbar \omega}{E'} = 2 \frac{\delta t}{t} \quad (6.13)$$

où $t = \frac{m}{\hbar} \cdot L_{SD} \cdot \lambda'$ et δt est la somme de l'écart de temps de vol dû à la dispersion des longueurs d'onde au niveau du guide et du collimateur et celui dû à la défocalisation. Nous obtenons :

$$\delta t^2 = \delta t_M^2 + \delta t_{foc}^2 \quad (6.14)$$

$$\delta t_M = \frac{m}{\hbar} \cdot \lambda \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \cdot \tan^{-1} \theta \left(L_{FS} + \left(\frac{\lambda'}{\lambda} \right)^3 L_{SD} \right) \quad (6.15)$$

$$\delta t_{foc} = \phi \left(\frac{m}{\hbar} \cdot \frac{\lambda}{2} \cdot \tan^{-1} \theta \left(L_{FS} + \left(\frac{\lambda'}{\lambda} \right)^3 L_{SD} \right) - \frac{1}{2\pi\nu} \right) \quad (6.16)$$

où α est la divergence du faisceau sortant du guide, β est celle du neutron après le collimateur. Ce calcul est approximatif, car nous avons considéré pour que les temps s'additionnent en quadrature que la divergence du faisceau est décrite par une gaussienne. De plus, il faudrait tenir en compte en pratique l'incertitude sur la distance entre l'échantillon et le détecteur et celle de la distance parcourue par le neutron dans le détecteur avant d'être capturé. Afin de pouvoir comparer les résultats expérimentaux à la théorie nous avons réalisé, avec nos collaborateurs de l'équipe théorique de l'institut Kepler à Linz, une simulation Monte Carlo de l'instrument IN6 en considérant le facteur de structure calculé théoriquement. Cette simulation a permis d'obtenir le facteur de structure convolué avec la résolution de l'instrument et de le comparer aux mesures.

Conclusion

Nous allons maintenant résumer les points abordés dans cette partie :

1. Nous avons traité le problème de la diffusion neutronique en considérant un pseudo-potentiel de Fermi $V_{eff}(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_i^N b_i \cdot \delta(\vec{r} - R_i(t))$. Dans l'approximation de Born cela nous ramène à l'équation maîtresse de la diffusion neutronique :

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|\vec{k}'\rangle}} = \frac{k'}{k} N \left(\frac{\sigma_{coh}}{4\pi} S(\vec{Q}, \omega) + \frac{\sigma_{incoh}}{4\pi} S_{self}(\vec{Q}, \omega) \right) \quad (6.17)$$

Cette expression contient deux termes : le premier terme exprime la section efficace de diffusion cohérente qui dépend de la longueur de diffusion moyenne des atomes diffuseurs et le deuxième est la section efficace de diffusion incohérente qui dépend de la dispersion des longueurs de diffusion des diffuseurs par rapport à la moyenne. Cette dernière dépend de la composition isotopique des noyaux ainsi que de leur spin. Dans le cas de l' ^4He seule la diffusion cohérente est non négligeable, tandis que pour l' ^3He l'interaction dipolaire entre le spin des noyaux et celui des neutrons fait apparaître un terme de diffusion incohérente.

2. Le facteur de structure dynamique $S(\vec{Q}, \omega)$ renseigne sur les propriétés dynamiques et structurales du système étudié. Il est accessible expérimentalement et se déduit de la théorie grâce à la relation qui le relie à la partie imaginaire de la susceptibilité généralisée calculée dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire :

$$S(\vec{Q}, \omega) = -\frac{\hbar}{\pi} \frac{1}{1 - e^{\frac{-\hbar\omega}{k_B T}}} \text{Im} \left[\chi(\vec{Q}, \omega) \right] \quad (6.18)$$

3. Nous avons vu, de plus que l'instrument IN6 était bien adapté pour explorer des excitations de l'ordre du meV dans l' ^3He 2D adsorbé sur le graphite. IN6 permet de choisir une longueur d'onde pour les neutrons incidents parmi les 4 valeurs suivantes : 4.1, 4.6, 5.1 et 5.9 Å. Les neutrons de longueur d'onde de 5.1 Å sont adaptés pour nos expériences, ils permettent d'avoir accès à l'espace $(\vec{Q}, \hbar\omega)$ représenté sur la figure 6.4 (région dans laquelle se situent les excitations de l' ^3He massif). D'autres critères ont été pris en compte pour le choix de l'instrument. En effet l'instrument IN6 est doté d'un flux de neutrons important, ce qui permet d'augmenter la statistique sur le phénomène étudié. Enfin, la résolution est aussi un critère dont il faut tenir compte. IN6 permet d'effectuer des mesures avec une assez bonne résolution surtout pour observer des excitations de basses énergies.
4. La compréhension de chaque partie de l'instrument nous a permis de développer notre programme d'analyse des données. Grâce à la présence d'un moniteur (détecteur de faible efficacité dans le faisceau incident), le signal peut être normalisé par rapport au flux incident, ceci est un point essentiel lors de la soustraction du bruit. Les écarts d'efficacité entre les détecteurs et la dépendance

de cette dernière par rapport à l'énergie des neutrons ont également été pris en compte dans l'analyse des données expérimentales.

III. Les modes d'excitations collectives dans l'³He 2D

Introduction

Nous avons vu dans les parties précédentes que l'étude des excitations dans l'³He bidimensionnel est confrontée à deux difficultés expérimentales :

1. La première consiste à refroidir l'échantillon et le maintenir à une température inférieure à 100 *mK* en continu. Un réfrigérateur à dilution possède à ces températures une puissance frigorifique de 100 μW . Afin de s'assurer que cette puissance est suffisante pour maintenir l'échantillon à basse température nous avons estimé les puissances due à différentes sources de chauffages présentes dans le dispositif expérimental (absorption, rayonnement gamma). Toutes ces questions liées à la faisabilité de l'expérience seront traitées dans le chapitre 8.
2. La deuxième contrainte est la grande section efficace d'absorption des neutrons par l'³He. Cela nous a amenés à augmenter le temps de mesure (de l'ordre de 20 heures pour chaque taux de couverture) ainsi qu'à prendre des précautions particulières au moment du traitement des données expérimentales en propageant les erreurs statistiques à chaque étape de l'analyse.

A ces deux critères s'ajoute un ingrédient essentiel pour réussir ce type d'expériences, la connaissance exacte de la densité de la couche d'³He adsorbée sur le graphite. C'est pour cette raison que des mesures préliminaires ont été effectuées sur un diffractomètre de neutrons (D2B) afin de relier la densité de la couche adsorbée au volume d'³He introduit.

Le chapitre 7 traite des fluides quantiques, nous présenterons brièvement les travaux expérimentaux et théoriques antérieures qui ont permis de révolutionner notre compréhension de la dynamique dans les systèmes bosoniques (⁴He) et fermioniques (³He). La dernière partie de ce chapitre est dédiée à l'³He bidimensionnel ainsi qu'aux motivations de ce projet.

Dans le chapitre 8 nous présenterons le dispositif expérimental, nous discuterons également du substrat et de l'étude préliminaire effectuée pour le caractériser. Nous commenterons le diagramme de phase de l'³He 2D en première et en deuxième couche. A la fin de ce chapitre, nous discuterons la faisabilité de l'expérience.

Dans le chapitre 9, nous aborderons les différentes étapes de l'analyse des données expérimentales. Nous finirons ce chapitre en présentant le facteur de structure dynamique mesuré expérimentalement pour une couche monoatomique d'³He de densité 4.7 *atm/nm²*.

Le chapitre 10 est dédié à la comparaison entre les résultats expérimentaux et les différentes théories, en particulier celle développée par nos collaborateurs de l'équipe de physique théorique à l'Institut Kepler, Linz, Autriche.

Nous finirons cette partie par une conclusion mettant en avant l'impact que pourrait avoir éventuellement ce projet sur d'autres domaines de la physique.

Chapitre 7

La dynamique dans les fluides quantiques

Sommaire

7.1	Introduction	84
7.2	Système de bosons en interaction	84
7.2.1	L ⁴ He	84
7.2.2	Les excitations observées dans l ⁴ He superfluide	85
7.3	Systèmes de Fermions en interaction	86
7.3.1	L ³ He	87
7.3.2	La théorie de Landau des liquides de Fermi	87
7.3.3	La dynamique dans un liquide de Fermi	89
7.3.4	Les excitations observées dans l ³ He massif par diffusion inélastique de neutrons	90
7.4	L³He bidimensionnel	91
7.4.1	Motivations	91
7.4.2	Le diagramme de phases de la première couche	92
7.4.3	Le diagramme de phases de la deuxième couche	93

7.1 Introduction

L'Helium est le seul système n'ayant ni point triple, ni transition de sublimation. Sous sa pression de vapeur saturante, il n'est pas possible de le solidifier en réduisant sa température, même si on atteint des températures voisines de $T=0\text{K}$. En effet, en raison de sa faible masse l'Helium, à basse température, possède une longueur d'onde thermique de de Broglie ($\lambda_T = \sqrt{\hbar^2/mkT}$) importante, devenant de l'ordre de la distance interatomique à 4K. De plus le potentiel de Van Der Waals entre les atomes est très faible ce qui les rend difficile à confiner. Pour pouvoir obtenir la phase solide, il faut lui appliquer une pression externe supérieure à 25 bars.

L'hélium possède deux isotopes stables. Les atomes d' ^4He ont un noyau formé de 4 nucléons (deux protons et deux neutrons) ce qui les rend, de ce fait des particules bosoniques obéissant à la statistique de Bose-Einstein. Tandis que les atomes d' ^3He avec leurs trois nucléons (un neutron et deux protons) possèdent un spin nucléaire total $\mathbf{I} = 1/2$, et sont ainsi des particules fermioniques qui suivent la statistique de Fermi-Dirac.

L'étude des excitations élémentaires dans ces deux systèmes contribuent à la compréhension du problème à N-corps en physique fondamentale. C'est pour cette raison que l' ^4He et l' ^3He ont fait l'objet de plusieurs investigations par diffusion inélastique de neutrons durant les dernières décennies. Grâce aux travaux de Landau, Feynman, Bogoliubov, Pines, Nozières et bien d'autres, les théories ont évolué, permettant ainsi une bonne interprétation des résultats expérimentaux. Dans ce chapitre nous exposons quelques propriétés de l' ^4He et de l' ^3He ainsi que les théories et résultats expérimentaux qui ont révolutionné notre compréhension de la dynamique dans ces systèmes. La dernière partie sera consacrée au cas de l' ^3He -2D et nous présenterons les motivations de ce projet.

7.2 Système de bosons en interaction

L' ^4He est un prototype de système de bosons en interaction : il obéit à la statistique de Bose-Einstein. Le principe de Pauli interdisant aux nuages électroniques de se superposer le système peut être décrit par un fluide de sphères dures. Les interactions de type van der Waals entre les atomes sont très faibles, il en résulte un potentiel répulsif à courte distance et attractif quand cette dernière devient importante et dont le potentiel de Lennard-Jones fournit une description qualitative.

7.2.1 L' ^4He

Les diagrammes de phases de l' ^4He et l' ^3He sont uniques : à basses températures il ne se solidifie que sous pression. Il faut une pression de 25 bars pour obtenir l'état solide pour l' ^4He . On obtient ainsi selon la pression et la température imposées trois phases cristallines : une phase "hcp" hexagonale compacte, une phase cubique à faces centrées "fcc" et une phase "bcc" dont la maille est cubique centré.

A des températures de l'ordre de 2.17K, l' ^4He devient superfluide (He II) sous sa pression de vapeur saturante. Cette phase superfluide est décrite par la théorie des deux fluides de Tisza. La densité totale de l' ^4He s'écrit comme la somme de deux densités : une qui correspond à la fraction superfluide ($\rho_{superfluide}$) et une deuxième qui est celle du liquide normal (ρ_{normal}).

$$\rho = \rho_{superfluide} + \rho_{normal} \quad (7.1)$$

Ainsi à une pression de l'ordre de 0.05 bar et une température de 2.17K, la fraction superfluide tend vers 0. Au zéro absolu et pour une pression nulle, tout l' ^4He devient superfluide, celui-ci étant caractérisé par une viscosité ainsi qu'une entropie nulles. Cette théorie phénoménologique de Tisza, bien que macroscopique, est suffisante pour expliquer la plupart des propriétés observées de l'He II. Le travail

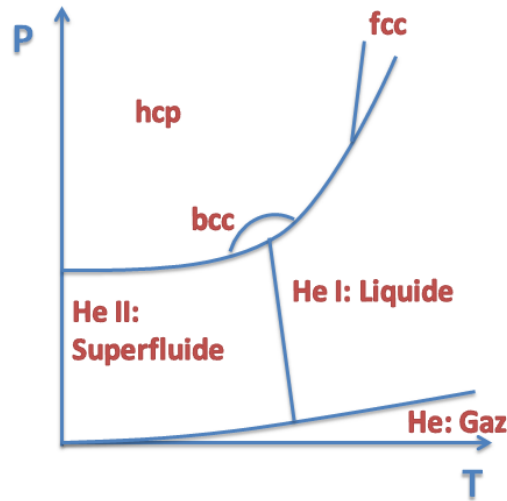


FIGURE 7.1 – Le diagramme de phase P-T de l'4He

s'est poursuivi avec Lev Landau qui suggéra une théorie microscopique basée sur le concept d'excitations élémentaires. D'après sa théorie la fraction normale est constituée d'excitations élémentaires tandis que la partie superfluide désigne la fraction de particules qui condensent dans le niveau fondamental. Après avoir pris conscience du rôle de ces excitations dans la manifestation de propriétés spectaculaires dans l'He II, les physiciens ont commencé à s'y intéresser ([Glyde 1994]).

7.2.2 Les excitations observées dans l'4He superfluide

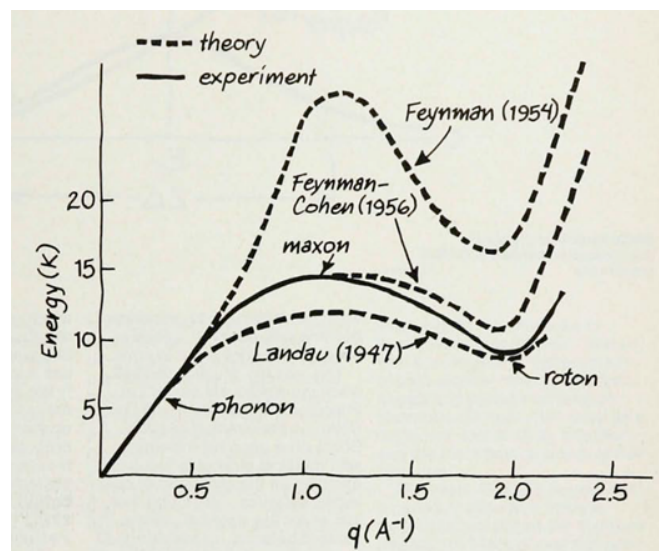


FIGURE 7.2 – Les excitations dans l'4He superfluide ([Pines 1981]) : La ligne continue présente les mesures expérimentales, les lignes en pointillés correspondent au différentes théories développées pour expliquer les résultats expérimentaux.

La théorie de Landau propose deux types d'excitations, chacune possède une relation de dispersion : pour des petits vecteurs d'onde, nous avons le même type d'excitations que celui observé dans les solides cristallins avec une relation de dispersion linéaire :

$$\omega = c \cdot Q \tag{7.2}$$

où c est la vitesse du son dans le milieu. Un autre type d'excitation appelé roton apparaît à plus grand vecteur d'onde. Landau a proposé de décrire sa relation de dispersion par une loi en Q^2 .

$$\omega = \Delta + \frac{(Q - Q_R)^2}{2m} \quad (7.3)$$

où Δ est l'énergie du minimum de roton et Q_R son moment et m la masse effective du mode. Landau assimila ce mode aux vortex (courants de masse), tandis que les phonons correspondent à des fluctuations collectives de densité. En joignant les deux courbes Landau obtint en 1947 la courbe de dispersion représentée sur la figure 7.2.

Le travail théorique s'est poursuivi ensuite avec Feynman qui présenta une théorie basée sur des principes variationnels. Il proposa l'idée que chaque atome se trouve dans une cage subissant ainsi un potentiel répulsif dû à la présence d'autres atomes autour de ce dernier. Il considéra que les excitations de faible vecteur d'onde sont dues au mouvement collectif de grands nombres d'atomes tandis que celles qui apparaissent à des grands vecteurs d'ondes impliquent un nombre d'atomes plus restreint. Afin d'avoir un meilleur accord avec les résultats expérimentaux Feynman et Cohen modifièrent la théorie en introduisant dans les fonctions d'ondes décrivant les états excités, des corrélations entre les positions des atomes, ce qui leur a permis d'obtenir un meilleur accord avec les résultats expérimentaux.

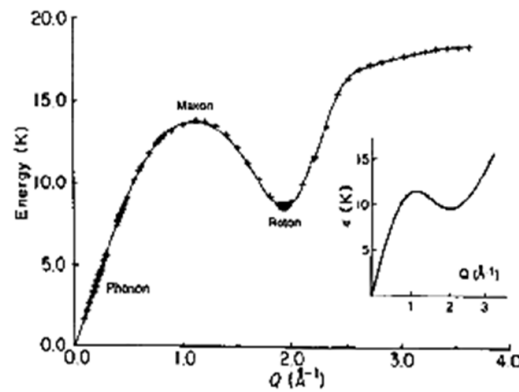


FIGURE 7.3 – Courbe de dispersion de l' ^4He superfluide obtenue par diffusion inélastique de neutrons, dans le coin droit de l'image la relation de dispersion proposée par Landau.

La relation de dispersion de l' He II a été mesurée à plusieurs reprises en utilisant plusieurs types de spectroscopie (neutronique, rayon x, Raman...). Nous présentons dans la figure 7.3 les résultats expérimentaux obtenus par diffusion inélastique de neutrons. Nous remarquons qu'en cédant au système une énergie supérieure à deux fois celle du roton un plateau appelé plateau de Pittaevsky apparaît, cela est dû à la création de deux rotors. D'autres expériences ont permis d'étudier la dépendance en pression de cette courbe de dispersion. A basse pression la courbe du phonon présente une anomalie (un point d'inflexion dans la courbe), cela a pour effet de réduire la durée de vie des phonons de basse énergie qui se désintègrent selon le processus à trois phonons. En augmentant la pression cette anomalie disparaît et la courbe de dispersion du phonon devient de plus en plus raide tandis que l'énergie du roton diminue.

7.3 Systèmes de Fermions en interaction

L' ^3He liquide de Fermi est un système modèle pour étudier les fermions fortement corrélés. Sa surface de Fermi est parfaitement sphérique contrairement au cas des électrons d'un solide qui sont soumis à un potentiel périodique dû à la présence du réseau d'atomes. De plus c'est le système de fermions le

plus pur qu'on puisse étudier expérimentalement. Tout comme l' ^4He , l' ^3He devient superfluide mais à des températures de l'ordre du mK. Cette différence de température est due aux statistiques quantiques différentes auxquelles ils obéissent.

7.3.1 L' ^3He

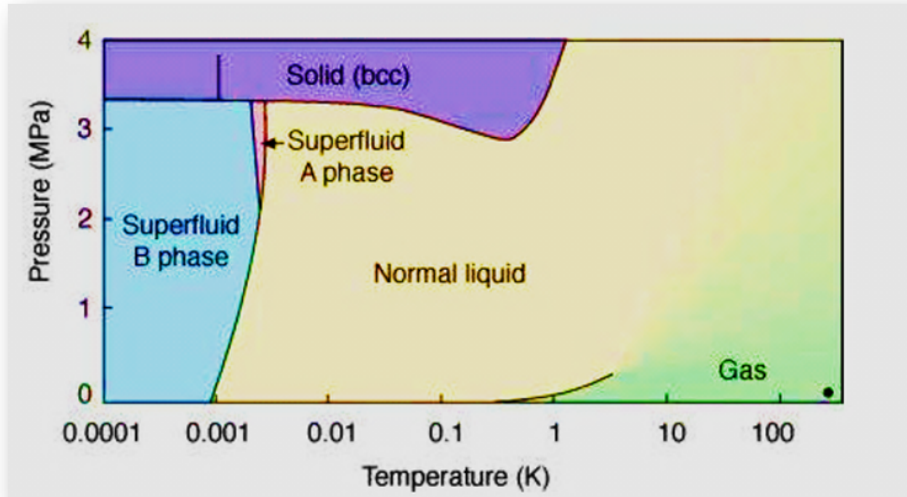


FIGURE 7.4 – Diagramme de phases P-T de l' ^3He en champ magnétique nul

La figure 7.4 montre le diagramme de phases de l' ^3He en champ magnétique nul. A haute température l' ^3He se comporte comme un gaz parfait. Lorsqu'on abaisse sa température en dessous du Kelvin il rentre dans la phase liquide de Fermi. A des pressions de l'ordre de 34 bars l' ^3He devient un solide bcc.

C'est à des températures de l'ordre du mK que l' ^3He devient superfluide. Les atomes s'apparient alors en paires de Cooper de spin total $S = 1$ et de moment orbital $L = 1$ (appariement de type p). On observe alors deux phases en absence de champ magnétique : la phase A caractérisée par un gap dépendant de \vec{k} au niveau de la sphère de Fermi. Dans cette phase seules les paires de Cooper dont la projection de spin S_z vaut ± 1 existent. L'autre phase stable est la phase B qui se caractérise par un moment angulaire total $L + S = 0$; lorsque l' ^3He subit la transition vers la phase A, un gap indépendant de \vec{k} s'ouvre au niveau de la sphère de Fermi. En appliquant un champ magnétique comme le montre la figure 7.5 que la phase A1 apparaît. Dans cette région du diagramme de phases le superfluide est composé de paires de Cooper de spin $S_z = 1$.

7.3.2 La théorie de Landau des liquides de Fermi

L'idée de base est de considérer en premier temps un gaz de fermions sans interaction. La probabilité qu'une particule ait une énergie E est donnée par la distribution de Fermi-Dirac.

$$f(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - \mu}{k_B T}\right)} \quad (7.4)$$

Nous obtenons dans l'espace des \vec{k} une sphère de Fermi dont le rayon dépend uniquement de la densité : $k_F = (3\pi^2 \frac{N}{V})^{2/3}$, où N est le nombre de particules de gaz dans un volume V .

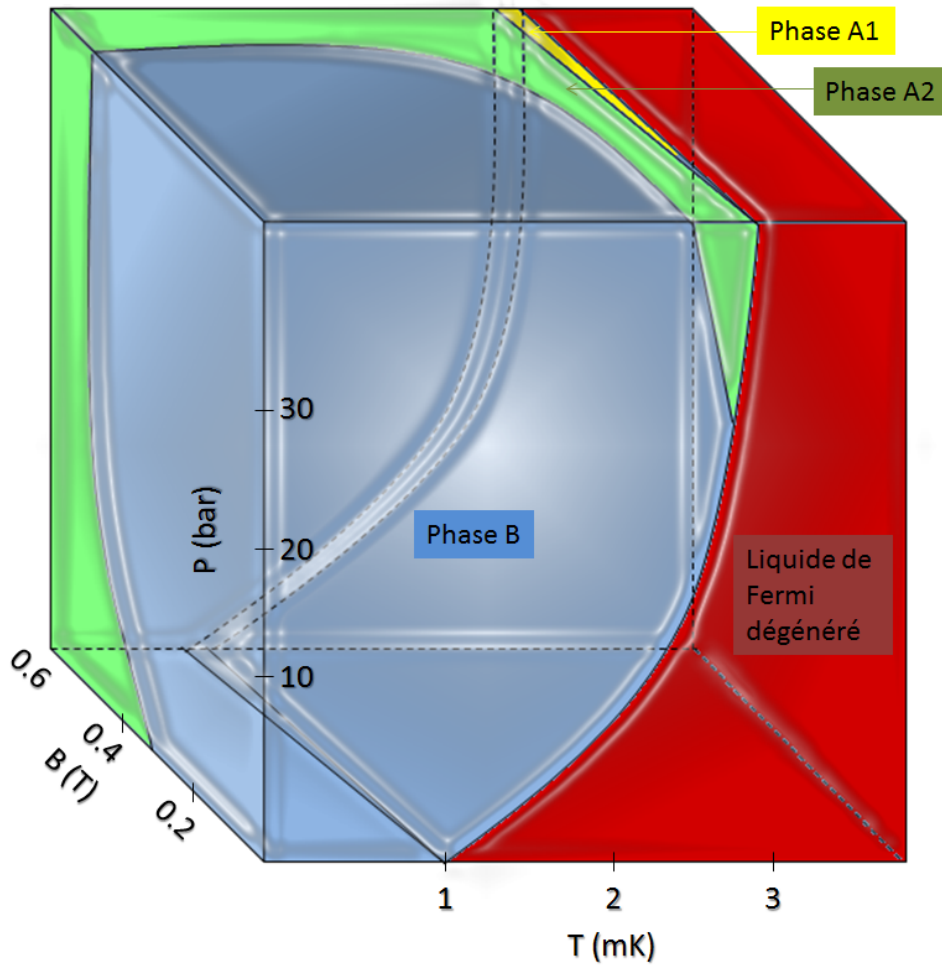


FIGURE 7.5 – Diagramme de phases de l'³He en fonction de la pression, la température et le champ magnétique.

Le calcul thermodynamique montre que pour un gaz de fermions, la capacité calorifique (C_V^g) varie proportionnellement à la température et la susceptibilité magnétique (χ^g) est une fonction qui n'en dépend pas.

$$T_F = \frac{2E_F}{3k_B} = \frac{\hbar^2}{3mk_B} \left(\frac{3\pi^2 N}{V} \right)^{2/3} \quad (7.5)$$

$$C_V^g = \frac{\partial U}{\partial T} = 2D(E)k_B^2 T = \frac{\pi m k_B^2}{3\hbar^2} \left(\frac{3N}{\pi V} \right)^{1/3} VT \quad (7.6)$$

$$\chi^g = \frac{N \mu^2}{V k_B T_F} \quad (7.7)$$

T_F est la température de Fermi du système, $D(E_F)$ la densité d'états au niveau de Fermi.

La théorie phénoménologique de Landau consiste à déduire les propriétés du liquide de Fermi, en partant d'un gaz de Fermions et en y ajoutant de manière progressive les interactions faisant ainsi évoluer les niveaux d'énergie de manière continue. Ainsi en insérant une particule dans le système et en branchant les interactions de manière adiabatique, nous créons une excitation dans ce dernier. L'ajout de la particule ainsi que la perturbation dans la distribution (δn_k) des autres particules qu'engendre cette action à cause des interactions forment une entité que nous appelons quasi-particule. Nous pouvons

exprimer le développement de Taylor au deuxième ordre (δn_k est supposée très faible) de l'énergie libre du système.

$$F - F_0 = \sum_{\vec{k}} (\epsilon_k - \mu) \delta n_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} f_{\vec{k}\sigma, \vec{k}'\sigma'} \delta n_{\vec{k}} \delta n_{\vec{k}'} \quad (7.8)$$

où F_0 est l'énergie libre du système dans l'état fondamental, $\epsilon_{\vec{k}}$ est l'énergie des quasiparticules et μ le potentiel chimique. Le deuxième terme de l'expression 7.8 exprime l'interaction entre quasiparticules, $f_{\vec{k}\sigma, \vec{k}'\sigma'}$ étant l'énergie de cette interaction, elle dépend de la direction de \vec{k} et \vec{k}' ainsi que de l'orientation relative des spins σ et σ' (conséquence de l'invariance par renversement de temps et de l'existence d'un centre de symétrie pour la surface de Fermi). Il est commode d'introduire $f_{\vec{k}, \vec{k}'}^a$ et $f_{\vec{k}, \vec{k}'}^s$ qui sont les parties symétriques et antisymétriques de spins. Ne dépendant que de l'angle entre \vec{k} et \vec{k}' , elles peuvent alors être développées en série de polynômes de Legendre :

$$f_{\vec{k}, \vec{k}'}^a = \sum_l F_l^a \cdot P_l(\cos\theta) \quad (7.9)$$

F_l^a et F_l^s sont les paramètres de Landau qui décrivent l'importance de l'interaction. Toutes les propriétés du liquide de Fermi peuvent alors se déduire de celles du gaz de Fermi en introduisant les paramètres de Landau. La masse effective des quasiparticules, ainsi que la chaleur spécifique et la susceptibilité magnétique du liquide de Fermi s'expriment :

$$m^* = m (1 + 1/3 \cdot F_1^s) \quad (7.10)$$

$$C_V = \frac{m^*}{m} C_V^g = m (1 + 1/3 \cdot F_1^s) C_V^g \quad (7.11)$$

$$\chi_0 = (1 + 1/3 \cdot F_1^s) \left(\frac{1}{1 + F_0^a} \right) \chi^g \quad (7.12)$$

7.3.3 La dynamique dans un liquide de Fermi

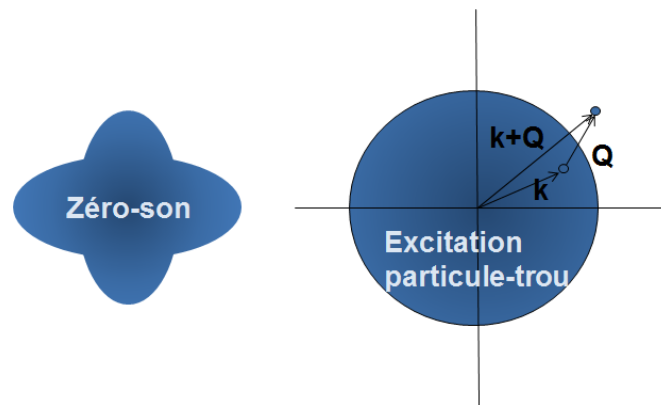


FIGURE 7.6 – A gauche représentation de l'oscillation de la sphère de Fermi qui se produit lors de la propagation d'un mode collectif d'excitation zéro-son. A droite représentation d'une excitation de type particule-trou qui consiste à faire passer une particule de l'autre côté de la surface de Fermi.

Dans un liquide de Fermi dégénéré nous avons quatre types d'excitations :

1. Les excitations de type paires particule-trou. Ces excitations existent aussi dans un gaz de Fermi sans interaction. Une excitation de ce type consiste à arracher une particule de la sphère de Fermi laissant ainsi un trou à la place (figure 7.6). Son énergie est donnée par la relation suivante :

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2}{2m} [(\vec{k} + \vec{Q})^2 - \vec{k}^2] = \frac{\hbar^2}{2m} [\vec{Q}^2 + 2\vec{k} \cdot \vec{Q}] \quad (7.13)$$

Il résulte de cette équation que les excitations de type particule-trou sont confinées dans une bande de largeur $2k_F$ (figure 7.7).

2. Un mode collectif appelé zéro-son dans le cas de l' ^3He ou plasmons pour les système électroniques. Ces modes similaires aux phonons dans l' ^4He sont des fluctuations collectives de densité.
3. Un mode collectif de fluctuation de spin ou paramagnons.
4. Les multipaires particule-trou dues à l'excitation simultanée de plusieurs paires particule-trou.

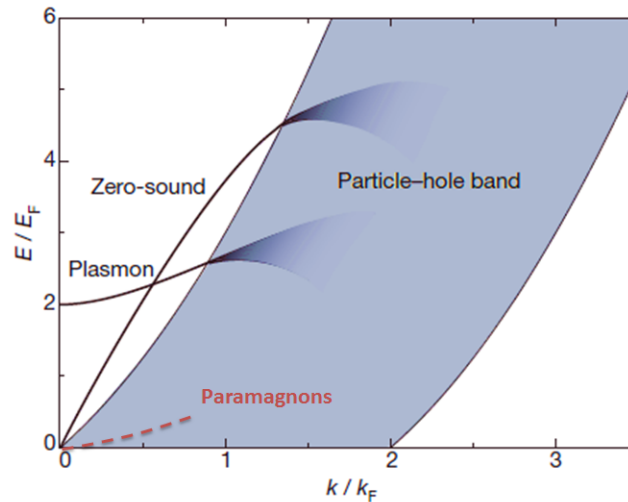


FIGURE 7.7 – Les différents modes d'excitation d'un liquide de Fermi.

La relation de dispersion ainsi que le facteur de structure dynamique du liquide de Fermi ont été mesurés expérimentalement à plusieurs reprises. Ils sont aujourd'hui expliqués par des théories utilisant la RPA (random phase approximation). Nous discuterons de ces théories au chapitre 10.

