HAL
open science

Etude et réalisation d'une ADR spatiale 4 K - 50 mK

Diego Augusto Paixao Brasiliano

To cite this version:

Diego Augusto Paixao Brasiliano. Etude et réalisation d'une ADR spatiale 4 K - 50 mK. Instrumentation et méthodes pour l'astrophysique [astro-ph.IM]. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAY028 . tel-01688809

HAL Id: tel-01688809

https://theses.hal.science/tel-01688809v1

Submitted on 19 Jan 2018

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.

Communauté UNIVERSITÉ Grenoble Alpes

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **PHYSIQUE APPLIQUÉE**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Diego Augusto PAIXAO BRASILIANO

Thèse dirigée par **Nicolas LUCHIER**
et encadrée par **Jean-Marc DUVAL**

préparée au sein du **CEA/SBT**
dans **l'École Doctorale de Physique**

Étude et réalisation d'une ADR spatiale 4 K – 50 mK

Thèse soutenue publiquement le **15 mai 2017**,
devant le jury composé de :

Madame Patricia DE RANGO
Directrice de recherche, Institut Néel, Présidente
Monsieur Grégoire BONFAIT
Professeur, Universidade Nova de Lisboa, Rapporteur
Monsieur Thomas MAZET
Professeur, Université de Lorraine, Rapporteur
Monsieur Jean-Luc SAUVAGEOT
Ingénieur chercheur, CEA - Saclay, Examinateur

Remerciements

Je remercie les membres du jury pour avoir soigneusement analysé mes travaux de recherche.

Je tiens à remercier mon directeur de thèse, Nicolas LUCHIER, et mon encadrant, Jean-Marc DUVAL, pour leur inestimable soutien présent tout au long de cette thèse. Je remercie le support technique apporté par le personnel du Laboratoire Cryoréfrigérateurs et Cryogénie Spatiale (LCCS) du Service des Basses Températures (SBT) du CEA de Grenoble, en particulier Jean-Louis DURAND. Merci à Florian BANCEL, du bureau d'études du SBT, pour son implication lors de la conception du prototype ADR issu de mes travaux de thèse.

Je remercie nos partenaires du service PHotonique, ÉLectronique et Ingénierie QuantiqueS (PHELIQS) pour les travaux menés ensemble pour l'étude, la synthèse et la caractérisation des composés paramagnétiques, en particulier Christophe MARIN et Mike ZHITOMIRSKY.

J'adresse mes remerciements aux entités qui ont cofinancé mes travaux de thèse, le CEA et le CNES, en les personnes de Lionel DUBAND, chef du SBT, et Stéphane D'ESCRIVAN et Jérôme ANDRE, mes responsables au CNES.

Merci à tous mes collègues de mon laboratoire d'accueil, le SBT, pour la bonne ambiance de travail, ce qui a rendu cette expérience riche du côté technique et humain.

Finalement, merci à mes parents pour leur soutien inconditionnel et toujours présent malgré la grande séparation géographique.

Nomenclature

Acronymes

EMC	Effet magnétocalorique	
Re	Ion de la famille 4f (terres-rares)	

Constantes physiques

k	Constante de Boltzmann	$1.3806\times10^{-23}\,\mathrm{J\,K^{-1}}$
μ_0	Permeabilité magnétique du vide	$4\,\pi\times10^{-7}\,\mathrm{T\ m\,A^{-1}}$
μ_B	Magnéton de Bohr	$9.274\ \times10^{-24}\,\mathrm{J\,T^{-1}}$
N_a	Nombre d'Avogadro	$6.022\ \times10^{23}\,\mathrm{mol^{-1}}$
R	Constante universelle des gaz parfaits	$8.314\ \mathrm{J\ mol^{-1}\,K^{-1}}$

Symboles

n	Moles d'ions magnétiques par mole de composé	
$\mathrm{M_{mol}}$	Masse molaire	$\mathrm{g\,mol^{-1}}$
$\mathrm{N_0}$	Concentration volumique d'ions magnétiques	$\mathrm{ions\ m^{-3}}$
ρ	Masse volumique	$\mathrm{kg\,m^{-3}}$
ρ_mol	Densité molaire	$\mathrm{mol\,m^{-3}}$
g	Facteur de Landé	
J	Moment angulaire total	
L	Moment angulaire orbital	
S	Moment angulaire électronique	
M	Aimantation volumique	$\mathrm{A\,m^{-1}}$
$\mathrm{T_{carac}}$	Température caractéristique	K
$\mathrm{T_C}$	Température critique/de transition magnétique	K
B_J	Fonction de Brillouin	

x	Paramètre adimensionnel de la fonction de Brillouin	
B_{int}	Champ interne	T
S_0	Entropie à champ nul	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
		$J\ m^{-3}\ K^{-1}$
ΔS_0	Réduction d'entropie à champ nul	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
		$J\ m^{-3}\ K^{-1}$
S_B	Entropie à champ B	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
		$J\ m^{-3}\ K^{-1}$
S_{max}	Entropie maximum d'un ensemble d'ions magnétiques	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
		$J\ m^{-3}\ K^{-1}$
S_{disp}	Entropie disponible	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
		$J\ m^{-3}\ K^{-1}$
C_0	Chaleur spécifique à champ nul	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
C_B	Chaleur spécifique à champ constant	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
C_P	Chaleur spécifique à pression constante	$J\ mol^{-1}\ K^{-1}$
B_{max}	Champ magnétique maximum appliqué	T
T_{chaud}	Température chaude	K
T_{froid}	Température froide	K
E_{chaud}	Énergie totale transferée à T_{chaud}	J
E_{froid}	Énergie totale absorbée à T_{froid}	J
E_{disp}	Énergie disponible	$J\ m^{-3}\ K^{-1}$
P_{utile}	Puissance utile de l'étage	W

Table des matières

Nomenclature **7**

Introduction générale **15**

1 Introduction **17**
1.1 Contexte 17
1.2 Fonctionnement des ADRs 19
1.2.1 Cycle thermodynamique : le cycle de Carnot magnétique 20
1.2.2 Couplage de plusieurs étages 22
1.3 Les composants des réfrigérateurs ADR 24
1.3.1 Matériaux paramagnétiques et leur capsules 24
1.3.2 Interrupteurs thermiques 26
1.3.3 Système magnétique 27
1.4 Revue de systèmes existants 28
1.5 Axes de travail 32

2 Choisir les matériaux paramagnétiques **33**
2.1 Propriétés élémentaires des matériaux paramagnétiques 33
2.1.1 Effet magnétocalorique 34
2.1.2 Le paramagnétique parfait 35
2.1.2.1 Entropie maximum 35
2.1.2.2 Modèle des ions libres 35
2.1.2.3 Moment angulaire et facteur de Landé 36
2.1.3 Interactions 38
2.1.3.1 Entropie à champ nul 38
2.1.3.2 Moment angulaire effectif et facteur de Landé 41
2.2 Sélection préliminaire des matériaux 43
2.2.1 Revue de la littérature 43
2.2.2 Entropie disponible 47
2.2.2.1 Demandes antagonistes 48
2.2.3 Température caractéristique 48

2.2.3.1 Concentration volumique d'ions magnétiques 49
2.2.4 Cartographie (S_{max}, T_{carac}) 51
2.2.5 Cartographie ($S_{max} \cdot g$, T_{carac}) 52
2.2.6 Matériaux potentiels 53
2.3 Sélection fine des matériaux 54
2.3.1 Modèle des ions libres avec champ interne 54
2.3.1.1 Champ interne à partir des courbes d'entropie à champ nul 55
2.3.1.2 Comparaison avec des diagrammes d'entropie sous champ 57
2.3.2 Matériaux minimisant la masse de l'ADR 58
2.4 Matériaux potentiels 60

3 Synthèse et caractérisation des matériaux paramagnétiques 61
3.1 Synthèse des matériaux sélectionnés 62
3.1.1 Procédure expérimentale 63
3.1.1.1 Préparation du barreau d'apport 64
3.1.1.2 Conditions de croissance 64
3.2 Caractérisation du composé paramagnétique 67
3.2.1 Rayons-X 67
3.2.1.1 Sur poudres 67
3.2.1.2 Sur monocristaux 68
3.2.2 Propriétés magnétocaloriques 69
3.2.3 Aimantation 69
3.2.3.1 Principe de la mesure 69
3.2.3.2 Résultats expérimentaux 70
3.2.4 Chaleur spécifique sous champ 74
3.2.4.1 Principe de la mesure 74
3.2.4.2 Résultats expérimentaux 75
3.2.4.3 Récapitulatif : des caractérisations initiales encourageantes 77
3.3 Caractérisation d'une capsule complète 77
3.3.1 Objectifs 78
3.3.2 Dispositif expérimental 78
3.3.2.1 Conception de la capsule 79
3.3.2.2 Banc de mesure 80
3.3.3 Pertes parasites 81
3.3.3.1 Principe 81
3.3.3.2 Résultats 82
3.3.4 Conductance thermique 83
3.3.4.1 Principe 83
3.3.4.2 Résultats 84

3.3.5 Chaleur spécifique 85
3.3.5.1 Principe 85
3.3.5.2 Résultats 86
3.3.6 Énergie disponible à température constante 86
3.3.6.1 Principe 86
3.3.6.2 Résultats 87
3.3.7 Désaimantation adiabatique 90
3.3.7.1 Principe 90
3.3.7.2 Résultats 91
3.4 Conclusions 93

4 Étude des effets transitoires parasites dans les interrupteurs à gaz 95
4.1 Fonctionnement d'un interrupteur à gaz d'échange 95
4.1.1 Conductance ON et OFF 96
4.1.2 Transition ON-OFF 97
4.2 Les phénomènes de transition 98
4.2.1 Temps de coupure 99
4.2.2 Connexions thermiques intermittentes 99
4.2.2.1 Conductance hydraulique 100
4.2.2.2 Solution proposée : ajout d'orifices de pompage 101
4.3 Vérification expérimentale 102
4.3.1 Configurations 102
4.3.2 Mise en œuvre expérimentale 103
4.3.3 Remplissage des interrupteurs 104
4.4 Expériences en présence de liquide 105
4.4.1 Mise en évidence de la présence de liquide 105
4.4.1.1 Preuve de la présence de liquide 107
4.4.1.2 Effet de la température maximum de la mini-pompe . . . 108
4.4.2 Effet de la conductance hydraulique 109
4.4.2.1 Effet des orifices de pompage 109
4.4.2.2 Impact du diamètre du tube de pompage 110
4.5 Oscillations et courts-circuits thermiques 112
4.5.1 Paramètres 112
4.5.2 Procédure expérimentale 113
4.5.3 Cas typique d'observation des oscillations 113
4.6 Étude expérimentale des oscillations thermiques 115
4.6.1 Température des extrémités en phase ON 115
4.6.2 Vitesse de montée en température 117
4.6.3 Température de l'intercept du tube de pompage 119

4.6.4 Température maximum de la mini-pompe 119
4.6.5 Conclusions 120
4.7 Expériences en conditions isothermes 121
4.7.1 Procédure expérimentale 122
4.7.2 Résultats expérimentaux 122
4.7.2.1 Vitesse de montée en température 124
4.7.2.2 Énergie due aux pertes parasites 126
4.8 Conclusions 127

5 Étude et dimensionnement du prototype 4 K - 50 mK 129
5.1 Paramètres clés de chaque élément du système 129
5.1.1 Principes du dimensionnement d'un étage 130
5.1.2 Composés paramagnétiques 130
5.1.3 Interrupteurs thermiques 131
5.1.4 Systèmes magnétiques 132
5.1.4.1 Contraintes d'écrantage 132
5.1.4.2 Modélisation magnétique 133
5.1.4.3 Densité de courant maximum 134
5.2 Étude du système complet 134
5.2.1 Configuration 135
5.2.2 Cycle de base 135
5.2.2.1 Cycle à simple recyclage 136
5.2.2.2 Cycle à double recyclage 136
5.2.3 Cycle initial 137
5.2.3.1 Démarrage à chaud direct 137
5.2.3.2 Démarrage à chaud direct avec pré-refroidissement 138
5.2.3.3 Démarrage à chaud avec pré-refroidissement 139
5.2.4 Choix 140
5.3 Pré-dimensionnement 140
5.3.1 Calcul d'un étage 140
5.3.1.1 Calcul de base d'un étage 140
5.3.1.2 Calcul de l'énergie froide 141
5.3.1.3 Calcul d'un étage optimisé 142
5.3.1.4 Application numérique 143
5.3.1.5 Estimation de l'erreur 144
5.3.2 Calcul d'une ADR multi-étagée 145
5.3.3 Optimisation du nombre d'étages 145
5.3.4 Influence des composés 147
5.4 Dimensionnement du prototype 148

5.4.1 Configuration 148
5.4.2 Recyclage 150
5.4.3 Détails et choix de conception mécanique 150
5.4.4 Pertes thermiques 152
5.4.4.1 Suspentes 152
5.4.4.2 Tubes de pompage des mini-pompes 153
5.4.4.3 Bilan des pertes 154
5.4.5 Composés et capsules paramagnétiques 155
5.4.5.1 Capsule de GGG 155
5.4.5.2 Capsules de CPA 155
5.5 Conclusions 157

Conclusions et perspectives **159**

Annexe **161**

Table des figures **165**

Liste des tableaux **173**

Bibliographie **175**

Résumé **186**

Abstract **186**

Introduction générale

La réfrigération à très basse température est un facteur clef pour assurer la sensibilité des détecteurs des missions d'astrophysique les plus sensibles. La mission Heschel par exemple a eu recours à une réfrigération à environ 300 mK pour deux de ses instruments, PACS et SPIRE (Duband *et al.*, 2008). Un autre exemple est la mission Planck, dont l'instrument HFI a été refroidi à 100 mK (Collaudin and Passvogel, 1999). Le besoin de température de la nouvelle génération de satellites se trouve autour de 50 mK. Les réfrigérateurs à désaimantation adiabatique (*Adiabatic Demagnetization Refrigerator* ou ADR) sont actuellement l'une des seules technologies permettant la réfrigération dans cette gamme de température qui présente à la fois la maturité technologique et les performances nécessaires pour les besoins de l'environnement spatial. Les ADRs ont été par exemple récemment utilisées dans le refroidissement des détecteurs de rayons-X de l'instrument SXS de la mission ASTRO-H. Elles constituent également le dernier bloc des chaines cryogéniques nominales pour le refroidissement des instruments ATHENA/X-IFU, pour l'observation de rayons-X et SPICA/SAFARI pour l'observation de l'infrarouge lointain.

Le travail de thèse présenté ici a pour objectif le développement d'une ADR efficace et de masse optimisée pour la gamme 4 K - 50 mK adaptée aux besoins de ces missions spatiales. Il a été réalisé au sein du Service des Basses Températures (SBT) du CEA de Grenoble. Les axes clefs de ce travail sont la mise au point d'une méthode d'identification de réfrigérants magnétiques (*i.e.* des matériaux paramagnétiques) les plus performants et le perfectionnement d'interrupteurs thermiques à gaz d'échange.

Dans le chapitre 1, nous présentons les technologies permettant la réfrigération à très basse température pour le domaine spatial. Nous insistons sur les éléments et le fonctionnement de base d'une ADR, pour ensuite discuter des efforts internationaux pour le développement de ces systèmes pour le spatial.

Des nombreux matériaux paramagnétiques peuvent être utilisés dans la gamme de température ciblée. Il est nécessaire de restreindre le choix à un nombre limité de composés prometteurs, qu'il faudra étudier plus en détails. Le chapitre 2 est dédié à la présentation

et à l'utilisation d'une méthode de sélection qui permet d'identifier ces composés prometteurs.

Le chapitre 3 est dédié à la synthèse et à la caractérisation des propriétés magnétocaloriques du YbGG ($Yb_3Ga_5O_{12}$), identifié dans le chapitre 2 pour être utilisé dans la gamme de 0.4 K à 1.5 K, ainsi qu'à la comparaison de ses performances par rapport au matériau de référence pour sa gamme d'utilisation, le sel CPA ($CrK(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$).

Le chapitre 4 est consacré à l'étude des phénomènes transitoires dans les interrupteurs thermiques à gaz d'échange développés au SBT. Ces interrupteurs présentent des excellentes performances en position ON (haute conductance thermique) et OFF (haute résistance thermique). Cependant, les conditions de travail du prototype que l'on proposera (*i.e.* historique thermique, gamme de température) donnent lieu à des phénomènes intermittents qui gênent leur fonctionnement lors du passage en position OFF ou lors de la montée en température de l'une de leurs extrémités en position OFF. Nous avons mis en évidence les conditions d'apparition et l'intensité de ces phénomènes et proposons des solutions pour les prévenir ou au moins limiter leur impact

Finalement, le chapitre 5 est dédié à l'étude et au dimensionnement d'une ADR multi-étagée pour répondre aux besoins de réfrigération des futures missions spatiales. Cette étude est appliquée au dimensionnement du prototype ADR fabriqué et qui sera caractérisé suite à cette thèse.

Chapitre 1

Introduction

1.1 Contexte

Une chaîne cryogénique typique pour le refroidissement des détecteurs est montrée sur la figure 1.1. Elle correspond à un schéma simplifié des chaînes réelles, notamment quant à l'utilisation des systèmes de redondance. Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons au dernier bloc permettant le refroidissement sous le Kelvin (« subkelvin »). Cette dernière brique est refroidie par un réfrigérateur à effet Joule-Thomson (JT). C'est, au moment de cette rédaction, le seul cryoréfrigérateur spatiale permettant d'avoir des températures de l'ordre de la température d'ébullition de l'hélium liquide (4.2 K) ou inférieure. Ces systèmes sont utilisés pour la production de températures qui varient typiquement entre 4.5 K - 1.7 K en fonction du choix du gaz de détente (^{3}He ou ^{4}He). Cependant, leur puissance froide baisse rapidement avec la température. On peut aussi mentionner les tubes à gaz pulsé très basse température qui ont démontré au laboratoire SBT des températures inférieures à 4 K (3.6 K exactement), mais supérieure à 3 K (Charrier, 2015). Des travaux sur ces tubes à gaz pulsé sont encore nécessaires pour obtenir la maturité exigée.

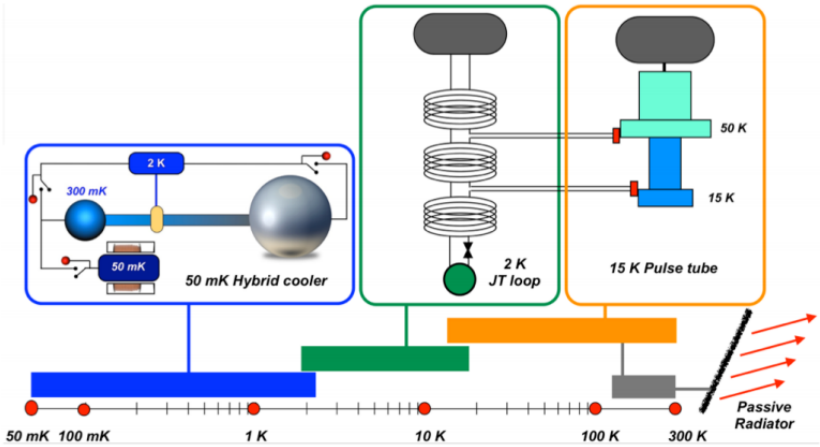


FIGURE 1.1 – Chaine cryogénique permettant un refroidissement à 50 mK.

Pour la réfrigération subkelvin, les technologies spatiales aujourd'hui disponibles sont les réfrigérateurs à désaimantation adiabatique, les réfrigérateurs à adsorption d'hélium et la dilution. Les premières, les ADR, sont bien adaptées pour l'environnement spatial et peuvent travailler dans la large gamme de température ciblée par nous : 4 K - 50 mK. Ils font l'objet de ce travail et sont décrits plus loin.

Les réfrigérateurs à adsorption sont bien connus au SBT, qui a conçu et réalisé ceux utilisés sur le satellite Herschel (Duband *et al.*, 2008). Les basses températures sont obtenues en pompant de l'^{3}He liquide. Dans les systèmes développés au SBT, une pompe à adsorption constituée des grains de charbon actif est utilisée. Le pompage est réalisé grâce à la capacité de piégeage de molécules de gaz de cette pompe en fonction de sa température. Cependant, cette technique est limitée à des températures de 200 mK environ. Seule, elle ne permet pas d'atteindre notre objectif de 50 mK. Le SBT développe aussi un prototype couplant l'adsorption avec un étage d'ADR (Luchier *et al.*, 2012). Mais une autre limitation est le besoin d'une source froide à une température inférieure à 3 K (ou largement sous 3.35 K, température critique du ^{3}He à 1 bar). C'est notamment pour s'affranchir de cette limitation que les travaux décrits ici ont été lancés.

La dilution ^{3}He/^{4}He a été utilisée pour le refroidissement des détecteurs à 100 mK du satellite Planck. Cette technique est fondée sur la variation d'entropie lors du mélange ou de la séparation des deux isotopes 3 et 4 de l'hélium. La dilution classique, utilisée pour des applications sols, nécessite l'usage de la gravité pour la séparation des phases du mélange. Une idée astucieuse fondée sur l'utilisation de capillaires de faibles dimensions a permis son utilisation pour le satellite Planck qui utilisait une dilution à cycle ouvert (Triqueneaux *et al.*, 2006). L'obtention de plus basse température, de durée de vie importante ($\sim$ 5 ans) et de puissance froide plus élevée ($\sim$ 0.5 µW par rapport à 0.1 µW pour Planck) rend cette technique inaccessible. Néanmoins, un concept innovant de dilution à cycle fermé insensible à la gravité est développé à l'institut Néel de Grenoble (Martin *et al.*, 2010). Cette solution utilise les propriétés de confinement capillaire d'une éponge pour localiser l'interface liquide-vapeur dans des environnements en micro-gravité. Ce système réalise une réfrigération à 50 mK continue. Pour cela, il utilise un réservoir thermique à 4.2 K pour le refroidissement d'une pompe à ^{3}He et il nécessite un pré-refroidissement à 1.7 K pour la condensation de l'^{3}He. Cette technologie possède une limitation encore plus stricte que le cryoréfrigérateur mentionné dans le paragraphe précédant, le besoin d'un pré-refroidissement au-dessous de 2 K environ.

Finalement il existe d'autres techniques pour le refroidissement à 50 mK, telle que la réfrigération par l'effet Pomeranchuk (Luchier, 2013), mais elles n'ont pas la maturité ou des performances suffisantes pour être considérées aujourd'hui.

1.2 Fonctionnement des ADRs

Historiquement, la désaimantation adiabatique a été la première méthode de réfrigération capable d'atteindre des températures significativement inférieures à 1 K. Dès 1933, la réfrigération par désaimantation adiabatique a été démontrée par Giauque et McDougall, et par De Haas, Wirsma et Kramers, en atteignant 0.53 K et 0.27 K respectivement (Pobell, 2007). Dans sa version électronique, la désaimantation adiabatique permet maintenant d'atteindre des températures de l'ordre de quelques mK et l'accès expérimental à cette nouvelle gamme de température a permis des avancées importantes dans différents domaines, tels que le magnétisme, la supraconductivité et les propriétés des isotopes ^{3}He et ^{4}He (Bromiley, 2000).

Les ADR sont des dispositifs qui utilisent les propriétés magnétiques des matériaux paramagnétiques pour la production du froid. La production de froid - ou de chaleur - est faite en soumettant le paramagnétique à des champs magnétiques variables. Le cœur d'une ADR est donc composé d'un réfrigérant magnétique (*i.e.* le matériau paramagnétique), d'une source de champ magnétique variable et d'un interrupteur thermique, comme représenté sur la figure 1.2.

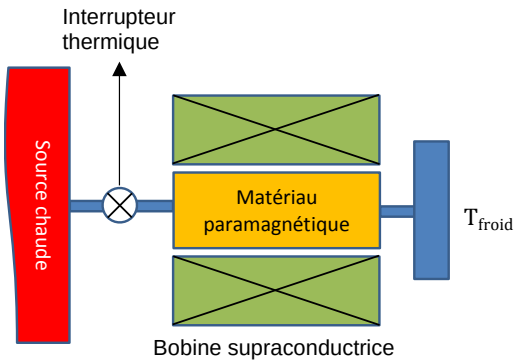


FIGURE 1.2 – Schéma d'un étage ADR avec ses éléments principaux.

La technique de la désaimantation adiabatique présente des caractéristiques intrinsèquement avantageuses pour la réfrigération spatiale. D'abord, son principe de fonctionnement est indépendant de la pesanteur. Ensuite, le système ne contient aucune pièce mobile et évite toute problématique de fiabilité associée aux pièces en mouvement et aux frottements. Après, les étages ADR travaillant dans les gammes de température et de puissance ciblées dans ce travail ont des coefficients de performance (COP) très proches des machines de Carnot. Finalement, les systèmes ADR peuvent couvrir de larges gammes de température tout en ayant des densités d'énergie suffisamment élevées pour l'obtention de systèmes relativement compacts et légers. Cependant, l'utilisation des champs magnétiques intenses impose des fortes contraintes d'écrantage pour que l'environnement ne soit pas perturbé. Ces dispositions induisent une masse et un volume élevé, en proportion du

volume du matériau paramagnétique et du champ magnétique employé.

Les réfrigérateurs envisagés pour les missions spatiales cryogéniques sont soumis à des fortes contraintes de compacité et de masse qui impactent à la fois le choix du matériau et la conception. Nous préciserons dans la suite de ce chapitre les notions de base du fonctionnement d'une ADR ainsi qu'une courte revue du développement de systèmes ADR pour l'espace. Nous finirons par présenter les voies d'étude adoptées dans ce travail en amont de la conception du prototype.

1.2.1 Cycle thermodynamique : le cycle de Carnot magnétique

Le principe de fonctionnent d'une ADR est fondé sur l'effet magnétocalorique : pendant son aimantation, le matériau paramagnétique se réchauffe en condition adiabatique ou transfert de la chaleur à une source thermique en condition isotherme. Ces phénomènes sont de nature réversible et peuvent être utilisés dans la constitution d'un cycle de réfrigération du type Carnot, représenté sur la figure 1.3.

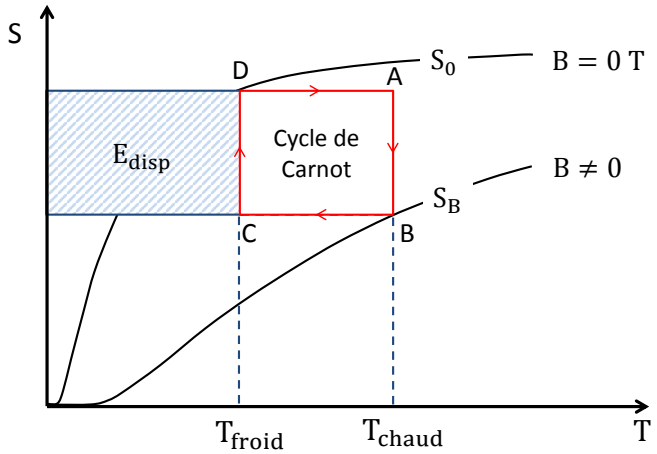


FIGURE 1.3 – Diagramme d'entropie du cycle de Carnot d'un matériau paramagnétique. Les transformations AB et CD sont isothermes et les transformations BC et DA sont adiabatiques. La zone hachurée correspond à l'énergie absorbée par le composé à la température froide.

Pendant l'étape AB, le matériau est aimanté de façon isotherme à T_{chaud} et transfert de la chaleur à la source chaude. Ensuite, il est désaimanté de façon adiabatique jusqu'à atteindre sa température de travail . Après, le matériau est désaimanté de manière isothermique à T_{froid} pendant qu'il absorbe de la chaleur. Finalement, il est aimanté de façon adiabatique jusqu'à atteindre T_{chaud} pour recommencer le cycle. Cette séquence de transformations est représentée sur la figure 1.4 en fonction du temps pour deux cycles consécutifs. On appelle « phase froide » l'étape où l'ADR est à T_{froid} et « phase de recyclage », les trois autres étapes du cycle. Le fonctionnement d'une ADR avec un seul étage

est ainsi intermittent ou « one-shot », puisque l'étage alterne entre la phase de recyclage et la phase froide.

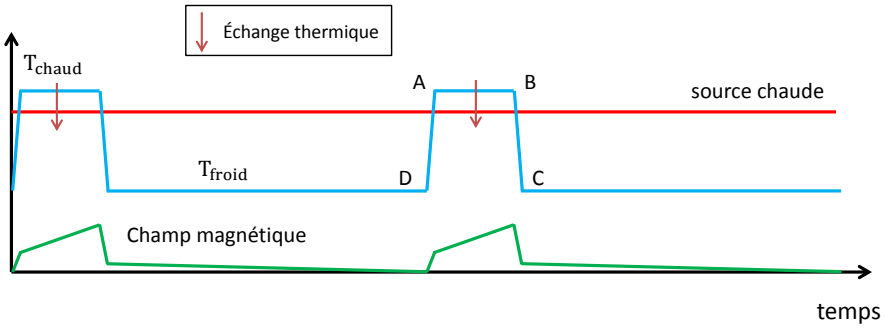


FIGURE 1.4 – Température et champ magnétique d'un étage ADR en fonction du temps.

Les transformations isothermes et adiabatiques sont possibles grâce au fonctionnement des interrupteurs thermiques, dont la conductance thermique est élevée lors de transformations isothermes, en position ON, et très faible pendant les transformations adiabatiques, en position OFF.

L'énergie disponible pour la production de froid (l'effet frigorifique), représentée par la zone hachurée dans la figure 1.3, est donnée par :

$$E_{disp} = \Delta S_{froid} T_{froid} \tag{1.1}$$

$$\Delta S_{froid} = S\left(T_{froid},\ B = 0\right) - S\left(T_{froid},\ B_{froid}\right) \tag{1.2}$$

où ΔS_{froid} est l'entropie disponible volumique de la phase froide (en $J/m^3/K$), T_{chaud} et T_{froid} sont les températures extrêmes de travail (en K) et B_{froid} est le champ magnétique au début de la phase froide (en T). En condition adiabatique, nous avons $S(T_{froid},\ B_{froid}) = S(T_{chaud},\ B_{max})$. Ainsi, ΔS_{froid} peut être déterminé par les paramètres qui caractérisent le cycle de Carnot magnétique, c'est-à-dire, T_{froid}, T_{chaud} et B_{max} :

$$\Delta S_{froid} = S\left(T_{froid},\ 0\ T\right) - S\left(T_{chaud},\ B_{max}\right) \tag{1.3}$$

La charge thermique maximum Q (en J) qui peut être absorbée par l'étage ADR pendant sa phase froide est $Q = E_{disp}$. La charge thermique est composée par la charge effectivement utile à la réfrigération et par la charge thermique apportée par les pertes parasites du système (conduction, rayonnement et convection parasite).

Selon les applications, la gamme de température impose un certain type de matériau, tandis que la charge thermique dimensionne la masse de matériau et le champ magnétique

nécessaires.

La gamme de température de travail d'un étage ADR est essentiellement limitée par les propriétés des matériaux paramagnétiques utilisés et par les contraintes du système (*e.g.* limites de masse et de champ magnétique) ainsi que par les propriétés de l'interrupteur thermique. Pour ce dernier, selon la technologie utilisée, des grandes différences de températures entrainent des pertes importantes. Ainsi, pour couvrir une large gamme de température, comme la gamme 4 K - 50 mK, l'association de plusieurs étages ADR est nécessaire.

Il existe d'autres cycles magnétiques que celui de Carnot, par exemple un cycle dit « régénératif », analogue au cycle de Stirling qui permet l'obtention de large gamme de température. Ces cycles magnétiques nécessitent des échanges thermiques avec du gaz d'échange et ont donc une complexité importante - et une efficacité plus faible - qui les rend peu compatibles avec les applications spatiales ou de petites puissances.

1.2.2 Couplage de plusieurs étages

L'association en série, affichée dans la figure 1.5, permet la couverture de grandes plages de température : les étages se recyclent en cascade, l'étage froid utilise l'étage adjacent comme source thermique, comme affiché dans l'exemple de la figure 1.6. Cette configuration permet ainsi d'optimiser le choix des réfrigérants puisque chaque étage ADR peut utiliser le réfrigérant magnétique le plus adapté pour sa gamme de température de travail. Un intérêt supplémentaire de l'utilisation de plusieurs étages en série est de limiter les gradients thermiques à travers des interrupteurs thermiques lorsqu'ils sont en position OFF et qui limitent l'efficacité du dispositif.

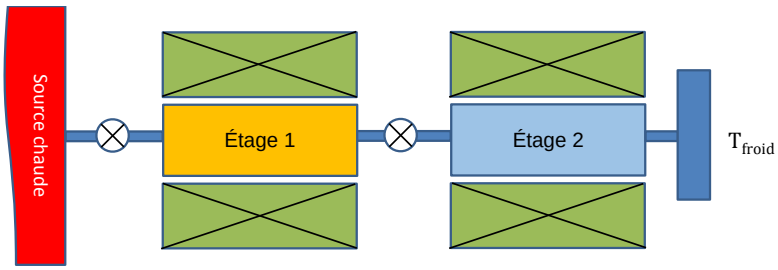


FIGURE 1.5 – Association de deux étages en série.

La configuration en série permet aussi d'avoir un mode fonctionnement continu, dans lequel un ou plusieurs étages travaillent à température constante (Shirron *et al.*, 2000). La figure 1.6 montre un exemple de fonctionnement one-shot et continu possibles pour un système ADR avec deux étages en série. Le *duty cycle* du système est défini comme le rapport entre la durée de la phase froide et la durée totale d'un cycle. Il indique le pourcentage

de temps de disponibilité de la phase froide et il est inférieur à 1 pour un fonctionnement one-shot et identique à 1 pour un fonctionnement continu. Il est avantageux d'avoir un *duty cycle* élevé pour optimiser le temps d'observation des instruments.

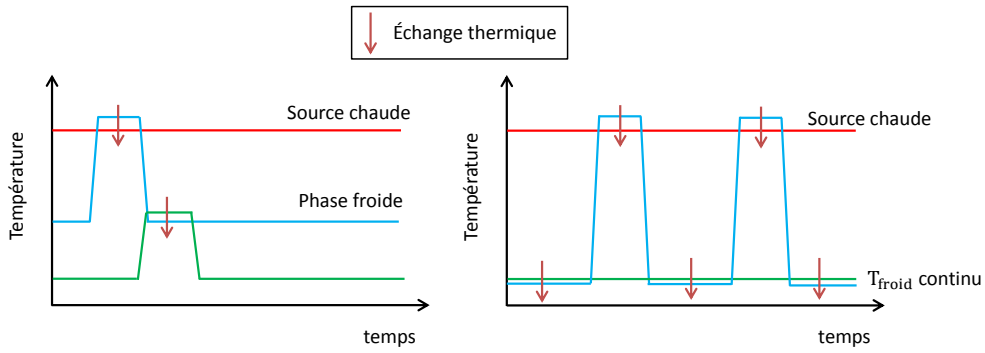


FIGURE 1.6 – Fonctionnement one-shot (à gauche) et continu (à droite) possibles pour une ADR avec 2 étages en série.

L'association en parallèle, affichée dans la figure 1.7, permet l'obtention de températures continues d'une façon plus intuitive que la configuration en série. Les cycles des étages parallèles sont décalés pour qu'un étage soit à T_{froid} pendant que l'autre étage se recycle et vice-versa (Shirron, 2014). Le couplage thermique des étages à la source chaude et à l'endroit refroidi est ainsi fait d'une façon alternée. Cela demande que chaque étage soit équipé de deux interrupteurs thermiques, tandis que ce chiffre est réduit à un interrupteur par étage dans une association en série. Le nombre plus important d'interrupteurs thermiques augmente la complexité associée à la gestion des éléments du système, ainsi que la probabilité de défaillance.

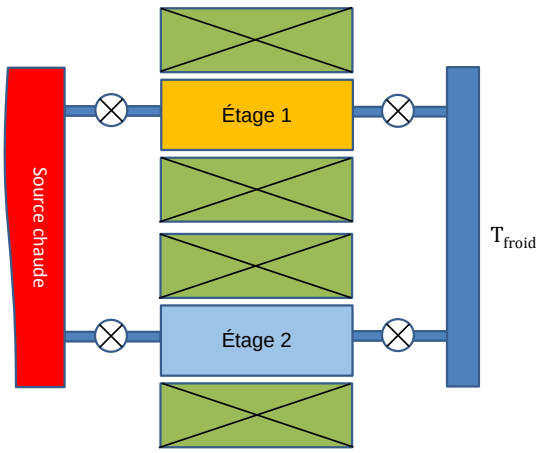


FIGURE 1.7 – Association de deux étages en parallèle.

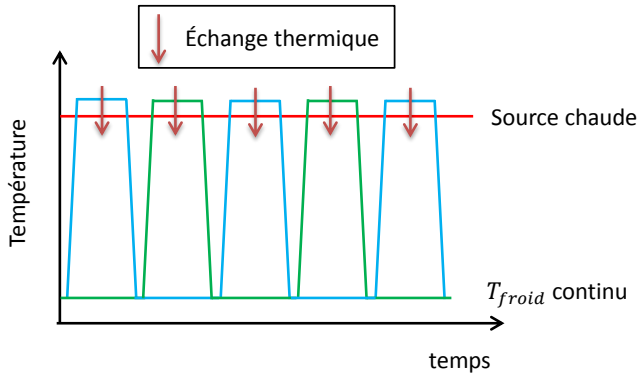


FIGURE 1.8 – Fonctionnement continu de deux étages ADR en parallèle.

Pour ce qui nous concerne, les besoins discutés avec le CNES sont pour une réfrigération one-shot. Nous verrons dans le chapitre 5 différents modes de fonctionnement et de couplage d'étages afin d'obtenir les performances demandées.

1.3 Les composants des réfrigérateurs ADR

Dans la suite de cette section, nous discutons plus en détails les enjeux associés aux composants des ADRs.

1.3.1 Matériaux paramagnétiques et leur capsules

Un matériau paramagnétique idéal pour une ADR spatiale doit avoir des densités d'énergie disponible importantes avec l'utilisation de champs magnétiques aussi faibles que possible ; avoir une conductance thermique suffisante afin de limiter les gradients thermiques internes pendant les transferts de chaleur ; être chimiquement stable pendant la phase d'étuvage des satellites et la durée de la mission.

Pour la gamme subkelvin, le sel paramagnétique FAA - $FeNH_4(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$ est le matériau le plus populaire dans les systèmes ADR sol. Cependant, sa faible température de dégradation thermique le rend inadéquat pour la phase d'étuvage des satellites. À peu d'exceptions, les étages ADR pour le spatial utilisent un autre sel paramagnétique appelé CPA - $CrK(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$. C'est le cas du dernier étage prévu pour le refroidissement de ATHENA/X-IFU, SPICA/SAFARI et du dernier étage de ASTRO-H. Pour une température de travail inférieure à environ ~ 1 K, le CPA est le choix standard.

Dans la gamme de température variant de ~ 1 K à quelques kelvins, un nombre beaucoup plus large de composés paramagnétiques est disponible, traditionnellement des composés à base d'ions des métaux de la famille 4f (lanthanides ou les terres-rares) qui

présentent des densités d'énergie disponible significativement supérieures aux sels paramagnétiques. Le GGG ($Gd_3Ga_5O_{12}$) est un matériau habituellement utilisé dans cette gamme de température. Nous pouvons aussi citer d'autres matériaux à base de gadolinium plus récemment étudiés pour les ADR, tel que le GLF ($GdLiF_4$, Numazawa *et al.* 2006) ou le GF (GdF_3, DiPirro *et al.* 2004b). Des composés à base d'autres ions de terre-rare ont aussi été étudiés pour la réfrigération magnétique, notamment le DGG ($Dy_3Ga_5O_{12}$, Kimura, Maeda, and Sato, 1988; Numazawa *et al.*, 2003).

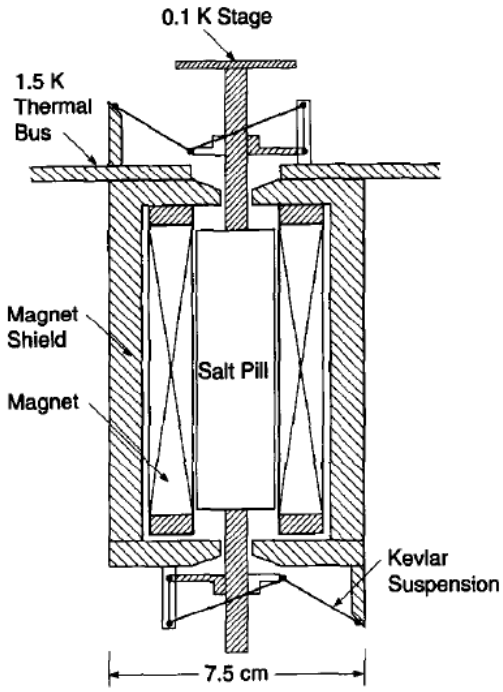


FIGURE 1.9 – Schéma de l'ADR utilisée dans le ballon-sonde MAX (Hagmann and Richards, 1995).

Le matériau paramagnétique est placé à l'intérieur d'une capsule servant de support mécanique. Elle doit avoir un bon contact thermique avec le composé paramagnétique, avoir une faible chaleur spécifique par rapport à celle du composé magnétique et dissiper une faible quantité d'énergie par courant de Foucault pendant les variations du champ magnétique. Dans le cas des sels paramagnétiques, la capsule doit aussi être étanche afin de les protéger contre la déshydratation. Un exemple typique de capsule est affiché dans la figure 1.9, où un schéma de l'ADR utilisée dans le ballon-sonde MAX est représenté. La capsule est tenue mécaniquement par des supports en Kevlar qui l'isolent du reste de la structure. Elle est composée d'un conteneur qui renferme le composé paramagnétique et d'un bus thermique de haute conductance thermique qui rend la température et la puissance froides du paramagnétique accessibles à l'extérieur de l'étage.

1.3.2 Interrupteurs thermiques

Un interrupteur thermique permet soit d'isoler, soit de coupler thermiquement ses deux extrémités. Dans une ADR, il fait le lien entre différents étages ou avec une source froide. L'interrupteur doit ainsi avoir une grande conduction thermique en position ON afin d'assurer des échanges efficaces, ainsi qu'être un mauvais conducteur thermique en position OFF pour isoler ses extrémités et limiter les pertes thermiques.

Plusieurs technologies d'interrupteurs thermiques sont opérationnels dans les gammes de température de travail de nos ADRs, tels que les interrupteurs à gaz d'échange, magnétorésistifs, supraconducteurs, à contact mécanique ou à film de Rollin (DiPirro and Shirron, 2014). Cependant certaines restrictions existent, par exemple les interrupteurs à contact mécanique ne permettent pas d'obtenir de conduction ON suffisante, les interrupteurs supraconducteurs ne sont performants que pour des températures plus basses (typiquement inférieur à 100 mK). Des interrupteurs magnétorésistifs présentant des performances thermiques adaptées aux température inférieures à 4 K ont été récemment utilisés avec succès dans des systèmes ADR développés à MSSL (*Mullard Space Science Laboratory*, Bartlett *et al.* 2010).

Les interrupteurs thermiques à gaz d'échange présentent une excellente conduction ON pour la gamme de température que nous ciblons, tout en ayant un bon ratio ON/OFF. Le SBT développe et utilise ce type d'interrupteur depuis de nombreuses années (Duband *et al.*, 2008). Cependant, comme les conditions de travail des interrupteurs dans notre prototype sont différentes des conditions habituelles d'utilisation, des phénomènes transitoires qui gênent leur fonctionnement peuvent avoir lieu. Nous avons étudié ces phénomènes afin d'améliorer le fonctionnement des interrupteurs à gaz qui seront utilisés dans notre prototype.

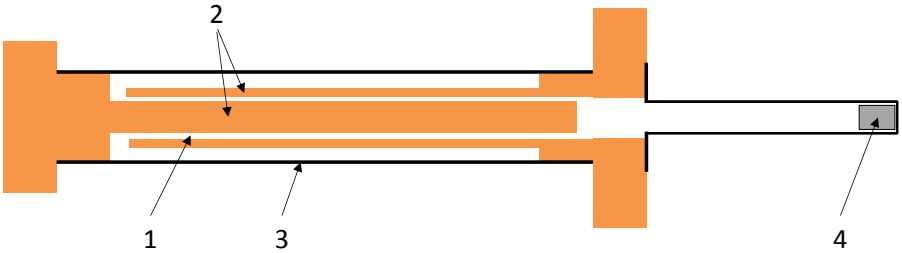


FIGURE 1.10 – Schéma d'un interrupteur thermique à gaz. 1 - gap, 2 - extrémités en cuivre, 3 - enveloppe isolant, 4 - mini-pompe avec chauffage.

Un interrupteur à gaz d'échange est représenté sur la figure 1.10. Il a deux extrémités en cuivre (haute conductance thermique) mises en regard et séparées par un faible gap qui est rempli ou non d'un gaz d'échange. Le découplage thermique entre les deux extrémités est fait par une enveloppe en paroi mince d'un isolant thermique comme l'alliage de titane

Ta6Al4V qui assure aussi le support mécanique des extrémités. La présence ou l'absence de gaz dans le gap est contrôlée par une mini-pompe (MP) à adsorption constituée d'un grain de charbon actif et d'un chauffage. Quand la MP est réchauffée, du gaz est désorbé par le grain de charbon et remplit l'espace entre les pièces en cuivre. Celles-là sont ainsi thermiquement couplées. Quand la MP est refroidie, le gaz est adsorbé par le grain de charbon et les extrémités sont thermiquement découplées. Les valeurs des températures de transition T_{ON} et T_{OFF} dépendent du design de l'interrupteur et varient habituellement entre 8 K et 20 K.

1.3.3 Système magnétique

Nous appelons système magnétique l'ensemble constitué d'une bobine et de son écran. Les demandes de champs magnétiques relativement intenses, typiquement entre 1 T et 4 T, et les contraintes d'écrantage exigées dans les missions spatiales ont de fortes conséquences sur la masse globale du système magnétique. En pratique, la masse de ce système correspond souvent à plus de 85 % de la masse totale de l'étage.

Les bobines supraconductrices permettent d'avoir des densités de courant électrique importantes sans dissipation de chaleur par effet Joule, les pertes a.c. dues aux rampes de champ magnétique sont peu importantes dans les températures dans lesquelles elles sont dissipées. Des fortes densités de courant sont nécessaires pour avoir une bobine compacte. L'utilisation de fils supraconducteurs de très faible diamètre permet d'avoir des densités de courant suffisantes même alimentés par des sources de courant de « faible » intensité, typiquement de l'ordre de quelques ampères, disponibles dans un satellite, . L'alliage métallique de NbTi devient supraconducteur au-dessous d'environ 9 K à 0 T. Il est commercialement disponible en grandes quantités et sous la forme des fils de faible diamètres (*e.g.* 100 µm). Ce matériau est ainsi souvent utilisé pour les bobines en basses températures. En dehors du NbTi, on retrouve dans le marché le composé inter-métallique Nb_3Sn, supraconducteur en-dessous d'environ 18 K à 0 T et qui peut donc être utilisé dans des conditions de température et champ plus sévères que le NbTi mais qui a le désavantage d'être produit en plus faible quantité et sous la forme de fil de plus gros diamètre.

Un solénoïde (bobine) simple produit des champs magnétiques peu homogènes qui tombent assez rapidement lorsque l'on s'éloigne de son centre. Des champs relativement forts sont aussi retrouvés à l'extérieur de la bobine. L'utilisation d'un écran ferromagnétique favorise une concentration du flux magnétique à l'intérieur du volume du solénoïde. Le flux ressortant de la bobine est concentré à l'intérieur de l'écran. En conséquence, le champ moyen de la bobine augmente et devient plus homogène tandis que le champ externe à l'écran devient plus faible. L'écran est dimensionné de telle façon à être proche à la

saturation lorsque la bobine est alimentée par son courant maximum. Ceci permet de minimiser la masse des écrans et d'avoir un écrantage du champ magnétique efficace pendant l'étape où la température est maintenue constante (Hagmann and Richards, 1995).

1.4 Revue de systèmes existants

Les premiers réfrigérateurs à désaimantation adiabatique ont été réalisés à partir de 1933, faisant suite à l'explication de ce phénomène par Debye et Giauque en 1926 et 1927. Cette technique était le moyen classique pour atteindre les très basses températures dans les années 30 et 40 mais a été progressivement remplacée par les réfrigérateurs à dilution (sol) notamment après le lancement des versions commerciales à partir de 1969. L'intérêt pour les ADRs a été relancé dans les années 1990/2000 pour les applications spatiales - y compris ballons et fusées sonde - et pour le sol, pour des raisons de simplicité d'utilisation par rapport à la dilution (Duval *et al.*, 2016). L'effet magnétocalorique fait aussi l'objet de recherches qui visent l'application des cycles magnétiques pour la réfrigération autour de la température ambiante, domaine qui a vu un accroissement depuis les années 1980 à partir de l'utilisation du gadolinium comme réfrigérant. Le grand défi pour ce domaine de réfrigération se trouve dans le fait que, pour les matériaux connus aujourd'hui, le changement d'entropie magnétique reste faible par rapport à l'entropie total du composé.

Dans cette brève revue nous nous concentrons sur les systèmes ADR pour le spatial. Les premiers ont été d'abord développés aux États-Unis par le groupe de Hagmann à l'Université de Berkeley. Le groupe de Peter Shirron à NASA - Goddard a travaillé de longues années sur des systèmes multi-étagés jusqu'à réaliser des modèles de vol. Il a réalisé les 2 systèmes d'ADR déjà lancés par satellites : tout d'abord le satellite Suzaku/Astro-E2 et plus récemment le satellite Hitomi/Astro-H. Par ailleurs, ils ont aussi proposé des systèmes continus au sol grâce à l'utilisation d'étages en série comme décrit plus haut. Le système ADR embarqué dans Astro-H est décrit ci-après. C'est avec ses prédécesseurs d'Astro-E et Astro-E2 les seuls systèmes ADR à notre connaissance lancés en espace.

Le système ADR embarqué dans le satellite Astro-H est constitué de trois étages de fonctionnement one-shot pour la réfrigération des détecteurs de l'instrument SXS à 50 mK. La figure 1.11 montre un schéma de sa chaine cryogénique à partir de 300 K. Le système ADR peut fonctionner à partir de deux sources chaudes : un bain d'hélium superfluide à 1.3 K ou l'étage Joule-Thomson à 4.5 K après avoir épuisé le bain d'hélium. Le tableau 1.1 montre un résumé des paramètres de ce système ADR.

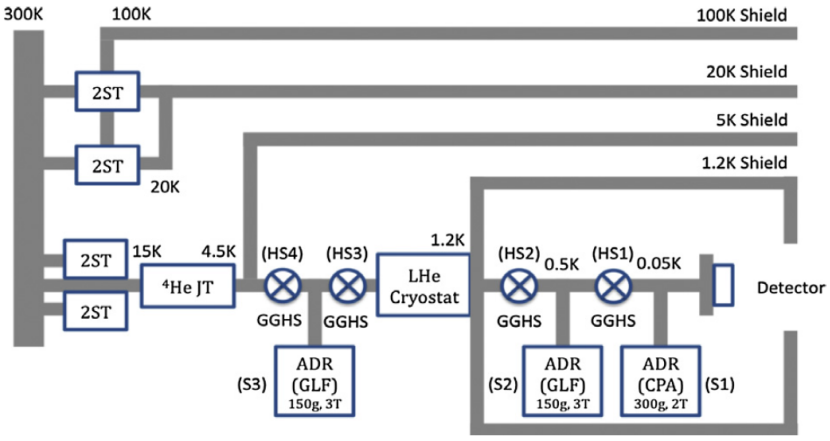


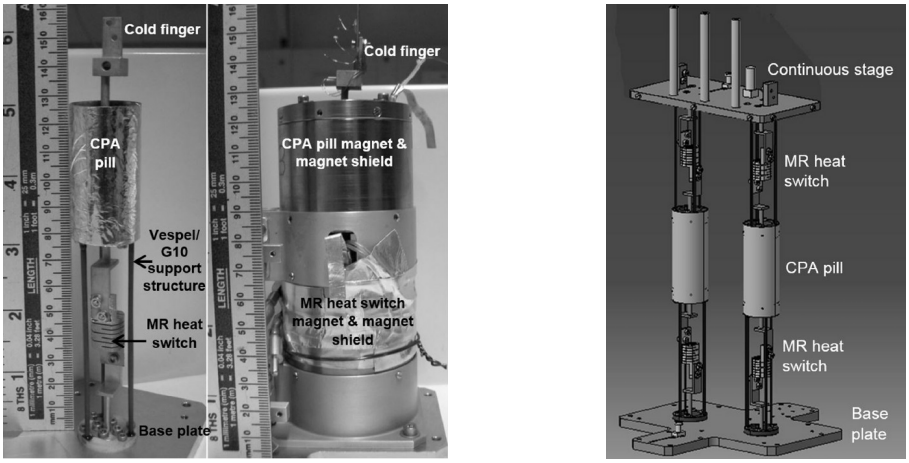
FIGURE 1.11 – Schéma thermique de la chaine cryogénique de l'instrument Astro-H/SXS (Shirron *et al.*, 2012).

	étage 1	étage 2	étage 3
Composé	CPA	GLF	GLF
Masse de composé	270 g	150 g	150 g
Champ magnétique	2 T	3 T	3 T
Courant	2 A	2 A	2 A
Température froide	47 mK	0.5 K	1.1 K
température chaude	0.8 K	1.3 K	4.7 K
Masse de l'étage	6.0 kg	4.0 kg	4.0 kg
Masse totale de l'ADR	14 kg		

TABLE 1.1 – Paramètres de l'ADR à trois étages d'Astro-H (Shirron *et al.*, 2012).

Dans le fonctionnement à partir de 1.3 K, seul les étages 1 et 2 travaillent. Le système a un temps de recyclage inférieur à 1 h et une phase froide estimée de 90 h. Une énergie disponible de 0.13 J a été mesurée à 50 mK. La puissance totale de cet étage est constituée de 0.27 µW provenant des détecteurs et 0.15 µW des pertes parasites. Des interrupteurs thermiques à gaz d'échange ont été employés, dont le design a été optimisé pour limiter les temps de passage ON et OFF à moins de 1 min (Shirron *et al.*, 2012).

Dans le fonctionnement sans le bain d'hélium, les 3 étages sont actifs. Les étages 2 et 3 fonctionnement comme une ADR continue afin d'avoir une température stable de 1.2 K - 1.3 K pendant que l'étage 1 est à 50 mK. L'étage 2 est significativement plus chaud que dans le fonctionnement avec le bain d'hélium (1.2 K au lieu de 0.5 K), les pertes sur l'étage 1 sont plus importantes et la durée de la phase froide tombe à 32 h (Shirron *et al.*, 2012).



(a) mKCC avec interrupteur thermique magnétorésistif de tungstène.

(b) Projet du smKCC.

FIGURE 1.12 – Prototype de réfrigérateur en développement au MSSL.