7.3.4 Les excitations observées dans l' ^3He massif par diffusion inélastique de neutrons

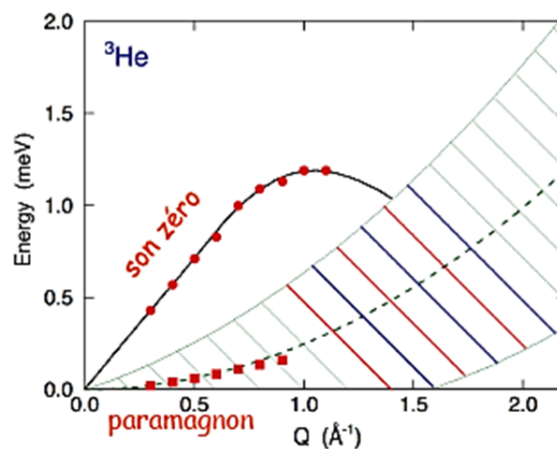


FIGURE 7.8 – Les traits en rouge et bleu indiquent la région explorée par Scherm et al. en 1974, les points en rouge correspondent aux mesures effectuées par Skold et al. (Schéma tiré de la présentation de Bjorn Fåk à l'Institut Néel, Février 2012).

Les premières mesures par diffusion inélastique des neutrons ont été réalisées par Scherm et al. en 1974. Grâce à un guide de neutrons froids et un instrument disposant d'un flux de neutrons important ils ont mesuré le facteur de structure dynamique de ^3He pour des transferts de moment $1.3 < Q < 2.5 \text{ \AA}^{-1}$. En 1976, Sköld et al. ont complété ces mesures en explorant la région $0.4 < Q < 2.0 \text{ \AA}^{-1}$ à Argonne National Laboratory. Ces expériences ont apporté la preuve expérimentale de l'existence du mode zéro-son ainsi que le mode de paramagnons pour des petits vecteurs d'onde (figure 7.8).

Dans la figure 7.9 nous présentons les résultats d'expériences de diffusion inélastique de neutrons réalisés à l'ILL ([Glyde 2000]). On voit le mode zéro-son à des vecteurs d'onde inférieurs à 1.3 \AA . Quand ce dernier pénètre la bande particule-trou il se désintègre en excitations individuelles incohérentes, ce qui entraîne un amortissement de ce dernier. A basse énergie nous observons le mode collectif de paramagnons. D'autres mesures effectués à 1K, présentés dans le même article, montrent que ces excitations de basse énergie ne survivent pas.

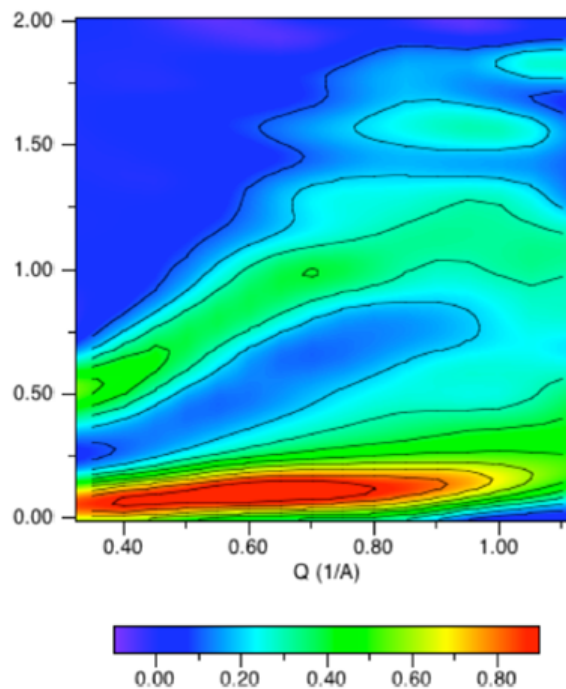


FIGURE 7.9 – Le facteur de structure dynamique de ^3He , à $T=30\text{mK}$, mesuré expérimentalement par diffusion inélastique de neutron [Glyde 2000]

7.4 ^3He bidimensionnel

Nous avons présenté tout au long de ce chapitre quelques travaux antérieurs concernant la dynamique dans les systèmes de bosons et de fermions en interaction. Nous présenterons dans cette partie les motivations de ce travail ainsi que quelques propriétés importantes et le diagramme de phase de ^3He bidimensionnel.

7.4.1 Motivations

Les but de ce projet est d'explorer les excitations dans un liquide de Fermi dégénéré à de grands vecteurs d'onde. L'étude du système ^3He liquide de Fermi bidimensionnel présente plusieurs intérêts :

1. Tout d'abord l' ^3He 2D possède la même topologie que l' ^3He massif. Dans le cas du système 2D les particules remplissent les niveaux d'énergie jusqu'à former un disque de Fermi dans l'espace des \vec{k} tandis que dans le système 3D nous obtenons une sphère de Fermi.
2. L'absence de point critique pour l' ^3He bidimensionnel nous permet d'explorer des densités allant de zéro (gas de Fermi) jusqu'à des densités importantes à partir desquelles le système solidifie. Nous pouvons ainsi étudier des liquides de Fermi de masse effective allant de $m^* = m$ jusqu'à des valeurs très grandes, bien plus importantes que celles qu'on pourrait obtenir avec un liquide de Fermi ^3He massif.
3. Avant la réalisation de ce projet aucun travail expérimental ne permettait de connaître de façon exacte la dynamique dans l' ^3He bidimensionnel.

L'adsorption physique de l'hélium sur un substrat solide, et en particulier du graphite, permet d'obtenir des systèmes bidimensionnels de grande qualité, où la densité est ajustée avec une précision de l'ordre du centième de la couche atomique. Le substrat utilisé dans le cadre de nos expériences est le graphite exfolié ZYX. Il est formé de poudre comprimée de plans de graphite de structure hexagonale. Nous discuterons dans le chapitre suivant les expériences effectuées afin de caractériser le substrat et de connaître exactement la densité de la couche adsorbée. A partir de cette densité surfacique ρ , nous pouvons directement calculer le vecteur d'onde au niveau de Fermi k_F , ainsi que l'énergie de Fermi E_F et la température de Fermi T_F de la couche adsorbée. Nous donnerons les résultats numériques pour une couche de densité $\rho = 4.7 \pm 0.2 \text{ atm/nm}^2$ (sa masse effective est alors $m^* = 4m$ similaire à celle d'un liquide sous une pression de 1MPa).

$$k_F = \sqrt{2 \cdot \pi \cdot \rho} = 5.43 \pm 0.12 \text{ nm}^{-1} \quad (7.14)$$

$$E_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m} = 0.04355\rho = 0.204 \pm 0.009 \text{ meV} \quad (7.15)$$

$$T_F = \frac{E_F}{k_B} = 0.5053\rho = 2.375 \pm 0.101 \text{ K} \quad (7.16)$$

7.4.2 Le diagramme de phases de la première couche

Le diagramme de phase de l' ^3He adsorbé sur le graphite a été obtenu grâce à des mesures de capacité calorifique, de RMN ainsi que des mesures de diffusion neutronique effectuées en fonction de la densité de la couche et la température ([van Sciver 1978], [Godfrin 1995a], [Godfrin 1995b], [Morhard 1996], [Greywall 1990]). La figure 7.10 montre le diagramme de phases de l' ^3He en première couche. A basse densité le film est liquide, néanmoins on peut avoir du solide ancré sur des sites de fort potentiel d'adsorption. Des mesures effectuées durant la thèse de C. Bauerle [Bauerle 1996] montrent que la proportion de ce solide est de 2 à 4 %.

A une densité d'environ $0.043 \text{ atomes/\AA}^2$, nous avons une zone de coexistence solide-liquide (zone I). Pour une densité de l'ordre de $0.064 \text{ atomes/\AA}^2$ nous obtenons la première phase solide commensurable avec le substrat : c'est la phase R1a, elle est appelée aussi phase $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ car pour chaque trois sites de graphite, un seul est occupé par un atome d' ^3He .

En augmentant d'avantage la densité surfacique du film d' ^3He ($0.064 < \rho < 0.08 \text{ atomes/\AA}^2$) nous atteignons une nouvelle zone de coexistence solide-solide. Cette zone est très controversée : des mesures chaleur spécifique montrent que c'est une zone de coexistence entre deux phases solides commensurables tandis que des mesures de neutroniques ont fait appel à une toute autre interprétation. En effet, d'après

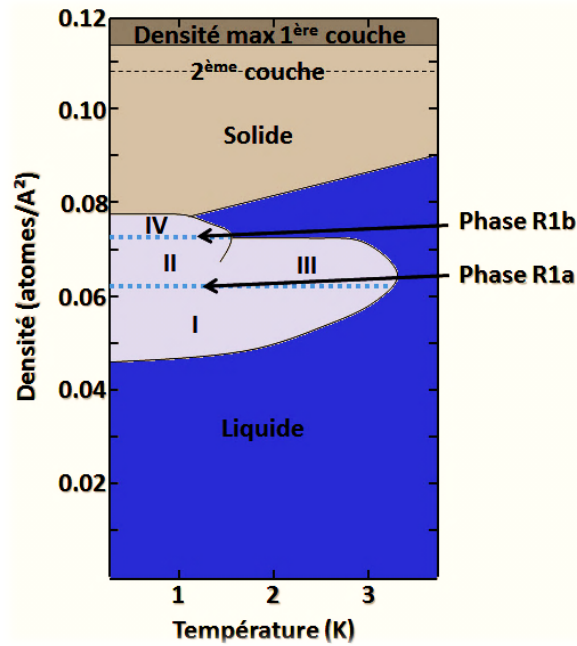


FIGURE 7.10 – Diagramme de phase de l' ^3He bidimensionnel adsorbé en première couche

ces mesures des zones de solide commensurables croissent sur le substrat. Entre les parois de ces dernières se créent alors des régions où les atomes n'arrivent pas à s'arranger donnant lieu ainsi à des zones de densités différentes.

A partir de $0.08 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ nous rentrons dans une nouvelle phase de solide incommensurable. Les phases de solide commensurables et incommensurables sont essentiellement paramagnétiques, les constantes d'échange nucléaire étant inférieures au mK. Ce n'est qu'en atteignant des densités supérieures à $0.119 \text{ atomes}/\text{nm}^{-2}$ que nous commencerons à remplir la deuxième couche.

7.4.3 Le diagramme de phases de la deuxième couche

Le diagramme de phases de la deuxième couche est assez similaire à celui de la première couche. A basse densité nous avons du liquide. La solidification commence à des densités supérieures à $0.179 \text{ atomes}/\text{nm}^2$ (il s'agit de la densité totale i.e première + deuxième couche), nous obtenons alors une zone de coexistence liquide-solide. La première phase commensurable est obtenue à $0.186 \text{ atomes}/\text{\AA}^{-2}$. C'est la phase R2a, aussi appelée phase $4/7$ ou $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$. Cette phase est obtenue lorsque nous avons 4 atomes adsorbés en deuxième couche pour 7 atomes en première couche.

En augmentant la densité, nous rentrons dans une zone de coexistence encore controversée (II et III). Comme pour la première couche deux hypothèses s'affrontent : coexistence de deux phases commensurables ou présence de défauts. La phase R2b indiquée sur la figure 7.11 est une phase commensurable appelée aussi phase $12/19$.

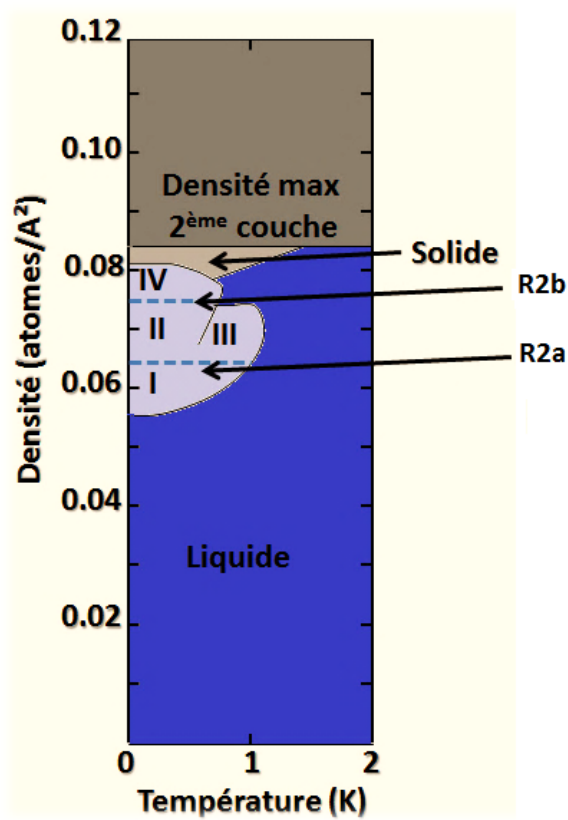


FIGURE 7.11 – Diagramme de phase de l' ^3He bisimensionnel en deuxième couche. En ordonnée est représentée la densité du film en deuxième couche et en abscisse la température.

Chapitre 8

Le graphite comme substrat et le diagramme de phases de l'³He 2D

Sommaire

8.1	Le Graphite exfolié	96
8.1.1	Le choix du substrat	96
8.1.2	La cellule expérimentale	96
8.2	Détermination de la densité et mise en œuvre	97
8.2.1	Isotherme d'adsorption	97
8.2.2	Détermination de la densité du film adsorbé par diffraction neutronique	98
8.2.3	Equipements et procédure expérimentale	100
8.3	La faisabilité de l'expérience	101
8.3.1	Le bruit de fond	101
8.3.2	L'effet de chauffage dû à l'absorption des neutrons	101
8.3.3	Energie des neutrons et désorption	102

8.1 Le Graphite exfolié

Les films d'hélium sont obtenus en adsorbant de l'hélium gazeux sur un substrat solide. Il est donc nécessaire que le substrat soit d'assez bonne qualité. En effet, l'existence de défauts au niveau de la surface d'adsorption rend le potentiel d'adsorption inhomogène ce qui a pour effet de créer des zones de forte densité de film adsorbé. Le choix du substrat est donc un élément essentiel afin d'obtenir de bons résultats pour des expériences de physique de surfaces.

8.1.1 Le choix du substrat

Un substrat de bonne qualité doit satisfaire au moins à quatre exigences :

1. Une grande surface d'adsorption est nécessaire afin d'obtenir un signal important après interaction des neutrons avec les atomes adsorbés sur le substrat.
2. Le potentiel d'adsorption doit être assez homogène. Les substrats qui satisfont le mieux cette condition sont les poudres de cristaux de structure cubique MgO. Grâce à leur facettes identiques ces substrats sont très adaptés pour des études de physique des surfaces. Malheureusement, leurs propriétés thermiques ne sont très bonnes.
3. Dans la mesure où nous voulons réaliser des expériences à basse température, le substrat doit avoir une bonne conductivité thermique. Cette condition réduit considérablement le nombre de choix de substrats.
4. Enfin le substrat doit être assez propre : une présence importante de contaminants a pour effet de rendre l'exploitation des données expérimentales difficile.

Les candidats qui semblent obéir le mieux à toutes ces exigences sont les substrats de graphite. Leur grande surface d'adsorption, leur potentiel d'adsorption assez homogène ainsi que leurs propriétés thermiques les rendent très adaptés à des expériences de physique des surfaces. De plus ils ont l'avantage d'être très faciles à nettoyer. Afin d'éliminer tout les contaminants (air, eau, huile, etc...) il suffit les chauffer à 800°C et de les pomper sous vide secondaire durant quelques heures. Une fois cette opération effectuée, leur contamination lors de leur exposition à l'air devient très faible, il suffit alors de les pomper à température ambiante avant chaque expérience.

8.1.2 La cellule expérimentale

Le graphite se présente sous forme de plaquettes cristallines dont la taille caractéristique est de 500 Å. Les atomes de graphite sont arrangés suivant une structure planaire hexagonale avec une distance interatomique de 1.42 Å et une distance entre plans de 3.37 Å. Afin d'obtenir du graphite exfolié, on intercale des couches d'oxydant entre les plans de graphite. L'ensemble est ensuite chauffé rapidement. Il résulte de cette opération une poudre de faible densité (quelques 10⁻³ g/cm³). Cette dernière est ensuite comprimée ce qui permet d'obtenir une poudre compacte de plaquettes cristallines.

Il existe plusieurs types de graphite exfolié, le Grafoil dont la surface d'adsorption est de 20m²/g et le ZYX commercialisé par Union Carbide (Etats Unis). Le substrat utilisé pour les expériences réalisées au cours de cette thèse est le ZYX et ce pour différentes raisons. Sa surface d'adsorption (2 m²/g) plus petite que celle du Grafoil est bien adaptée pour des études de diffusion neutronique. En effet, à cause de la grande section efficace d'absorption des neutrons par l'³He, nous estimons que l'utilisation

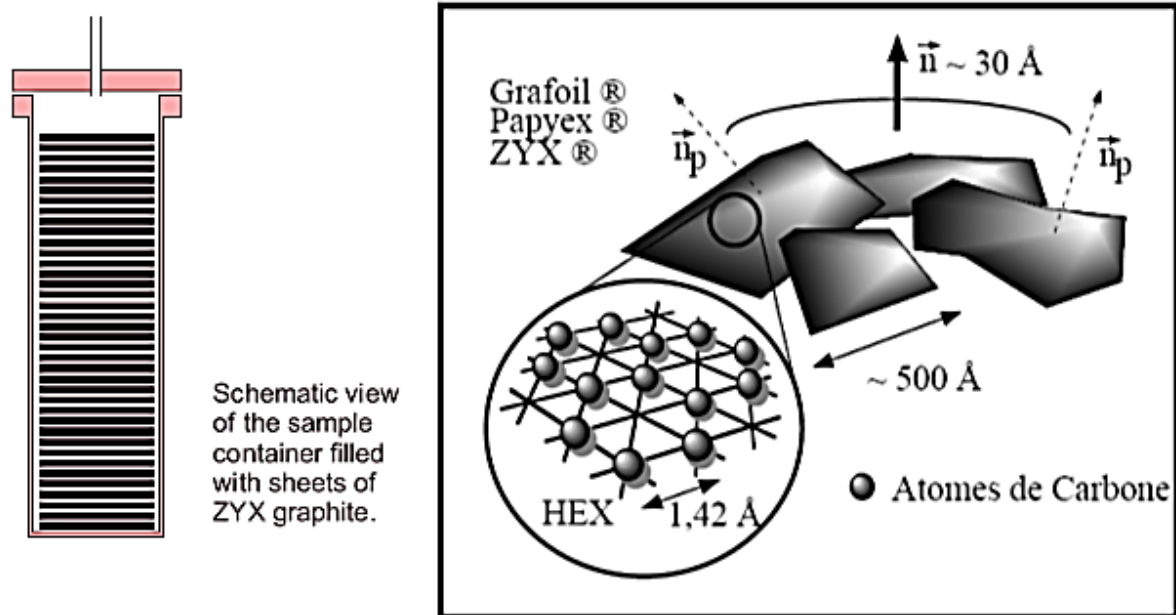


FIGURE 8.1 – A gauche : schéma de la cellule expérimentale. A droite : structure des plans de graphite exfolié.

d'un échantillon de Grafoil risque de réduire considérablement l'intensité du signal collecté au niveau des détecteurs. De plus le ZYX possède une plus petite mosaïcité (10°) comparée à celle du Grafoil (30°). Afin de bien refroidir le substrat, ce dernier est installé dans une cellule et thermalisé à l'aide d'un support métallique en cuivre.

8.2 Détermination de la densité et mise en œuvre

La connaissance de la densité du film adsorbé sur le substrat est essentielle pour ce type d'expérience. Afin d'accéder à cette information plusieurs méthodes peuvent être utilisées. Une solution très efficace consiste à mesurer la chaleur spécifique du film adsorbé. Cette méthode est très sensible aux transitions de phases, elle permet de déterminer avec une assez bonne précision la densité de l'hélium adsorbé et d'en déduire la surface du substrat. Une autre technique simple et très utilisée en physique des surfaces réside en la réalisation d'isothermes d'adsorption. Cette technique très facile à mettre en place à l'inconvénient d'être moins précise. Afin de déterminer de façon exacte la densité du film, des mesures de diffraction neutronique ont été réalisées à l'ILL sur les instruments D1B et D16. C'est en se servant de ces courbes que nous avons pu fixer un intervalle de densité pour la couche étudiée.

8.2.1 Isotherme d'adsorption

Cette technique très courante en physique des surfaces consiste à mesurer la variation de pression due à l'introduction d'un volume de gaz dans la cellule. Dans le cas de l'adsorption homogène on obtient des isothermes présentant des marches. La couche adsorbée constitue un seul système bien défini du point de vue de la thermodynamique, tant que cette dernière n'est pas totalement remplie le potentiel chimique et donc la pression restent constants. Les marches obtenues dans une isotherme d'adsorption traduisent le caractère discret des couches adsorbées. Dans le cas d'une adsorption inhomogène on obtient une sigmoïde qui présente des arrondis. C'est une conséquence du fait que l'on a un continuum de sites d'adsorption dû à l'irrégularité de la surface. Un modèle très souvent utilisé pour l'analyse de ces isothermes d'adsorption est le modèle B.E.T (d'après le travail de Brunauer, Emmett et Teller [Brunauer 1938]). Dans ce modèle

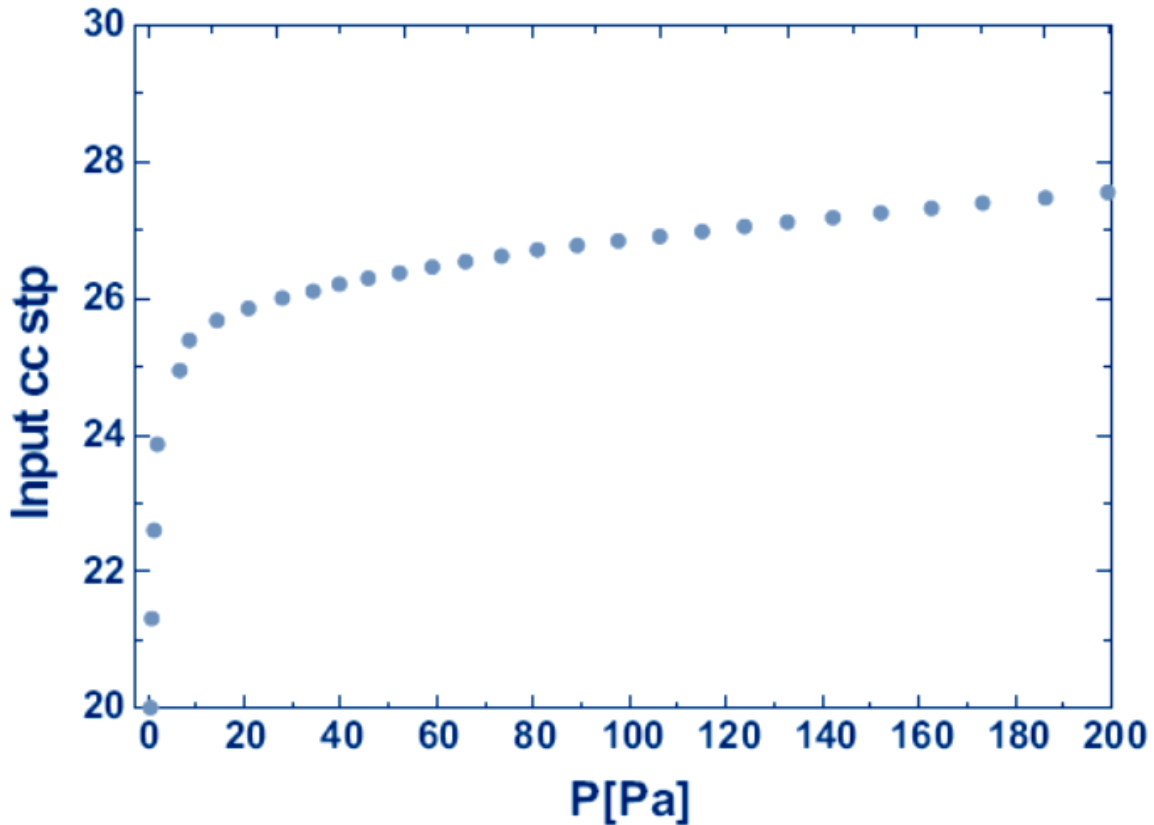


FIGURE 8.2 – Isotherme d'adsorption à $T=4.2\text{K}$: en ordonnées volume introduit d'⁴He en cm^3 en condition standard de température et de pression, en abscisse pression mesurée en haut de la cellule expérimentale.

on suppose que le substrat est lisse c'est à dire que l'énergie de liaison atomes adsorbés-substrat est la même pour tous les sites d'adsorption. Ce modèle est bien adapté pour des substrats comme le graphite, il permet de déduire la surface de ce dernier. L'expression du volume adsorbé qui en résulte est :

$$\frac{x}{V(1-x)} = \frac{1}{V_m C} + \frac{C-1}{V_m x} \quad (8.1)$$

où V est le volume du gaz adsorbé à pression P , V_m le volume du gaz nécessaire pour former une couche monoatomique dans les conditions standard de température et de pression, x est le rapport P/P_0 avec P_0 la tension de vapeur du liquide et C est un paramètre qui dépend du chauffage dû à l'adsorption. C et V_m sont déduits en ajustant la courbe mesurée expérimentalement. Connaissant la densité maximale de la première couche nous pouvons ainsi déduire de V_m la surface du substrat.

8.2.2 Détermination de la densité du film adsorbé par diffraction neutronique

Grâce à la caractérisation du substrat par des mesures de diffraction neutronique, la surface de ce dernier ainsi que la densité de la couche adsorbée ont été déterminés de façon précise. Ces mesures ont montré que pour obtenir la première phase commensurable R1a ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$), il fallait introduire un volume de 14.351 cm^3 de gaz dans les conditions standard de température et de pression. Le paramètre de maille mesuré permet ainsi de calculer la densité atomique qui est de $6.366 \text{ atomes/nm}^2$ pour la phase R1a. De là nous déduisons que la surface du substrat est de 59.7 m^2 .

Dans la figure 8.3 nous représentons en abscisse la densité calculée en prenant en compte le volume d'hélium introduit dans la cellule et la surface du substrat correspondant à l'échelle commensurable. En

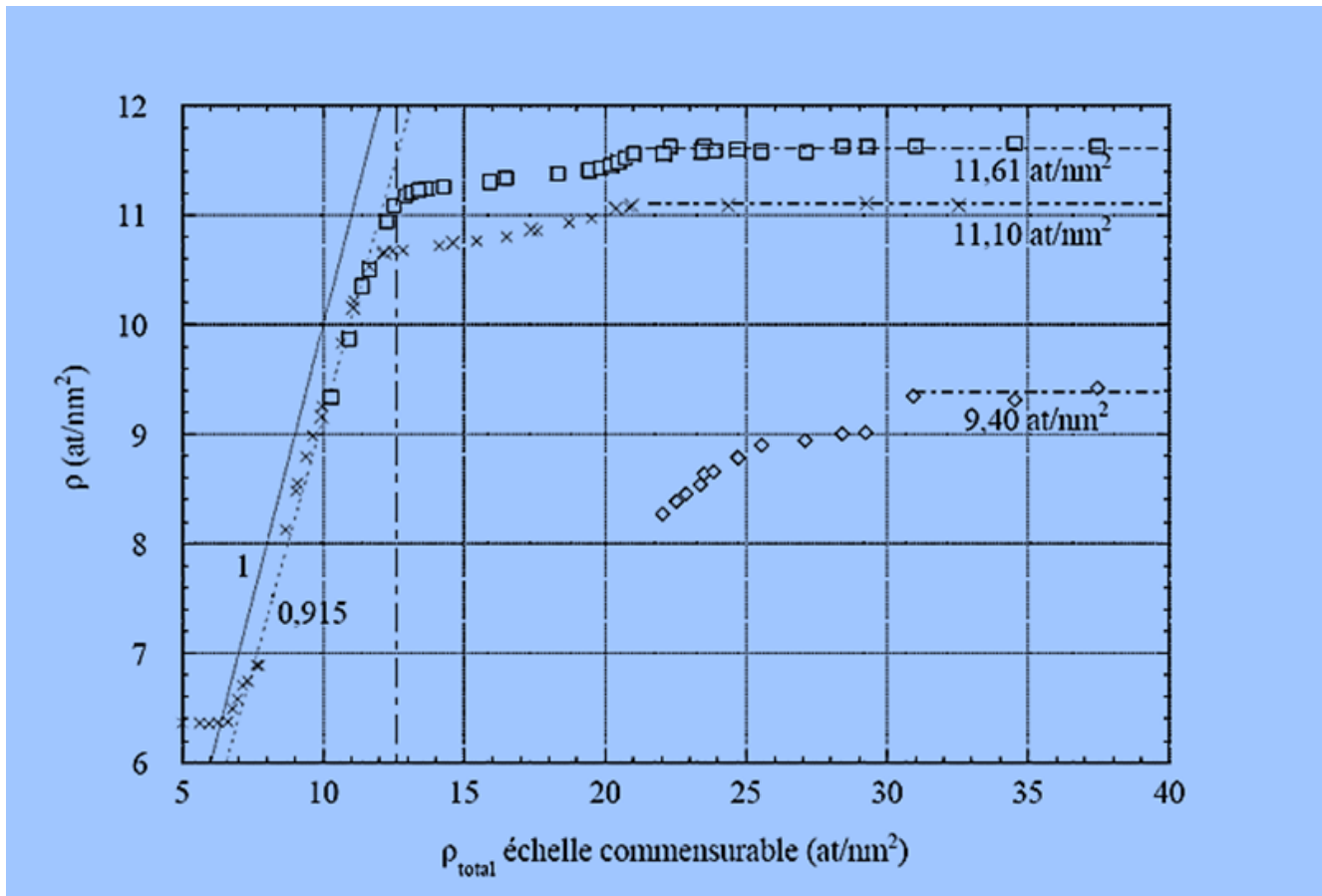


FIGURE 8.3 – Caractérisation du substrat par diffraction neutronique. En ordonnée : la densité déduite en mesurant la distance interatomique. En abscisse : la densité calculée en considérant la surface du substrat constante (correspondant à l'échelle commensurable). Les croix représentent la courbe obtenue en adsorbant de l'³He, les carrés représentent celles obtenues pour des atomes d'⁴He et la ligne continue est la droite d'équation $\rho = \rho_{totale}$

ordonnée est représentée la densité déduite de la mesure de la distance interatomique par diffraction des neutrons. Dans ce dernier calcul nous supposons que l'arrangement des atomes est triangulaire.

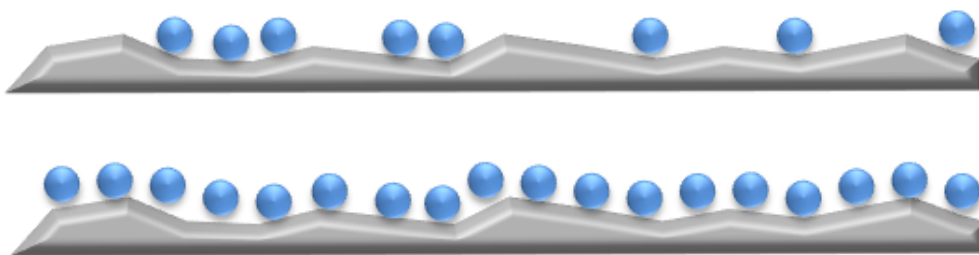


FIGURE 8.4 – Evolution de la surface d'adsorption : pour des petites densités seulement les sites de fort potentiel adsorption sont occupés. En augmentant la densité la surface effective du substrat augmente.

En théorie nous nous attendons à un accord entre la densité déduite des mesures et la densité calculée, mais en pratique cette dernière a une valeur plus élevée. Cela est dû essentiellement au fait que le substrat n'est pas homogène. Comme le montre la figure 8.4 les atomes adsorbés occupent d'abord les sites de potentiel élevé. Quand le film devient très dense les atomes d'helium commencent à occuper des sites de potentiel plus faible. On remarque donc que la surface d'adsorption n'est pas constante. Quand la première couche arrive à saturation ces courbes permettent de déduire que la surface effective

du substrat devient de 65.3 m^2 .

Cette caractérisation du substrat permet ainsi de connaître, pour un volume de gaz d'hélium introduit dans la cellule, la fraction qui occupe la première couche ainsi que celle qui peuple la deuxième couche.