En Europe, le MSSL a été le premier à développer une ADR 2 étages pour une application spatiale (Bartlett *et al.*, 2010). Le prototype réalisé a une masse très importante en grand partie due à de très fortes contraintes d'écrantage. Des travaux récents de Bartlett, Hardy, and Hepburn (2015) montrent le développement du réfrigérateur appelé mKCC (*millikelvin cryocooler*, figure 1.12(a)), constitué d'une capsule de CPA optimisée pour la réalisation de cycles de faible durée ($\sim$ 4 min) avec un interrupteur thermique du type magnétorésistif en tungstène. Des puissances utiles variant de 20 µW - 250 mK à 1 mW - 3 K en partant d'une température de 3.6 K ont été mesurées pour une duré de phase froide de 3 minutes. La figure 1.12(b) montre un schéma du projet du réfrigérateur smKCC (*single mKCC*), lequel est composé de deux mKCCs rangés en parallèle afin de produire une température continue de 250 mK à partir de 4 K avec une puissance utile variant de 2.9 µW à 16.9 µW selon les hypothèses du modèle. La masse du système est prévue à 4.67 kg. Ce réfrigérateur n'est pas prévu pour travailler à 50 mK, mais on pourrait par exemple imaginer d'ajouter un étage CPA supplémentaire pour ce but.

Le SBT a développé un système hybride ADR-adsorption dont le dernier étage est constitué d'une désaimantation adiabatique pour un refroidissement one-shot à 50 mK. Les compétences et savoir-faire acquis par le SBT dans le développement de ce système a été un fort appui pour les travaux réalisés dans cette thèse. Ce système a été développé pour deux interfaces thermiques distinctes, le premier à 2.5 K et 15 K et le deuxième à 1.7 K et 4.5 K. Le premier est décrit plus en détails dans la suite de cette section.

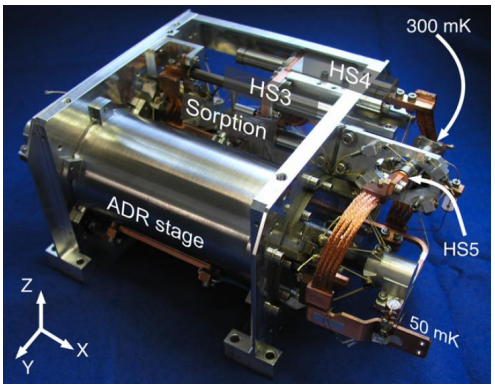


FIGURE 1.13 – Réfrigérateur hybride ADR-adsorption développé au SBT dans le cadre des projets des instruments SPICA/SAFARI et ATHENA/X-IFU.

Le réfrigérateur hybride ADR-adsorption one-shot développé au SBT dans le cadre du développement de la réfrigération 50 mK pour les instruments SPICA/SAFARI et ATHENA/X-IFU est affiché dans la figure 1.13. L'étage froid de ce système est un étage ADR avec une capsule de CPA qui travaille dans la gamme 450 mK - 50 mK. Le système a une autonomie de 24 h et puissance totale de 1.3 µW à 50 mK, ce qui correspond à une énergie disponible mesurée de 0.12 J (Luchier *et al.*, 2012). La durée de recyclage du système est de 8 h et elle est limitée par l'étage à adsorption. Un interrupteur thermique à gaz fait le lien thermique entre les étages ADR et l'adsorption. L'étage à adsorption utilise deux sources froides, 2.5 K et 15 K pour le refroidissement de son évaporateur et de sa pompe à adsorption.

L'utilisation des étages ADR qui travaillent dans des température plus élevées permet de s'affranchir des limitations du réfrigérateur hybride. Il est possible de simplifier l'architecture thermique à partir de l'utilisation d'une seule source froide vers 4 K, ainsi que d'avoir un *duty cycle* plus élevé.

	étage ADR
Composé	CPA
Masse de composé	460 g
Champ magnétique	0.8 T
Courant	2 A
Température froide	50 mK
Température chaude	450 mK
Masse de l'étage ADR	3.55 kg

TABLE 1.2 – Paramètres de l'étage ADR du réfrigérateur hybride ADR/adsorption (Luchier *et al.*, 2010).

1.5 Axes de travail

Pour répondre aux besoins de réfrigération des futures missions spatiales, nous avons développé et réalisé un réfrigérateur à désaimantation adiabatique one-shot qui travaille dans la gamme 4 K - 50 mK. Cette température de départ permet d'avoir un système ADR autonome qui peut être directement couplé à l'étage JT.

Les missions SPICA/SAFARI et ATHENA/X-IFU de 50 mK demandent des puissances utiles de l'ordre de 0.5 μW pour une durée d'observation de plus de 24 h. Ces valeurs seront utilisées comme données d'entrée à notre travail. Le réfrigérateur doit aussi fournir des puissances intermédiaires pour la réfrigération des « harnais » des instruments. Nous appelons « harnais » l'ensemble de fils électriques utilisés pour l'alimentation et la communication avec les détecteurs. Pour limiter des pertes trop importantes sur l'étage le plus froid, il est plus efficace de thermaliser les harnais sur des étages intermédiaires. Bien que les valeurs exactes des puissances nécessaires sur ces étages intermédiaires ne soient pas encore fixées, elles doivent être prises en compte lors du dimensionnement du réfrigérateur.

Comme on a vu dans notre revue de l'état de l'art, il existe déjà des solutions très avancées, notamment le refroidisseur de l'équipe de NASA - Goddard. L'enjeu principal est la limitation de la masse de ces refroidisseurs pour lesquels le matériau utilisé est capital. Pour ce travail de thèse, en amont de la conception d'un prototype, nous avons identifié deux axes principaux pour l'étude et le développement des ADRs pour la gamme 4 K - 50 mK.

Des avancées importantes ont été réalisées pour améliorer la performance des composés paramagnétiques, notamment les travaux récents réalisés par Numazawa *et al.* (2006) sur le GLF. Nous constatons cependant qu'il y a encore de nombreux composés potentiellement intéressants et beaucoup de travail pour explorer toutes les pistes possibles. La recherche de matériaux performant est au cœur de cette thèse.

L'isolation thermique des étages, assurée par les interrupteurs thermiques, est également un facteur de grande importance pour le dimensionnement des ADRs. Nous avons réalisé des travaux expérimentaux pour la compréhension des phénomènes transitoires qui empêchent le fonctionnement correct de ces mécanismes en position OFF.

Chapitre 2

Choisir les matériaux paramagnétiques

Le choix du matériau paramagnétique est essentiel pour le dimensionnement d'une ADR et devra être fait en prenant en compte la gamme de température et les contraintes liées à chaque application. Ce chapitre a pour objectif la sélection de matériaux paramagnétiques adaptés. Il commence par la description de leur propriétés élémentaires. Ensuite, nous proposons une démarche de sélection en deux étapes qui permet de prendre en compte la complexité des phénomènes physiques intervenant et la grande diversité des matériaux disponibles. La première étape permet une sélection préliminaire à partir de données des matériaux pouvant être obtenus dans la littérature et la seconde requiert un traitement plus approfondi des données.

2.1 Propriétés élémentaires des matériaux paramagnétiques

Dans cette section nous discutons des propriétés élémentaires des matériaux paramagnétiques. Cette étude nous permettra d'abord de comprendre le comportement de au premier ordre de ces matériaux et posera les fondements théoriques pour la sélection de réfrigérants magnétiques performants. Nous commençons par présenter le phénomène principal de la réfrigération par désaimantation adiabatique, l'effet magnétocalorique. Ensuite, nous exposons un modèle théorique pour le calcul des diagrammes d'entropie des paramagnétiques parfaits. Celui-ci permet de mettre en évidence un ensemble de propriétés microscopiques importantes pour l'effet magnétocalorique. Finalement, nous analysons l'effet de la présence d'interactions dans un paramagnétique réel. Nous précisons que seule l'entropie magnétique est considérée dans cette étude, sauf mention contraire (dans la gamme de température ciblée, l'entropie du réseau est négligeable pour la majorité des matériaux considérés).

2.1.1 Effet magnétocalorique

L'équation de Maxwell ci-dessous montre le lien entre l'aimantation et l'entropie magnétique d'un système :

$$\left(\frac{\partial \mathrm{S}}{\partial \mathrm{B}}\right)_{\mathrm{T}} = \left(\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial \mathrm{T}}\right)_{\mathrm{B}} \tag{2.1}$$

La variation d'entropie magnétique d'un matériau est donc liée à la variation de son aimantation, ce qui est à l'origine de l'effet magnétocalorique (EMC). L'EMC est typiquement caractérisé par une variation de température du composé lors d'une aimantation adiabatique ($\Delta \mathrm{T}_{\mathrm{ad}}$) ou par le changement d'entropie à température constante lors d'une aimantation/désaimantation (ΔS(T, ΔB)). Dans ce document, nous adoptons la notation simplifiée EMC = - ΔS(T, ΔB). L'équation 2.1 permet le calcul de l'effet magnétocalorique à température constante comme suit.

$$\mathrm{EMC}\,(\mathrm{T},\,\mathrm{B}) = -\Delta S\,(\mathrm{T}, \Delta \mathrm{B}) = -\int_0^{\mathrm{B}} \left(\frac{\partial \mathrm{S}}{\partial \mathrm{B}}\right)_{\mathrm{T}} d\mathrm{B} = -\int_0^{\mathrm{B}} \left(\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial \mathrm{T}}\right)_{\mathrm{B}} d\mathrm{B} \tag{2.2}$$

Un fort effet magnétocalorique est recherché, ce qui est généré par des composés dont l'aimantation varie fortement avec l'application d'un champ magnétique. Les composés paramagnétiques ont cette propriété.

Le diagramme d'entropie complet d'un matériau est donné par l'expression suivante, où C_0 est la chaleur spécifique à champ nul et $\mathrm{T}_{\mathrm{ref}}$ une température de référence dans laquelle la valeur absolue de l'entropie est connue.

$$\mathrm{S}(\mathrm{T},\,\mathrm{B}) = \int_{\mathrm{T}_{\mathrm{ref}}}^{\mathrm{T}} \frac{\mathrm{C}_0}{\mathrm{T}}\mathrm{T} - \int_0^{B} \left(\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial \mathrm{T}}\right)_{\mathrm{B}} d\mathrm{B} + \mathrm{S}_0\,(\mathrm{T}_{\mathrm{ref}}) \tag{2.3}$$

Selon le modèle vectoriel de l'atome de la physique atomique (Ashcroft and Mermin, 1976), les propriétés magnétiques macroscopiques des matériaux résultent, au niveau microscopique, de l'existence des moments angulaires de spin (S), orbital (L) et total (J) d'ions et d'atomes. Un solide dont tous les électrons sont appariés (*i.e.* S = L = J = 0) présente une susceptibilité magnétique négative et de faible intensité lors de l'application d'un champ magnétique externe. Ce comportement est appelé diamagnétisme. Les matériaux possédant des électrons non appariés (*i.e.* S $\neq$ 0 et L $\neq$ 0) présentent un comportement paramagnétique (susceptibilité magnétique positive) dont l'intensité est fonction de J. Quand J = 0, un comportement paramagnétique de faible intensité, appelé paramagnétisme de Van Vleck, se présente. Si J > 0, nous avons le comportement paramagnétique proprement dit, dont l'intensité est presque toujours beaucoup plus élevée que celle du paramagnétisme de Van Vleck et du diamagnétisme. Ainsi, un fort effet magnétocalorique peut être retrouvé dans des matériaux pour lesquels J > 0.

2.1.2 Le paramagnétique parfait

Nous définissons un composé paramagnétique parfait comme étant celui constitué d'un ensemble d'atomes ou d'ions possédant des moments magnétiques permanents ($J > 0$) sans interaction. Ces ions magnétiques sont ainsi appelés des « ions libres ».

2.1.2.1 Entropie maximum

Considérons un ensemble d'ions libres ayant un moment magnétique électronique μ. Soumis à un champ magnétique négligeable par rapport à $k\mathrm{T}$, ce système se trouve dans un état désordonné de $2\mathrm{J} + 1$ orientations possibles et équiprobables par rapport à la direction du champ magnétique. Ce système est appelé dégénéré avec multiplicité $2\mathrm{J} + 1$. Selon la statistique de Boltzmann, ces directions sont équiprobables car elles ont le même niveau énergétique :

$$\mathrm{N}_n \propto \exp\left(-\frac{\mathrm{E}_n}{k\mathrm{T}}\right) \tag{2.4}$$

où $k = 1.38 \times 10^{-23}$ J/K est la constante de Boltzmann et N_n est la population qui occupe le niveau d'énergie E_n. Ce système dégénéré ($\mathrm{E}_0 = ... = \mathrm{E}_{2\mathrm{J}+1}$) contribue à une entropie magnétique par mole de composé donnée par :

$$\mathrm{S}_{\mathrm{max}} = n\mathrm{R}\ln(2\mathrm{J} + 1) \tag{2.5}$$

$\mathrm{R} = 8.314$ J mol^{-1}K^{-1} est la constante des gaz parfaits et n est le nombre de moles d'ions paramagnétiques par mole de composé *e.g.* $n = 3$ pour le composé $\mathrm{Gd_3Ga_5O_{12}}$ dont on discutera plus loin. Ainsi, l'entropie volumique maximum est donnée par :

$$\mathrm{S}_{\mathrm{max,vol}} = n\rho_{\mathrm{mol}}\mathrm{R}\ln(2\mathrm{J} + 1) \tag{2.6}$$

avec la densité molaire du composé $\rho_{\mathrm{mol}} = \rho/\mathrm{M}_{\mathrm{mol}}$ (mol/cm^3), où ρ est sa masse volumique (g/cm^3) et $\mathrm{M}_{\mathrm{mol}}$ sa masse molaire (g/mol).

Le paramagnétique parfait nous renseigne sur l'entropie magnétique maximum d'un système de moment angulaire total J. L'effet magnétocalorique est limité par cette entropie.

2.1.2.2 Modèle des ions libres

Selon le modèle des ions libres (Davidson, 2003; Reif, 2009), l'entropie d'un ensemble d'ions magnétiques sans interaction de moment angulaire J est donnée par :

$$\frac{\mathrm{S}}{n\mathrm{R}} = \ln\left\{\frac{\sinh\left[(\mathrm{J} + 1/2)x\right]}{\sinh\left(x/2\right)}\right\} - x\,\mathrm{J}\,B_{\mathrm{J}}(x) \tag{2.7}$$

où le paramètre adimensionnel x et la fonction de Brillouin $B_{\mathrm{J}}(x)$ sont donnés par :

$$x = \frac{g\mu_{\mathrm{B}}\mathrm{B}}{k\mathrm{T}} \tag{2.8}$$

$$B_{\mathrm{J}}(x) = \frac{1}{\mathrm{J}}\left[(\mathrm{J}+1/2)\coth\left[(\mathrm{J}+1/2)\,x\right] - \frac{1}{2}\coth(x/2)\right] \tag{2.9}$$

$\mu_{\mathrm{B}} = e\hbar/2m_e = 9.274 \times 10^{-24}$ J/T est le magnéton de Bohr, avec e et m_e la charge élémentaire et la masse au repos de l'électron ; et le facteur de Landé g est un nombre adimensionnel qui dépend du matériau (g est donné par un tenseur dans le cas d'un composé anisotrope).

L'équation 2.7 montre que l'entropie par mole d'ions paramagnétiques ne dépend que de J et du rapport gB/T, comme affiché sur la figure 2.1. On observe que les variations d'entropie pour des couples (T, B) initial et final fixés sont d'autant plus grandes que J et g sont élevés. Ces deux quantités sont cependant couplées.

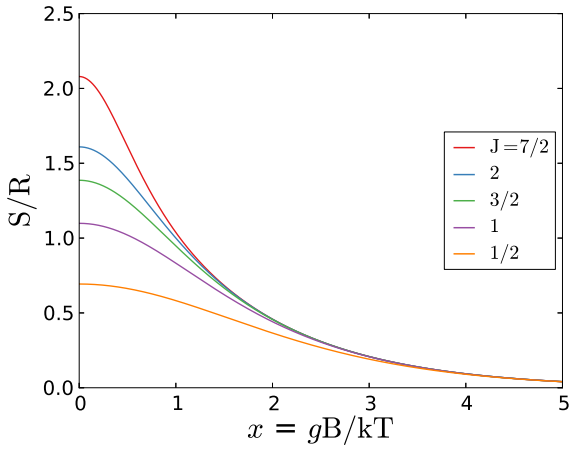


FIGURE 2.1 – Entropie selon le modèle des ions libres pour plusieurs valeurs de J.

2.1.2.3 Moment angulaire et facteur de Landé

Les règles de Hund permettent de déterminer les propriétés magnétiques J et g (de l'état fondamental) d'un ion libre d'un matériau non métallique (Ashcroft and Mermin, 1976). Les sous-couches complètement remplies ne contribuent pas au comportement paramagnétique car le triplet J, L et S est nul. Seules les sous-couches partiellement remplies y contribuent.

Le lien entre J et g est donné par l'expression suivante (Ashcroft and Mermin, 1976).

$$g\,(\mathrm{JLS}) = \frac{3}{2} + \frac{1}{2}\left[\frac{\mathrm{S}\,(\mathrm{S}+1) - \mathrm{L}\,(\mathrm{L}+1)}{\mathrm{J}\,(\mathrm{J}+1)}\right] \text{ pour un ion libre} \tag{2.10}$$

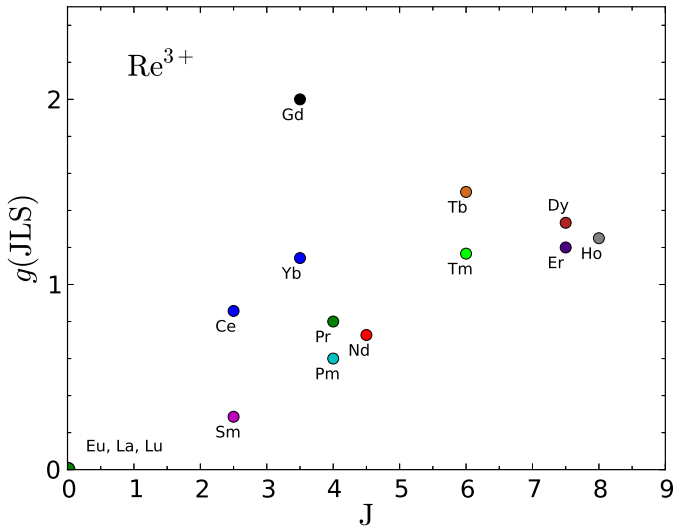


FIGURE 2.2 – Facteur de Landé versus moment angulaire total des ions trivalents de la famille $4f$.

Les valeurs de J et g des ions trivalents de la famille $4f$ (les terres-rares) sont affichées sur la figure 2.2. On remarque qu'il n'est pas possible de maximiser à la fois J et g. En partant de l'ion avec le plus grand facteur de Landé, le Gd^{3+} ($g = 2$), g baisse progressivement lorsque J augmente. Ainsi, les ions qui permettent de maximiser les variations d'entropie se localisent sur la partie supérieure de la figure 2.2, à savoir, le Gd^{3+}, le Tb^{3+}, le Dy^{3+} et l'Ho^{3+}. Le calcul de l'effet magnétocalorique de ces ions selon le modèle des ions libres est affiché sur la figure 2.3. On remarque qu'un grand J favorise plus les variations d'entropie importantes qu'avoir un g élevé car, pour un champ magnétique donné, la relation $\Delta S_1/R > \Delta S_2/R$ est toujours remplie si $J_1 > J_2$.

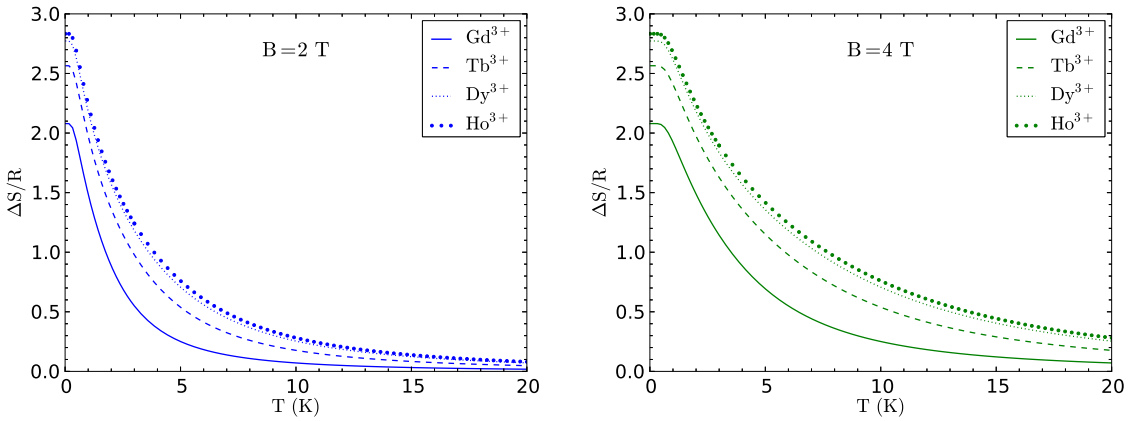


FIGURE 2.3 – Effet magnétocalorique des ions libres de Gd^{3+} ($J = 7/2$, $g = 2$), Tb^{3+} ($J = 6$, $g = 3/2$), Dy^{3+} ($J = 15/2$, $g = 4/3$) et Ho^{3+} ($J = 8$, $g = 5/4$) pour deux champs appliqués.

2.1.3 Interactions

Dans un paramagnétique réel, les ions magnétiques sont soumis à des interactions de nature électromagnétique, les principales étant les interactions dipolaire, d'échange et le champ cristallin.

Un ordre magnétique à longue distance et spontané peut avoir lieu lorsqu'un matériau paramagnétique est refroidi au-dessous de sa température critique d'ordre magnétique $\mathrm{T_C}$, appelée température de Curie pour un ordre ferromagnétique et température de Néel pour un ordre antiferromagnétique. Du point de vue énergétique, cela se produit lorsque l'énergie thermique $k\mathrm{T}$ devient comparable aux interactions.

Les interactions s'intensifient en fonction du rapprochement des ions magnétiques et de l'intensité de leur moment magnétique μ. Pour illustrer ceci, nous explicitons l'expression de l'énergie associée aux interactions dipolaires (Pobell, 2007) :

$$\mathrm{E}_d = \vec{\mu} \cdot \vec{b} = \frac{\mu_0 \vec{\mu}}{4\pi} \cdot \sum_i \left(\frac{\vec{\mu_i}}{r_i^3} - 3\vec{r_i} \frac{\vec{\mu_i} \cdot \vec{r_i}}{r_i^5} \right) \tag{2.11}$$

$\vec{b}$ étant le champ créé par les voisins de l'ion, $\vec{r_i}$ la distance entre l'ion et le dipôle magnétique $\vec{\mu_i}$ et $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ H/m. L'aimantation étant proportionnelle à $g\mathrm{J}$, l'intensité de E_d est proportionnelle à $g^2\mathrm{J}^2$ et à la densité d'ions magnétiques $n\rho_{\mathrm{mol}}$, c'est-à-dire :

$$\mathrm{E}_d \propto n\rho_{\mathrm{mol}} g^2 \mathrm{J}^2 \tag{2.12}$$

2.1.3.1 Entropie à champ nul

L'entropie à champ nul d'un paramagnétique réel décroît avec la température. Cela est une conséquence directe de la présence des interactions et de l'ordre magnétique des ions (à courte et/ou à longue distance). Cet effet peut être observé sur la figure 2.4.

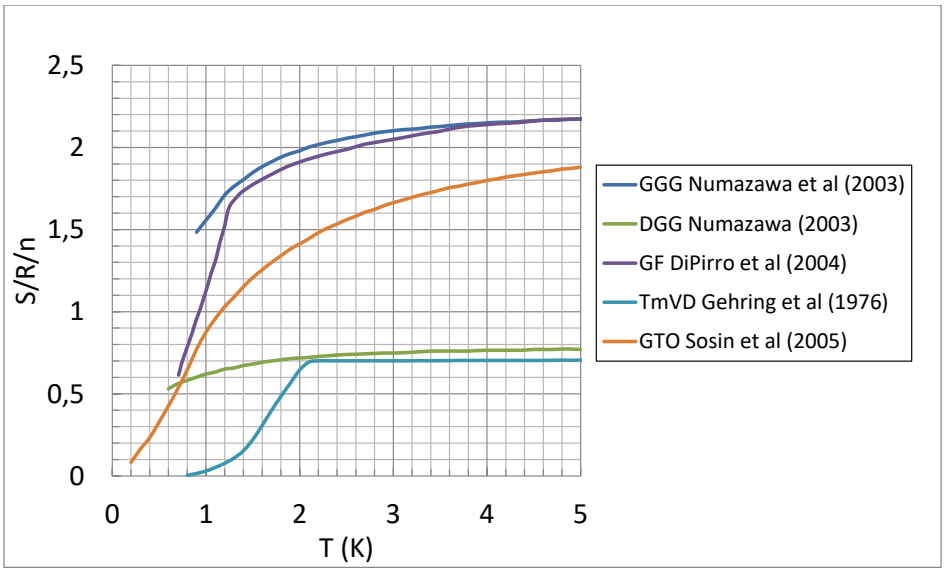


FIGURE 2.4 – Entropie à champ nul de plusieurs composés paramagnétiques.

Les zones de température où l'entropie à champ nul varie fortement sont défavorables pour un cycle ADR car l'effet magnétocalorique décroit rapidement. L'expression 2.13 montre le lien entre les variations d'entropie et la chaleur spécifique. Ces zones peuvent ainsi être facilement identifiées par la position des anomalies de chaleur spécifique à champ nul. La figure 2.5 montre la chaleur spécifique et ces anomalies pour les mêmes matériaux dont l'entropie à champ nul a été présentée sur la figure 2.4.

$$\mathrm{C_P(T,B)} = \mathrm{T}\left(\frac{\partial \mathrm{S}}{\partial \mathrm{T}}\right)\Bigg|_{\mathrm{B}} \tag{2.13}$$

Souvent, les pics de chaleur spécifique correspondent à une anomalie du type λ ou Schottky. L'anomalie λ est très prononcée et sa forme rappelle la lettre qui la désigne. Elle indique une transition de phase de second ordre. L'anomalie du type Schottky est caractérisée par une bosse de plus faible intensité mais qui se déroule dans une gamme de température beaucoup plus large que les anomalies λ (Mnyukh, 2011). D'autres types d'anomalies peuvent aussi être présentes, telles que les anomalies de Jahn-Teller par exemple (Cooke, Swithenby, and Wells, 1972). Ces anomalies sont présentes sur la figure 2.5. Par exemple, le DGG a une anomalie λ centrée sur 0.373 K, le GGG une anomalie du type Schottky centrée sur 0.8 K environ et le TmVD, une anomalie de Jahn-Teller centrée sur 2.1 K.

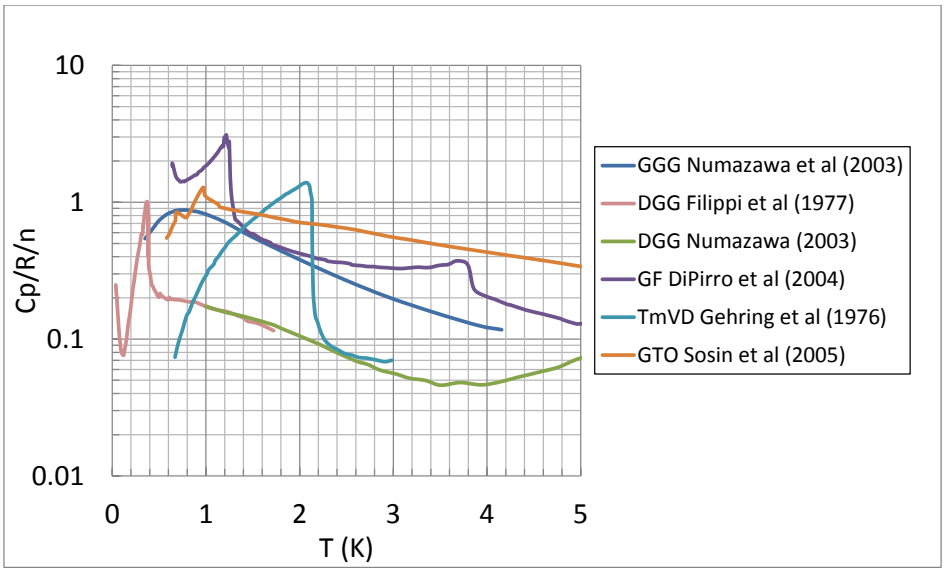


FIGURE 2.5 – Chaleur spécifique à champ nul de plusieurs composés paramagnétiques.

Le modèle des ions libres peut être corrigé pour prendre en compte les interactions à champ nul. Pour cette finalité, l'effet de toutes les interactions est modélisé par un champ magnétique appelé champ interne $\mathrm{B_{int}}$ (Hagmann, Benford, and Richards, 1994). Dans ce cas simplifié, le champ effectif vu par le matériau est donné par l'expression suivante :

$$\mathrm{B_{eff}^2} = \mathrm{B^2} + \mathrm{B_{int}^2} \tag{2.14}$$

Du point de vue de l'énergie du système, l'hypothèse du champ interne équivaut à considérer que les 2J + 1 multiplets de l'état fondamental sont, à champ nul, uniformément écartés les uns des autres de $\Delta = g\mu_\mathrm{B}\mathrm{B_{int}}$.

Ainsi, le paramètre adimensionnel x est donné par :

$$x = g\mu_\mathrm{B}\mathrm{B_{eff}}/k\mathrm{T} = g\mu_\mathrm{B}\left(\mathrm{B^2} + \mathrm{B_{int}^2}\right)^{1/2}/k\mathrm{T} \tag{2.15}$$

Lors d'une désaimantation adiabatique, la température minimum atteignable lors d'une désaimantation à champ nul pour une condition de départ ($\mathrm{T_0}$, $\mathrm{B_0}$) est ainsi donnée par $\mathrm{T}_f = \mathrm{T}_i \dfrac{\mathrm{B_{int}}}{\sqrt{\mathrm{B_{int}^2} + \mathrm{B_i^2}}}$ ($\mathrm{S}_i = \mathrm{S}_f \Rightarrow \mathrm{x}_i = \mathrm{x}_f$).

La figure 2.6 montre le changement du comportement de l'effet magnétocalorique d'un composé lorsque les interactions sont modélisées par l'introduction du champ $\mathrm{B_{int}}$. Les principaux changements observés sur l'EMC sont le déplacement des pics à plus hautes températures ainsi que l'affaiblissement de leur intensité, notamment à faible champ magnétique. Nous avons aussi que EMC $\rightarrow$ 0 lorsque T $\rightarrow$ 0 indépendamment du champ magnétique.

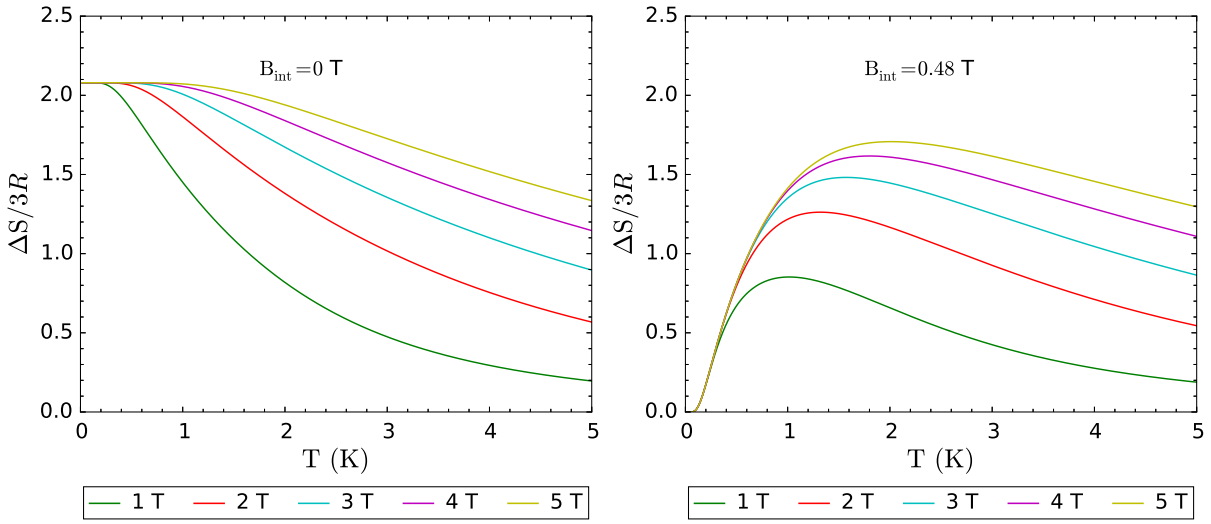


FIGURE 2.6 – Effet magnétocalorique du GGG calculé à partir du modèle des ions libres pour $B_{int} = 0$ (paramagnétique parfait) et pour $B_{int} = 0.48$ T.

2.1.3.2 Moment angulaire effectif et facteur de Landé

Une autre source d'interaction limite l'effet magnétocalorique : le champ cristallin, lequel consiste en un potentiel électrique créé par la disposition d'ions positifs et négatifs dans un réseau cristallin. La présence du champ cristallin a un effet important sur le moment angulaire effectif et le facteur de Landé des composés.

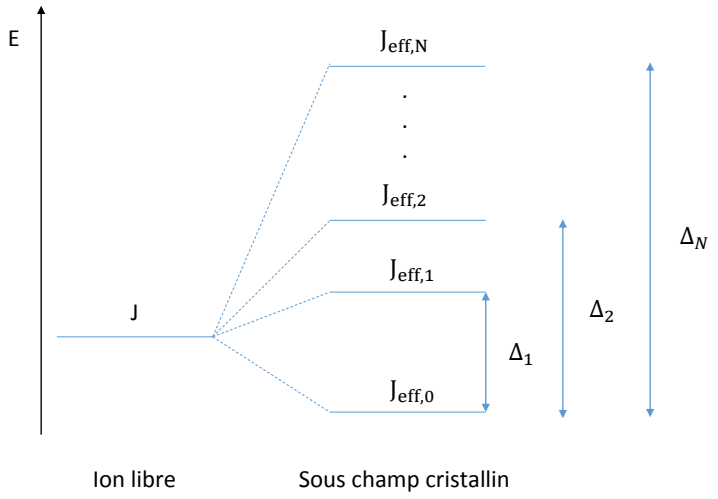


FIGURE 2.7 – Schéma de l'effet d'un champ cristallin sur l'énergie de l'état fondamental d'un ion libre.

L'effet du champ cristallin sur l'énergie de l'état fondamental est représenté sur la figure 2.7. L'état fondamental est éclaté par la levée de dégénérescence due au champ cristallin. Chaque nouveau niveau d'énergie E_n est caractérisé par un moment angulaire total effectif $J_{eff,n} < J$ ainsi que par un facteur $g_{eff,n}$. Pour simplifier le texte, nous adoptons la notation $J_{eff,0} = J_{eff}$ et $g_{eff,0} = g$ pour l'état fondamental de l'ion sous action du

champ cristallin.

Les états éclatés présentent des degrés de dégénérescence 2 (doublet, $J_{eff,n}$ =1/2) ou supérieur dans le cas des ions de Kramers, c'est à dire des ions avec J demi-entier (Morrish, 2001). L'action du champ cristallin sur des ions non-Kramers (J entier : Pr^{3+}, Pm^{3+}, Eu^{3+}, Tb^{3+}, Ho^{3+}, Tm^{3+}) peut cependant générer des singulets ($J_{eff,n} = 0$) ou des doublets selon l'environnement cristallin.

Le comportement magnétique du matériau dépend des niveaux d'énergie qui sont significativement peuplés selon la statistique de Boltzmann (rappelée ci-dessous).

$$N_n \propto \exp\left(-\frac{E_n}{kT}\right) \tag{2.16}$$

Les ions de terre-rare auront un J_{eff} qui est fonction de la levée de dégénérescence de l'état fondamental et de la température. Dans les températures de l'hélium liquide, en général seul le niveau de plus basse énergie E_0 est significativement peuplé pour des champs magnétiques appliqués modérés, de l'ordre de 4 T.

Les ions dont le moment angulaire total a une composante orbitale nulle (L = 0) sont peu affectés par l'environnement cristallin (Barclay and Steyert, 1982). Parmi les ions Re^{3+}, le gadolinium est le seul à avoir $J \neq 0$ et $L = 0$, raison pour laquelle il présente le J_{eff} mesuré le plus élevé parmi les matériaux à base de ces ions déjà caractérisés pour $T < 5$ K à notre connaissance. Ce fort J_{eff} à basse température est l'une des raisons de l'intense utilisation de cet ion (Barclay and Steyert, 1982).

Les ions fortement affectés par le champ cristallin ont des facteurs g anisotropes. Par exemple, le $Dy_2Ti_2O_7$ monocristallin a $g_\perp \approx 0$ et $g_\parallel = 20$ (facteurs g perpendiculaire et parallèle à l'axe facile d'aimantation, Flood, 1974). Dans ce document, nous considérons uniquement le facteur g moyen dans le volume des composés.

Pour conclure, nous remarquons que le couple (J, g) d'un ion fortement affecté par le champ cristallin ne peut pas être prévu par les règles de Hund (section 2.1.2.3). Le tableau 2.1 montre le cas d'un ion faiblement affecté par le champ cristallin, le Gd^{3+}, ainsi que celui de deux autres ions fortement afféctés, le Dy^{3+} et le Er^{3+}. Ces derniers présentent un fort facteur g avec un faible $J_{eff} = 1/2$ (au lieu de 15/2 pour un ion isolé).

Ion	Matériau	J_{eff}	g
Gd^{3+}	$Gd_3Ga_5O_{12}$	7/2	2
	$GdPO_4$	7/2	2
	$Gd_2Ti_2O_7$	7/2	2
Dy^{3+}	$Dy_3Ga_5O_{12}$	1/2	8
	$Dy_3Al_5O_{12}$	1/2	18.1
	$DyVO_4$	1/2	18.9
Er^{3+}	$Er_3Ga_5O_{12}$	1/2	7.1
	$ErLiF_4$	1/2	8.6

TABLE 2.1 – Moment angulaire effectif et facteur de Landé de l'état fondamental de divers matériaux. Voir tableau 2.3 pour les références.

2.2 Sélection préliminaire des matériaux

Il existe une quantité importante de matériaux qui sont opérationnels dans la gamme de température ciblée, 4 K - 50 mK. Cette section est dédiée à la mise au point et l'application d'une méthode visant identifier les meilleurs candidats à une désaimantation adiabatique. Le critère de choix qui guide la sélection des matériaux est, comme introduit dans le chapitre 1, la minimisation de la masse d'une ADR pour le spatial.

2.2.1 Revue de la littérature

Plusieurs revues des matériaux ont été publiées dans la littérature. Nous discutons ici des trois les plus pertinentes pour notre étude.

En 1982, Barclay and Steyert ont réalisé une étude de matériaux magnétiques pour la gamme 20 K - 2 K. Leur choix initial s'est porté sur les composés à base de Gd^{3+} car ils présentent un fort moment angulaire J de 7/2 à basse température, comme discuté dans la section 2.1.3.2. Parmi presque 70 composés, le GGG a été identifié comme un excellent réfrigérant magnétique : il possède une faible température d'ordre magnétique (à courte distance), une faible chaleur spécifique due au réseau cristallin et une conductivité thermique suffisante.

Plus récemment, Wikus, Burghart, and Figueroa-Feliciano (2011) ont présenté les principales propriétés magnétiques des composés paramagnétiques classiquement utilisés pour un refroidissement au-dessous de 2 K. Cela comprend les composés CCA, CMN, CPA, DGG, FAA, GGG, GLF et MAS (voir tableau 2.2 pour la composition chimique). Ils présentent aussi les zones de température et champ magnétique recommandées pour chaque composé en fonction de l'objectif fixé, la maximisation volumique ou massique de la puissance de réfrigération. Lors d'une nouvelle étude, Wikus *et al.* (2014) ont fait une revue

partant de sels paramagnétiques pour la gamme subkelvin ; de grenats de dysprosium et de gadolinium ainsi que des fluorures de gadolinium pour la gamme d'au-dessus jusqu'à environ 20 K et finalement des composés du type ReM_2 (phase de Laves, Re : rare-earth, M = Al, Ni, Co) pour la réfrigération au-dessus de 20 K environ.

Les revues que l'on a présentées montrent qu'une quantité très importante de composés paramagnétiques sont opérationnels dans notre gamme de température d'intérêt. Depuis l'étude la plus complète Barclay and Steyert, des nombreux matériaux paramagnétiques ont été caractérisés. Ces caractérisations sont motivées par différents domaines d'étude et d'application. Dans le cadre de la désaimantation adiabatique, nous citons notamment le GLF ($GdLiF_4$, Numazawa *et al.* 2006) ou le GPO ($GdPO_4$, Palacios *et al.* 2014) pour les composés à base de gadolinium (J=7/2) et le DGG ($Dy_3Ga_5O_{12}$, Kimura, Maeda, and Sato 1988) pour les composés à faible moment angulaire J = 1/2.

L'étude présentée dans la suite de cette section a pour objectif de mettre en perspective les résultats de divers travaux sur les matériaux paramagnétiques au regard de la désaimantation adiabatique pour la gamme 4 K - 50 mK. Il permettra d'inclure les nouveaux matériaux depuis Barclay and Steyert ainsi que les comparer avec les composés classiques présentés par Wikus, Burghart, and Figueroa-Feliciano (2011). Notre étude comprend aussi une voie prometteuse et encore peu explorée de façon systématique, celle des matériaux à base de terres-rares à faible moment angulaire (J = 1/2) et fort facteur de Landé g.

Afin de pouvoir comparer la performance d'une grande quantité de matériaux, nous avons développé une méthode de pré-sélection qui identifie les candidats prometteurs à partir de leurs propriétés de base. Cette section est dédiée à la présentation et à l'application de cette méthode. Ensuite, nous utilisons le modèle des ions libres avec champ interne afin de comparer la performance des matériaux pré-sélectionnés, ce qui fait l'objet de la section 2.3 « sélection fine ». Finalement, ces deux étapes nous permettent de sélectionner les composés que nous caractériserons expérimentalement.

Le tableau 2.2 montre les détails des matériaux considérés dans notre étude bibliographique. En raison du grand nombre de données à présenter, nous avons choisi de présenter les références bibliographiques séparément sur les tableaux 2.3 et 2.4. Cette liste de matériaux est extensive et couvre les principales familles des composés employés dans la réfrigération magnétique pour les basses températures, cependant elle n'a pas la prétention d'être exhaustive.

Sigle	Groupe	Composition	J	g	T_C (K)	% d'ion magnétique*	N_0 (ions/m^3)*
TmO	Re_2O_3	Tm_2O_3	1/2	—	< 0.35	87.56	2.773E+28
DO		Dy_2O_3	1/2	—	1.2	87.13	2.518E+28
YbO		Yb_2O_3	1/2	—	2.3	87.82	2.801E+28
TbO		Tb_2O_3	1/2	—	2.42	86.88	2.600E+28
ErO		Er_2O_3	1/2	—	3.4	87.45	2.719E+28
GO		Gd_2O_3	1/2	2	3.8	86.76	2.458E+28
HoF	ReF	HoF_3	1/2	15	0.53	74.32	2.072E+28
ErF		ErF_3	1/2	13.3	1.05	74.58	2.099E+28
GF		GdF_3	7/2	2	1.25	73.40	1.995E+28
DF		DyF_3	1/2	16.1	2.53	74.03	1.631E+28
TbF		TbF_3	1/2	—	3.95	73.60	2.016E+28
ErLF	$ReLiF_4$	$ErLiF_4$	1/2	8.6	0.37	66.85	1.403E+28
GLF		$GdLiF_4$	7/2	2	< 0.5	65.47	1.338E+28
DLF		$DyLiF_4$	0.5	9.2	0.61	66.21	1.371E+28
HoLF		$HoLiF_4$	1/2	13.6	1.53	66.54	1.384E+28
TbLF		$TbLiF_4$	1/2	17.8	2.885	65.71	1.359E+28
YbTO	$Re_2Ti_2O_7$	$Yb_2Ti_2O_7$	1/2	3.7	0.21	62.49	1.589E+28
GTO		$Gd_2Ti_2O_7$	7/2	2	1	60.22	1.469E+28
DTO		$Dy_2Ti_2O_7$	1/2	9	—	61.01	1.541E+28
ErTO		$Er_2Ti_2O_7$	1/2	5.1	1.2	61.69	1.563E+28
TbVD	$ReXO_4$	$TbVO_4$	1/2	16.4	0.61	58.03	1.11E+28
GPO		$GdPO_4$	7/2	2	0.77	62.35	1.45E+28
GVD		$GdVO_4$	7/2	2	2.49	57.77	1.210E+28
TmVD		$TmVO_4$	1/2	10.1	2.1	59.51	1.272E+28
DVD		$DyVO_4$	1/2	18.9	3	58.57	1.241E+28
DPO		$DyPO_4$	1/2	—	3.39	63.11	1.387E+28
HoAG	$Re_3Al_5O_{12}$	$Ho_3Al_5O_{12}$	1/2	—	0.839	60.22	1.457E+28
TbAG		$Tb_3Al_5O_{12}$	1/2	—	1.35	59.33	1.389E+28
DAG		$Dy_3Al_5O_{12}$	1/2	10.4	2.53	59.86	1.373E+28
YbGG	$Re_3Ga_5O_{12}$	$Yb_3Ga_5O_{12}$	0.5	3.43	0.054	48.99	1.319E+28
HoGG		$Ho_3Ga_5O_{12}$	1/2	—	0.19	47.79	1.294E+28
TbGG		$Tb_3Ga_5O_{12}$	1/2	—	0.25	46.86	1.275E+28
DGG		$Dy_3Ga_5O_{12}$	1/2	8	0.373	47.42	1.284E+28
NGG		$Nd_3Ga_5O_{12}$	1/2	2.5	0.514	44.46	1.226E+28
ErGG		$Er_3Ga_5O_{12}$	1/2	7.1	0.789	48.14	1.303E+28
GGG		$Gd_3Ga_5O_{12}$	7/2	2	—	46.60	1.274E+28
SGG		$Sm_3Ga_5O_{12}$	1/2	—	0.96	45.49	1.247E+28
YbPS	intermétallique	$YbPt_2Sn$	1/2	5.6	0.25	25.38	1.289E+28
CMN	sel	$Ce_2Mg_3(NO_3)_{12} \cdot 12\,H_2O$	1/2	2	0.0016	18.33	1.643E+27
CPA		$CrK(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$	3/2	1.97	0.009	10.42	2.208E+27
FAA		$Fe(SO_4)NH_4 \cdot 12\,H_2O$	5/2	2	0.026	11.59	2.148E+27
MAS		$Mn(SO_4)_2(NH_4)_2 \cdot 6\,H_2O$	5/2	2	0.17	14.04	2.785E+27
CCA		$CrCs(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$	3/2	2	0.01	9.11	2.172E+27

TABLE 2.2 – Propriétés des matériaux paramagnétiques. Voir les tableaux 2.3 et 2.4 pour les références. N_0 est la concentration volumique d'ions magnétiques. *en masse.

Sigle	ion	Groupe	Composition	Références
TmO	Tm	Re_2O_3	Tm_2O_3	21
DO	Dy		Dy_2O_3	7
YbO	Yb		Yb_2O_3	7
TbO	Tb		Tb_2O_3	26
ErO	Er		Er_2O_3	7
GO	Gd		Gd_2O_3	25
HoF	Ho	ReF	HoF_3	4, 35
ErF	Er		ErF_3	32
GF	Gd		GdF_3	8, 15
DF	Dy		DyF_3	28
TbF	Tb		TbF_3	28
ErLF	Er	$ReLiF_4$	$ErLiF_4$	33, 37
GLF	Gd		$GdLiF_4$	401
DLF	Dy		$DyLiF_4$	37
HoLF	Ho		$HoLiF_4$	37, 38
TbLF	Tb		$TbLiF_4$	1, 37
YbTO	Yb	$Re_2Ti_2O_7$	$Yb_2Ti_2O_7$	6, 48
GTO	Gd		$Gd_2Ti_2O_7$	51
DTO	Dy		$Dy_2Ti_2O_7$	6, 47
ErTO	Er		$Er_2Ti_2O_7$	6, 49
TbVD	Tb	$ReXO_4$	$TbVO_4$	5, 20
GPO	Gd		$GdPO_4$	44
GVD	Gd		$GdVO_4$	13
TmVD	Tm		$TmVO_4$	12
DVD	Dy		$DyVO_4$	10
DPO	Dy		$DyPO_4$	45, 46, 56
HoAG	Ho	$Re_3Al_5O_{12}$	$Ho_3Al_5O_{12}$	39
TbAG	Tb		$Tb_3Al_5O_{12}$	9
DAG	Dy		$Dy_3Al_5O_{12}$	34, 55
YbGG	Yb	$Re_3Ga_5O_{12}$	$Yb_3Ga_5O_{12}$	18
HoGG	Ho		$Ho_3Ga_5O_{12}$	24, 42
TbGG	Tb		$Tb_3Ga_5O_{12}$	24, 36
DGG	Dy		$Dy_3Ga_5O_{12}$	16, 17, 22, 31
NGG	Nd		$Nd_3Ga_5O_{12}$	3, 42
ErGG	Er		$Er_3Ga_5O_{12}$	2, 42
GGG	Gd		$Gd_3Ga_5O_{12}$	29, 40
SGG	Sm		$Sm_3Ga_5O_{12}$	42
YbPS	Yb	Intermétallique	$YbPt_2Sn$	30
CMN	Ce	sel	$Ce_2Mg_3 \cdot (NO_3)_{12} \cdot 12\,H_2O$	19
CPA	Cr		$CrK(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$	14, 53
FAA	Fe		$Fe(SO_4)NH_4 \cdot 12\,H_2O$	53
MAS	Mn		$Mn(SO_4(NH_4)_2 \cdot 6\,H_2O$	53
CCA	Cr		$CrCs(SO_4)_2 \cdot 12\,H_2O$	23

TABLE 2.3 – Matériaux considérés avec leurs références bibliographiques (tableau 2.4).

Numéro	Référence	Numéro	Référence
1	Ahlers, Kornblit, and Guggenheim (1975)	29	Hornung *et al.* (1974)
2	Ball *et al.* (1961)	30	Jang *et al.* (2015)
3	Belov and Sokolov (1977)	31	Kimura, Maeda, and Sato (1988)
4	Bleaney *et al.* (1988)	32	Krämer *et al.* (1996)
5	Bleaney, Pfeffer, and Wells (1997)	33	Kraemer *et al.* (2012)
6	Blote, Wielinga, and Huiskamp (1969)	34	Landau *et al.* (1971)
7	Bonrath *et al.* (1966)	35	Leask *et al.* (1994)
8	Chen *et al.* (2015)	36	Löw *et al.* (2013)
9	Cooke, Thorp, and Wells (1967)	37	Mennenga *et al.* (1984)
10	Cooke *et al.* (1970)	38	Mennenga, Jongh, and Huiskamp (1984)
11	Cooke, Martin, and Wells (1971)	39	Nagata *et al.* (2001)
12	Cooke, Swithenby, and Wells (1972)	40	Numazawa *et al.* (2003)
13	Cook and Cashion (1979)	41	Numazawa *et al.* (2006)
14	Daniels and Kurti (1954)	42	Onn, Meyer, and Remeika (1967)
15	DiPirro *et al.* (2004a)	43	Orlich, Hüfner, and Grünberg (1970)
16	Filippi *et al.* (1977)	44	Palacios *et al.* (2014)
17	Filippi, Tcheou, and Rossat-Mignod (1980)	45	Prinz, Lewis, and Wagner (1974)
18	Filippi *et al.* (1980b)	46	Rado (1970)
19	Fisher *et al.* (1973)	47	Ramirez *et al.* (1999)
20	Gehring *et al.* (1976)	48	Ross *et al.* (2011)
21	Gondek, Kaczorowski, and Szytuła (2010)	49	Savary *et al.* (2012)
22	Goshorn, Onn, and Remeika (1977)	50	Savinkov *et al.* (2008)
23	Hagmann, Benford, and Richards (1994)	51	Sosin *et al.* (2005)
24	Hammann and Manneville (1974)	52	Veltruský (1987)
25	Hill, Cosier, and Hukin (1982)	53	Vilches and Wheatley (1966)
26	Hill (1986)	54	Wells and Worswick (1972)
27	Holmes, Guggenheim, and Hull (1970)	55	Wolf *et al.* (1972)
28	Holmes *et al.* (1974)	56	Wright *et al.* (1971)

TABLE 2.4 – Références bibliographiques des matériaux considérés (voir tableau 2.3).

2.2.2 Entropie disponible

Les matériaux les plus performants pour une ADR sont ceux qui présentent une forte entropie disponible (S_{disp}) par rapport au champ magnétique maximum appliqué. Comme la masse totale d'un étage ADR dépend fortement du volume de matériau utilisé et que nous voulons la minimiser, nous nous intéressons à l'entropie disponible volumique.

L'entropie disponible d'un cycle de Carnot est rappelée sur la figure 2.8, ainsi que l'effet magnétocalorique obtenu à T_{chaud} lors de l'application du champ maximum du cycle. Comme l'entropie à champ nul décroît avec la température, on a $S_{disp} < EMC(T_{chaud}, B_{max})$. Nous définissons la réduction d'entropie à champ nul de ce cycle ΔS_0 par :

$$\Delta S_0 = S_0\left(T_{chaud}\right) - S_0\left(T_{froid}\right) \tag{2.17}$$

Sous forme intégrale, ΔS_0 est donnée par :

$$\Delta S_0\,(T) = \int_{T_{froid}}^{T_{chaud}} \frac{C_0\,(T)}{T} dT \tag{2.18}$$

Où C_0 est la chaleur spécifique à champ nul. De cette façon, l'entropie disponible du cycle peut être écrite en fonction de ΔS_0 et de l'EMC comme suit :

$$S_{disp} = EMC\,(T_{chaud},\, B_{max}) - \Delta S_0 \tag{2.19}$$

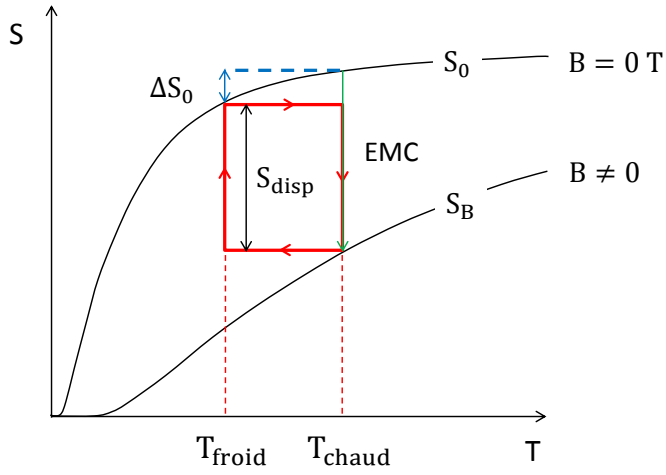


FIGURE 2.8 – Diagramme d'entropie d'un paramagnétique contenant les conventions d'écritures adoptées dans ce texte. Le cycle représenté est le cycle de Carnot pour un étage de désaimantation adiabatique. La flèche en vert indique l'effet magnétocalorique, celle en bleu la réduction d'entropie à champ nul et en orange, l'entropie disponible du cycle représenté.