8.2.3 Equipements et procédure expérimentale

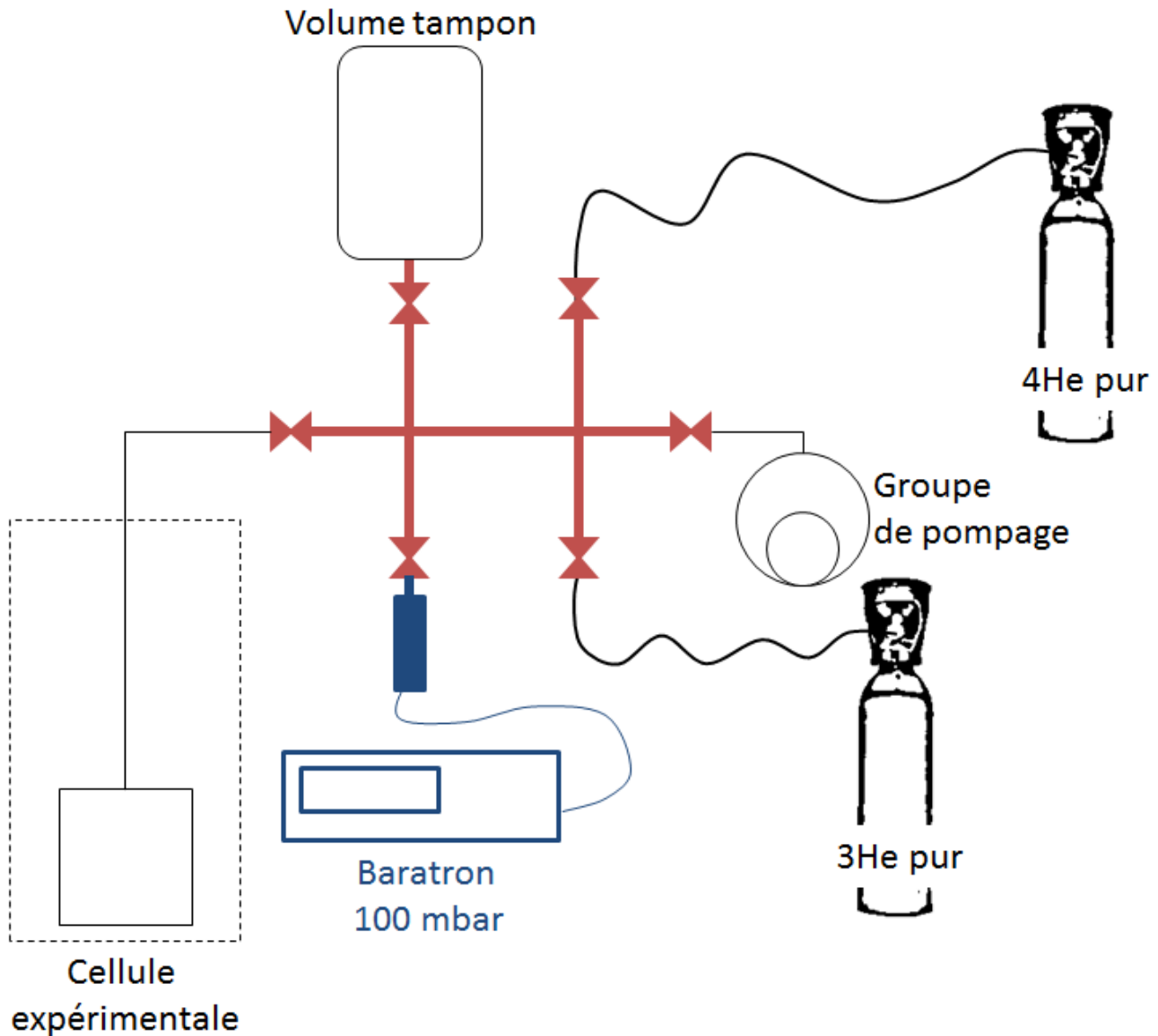


FIGURE 8.5 – Montage utilisé afin de réaliser des isothermes d'adsorption.

Dans le but de mesurer avec précision le volume d'hélium introduit dans la cellule expérimentale, nous utilisons le montage de la figure 8.5. Ce dernier est constitué d'un volume calibré et d'un Baratron MKS (100mbar). De plus nous prenons en compte la température de la pièce.

Afin de rendre le potentiel d'adsorption la plus homogène possible, nous déposons en première couche de l'⁴He solide de densité 11.3 atomes/nm^2 (nous prenons en compte la compression due à l'adsorption de l'³He en deuxième couche), le volume nécessaire pour une telle densité est $28.59 \text{ cm}^3 \text{ STP}$. Ensuite nous introduisons un volume de 11 cm^3 d'³He, ce qui correspond à une densité atomique de 4.9 atomes/nm^2

pour la deuxième couche en prenant en compte la surface commensurable et une densité 4.5 atomes/nm² si nous effectuons le calcul en prenant en compte la surface incommensurable.

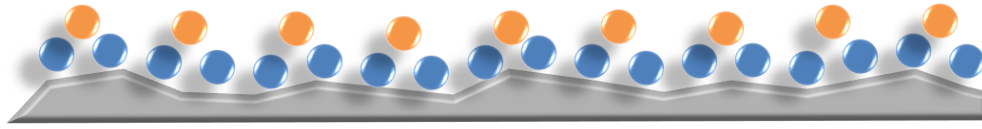


FIGURE 8.6 – Afin de rendre le potentiel d'adsorption plus homogène nous adsorbons d'abord une couche d'⁴He solide ensuite une couche d'³He liquide.

8.3 La faisabilité de l'expérience

8.3.1 Le bruit de fond

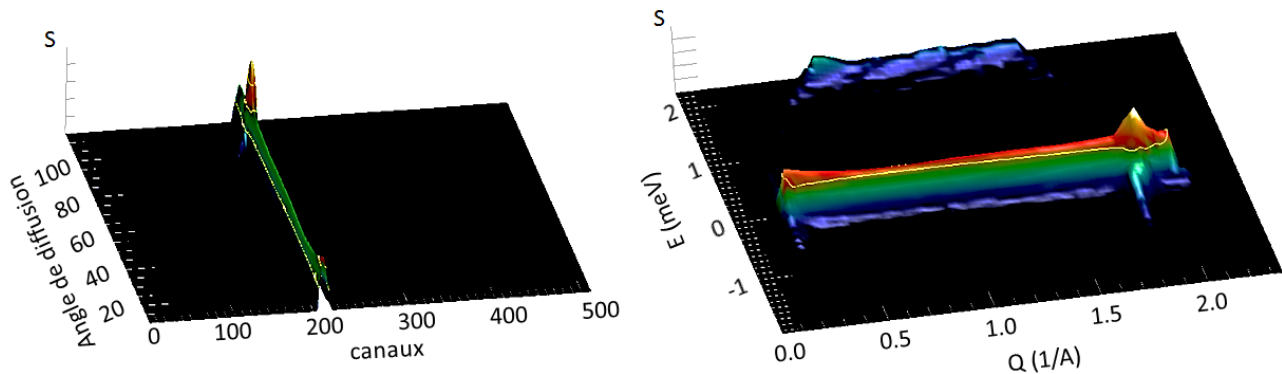


FIGURE 8.7 – À gauche : spectre temps de vol du graphite ZYX mesuré sur IN6, en abscisse le temps d'arrivé des neutrons et en ordonné les 337 détecteurs répartis entre 10° et 115°, le canal 200 correspond au canal élastique. À droite : le facteur de structure dynamique du graphite ZYX.

Avant d'explorer les excitations de la couche monoatomique d'³He adsorbé, nous avons mesuré le facteur de structure dynamique du substrat. Nous avons pu ainsi observer un pic de Bragg à un vecteur d'onde de 18.75nm⁻¹ correspondant au plan de réflexion (0002). La largeur importante de ce pic n'est pas dû à la résolution de l'instrument mais surtout à la mosaïcité du substrat qui est de 10°, l'axe c du graphite étant orienté perpendiculairement au plan de diffusion. Nous observons de plus un large signal élastique ne dépendant pas du vecteur d'onde. Ces mesures montrent qu'il sera très difficile d'explorer cette région de basses énergie dans la mesure où nous nous attendons à des signaux de faible intensité. La soustraction du bruit sera discutée en détail dans le chapitre suivant, nous verrons que dans la région qui nous intéresse il n'y a aucun signal inélastique autre que celui des atomes d'³He.

8.3.2 L'effet de chauffage dû à l'absorption des neutrons

Dans la mesure où l'³He absorbe les neutrons et que cette réaction dégage de la chaleur, il est tout à fait justifié de se poser la question de la faisabilité de l'expérience à basse température. Afin de s'en convaincre nous allons estimer cette absorption. La section efficace d'absorption des neutrons par l'³He est de 14800 barns. La fraction des neutrons absorbée peut être estimée à partir de la formule suivante :

$$\epsilon = 100(1 - e^{-x \cdot \sigma \cdot d}) \quad (8.2)$$

où d est la densité volumique de l'³He introduit dans la cellule et x est la distance parcourue par les neutrons de l'ordre du cm. Nous pouvons ainsi estimer que le nombre de neutrons absorbés est de l'ordre de 20 %. Nous verrons par la suite que lors de l'analyse des données expérimentales, nous avons déduit que cette absorption est plutôt de l'ordre de 30 %. Sachant que la réaction d'absorption du neutron par l'³He dégage une chaleur de 765 keV et connaissant le flux de neutrons incidents au niveau de l'échantillon qui est de l'ordre de $8.9 \cdot 10^4$ neutrons/ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ nous déduisons que cela engendre une puissance de chauffage de l'ordre du nW ce qui est bien plus faible que la puissance frigorifique fournie par la boîte à mélange d'un réfrigérateur à dilution. En pratique il y a une autre source de chauffage due au rayons gamma du faisceau incident, elle est estimée à quelques μWatts , c'est pour cette raison qu'il est difficile de réaliser des expériences de diffusion neutronique en dessous de 20 mK.

8.3.3 Energie des neutrons et désorption

Les expériences que nous avons réalisé utilisent des neutrons froids, leur énergie est de l'ordre de 10K. Le potentiel d'adsorption pour la première couche est de l'ordre de 140K, donc l'énergie des neutrons n'est pas suffisante pour désorber la première couche. Il en est de même pour la deuxième couche dont le potentiel d'adsorption est de l'ordre de 30K. A partir de la troisième couche le potentiel d'adsorption devient très faible, et la probabilité de désorber des atomes d'³He devient non négligeable.

Chapitre 9

Traitement des données et résultats expérimentaux

Sommaire

9.1	Traitement des données expérimentales	104
9.1.1	Correction de l'efficacité des détecteurs	104
9.1.2	Soustraction du bruit de fond	104
9.1.3	Correction de la dépendance en énergie de l'efficacité des détecteurs	105
9.1.4	Correction de l'absorption	105
9.1.5	La propagation des erreurs	106
9.1.6	La transformation $S(Q, \omega)$	106
9.2	Résultats expérimentaux	108
9.3	Conclusion	109

9.1 Traitement des données expérimentales

La mesure du facteur de structure de l' ^3He adsorbé sur le graphite est une expérience qui demande des soins particuliers. Le signal de la couche monoatomique est faible et la section efficace d'absorption des neutrons par les noyaux d' ^3He est grande. Le graphite, ainsi que la cellule d'aluminium et les thermalisations en cuivre contribuent au bruit de fond de façon importante. La soustraction du bruit et la normalisation de l'efficacité des détecteurs sont alors des étapes cruciales dans l'analyse des données expérimentales.

9.1.1 Correction de l'efficacité des détecteurs

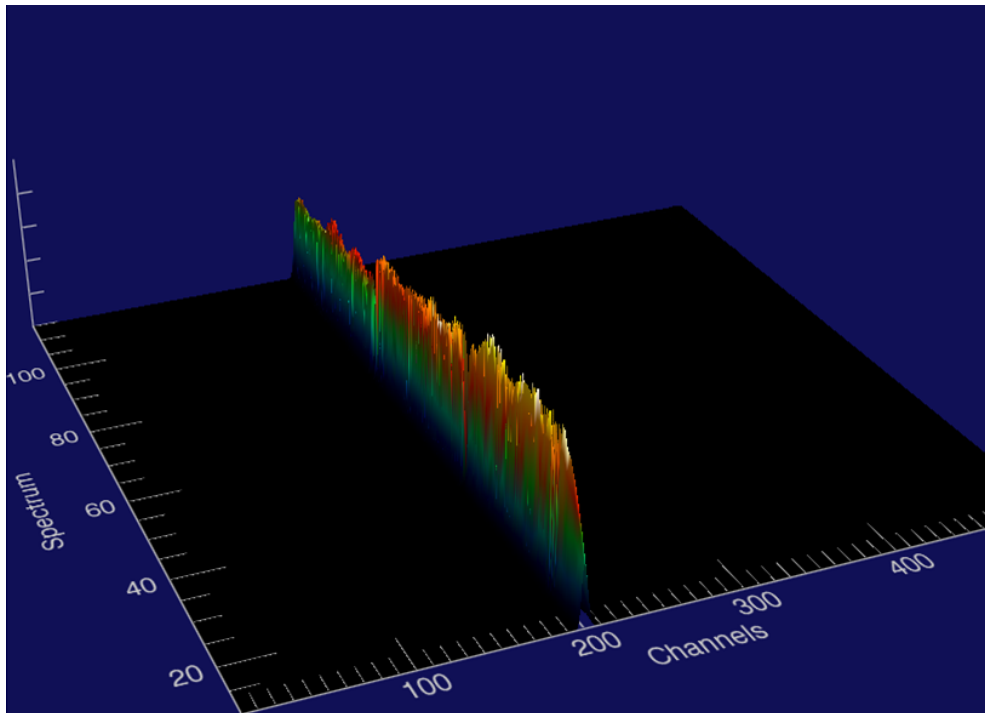


FIGURE 9.1 – Mesure de temps de vol avec un échantillon de vanadium ayant la même géométrie que notre cellule expérimentale. Nous remarquons que l'intensité des pics n'est pas la même pour tous les détecteurs. Cela est dû à l'écart d'efficacité entre ces derniers.

Les 337 détecteurs de l'instrument IN6 n'ont pas tous la même efficacité car la pression et composition du gaz contenu dans les détecteurs peuvent varier d'un détecteur à l'autre. Il est donc nécessaire de mesurer ces écarts d'efficacité. Dans ce but nous utilisons un diffuseur isotrope comme le vanadium. Ce dernier possède une section efficace totalement incohérente. L'intensité du pic élastique mesurée au niveau de chacun des détecteurs est donnée par l'expression suivante :

$$I_{\text{détecteur}} = \epsilon_{\text{détecteur}} \cdot S_{\text{vanadium}} \quad (9.1)$$

De cette mesure nous pouvons déduire les écarts d'efficacité entre les différents détecteurs et corriger ainsi les données expérimentales. De plus, elle nous permet de déceler la présence de mauvais détecteurs (par exemple ceux qui sont masqués totalement ou partiellement par le support de la structure d'IN6) afin de ne pas les prendre en compte lors du traitement des données.

9.1.2 Soustraction du bruit de fond

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, nous déposons d'abord sur le substrat une couche monoatomique d' ^4He solide puis une couche d' ^3He liquide. Les différents signaux qui contribuent

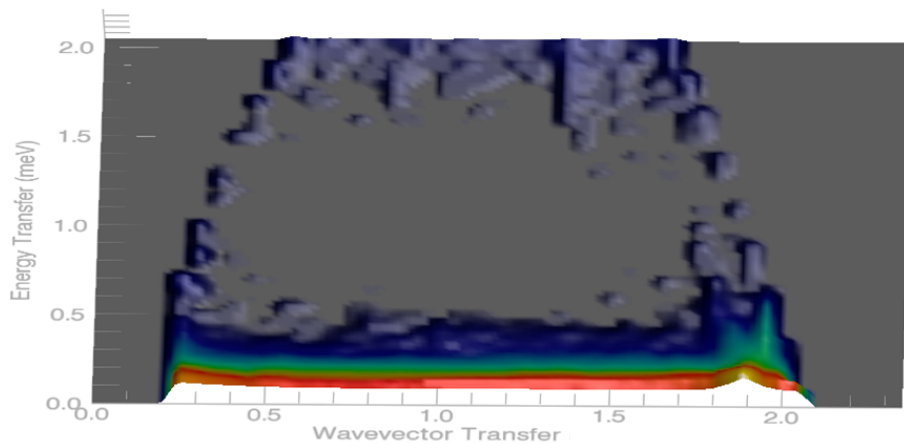


FIGURE 9.2 – Facteur de structure dynamique du graphite

au bruit de fond sont :

1. Le pic élastique du Graphite à énergie zéro (pic de Bragg situé à $Q = 1.9 \text{ \AA}^{-1}$).
2. Une branche de phonons qui émerge du pic de Bragg du graphite.
3. Lors de l'adsorption de ${}^4\text{He}$, nous observons une modification de la largeur du pic élastique du graphite. En effet, l'adsorption de ces atomes sur chacun des deux cotés des plaquettes cristallines du graphite entraîne une réduction des effets de taille finie associés à la faible épaisseur des plaquettes. Cela rend très difficile l'exploitation de cette région de $S(Q, \omega)$.
4. La densité du film d' ${}^4\text{He}$ solide est très importante, le pic de Bragg correspondant à ce taux de couverture se situe à $Q = 22.6 \text{ nm}^{-1}$, donc bien en dehors de la région accessible avec une longueur d'onde incidente de 5.12 \AA . Il en est de même pour les phonons de ${}^4\text{He}$, leur relation de dispersion est très raide et n'est donc pas visible. A $Q=0$, l'intensité des phonons est de plus très faible.

Chacune des mesures (Graphite, Graphite+ ${}^4\text{He}$ et Graphite+ ${}^4\text{He}+{}^3\text{He}$) a été effectuée durant un temps de l'ordre de 20 heures. Afin de soustraire correctement le bruit, tous les signaux ont été normalisés au moniteur, cela permet de prendre en compte les variations du flux incident de neutrons durant la mesure.

9.1.3 Correction de la dépendance en énergie de l'efficacité des détecteurs

Les neutrons diffusés après interaction avec l'échantillon n'ont pas tous la même énergie. Nous avons donc pris en compte la dépendance en énergie de l'efficacité des détecteurs [Ollivier 2008] :

$$\epsilon(\lambda'/\lambda) = Ae^{-a\lambda'}(1 - e^{-b\lambda'}) \quad (9.2)$$

où les coefficients A, a, b sont ajustés pour chaque type de détecteurs.

9.1.4 Correction de l'absorption

La figure 9.3 montre le signal obtenu pour un angle de 84.1 degrés. Nous remarquons que les pics élastiques se superposent pour le signal de graphite et celui du film solide d' ${}^4\text{He}$ adsorbé sur le graphite. Tandis que si nous ajoutons de ${}^3\text{He}$ l'intensité de ce pic se réduit. C'est ajustant ces pics élastiques

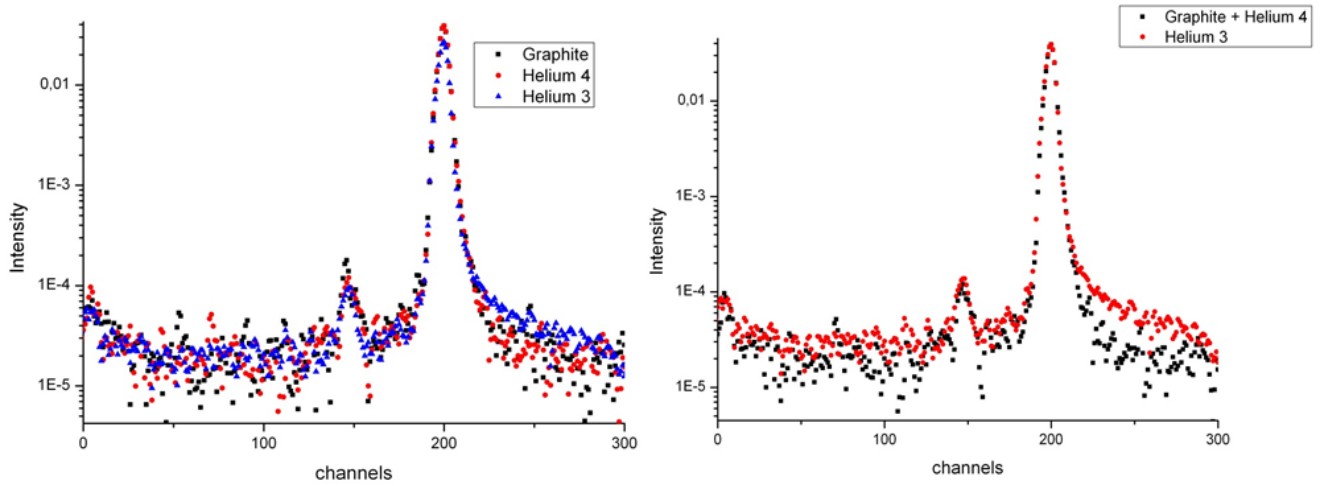


FIGURE 9.3 – Courbe intensité en fonction du temps de vol des neutrons mesurée par le détecteur positionné au niveau de l'angle 84.1° , ce qui correspond à un vecteur d'onde élastique de 16.5 nm^{-1} . A gauche le signal mesuré par diffusion sur le graphite, graphite+ ^4He et graphite+ $^4\text{He}+^3\text{He}$. A droite le signal du graphite+ ^4He et graphite+ $^4\text{He}+^3\text{He}$ après correction de l'absorption

que nous avons pu estimer l'absorption, elle est de l'ordre de 30 %. Cette absorption a été calculée pour chacun des angles de diffusion. On remarque sur la figure 9.3 l'importance de cette correction pour observer le signal dû à l' ^3He , visible en perte d'énergie, donc aux temps de vol élevés.

9.1.5 La propagation des erreurs

A chaque étape de l'analyse des données les erreurs ont été propagées. Nous avons de plus groupé les détecteurs se situant aux mêmes angles. La figure 9.4 a été obtenue après avoir additionné le comptage de deux détecteurs situés à l'angle 78.33° . L'absorption a été estimée, pour cette valeur d'angle, à 35 %. L'excitation observée dans l' ^3He correspond à une intensité de quelques neutrons. Nous avons obtenu des courbes similaires pour chaque angle avant d'effectuer la transformation $S(\mathbf{Q}, \omega)$.

9.1.6 La transformation $S(\mathbf{Q}, \omega)$

Les neutrons diffusés arrivent aux détecteurs avec un retard donné par la relation suivante :

$$t = \frac{SD \cdot m}{\hbar} \left(\frac{1}{k'} - \frac{1}{k} \right) = t_0 \left(\frac{k}{k'} - 1 \right). \quad (9.3)$$

SD est la distance échantillon détecteur et t_0 est le temps de vol des neutrons ayant effectué une diffusion élastique. Sachant que $\frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{1}{2} m \frac{SD^2}{t_0^2}$ l'équation 9.3 devient :

$$\frac{k'}{k} = \frac{1}{1 + t/t_0} \equiv \frac{1}{1 + \tau}. \quad (9.4)$$

L'énergie déposée dans l'échantillon est déterminée par la relation suivante :

$$\hbar\omega = E - E' = E \left(1 - \left(\frac{k'}{k} \right)^2 \right) = E \left(1 - \left(\frac{1}{(1 + \tau)^2} \right)^2 \right) \quad (9.5)$$

La largeur de chacun des canaux est de $9.625 \mu\text{sec}$, en utilisant la relation 9.5 nous pouvons effectuer la transformation temps en énergie.

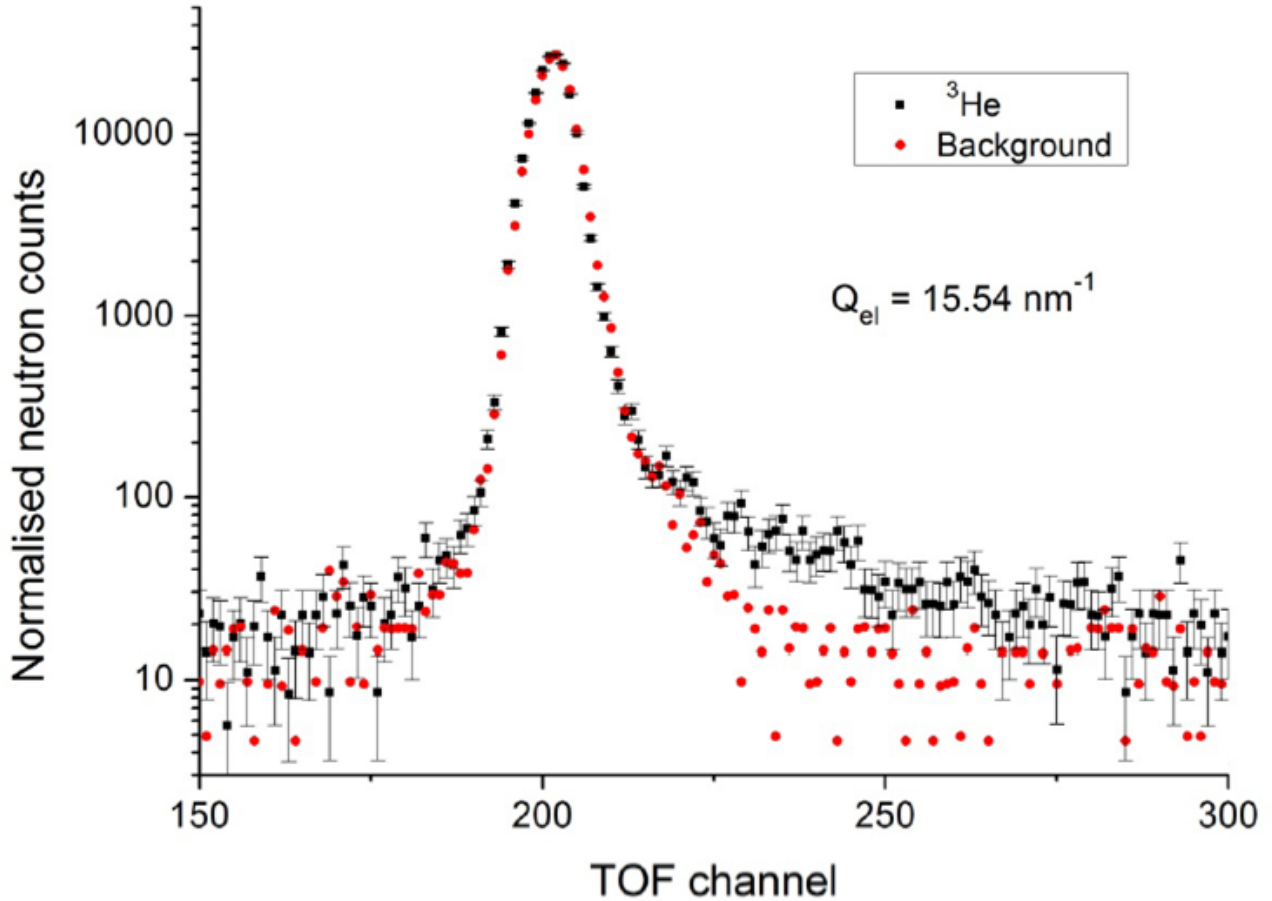


FIGURE 9.4 – Spectre en échelle logarithmique de l'intensité en fonction du temps de vol des neutrons mesuré au niveau de l'angle 78.33° (ce qui correspond à un vecteur d'onde élastique de 15.54 nm^{-1}).

Le moment transféré Q au système est calculé grâce à la relation suivante :

$$Q^2 = k^2 + k'^2 - 2\vec{k} \cdot \vec{k}' = k^2 + k'^2 - 2kk' \cos \theta \quad (9.6)$$

où θ correspond à l'angle entre \vec{k} et \vec{k}' .

Afin d'effectuer la transformation de l'espace θ -temps à l'espace Q - ω nous opérons de la manière suivante :

Nous avons N_ϕ détecteurs positionnés aux angles $\phi_{i=0\dots N_\phi-1}$ et N_t canaux en temps positionnés à $t_{j=0\dots N_t}$. Les neutrons sont stockés dans la matrice $N_{ij} = N(\phi_i, t_j)$ et distribués dans les cellules :

$$\left[\phi_i - \frac{\phi_i - \phi_{i-1}}{2}, \phi_i + \frac{\phi_{i+1} - \phi_i}{2} \right] \times \left[t_j - \frac{t_j - t_{j-1}}{2}, t_j + \frac{t_{j+1} - t_j}{2} \right]$$

En transformant les cellules de l'espace θ, t à l'espace Q, ω , ces dernières se déforment. Pour remédier à ce problème nous générons un nombre aléatoire de positions dans chacune des cellules de l'espace θ, t et effectuons la transformation dans l'espace Q, ω afin de remplir les cellules de ce dernier.

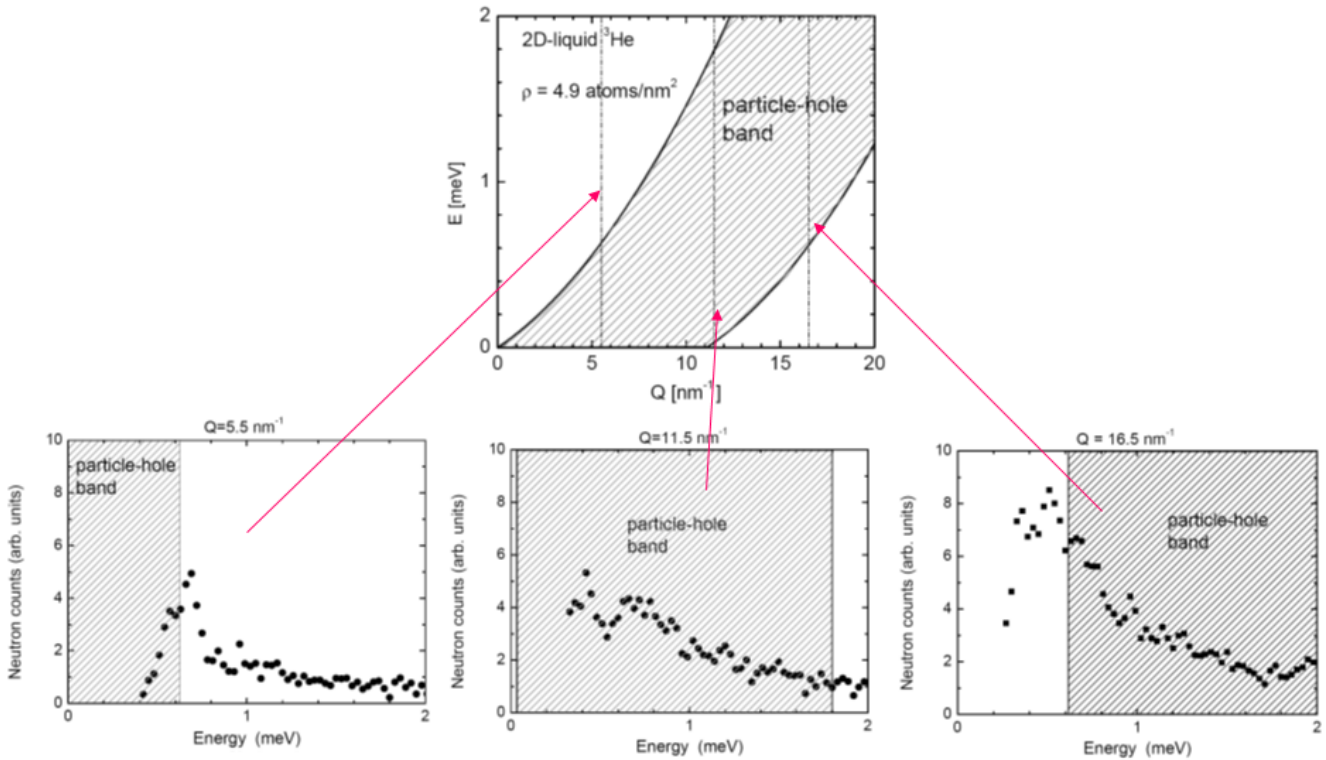


FIGURE 9.5 – Trois coupes de $S(Q, \omega)$ située respectivement avant la bande PHB, dans la bande PHB et après la bande PHB. Ces coupes correspondent à des vecteurs d'onde $Q = 5.5 \text{ nm}^{-1}$, 11.5 nm^{-1} et 16.5 nm^{-1} .

9.2 Résultats expérimentaux

L'analyse des données présentée dans la section précédente nous a permis d'obtenir le facteur de structure dynamique de l' ^3He bidimensionnel pour une couche monoatomique de densité 4.7 ± 0.2 atomes/ nm^2 . Les coupes de $S(Q, \omega)$ à vecteur d'onde constant sont représentés sur les figures 9.7 et 9.8. Ces courbes montrent un résultat surprenant : nous observons même à grand vecteur d'onde des excitations dans le système. En effet, sur la figure 9.5 nous nous intéressons à 3 coupes de $S(Q, \omega)$. La première coupe ($Q = 5.5 \text{ nm}^{-1}$) est située avant la bande particule-trou PHB, elle montre que le mode zéro-son dans le système bidimensionnel étudié est très proche de la bande PHB. La deuxième coupe ($Q = 11.5 \text{ nm}^{-1}$) est située dans la bande PHB. Nous observons là aussi de l'intensité : c'est l'amortissement de Landau qui correspond à l'élargissement du zéro-son quand il pénètre la bande PHB. Enfin le résultat le plus surprenant est obtenu en réalisant une coupe à un vecteur d'onde $Q = 16.5 \text{ nm}^{-1}$. Cette courbe montre l'existence d'un signal à grand vecteur d'onde. Il convient d'examiner les résultats dans une représentation de contours d'intensité de $S(Q, E)$, dans le plan Q, E . La figure 9.6 montre d'une part la bande particule-trou calculée avec la masse nue des atomes de ^3He . Bien que l'identification de ces modes soit difficile, on constate qu'il n'existe pas de mode dans la région où le zéro-son a été observé dans l' ^3He massif. L'intensité mesurée à faibles vecteurs d'onde indique que ce mode a une énergie plus basse, et se situe au voisinage de la bande particule-trou. A des vecteurs d'onde intermédiaires, on observe bien un élargissement du mode, comme dans l' ^3He massif, dû à l'amortissement de Landau. Finalement, à des grands vecteurs d'onde, nous observons que le signal intense décrit précédemment (figure 9.5), est relativement fin, sa largeur correspondant essentiellement à la résolution expérimentale. La figure 9.6 montre la ressemblance frappante entre la dispersion du mode zéro-son que nous observons et la relation de dispersion phonon-roton de l' ^4He .