2.2.2.1 Demandes antagonistes

L'expression 2.19 montre que maximiser l'EMC(T_{chaud}, B_{max}) et minimiser le ΔS_0 permet de maximiser S_{disp}. Afin de maximiser l'EMC, des valeurs importantes de J, g et N_0 sont souhaitées. Cependant, l'opposé est nécessaire afin de minimiser les interactions et ΔS_0. L'EMC et ΔS_0 ne peuvent pas être optimisés indépendamment. Une autre limitation apparaît lorsque l'on analyse le couple (J, g), car nous avons montré dans la section 2.1.3.2 que des valeurs importantes de J sont souvent associées aux faibles g et vice-versa. Ainsi, un compromis entre ces propriétés doit être trouvé pour permettre de maximiser S_{disp} d'une façon globale. La suite de cette section est dédiée au développement d'une méthode graphique qui nous permettra de visualiser ce compromis nécessaire.

2.2.3 Température caractéristique

On a vu dans la section 2.1.3 que la performance d'un matériau paramagnétique diminue significativement lorsqu'il travaille dans une gamme de température où son entropie à champ nul varie fortement. Ces zones sont facilement identifiées à partir de la position

des pics de chaleur spécifique à champ nul.

À très basse température, l'entropie magnétique des matériaux est principalement celle de l'état fondamental. Nous définissons la température caractéristique T_{carac} d'un matériau comme étant la position du pic de chaleur spécifique de plus haute température due aux transitions magnétiques de l'état fondamental. La position des anomalies de la chaleur spécifique est déterminée par l'intensité des interactions par rapport à kT. De cette façon, la température caractéristique est une mesure indirecte de l'intensité des interactions qui la produisent, celles-ci étant d'autant plus faibles que T_{carac} est faible.

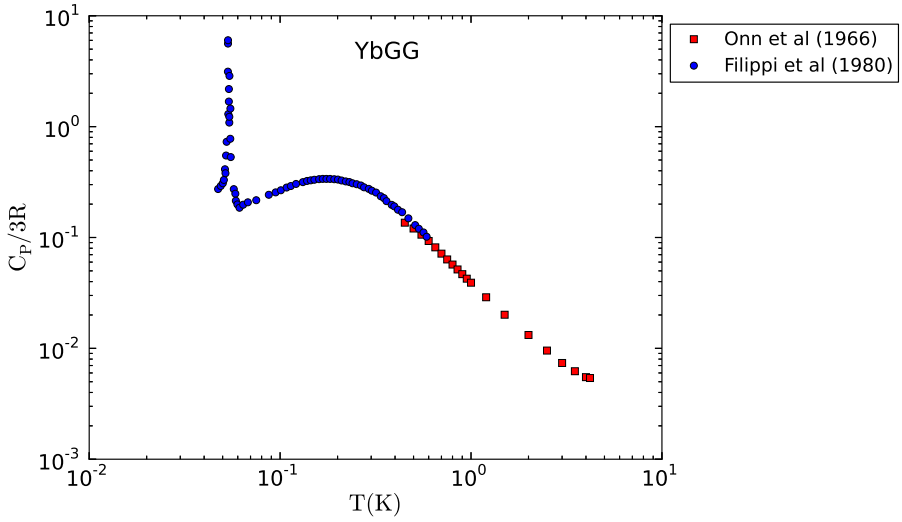


FIGURE 2.9 – Chaleur spécifique du YbGG monocristallin en fonction de la température. Le matériau a une transition antiferromagnétique à $T_C = 54$ mK avec une anomalie du type Schottky centrée à $T \simeq 0.18$ K (Filippi *et al.*, 1977).

Par exemple, la chaleur spécifique du YbGG est affichée sur la figure 2.9. Il présente une transition magnétique du type λ à $T_C = 54$ mK à côté d'une une anomalie de chaleur spécifique du type Schottky. La température caractéristique de ce composé T_{carac} correspond au centre de cette anomalie du type Schottky, c'est-à-dire, $T_{carac} \simeq 0.18$ K. Il sera donc plus performant s'il est utilisé dans des gammes de températures supérieures à 180 mK.

2.2.3.1 Concentration volumique d'ions magnétiques

Grâce à cette température caractéristique nous pouvons illustrer le fait que les interactions augmentent en fonction de la concentration volumique d'ions magnétiques N_0.

Nous avons construit la figure 2.10 à partir de données des publications du tableau 2.3 et à partir des fiches cristallographiques de la base de données du logiciel PDF4+ de ICCD (*International Centre for Diffraction Data*). Dans le cas de certains matériaux, le

manque de mesures de chaleur spécifique n'a pas permis la détermination directe de la température caractéristique. Il est toutefois possible d'estimer T_{carac} pour ces matériaux :

— GLF : les mesures de chaleur spécifique montrent le côté haute température d'une anomalie du type Schottky. Ces mesures sont disponibles à partir de 0.5 K et ne permettent pas d'identifier précisément le centre de l'anomalie. Cependant, l'utilisation du modèle des ions libres permet d'estimer que $T_{carac} \simeq 0.5$ K.

— DO, ErO, YbO, ErF : T_{carac} a été pris comme étant T_C, laquelle a été obtenue à partir des mesures de susceptibilité magnétique ou par spectrométrie Mössbauer. Cela est fondé sur le fait que $T_{carac} \geq T_C$.

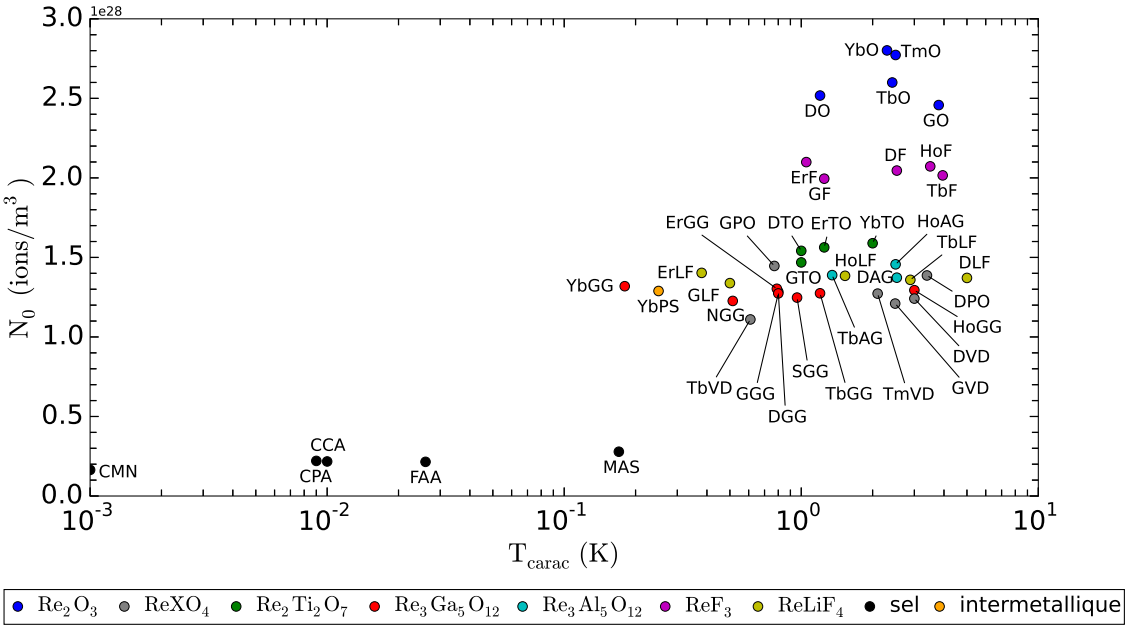


FIGURE 2.10 – Concentration d'ions paramagnétiques en fonction de la température caractéristique. Références : tableau 2.3.

Nous remarquons que les matériaux dont les concentrations ioniques sont les plus faibles sont ceux capables d'atteindre les plus basses températures (des sels paramagnétiques tels que le CPA et le CMN par exemple), un comportement tout à fait attendu dû à l'affaiblissement des interactions avec l'éloignement des ions. Le comportement du grenat de gallium et d'ytterbium YbGG est remarquable étant donné qu'il a la plus faible température caractéristique parmi les terres-rares, comparable à celle du sel MAS, tout en ayant une densité ionique ~ 4.5 fois supérieure. Encore sur cette figure, nous remarquons que l'ordre relatif des ions paramagnétiques change en fonction de la famille de composé *e.g.* dans la famille des oxydes de terres-rares $T_{carac}(Dy^{+3}) < T_{carac}(Yb^{+3})$ tandis que dans la famille des grenats $T_{carac}(Dy^{+3}) > T_{carac}(Yb^{+3})$.

Dans le cas des composés paramagnétiques non dilués, la concentration volumique d'ions paramagnétiques est d'abord fonction de la série du composé (voir tableau 2.2) et

ensuite de l'ion magnétique en question. Les séries dans lesquelles les ions magnétiques représentent un pourcentage élevé de la masse molaire des composés sont, en principe, plus intéressantes. Cependant, les interactions deviennent plus intenses avec le rapprochement des ions. Ce contraste met en évidence l'importance du choix des matériaux selon la gamme de température ciblée car T_{carac} augmente avec les interactions.

Nous remarquons dans la figure 2.10 que seuls les sels paramagnétiques possèdent T_{carac} suffisamment faible pour être opérationnel vers 50 mK. Parmi eux, le CPA est le choix classique dû à sa performance magnétocalorique et à sa résistance à la dégradation pendant les phases d'étuvage des satellites. En raison du manque d'autres candidats opérationnels vers cette température, nous avons choisi de nous concentrer sur la gamme de température immédiatement au-dessus. Ainsi, les sels paramagnétiques ne sont plus considérés dans la suite du développement de la méthode graphique de sélection. Cela simplifiera aussi la compréhension de cette méthode.

2.2.4 Cartographie (S_{max}, T_{carac})

Une première comparaison entre les matériaux peut être réalisée avec la construction d'un diagramme (S_{max}, T_{carac}), comme affiché sur la figure 2.11 : l'abscisse montre la température au-dessous de laquelle des forts ΔS_0 sont évités et l'ordonnée, la borne supérieure de l'EMC, S_{max}.

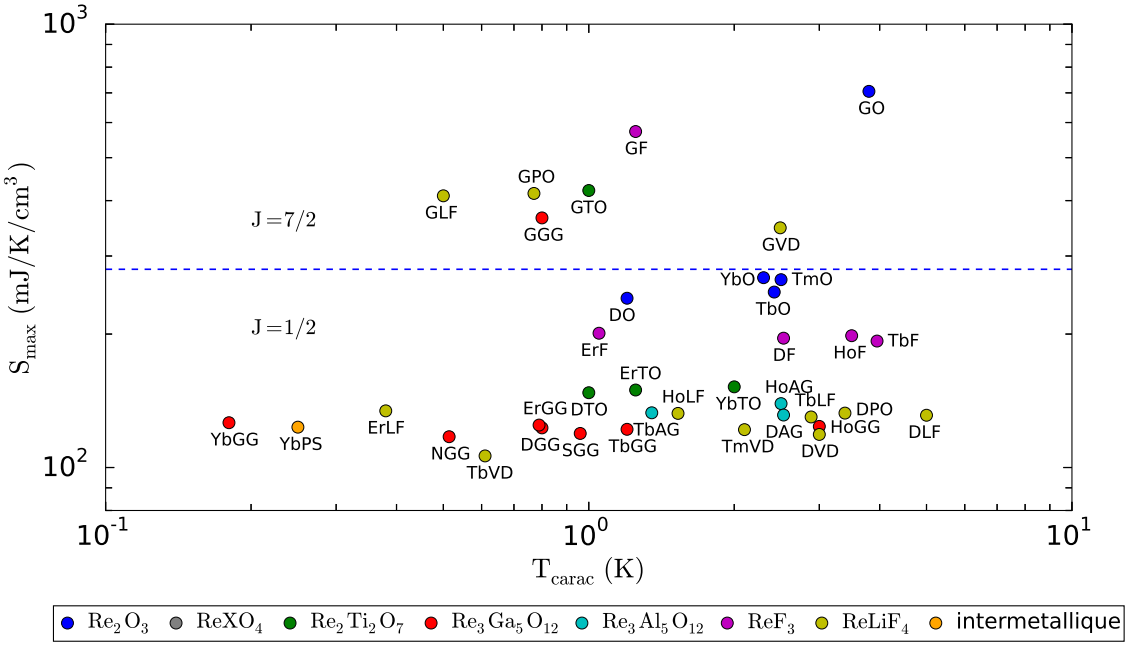


FIGURE 2.11 – Entropie maximum des matériaux paramagnétiques en fonction de leur température caractéristique.

À l'intérieur d'une même famille de matériaux, on note que les composés à base de Gd (J = 7/2) possedent un S_{max} environ 3 fois supérieur aux matériaux à base d'autres ions de terre-rare (J = 1/2), ce qui s'explique par le rapport $\ln 8/\ln 2 = 3$. Cependant, il est tôt pour conclure que les meilleurs choix se résument aux composés à base de Gd^{3+} car il faut prendre en compte le champ magnétique nécessaire pour « exploiter » S_{max}.

Les matériaux à J = 1/2 présentent fréquemment des facteurs de Landé élevés, tandis que pour $g_{Gd^{3+}} \simeq 2$ pour ceux à base de gadolinium. Ainsi, il reste à déterminer si un matériau à faible J peut être plus performant qu'un matériau à fort J grâce à un fort facteur de Landé.

Si la comparaison des matériaux avec différents J par une méthode graphique est relativement difficile à cause du caractère non-linéaire des courbes d'entropie, la comparaison entres les composés de même J est beaucoup plus directe car l'effet magnétocalorique est fonction unique du paramètre adimentionnel $x = \mu_B g B/kT$ et donc $x \propto gB$.

Nous proposons ainsi d'utiliser un diagramme ($S_{max} \cdot g,\ T_{carac}$) pour un J donné afin de comparer les matériaux. Ainsi, une seconde étape de sélection est nécessaire afin de comparer les meilleurs matériaux selon leur J. Comme $g \simeq 2$ pour les matériaux à base de gadolinium, ces matériaux peuvent être comparés directement dans le graphique 2.11.

Le caractère antagoniste des demandes de $S_{max} \cdot g$ important pour T_{carac} faible implique que, souvent, il n'est pas possible de favoriser l'un sans pénaliser l'autre. Ainsi, les composés les plus intéressants pour une ADR selon le critère de choix proposé se trouvent dans un front de Pareto (Fonseca and Fleming, 1993). Pour les composés à base de gadolinium, ce front correspond à l'enveloppe de points en haut à gauche du graphique 2.11, auquel appartient tous les composés sauf le GGG et le GVD.

2.2.5 Cartographie ($S_{max} \cdot g,\ T_{carac}$)

Le diagramme ($S_{max} \cdot g,\ T_{carac}$) pour les matériaux avec J = 1/2 dont on connaît le facteur de Landé (tableau 2.2) est affiché sur la figure 2.12. On retrouve la présence d'un front de Pareto où se localisent les solutions optimums, à savoir le YbGG, le YbPS, le ErLF, le TbVD, le ErF et le DF. En comparant les graphiques 2.11 et 2.12 on remarque l'importance de pondérer S_{max} par g. Par exemple, le NGG a une plus faible T_{carac} et une plus forte S_{max} que le TbVD. Cependant, comme le TbVD a un facteur g bien plus important, il s'avère être plus intéressant que le NGG.

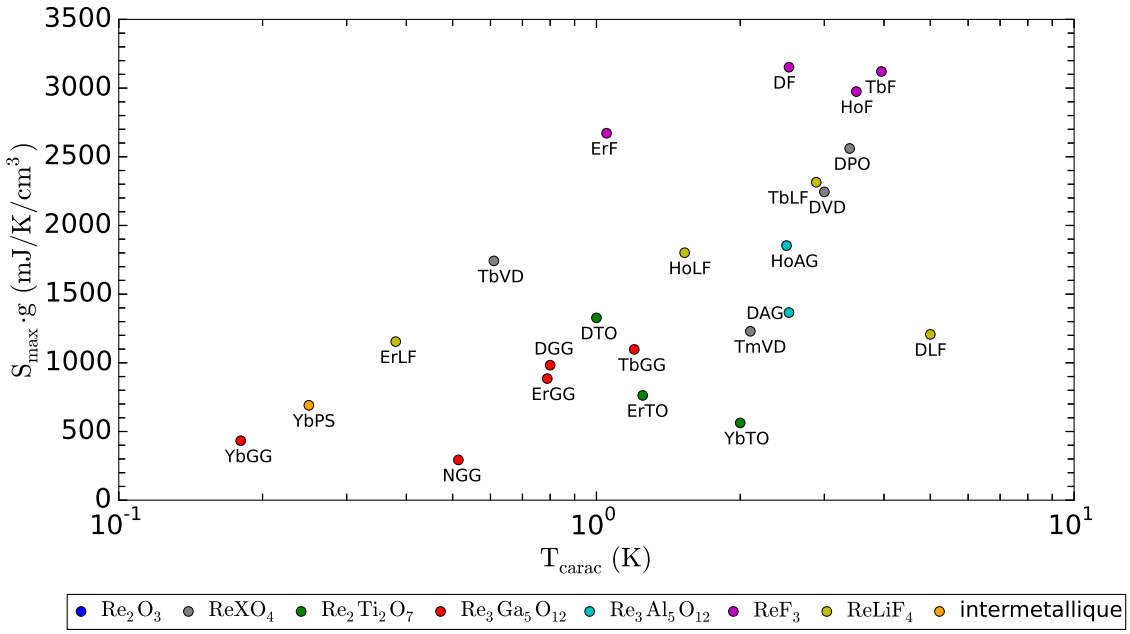


FIGURE 2.12 – Entropie maximum pondérée par g des matériaux paramagnétiques avec J =1/2 en fonction de leur température caractéristique.

On a ainsi proposé une méthode originale pour la comparaison des différents composés qui permet de visualiser le compromis nécessaire pour leur sélection.

2.2.6 Matériaux potentiels

L'étude de Barclay and Steyert (1982) sur les matériaux paramagnétiques adaptés pour la réfrigération magnétique entre 2 K et 20 K, a fait ressortir le GGG comme un candidat proéminent parmi presque 70 composés à base de gadolinium. Des études plus récentes sur le GPO ($GdPO_4$) (Palacios *et al.*, 2014) ont montré que ce composé a un effet magnétocalorique plus élevé que celui du GGG. Les travaux de Numazawa *et al.* (2006) sur le GLF ($GdLiF_4$) montrent que ce composé présente un effet magnétocalorique encore supérieur à celui du GPO. Ces résultats expérimentaux corroborent l'utilisation de la paire (T_{carac}, S_{max}) comme critère de comparaison du potentiel des composés paramagnétiques pour une ADR. Du coté des matériaux à J = 1/2, le principal composé étudié pour la gamme 4 K - ∼1 K (Kimura, Maeda, and Sato, 1988; Numazawa *et al.*, 2003) est le DGG, un composé bien placé dans la famille des grenats mais qui donne marge à l'amélioration.

Pour la gamme 4 K - ∼1 K, les meilleurs candidats à réfrigérant magnétique présents dans la figure 2.11 ayant J = 7/2 sont le GLF, le GPO et le GF. Pour les composés avec J = 1/2, plusieurs candidats intéressants se présentent : le YbGG, le YbPS, le ErLF, le TbVD et le ErF.

Le choix des composés avec J = 7/2 est en principe plus direct, car ils ne présentent pas de variations importantes de S_{max} et ont tous $g \simeq 2$. Le choix des composés avec J = 1/2 étant naturellement moins direct dû aux différences de S_{max} plus marquées et à la variation de g en fonction du composé *e.g.* $g_{DGG} \simeq 8$ (Kimura, Maeda, and Sato, 1988) et $g_{YbGG} = 3.43$ (Filippi, Tcheou, and Rossat-Mignod, 1980). Nous retenons donc les composés cités dans ce paragraphe pour la prochaine étape de la sélection des matériaux, la sélection fine.

2.3 Sélection fine des matériaux

L'étape de sélection préliminaire nous a permis d'identifier les matériaux les plus performants à partir de leurs propriétés intrinsèques. Une étape supplémentaire est nécessaire, laquelle consiste dans le calcul de la masse totale des étages en fonction de leur gamme de température de travail. Cette étape permet de comparer la performance selon le critère de masse des matériaux avec différents J.

Pour comparer les différents matériaux, on utilise le modèle des ions libres après avoir présenté les limites associées à ce choix en se servant des diagrammes d'entropie expérimentaux. Finalement, pour pouvoir conclure sur la sélection de matériaux, nous réalisons un calcul de la masse des ADRs pour un cas donné. Cette étape est nécessaire car le comportement non-linéaire des composés paramagnétiques et des bobines fait que l'effet de taille du système (puissance et autonomie de l'ADR) ne peut pas être négligé.

2.3.1 Modèle des ions libres avec champ interne

La performance d'un matériau paramagnétique en tant que réfrigérant peut être évaluée à partir de son diagramme d'entropie S(T, B). Nous avons vu dans la section 2.1.3 que le modèle des ions libres avec champ interne permet d'évaluer le diagramme d'entropie des paramagnétiques pour lesquels les interactions ne peuvent pas être négligées. L'effet des interactions est, dans ce cas, modélisé par un champ magnétique constant. Cette hypothèse simplificatrice limite la précision de ce modèle, mais permet d'avoir une bonne estimation de l'effet magnétocalorique d'une quantité importante de matériaux. Des modèles plus précis qui prennent en compte les différentes interactions peuvent être utilisés. Ces modèles sont cependant significativement plus compliqués que le modèle des ions libres et doivent être développés matériau par matériau.

L'expression permettant le calcul de l'entropie par ce modèle est rappelée ci-dessous.

$$S/nR = \ln\left\{\frac{\sinh\left[(J+1/2)x\right]}{\sinh\left(x/2\right)}\right\} - x\,J\,B_J(x) \tag{2.20}$$

$$x = g\mu_{\mathrm{B}}\mathrm{B}_{\mathrm{eff}}/k\mathrm{T} = g\mu_{\mathrm{B}}\left(\mathrm{B}^2 + {\mathrm{B}_{\mathrm{int}}}^2\right)^{1/2}/k\mathrm{T} \tag{2.21}$$

Un résumé des propriétés magnétiques des matériaux étudiés dans cette section st présenté sur le tableau 2.5. Ce tableau inclut les composés mis en évidence dans l'étape de présélection ainsi que le DGG et le GGG. Bien que ces deux matériaux ne sont pas présents dans la liste présentée dans la section 2.2.6, nous les avons ajoutés à notre analyse car ce sont des matériaux de référence pour leur J respectif. Selon les expressions 2.20 et 2.21, il reste un paramètre à déterminer pour le calcul des diagrammes d'entropie, le champ interne.

Composé	Composition chimique	J	g	$\mathrm{T}_{\mathrm{carac}}$ (K)	$\mathrm{B}_{\mathrm{int}}$ (T)
GGG	$Gd_3Ga_5O_{12}$	7/2	2	0.8	0.47
DGG	$Dy_3Ga_5O_{12}$	1/2	8	0.8	0.16
YbGG	$Yb_3Ga_5O_{12}$	1/2	4.43	0.18	0.17
YbPS	$YbPt_2Sn$	1/2	5.6	0.25	0.20
ErF	ErF_3	1/2	11.5	1.05	—
GF	GdF_3	7/2	2	1.25	0.47
GLF	$GdLiF_4$	7/2	2	< 0.5	0.35
ErLF	$ErLiF_4$	1/2	8.6	0.38	0.15
GPO	$GdPO_4$	7/2	2	0.77	0.43
TbVD	$TbVO_4$	1/2	16.4	0.61	0.14

Table 2.5 – Propriétés des composés paramagnétiques mis en évidence dans la « présélection ».

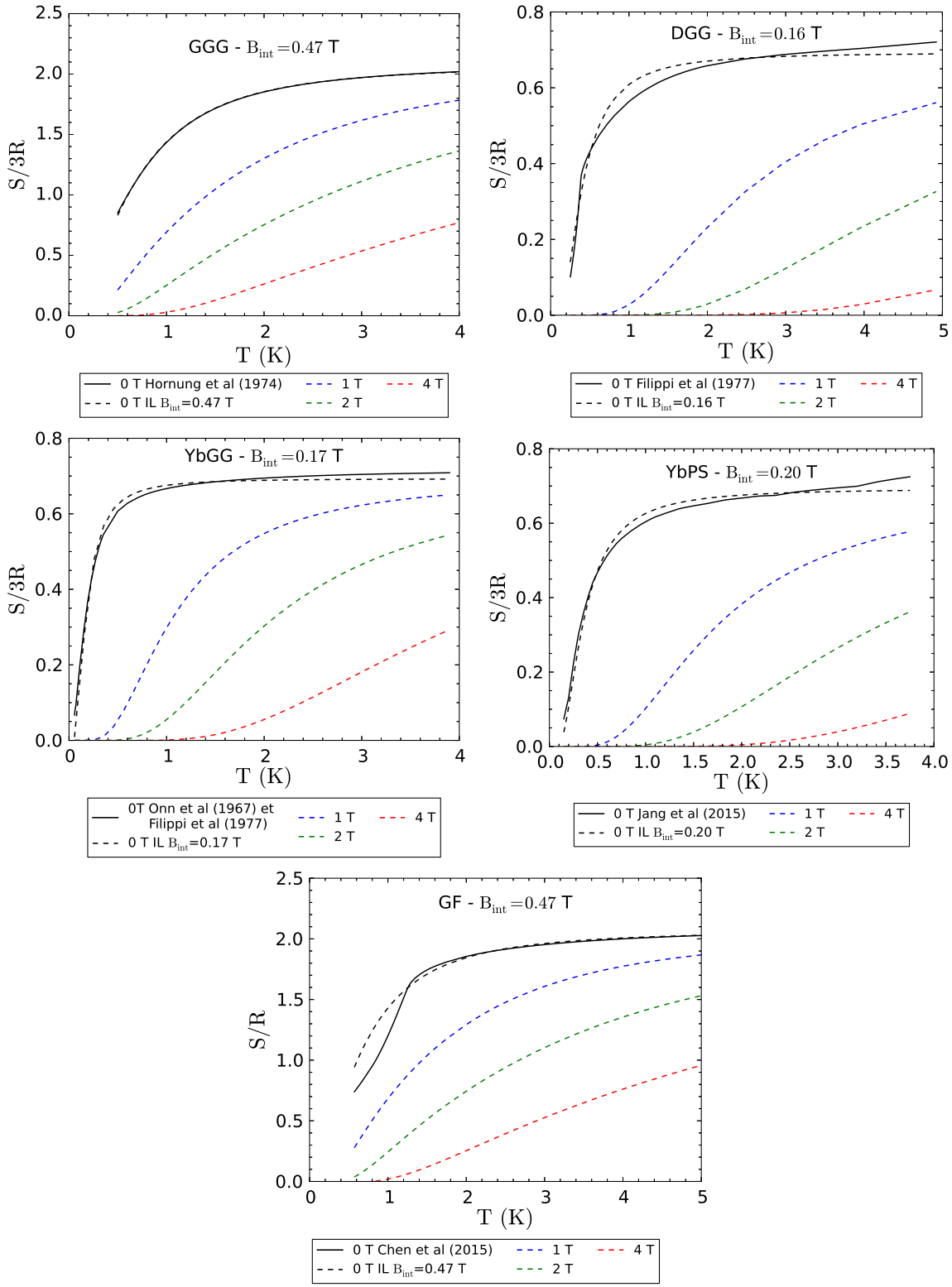
2.3.1.1 Champ interne à partir des courbes d'entropie à champ nul

Le champ interne peut être obtenu à partir de la courbe d'entropie à champ nul des matériaux. L'entropie à champ nul est obtenue à partir des mesures de la chaleur spécifique selon l'expression $\mathrm{S}_0 = \int \mathrm{C}_0/\mathrm{T}\, d\mathrm{T}$.

Le tableau 2.5 montre les valeurs de $\mathrm{B}_{\mathrm{int}}$ que nous avons obtenu à partir des mesures de chaleur spécifique des références Filippi *et al.* (1977); Onn, Meyer, and Remeika (1967); Hornung *et al.* (1974); Filippi *et al.* (1980b); Kraemer *et al.* (2012); Numazawa *et al.* (2006); Wells and Worswick (1972); Palacios *et al.* (2014). Ce paramètre n'a pas pu être estimé pour l'ErF par manque de données expérimentales de C_0. Le champ interne a été calculé avec une méthode des moindres carrés où les paramètres ajustés ont été $\mathrm{B}_{\mathrm{int}}$ et la constante d'intégration de S_0 expérimentale.

Une comparaison entre S_0 expérimentale et S_0 obtenue par le modèle des ions libres sous $\mathrm{B}_{\mathrm{int}}$ est montrée sur la figure 2.13. D'une manière globale, le comportement de l'entropie à champ nul est correctement décrit par le modèle des ions libres. L'accord est

dépendant de la gamme de température et du type d'anomalie de chaleur spécifique présent.



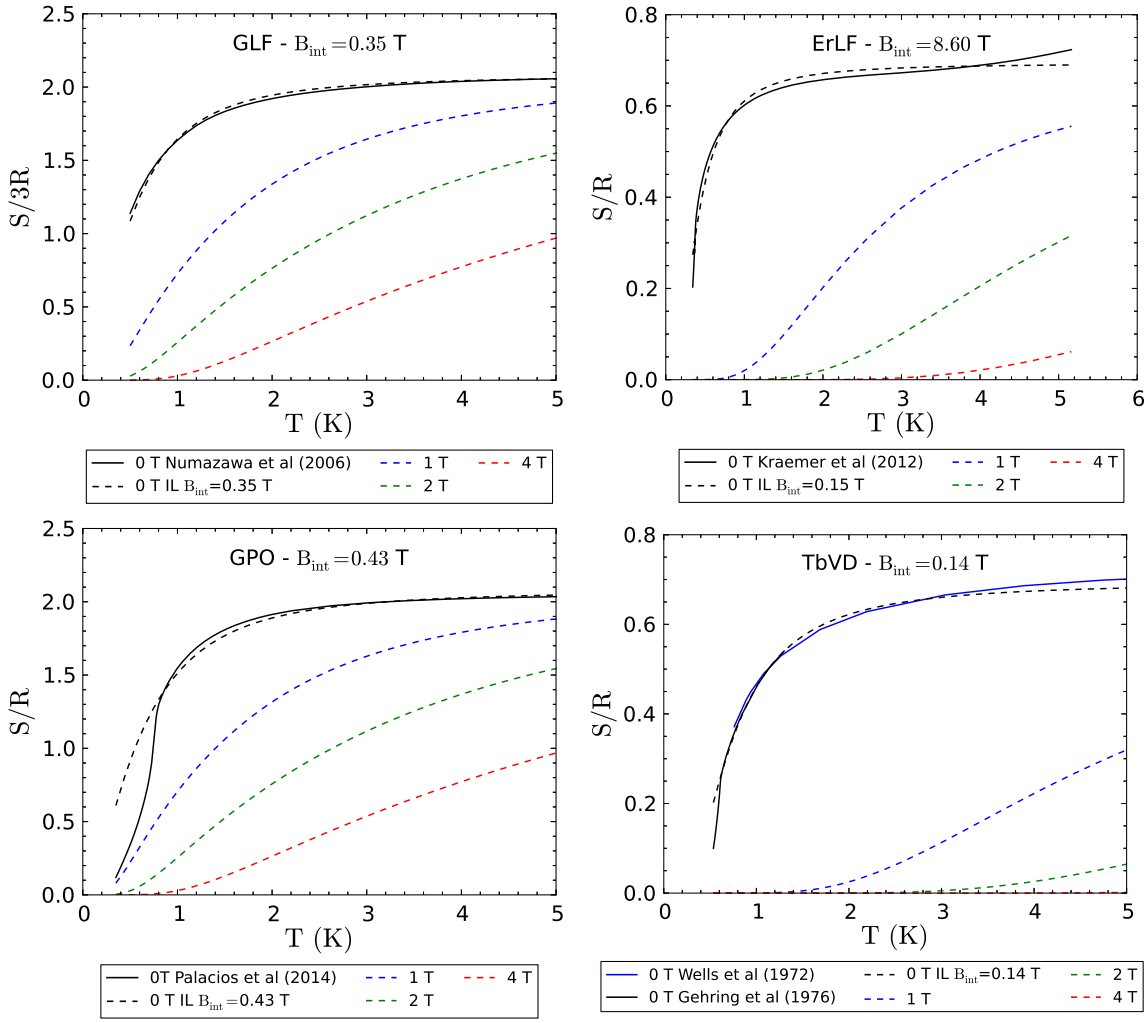


FIGURE 2.13 – Courbes d'entropie à champ nul calculées avec le modèle des ions libres. Le champ B_{int} de chaque matériau a été obtenu à partir des courbes expérimentales représentées. Les courbes d'entropie sous champ calculées sont aussi représentées.

2.3.1.2 Comparaison avec des diagrammes d'entropie sous champ

On retrouve dans la littérature des diagrammes d'entropie de certains composés de notre liste, à savoir du DGG, du GGG, du GLF et du GPO. Ces données sont utilisées dans cette section comme moyen de comparaison par rapport au calculs du modèle des ions libres.

Cette comparaison est affichée sur la figure 2.14 pour le cas du GGG et du GLF. On remarque que le modèle des ions libres est mieux adapté pour décrire l'entropie du GLF. Le modèle des ions libres est plus adapté pour les matériaux qui présentent des anomalies de chaleur spécifique du type Schottky (système à N niveaux d'énergie uniformément séparés) (Bromiley, 2000). Une présence importante d'interactions qui génèrent d'autres types d'anomalies est à l'origine des différences entre le diagramme d'entropie expérimental et celui calculé avec le modèle des ions libres. D'autres phénomènes comme la frustration

magnétique (par exemple dans les grenats) sont aussi sources d'écarts.

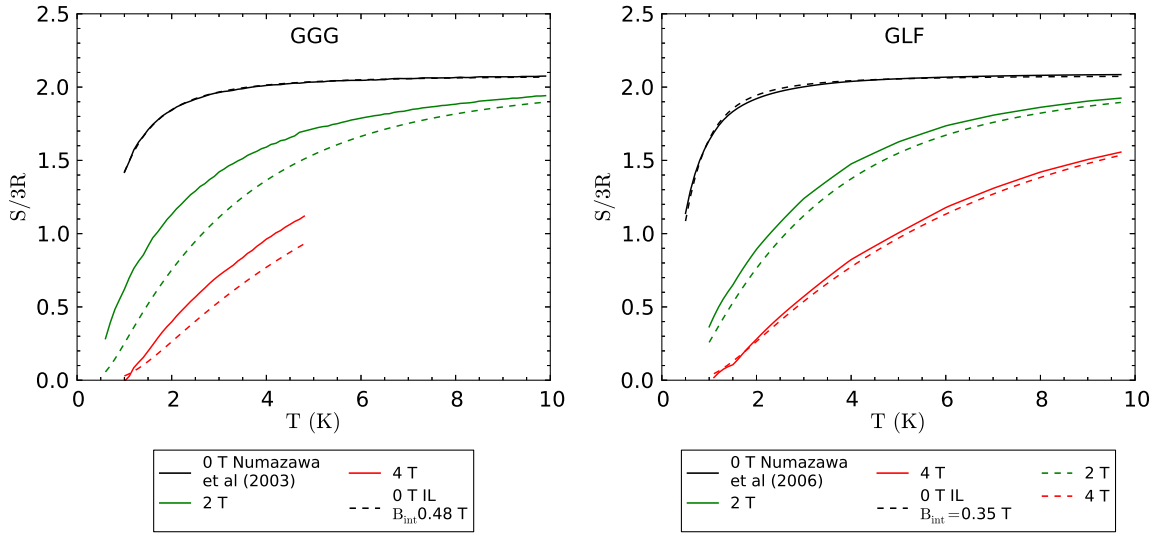


FIGURE 2.14 – Comparaison entre les diagrammes d'entropie calculés avec le modèle des ions libres et ceux obtenus expérimentalement.

Cette comparaison montre les limites de l'utilisation du modèle des ions libres, qui dépend du matériau modélisé. Le GGG s'écarte de ce modèle et les écarts relatifs donnent un ordre de grandeur des « pires » cas attendus tandis que d'autres composés comme le GLF sont modélisés avec une plus grande précision. Malgré ces limitations, l'approche du modèle des ions libres sera utilisée permettant des comparaisons rapides, qui devront cependant être consolidées expérimentalement.

2.3.2 Matériaux minimisant la masse de l'ADR

Cette section est dédiée au calcul de la masse d'une ADR en fonction du matériau paramagnétique avec l'objectif de comparer leur performance. En vue du comportement non-linéaire du système magnétique (*e.g.* la masse de la bobine devient de moins en moins importante par rapport à la masse des écrans avec la taille), nous nous concentrons sur des systèmes ADR du même ordre de taille que celle demandée par les futures missions spatiales.

Afin de pouvoir comparer les différents matériaux, nous fixons tous les paramètres d'entrée du calcul, sauf le volume de paramagnétique et le champ utilisé car celui-ci est optimisé en fonction du matériau. Les masses présentées dans cette section correspondent à des étages dimensionnés pour avoir une entropie disponible $S_{disp} = 5$ J/K.

Les hypothèses permettant le calcul de la masse d'un étage ADR en fonction des propriétés du réfrigérant et de son système magnétique sont décrites en détails dans le chapitre 5.

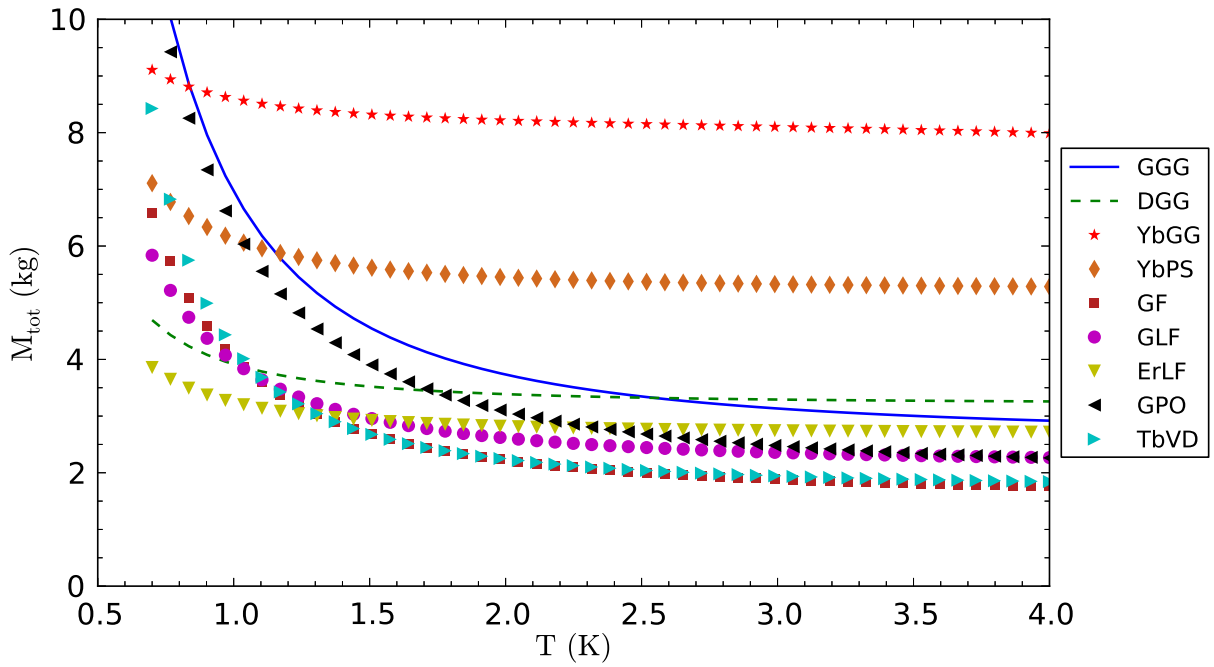


FIGURE 2.15 – Masse de l'étage ADR en fonction de la température froide pour S_{disp} = 5 J/K. La température de départ est fixée à 4 K. Le modèle des ions libres avec champ interne a été utilisé pour le calcul des diagrammes d'entropie.

Le calcul de la masse d'un étage en fonction de la température froide est affiché sur la figure 2.15 pour T_{chaud} = 4 K et sur la figure 2.16 pour T_{chaud} = 1 K.

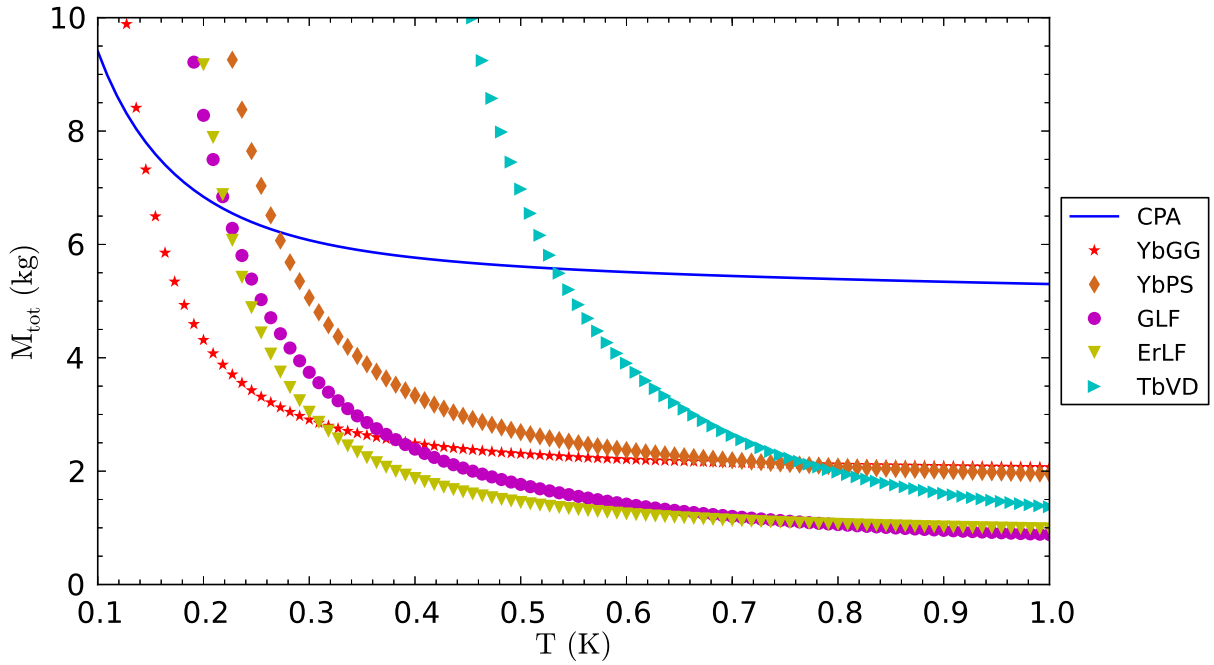


FIGURE 2.16 – Masse de l'étage ADR en fonction de la température froide pour S_{disp} = 5 J/K. La température de départ est fixée à 1 K. Le modèle des ions libres avec champ interne a été utilisé pour le calcul des diagrammes d'entropie.

Les croisements de courbe observées sur les figures 2.15 et 2.16 montrent que les composés les plus performants sont différents en fonction de T_{froid}. Dans cette application numérique, la température chaude de la deuxième gamme de température, 1 K, est un choix cohérent pour minimiser la masse du système mais il est arbitraire. Dans un système à deux étages par exemple, cette température est en principe libre et elle peut être choisie de façon à permettre la minimisation de la masse totale du système. En conséquence, les températures de croisement des courbes de masse des différents composés peuvent aussi être décalées. Autre facteur important à prendre en compte lors de l'analyse de graphiques cités est le fait que les limitations du modèle des ions libres sont d'autant plus importantes que T_{froid} est faible.

Le TbVD, le GF et le GLF ont été les matériaux les plus performants de 4 K à ∼1.3 K et le ErLF et le DGG en dessous d'environ 1.3 K (figure 2.15). Le gain potentiel de masse par rapport au GGG est important et augmente rapidement proche de 1 K. Comme attendu, le YbGG n'est pas performant dans la gamme 4 K - ∼1 K car son facteur de Landé est environ 2 fois plus faible que celui des autres matériaux de même J (1/2), ce qui implique des champs optimum plus importants.

Dans la gamme subkelvin, trois composés sont mis en évidence (figure 2.16) : le ErLF, le GFL et le YbGG. Le gain en masse est important par rapport au composé de référence, le CPA. Il varie de 50 % à 80 % au-dessus de 0.3 K. Le ErLF et le GLF sont plus performant que le YbGG à « haute température » mais cela s'inverse entre 0.3 K et 0.4 K.

2.4 Matériaux potentiels

La méthode de sélection proposée dans ce chapitre nous a permis d'identifier quelques composés potentiels pour les gammes de température ∼ 4 K - 1 K et ∼ 1 K - 0.4 K, à savoir le ErLF, le TbVD, le DGG, le GF, et le GLF pour la première gamme ; le GLF, le ErLF et le YbGG pour la deuxième. Parmi ces matériaux, le DGG, le GF, et le GLF ont déjà été caractérisés par d'autres auteurs visant la réfrigération par désaimantation adiabatique (Tomokiyo *et al.* 1985; Kimura, Maeda, and Sato 1988; Numazawa *et al.* 2003, DiPirro *et al.* 2004a, et Numazawa *et al.* 2006). Le ErLF, le TbVD et le YbGG n'ont pas encore été caractérisé pour cette finalité. Vu que le gain de masse est plus important au-dessous du kelvin, nous avons choisi de nous concentrer sur cette gamme de température et ainsi de caractériser le ErLF et le YbGG.

Chapitre 3

Synthèse et caractérisation des matériaux paramagnétiques

Le travail de sélection des matériaux paramagnétiques potentiellement performants en tant que réfrigérants magnétiques nous a permis de sélectionner le ErLF ($ErLiF_4$) et le YbGG ($Yb_3Ga_5O_{12}$) pour être caractérisés.

Ce chapitre est dédié à la méthode de synthèse et à la caractérisation du YbGG. Au début de cette thèse, nous avons aussi réalisé et caractérisé un composé de la même famille, le DGG ($Dy_3Ga_5O_{12}$), et avons comparé nos mesures avec celles publiées dans la littérature.

Les difficultés de synthèse liées à la complexité du diagramme de phase, à la réactivité du fluor et à la haute sensibilité de la croissance de ErLF aux impuretés d'oxydes (Walker, 1980) n'ont pas permis d'obtenir des cristaux de ErLF de pureté suffisante en utilisant une méthode du type Bridgman. L'obtention de monocristaux de qualité a été rapportée dans la référence mentionnée, cependant cela implique l'utilisation d'une atmosphère active contenant du HF. L'utilisation de ce gaz aurait exigé des modifications importantes dans notre équipement de croissance pour des raisons de sécurité, ce qui a rendu incompatible l'obtention des monocristaux de ErLF pendant la durée de cette thèse.

Dans un premier temps, nous décrivons la méthode de synthèse adoptée pour l'obtention des échantillons de DGG et de YbGG. Ensuite, nous présentons leur caractérisation puis celle d'une capsule magnétique de YbGG. Cette capsule est constituée d'un contenant et de son réfrigérant magnétique, le composé paramagnétique.

Lors de sa caractérisation, le matériau est d'abord analysé par diffraction de rayons-X sur poudre. Cette étape permet de s'assurer que le composé obtenu est bien celui ciblé ainsi que de vérifier la présence ou non des phases parasites. Par la suite, des échantillons

sont caractérisés par des mesures d'aimantation et de chaleur spécifique. Ces deux mesures permettent de calculer le diagramme d'entropie du paramagnétique et ainsi d'évaluer son intérêt en tant que réfrigérant magnétique.

La caractérisation d'une capsule magnétique permet d'évaluer sa performance dans des conditions plus proches de son utilisation finale. L'interaction entre le matériau paramagnétique et son contenant (nature et proportion des masses) est un facteur important qui affecte la performance globale de la capsule. On cite notamment le couplage thermique entre le paramagnétique et le bus thermique ainsi que le rapport entre la capacité thermique du paramagnétique et de son contenant. Ces mesures permettent de prendre tout cela en compte.

À la fin de ce chapitre, la performance du YbGG en tant que réfrigérant magnétique est comparée à celle du composé de référence pour la gamme de température au-dessous de ~ 1 K, le sel CPA.

3.1 Synthèse des matériaux sélectionnés

Nous avons opté pour la synthèse des matériaux sous forme monocristalline pour favoriser la conductance thermique des échantillons. Aux basses températures, les matériaux sous forme polycristalline, même de très haute densité, ont une conductivité significativement moins importante que ceux sous forme monocristalline (Numazawa *et al.*, 2001). En effet, le transport de chaleur dans un matériau isolant est majoritairement réalisé par les phonons et la moins bonne conductivité des polycristaux est attribuée à la dispersion de ces phonons aux joints de grains (Slack and Oliver, 1971; Barclay *et al.*, 1978; Numazawa *et al.*, 2001).

Plusieurs techniques de croissance à partir d'un bain en fusion ont été rapportées dans la littérature pour la croissance de grenats, comme la technique de Czochralski, de Bridgman, « μ-pulling down » ou par fusion de zone verticale (Velazquez and Veber, 2015). Les oxydes qui présentent de hautes températures de fusion T_{fusion} et une réactivité élevée du bain fondu imposent de fortes contraintes pour les techniques qui utilisent des creusets. Les creusets doivent d'une part avoir une résistance mécanique à haute température pour contenir le bain fondu et d'autre part ils doivent être compatibles (non réactifs) pour ne pas être détruits et surtout pour ne pas polluer le matériau que l'on souhaite faire croître. L'utilisation de creusets constitués de matériaux à haut point de fusion et chimiquement inertes à haute température est une solution est envisageable. Celle-ci implique cependant l'utilisation de creusets onéreux, comme ceux en platine ou en iridium, et qui, dans le cas des oxydes, peuvent laisser des impuretés dans les cristaux synthétisés.

Afin de s'affranchir des difficultés liées à la présence d'un creuset, nous avons utilisé la technique de fusion de zone verticale. La figure 3.1 montre un schéma de cette technique. Elle consiste à créer une zone fondue liquide entre deux solides : le barreau d'apport et le cristal que l'on fait croître. Dans notre cas, la zone chaude est créée par un chauffage optique constitué de 4 miroirs elliptiques qui concentrent la lumière des lampes halogènes, de 1 kW chacune, montées autour de la zone de croissance. Le déplacement des miroirs vers le haut va permettre le contrôle de la vitesse de cristallisation et de dissolution du barreau d'apport. D'autres méthodes de chauffage existent, par exemple par induction haute fréquence ou par laser CO_2 (Velazquez and Veber, 2015). La zone fondue liquide en équilibre entre les deux barreaux tournants est tenue mécaniquement par sa tension de surface. La rotation en sens opposé des barreaux permet la stabilisation de la zone liquide ainsi que son homogénéisation chimique et thermique.

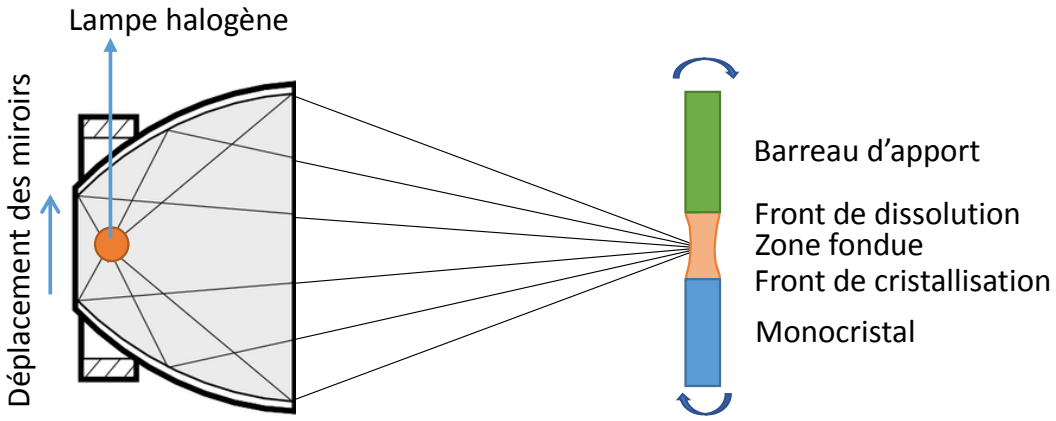


FIGURE 3.1 – Schéma de la technique de croissance de fusion de zone verticale dans un four à image. La montée progressive des miroirs permet le déplacement du front de dissolution et du front de cristallisation vers le haut.

La stabilisation de la zone liquide et les caractéristiques techniques du four à image utilisé limitent le diamètre des cristaux que l'on peut obtenir à environ 10 mm. Les volumes des cristaux ainsi obtenus varient entre 1 cm^3 et 2 cm^3 et sont suffisants pour les caractérisations présentées dans ce chapitre afin d'évaluer leur performance en tant que réfrigérants magnétiques. Les volumes importants typiquement demandés dans une application ADR justifient cependant l'utilisation des méthodes avec des creusets, telle que la méthode de Czochralski (Kimura, Kitamura, and Shindo, 1983).

3.1.1 Procédure expérimentale

La procédure expérimentale utilisée pour la mise en œuvre de la croissance est tout d'abord guidée par l'analyse des diagrammes de phase du composé à synthétiser lorsqu'ils

sont disponibles dans la littérature. Des monocristaux de différents grenats de gallium et de terre-rare ont été obtenus par la méthode Czochralski (Brandle and Valentino, 1972; Brandle and Barns, 1974). Il est donc raisonnable de supposer que les grenats DGG et YbGG sont cristallisés de façon congruente. Cela veut dire que le bain fondu en équilibre avec la phase solide recristallisée est de composition stœchiométrique 3/5 (Re/Ga). Ainsi, une croissance de fusion de zone réalisée dans ces conditions requiert un barreau d'apport de composition stœchiométrique.

3.1.1.1 Préparation du barreau d'apport

Les barreaux d'apport sont préparés par synthèse et frittage de la poudre de $Re_3Ga_5O_{12}$. L'objectif de la méthode décrite ci-dessous est d'avoir un barreau de longueur > 60 mm, rectiligne et de section régulière sur toute sa longueur. La densité du barreau doit être suffisamment élevée pour éviter que le liquide de la zone fondue remonte le barreau par capillarité.

La poudre de $Re_3Ga_5O_{12}$ est obtenue par synthèse par voie solide. Elle consiste à réaliser un mélange des poudres de Re_2O_3 et de Ga_2O_3 et de lui faire subir une série de broyages et de traitements thermiques successifs pour obtenir de la poudre monophasée de $Re_3Ga_5O_{12}$. Les poudres de départ utilisées ont un degré de pureté 4N (> 99.99 %). Les traitement thermiques sont réalisés à des températures qui varient de 750 °C à 1150 °C sous air pendant environ 24 h.

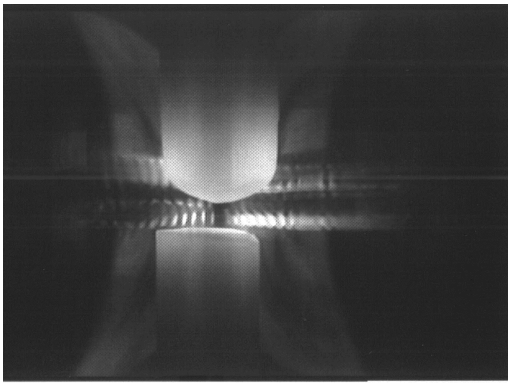
La poudre de $Re_3Ga_5O_{12}$ est ensuite broyée finement avant mise en forme par un pressage isostatique à 1500 bar dans un doigt de gant en latex pour l'obtention d'un barreau d'apport d'environ ϕ 10 mm. Finalement, ce barreau subit un dernier traitement thermique à 1400 °C sous air pendant environ 24 h pour acquérir la résistance mécanique et la densité nécessaire pour être utilisé comme barreau d'apport dans le four à image.