9.3 Conclusion

Nous avons démontré dans ce travail expérimental l'existence d'un mode d'excitations collectives dans l' ^3He bidimensionnel à grand vecteur d'onde. La figure 9.6 montre que le zéro-son est de plus basse énergie que dans le cas de l' ^3He massif. La courbe ressemble beaucoup à la courbe phonon-maxon-rotor de l' ^4He . Cela prouve que le mode d'excitations collectives dépend essentiellement des interactions lorsque celles-ci sont fortes et qu'il est assez similaire dans l' ^3He et l' ^4He , et donc il dépend très peu des statistiques quantiques, différentes pour les deux systèmes. L'observation de cette branche d'excitations seulement dans l' ^3He bidimensionnel s'explique par le nombre de premiers voisins qui se trouve réduit par rapport à celui d'un système ^3He massif. Il nous faut maintenant trouver une théorie valable au delà de la théorie de Landau des liquides de Fermi (qui s'applique à des faibles vecteurs d'onde). Nos résultats expérimentaux imposent des contraintes sévères à la théorie; nous verrons dans le chapitre suivant comment se défi a été relevé par le groupe théorique de Linz.

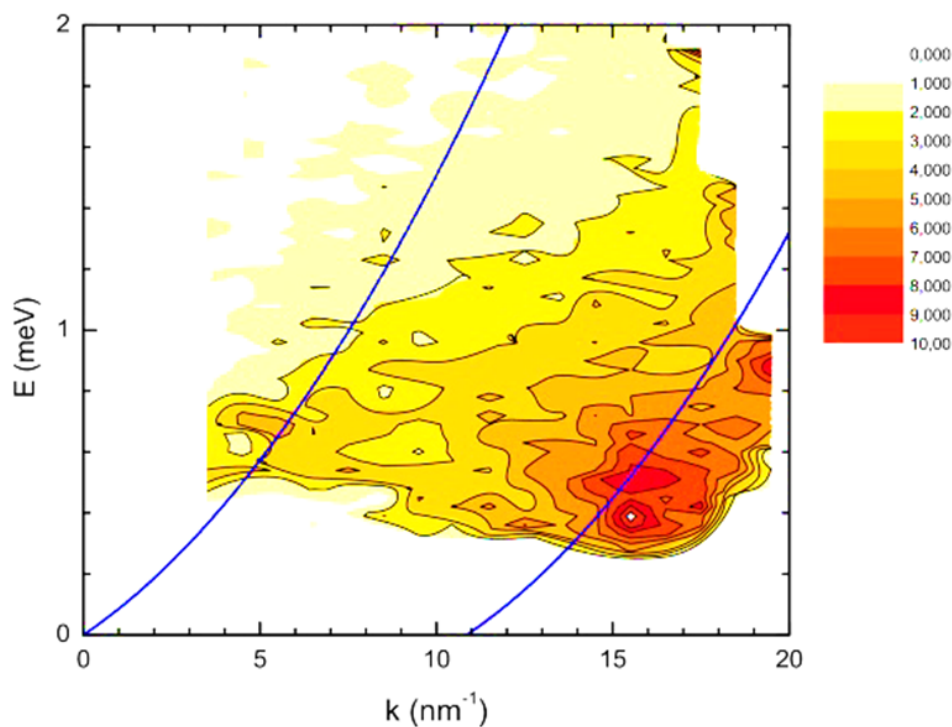


FIGURE 9.6 – Le facteur de structure dynamique de l' ^3He bidimensionnel mesuré par diffusion inélastique de neutrons sur une couche de densité 4.7 ± 0.2 atomes/nm²

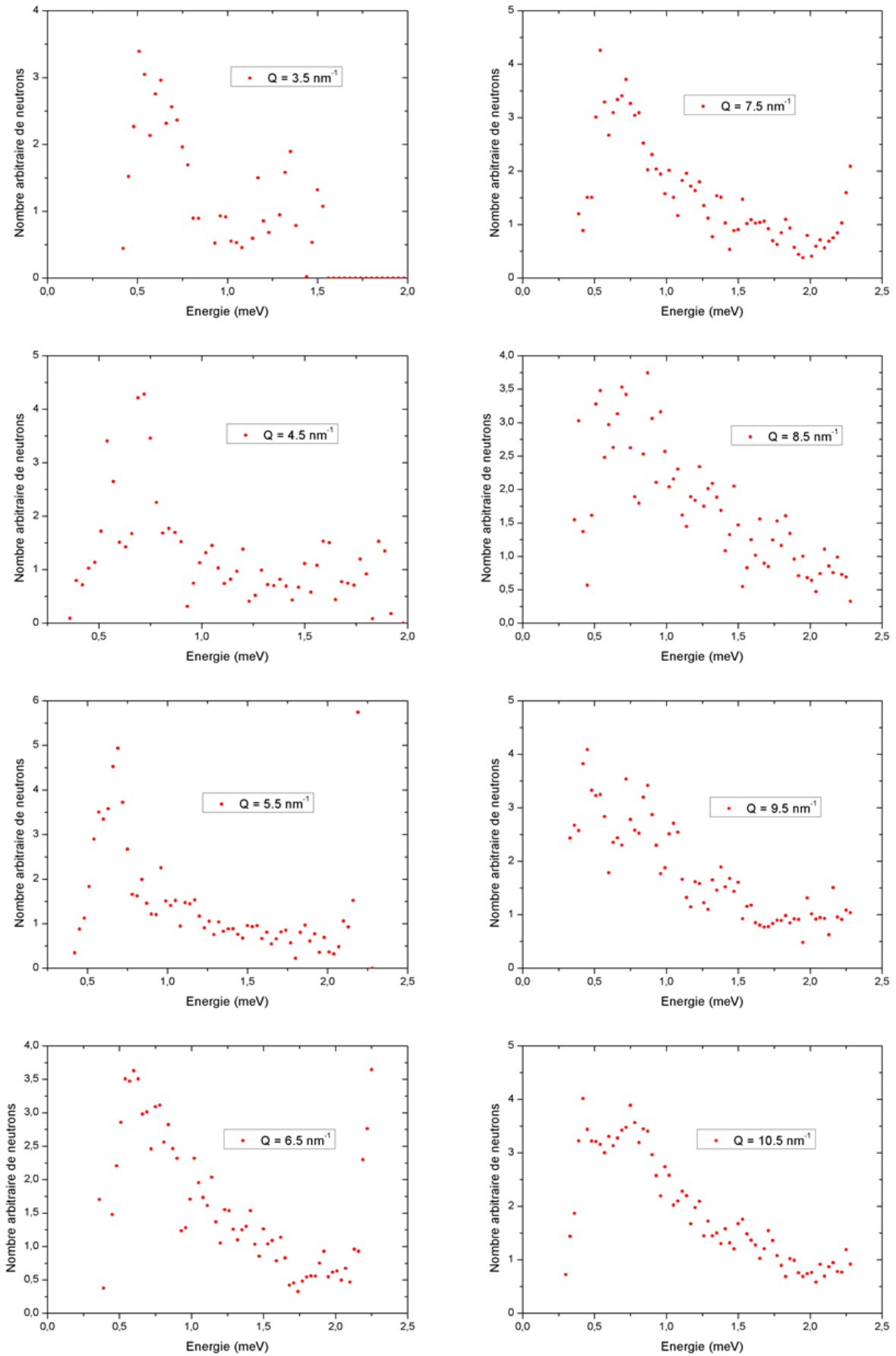


FIGURE 9.7 – Coupes de $S(Q, \omega)$ à vecteur d'onde constant compris entre 3.5 et 10.5 nm^{-1}

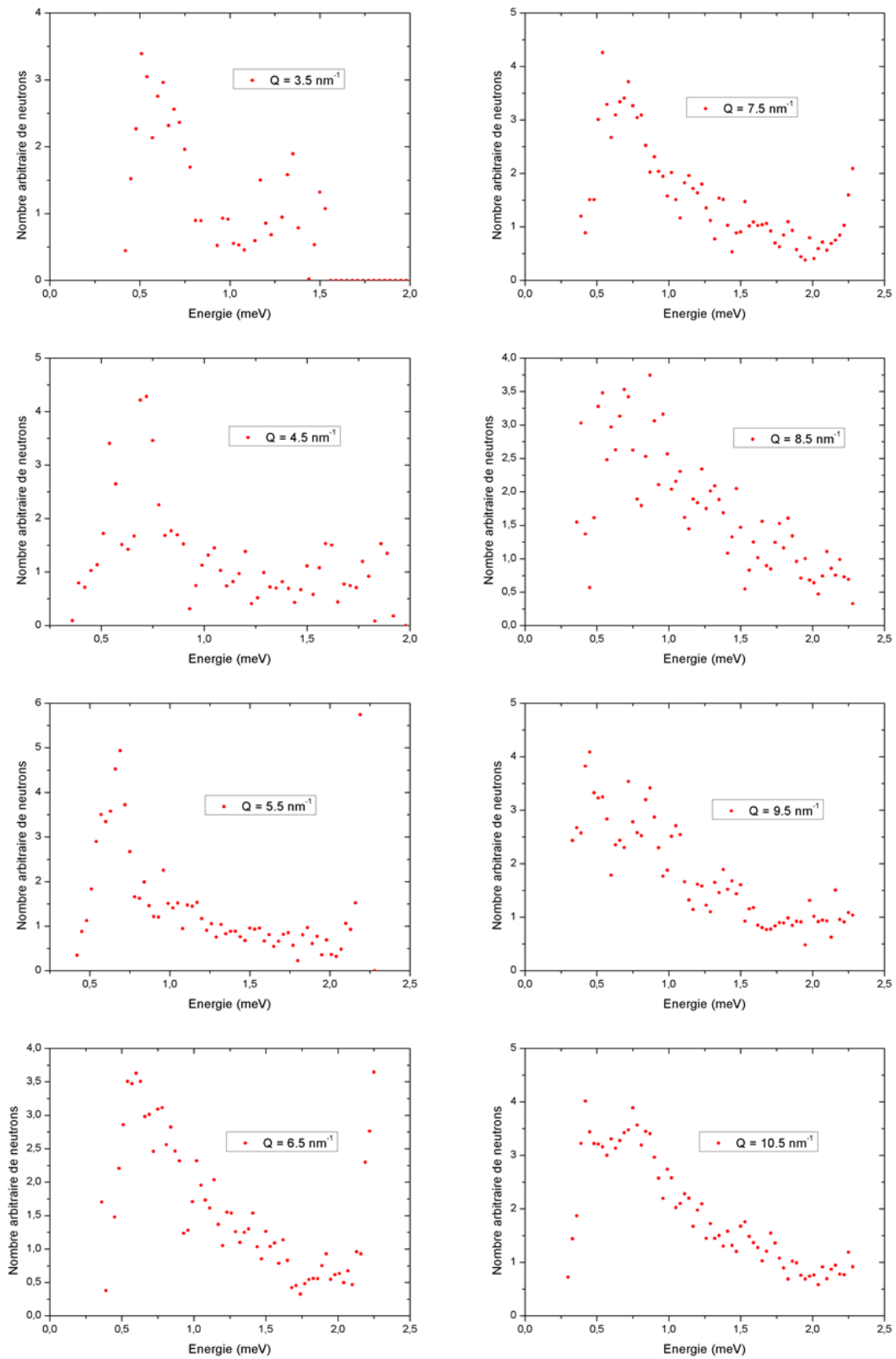


FIGURE 9.8 – Coupes de $S(Q, \omega)$ à vecteur d'onde constant compris entre 11.5 et 18.5 nm^{-1}

Chapitre 10

Au delà de la théorie de Landau des liquides de Fermi

Sommaire

10.1 Introduction	114
10.2 Random phase Approximation	114
10.3 La théorie dynamique à N corps	114
10.3.1 Introduire les corrélations dans l'état fondamental du système	115
10.3.2 Introduire des corrélations dépendantes du temps	115
10.3.3 Théorie de la réponse linéaire	116
10.4 Comparaison entre la théorie et les résultats expérimentaux	116
10.5 Conclusion	118

10.1 Introduction

L' ^3He est un système difficile à étudier aussi bien du point de vue expérimental que théorique. La plupart des théories qui expliquaient jusqu'à nos jours le spectre d'excitation dans l' ^3He étaient basées sur les calculs RPA (Random Phase Approximation). Cette théorie permet d'expliquer les excitations dans l' ^3He à faible vecteur d'onde. Dans ce chapitre nous présenterons brièvement cette théorie et nous discuterons les ingrédients essentiels d'une nouvelle théorie dynamique à N corps développée par nos collaborateurs de l'institut Kepler à Linz, Autriche. Grâce à la DMBT (Dynamical many body theory) nous disposons aujourd'hui d'une théorie qui permet d'expliquer de façon surprenante les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 9. Ce point sera discuté dans la dernière partie de ce chapitre.

10.2 Random phase Approximation

La méthode RPA est décrite par la susceptibilité généralisée :

$$\chi(Q, \omega) = \frac{\chi_0(Q, \omega)}{1 - V(Q, \omega)\chi_0(Q, \omega)} \quad (10.1)$$

où $\chi_0(Q, \omega)$ est la susceptibilité généralisée pour un gaz de fermions, elle est décrite par la fonction de Lindhard et $V(Q, \omega)$ est un pseudo-potentiel effectif.

$$\begin{aligned} \chi_0(Q, \omega) &= \frac{\hbar}{N} \sum_{\vec{k}, \sigma} \frac{n(\vec{k}) - n(\vec{k}')} {E_{|\vec{k}'\rangle} - E_{|\vec{k}\rangle} - \hbar\omega - i\nu} \\ &= \frac{3\hbar}{2E_F} (\chi'_0 + i\chi''_0) \end{aligned} \quad (10.2)$$

$$(10.3)$$

où $n(\vec{k})$ est la fonction de distribution de Fermi-Dirac, $\vec{k}' = \vec{k} + \vec{Q}$, N est le nombre de particules dans le système et ν est un nombre positif. χ''_0 est relié au facteur de structure dynamique $S(\vec{Q}, \omega)$ (voir chapitre 5) qui obéit aux règles de sommes suivantes :

$$S(\vec{Q}) = \int_0^\infty d(\hbar\omega) S(\vec{Q}, \omega) \quad (10.4)$$

$$\frac{\hbar^2 Q^2}{2m} = \int_0^\infty d(\hbar\omega) S(\vec{Q}, \omega) \quad (10.5)$$

$$(10.6)$$

Même si la RPA décrit qualitativement bien les excitations dans l' ^3He , son succès est néanmoins limité car elle ne réussit pas à expliquer quantitativement les résultats expérimentaux. En effet, le mode zéro-son prédit théoriquement est bien plus haut en énergie que ce que l'on observe expérimentalement. Ce désaccord entre la théorie et l'expérience rappelle la théorie de Feynmann développée en 1954 pour expliquer la courbe phonon-maxon-roton pour l' ^4He (voir chapitre 7). Pour remédier à ce problème la théorie DMBT prend en compte les fluctuations de paires particule-trou.

10.3 La théorie dynamique à N corps

Afin d'expliquer nos résultats expérimentaux surtout à grand vecteur d'onde, il fallait trouver une théorie dynamique à N-corps basée sur une nouvelle approche. C'est le défi relevé par nos collaborateurs de l'équipe d'Eckhard Krotscheck. Nous présenterons dans cette partie les ingrédients essentiels de la DMBT.

10.3.1 Introduire les corrélations dans l'état fondamental du système

La DMBT adopte le point de vue suivant : Les mécanismes physiques qui déterminent les excitations à grand vecteur d'onde sont les mêmes dans l'⁴He et l'³He. L'idée de base est de généraliser la théorie de Jackson, Feenberg et Campbell qui explique avec succès les résultats expérimentaux de l'⁴He.

On commence par définir la fonction d'onde de l'état fondamental d'un système de fermions fortement corrélés :

$$|\psi_0\rangle = \frac{F|\phi_0\rangle}{\langle\phi_0|F^+F|\phi_0\rangle^{1/2}} \quad (10.7)$$

où $\phi_0(1, \dots, i, \dots, N)$ est une fonction définie comme le déterminant de Slater de fonctions d'ondes planes, et $F(1, \dots, N)$ est l'opérateur de corrélation choisi dans le but d'introduire les interactions dans le système. Il s'écrit :

$$F(1, \dots, N) = \exp \left[\frac{1}{2} \left(\sum_i \delta u_1(\vec{r}_i) + \sum_{i < j} \delta u_2(\vec{r}_i, \vec{r}_j) + \dots \right) \right] \quad (10.8)$$

$u_n(\vec{r}_i, \dots, \vec{r}_n)$ sont des fonctions de corrélations qui s'annulent lorsque $|\vec{r}_i - \vec{r}_j| \rightarrow \infty$.

L'énergie du système dans l'état fondamental est définie par $H_{0,0} = \langle\psi_0|H|\psi_0\rangle$. Les fonctions $u_n(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)$ sont alors obtenues en minimisant l'énergie $H_{0,0}$.

$$\frac{\delta H_{0,0}}{\delta u_n(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)} = 0 \quad (10.9)$$

10.3.2 Introduire des corrélations dépendantes du temps

L'étape suivante est d'introduire les corrélations dépendantes du temps. Les états excités du système sont décrites par des fonctions d'ondes dépendantes du temps :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-\frac{iH_{0,0}t}{\hbar}} |\psi_0\rangle, \quad (10.10)$$

$$|\psi_0(t)\rangle = \frac{1}{I^{1/2}} F e^{\frac{1}{2}\delta U(t)} |\phi_0\rangle,$$

$$I = \langle\phi_0|e^{\frac{1}{2}\delta U^+} F F^+ e^{\frac{1}{2}\delta U} |\phi_0\rangle \quad (10.11)$$

$\delta U(t)$ est l'opérateur excitation. Pour un système bosonique, il s'exprime comme un développement faisant intervenir les fluctuations dépendantes du temps entre les particules du système.

$$\delta U(t) = \sum_i \delta u(\vec{r}_i; t) + \sum_{i < j} \delta u(\vec{r}_i, \vec{r}_j; t) + \dots \quad (10.12)$$

Pour un système fermionique $\delta U(t)$ s'obtient en introduisant les fluctuations particule-trou :

$$\delta U(t) = \sum_i \delta u_{ph}(\vec{r}_i; t) + \frac{1}{2} \sum_{i < j} \delta u_{pp'hh'}(\vec{r}_i, \vec{r}_j; t) + \dots \quad (10.13)$$

Dans le calcul fait par l'équipe de Krotscheck, le développement de l'expression 10.13 s'arrête au deuxième ordre : on introduit les fluctuations de paires particule-trou. Il s'en suit que nous pouvons écrire la fonction d'onde de l'expression 10.11 comme la somme de deux fonctions d'onde : une faisant intervenir les fluctuation particule-trou et une deuxième faisant intervenir les fluctuations de paires particule-trou.

$$\psi(t) = \psi_{ph} + \frac{1}{2}\psi_{pp'hh'} \quad (10.14)$$

δu_{ph} et $\delta u_{pp'hh'}$ se déduisent du principe de moindre action :

$$\delta S = \delta \int dt \langle \psi(t) | H + \delta U(t) - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi(t) \rangle = 0 \quad (10.15)$$

10.3.3 Théorie de la réponse linéaire

La quantité qui nous intéresse est la fluctuation de densité $\delta\rho(\vec{r}, t)$ dû à un champ perturbatif extérieur et dont la double transformée de Fourier est reliée à la susceptibilité généralisée :

$$\delta\rho(\vec{Q}, \omega) = \rho\chi_{\vec{Q},\omega} h(\vec{Q}, \omega) \quad (10.16)$$

où ρ est le nombre de particules par unité de volume.

La fluctuation de densité dans le cadre de la DMBT s'exprime :

$$\begin{aligned} \delta\rho_{\vec{r},t} &= \sum_{ph} \langle \psi_0 | \rho(\vec{r}) - \rho | \psi_{ph} \rangle \delta_{ph}(t) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{pp'hh'} \langle \psi_0 | \rho(\vec{r}) - \rho | \psi_{pp'hh'} \rangle \delta u_{pp'hh'}(t) \\ &\equiv \sum_{ph} \rho_{0,ph}(\vec{r}) \delta_{ph}(t) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{pp'hh'} \rho_{0,pp'hh'}(\vec{r}) \cdot \delta u_{pp'hh'}(t) \end{aligned} \quad (10.17)$$

$$(10.18)$$

Le calcul détaillé permettant d'obtenir la fonction réponse densité-densité $\chi(\vec{Q}, \omega)$ est présenté dans l'article [Bohm 2010]. L'essence de la théorie se résume aux points suivants :

1. En négligeant les fluctuations de paires particule-trou et en considérant que $F = 1$, la théorie se ramène à la RPA avec un potentiel statique.
2. En négligeant les fluctuations de paires particule-trou mais avec $F \neq 1$, la DMBT se ramène à la théorie RPA en y incluant un potentiel qui tient compte des corrélations particule-trou (premier ordre de l'expression 10.13).
3. pour un système bosonique négliger les fluctuations nous ramène au spectre de Feynmann :

$$\epsilon(Q) = \frac{\hbar^2 Q^2}{2mS(\vec{Q})} \quad (10.19)$$

10.4 Comparaison entre la théorie et les résultats expérimentaux

Le facteur de structure expérimental $S(\vec{Q}, \omega)$ de l' ^3He bidimensionnel est comparé aux résultats théoriques obtenus grâce à la DMBT dans la figure 10.1. Nous soulignons la surprenante similarité entre la théorie et l'expérience. Nous mentionnons dans la figure 10.2 la différence entre les différentes approches théoriques RPA (nous considérons un potentiel qui prend en compte seulement les corrélations particule-trou) et DMBT, en particulier le poids du spectre dans la bande particule-trou calculé avec la RPA qui se trouve inversé par rapport au résultat obtenu expérimentalement. Aussi bien, les anciennes expériences

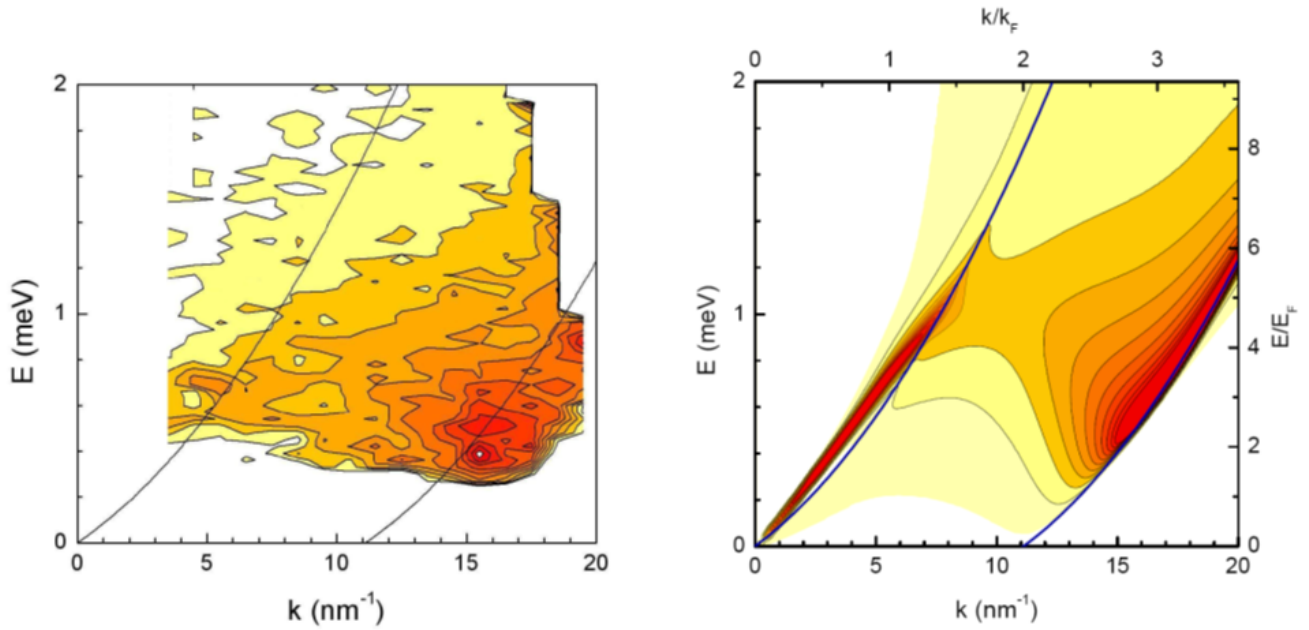


FIGURE 10.1 – A gauche : le facteur de structure dynamique $S(k, E)$, mesuré expérimentalement par diffusion inélastique des neutrons, en fonction du vecteur d'onde k et de l'énergie E . Ces résultats expérimentaux correspondent à une couche de densité atomique 4.7 ± 0.2 atomes/ nm^{-2} . Les lignes en bleu indiquent les limites de la bande particule-trou. A droite : le facteur de structure dynamique calculé théoriquement avec la théorie dynamique à N corps pour une couche de densité atomique de 4.9 atomes/ nm^{-2} . A cette densité l'énergie de Fermi est $E_F = 0.213\text{meV}$ et le vecteur d'onde de Fermi est $k_F = 5.55\text{nm}^{-1}$.

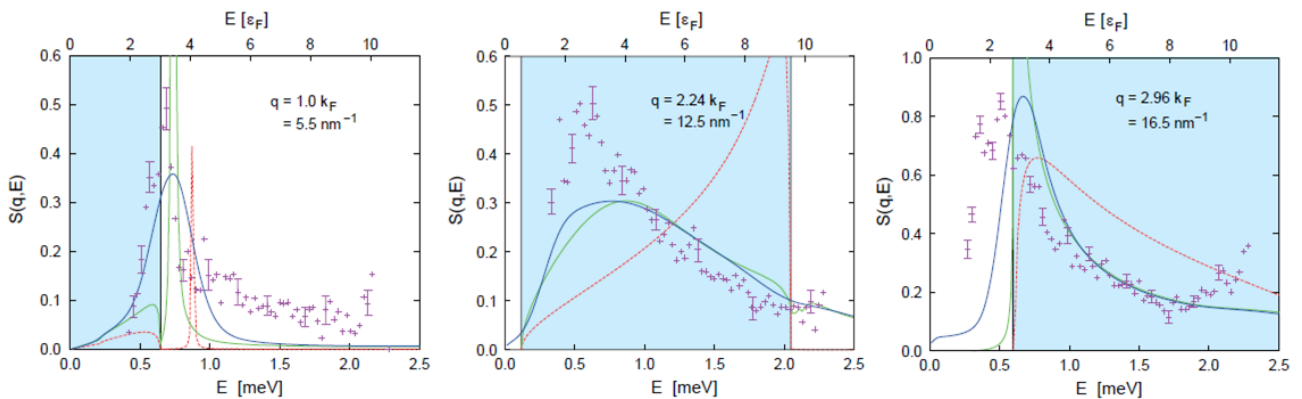


FIGURE 10.2 – Spectres à vecteur d'onde constant (5.5 , 12.5 et 16.5 nm^{-1}). Les croix correspondent aux mesures expérimentales. La ligne rouge indique les résultats théoriques obtenus en appliquant la méthode RPA. Les résultats de la théorie dynamique à N -corps sont représentés par la ligne verte. Les lignes bleues désignent les résultats théoriques convolués avec la résolution de l'instrument. La zone en bleu clair schématise la bande particule-trou.

de l' ^3He massif que les nouvelles détaillées dans ce manuscrit ne pouvaient pas être interprétés dans le cadre de la théorie RPA.

L'accord avec la DMBT est remarquable. D'une part cela montre qu'en prenant en considération les corrélations dynamiques, il est possible de décrire avec une bonne précision le comportement des systèmes fermioniques fortement corrélés. Et d'autre part, La DMBT constitue un excellent outil d'analyse

des résultats expérimentaux : Elles montrent que les interactions sont la clef qui permet d'expliquer les modes d'excitations collectives observées dans le système ^3He bidimensionnel. La figure 10.2 montre que la DMBT décrit mieux que le calcul RPA, les résultats expérimentaux, en particulier dans la bande particule-trou. Autre résultat surprenant, en introduisant les corrélations de paires particules-trou, la DMBT a permis d'expliquer l'intensité observée en dehors de la bande particule-trou (région de contraste jaune) et qui correspond à la création de multi-paires particule-trou.

10.5 Conclusion

La DMBT apporte une excellente description du système ^3He liquide de Fermi bidimensionnel au moins au niveau qualitatif. Des différences existent néanmoins entre la théorie et l'expérience : en particulier le minimum de roton qui a été observé expérimentalement en dessous de la bande particule-trou. La DMBT a réussi à abaisser l'énergie de ce mode jusqu'à ce qu'il soit situé au niveau du bord inférieur de la bande particule-trou, tandis que la RPA le situe juste au milieu de la bande particule-trou. Cet effet est similaire à ce qu'on observe dans le cas des bosons : l'énergie du roton a été minimisée au fur et à mesure que les théories sont devenues plus précises, en commençant par la théorie de Feynmann où le roton était situé très haut par rapport à l'expérience et jusqu'à la théorie de Jackson, Feenberg et Campbell qui décrit parfaitement le spectre d'excitation dans l' ^4He superfluide. La DMBT prend en compte les fluctuations de paires particule-trou, nous pensons que l'introduction de fluctuations d'ordre supérieur devrait éventuellement réduire l'énergie du roton.

Conclusion

David Pines était sans doute l'un des rares à prédire que le mode collectif d'excitations dans l' ^3He et la courbe phonon-roton de l' ^4He avaient la même origine physique. En effet, dans son article dans *Physics Today* en 1981, il écrit : "*L'expérience de Woods (expérience qui a permis de mesurer la relation de dispersion dans l' ^4He par diffusion inélastique de neutrons) m'a laissé conclure que le phonon-maxon-roton dans l' ^4He et le mode zéro-son dans l' ^3He ont la même origine physique à cause de l'interaction effective forte (et tout à fait semblable) entre les atomes...*". Le travail présenté dans ce manuscrit lui donne aujourd'hui raison. En effet, en utilisant la diffusion inélastique des neutrons nous avons pu déterminer expérimentalement le facteur de structure dynamique de l' ^3He liquide de Fermi bidimensionnel adsorbé sur le graphite. Malgré les difficultés techniques qu'implique une telle expérience, nous avons fait les constatations suivantes :

1. A faible vecteurs d'onde nous avons vu le mode zéro-son. Ce dernier est clairement situé à plus basse énergie comparé à ce qu'on observe dans l' ^3He massif.
2. Nous avons pu observer l'amortissement de ce mode quand il traverse la bande particule-trou.
3. Le résultat le plus surprenant est de voir un mode à grand vecteur d'onde survivre de l'autre côté de cette bande particule-trou. Cet effet ne doit pas être spécifique à l' ^3He mais devrait probablement se confirmer dans d'autres systèmes de fermions. Ce mode semblable au roton dans l' ^4He est également présent dans l' ^3He massif (figure 10.3), mais il est dans ce cas fortement amorti car il est situé dans la bande particule-trou. La modification du nombre de premiers voisins dans un film d' ^3He bidimensionnel par rapport à un système 3D, a pour effet de déplacer la courbe de dispersion faisant ainsi apparaître le mode de roton de l'autre côté de la bande particule trou.
4. Enfin, il est utile de mentionner que l'exploration des résultats expérimentaux à basse énergie fut très difficile, à cause de l'intensité importante du pic élastique du graphique dans cette région. La soustraction du signal du au pic élastique du graphique ne pouvant pas se faire correctement dans cette région de $S(Q, \omega)$, à cause des effets de taille finie qui déforment ce dernier en fonction de l'adsorption des couches d'hélium, nous n'avons pas pu observer le mode de paramagnons.

Nos résultats expérimentaux sont aujourd'hui expliqués par une théorie dynamique à N-corps développée par nos collaborateurs de l'Institut Kepler à Linz. Cette théorie ainsi que les résultats expérimentaux confirment l'idée de Pines que le mode collectif dans l' ^3He et la courbe phonon-maxon-roton dans l' ^4He sont dus aux corrélations fortes dans les deux fluides et donc sont largement indépendantes des statistiques quantiques. Le mécanisme d'amortissement du mode, par contre, est bien évidemment spécifique à l' ^3He .