3.1.1.2 Conditions de croissance

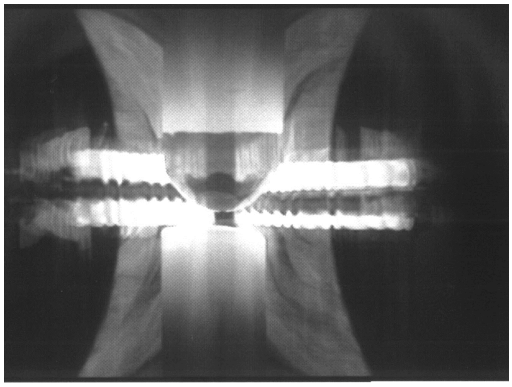
Les paramètres contrôlés pendant les croissances sont les suivants :
— Puissance des lampes - en % par rapport à la puissance nominale de 4 kW.
— Vitesse d'apport du barreau supérieur - en mm/h.
— Vitesse de croissance, imposée par la vitesse de déplacement des miroirs - en mm/h.
— Vitesse de rotation des barreaux - en tours/min.

Dans un premier temps, ces paramètres sont ajustés pour créer la zone fondue entre le barreau d'apport et le barreau de reprise en Al_2O_3. Dans un deuxième temps, il est nécessaire de contrôler les paramètres de façon à obtenir une zone fondue en équilibre :

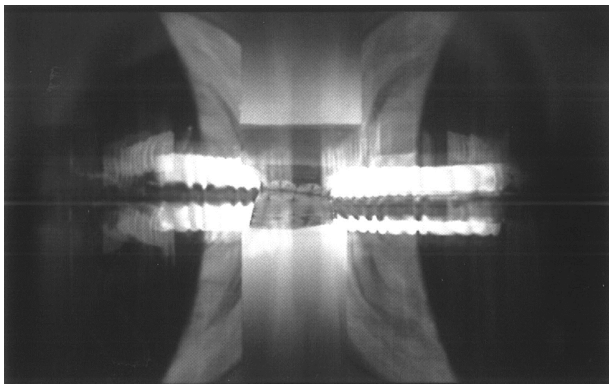
l'apport de matière par la fusion du barreau supérieur doit être égal à la quantité recristallisée sous forme monocristalline. Dans cette étape, la stabilité des paramètres du four est essentielle pour l'obtention d'un cristal de géométrie cylindrique régulière. En fin de croissance, l'ensemble de paramètres doit être piloté de façon à permettre l'éloignement des deux barreaux sans provoquer le déversement de la phase liquide sur le cristal formé afin d'éviter qu'un choc thermique entraine des fissures sur toute sa longueur. Ces trois étapes de la croissance sont présentées sur la figure 3.2. Les croissances sont réalisées sous atmosphère d'argon de quelques bars typiquement.



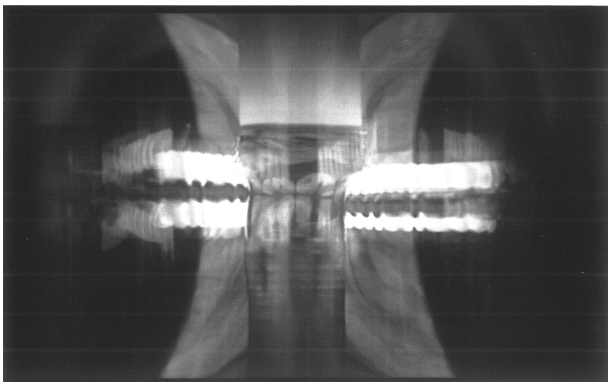
(a) Chauffage initial du barreau.



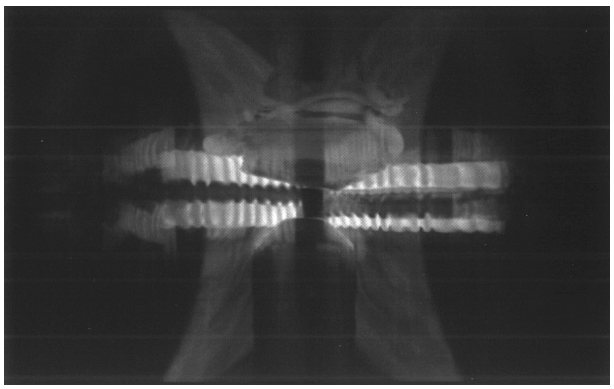
(b) Formation du liquide en fusion.



(c) Contact et début de la croissance de DGG.



(d) Croissance stable - zone fondue en équilibre.

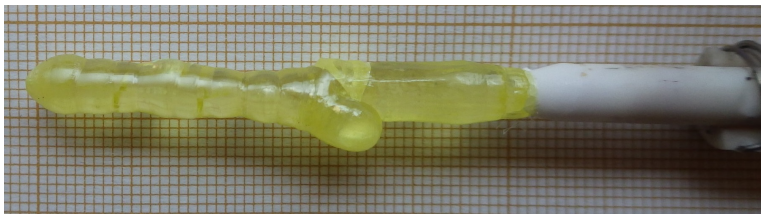


(e) Fin de la croissance - déconnexion de la zone fondue.

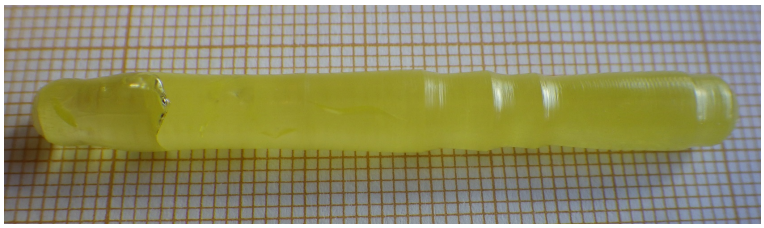
FIGURE 3.2 – Croissances du DGG dans le four à image.

Nous avons réalisé plusieurs croissances successives afin d'obtenir un échantillon de chaque matériau de taille importante et de géométrie régulière nécessaires pour la constitution d'une capsule. Trois essais ont été nécessaires pour le DGG et quatre pour le YbGG.

Les échantillons obtenus ont été caractérisés après chaque croissance afin de tirer des enseignements pour l'expérience suivante. Les figures 3.3 et 3.4 montrent quelques cristaux de DGG et de YbGG que nous avons obtenus.

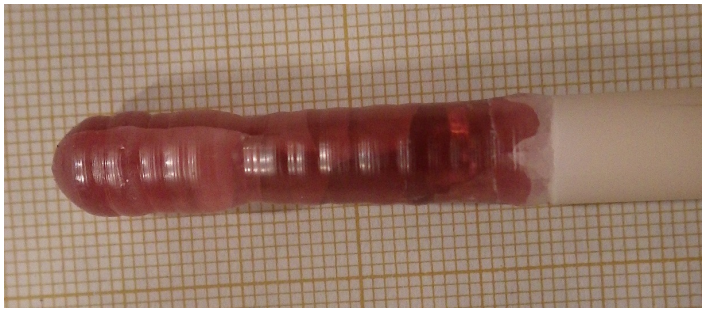


(a) Croissance 1.

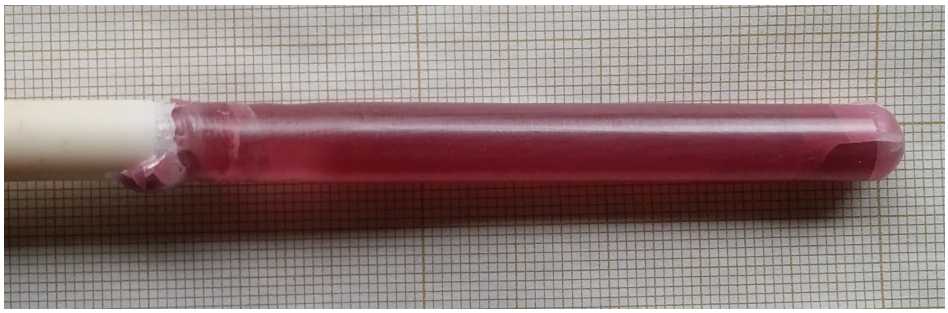


(b) Croissance 2.

FIGURE 3.3 – Croissances du DGG dans le four à image.



(a) Croissance 1.



(b) Croissance 4.

FIGURE 3.4 – Croissances du YbGG dans le four à image.

3.2 Caractérisation du composé paramagnétique

Les caractérisations commencent par la vérification de la qualité des échantillons des grenats DGG et YbGG par diffraction de rayons-X. Ensuite, leurs propriétés magnéto-caloriques sont indirectement caractérisées par des mesures d'aimantation M(T, B) et de chaleur spécifique C_P(T, B).

3.2.1 Rayons-X

La diffraction de rayons-X sur poudre a été réalisée à INAC/MEM/SGX sur un diffractomètre X'Pert de PANalytical (optique Bragg-Brentano) équipé d'un goniomètre. La diffraction de rayons-X sur monocristaux a été réalisée sur le banc Laue développé au laboratoire INAC/PHELIQS/IMAPEC (générateur de rayons-X SIEMENS avec camera de détection Photonic Science).

3.2.1.1 Sur poudres

Pour chaque croissance, les échantillons analysés ont été extraits de différentes zones du cristal de départ (*e.g.* du bord et du centre des barreaux). L'analyse des difractogrammes de rayons-X montre que nos échantillons sont constitués d'une seule phase, que ce soit pour le $Dy_3Ga_5O_{12}$ ou le $Yb_3Ga_5O_{12}$. La figure 3.5 montre le résultat de l'analyse d'un échantillon de DGG et la figure 3.6 celui d'un échantillon de YbGG.

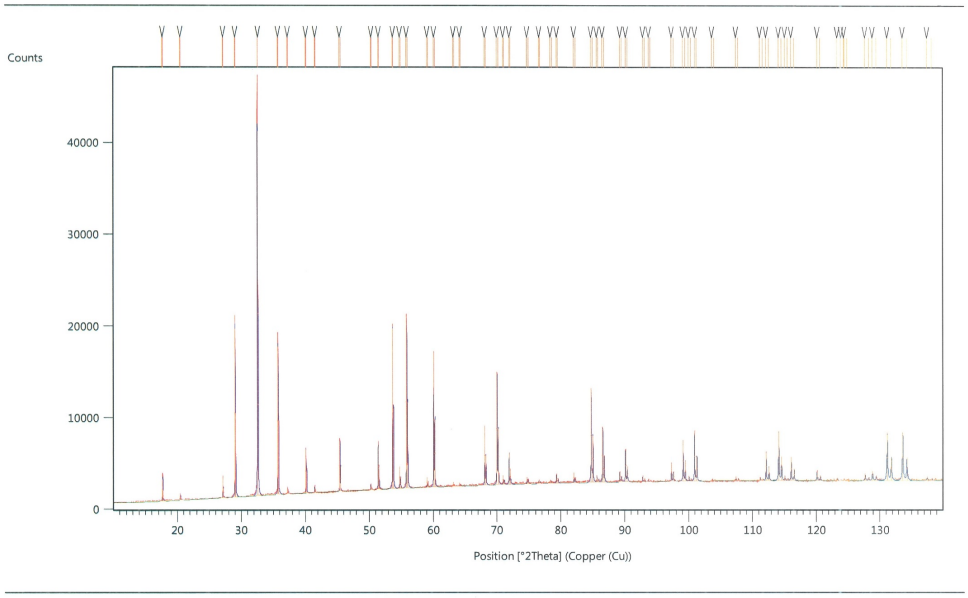


FIGURE 3.5 – Diffractogramme de rayons-X sur poudre sur un échantillon de DGG.

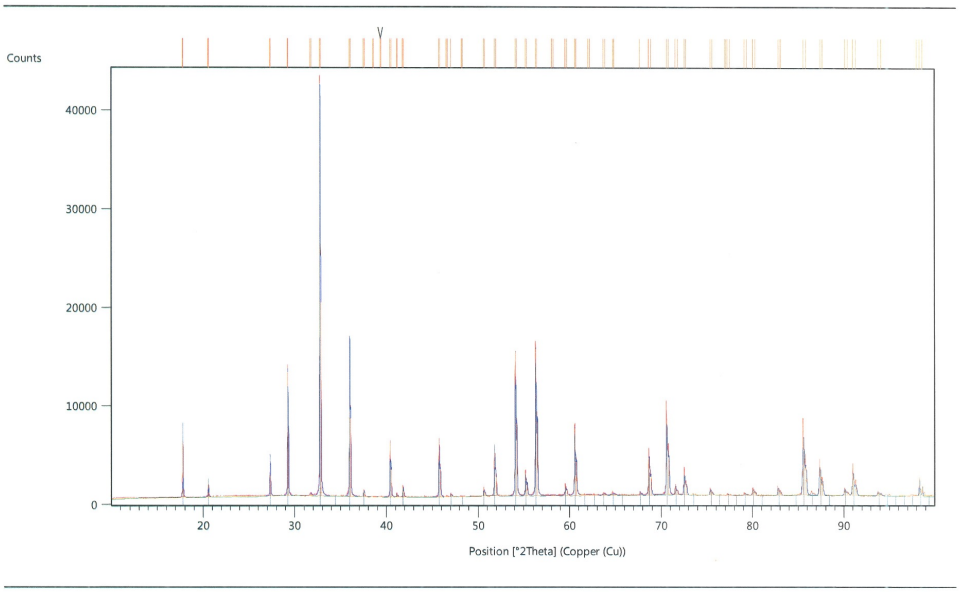


FIGURE 3.6 – Diffractogramme de rayons-X sur poudre sur un échantillon de YbGG.

3.2.1.2 Sur monocristaux

Les clichés de diffraction de rayons-X des cristaux de DGG et de YbGG sont affichés dans les figures 3.7 et 3.8. Ils montrent le caractère monocristallin des cristaux que nous avons synthétisés. L'analyse des clichés montre que ces monocristaux ont une maille cubique face centrée (groupe d'espace Ia-3d) dont le paramètre de maille est de l'ordre de 12.3 Å pour le DGG et 12.2 Å pour le YbGG. La densité théorique de ces composés est donc de 7.32 g/cm^3 pour le DGG et de 7.74 g/cm^3 pour le YbGG.

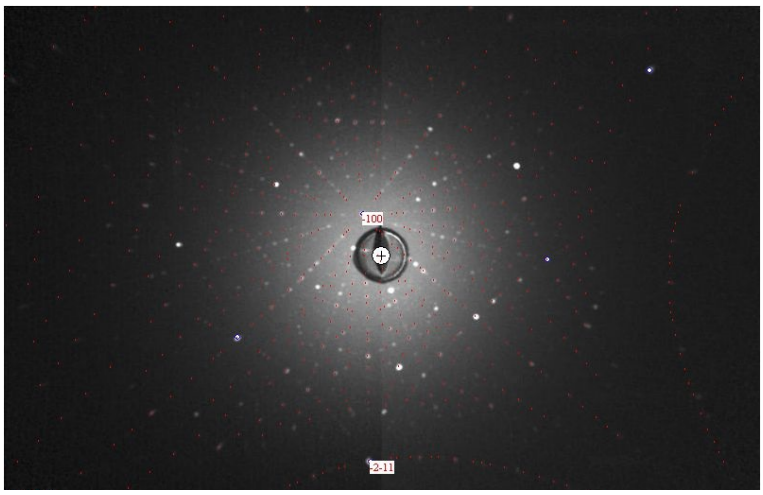


FIGURE 3.7 – Cliché de diffraction Laue réalisé sur un monocristal de DGG. L'axe de mesure correspond à l'axe de croissance.

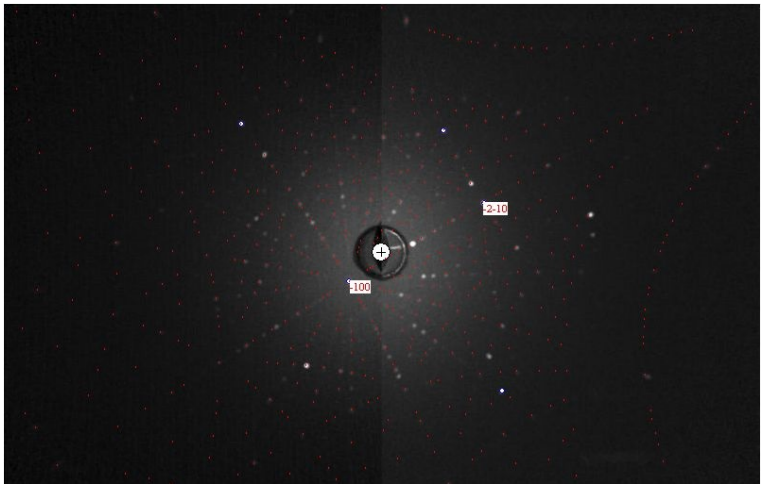


FIGURE 3.8 – Cliché de diffraction Laue réalisé sur un monocristal de YbGG. L'axe de mesure correspond à l'axe de croissance.

Ces analyses nous ont ainsi permis de confirmer l'obtention de monocristaux de DGG et de YbGG de bonne qualité chimique et cristallographique qui ont été caractérisés par des mesures d'aimantation et de chaleur spécifique.

3.2.2 Propriétés magnétocaloriques

Les mesures d'aimantation et de chaleur spécifique permettent d'évaluer la capacité des paramagnétiques en tant que réfrigérants. Cette évaluation est fondée sur la relation suivante que l'on a vue dans le chapitre 2 :

$$\mathrm{S(T,\,B)} = \int_{\mathrm{T_{ref}}}^{\mathrm{T}} \frac{\mathrm{C_0}}{\mathrm{T}}\mathrm{T} - \int_0^B \left(\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial \mathrm{T}}\right)_{\mathrm{B}} d\mathrm{B} + \mathrm{S_0}\left(\mathrm{T_{ref}}\right) \tag{3.1}$$

Dans la suite de cette section, nous présentons les méthodes expérimentales utilisées pour mesurer la chaleur spécifique et l'aimantation des composés paramagnétiques.

3.2.3 Aimantation

3.2.3.1 Principe de la mesure

Ces mesures ont été réalisées par la technique VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*) en utilisant une mesure à l'aide d'un SQUID (*Superconducting QUantum Interference Device*). La figure 3.9 montre un schéma simplifié du système de détection de l'aimantation de l'échantillon.

Quand l'échantillon oscille sur l'axe centrale des bobines de détection, la variation du flux magnétique génère un courant électrique dans le circuit de détection par intermédiaire de la force électromotrice de Lorentz. Le signal généré est fonction de sa position, dont

le profil type est représenté sur la figure ci-dessous. Comme les bobines de détection sont inductivement couplées au SQUID, le courant de réaction du SQUID annule le courant des bobines de détection. Le SQUID agit comme un convertisseur courant-tension de très haute sensibilité et l'analyse du signal de tension du SQUID permet de mesurer le moment magnétique de l'échantillon.

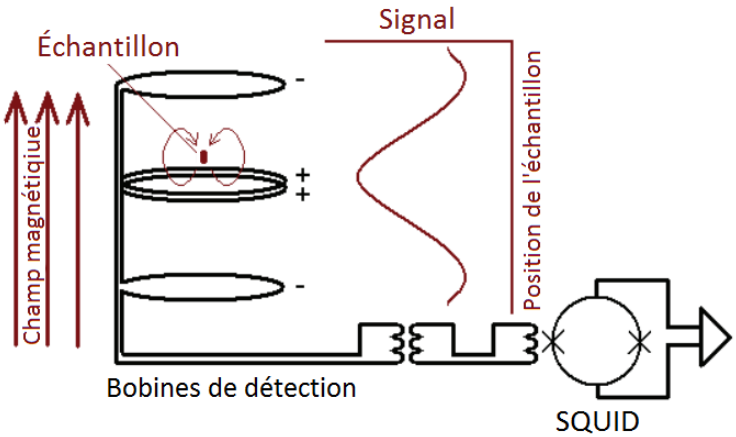


FIGURE 3.9 – Schéma de détection du SQUID. Source : manuel d'utilisation du MPMS.

L'équipement utilisé pour ces mesures est un MPMS de Quantum Design (2 K - 300 K, μ_0H = 5.5 T). Les échantillons que nous avons mesurés sont de forme parallélépipédique de base rectangulaire. L'appareil permet de mesurer des échantillons de diamètre maximal de 5 mm et de longueur inférieure à 10 mm. Les dimensions de la base du parallélépipède sont faibles par rapport à sa longueur. Cela permet d'une part de limiter la masse et par conséquent l'aimantation maximum de l'échantillon et d'autre part de pouvoir limiter les effets du champ démagnétisant H_d. Ce champ est créé dans le volume de l'échantillon en conséquence de son aimantation et sa géométrie. Il a comme effet l'affaiblissement du champ magnétique moyen appliqué à l'échantillon. Pour les échantillons de DGG, H_d est limité à 15 % du champ appliqué pour $\mu_0 H < 1$ T et à 6 % pour $\mu_0 H > 1$ T. Pour les échantillons de YbGG, H_d est limité à moins de 1.5 % du champ appliqué. Les résultats présentés dans cette section ont été corrigés pour prendre en compte H_d.

3.2.3.2 Résultats expérimentaux

Les mesures d'aimantation ont été réalisées sur des échantillons monocristallins découpés dans le cristal de départ avec une scie à fil. La scie à fil permet de découper des échantillons de faibles dimensions tout en produisant des surfaces planes et régulières.

Le tableau 3.1 montre les caractéristiques des échantillons utilisés. Selon les mesures de Filippi, Tcheou, and Rossat-Mignod (1980), le DGG présente une faible anisotropie magnétique mesurée en champs forts entre 1.15 K et 4.2 K dans les directions [001], [110]

et [111] (*e.g.* inférieur à 5 % à μ_0H = 4 T à 4.2 K). Une faible anisotropie a été aussi observée par Kimura, Maeda, and Sato (1988) entre les directions [001], [110] et [111] dans la gamme de température de 4.2 K à 40.6 K, la différence maximum d'aimantation étant limitée à 5 % à 4.2 K et μ_0H = 7 T. Filippi *et al.* (1980b) ont rapporté une faible anisotropie magnétique dans le cas du YbGG pour la gamme 70 mK - 4 K et des champs jusqu'à 5 T. La faible anisotropie de ces composés implique que leurs propriétés magnétocaloriques sont quasi-indépendantes de l'orientation cristallographique.

	Dimensions	Masse
DGG	0.60 mm x 0.68 mm x 3.2 mm	8.9 mg
YbGG	0.57 mm x 0.59 mm x 4.07 mm	10.24 mg

TABLE 3.1 – Échantillons utilisés dans les mesures d'aimantation.

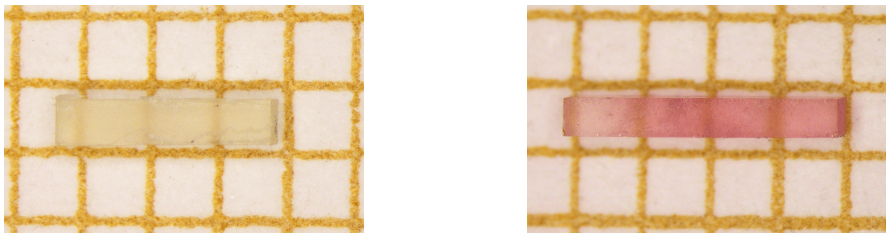


FIGURE 3.10 – Échantillons de DGG (à gauche) et de YbGG (à droite) utilisés dans nos mesures d'aimantation. Papier millimétré au fond.

Les mesures d'aimantation ont été réalisées à température constante, le champ magnétique est incrémenté de 0 T à 5 T avec un pas de 0.1 T. À 2 K, l'aimantation a été mesurée en montant et en descendant le champ magnétique. Dans le cas des deux composés, aucune différence d'aimantation n'a été observée entre la montée et la descente en champ. Cette absence d'hystérésis magnétique montre la réversibilité des transformations magnétocaloriques et ainsi que l'absence de dissipation d'énergie associé aux phénomènes d'hystérésis. Ce résultat est en accord avec Filippi *et al.* (1980b), qui ont constaté l'absence d'hystérésis magnétique dans le YbGG au-dessus d'environ 180 mK. Les figures 3.11 et 3.12 montrent l'ensemble des mesures réalisées entre 2 K et 5 K pour le DGG et entre 2 K et 4.2 K pour le YbGG en fonction du champ appliqué B = μ_0H et du rapport B/T. Le trait pointillé montre la valeur de l'aimantation lorsque le doublet fondamental est saturé (gJ μ_B/ion magnétique).

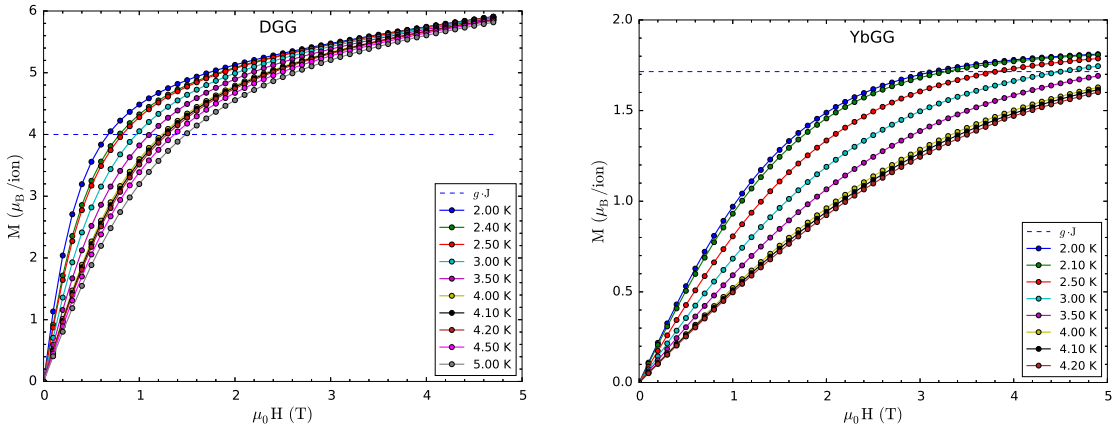


FIGURE 3.11 – Aimantation isotherme des échantillons de DGG et de YbGG en fonction du champ magnétique μ_0H appliquée par les bobines. Le trait en pointillé montre la valeur théorique maximum (gJ) de l'état fondamental.

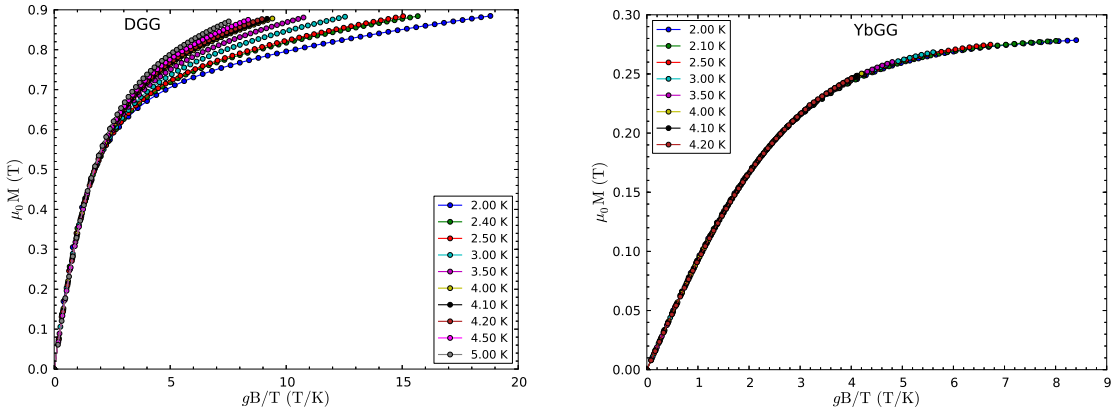


FIGURE 3.12 – Aimantation en fonction de gB/T.