L'observation de ce mode de roton dans l' ^3He à grand vecteur d'onde nous amène à proposer un mécanisme de couplage pour la supraconductivité non conventionnelle. En effet, dans un article paru dans *Nature* en 1987 [Ruvalds 1987], Ruvalds propose un mécanisme de couplage électron-plasmon qui

pourrait expliquer la température critique des supraconducteurs. Grâce à nos résultats novateurs, la généralisation d'un tel mécanisme pour des plasmons de grands vecteurs mérite d'être étudiée.

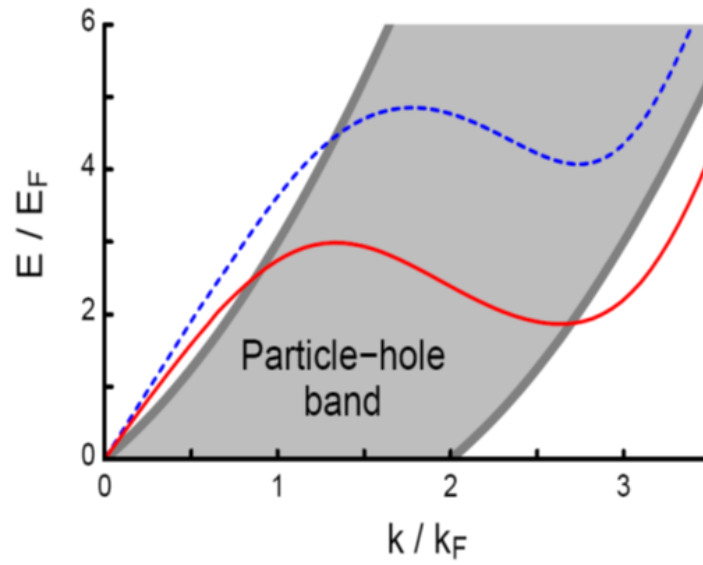


FIGURE 10.3 – La courbe en bleu représente le mode d'excitations collectives dans l' ^3He massif. La courbe en rouge correspond à celui observé dans l' ^3He 2D.

Conclusion Générale

Durant de cette thèse nous avons été amenés à faire de l'instrumentation ainsi que de la physique fondamentale. Le travail d'instrumentation présenté dans la première partie de ce manuscrit, consistait à développer un réfrigérateur à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé fiable et robuste, notamment en vue d'une commercialisation. Nous avons optimisé ce type de machine afin de réduire son temps de mise à froid. Nous avons effectué des tests exhaustifs sur les deux machines, et réalisé une étude dans le but d'installer un étage à désaimantation nucléaire pour atteindre des températures de $500 \mu\text{K}$, un record pour une machine fonctionnant sans fluide cryogénique.

Nous avons mené un travail expérimental dans le but de rechercher les excitations dans ^3He 2D. Les mesures de diffusion inélastique de neutrons effectuées sur l'instrument IN6 à l'ILL nous ont permis d'observer pour la première fois un mode collectif d'excitations à la limite de la bande particule-trou. Les résultats expérimentaux que nous avons présentés dans ce manuscrit concernent la couche bidimensionnelle de densité atomique 4.7 atomes/nm^2 . D'autres couches de densité différente ont été explorées, elles nous ont permis de confirmer l'existence de ce mode de roton dans le spectre d'excitation. Les résultats concernant ces couches n'ont pas été présentés dans ce manuscrit car l'obtention du facteur de structure $S(\vec{Q}, \omega)$ pose toujours quelques difficultés. En effet, pour des densités inférieures à 4.7 atomes/nm^2 nous avons moins de statistiques ce qui rend difficile l'analyse des données, tandis que pour des densités supérieures à 4.7 atomes/nm^2 l'absorption des neutrons par ^3He est importante.

Si je devais écrire cette conclusion un an plus tôt je pense que j'aurai fini ce manuscrit par cette citation d'Albert Einstein : *"La théorie, c'est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c'est quand tout fonctionne et que personne ne sait pourquoi. Ici, nous avons réuni théorie et pratique : Rien ne fonctionne... et personne ne sait pourquoi!"*. Mais heureusement avec un peu de chance et beaucoup de persévérance ce projet a abouti. Nous avons pu prouver expérimentalement l'existence d'un mode de roton dans ^3He bidimensionnel semblable à celui observé dans ^4He . Nous disposons de plus, grâce au travail de nos collaborateurs de l'Université Kepler à Linz, d'une théorie dynamique à N-corps en accord avec nos résultats expérimentaux, et qui va au delà de la théorie de Landau des liquides de Fermi. D'autres mesures sont prévues dans l'avenir pour vérifier le domaine de validité de cette théorie.

Dans la mesure où ^3He est un système modèle pour étudier les fermions corrélés en matière condensée, nous pensons que nos résultats trouveront des applications dans d'autres domaines de la physique et qu'ils permettront d'apporter des réponses à des phénomènes encore inexpliqués comme la supraconductivité non conventionnelle des systèmes bidimensionnels.

Annexe A

Diagramme d'Enthalpie de l'⁴He

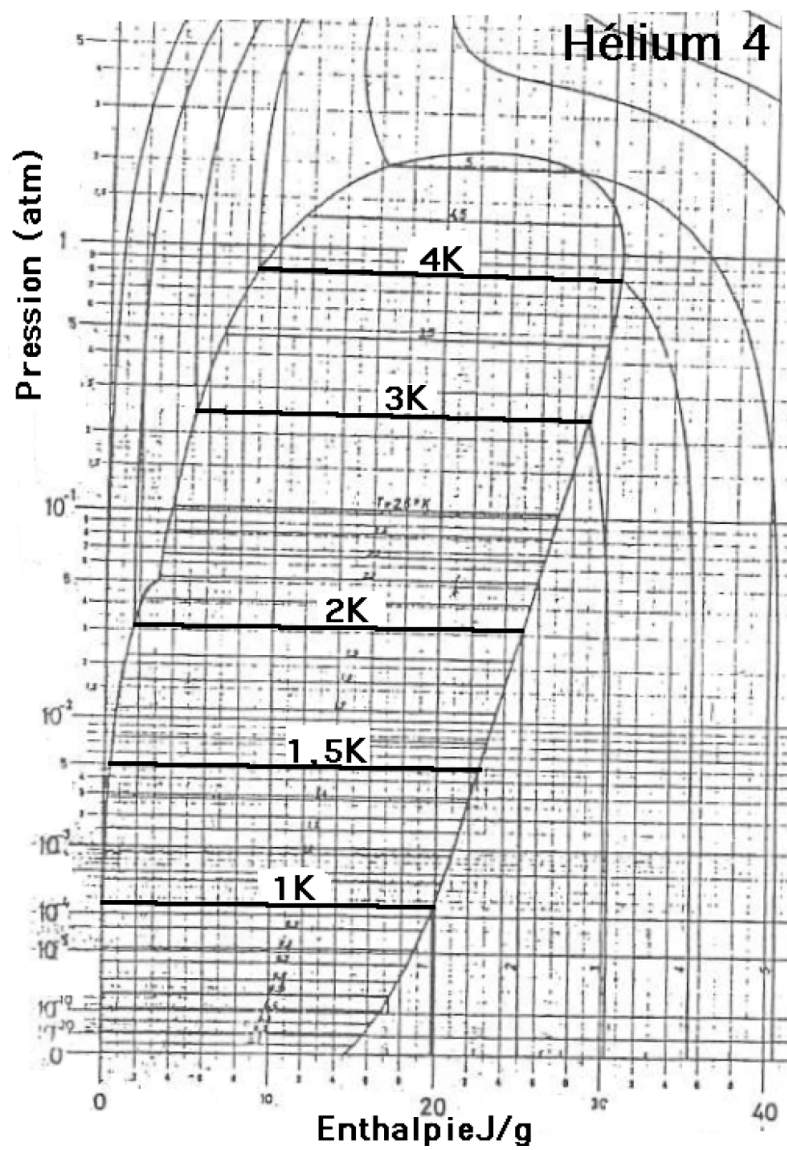


FIGURE A.1 – Diagramme d'enthalpie de l'⁴He P-H

Annexe B

Diagramme d'Enthalpie de l'³He

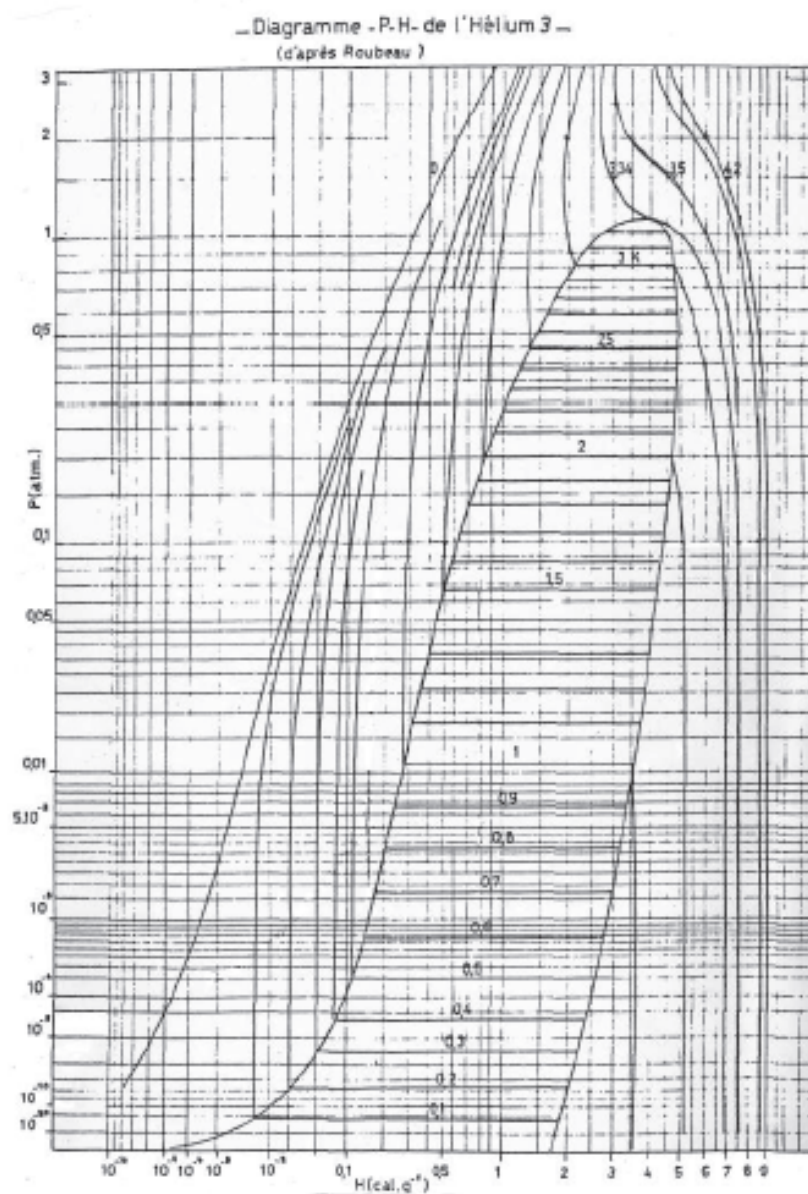


FIGURE B.1 – Diagramme d'enthalpie de l'³He P-H, d'après Roubeau

Annexe C

Diagramme d'Enthalpie de l' ^3He d'après Huang et al.

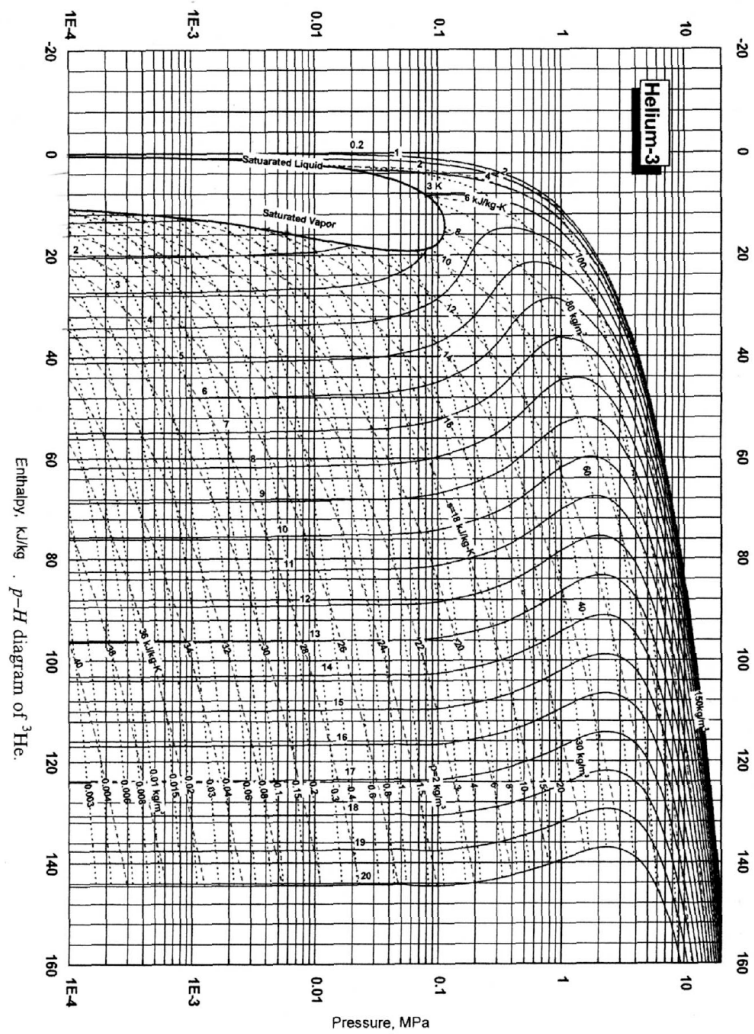


FIGURE C.1 – Diagramme d'enthalpie de l' ^3He P-H, d'après Huang et al.

Annexe D

Schéma du tube à gaz pulsé PT405 et de son compresseur

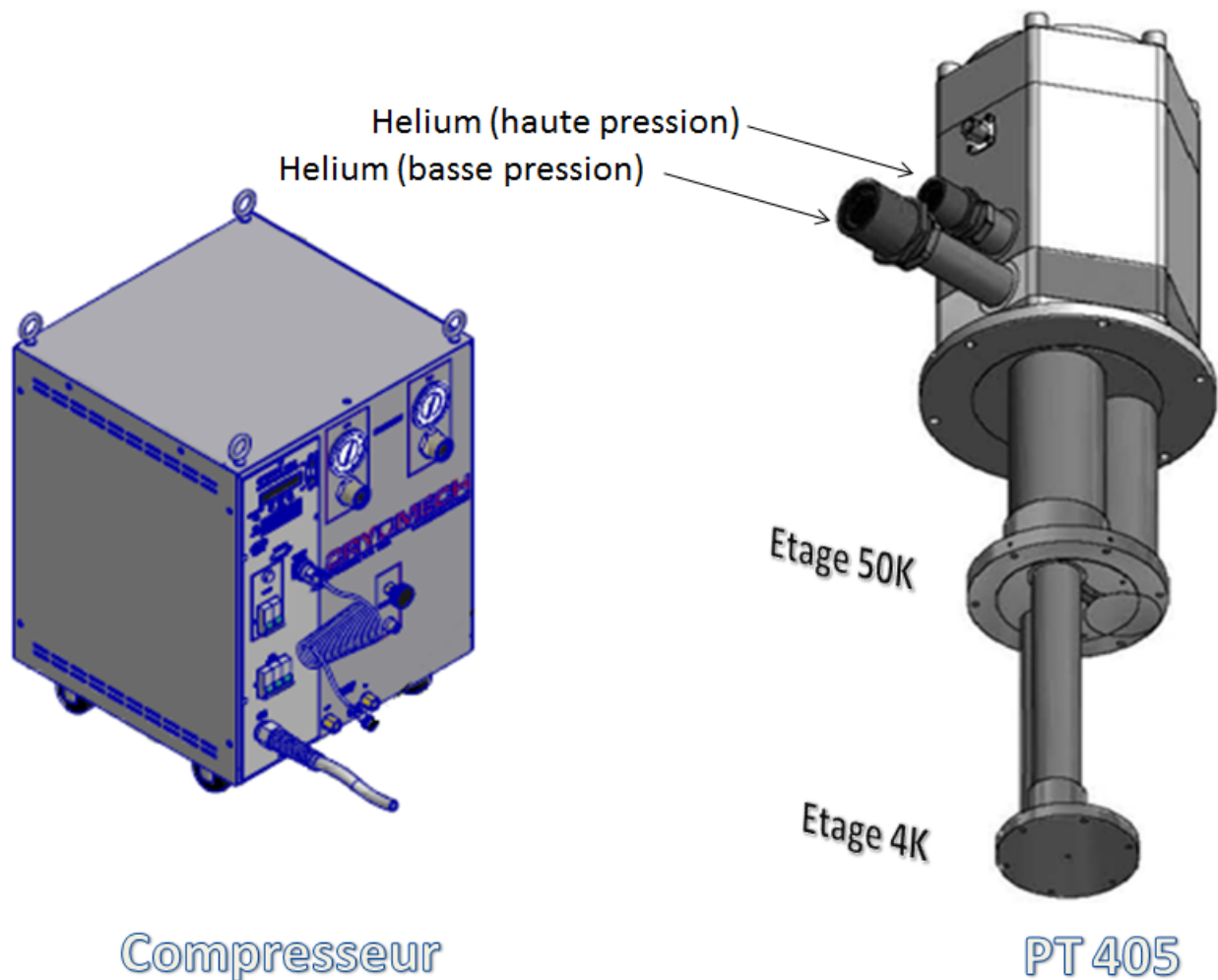


FIGURE D.1 – Á : droite le tube à gaz pulsé avec ses différents étages, à gauche : Le compresseur qui permet de comprimer l' ^4He , les deux systèmes sont reliés par des tubes en inox étanches et pouvant supporter de grandes pressions.

Annexe E

Courbe de puissance-tube à gaz pulsé

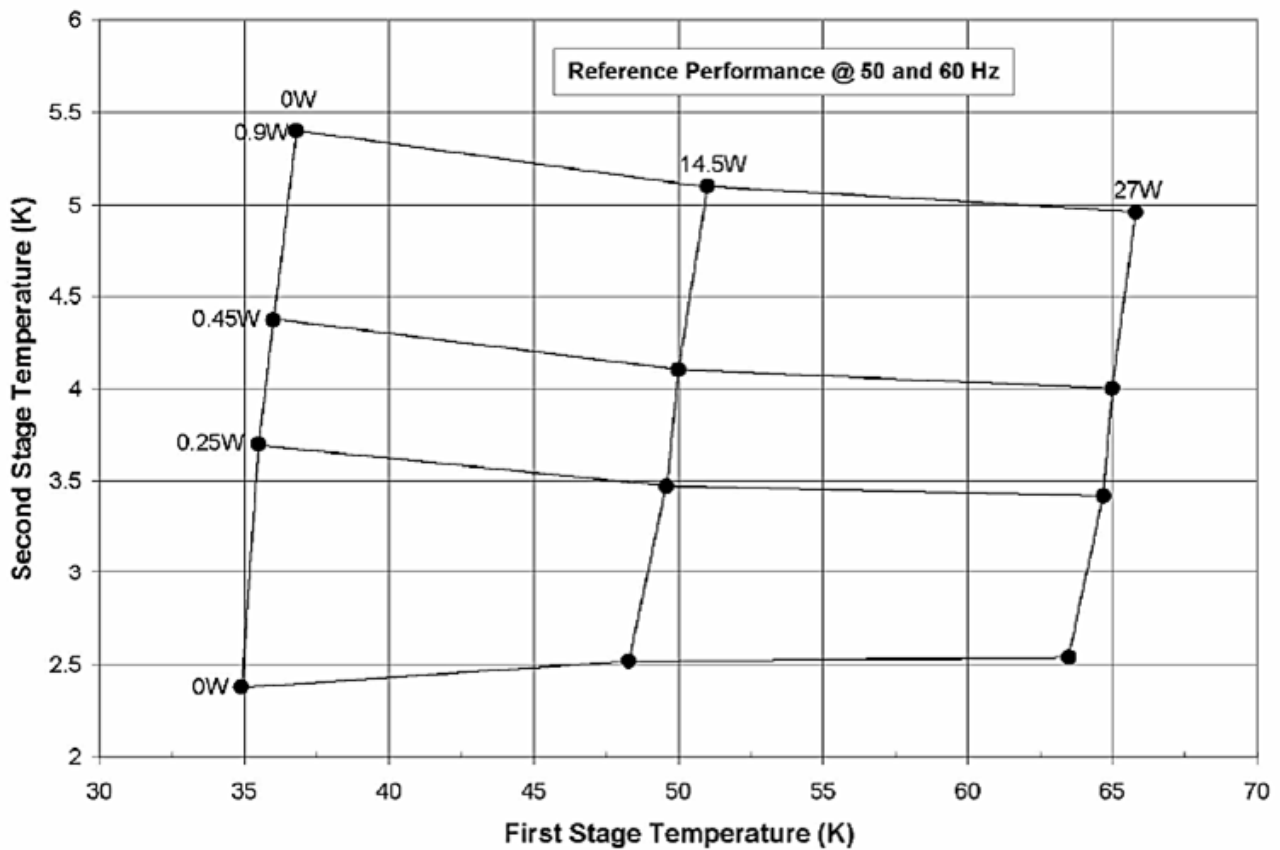


FIGURE E.1 – Courbe de puissance du tbe à gaz pulsé fournie par Cryomech

Annexe F

Conductibilité thermique des matériaux

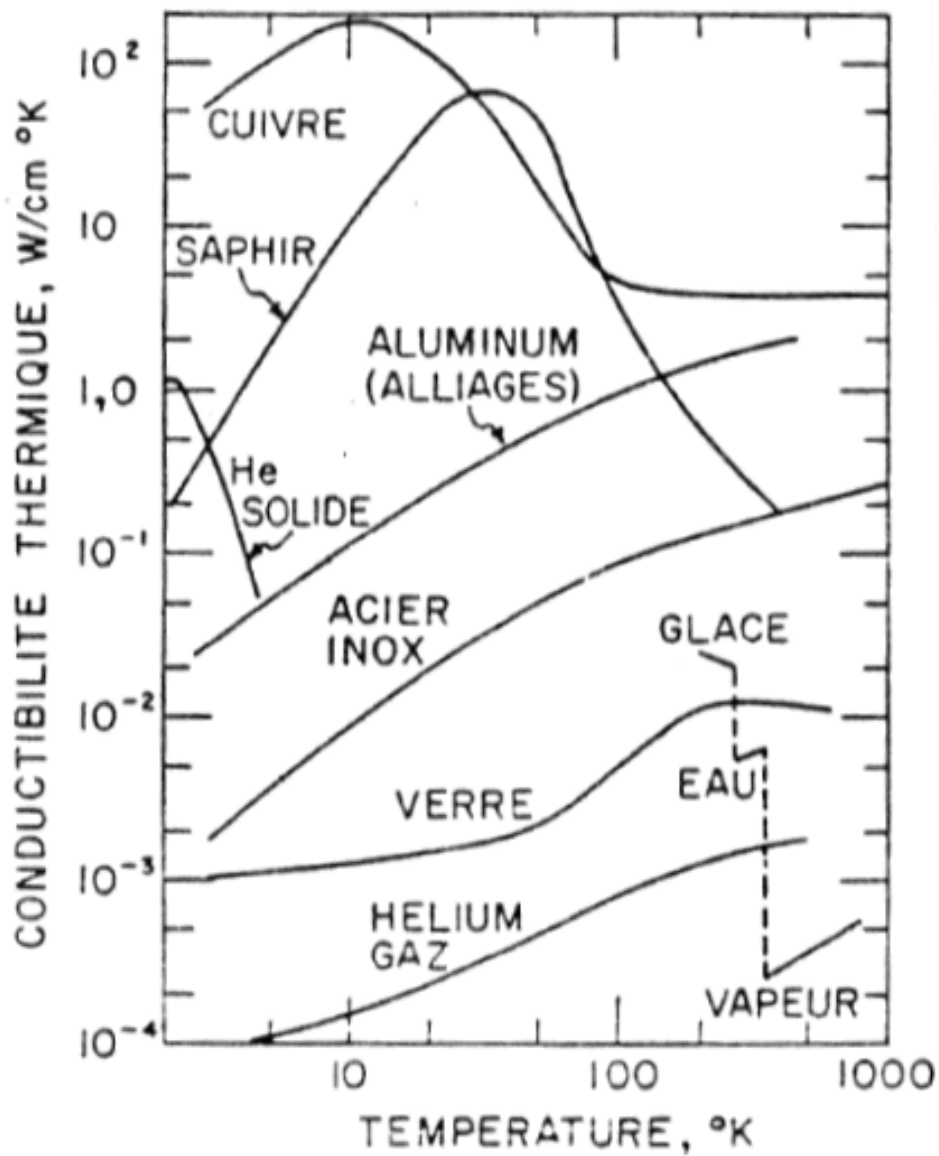


FIGURE F.1 – Conductibilité thermique des matériaux à basses températures ([?])

Annexe G

Résistance Thermique de contact

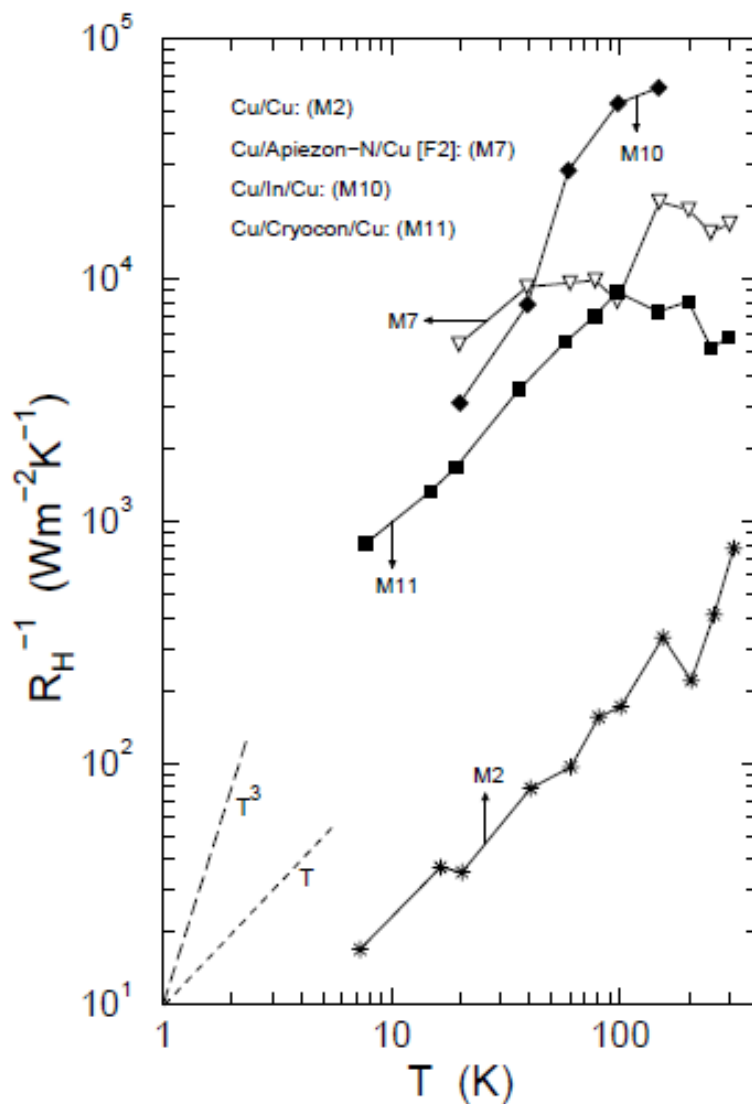


FIGURE G.1 – Résistance thermique de contact en fonction de la température

Annexe H

Articles

- H.1 Observation of a roton collective mode in a two-dimensional Fermi liquid, Nature letter**
- H.2 Two-dimensional Fermi liquids sustain surprising roton-like plasmons beyond the particle-hole band, Journal of physics, conference series.**
- H.3 Static structure factor of two-dimensional liquid ^3He adsorbed on graphite, Journal of low temperature physics (submitted and accepted)**

LETTER

doi:10.1038/nature10919

Observation of a roton collective mode in a two-dimensional Fermi liquid

Henri Godfrin¹, Matthias Meschke^{1,2}, Hans-Jochen Lauter^{3,4}, Ahmad Sultan¹, Helga M. Böhm⁵, Eckhard Krotschek^{5,6} & Martin Panholzer⁵

Understanding the dynamics of correlated many-body quantum systems is a challenge for modern physics. Owing to the simplicity of their Hamiltonians, ⁴He (bosons) and ³He (fermions) have served as model systems for strongly interacting quantum fluids, with substantial efforts devoted to their understanding. An important milestone was the direct observation of the collective phonon–roton mode in liquid ⁴He by neutron scattering, verifying Landau's prediction¹ and his fruitful concept of elementary excitations. In a Fermi system, collective density fluctuations (known as 'zero-sound' in ³He, and 'plasmons' in charged systems) and incoherent particle–hole excitations are observed. At small wavevectors and energies, both types of excitation are described by Landau's theory of Fermi liquids^{2,3}. At higher wavevectors, the collective mode enters the particle–hole band, where it is strongly damped. The dynamics of Fermi liquids at high wavevectors was thus believed to be essentially incoherent. Here we report inelastic neutron scattering measurements of a monolayer of liquid ³He, observing a roton-like excitation. We find that the collective density mode reappears as a well defined excitation at momentum transfers larger than twice the Fermi momentum. We thus observe unexpected collective behaviour of a Fermi many-body system in the regime beyond the scope of Landau's theory. A satisfactory interpretation of the measured spectra is obtained using a dynamic many-body theory⁴.

Quantum many-body systems are ubiquitous in nature; the identification of their ground state and the description of their elementary excitations is a cornerstone of modern physics. Nuclei, metals, semiconductors and neutron-star matter are all examples of quantum

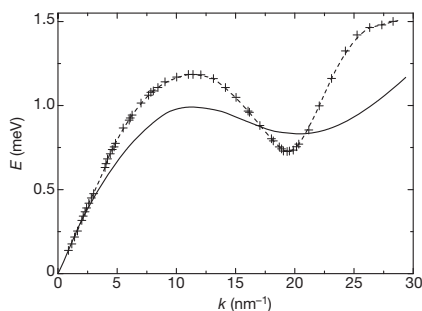


Figure 1 | Elementary excitations of superfluid ⁴He. The solid line is the dispersion relation predicted by Landau¹; crosses correspond to the excitation energy as a function of wavevector, determined by neutron scattering⁸. At low wavevectors, the dispersion relation is linear, and the excitations are quantised sound waves (phonons). At higher wavevectors, the spectrum evolves continuously, displaying a maximum and then a characteristic minimum. The corresponding excitations are called, respectively, maxons and rotons; the latter play an essential role in the thermodynamic properties of superfluid ⁴He.

fluids. Their properties depend on the quantum statistics obeyed by their constituent particles (electrons, nucleons, atoms), leading to their classification as Bose or Fermi systems. Weakly interacting Bose and Fermi systems are well understood, but extending this understanding to their strongly interacting analogues has not been straightforward, with much work having been devoted to correlated quantum systems^{1–6}.

Our work centres on the interplay between statistics and interactions in quantum many-body systems—specifically, in liquid ⁴He and ³He, the canonical Bose and Fermi quantum fluids. Whereas liquid ⁴He becomes superfluid at 2.17 K, liquid ³He remains a normal Fermi liquid down to millikelvin temperatures, where Cooper pairs form and condense into several superfluid phases. Clearly, Bose and Fermi liquids behave differently, and are thus expected to sustain very different excitations.

Landau¹ described the elementary excitations of a Bose fluid. Their dispersion relation (Fig. 1) shows a sharp, linear 'phonon' mode, which evolves continuously as a function of the wavevector, displaying a pronounced 'roton' minimum^{1,6–9}. The excitations remain well defined even at atomic wavevectors and at relatively high temperatures. Modern many-body theories have proven successful in describing the dynamics of Bose fluids at different densities and dimensionalities: bulk, films or droplets^{10–12}.

The low-lying elementary excitations of liquid ³He (Fig. 2) are incoherent particle–hole excitations, as well as collective density and

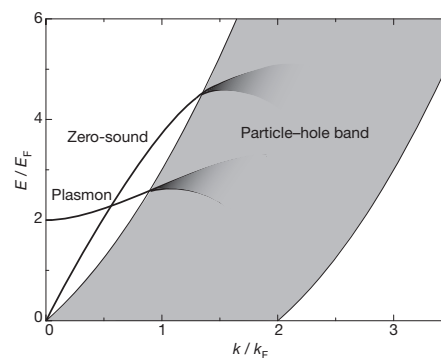


Figure 2 | Schematic picture of the elementary excitations of a Fermi liquid. The broad shaded area corresponds to the particle–hole band, that is, to the range of excitation energy as a function of wavevector accessible by promoting a particle occupying a state inside the Fermi surface, to an empty state outside it. In addition, an interacting Fermi system displays collective density modes, called 'plasmons' in charged systems, and 'zero-sound' in neutral systems. With increasing wavevector, the collective modes enter the particle–hole band, where they decay (Landau damping) into incoherent particle–hole excitations.

¹Institut Néel, CNRS et Université Joseph Fourier, BP 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France. ²Low Temperature Laboratory, Aalto University, PO Box 15100, 00076 Aalto, Finland. ³Institut Laue-Langevin, BP 156, 38042 Grenoble Cedex 9, France. ⁴Oak Ridge National Laboratory, PO Box 2008, Oak Ridge, Tennessee 37831-6475, USA. ⁵Institute for Theoretical Physics, Johannes Kepler University, A-4040 Linz, Austria. ⁶Department of Physics, University at Buffalo SUNY, Buffalo, New York, 14260, USA.

spin-density modes, described by Landau's Fermi liquid theory^{2,3,8}. For intermediate energies, a qualitative description is provided by the random phase approximation (RPA)^{3,5,8}. In the RPA, particle-hole states are confined (Fig. 2) within the particle-hole band (PHB). The boundaries of the PHB for a non-interacting system (the Fermi 'gas') are $E_{\text{max,min}}/E_{\text{F}} = (k/k_{\text{F}})^2 \pm 2(k/k_{\text{F}})$, where $E_{\text{F}} = \hbar^2 k_{\text{F}}^2/2m$ is the Fermi energy, k the excitation wavevector, k_{F} the Fermi wavevector, and m the (bare) mass of a particle.

Landau's Fermi liquid theory postulates that an interacting system behaves like a Fermi gas with renormalized parameters. In particular, an effective mass m^* is assigned to the fermionic 'quasi-particles'. The theory describes well the low-temperature properties of bulk liquid ³He, where m^* , depending on the liquid pressure, varies from 3 to 6 times m . This picture does not apply at high wavevectors; it was theoretically shown¹³⁻¹⁵, and experimentally verified¹⁶ in bulk liquid ³He, that the effective mass enhancement is confined to the vicinity of the Fermi surface. Therefore, the PHB is expected to be essentially that calculated for the non-interacting system, except for very low energies, where it is strongly depressed.

The density collective mode, called zero-sound, is described by Landau as an oscillation of the whole Fermi sphere^{2,3,8}. Unlike ordinary sound, its frequency is higher than the collision rate. First detected by ultrasonic techniques, it has been investigated in detail by neutron scattering¹⁶⁻¹⁸. Zero-sound (Fig. 2) has a linear dispersion relation above the PHB, then a negative deviation at intermediate wavevectors, and finally enters the PHB, where this mode disappears by decay into particle-hole excitations (Landau damping).

The corresponding excitation in electron fluids is the plasmon. Apart from an energy gap at zero wavevector due to charge, the physics is the same³. In particular, the plasmon dispersion curve is observed to enter the PHB, and to disappear, as shown in Fig. 2.

In an elegant discussion of the dynamics of Fermi many-body systems, Pines⁶ states that the phonon-roton mode of liquid ⁴He and the zero-sound mode of liquid ³He have a common origin in strong interactions, rather than quantum statistics. Nozières⁹ argued that the physical origin of the roton minimum may be the incipient localization of the particles due to interactions.

In the present experiment, we determine the dynamic structure factor of a monolayer of liquid ³He, essentially at zero temperature. Two-dimensional Fermi liquids have been extensively investigated by thermodynamic techniques¹⁹⁻²⁴; we present here a direct investigation of their elementary excitations by neutron scattering. We observe a collective mode, which remains visible throughout the whole PHB, and re-emerges as a well defined mode at large wavevectors, as shown in Fig. 3.

We make the helium film at low temperature by the controlled adsorption of gas onto a substrate, a high-quality ZYX exfoliated graphite (surface area 60 m²) with large coherence length (190 nm) and low mosaic spread (10°), essential for obtaining neutron spectra with good resolution^{24,25}. The substrate was first pre-plated with a complete monolayer of ⁴He. This high-density solid provides a smoother adsorption potential than bare exfoliated graphite. A monolayer of liquid ³He is then deposited onto the ⁴He-plated substrate. The amount of ⁴He introduced into the cell was $V_4 = 28.59 \text{ cm}^3 \text{ STP}$ (volume of gas at standard temperature and pressure). This is sufficient to complete the first monolayer, considering the effect of the pressure of the partial second layer. The amount of ³He was $V_3 = 11.0 \text{ cm}^3 \text{ STP}$. Using a coverage scale developed earlier²⁴ (see Supplementary Information), we obtain a lower limit $A_c = 59.7 \text{ m}^2$ and an upper limit $A_1 = 65.3 \text{ m}^2$ for the area available for the ³He layer adsorption; the liquid ³He density is determined to be $\rho_3 = 4.7 \pm 0.2 \text{ atoms nm}^{-2}$. At this areal density, the ³He effective mass at the Fermi surface¹⁹⁻²³ is $m^*/m \approx 4$, similar to that of bulk liquid ³He at a pressure of 1 MPa. An aluminium sample cell confines the gas during the adsorption process, performed through a filling capillary. Measurements are made in a dilution refrigerator, at temperatures below 100 mK.

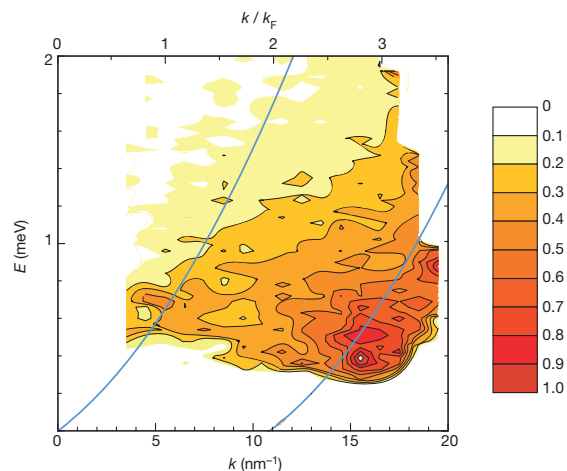


Figure 3 | Experimental dynamic structure factor. The structure factor $S(k, E)$ determined by inelastic neutron scattering for a monolayer of liquid ³He of areal density $4.7 \pm 0.2 \text{ atoms nm}^{-2}$, is shown as a function of the neutron momentum transfer $\hbar k$ and energy transfer E . The colour scale evolves from white to red (in arbitrary units proportional to neutron counts). White is also used in the lower part of the graph, where data cannot be exploited due to the large quasi-elastic background, and in the limits of low and high k determined by the angular range covered by the detectors. The blue lines show the limits of the particle-hole band of a Fermi gas with the bare ³He atomic mass. High-intensity regions indicate the existence of modes with wavevector k and energy E , broadened by the experimental resolution. The zero-sound collective mode, visible at $k \approx 5 \text{ nm}^{-1}$ and $E \approx 0.7 \text{ meV}$, is broadened inside the particle-hole band. It emerges beyond this band as a well defined mode, displaying a minimum as a function of energy at $k = 15.5 \text{ nm}^{-1}$ and $E = 0.4 \text{ meV}$. This fermionic collective mode closely resembles the phonon-maxon-roton dispersion relation of liquid ⁴He (see Fig. 1).

The experiments were performed at the Institut Laue-Langevin on the time-of-flight spectrometer IN6, using incident wavelengths of 0.512 and 0.41 nm. The measured dynamic structure factor $S(k, E)$ contains all the relevant information on the elementary excitations of a system; it gives the probability for creating an excitation with wavevector k and energy E . Figure 3 shows the main features revealed by our data. The zero-sound mode is seen at low wavevectors; given the limited experimental range, its definite identification requires theoretical support, to be presented later. It is found at energies well below those observed in bulk liquid ³He. The mode is broadened as it enters the PHB, and emerges beyond the limits of the PHB as an intense mode, displaying a minimum as a function of energy, and increasing rapidly beyond this minimum. The high-intensity region of $S(k, E)$ closely resembles the phonon-maxon-roton dispersion relation of liquid ⁴He. Significant intensity is present at low wavevectors above the PHB, demonstrating the existence of multi-pair excitations.

We now show that dynamic many-body effects play an essential role in explaining the observed position of the roton and the emergence of the collective mode beyond the PHB. Adopting the view that the physical mechanisms that determine the short-wavelength spectrum are the same in ⁴He and in ³He, we have developed the fermion generalization⁴ of the dynamic many-body theory of Jackson, Feenberg and Campbell^{10,12}. The boson theory has by now been brought to a level where a consistent description of the dynamics of ⁴He in the whole (k, E) plane is possible. The fermion version of the theory⁴ allows a calculation of the dynamics of strongly interacting systems in the language of a time-dependent Hartree-Fock theory⁵ with energy-dependent effective interactions. It supersedes the intuitive 'backflow' picture of Feynman⁷ and goes beyond the RPA by being applicable at atomic wavevectors.

RESEARCH LETTER

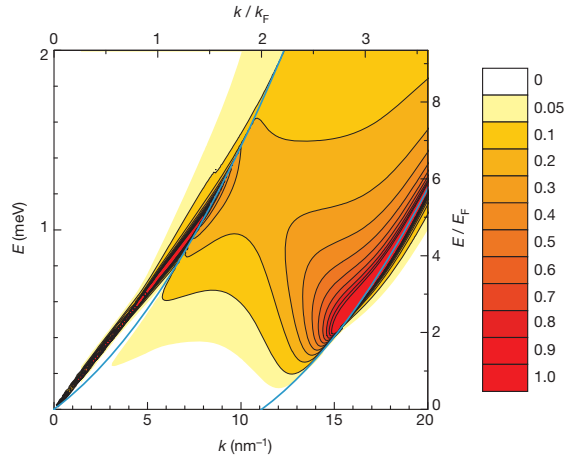


Figure 4 | Theoretical dynamic structure factor. The structure factor $S(k, E)$ calculated for a monolayer of liquid ${}^3\text{He}$ of areal density $4.9 \text{ atoms nm}^{-2}$, shown as a function of the wavevector k and energy E . At this areal density, the Fermi wavevector, k_F , is 5.55 nm^{-1} and the Fermi energy, E_F , is 0.213 meV . Blue lines as in Fig. 3. High-intensity regions indicate the existence of modes with wavevector k and energy E . The theoretical spectrum has been slightly broadened to make the sharp collective modes visible. The zero-sound collective mode, well defined at low wavevectors, enters the particle-hole continuum, is broadened, and finally emerges beyond the lower limit of the particle-hole band, displaying a minimum as a function of energy. A phonon-maxon-roton type of dispersion relation is clearly seen.

Figure 4 shows the results of our calculation of the dynamic structure factor at a density of $4.9 \text{ atoms nm}^{-2}$. We obtain good quantitative agreement with the experiment at a similar density, without any adjustable parameters. At low wavevectors, we observe a long-lived zero-sound collective mode, close to the PHB upper limit. The mode is broadened, but visible, within the PHB, and emerges from it as a well defined, intense excitation. A phonon-maxon-roton type of dispersion relation is clearly seen. Multi-pair excitations are present at low wavevectors above the PHB, causing a natural width of the phonon.

The contour plots of Figs 3 and 4 show a strong down-shift in the density of states compared to the RPA predictions. This is more clearly seen in the spectra at constant wavevector presented in Fig. 5. The experiments yield strongly asymmetric spectra, with a marked peak at

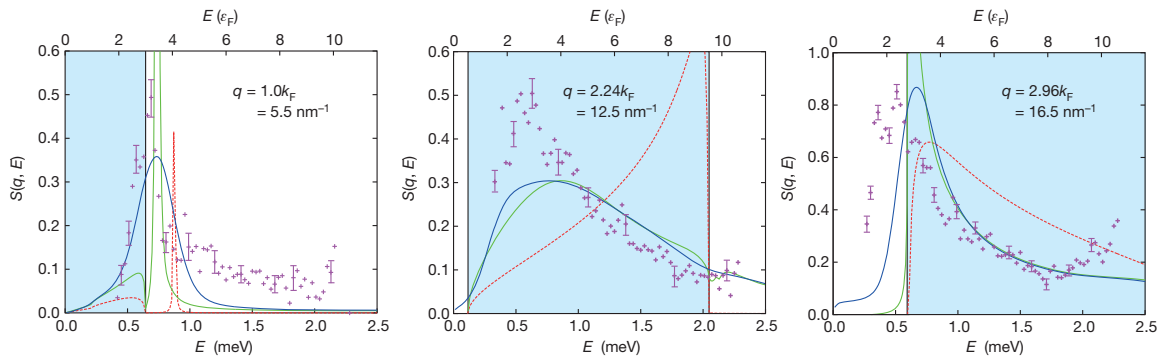


Figure 5 | Neutron spectra at selected wavevectors. The spectra correspond to cuts at wavevectors $5.5, 12.5$ and 16.5 nm^{-1} through the data shown in Fig. 3. Crosses, experimental data, with error bars calculated using the standard deviation of the neutron counts. (See Supplementary Information for details of the statistical sample.) Red dashed lines, results of RPA calculations (slightly

low energy. RPA calculations display qualitatively different asymmetric spectra, the peak being at high energy. This effect was previously seen in bulk ${}^3\text{He}$ measurements, impairing analysis of the spectra¹⁶. The dynamic many-body calculation⁴ that we apply here gives a much better description of the spectra.

The measured spectra are broadened, owing to the finite experimental resolution ($\Delta k = 1 \text{ nm}^{-1}$ and $\Delta E = 0.1 \text{ meV}$). The dynamic many-body calculation convolved with the experimental resolution provides calculated spectra whose widths agree with the measured ones, as seen in Fig. 5. Therefore, the energy width of the collective mode observed here outside the particle-hole band is certainly smaller than or equal to the energy resolution. This should not be confused with the extremely sharp phonon-rotor mode of liquid ${}^4\text{He}$ in the superfluid state: liquid ${}^3\text{He}$ sustains, in addition to the collective density mode, incoherent particle-hole excitations, which open additional decay channels, as mentioned above.

A word is in order on our use of a non-interacting single-particle spectrum for determining the boundaries of the PHB. Incoherent particle-hole excitations are limited to a band $E(q - k) - E(k) < \hbar\omega < E(q + k) - E(k)$, where k is inside the Fermi sea. The single-particle spectrum $E(k)$ deviates from the free spectrum for two reasons. One is the corrugation of the substrate, leading to the so-called ‘band mass’, $m^*_{\text{band}} \approx 1.2m$ (ref. 26). Second, there is an interaction contribution. It exhibits a peak at the Fermi wavevector k_F , but decreases rapidly as a function of momentum in both three and two dimensions^{13–16}. As a consequence, the particle-hole band is modified only up to about the Fermi energy by interaction and band-structure effects.

In summary, we have observed the elementary excitations of two-dimensional liquid ${}^3\text{He}$ over a large range of energy and wavevector. Using the favourable conditions displayed by this system, we have demonstrated that a strongly interacting quantum many-body system sustains collective density excitations that are largely independent of the quantum statistics: the fermionic ${}^3\text{He}$ collective mode has the same physical origin as the phonon-rotor curve of the bosonic ${}^4\text{He}$. To gain a theoretical understanding of these phenomena, we developed a dynamical treatment of short-range correlations.

Generalizing Ruvalds’ proposal²⁷ of a superconducting pairing mechanism mediated by long-wavelength plasmons, our observation of a roton-like coherent mode characterized by a high density of states leads us to suggest a novel pairing mechanism, mediated by high-momentum density fluctuations. The consequences of the presence of plasmon collective modes at high wavevectors for the dynamics of electronic systems^{28–31}, including high- T_c superconductors, heavy fermions, metals and graphene, deserve exploration.

broadened to make delta-functions visible). Green lines, results from our dynamic many-body theory; blue lines, theoretical results convolved with the experimental resolution. The light blue area corresponds to the particle-hole band. The broadening of the results of the dynamic theory is due to multi-pair excitations.

Received 2 September 2011; accepted 1 February 2012.

- Landau, L. D. On the theory of superfluidity of helium II. *USSR J. Phys.* **11**, 91–92 (1947).
- Landau, L. D. The theory of a Fermi liquid. *Sov. Phys. JETP* **3**, 920–925 (1957).
- Pines, D. & Nozières, P. *The Theory of Quantum Liquids* (Benjamin, 1966).
- Böhm, H. M., Holler, R., Krotscheck, E. & Panholzer, M. Dynamic many-body theory: Dynamics of Strongly Correlated Fermi Fluids. *Phys. Rev. B* **82**, 224505 (2010).
- Thouless, D. J. *The Quantum Mechanics of Many-body Systems* 2nd edn (Academic, 1972).
- Pines, D. Elementary excitations in quantum liquids. *Phys. Today* **34**, 106–131 (1981).
- Feynman, R. P. & Cohen, M. Energy spectrum of the excitations in liquid helium. *Phys. Rev.* **102**, 1189–1204 (1956).
- Glyde, H. R. *Excitations in Liquid and Solid Helium* (Clarendon, 1994).
- Nozières, P. Is the roton in superfluid ^4He the ghost of a Bragg spot? *J. Low Temp. Phys.* **137**, 45–67 (2004).
- Jackson, H. W. Perturbative form of $S(k,\omega)$ for liquid ^4He : basic calculation and results. *Phys. Rev. A* **8**, 1529–1535 (1973).
- Clements, B. E., Krotscheck, E. & Tymczak, C. J. Multiphonon excitations in boson quantum films. *Phys. Rev. B* **53**, 12253–12275 (1996).
- Campbell, C. E. & Krotscheck, E. Dynamic many-body theory: pair fluctuations in bulk ^4He . *Phys. Rev. B* **80**, 174501 (2009).
- Friman, B. L. & Krotscheck, E. K. Zero sound, spin fluctuations, and effective mass in liquid ^3He . *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1705–1708 (1982).
- Krotscheck, E. & Springer, J. Physical mechanisms for effective mass enhancement in ^3He . *J. Low Temp. Phys.* **132**, 281–295 (2003).
- Boronat, J., Casulleras, J. & Grau, V. Krotscheck, E. & Springer, J. Effective mass of two-dimensional ^3He . *Phys. Rev. Lett.* **91**, 085302 (2003).
- Glyde, H. R. *et al.* Effective mass, spin fluctuations and zero sound in liquid ^3He . *Phys. Rev. B* **61**, 1421–1432 (2000).
- Sköld, K., Pelizzari, C. A., Kleb, R. & Ostrowski, G. E. Neutron scattering study of elementary excitations in liquid helium-3. *Phys. Rev. Lett.* **37**, 842–845 (1976).
- Scherm, R. *et al.* Pressure dependence of elementary excitations in normal liquid helium-3. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 217–220 (1987).
- Greywall, D. S. Heat capacity of multilayers of ^3He adsorbed on graphite at low millikelvin temperatures. *Phys. Rev. B* **41**, 1842–1862 (1990).
- Morhard, K.-D. *et al.* Two-dimensional Fermi liquid in the highly correlated regime: the second layer of ^3He adsorbed on graphite. *Phys. Rev. B* **53**, 2658–2661 (1996).
- Bäuerle, C., Bunkov, YuM, Chen, A. S., Fisher, S. N. & Godfrin, H. Ultra-low temperature magnetic properties of liquid ^3He films. *J. Low Temp. Phys.* **110**, 333–338 (1998).
- Casey, A., Patel, H., Nyéki, J., Cowan, B. P. & Saunders, J. Strongly correlated two dimensional fluid ^3He . *J. Low Temp. Phys.* **113**, 293–298 (1998).
- Neumann, M., Nyéki, J., Cowan, B. P. & Saunders, J. Bilayer ^3He : a simple two-dimensional heavy-fermion system with quantum criticality. *Science* **317**, 1356–1359 (2007).
- Godfrin, H. & Lauter, H. J. *Progress in Low Temperature Physics* Vol. XIV, Ch. 4, 213–320 (ed. Halperin, W. P.) (Elsevier Science, 1995).
- Lauter, H. J., Godfrin, H., Frank, V. L. P. & Leiderer, P. Ripplons in ^4He films observed by neutron scattering. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2484–2487 (1992).
- Reatto, L. Novel substrates for helium adsorption: graphene and graphene-fluoride. Lecture given at *Intl Conf. on Low Temp. Phys. (LT26)* (Beijing, 15 August 2011).
- Ruvalds, J. Are plasmons the key to superconducting oxides? *Nature* **328**, 299 (1987).
- Bostwick, A., Ohta, T., Seyller, T., Horn, K. & Rotenberg, E. Quasiparticle dynamics in graphene. *Nature Phys.* **3**, 36–40 (2007).
- Diaconescu, B. *et al.* Low-energy acoustic plasmons at metal surfaces. *Nature* **448**, 57–59 (2007).
- Uemura, Y. *et al.* Phase separation and suppression of critical dynamics at quantum phase transitions of MnSi and $(\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{RuO}_3$. *Nature Phys.* **3**, 29–35 (2007).
- Kohsaka, Y. *et al.* How Cooper pairs vanish approaching the Mott insulator in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-\delta}$. *Nature* **454**, 1072–1078 (2008).

Supplementary Information is linked to the online version of the paper at www.nature.com/nature.

Acknowledgements We are grateful to the Austrian–French programme Amadeus for providing initial support; to the Austrian Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung (FWF grant P21264), the French Agence Nationale de la Recherche (project ANR-2010-INTB-403-01) and the EU FRP7 low-temperature infrastructure grant Microkelvin (project number 228464) for funding this research; and to the Institut Laue-Langevin for use of the facility.

Author Contributions H.G., M.M., H.-J.L., A.S. and M.P. performed the neutron experiments; H.M.B., E.K. and M.P. developed the theory. All authors analysed the results and contributed to the work.

Author Information Reprints and permissions information is available at www.nature.com/reprints. The authors declare no competing financial interests. Readers are welcome to comment on the online version of this article at www.nature.com/nature. Correspondence and requests for materials should be addressed to H.G. (henri.godfrin@grenoble.cnrs.fr).

Two-dimensional Fermi liquids sustain surprising roton-like plasmons beyond the particle-hole band

A Sultan¹, H Godfrin¹, M Meschke², H-J Lauter^{3,4}, H Schober³,
H Böhm⁵, R Holler⁵, E Krotscheck⁵ and M Panholzer⁵

¹ Institut Néel, CNRS et Université J. Fourier, BP 166, F-38042 Grenoble Cedex 9, France

² Low Temperature Laboratory, Aalto University, PO. Box 3500, 02015 TKK, Finland

³ Institut Laue-Langevin, BP 156, 38042 Grenoble Cedex 9, France

⁴ Oak Ridge National Laboratory, PO BOX 2008 MS6475, Oak Ridge TN 37831-6475, USA

⁵ Institute for Theoretical Physics, Johannes Kepler University, A-4040 Linz, Austria

E-mail: henri.godfrin@grenoble.cnrs.fr

Abstract. Using inelastic neutron scattering we have observed for the first time the elementary excitations of an isotropic two-dimensional Fermi liquid, ³He adsorbed on graphite. This interacting many-body system sustains, at low wave-vectors, a zero-sound collective mode located near the edge of the particle-hole band. The mode crosses the particle-hole band, undergoing Landau damping, and finally reappears at high wave-vectors, where a roton-like mode is observed. This feature is characteristic of correlations, rather than statistics. This collective mode is found to be well defined in two-dimensional ³He, and might also be present in other Fermi correlated systems. The observed coherence effects suggest a novel superconductivity pairing mechanism based on high wave-vector plasmons, specific to two-dimensional electronic correlated systems, like high Tc superconductors, heavy fermions, metallic films and graphene.

1. Introduction

The concept of elementary excitations was introduced by Landau to describe the low temperature behavior of quantum fluids: bosonic liquid ⁴He and fermionic liquid ³He. His elegant theory turned out to be the seed of the theoretical framework used presently to describe not only quantum fluids, but more generally condensed matter, nuclear and particle physics: i.e., all systems where strongly correlated matter plays an essential role. Quantum fluids ⁴He and ³He are still the unavoidable reference and benchmark: these simple monoatomic and isotropic systems display macroscopic quantum phenomena: Bose-Einstein condensation in liquid ⁴He and a pure Fermi Liquid state with a spherical Fermi surface, Cooper pairing of fermions in liquid ³He... Thanks to these extraordinary properties, theoretical predictions on topological excitations, particle physics and cosmologic effects can be tested in helium at very low temperatures, as we would do in a test tube! For this reason, the helium isotopes are named "model systems" and their properties are intensively investigated in low temperature laboratories.

In addition to thermodynamic studies, many efforts have been devoted by the neutron community to understand the dynamics of the strongly interacting quantum fluids. A milestone for understanding correlated bosons was the observation of the "phonon-roton" collective mode of liquid ⁴He, predicted by Landau [1] to explain the system's thermodynamics. For fermions,

the situation is more complicated, since the spectrum hosts two types of modes: collective ("zero-sound" in ^3He , or "plasmon" in charged systems), and incoherent particle-hole (PH) excitations. Both are described by Landau's theory of Fermi liquids [2, 3] in the small wave-vector/ low energy region of the spectrum. At higher wave-vectors/energies, the collective mode enters the PH band, where it is strongly damped [2, 3]. It was thus believed that the dynamics at high wave-vectors is essentially incoherent.

We have recently reported preliminary inelastic neutron scattering data on a monolayer of liquid ^3He at very low temperatures [4]. The most striking features were the observation of a zero-sound branch very close to the PH band and the presence of a roton-like excitation at high wave-vectors. We shall discuss in this Conference the neutron data showing the remarkable behaviour of this two-dimensional Fermi fluid, as well as the experimental techniques. Moreover, a new theoretical framework is proposed [5] where we introduce intermediate states that are not describable by the quantum numbers of a single (quasi-)particle, leading to an accurate interpretation of the spectra measured for ^3He films. By exploring the dynamics of Fermi many-body systems in the region outside the scope of Landau's theory, we open new perspectives in the understanding of highly correlated fermions.

2. Experimental details

The principle of the experiment is simple. The excitations created in a liquid ^3He film are measured by inelastic neutron scattering. The liquid ^3He film of atomic thickness (submonolayer characterised by a well determined areal density) is adsorbed on an exfoliated graphite substrate of large surface area. The substrate is enclosed in an aluminium experimental cell. The system is cooled by a dilution refrigerator to temperatures well below 100 mK. At such low temperatures, the pressure of the ^3He gas in equilibrium with the adsorbed ^3He film is essentially zero, and therefore all the ^3He present in the cell is adsorbed on the substrate.

The recorded neutron spectra correspond to neutrons reaching a set of detectors placed in a horizontal plane (scattering angle) at different times (time-of-flight technique to determine their energy). The neutron spectra reveal the creation of excitations in the ^3He film. This experiment requires a detailed data analysis, which involves a careful subtraction of the background signal due to the substrate, the experimental cell and the instrument. We describe in the following subsections the experimental set-up, the measuring techniques, as well as the details of the data analysis.

2.1. Neutron scattering on ^3He samples

The neutron scattering inelastic measurements were performed at the Institut Laue-Langevin (ILL - Grenoble) on the time-of-flight spectrometer IN6, situated on the cold neutron guide of the high flux reactor. IN6 is a time-focussing time-of-flight spectrometer designed for quasielastic and inelastic scattering for incident wavelengths in the range of 0.4 to 0.6 nm. Experiments were performed at two wavelengths: at 0.51 nm giving access to the main part of the interesting energy-momentum range, and 0.41 nm in order to extend the range to higher energies and momenta. The energy resolution for a wavelength of 0.51 nm is on the order of 0.08 meV, increasing with the wave-vector up to 0.12 meV. At the smaller incident wavelength (0.41 nm), the resolution is about twice these values. A large number (337) of elliptical ^3He detectors cover the scattered neutrons angular range from 11.9 to 113 degrees. This corresponds, for elastic scattering, to wave-vectors in the range up to 20.5 nm^{-1} at an incident wavelength of 0.51 nm, and 24 nm^{-1} at an incident wavelength of 0.41 nm). The useful energy range is 0.1 to 2 meV (0.2 to 4 meV) respectively, for the two different wavelengths.

The energy-momentum range of IN6 is particularly well adapted to the investigation of quantum fluids dynamics. In particular, this instrument was used by Scherm and coworkers (including one of the authors) for bulk liquid ^3He studies [6, 7]. These experimental data have

been very useful as a reference for the analysis of the results obtained on the two-dimensional samples. One of the major difficulties encountered in measurements on ^3He is the very large absorption cross section of this isotope [8, 7, 3]. At the long wavelengths needed for the inelastic measurements, the neutron penetration is on the order of a tenth of a millimetre in bulk liquid ^3He . For this reason, a high flux (the flux at the sample is on the order of $10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$) and very long measuring times (about 20 hours) are necessary in order to collect a few neutron counts on each detector. The sample geometry and environment must therefore be carefully studied to reduce the background.

The experiments presented here on liquid ^3He films share with bulk liquid ^3He measurements the difficulties discussed above: high absorption and small signal. They present additional experimental complications, the most obvious one being the necessity of a substrate onto which the liquid ^3He monoatomic film is adsorbed. We use exfoliated graphite, as described below. The substrate introduces intense elastic scattering, particular at $Q=0$ and at the graphite (0002) reflection at $Q=18.767\text{nm}^{-1}$. The graphite sample is oriented with the (0002) direction normal to the scattering plane, and therefore, the Bragg reflection should not occur in the scattering plane. However, the mosaic spread of the substrate leads to a Bragg peak in the scattering plane at 18.767nm^{-1} . In addition, instrumental background as well as neutrons incoherently scattered on impurities resulting from the graphite exfoliation procedure lead to quasielastic scattering. These spurious signals are not negligible, compared to the small number of counts originating from the ^3He inelastic scattering we want to measure. For this reason, the spectra of two-dimensional ^3He cannot be exploited at small energies, particularly around the graphite Bragg peak wave-vector.

Since the adsorbed layer consists of ^3He , the neutron absorption of this isotope reduces the intensity of the signal measured for the graphite Bragg peak by about 20% in our experiments. Subtracting the background is thus a delicate task: one cannot simply use the measurement with the bare graphite substrate as background. A further complication is the modification of the graphite peak position, height and width due to the adsorption of one or more helium layers. This effect, due to the modification of the interference pattern of a finite number of planes when additional planes are introduced, is well known in neutron surface studies (see references in [9, 10]). It can be considered in the analysis by adequate fits of the peak shape and position; the procedure, performed for each Q value, is delicate and time consuming. A consistency check is made by comparing the peak evolution for samples of different areal density.

2.2. The exfoliated graphite substrate

Exfoliated graphite is an excellent substrate for the investigation of two-dimensional adsorbed systems [9, 10, 11]. It presents many advantages: homogeneous adsorption due to the presence of relatively large atomically flat platelets corresponding to the (0002) graphite planes; it can be cleaned by simple procedures (baking at a few hundred degrees), and pumping on the system is sufficient to remove most of the contamination of a sample exposed to air. For this reason, exfoliated graphite samples are used in neutron scattering, NMR and heat capacity investigations of two-dimensional ^3He , where the ultrahigh vacuum techniques used in many other surface studies cannot be applied.

Exfoliated graphite consists of natural graphite flakes, exfoliated using an intercalation and a rapid heating procedure. The exfoliated material is then recompressed to form a self-sustaining material. Depending on the level of exfoliation, different materials are commercially available (Grafoil, Papyex...). They are characterised by their specific surface area ($20 \text{ m}^2/\text{gram}$ for Grafoil), by the size of the atomically flat regions (the coherence length is typically 20 nm), by the mosaic spread of the crystallites orientation (typically 30 degrees), and by their thermal properties (in particular the thermal conductivity at low temperatures) [9].

The choice of the substrate is dictated by several considerations. A large specific surface

area is in principle convenient, since the signal is proportional to the amount of adsorbed gas. However, the strong neutron absorption of ^3He introduces an additional limitation. A Grafoil sample would absorb all the beam within a thickness of a few millimetres. For this reason, we have chosen a ZYX-UCAR exfoliated graphite sample of smaller specific area ($2\text{ m}^2/\text{gram}$), but of much higher quality in terms of coherence length (190 nm), mosaic spread (only 10 degrees) and thermal conductivity (the large graphite crystals ensure a more efficient heat transport). This sample has therefore the advantage to allow forming relatively large two-dimensional liquid ^3He regions, relatively well oriented within the neutron scattering plane, with a moderate neutron absorption using a sample of dimensions comparable to the neutron beam size ($25\text{ mm}\times 50\text{ mm}$) [9]. In our experiments, a stack of ZYX graphite sheets of dimensions $25\times 25\times 5\text{ mm}^3$, with a total height of 60 mm, was used.

2.3. Experimental cell and cryogenic set-up

The ZYX sample is placed in a copper holder consisting of two plates, at the top and bottom, connected by a copper rod for thermal purposes. The ZYX sheets are thermally connected to the copper plates by means of thin copper foils. These are located at the back side of the stack with respect to the neutron detectors. Copper to graphite bonding is achieved by thermal diffusion, at a temperature on the order of 800 C for several hours, under secondary vacuum. This procedure also ensures the main cleaning (outgasing) of the graphite sample. Later on in the experimental procedure, pumping at room temperature will be sufficient to ensure that the full surface area of the sample is available for the sample absorption. The ZYX and its copper holder are placed in a thin walled aluminium cell. The top, made out of copper, is dismountable; an indium o-ring ensures that the cell is leak-tight. The copper top part is then bolted to the mixing chamber of a dilution refrigerator, providing a base temperature lower than 30 mK , determined by means of a calibrated carbon resistor thermometer. In the absence of the neutron beam, the sample temperature is essentially that of the mixing chamber. Opening the beam gives rise to a small temperature increase. This is not due to the absorption of neutrons by the ^3He film, since the energy released in the capture process is only 764 keV : heating originates in the absorption of gamma rays generated at the level of the instrument monochromator. Most of the power deposited in the experimental cell corresponds to absorption by the aluminium walls. The sample itself remains below 100 mK , which is sufficient for the purposes of this experiment. A vanadium sample is attached to the bottom of the cell. Measurements with this incoherent scatterer are used for the calibration of the relative efficiency of the 337 detectors. The dilution unit equipped with the sample cell are placed in the vacuum chamber of the instrument IN6. This allowed us to remove the room temperature vessel of the dilution unit, thus reducing the background. IN6 is also equipped of a helium filled box between the sample and the detectors, again reducing the background.

2.4. Adsorption isotherms system

In this experiment we handle small amounts of ^3He and ^4He gas, which must be accurately measured, both during the adsorption isotherm measurements and for the introduction of the helium sample. Typical quantities are on the order of 10 cm^3 STP of gas. For this purpose we use a stainless steel manifold (typical diameter 6 mm) including small dead-volume valves, 2 calibrated stainless steel volumes (a volume of about 1000 cm^3 for the initial introduction of gas, and one of about 20 cm^3 for small increments of the amount of gas). The pressure in the system is measured with a precision Baratron MKS pressure gauge (100 Torr range). The temperature of the room is carefully recorded, in order to convert the amounts of gas measured in the calibrated volumes to amounts of gas in STP conditions.

2.5. Calibration of the substrate surface area

The ZYX sample is characterized by ^3He and ^4He adsorption isotherms at 4.2 K [9]. This procedure, well known in surface science, yields the "surface area" of the sample. The resulting figure, however, has to be used with caution. It is very accurate in the sense that the measurement can be repeated, for a given sample, obtaining the same result. Also, for samples of the same type, the ratio of the measured areas can be determined quite precisely. This allows a direct scaling of experimental results obtained in different laboratories. Comparing the adsorption isotherms, we can determine the amount of gas corresponding, for our sample, to a given density.

The phase diagram of ^3He adsorbed on graphite has been determined by heat capacity and NMR techniques as a function of the ^3He coverage and temperature [9, 11, 12, 13, 14]. These measurements yield in particular the amount of gas needed to fill the $\sqrt{3}$ phase, the density of which is determined by the graphite in-plane lattice parameter as 6.366 atoms/nm². The "Commensurate surface area" A_c can therefore be determined from the ratio of the measured adsorption isotherm and that of another experiment where the commensurate phase coverage could be determined.

In addition, extensive neutron diffraction studies have been performed on the solid phases observed in the helium/graphite system: commensurate and incommensurate phases with respect to the graphite substrate have been observed. The determination of the lattice parameter of these triangular phases gives immediately the specific area (nm²/atom) for a given coverage. In previous experiments we have determined the amount of gas corresponding to the perfect filling of the commensurate phase using neutron diffraction on this sample to be 14.351 cm³ of gas in standard conditions of temperature and pressure (STP: T=273.15 K and P=100 kPa). For comparison, a measurement performed using D₂, again on the same sample, gave the value 14.336 cm³ STP for the $\sqrt{3}$ phase. One can then calculate the sample "commensurate area" $A_c=59.73\text{ m}^2$. This is the area that one should use for areal densities close to that of the $\sqrt{3}$ phase, at submonolayer coverages. At high coverages, however, adsorption of helium does not only take place at the atomically flat parts of the graphite platelets, but also at some places of weaker adsorption potential (defects, edges). The effective surface area near monolayer coverage is therefore somewhat larger than the "commensurate area" (which measures essentially the adsorption area of the homogeneous sites) [9, 11]. More specifically, we have determined by neutron diffraction on the same sample the commensurate area A_c , and also the effective area A_I which is available for adsorption at high coverages, on the dense incommensurate solid phase, in the vicinity of monolayer completion. The corresponding ratio of areas is 1.093, thus yielding an effective area for adsorption at high coverages $A_I=65.3\text{ m}^2$.

2.6. Preplating with ^4He

The results presented here correspond, as will be seen later, to a film of relatively high areal density: 4.7 atoms/nm². Such a density cannot be achieved at submonolayer coverages, since the fluid enters into a coexistence with the $\sqrt{3}$ phase at relatively low densities [9, 11]. In order to study a system where the interactions are strong, we have chosen to work with a fluid in the second layer, where the phase diagram offers a wider density range; although a commensurate phase also occupies a substantial part of the phase diagram, this effect only happens for densities of about 5.5 atoms/nm².

On the other hand, a dense ^3He solid first layer would have caused unnecessary neutron absorption. For this reason, we have used a ^4He complete monolayer. This isotope, due to its smaller zero point energy in the well formed by the adsorption potential and the interaction with neighbouring atoms, adsorbs preferentially with respect to ^3He , the lighter isotope. One can therefore engineer a bilayer system where the first layer consists of solid ^4He at high density, at a second layer of pure liquid ^4He . The ^4He preplating also improves substantially the quality of the

substrate, by smoothing out the imperfections of the bare graphite, in particular by filling the strong binding sites ("heterogeneities") which represent a few percent of the adsorbed first layer atoms. The high density first layer ^4He solid acts as a high quality, atomically smooth, substrate, onto which the ^3He layer can be deposited. The binding energy is much weaker than on the bare graphite: about 30 K compared to 140 K. The adsorption potential is nevertheless sufficiently strong, for experiments well below 1 Kelvin, to ensure that the motion of the adatoms is confined in the plane. The second layer ^3He fluid is therefore a practically ideal two-dimensional system, and confinement effects within the planes are very small, due to the large coherence length, increased with respect to the bare ZYX to values larger than 20 nm.

The amount of ^4He to be introduced to cover exactly the graphite by one atomic layer of ^4He can be determined using our neutron diffraction measurements on ^4He adsorbed on this ZYX sample. Near monolayer completion the solid density is about 11.1 atoms/nm², and this number increases up to 11.63 atoms/nm² at very high coverages (maximum layer density) under the pressure of the additionally adsorbed atoms [9, 11]. The areal density of the complete ^4He first layer needed for the present experiment is found to be 11.3 atoms/nm², taking into account the compression due to the liquid ^3He second layer. The amount of ^4He gas introduced is 28.38 cm³ of gas STP (standard temperature and pressure conditions, defined as T=273.15 K and P=100 kPa)

2.7. Two-dimensional ^3He sample

The amount of ^3He gas introduced in the cell is 11.03 cm³ of gas STP. With the surface area of the substrate determined in the previous section, this corresponds to an areal density $\rho_c=4.9$ atoms/nm² in the commensurate coverage scale, and $\rho_i=4.5$ atoms/nm² in the incommensurate coverage scale. The first value is appropriate if the ^3He atoms of the liquid phase in the second layer explore only the homogeneous regions of the substrate, and the second value should be used if the fluid covers the whole area of the substrate, an effect favoured by the ^4He preplating. These values provide an upper and lower bound the actual density of the sample, which has therefore the value $\rho=4.7\pm 0.2$ atoms/nm².

3. Fermi liquids

Fermi liquids constitute one of the most active research areas in condensed matter, and the reader is familiar with the fundamental publications: Landau's original papers, Pines and Nozières [2], Wilks [15], Fetter and Walecka [16] and other books. Liquid ^3He has been investigated in detail, owing to the simplicity of its (spherical) Fermi surface, and the possibility to change the interactions by simple changing the pressure from essentially zero (saturated vapour pressure) to 3.4 Mpa. Thermodynamic results have completely confirmed Landau's phenomenological theory, but a microscopic theory is still lacking even at zero temperature. Several open questions are described in a remarkable article published by David Pines in Physics Today [17]. In the present article we are more particularly concerned by the dynamics of Fermi liquids. This information is contained in the dynamic structure factor, which has also been investigated in bulk liquid ^3He . This function of energy and wave-vector has been measured by neutron scattering; the main results are the direct observation of the particle-hole excitations as well as the zero-sound and the paramagnon collective mode, as predicted by Landau's theory of Fermi liquids.

3.1. Excitations in Fermi liquids

The fundamental excitation of a Fermi liquid at zero temperature is the creation of a particle-hole pair [2, 3]. The existence of the Fermi surface, and this is a topological effect, cause the excitations of the system to be confined to a region of the energy-momentum space, the particle-hole band (PHB). The boundaries of the PHB for a non-interacting system (Fermi gas) are given by the expression $E/E_F=(k/k_F)^2 \pm 2(k/k_F)$ where E_F is the Fermi energy $E_F=\hbar^2 k_F^2/2m$, k_F

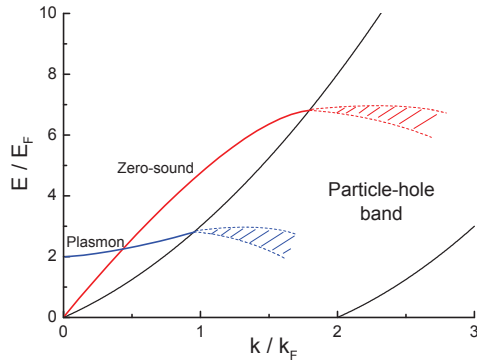


Figure 1. The particle-hole band of a Fermi liquid. Also shown are the collective modes of a neutral Fermi liquid, like ^3He , or a charged system, like the conduction electrons of a metal.

is the Fermi wave-vector and m the mass of the ^3He atom. The Fermi wave-vector is simply calculated knowing the density of the Fermi system and the dimensionality.

Landau theory of Fermi liquids postulates the existence of "quasiparticles" having an effective mass m^* which is a measure for the density of states at the Fermi level. In liquid ^3He , m^*/m , as seen by heat capacity measurement, is substantially larger than one, and increases with pressure [3, 15]. One could expect the PHB to shift to lower energies by a substantial amount, due to the increased effective mass. However, in the regime of interest this does not happen: the Landau picture is only valid for small energies and wave-vectors; the particle-hole band behaviour will be discussed below.

According to Landau theory, two collective modes are present in a Fermi liquid [2, 3]: a collective oscillation of the Fermi sphere (zero-sound collective density wave), and a spin wave (paramagnon mode). Zero-sound has been detected first at low wave-vectors and very low temperatures by ultrasonic techniques. Several neutron scattering investigations have been performed at wave-vectors on the order of k_F . At relatively low wave-vectors, zero-sound is a well defined mode with a linear dispersion relation, located above the PHB. It displays then a negative curvature, finally entering the PHB. The zero-sound becomes then very broad, due to Landau damping: it decays into incoherent PH excitations [2, 3]. In electronic systems, the mode also exists, although its dispersion relation is modified due to the charged nature of the fermions. The collective electronic density mode is named "plasmon" [2]. A gap is present at small wave-vectors, but the high wave-vector behaviour is similar to that of liquid ^3He zero sound, the dispersion relation apparently finishes within the particle-hole band. We shall see that this is not necessarily true for two-dimensional systems.

4. Two-dimensional Fermi liquids

Two-dimensional liquid ^3He has been investigated using thermodynamic techniques by many research groups. Pionnering heat capacity investigations on liquid ^3He adsorbed on graphite were realised in Seattle [12], followed by Grenoble (neutrons and NMR) [9, 11, 14], Bell Laboratories (heat capacity) [13], and London (heat capacity, NMR) [18, 19, 20], among others. The results display all the characteristics expected from Fermi liquids: the heat capacity is linear in temperature, and the magnetization does not depend on temperature near $T=0$. Since there

is no critical point in 2D liquid ^3He , one can investigate systems whose densities range from zero (Fermi gas) to very high densities, until the system solidifies, forming a "commensurate solid" with respect to the graphite, or to the underlying adsorbed layer. The effect of the interactions appears, following Landau's theory, through an enhancement of the thermodynamic properties with respect to those of the Fermi gas. According to heat capacity and magnetization measurements, the effective mass increases as a function of density from $m^* = m$ to very large values, substantially larger than in bulk liquid ^3He .

Before our experiments, nothing was known experimentally about the dynamics of two-dimensional liquid ^3He . The measurements brought several surprises. The first one was the observation of a substantial change of the zero-sound mode, found to be at much lower energies than in bulk liquid ^3He . The main challenge, however, was the observation of substantial intensity in the inelastic structure factor at wave-vectors on the order of $2k_F$, indicating the emergence of a new excitation branch beyond the particle hole continuum.

5. Results

We present in this section results obtained on a two-dimensional liquid ^3He system of areal density $\rho=4.7\text{ atoms/nm}^2$ (see previous sections for details on the areal density determination). The Fermi wave-vector is determined directly from the areal density; in two dimensions $k_F=\sqrt{2\pi\rho}$. The Fermi energy is $E_F=\hbar^2k_F^2/2m$, and hence $E_F=\hbar^2\pi\rho/m$. The Fermi temperature is defined as $T_F=E_F/k_B$ (note that in 3D T_F is often defined including a 2/3 factor). With this notation, in the 2D system $T_F[\text{K}]=0.5053\rho[\text{atoms/nm}^2]$ and $E_F[\text{meV}]=0.04355\rho[\text{atoms/nm}^2]$. For $\rho=4.7\pm 0.2\text{ atoms/nm}^2$, $k_F=5.43\pm 0.12\text{ nm}^{-1}$, $E_F=0.204\pm 0.009\text{ meV}$

At zero energy, the particle-hole band (PHB) extends from zero momentum to $2k_F$. In the following graphs, the limits in energy of the PHB are calculated using the bare mass of the ^3He atoms, and NOT the effective mass m^* .

We present results for different momentum transfers. Note that the subtraction of the large elastic signal of the cell (background) does not allow any precise determination of the spectrum

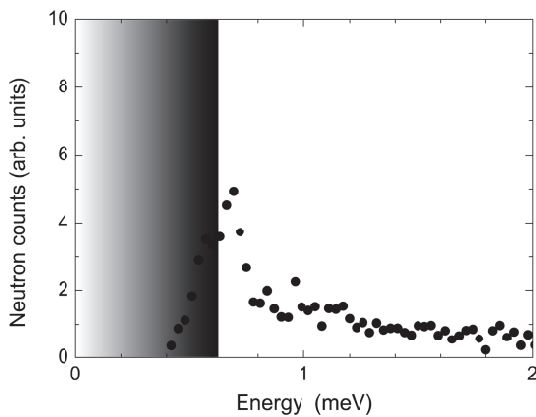


Figure 2. Inelastic neutron scattering spectrum measured at a wave-vector of 5.5 nm^{-1} . Grouping of detectors provides a Q resolution of 0.1 nm^{-1} . Note the presence of the mode above the particle-hole band. The latter corresponds to the shaded area at low wave-vectors

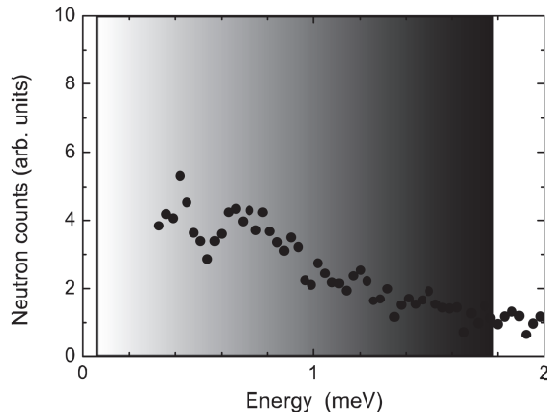


Figure 3. Inelastic neutron scattering spectrum measured at a wave-vector of 11.5 nm^{-1} . Grouping of detectors provides a Q resolution of 0.1 nm^{-1} . Note the broad mode *inside* the particle-hole band. The latter corresponds to the shaded area covering basically all wave-vectors shown

for energies less than about 0.3 meV . We first discuss the “low wave-vector” region, where experiments in the bulk liquid have shown the existence of a well defined zero-sound mode [3, 8, 6, 7] well above the PHB. We show in Figure 2 the spectrum obtained for a momentum transfer $Q=5.5 \text{ nm}^{-1}$, comparable to the Fermi wave-vector. The most striking result is the absence of the collective mode observed in the bulk liquid at different pressures for energies of about 1 meV [8, 6, 7, 3]. The second feature of interest is the presence of a large intensity mode (for such small Q values), just above the PHB (Fig. 2). This is the two-dimensional zero-sound collective mode, observed for the first time, identified by the evolution of this signal in our data at different coverages (not shown here). Also, the mode corresponds well with theoretical results, which cover the whole energy-momentum plane including regions where the graphite background spoil the experimental results [4, 5, 21].

In Figure 3 we show the spectrum obtained for a momentum transfer $Q=11.5 \text{ nm}^{-1}$. It corresponds to the region dominated by the PHB. As expected, the signal is weak. However, one can clearly observe a broad mode, which corresponds to the damping of zero-sound within the PHB. Note that in the present article we have considered the PHB for $m^* = m$.

The behavior at higher wave-vectors is presented in Figure 5, where the momentum transfer is $Q=16.5 \text{ nm}^{-1}$. The striking features are now the appearance of a large intensity peak *below* the PHB, again calculated for $m^* = m$. Using data in the whole energy-momentum plane accessible with IN6 we have shown [21] that this intensity corresponds to the collective zero-sound mode reappearing beyond the PH continuum, at elevated wave-vectors.

The neutron spectra shown above show pronounced damping within a rather well defined region of the energy-wave-vector plane, the particle-hole band. At this point, it is interesting to reconsider the problem of the effective mass. The effective mass for a second-layer two-dimensional liquid ^3He film can be determined using the heat capacity data of Greywall [13] with the appropriate corrections for the coverage scale [14]. We obtain $m^* \approx 3.8$; for comparison, this is the effective mass observed in bulk liquid ^3He at a pressure of about 0.75 MPa . The PHB calculated using this value for the effective mass would be depressed to four time smaller energies,

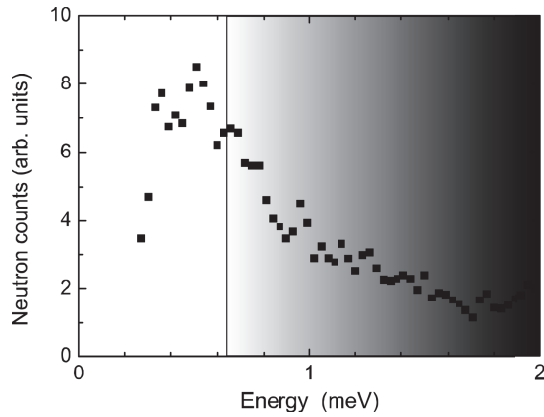


Figure 4. Inelastic neutron scattering spectrum at a wave-vector of 16.5 nm^{-1} . Grouping of detectors provides a Q resolution of 0.1 nm^{-1} . Note the mode *below* the particle-hole band. The PHB corresponds to the shaded area at high wave-vectors.

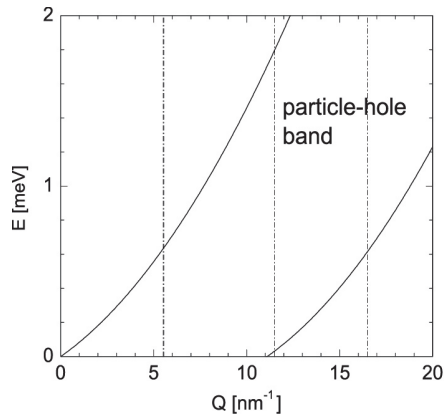


Figure 5. The particle-hole band calculated for $m^* = m$ is shown together with the constant- Q scans of the previous figures.

which is in contradiction with the data shown above.

The experimental results display therefore many important and novel features. At low wave-vectors, the presence of a collective mode, substantially lower in energy than in the bulk. This effect is well known for plasmons in electronic systems. It has also been shown for 2D ^3He by theoretical calculations [22].

The presence of a high energy collective mode essentially identical to the phonon-roton curve of ^4He , damped in the region of coexistence with the incoherent particle-hole excitations, but well defined outside this range, even for atomic-like wave-vectors, substantially larger than k_F ,

is an important experimental finding.

The high energy collective mode of a system of correlated fermions, or "zero-sound", appears therefore to be largely independent on the quantum statistics. This might be quite surprising, if we keep in mind the original Landau derivation of this collective mode as an oscillation of the Fermi sphere. However, for the high wave-vectors and energies considered here, the conditions of validity of the Landau theory are not satisfied. Our results show that the interpretation proposed by D. Pines and coworkers [23], where the similarities between correlated bosonic and fermionic systems are emphasized, is more appropriate.

A major theoretical breakthrough was achieved by the theoretical component of this collaboration. The theory builds upon exactly the notion that the physical mechanisms are, in correlated bosonic and fermionic systems, basically the same and, hence, generalizes the time-honored theory [24, 25] of pair fluctuations to fermions by including two-particle excitations. The theory as well as its ability to describe of our experimental data, including the shape of the spectra presented here, is given in [5, 26]. The key result of this joint experimental and theoretical effort is a detailed picture of a model Fermi liquid well beyond the Landau validity domain [21].

6. Conclusions

Using inelastic neutron scattering, we have determined the dynamic structure factor of two-dimensional liquid ^3He adsorbed on graphite at very low temperatures. In spite of the technical difficulties of such an experiment, we were able to observe the elementary excitations of a this interacting 2D Fermi Liquid. At low wave vectors the zero-sound mode is seen close to the particle-hole band upper limit. The most striking result is that the zero sound mode traverses the particle-hole band, reappearing as a well defined mode at the edge of the lower particle hole band limit. This effect is not specific to liquid ^3He , it should be observable in other two-dimensional non-localised many-body Fermi system. The pair-excitation theory developed by Krotscheck and coworkers provides calculated spectra for our experimental conditions in excellent agreement with the experimental data. This confirms that the zero sound mode has the same physical origin as the "phonon-maxon-roton" in liquid ^4He : strong correlations, which make this mode largely independent on the quantum statistics. The damping mechanisms are of course different in ^3He and ^4He .

Acknowledgments

We acknowledge the financial support from the EU FRP7 low temperature infrastructure grant 228464 "Microkelvin", the Austrian-French grant FWF-ANR "High-Q Fermions" ANR-2010-INTB-403-01 and the CNRS-Air Liquide grant "Contrat de collaboration Recherche-Entreprise" 72B204/00.

References

- [1] Landau L D 1947 *J. of Phys. Moscow* **11** 91
- [2] Pines D and Nozières P 1966 *The Theory of Quantum Liquids* (New York : Benjamin)
- [3] Glyde H R 1966 *Excitations in Liquid and Solid Helium* (Oxford : Clarendon Press)
- [4] Godfrin H, Meschke M, Lauter H-J, Böhm H M, Krotscheck E and Panholzer M 2010 *J. of Low Temp. Phys.* **158** 147
- [5] Böhm H M, Krotscheck E, Panholzer M, Godfrin H, Lauter H-J and Meschke M 2010 *J. of Low Temp. Phys.* **158** 194
- [6] Scherm R, Glucksberger K, Fak B, Sköld K, Dianoux A J, Godfrin H and Stirling W G 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 217
- [7] Glyde H R, Fak B, Dijk N H, Godfrin H, Glucksberger K and Scherm R 2000 *Phys. Rev. B* **61** 1421
- [8] Sköld K, Pelizzari C A, Kleb R and Ostrowski GE 1976 *Phys. Rev. Lett.* **37** 842
- [9] Godfrin H and Lauter H-J 1995 *Progress in Low Temp. Physics* Vol.XIV, Chapter 4, p.213-320, ed. W.P. Halperin, (Amsterdam : Elsevier Science B.V.)

- [10] Lauter H-J, Godfrin H, Frank V L P and Leiderer P 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 2484
- [11] Godfrin H and Rapp RE 1995 *Advances in Physics* **44** 113
- [12] van Sciver S W and Vilches O E 1978 *Phys. Rev. B* **18** 285
- [13] Greywall D S 1990 *Phys. Rev. B* **41** 1842
- [14] Morhard K D, Bäuerle C, Bossy J, Bunkov Y M, Fisher S N and Godfrin H 1996 *Phys. Rev. B* **53** 2658
- [15] Wilks J 1967 *Liquid and Solid Helium* (Oxford : Clarendon Press)
- [16] Fetter A L and Walecka J D 1971 *Quantum Theory of Many Particle Systems* (New York : McGraw-Hill)
- [17] Pines D 1981 *Physics Today* **34** 106
- [18] Casey A, Patel H, Nyéki J, Cowan B P and Saunders J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 115301
- [19] Dobbs E R 2001 *Helium Three* Oxford University Press
- [20] Neumann M, Nyéki J, Cowan B P and Saunders J 2007 *Science* **317** 1356
- [21] Godfrin H, Meschke M, Lauter H-J, Böhm H M, Krotscheck E and Panholzer M *to be published*
- [22] Hernandez E S and Calbi M M 2000 *J. Low Temp. Phys.* **120** 1
- [23] Aldrich C H and Pines D 1978 *J. Low Temp. Phys.* **32** 689
- [24] Jackson H W 1969 *Phys. Rev.* **185** 186
- [25] Chang C C and Campbell C E 1976 *Phys. Rev. B* **13** 3997
- [26] Böhm H M , Holler R, Krotscheck E, Panholzer M 2010 *Phys. Rev. B* **82** 224505

Journal of Low Temperature Physics manuscript No.
(will be inserted by the editor)

A. Sultan · M. Meschke · H.-J. Lauter ·
H. Godfrin

Static structure factor of two-dimensional liquid ^3He adsorbed on graphite

Received: date / Accepted: date

Abstract Liquid ^3He is a model system for strongly correlated Fermi liquids. For this reason, many X-ray and neutron scattering experiments have been performed to understand the structure and dynamics of this quantum fluid. We have recently shown that two-dimensional liquid ^3He sustains long-lived zero-sound excitations at large wave-vectors (Nature **483**, 576, 2012). Here we show that its static structure factor can be obtained with reasonable accuracy by integrating the experimental $S(Q, \omega)$ over a suitable energy range. A good agreement is found between the static structure factor deduced from the experiment and theoretical models: Quantum Monte Carlo simulations and Dynamical Many Body Theory (DMBT). At high wave-vectors, the experimental values are underestimated because of the limited accessible phase space; nevertheless, even at atomic wave-vectors a semi-quantitative agreement is observed with the theoretical predictions.

Keywords Helium three · Fermi liquids · Two-dimensional quantum fluids · Structure factor

PACS 67.10.Hk · 05.30.Fk · 67.10.Db

A. Sultan and H. Godfrin
Institut Néel, CNRS et Université Joseph Fourier, BP 166, 38042 Grenoble cedex 9, France
E-mail: henri.godfrin@grenoble.cnrs.fr

M. Meschke
Low Temperature Laboratory, Aalto University, PO Box 15100, 0076 Aalto, Finland

H.-J. Lauter
Institut Laue-Langevin, BP 156, 38042 Grenoble cedex 9, France
Oak Ridge National Laboratory, PO Box 2008, Oak Ridge TN 37831-6475, USA

1 Introduction

The static structure factor $S(Q)$ is a quantity experimentally accessible by neutron or X-ray diffraction. It depends essentially on the atomic radial distribution function and can be determined by calculating the Fourier transform of the latter. The static structure factor is given by the expression:

$$S(Q) = \frac{1}{N} \langle \rho_Q \rho_{-Q} \rangle \quad (1)$$

where N and ρ_Q are respectively the number of atoms and the Fourier transform of the microscopic density $\rho(\mathbf{r})$.

$S(Q)$ is usually measured by neutron or X-ray diffraction, but this simple technique cannot be used in practice in the case of two-dimensional ^3He atoms adsorbed on graphite: the very strong background due to the solid substrate would dominate the signal from the ^3He atoms by several orders of magnitude. Using *neutron inelastic scattering*, however, it is possible to separate the contribution of the helium from that of the substrate. We present in this manuscript a first attempt to determine the static structure factor of a submonolayer liquid ^3He film. The latter is adsorbed on a graphite substrate preplated with one solid layer of ^4He . The experimental results for $S(Q)$ were obtained by integrating the data of $S(Q, \omega)$ [1] over a carefully determined (wave-vector dependent) energy range, as described below.

Our study of the two-dimensional Fermi liquid ^3He was motivated by several points. Two-dimensional ^3He has a similar topology as bulk ^3He . Indeed, in the case of the 2D system, ^3He atoms populate the energy levels giving rise to a Fermi disk in \mathbf{k} -space, while in 3D, we obtain a Fermi sphere. However, the absence of a critical point in two-dimensional ^3He allows the exploration of a larger density range, going from zero (Fermi gas) to very high ones, until the system solidifies. We can therefore study Fermi liquids with an effective mass varying from $m^* = m$ to much higher values than those found in bulk ^3He [2–6]. For a 2D layer of density $\rho = 4.7 \pm 0.2 \text{ atoms/nm}^2$ the effective mass is about four times the bare mass of a ^3He atom, this can be obtained in a bulk system by applying a pressure of 1MPa.

Present many-body theories have reached a degree of accuracy which enables them to provide quantitative predictions for the static structure factor of such a system. Confronting the experimental result with these theoretical predictions is therefore of interest. In addition, a test of the accuracy of the density determined in our previous works by indirect means, can be obtained from a comparison with the theory, using the shift of the maximum of $S(Q)$ with density.

We have shown previously a good agreement between the excitation spectrum of the two-dimensional Fermi liquid ^3He calculated by DMBT and the values of $S(Q, \omega)$ obtained experimentally [1]. DMBT adopts the view that the physical mechanisms which determine the short-wavelength spectrum are the same in ^3He and ^4He . Based on this assumption, the DMBT has been developed by generalizing the bosonic dynamic many-body theory [7–9] which describes with good accuracy the excitation spectrum of ^4He . The novelty in the fermionic version of DMBT [10] is that it takes into account the pair correlations. The DMBT for two-dimensional systems predicts correctly all the excitations observed in the

measurement of the inelastic spectrum [1]; however, an accurate quantitative fit of the experimental data with the theory is still not possible, due to higher order effects. However, these corrections are expected to affect only moderately the static structure factor. DMBT direct calculations of $S(Q)$ were performed by the Linz group, providing us with a prediction for $S(Q)$ at a density close to that of our experimental system. Further details about this theory are given in reference [11].

We also compare our experimental results to diffusion Monte Carlo calculations performed for similar densities [12]. The theory allows the derivation of effective interactions. Assuming that the dynamic susceptibility is given by the Random Phase approximation (equation 2), the static structure factor can be deduced from dynamic response functions:

$$\chi(Q, \omega) = \frac{\chi_0(Q, \omega)}{1 - \tilde{V}(Q)\chi_0(Q, \omega)} \quad (2)$$

$$S(Q) = - \int_0^\infty \frac{d(\hbar\omega)}{\pi} \text{Im}[\chi(Q, \omega)] \quad (3)$$

where $\chi_0(Q, \omega)$ is the generalized susceptibility of the Fermi gas. $\tilde{V}(Q)$ is the Fourier transform of the potential. The expression 3 is obtained by applying the m_0 sum rule [13]:

$$S(Q) = \int d\omega S(Q, \omega) \quad (4)$$

2 Two-dimensional Fermi liquid

Because of its perfectly spherical Fermi surface, its relatively simple Hamiltonian and its very high purity, liquid ^3He is a perfect candidate for studying highly correlated Fermions. Its properties are described by Landau's Fermi liquid theory, which is valid at low momentum transfer and low temperatures. The effective mass of quasi-particles (m^*), specific heat (C_V) and magnetic susceptibility (χ_0) of a Fermi liquid can be deduced from the bare mass of ^3He , the specific heat (C_V^g) and the magnetic susceptibility (χ^g) of a Fermi gas, with renormalization factors, expressed in terms of the Landau parameters which parametrize the interactions. The formulae applicable in two dimensions [14] are similar to their 3D analogues:

$$m^* = m(1 + 1/2 \cdot F_1^s) \quad (5)$$

$$C_V = \frac{m^*}{m} C_V^g = (1 + 1/2 \cdot F_1^s) C_V^g \quad (6)$$

$$\chi_0 = (1 + 1/2 \cdot F_1^s) \left(\frac{1}{1 + F_0^a} \right) \chi^g \quad (7)$$

Here m is the bare mass of a ^3He atom, and F_1^s and F_0^a are Landau's parameters that depend on the interactions, and hence on density.

The properties of two-dimensional ^3He can be deduced from the expressions below, with numerical values calculated for $\rho = 4.7 \pm 0.2$ atoms/nm², the density investigated here.

4



Fig. 1 In order to smooth the potential and obtain a two-dimensional homogeneous Fermi liquid, ${}^3\text{He}$ is adsorbed on a graphite substrate preplated with a solid ${}^4\text{He}$ layer.

$$k_F = \sqrt{2\pi\rho} = 5.43 \pm 0.12 \text{ nm}^{-1} \quad (8)$$

$$E_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m} = 0.04355 \rho = 0.204 \pm 0.009 \text{ meV} \quad (9)$$

$$T_F = \frac{E_F}{k_B} = 0.5053 \rho = 2.37 \pm 0.10 \text{ K} \quad (10)$$

3 Sample characteristics

Experimental details have been given in previous publications [1, 15, 16]; for clarity, we summarize in the following the most relevant experimental parameters. We discuss in more detail the background subtraction, essential to the object of the present article, the determination of $S(Q)$. Because of the large absorption of neutrons by ${}^3\text{He}$ atoms and the large background due to the substrate, the data analysis required a special treatment. We discuss in the next section the experimentally accessible region where $S(Q, \omega)$ was obtained with good accuracy.

In order to obtain a homogeneous two-dimensional liquid ${}^3\text{He}$ film, we used a high quality exfoliated graphite substrate (Union Carbide ZYX). The graphite substrate has been characterized by neutron diffraction experiments at the ILL [1, 15]. In order to make the adsorption potential more homogeneous for the ${}^3\text{He}$ atoms, we preplate the substrate with a solid layer of ${}^4\text{He}$ atoms as shown on figure 1. The maximum density of the first layer is 11.6 atoms/nm^2 . All additional atoms introduced in the cell will populate the second layer. We introduce a volume of $28.59 \text{ cm}^3 \text{ STP}$ (standard conditions of temperature and pressure) of ${}^4\text{He}$ atoms. This corresponds to a layer's density of 11.3 atoms/nm^2 (we take into account the compression due to the adsorption of atoms on the second layer). Then we introduce in the cell a volume of $11.0 \text{ cm}^3 \text{ STP}$, we thereby obtain a ${}^3\text{He}$ layer of density $4.7 \pm 0.2 \text{ atoms/nm}^2$ (the uncertainty being due to that on the effective surface area available for adsorption). Adsorption isotherms are performed at 4.2 K , annealing of the films is done by lowering the temperature progressively from 20 K , with steps at adequate intermediate temperatures. The neutron measurements are performed at a temperature of about 50 mK .

4 Neutron set-up

Before measuring the dynamical structure factor of the two-dimensional ${}^3\text{He}$ sample, the signal of the bare graphite as well as that obtained with the ${}^4\text{He}$ solid layer

5

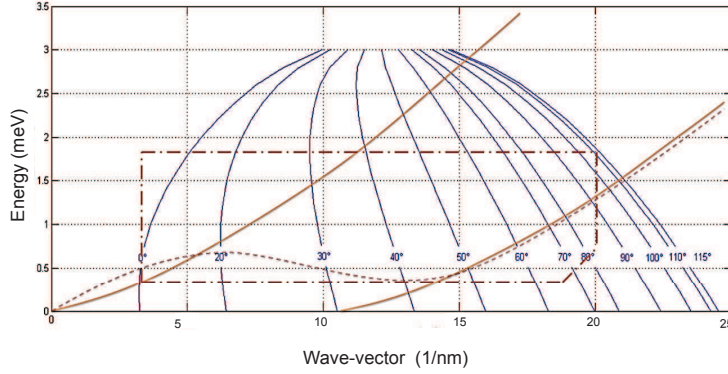


Fig. 2 Accessible phase space (Q, ω) calculated for incident neutrons of wavelength 0.512 nm. The lines labeled by different angles indicate the positions in the $[Q, \omega]$ plane covered by different detectors. Only the part corresponding to a positive energy transfer is shown on the figure. Thick solid lines indicate the limits of the particle-hole band, the dashed line the dispersion of the zero-sound mode observed in two-dimensional Fermi liquid ^3He [1], and the dashed frame the region where background subtraction is possible.

have been measured in detail. All the data have been taken on the IN6 time-of-flight instrument at the ILL. In this instrument, the wavelength of the incident neutrons is selected by Bragg reflection on graphite crystal monochromators. An incident beam wavelength of 0.512 nm was selected. The beam is then conditioned in short packets of monochromatic neutrons by a Fermi chopper. After interacting with the sample, the neutrons are scattered in multiple directions depending on the momentum transfer in the process of creating excitations. They are finally collected by a detector bank covering a wide angular range, from 10° to 115° . The time of arrival of each neutron as well as the scattering angle are registered. From this information we obtain the double differential cross-section, and hence the dynamical structure factor of the system:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial t} &= \frac{dE_{|k'|}}{dt} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E_{|k'|}} \\ &= \frac{N\sigma}{2\pi \sqrt{E_{|k|}}} \left(\frac{m}{2}\right)^{3/2} \frac{L^3}{t^4} \cdot S(Q, \omega) \end{aligned} \quad (11)$$

where $\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial t}$ is the double differential cross-section which yields the number of scattered neutrons per unit of time in a solid angle $d\Omega$. N is the number of scattering centers, L the distance between the sample and the detectors, t the time of arrival of neutrons, m their mass, $E_{|k|}$ and $E_{|k'|}$ are respectively the energy of incident and scattered neutrons.

6

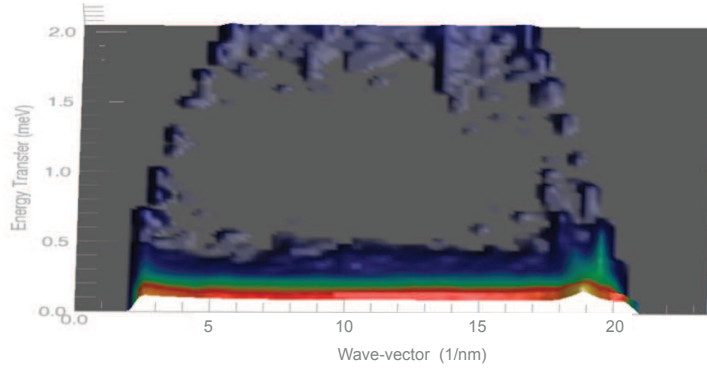


Fig. 3 Schematic representation of the dynamical structure factor of the bare graphite substrate. The intensity is represented in the third dimension in a logarithmic scale. The signal at low energies corresponds to very high intensities, but significant background is also present elsewhere, seen as spots. Measurement is possible only in the central, uniform part of the [E,Q] area, where background is comparable to the very weak ^3He signal.

5 Neutron measurements and background subtraction

The experimentally accessible phase space in the (Q, ω) plane is determined using the equation:

$$Q^2 = \frac{2\pi}{\lambda} \left(1 - \frac{\hbar\omega}{2E_{|k|}} - \sqrt{1 - \frac{\hbar\omega}{E_{|k|}} \cos(\phi)} \right) \quad (12)$$

where ϕ is the angle at which the detectors are located, λ the wavelength of the incident neutrons, $\hbar\omega$ and Q are respectively the energy and momentum transfer. The lines in figure 2 represent different constant angles (i.e. detectors) in the range from 10° to 115° . In principle all the region encompassed by the lines corresponding to angles between 10° and 115° and energies from zero to that of the incident neutrons, is accessible experimentally. In practice, however, good statistics and an accurate subtraction of background is obtained in a much smaller region of the phase space (dashed frame in figure 2). This is due to the combination of several effects, which lead to the background depicted in figure 3:

1. The region at high energy transfers ($\hbar\omega > 1.8$ meV) is contaminated by frame-overlap. The effect is due to simultaneous detection of slow neutrons of a packet and fast neutrons of the following one. Exploration of $S(Q, \omega)$ of ^3He in this region becomes difficult.
2. At low energy transfers ($\hbar\omega < 0.3$ meV), the graphite elastic peak at $Q = 19 \text{ nm}^{-1}$ (Bragg peak) is very intense. Moreover, the adsorption of helium layers leads to a reduction of the finite size effects associated with the graphite powder, i.e., the scattering planes represented by the helium adsorbed layers can be seen as increasing the rather small number of graphite planes of each graphite platelet, and hence leading to a better definition of the corresponding

diffraction peak, and therefore to a reduction of the width of the graphite's elastic signal (see [17] and references therein). Subtraction of the background for such momentum transfers requires a delicate fitting procedure.

3. At high wave-vector transfers, a phonon branch is observed in the substrate spectra (see figure 3). The additional neutron counts in the background increase the statistical uncertainty in this region. However, this feature is useful to check the accuracy of background subtraction after performing corrections for neutron absorption by the ^3He .
4. No supplementary contributions to the background are observed when ^4He atoms are introduced in the cell. The background changes slightly, in particular due to interference effects mentioned before, but no new feature is observed. Indeed, because of its high density, the Bragg peak of the ^4He layer is located at $Q = 22.6 \text{ nm}^{-1}$ and is thus outside the experimentally accessible wave-vector region.

For the reasons listed above, the dynamical structure factor $S(Q, \omega)$ of the ^3He layer can be determined reliably only in the region delimited by the dashed frame of figure 2. The static structure factor $S(Q)$ is calculated here by integrating, over energies, the dynamical structure factor. The energy range where this can be done is clearly limited, but we shall see below that the important contributions to $S(Q)$ are essentially captured.

6 Results and discussions

Figure 4 shows a cut of $S(Q, \omega)$ at the wave-vector $Q = 17.5 \text{ nm}^{-1}$. Note that by integrating the dynamical structure factor in a range $0.3 < \hbar\omega < 1.8 \text{ meV}$, a non-negligible part of the signal from the particle-hole band is not taken into account. By comparing figure 2 and 3 (see also ref [1]), it is clear that below wave-vectors on the order of 15 nm^{-1} both the particle-hole band and the collective zero-sound mode, which carry most of the spectral weight, will be correctly integrated, while above this value, part of the particle-hole band will be left out of the integration interval. Fortunately, contrarily to early RPA predictions, the particle-hole band weight at high wave-vectors is concentrated at low energies; hence the fraction lost in the integration is moderate, as can be seen from figure 4.

Despite the experimental difficulties, we were able to extract the static structure factor $S(Q)$ from the experimental data with reasonable accuracy. In figure 5, we compare the experimental $S(Q)$ with the results of DMBT and Quantum Monte Carlo simulations. The data are essentially 'neutron counts' normalized to different experimental parameters (incident flux, spectrometer geometry, sample dimensions, etc...); they are proportional to the structure factor, but unfortunately they cannot be normalized with sufficient accuracy to infer absolute values of this magnitude. For this reason, the data expressed in arbitrary units have been normalized to agree with theory at $Q = 5.5 \text{ nm}^{-1}$, a region where the precision of experiments is good, and where they capture all the expected inelastic contributions to $S(Q)$.

We observe a good agreement in the region of low wave-vectors, in particular a significant shoulder is seen in the $S(Q)$ data which corresponds well to the theoretical predictions. At $Q \approx 12 \text{ nm}^{-1}$ the particle hole-band leaves the frame where

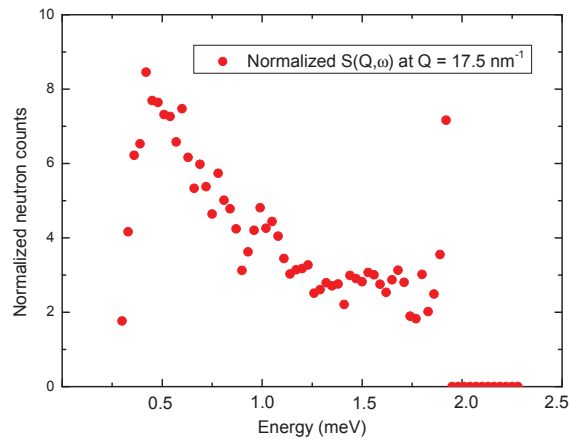


Fig. 4 Experimental $S(Q,\omega)$ for the wave-vector $Q = 17.5 \text{ nm}^{-1}$ as a function of energy. The figure shows the range where the integral over energy can be performed reliably. The large intensity measured at the highest energies is due to frame-overlap.

$S(Q,\omega)$ is integrated, and the experimental value of $S(Q)$ starts to diverge from the theoretical curves. Nevertheless, because of the high intensity and the low energy of the roton-like minimum, a maximum of $S(Q)$ is found. Then the signal collapses because the integration of the particle-hole band is carried over a limited region. A reasonable semi-quantitative agreement is obtained between theory and experiment. The peak in $S(Q)$ is seen to coincide with the theoretical equivalent feature, confirming the accuracy of the determination of the layer's density. This magnitude is important, and difficult to obtain; it was determined previously by indirect means (adsorption isotherms and neutron diffraction at higher coverages on the solid phases, where Bragg peaks are seen) [1, 15]. Note that the wave-vector corresponding to the roton minimum, that of the maximum in $S(Q)$, and 2π divided by the interparticle distance are related (but different) quantities of similar atomic dimensions, and that only an accurate many-body theory will be able to establish a quantitative relation among them [10, 13]. They also have different dependencies on density. For these reasons, comparing directly the theoretical and experimental values of $S(Q)$ is a particularly valuable tool to infer the actual density of the liquid layer.

7 Conclusions

We presented in this article a comparison between the static structure factor of a two-dimensional Fermi liquid, a ^3He film adsorbed on a graphite substrate pre-

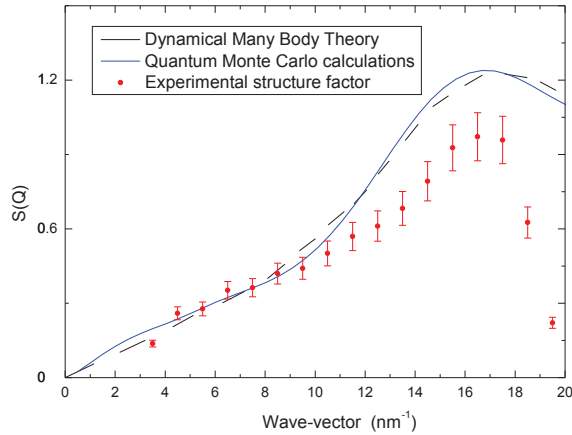


Fig. 5 $S(Q)$ obtained experimentally compared to theoretical calculations: the Dynamical Many-Body Theory and Monte Carlo simulations. The error bars on the experimental data only reflect statistical uncertainties; the systematic deviation at large wave-vectors is due to the finite integration range, see text.

plated with a solid ^4He layer. The large background of such a system makes difficult the determination of $S(Q)$ by direct methods as neutron diffraction. Using inelastic neutron scattering data measured on the instrument IN6 at the ILL, we were able to deduce the static structure factor by integrating $S(Q, \omega)$ in an energy range covering a large fraction of the inelastic contributions. The comparison with theory shows important features: at low wave-vectors a good agreement with theory is observed. A shoulder is seen as predicted by the Dynamical Many-Body Theory and Quantum Monte Carlo simulations. At high wave-vectors a maximum is obtained around $Q = 16 \text{ nm}^{-1}$, value where a roton-like mode has been seen in $S(Q, \omega)$ [1], in good agreement with the theoretical calculations. This feature provides an independent check of the film density determination. Deviations from the theoretical curves observed at very high wave-vectors can be accounted for semi-quantitatively by the limited experimental energy range. The elaborated procedure used to separate the signal of the ^3He layer from the background turns out to be essential for extracting $S(Q)$ with reasonable accuracy from the inelastic data.

Acknowledgements This work was supported by the EU FRP7 low-temperature infrastructure grant Microkelvin (project number 228464), the French-Austrian grant High-Q Fermions (ANR-2010-INTB-403-01 and FWF-P21264), and the Institut Laue-Langevin through the use of the neutron facility. Discussions with Ph. Nozières, H. Böhm, E. Krotscheck, M. Panholzer, J. Boronat, M. Holzmann, S. Hernandez and J. Navarro are gratefully acknowledged.

References

1. H. Godfrin, M. Meschke, H.-J. Lauter, A. Sultan, H. Böhm, E. Krotscheck and M. Panholzer, Observation of a roton collective mode in a two-dimensional Fermi liquid, *Nature*, 483, 576-579 (2012).
2. D.S. Greywall, Heat capacity of multilayers of ^3He adsorbed on graphite at low millikelvin temperatures, *Phys. Rev. B* 41, 1842-1862 (1990).
3. K.D. Morhard, C. Bäuerle, J. Bossy, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher and H. Godfrin, Two-dimensional Fermi liquid in the highly correlated regime: the second layer of ^3He adsorbed on graphite, *Phys. Rev. B* 53, 2658-2661 (1996).
4. C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, A.S. Chen, S.N. Fisher and H. Godfrin, Ultra-low temperature magnetic properties of liquid ^3He films, *J. of Low Temp. Phys.* 110, 333-338 (1998).
5. A. Casey, H. Patel, J. Nyéki, B.P. Cowan, and J. Saunders, Strongly correlated two-dimensional fluid ^3He , *J. of Low Temp. Phys.* 113, 293-298 (1998).
6. M. Neumann, J. Nyéki, B.P. Cowan, and J. Saunders, Bilayer ^3He : a simple two-dimensional heavy-fermion system with quantum criticality, *Science* 317, 1356-1359 (2007).
7. H. W. Jackson and E. Feenberg, Energy Spectrum of Elementary Excitations in Helium II, *Rev. Mod. Phys.* 34, 686 (1962)
8. E. Feenberg, *Theory of Quantum Fluids*, Academic, New York, (1969)
9. C. E. Campbell and E. Krotscheck, Dynamic many-body theory: Pair fluctuations in bulk ^4He , *Phys. Rev. B* 80, 174501 (2009)
10. H.M. Böhm, R. Holler, E. Krotscheck and M. Panholzer, Dynamic many-body theory: Dynamics of Strongly Correlated Fermi Fluids, *Phys. Rev. B* 82, 224505 (2010).
11. R. Hobbinger, R. Holler, E. Krotscheck and M. Panholzer, Multi-pair and exchange effects in the dynamic structure of two-dimensional ^3He , *J. of Low Temp. Phys.* (this issue)
12. J. Boronat, J. Casulleras, V. Grau, E. Krotscheck and J. Springer, Effective mass of two-dimensional ^3He , *Phys. Rev. Lett.* 91, 085302 (2003)
13. H.R. Glyde, *Excitations in Liquid and Solid Helium*, Clarendon Press, Oxford (1994).
14. A.H. Castro Neto and E. Fradkin, Bosonization of Fermi liquids, *Phys. Rev. B* 49, 16 (1994).
15. A. Sultan, H. Godfrin, M. Meschke, H.-J. Lauter, H. Schober, H. Böhm, R. Holler, E. Krotscheck and M. Panholzer, Two-dimensional Fermi liquids sustain surprising roton-like plasmons beyond the particle-hole band, *Journal of Physics: Conference Series* 340, 012078 (2012).
16. H. Godfrin, M. Meschke, H.-J. Lauter, H.M. Böhm, E. Krotscheck, M. Panholzer, Observation of Zero-Sound at Atomic Wave-Vectors in a Monolayer of Liquid ^3He , *J. of Low Temp. Phys.* 158, 147-154 (2010).
17. H. Godfrin and H.J. Lauter, *Progress in Low Temp. Physics*, Vol.XIV, Chapter 4, p.213-320, ed. W.P. Halperin, Elsevier Science B.V., Amsterdam (1995).

Bibliographie

- [Andres 1975] K Andres et W. O. Sprenger. Proc., 14th Int. Conf, Low Temp. Phys., ed. by M. Krusius and M. Vuorio, vol. Vol. 1, page 123, North-Holland, Amsterdam 1975.
- [Ashcroft 2002] N.W. Ashcroft et N.D. Mermin. Physique des solides. EDP Sciences, 2002.
- [Bacon 1962] G.E. Bacon. Neutron diffraction. OXFORD, 1962.
- [Bauerle 1996] C. Bauerle. *L'³He adsorbé sur le graphite : Un système modèle ppour l'étude des fermions en interaction à deux dimensions*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 1996.
- [Bohm 2010] R. ; Krotscheck E. Bohm H.M. ; Holler et Panholzer ; M. *Dynamic many-body theory : Dynamics of strongly correlated Fermi fluids*. Phys. Rev. B, vol. 82, 2010.
- [Brunauer 1938] PH Teller E Brunauer S ; Emett. J. Am. Chem. Soc., vol. 60, page 309, 1938.
- [Conte 1970] R. R. Conte. Elements de cryogénie. Masson et Cie, 1970.
- [de Waele 2011] A.T.A.M. de Waele. *Basic operation of cryocoolers and related thermal machines*. Journal of Low Temperature Physics, vol. 164, 2011.
- [Egelstaff 1965] P.A. Egelstaff. Thermal neutron scattering. Academic Press : London and New York, 1965.
- [Etaati 2006] M.A. Etaati, R.M.M. Mattheij, A.S. Tijsseling et A.T.A.M. de Waele. *One dimensional analytical and numerical models of the pulse tube cooler*. Proceedings of the 14th international conference on cryocoolers, 2006.
- [Frossati 1978] Giorgio Frossati. *Obtention d'ultrabasses températures en régime continu, par dilution ³He-⁴He classique. Application aux méthodes de réfrigération transitoire. Thermométrie et étude de quelques systèmes*. Thèse de doctorat, Université scientifique et médicale et l'institut national polytechnique de Grenoble, 1978.
- [Glyde 1994] H. R. Glyde. Excitations in liquid and solid helium. Oxford Science Publications, 1994.
- [Glyde 2000] H. R. Glyde, B. Fåk, N. H. van Dijk, H. Godfrin, K. Guckelsberger et R. Scherm. *Effective mass, spin fluctuations, and zero sound in liquid ³He*. Phys. Rev. B, vol. 61, pages 1421–1432, Jan 2000.
- [Godfrin 1981] Henri Godfrin. *Magnétisme nucléaire de l'³He à 2 et 3 dimensions*. Thèse de doctorat, l'Université scientifique et médicale et l'Institut national polytechnique de Grenoble, 1981.
- [Godfrin 1995a] H-J Godfrin H. ; Lauter. Progress in Low Temp. Physics, vol. Vol. XIV, pages 213–320, 1995.
- [Godfrin 1995b] R.E. Godfrin H. ; Rapp. Advances in Physics, vol. 44, page 113, 1995.
- [Godfrin 2012] Henri Godfrin, Matthias Meschke, Hans-Jochen Lauter, Ahmad Sultan, Helga M. Bohm, Eckhard Krotscheck et Martin Panholzer. *Observation of a roton collective mode in a two-dimensional Fermi liquid*. Nature, vol. 483, no. 7391, pages 576–579, Mars 2012.
- [Greywall 1990] D.S. Greywall. Phys. Rev. B, vol. 41, page 1842, 1990.
- [Guglielmo 2008] V. Guglielmo et L. Risegari. The art of cryogenics. Elsevier, 2008.

- [Gurevich 1968] I.I. & Tarasov L.V. Gurevich. Low temperature neutron physics. North Holland Publishing company, Amsterdam, 1968.
- [He 2006] Ya-Ling He, Jing Huang, Chun-Feng Zhao et Ying-Wen Liu. *First and second law analysis of pulse tube refrigerator*. Applied Thermal Engineering, vol. 26, no. 17-18, pages 2301 – 2307, 2006.
- [Hennion 2008] B. Hennion. Diffusion inélastique des neutrons pour l'étude des excitations dans la matière condensée, chapitre La diffusion inélastique des neutrons sur monocristal. Le spectromètre 3-axes, pages 357–378. EDP Sciences, 2008.
- [Kittel 1958] C. Kittel. Introduction à la physique de l'état solide : Traduit par e.-l. huguenin et r. papoular. Dunod, 1958.
- [Landau 1947] L.D. Landau. J. of Phys. Moscow, vol. 11, page 91, 1947.
- [Laumond 1972] Yves Laumond. *Contribution à l'étude des réfrigérateurs à dilution d'³He dans l'⁴He*. Thèse de doctorat, Faculté des sciences de l'université scientifique et médicale de Grenoble, 1972.
- [Lounasma 1974] O. V. Lounasma. Experimental principles and methods below 1 k. Academic Press : London and New York, 1974.
- [Marshall 1971] S.W. Marshall W. & Lovesey. Theory of thermal neutron scattering. Oxford Science Publications, 1971.
- [Miller 1962] D. & Nozière P. Miller A. & Pines. *Elementary excitations in liquid helium*. Physical Review, vol. 127(5), pages 1452–1464, September 1962.
- [Morhard 1996] C.; Bossy J.; Bunkov Y.M.; Fisher S.N.; Godfrin H. Morhard K.D.; Bauerle. Phys. Rev. B, vol. 53, page 2658, 1996.
- [Ollivier 2008] J.-M. Ollivier J. & Zanotti. Diffusion inélastique des neutrons par temps de vol. cours JDN, 2008.
- [Pines 1966] D. Pines et Nozière P. The theory of quantum liquids. W. A. Benjamin, 1966.
- [Pines 1981] D. Pines. *Elementary excitations in quantum liquids*. Physics Today, vol. 34, pages 107–131, Nov. 1981.
- [Pobell 2007] Franck Pobell. Matters and methods t low temperatures. Springer, 2007.
- [Prouvé 2007a] T. Prouvé, H. Godfrin, C. Gianèse, S. Triqueneaux et A. Ravex. *Pulse-tube dilution refrigerator below 10 mK for astrophysics*. Journal of Low Temperature Physics, vol. 148, 2007.
- [Prouvé 2007b] Thomas Prouvé. *Développement d'un réfrigérateur à dilution prérefroidi par un tube à gaz pulsé*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, 2007.
- [Ruvalds 1987] J. Ruvalds. *Are the plasmons the key to superconducting oxides?* Nature, vol. 388, page 299, 1987.
- [Scherf 2006] B. Scherf R. & Fåk. Neutron and x-ray spectroscopy, chap 11. Springer, 2006.
- [Schober 2008a] H. Schober. Les excitations dans la matière condensée. cours JDN, 2008.
- [Schober 2008b] H. Schober. Mesure des excitations par diffusion inélastiques de neutrons. cours JDN, 2008.
- [Sommerfeld 1964] Arnold Sommerfeld. Thermodynamics and statistical mechanics. Academic press, 1964.
- [Squires 1978] G.L. Squires. Introduction to thermal neutron scattering. Cambridge University Press, 1978.
- [Sultan 2012] A Sultan, H Godfrin, M Meschke, H J Lauter, H Schober, H BÅ¶hm, R Holler, E Krot-scheck et M Panholzer. *Two-dimensional Fermi liquids sustain surprising roton-like plasmons beyond the particle-hole band*. Journal of Physics : Conference Series, vol. 340, no. 1, page 012078, 2012.

- [Uhlig 2002a] Kurt Uhlig. *$^3\text{He}/^4\text{He}$ dilution refrigerator precooled by Gifford-McMahon cooler II. Measurements of the vibrational heat leak.* Cryogenics, vol. 42, 2002.
- [Uhlig 2002b] Kurt Uhlig. *$^3\text{He}/^4\text{He}$ dilution refrigerator with pulse-tube refrigerator precooling.* Cryogenics, vol. 42, 2002.
- [Uhlig 2004] Kurt Uhlig. *Dry dilution refrigerator with pulse-tube precooling.* Cryogenics, vol. 44, 2004.
- [Uhlig 2008] Kurt Uhlig. *Condensation stage of a pulse tube pre-cooled dilution refrigerator.* Cryogenics, vol. 48, 2008.
- [van Hove 1954] L. van Hove. *Correlations in Space and Time and Born Approximation Scattering in Systems of Interacting Particles.* Phys. Rev., vol. 95, page 249, 1954.
- [van Sciver 1978] O.E. van Sciver S.W.; Vilches. Phys. Rev. B, vol. 18, page 285, 1978.
- [Volovik 2003] Grigori E. Volovik. *The universe in a helium droplet.* Oxford Science Publications, 2003.
- [Wang 2002] C. Wang et P.E Gifford. *Developpement of 4K pulse tube cryorefrigerators at cryomech.* Advances in Cryogenic Engineering : Proceedings of the cryogenic Engineering conference, vol. 47, 2002.
- [Wang 2008] C. Wang. *Intermediate cooling from pulse tube and regenerator in a 4K pulse tube cryocooler.* Cryogenics, vol. 48, 2008.
- [White 1979] Guy K. White. *Experimental techniques in low temperature physics.* Oxford Science publications, 1979.
- [Zhu 001] S Zhu, M Nogawa et T Inoue. *4K pulse tuberefrigerator and excess cooling power.* cryocoolers 11, Kluwer Academic/plenum Publishers p. 243-248, New York (2001).

Résumé

Dynamique dans les fluides quantiques : étude des excitations collectives dans un liquide de Fermi 2D

Résumé : L' ^4He et l' ^3He sont des systèmes modèles pour comprendre les propriétés quantiques de la matière fortement corrélée. C'est pour cette raison que plusieurs études ont été consacrées à la compréhension de leur dynamique. A basses températures où les effets quantiques jouent un rôle essentiel les excitations élémentaires dans l' ^4He sont décrites par un mode collectif d'excitations : phonon-roton. Par contre pour un système d' ^3He la description est plus complexe, le spectre d'excitation a deux composantes : un mode collectif (zéro-son) et un continuum d'excitations incohérentes de type particule-trou. Les deux sont bien décrites par la théorie de Landau des liquides de Fermi qui trouve sa validité pour des petits vecteurs d'onde. Jusqu'à présent, on supposait que la dynamique dans les liquides de Fermi à vecteurs d'onde élevés était essentiellement incohérente. Cette thèse porte sur l'exploration, par diffusion inélastique de neutrons, des excitations collectives dans l' ^3He liquide 2D adsorbé sur un substrat de graphite. Un tel travail expérimental requiert trois ingrédients essentiels : un réfrigérateur à dilution afin de travailler à basses températures, un spectromètre temps de vol afin de mesurer le facteur de structure dynamique du système et un substrat solide (graphite exfolié ZYX) pour la préparation de films d' ^3He -2D par physisorption. Nos expériences sur ces films d' ^3He déposés en deuxième couche sur de l' ^4He solide adsorbé sur le graphite nous ont permis de faire les observations suivantes : à petit vecteur d'onde, le zéro-son est plus proche de la bande particule-trou que celui observé dans le cas de l' ^3He massif, tandis qu'à fort vecteur d'onde le mode collectif entre dans le continuum et réapparaît de l'autre côté. Cette nouvelle branche, observée pour la première fois, est aujourd'hui décrite par la théorie dynamique à N-corps développée par nos collaborateurs de l'université Johannes Kepler de Linz, Autriche. Au cours de ce travail de thèse plusieurs techniques expérimentales ont été développées, en particulier, un réfrigérateur à dilution sans fluide cryogénique robuste adapté à des expériences de diffusion neutroniques. Son optimisation a permis de réduire le temps de refroidissement de ce type de réfrigérateurs.

Mots clefs : fluides quantiques, ^3He , liquide de Fermi 2D, ^4He , excitations collectives, zéro-son, phonon-roton, dilution, tube à gaz pulsé, thermométrie

Abstract

Dynamics in Quantum fluids : Study of collective excitations in a two-dimensionnal Fermi liquid

Abstract : ^4He and ^3He are model systems for understanding quantum properties of strongly interacting matter. For this reason many studies have been devoted for the understanding of their dynamics. At low temperatures at which quantum effects play an essential role, the elementary excitations in ^4He are described by a phonon-roton collective mode. For ^3He , the physical description is more complicated, the spectrum has two components : collective excitations (zero-sound) and incoherent particle-hole excitations. Both are described by Landau's theory of Fermi liquids which is valid at low wave vectors. So far, it was thus believed that the dynamics at high wave vectors is essentially incoherent. This thesis is mainly concerned by exploring the collective excitations of a two dimensionnal ^3He film adsorbed on graphite, using inelastic neutron scattering. Such an experiment has three main requirements : a dilution refrigerator in order to work at low temperatures, a time of flight spectrometer for measuring the dynamical structure factor of ^3He and a solid substrate (exfoliated graphite ZYX) to obtain a two dimensionnal film by physical adsorption. Our investigations of the dynamics in two-dimensionnal ^3He adsorbed on graphite preplated with ^4He films have revealed important features : At low wave-vectors, the zero sound mode is considerably depressed compared to bulk ^3He . At higher wave vectors, the collective excitations branch enters the particle-hole continuum, and reappears at the lower energy branch of the continuum. This new branch, observed for the first time, is described by the dynamic many-body theory developed by our collaborators from Johannes Kepler University, Linz, Austria. During this work several low temperature techniques have been developed, in particular a robust, cryogen-free dilution refrigerator adapted to the demanding conditions of a neutron scattering experiments. Due to its efficient design, the cooling time has been considerably reduced compared to that of refrigerators of the same type developed in the past.

Keywords : Quantum fluids, ^3He , 2D Fermi liquid, ^4He , collective excitations, zero-sound, phonon-roton, dilution, pulse tube, thermometry