L'influence des doublets excités devient visible dans le cas du DGG lorsque le champ magnétique appliqué monte et son aimantation dépasse la valeur de saturation du doublet fondamental. Dans le cas du YbGG, cela se montre sous la forme d'une composante d'aimantation linéaire par rapport au champ appliqué appelée contribution de Van-Vleck (Filippi *et al.*, 1980a).

Selon le modèle des ions libres, l'aimantation due au doublet fondamental est décrite par une fonction unique du type $f = f(\mathrm{B/T})$. Les graphiques de la figure 3.12 montrent que cela est une bonne approximation pour le YbGG dans toute la gamme de température et de champ considérés. Dans le cas du DGG, cette approximation n'est valable que pour $g\mathrm{B/T} \lesssim 2$ T/K. Comme discuté dans le chapitre 2, ces résultats sont en accord avec le fait que l'écart énergétique entre le premier doublet excité et le doublet fondamental Δ_1 est significativement plus faible dans le cas du DGG que dans le cas de le YbGG - $\Delta_1 = 15.2$ K pour le DGG (Filippi, Tcheou, and Rossat-Mignod, 1980) contre $\Delta_1 = 403.1$ K pour le

YbGG (Filippi *et al.*, 1980b).

L'expression permettant le calcul de l'effet magnétocalorique à partir des mesures d'aimantation est rappelée ci-dessous. Le graphique 3.13 montre le comportement de $\frac{\partial M}{\partial T}$ pour les deux composés paramagnétiques.

$$\Delta \mathrm{S}\,(\mathrm{T},\,\Delta \mathrm{B}) = \int_0^B \left(\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial \mathrm{T}}\right)_{\mathrm{B}} d\mathrm{B} \tag{3.2}$$

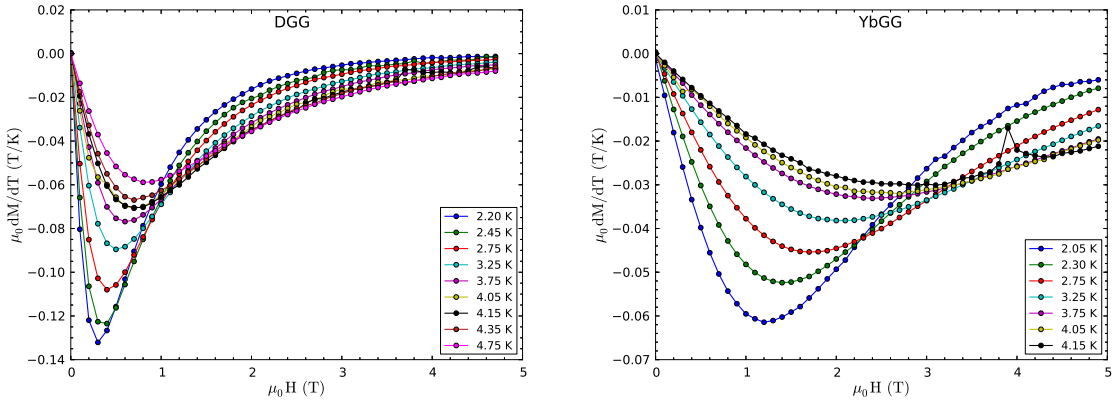


FIGURE 3.13 – Dérivée de l'aimantation. Dans le cas du DGG, les traits en pointillés montrent les résultats des mesures de Numazawa *et al.* (2003).

L'effet magnétocalorique, obtenu à partir des mesures d'aimantation, est affiché sur la figure 3.14. Dans le cas du DGG, nos mesures sont comparées à celles de Numazawa *et al.* (2003) et nous retrouvons un bon accord qualitatif et quantitatif. Un bon accord est aussi retrouvé entre nos mesures de ΔS(T, ΔB) et nos calculs fondés sur le modèle des ions libres pour le YbGG (figure 3.15). L'accord est moins bon dans le cas du DGG, pour lequel on observe que l'écart entre les deux types de courbe est d'autant plus important que le champ magnétique est faible.

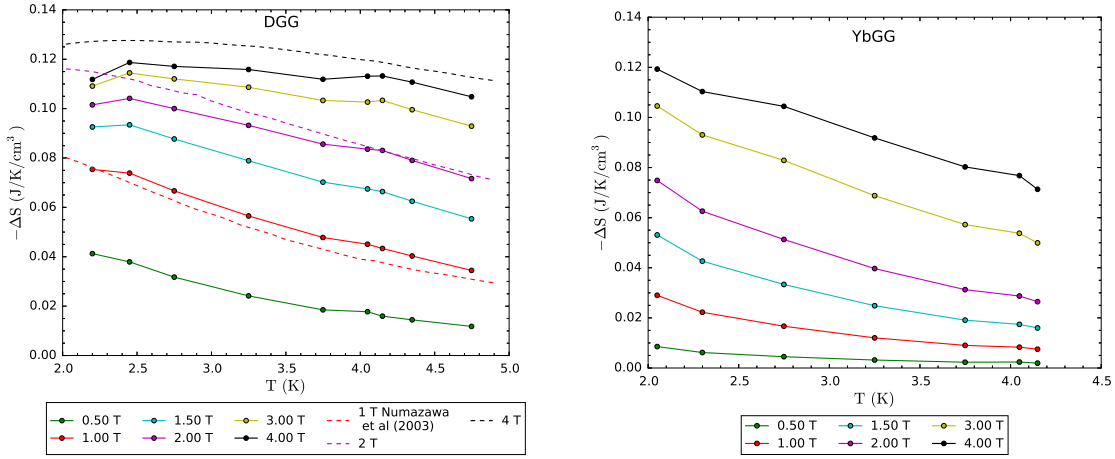


FIGURE 3.14 – Effet magnétocalorique calculé à partir des mesures d'aimantation.

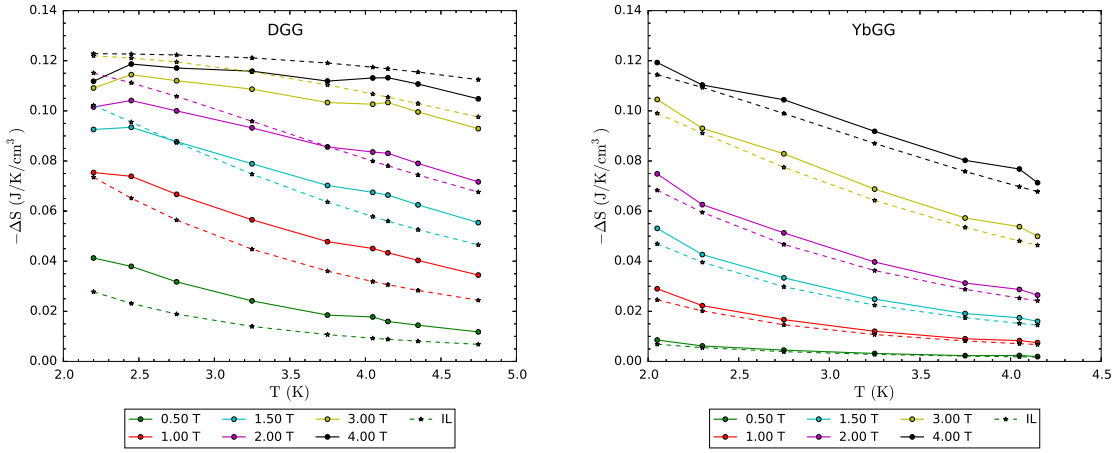


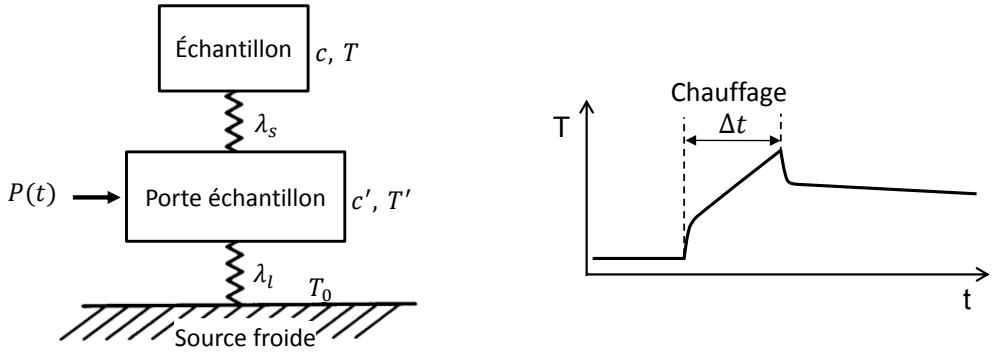
FIGURE 3.15 – Effet magnétocalorique calculé à partir des mesures d'aimantation et à partir du modèle des ions libres.

Dans la majorité de la gamme de température considérée $\Delta S_{DGG}(T, B) > \Delta S_{YbGG}(T, B)$. Cette relation est attendue et expliquée par le fait que le facteur de Landé du DGG est environ 2 fois plus élevé que celui du YbGG (Filippi *et al.*, 1980b; Kimura, Maeda, and Sato, 1988). Cette relation doit cependant s'inverser vers 1.1 K pour 2 T et 1.9 K pour 4 T selon nos calculs fondés sur le modèle des ions libres. La gamme de température $T < 2$ K n'est pas accessible avec l'équipement expérimental que nous avons utilisé. Néanmoins, des caractérisations dans des gammes de températures plus faibles ont été réalisées lors des mesures de chaleur spécifique ainsi que lors de la caractérisation des capsules paramagnétiques.

3.2.4 Chaleur spécifique sous champ

3.2.4.1 Principe de la mesure

La chaleur spécifique des échantillons a été mesurée par une méthode d'impulsion de chaleur. La figure 3.16(a) montre un schéma du système utilisé dans ces mesures. L'échantillon est thermiquement couplé au porte échantillon au moyen de la graisse à vide Apiezon. Le porte-échantillon, équipé d'un chauffage électrique et d'un thermomètre, est connecté à la source froide par un lien thermique connu. La mesure commence avec l'ensemble échantillon/porte-échantillon en équilibre thermique. Ensuite, une impulsion de chaleur est appliquée au porte échantillon pendant une durée déterminée. Quand cette impulsion de chaleur cesse, le porte échantillon est refroidi par la source froide à travers un lien thermique connu. Le profil de température pendant les étapes de chauffage et de refroidissement (figure 3.16(b)) permet de déterminer la chaleur spécifique de l'échantillon (Hwang, Lin, and Tien, 1997).



(a) Modèle thermique du système échantillon/porte échantillon.

(b) Profil de température caractéristique obtenu dans les mesures de la chaleur spécifique.

FIGURE 3.16 – Mesure de la chaleur spécifique par la méthode d'impulsion de chaleur proposée par Hwang, Lin, and Tien (1997).

L'équipement utilisé pour ces mesures est un PPMS (*Physical Property Measurement System*) de Quantum Design. Les échantillons mesurés sont des monocristaux dont la masse varie entre environ 1 mg et 10 mg.

3.2.4.2 Résultats expérimentaux

Les mesures de C_P ont été réalisées sur les échantillons affichés sur le tableau 3.2. Les échantillons monocristallins ont été obtenus à partir d'une tranche ($\sim$ 300 µm) découpée du cristal de départ avec une scie à fil. Les résultats des mesures de C_P sont affichés dans les figures 3.17 et 3.18. Nous retrouvons un bon accord entre nos mesures de chaleur spécifique et les mesures disponibles dans la littérature.

DGG (I)	DGG (II)	YbGG (I)	YbGG (II)
2.74 mg	6.8 mg	0.65 mg	10.5 mg

TABLE 3.2 – Masses des échantillons utilisés dans les mesures de chaleur spécifique.

Dans le cas du DGG, le pic de C_P centré à 373 mK est associé à une transition antiferromagnétique de type lambda. Une autre anomalie de chaleur spécifique d'origine magnétique a lieu, caractérisée par une large bosse de température centrée à environ 0.8 K (Filippi *et al.*, 1977). Vers 3 K, une nouvelle anomalie de chaleur spécifique a lieu, laquelle est associée aux interactions magnétiques. La chaleur spécifique du réseau peut être négligée dans toute la gamme de température considérée, étant inférieure à 5 % du C_P au-dessous de 4 K (Onn, Meyer, and Remeika, 1967).

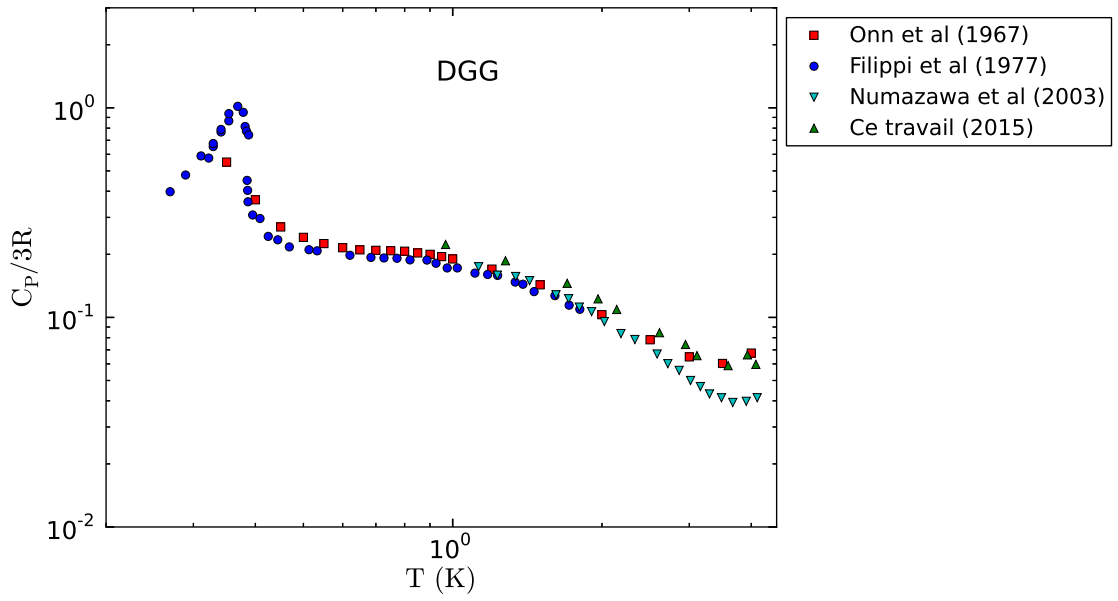


FIGURE 3.17 – Chaleur spécifique à champ nul du DGG. La chaleur spécifique du réseau a été extraite.

Dans le cas du YbGG, une large bosse de chaleur spécifique est retrouvée centrée vers 180 mK. Au-dessus de cette température, cette chaleur spécifique baisse progressivement jusqu'à la température maximum de nos mesures, environ 4 K. Selon les travaux de Filippi *et al.* (1980b), cette anomalie de chaleur spécifique est d'origine magnétique due au doublet fondamental. La contribution du réseau à la chaleur spécifique est estimée à 20 % de sa valeur totale à 4 K et à moins de 1 % au-dessous de 2 K ($C_{\text{réseau}}/3R = 2.8 \times 10^{-5} T^3$ selon Onn, Meyer, and Remeika 1967).

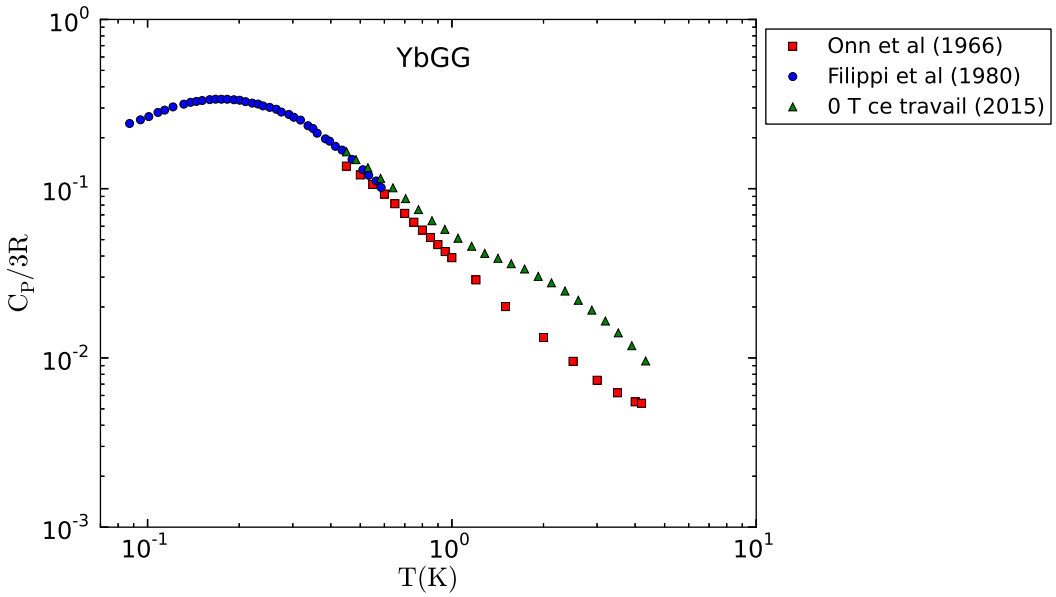


FIGURE 3.18 – Chaleur spécifique à champ nul du YbGG. La chaleur spécifique du réseau a été extraite.

Les mesures de chaleur spécifique totale du YbGG sous champ sont affichées sur la figure 3.19. Elles seront discutées plus en détails dans la section 3.3.5.2.

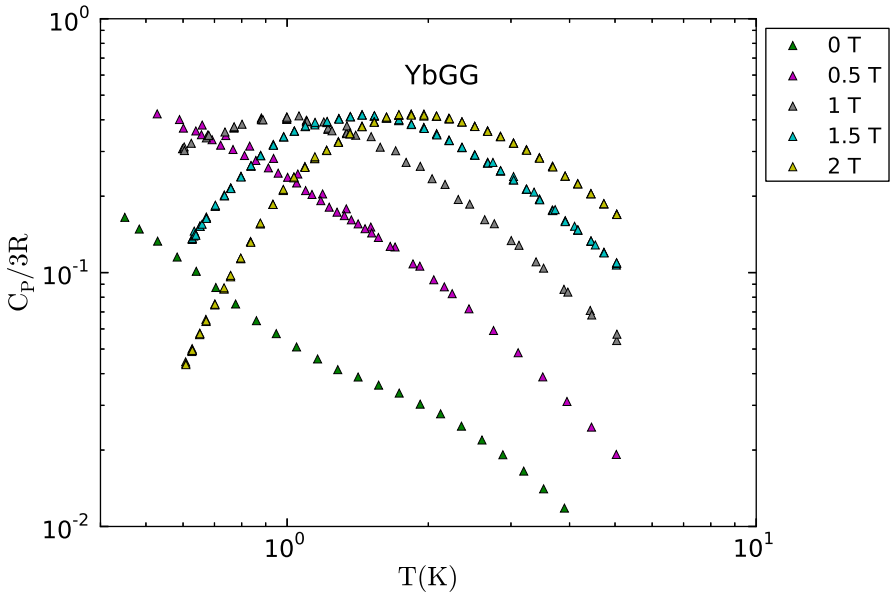


FIGURE 3.19 – Chaleur spécifique du YbGG en fonction de la température et du champ appliqué μ_0H. La chaleur spécifique du réseau a été extraite.

3.2.4.3 Récapitulatif : des caractérisations initiales encourageantes

L'entropie magnétique à champ nul peut être obtenue à partir des courbes de C_0 comme décrit dans le chapitre 2. Le bon accord entre nos mesures de chaleur spécifique et celles disponibles dans la littérature corrobore les valeurs du champ interne obtenues dans la section 2.3.1, à savoir 0.16 T pour le DGG et 0.17 T pour le YbGG.

Les analyses des rayons-X ont certifié la qualité des échantillons de DGG et de YbGG que nous avons synthétisés : ils ne présentent pas de phases parasites et ont un caractère monocristallin. Les mesures d'aimantation et de chaleur spécifique ont permis de comparer nos mesures avec la littérature et un bon accord a été obtenu. La caractérisation de l'effet magnétocalorique du YbGG est en bon accord avec nos estimations fondées sur le modèle des ions libres avec champ interne pour la gamme 2 K - 4 K. Cela nous rassure quant aux prévisions du modèle des ions libres pour la gamme de température cible du YbGG, au-dessous de $\sim$ 1 K. La caractérisation de la capsule de YbGG nous permettra d'accéder aux propriétés magnétocaloriques de ce matériau aux plus basses températures.

3.3 Caractérisation d'une capsule complète

Cette section est dédiée à la présentation des méthodes expérimentales utilisées pour la caractérisation d'une capsule magnétique. Ces méthodes sont appliquées pour la ca-

ractérisation d'une capsule de YbGG. Les résultats du DGG, déjà bien connus dans la littérature, ne seront donc pas présentés ici.

3.3.1 Objectifs

Cette caractérisation a pour but de mesurer les propriétés d'une capsule de YbGG. Les propriétés clefs à mesurer sont :

1. Le couplage thermique entre le paramagnétique et le bus thermique. Un bon couplage thermique est essentiel pour limiter l'intensité des gradients thermiques dans la capsule et par conséquent limiter les irréversibilités du système.
2. La chaleur spécifique parasite $C_{parasite}$ de la capsule, c'est-à-dire la chaleur spécifique du contenant. Pendant le refroidissement (désaimantation) du paramagnétique, une partie de son énergie disponible est utilisée pour refroidir son contenant au lieu d'être utilisée pour la production du froid. Il est donc important de s'assurer que $C_{parasite}$ reste faible par rapport à la chaleur spécifique du paramagnétique $C_{paramagnétique}$.
3. L'énergie disponible à température constante en fonction du champ magnétique appliqué.
4. Les courbes de désaimantation adiabatique. Cela permet de déterminer le champ magnétique B_{froid} au début de la phase froide d'un cycle ADR.

Ensemble, ces mesures permettent de déterminer les performances d'une capsule. Avant la caractérisation de la capsule proprement dite il convient d'évaluer les pertes parasites. Ces pertes contribuent à l'apport de chaleur à la capsule et doivent être estimées.

3.3.2 Dispositif expérimental

Un schéma du montage expérimental utilisé est affiché sur la figure 3.20. La capsule est tenue mécaniquement et thermiquement par un interrupteur thermique connecté à une source chaude. Celle-ci est maintenue soit à 4.2 K par un bain d'hélium liquide à pression atmosphérique soit à 1.2 K par un bain d'hélium pompé. La capsule est équipée d'un chauffage électrique et d'un thermomètre, les deux placés sur le bus thermique. Le système magnétique est constitué d'une bobine supraconductrice refroidie par le bain d'hélium.

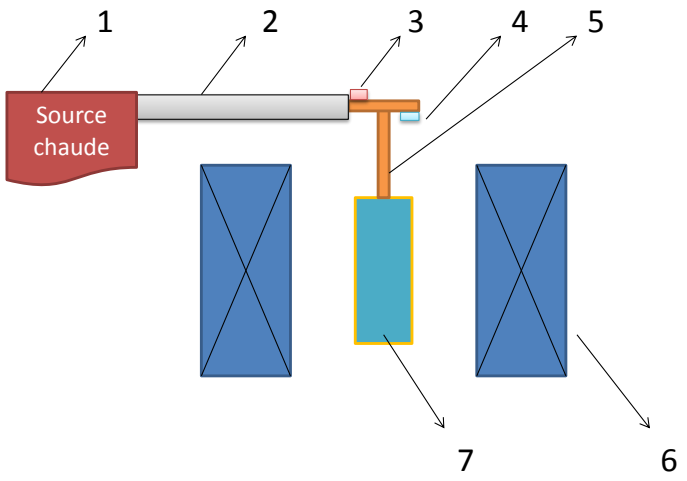


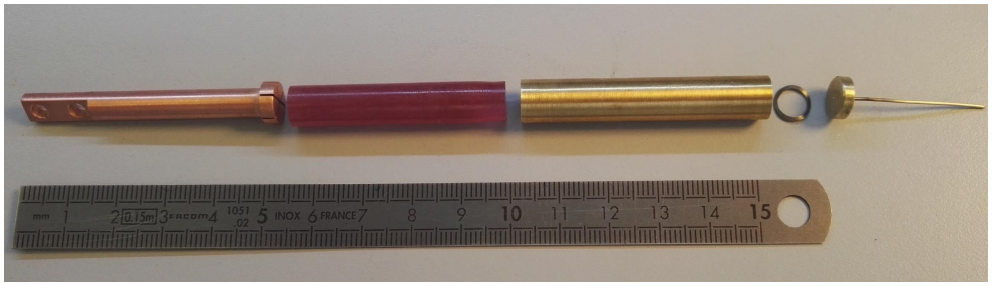
FIGURE 3.20 – Schéma du montage de la capsule pour sa caractérisation. 1. Source chaude, 2. Interrupteur thermique, 3. Chauffage, 4. Thermomètre, 5. Bus thermique, 6. Bobines supraconductrices, 7. Capsule.

3.3.2.1 Conception de la capsule

Le barreau d'YbGG monocristallin est placé dans un volume scellé rempli d'^{4}He. Cet ^{4}He assure un bon contact thermique entre le bus thermique et le barreau. Ce contact sera d'ailleurs amélioré en dessous de 2.17 K lorsque l'hélium devient superfluide et forme un film de Rollin : un flux d'hélium superfluide induit par une différence de température tend à thermaliser les deux pièces en contact. Le bus thermique est un tube en cuivre avec deux emplacements pour un chauffage et thermomètre à son extrémité. L'enveloppe de la capsule est en laiton, ce matériau permet un bon compromis entre le C_P de la capsule les pertes thermiques par courants de Foucault ($\sim$ 20 nW pour T $<$ 4 K avec une variation rapide de champ de 1 T/min). À l'intérieur de la capsule, une rondelle ressort est ajoutée et mise en contrainte pour assurer le contact physique entre la surface du bus thermique et la surface supérieure du monocristal. Cela permet de minimiser le gap entre ces surfaces afin de maximiser la conductance due au gaz et au film de Rollin.

	Matériau	Quantité
YbGG	$Yb_3Ga_5O_{12}$	18.86 g (17.5 mmol)
Bus thermique	cuivre	11.99 g
Enveloppe	laiton	1.49 g
Rondelle ressort	inox	$<$ 0.1 g
Bouchon	laiton	1.24 g
Gaz de remplissage	^{4}He	$\sim$ 116 µg (29 µmol)

TABLE 3.3 – Caractéristiques de la capsule de YbGG. La quantité d'hélium est estimée à partir de la température et pression de remplissage et du volume mort de la capsule. Le calcul du C_P en fonction de la température est donné dans la figure 3.22.



(a) De gauche à droite : bus thermique en cuivre, YbGG (ϕ 8.55 mm x 43.7 mm), enveloppe en laiton, rondelle ressort en inox et bouchon en laiton.

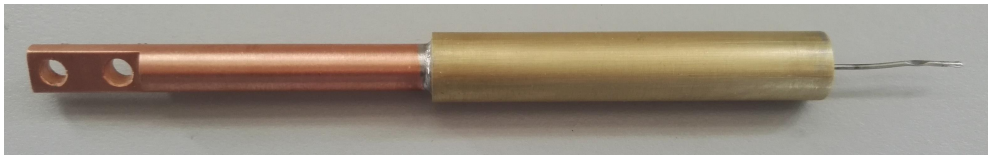


FIGURE 3.21 – Capsule de YbGG avant et après soudure.

La figure 3.22 montre la chaleur spécifique calculée pour chacun des composants de la capsule. Ces valeurs ont été calculées à partir des masses du tableau 3.3, de nos mesures pour le YbGG (section 3.2.4) et des valeurs connues (par exemple Cryocomp) de chaleur spécifique du laiton, et du cuivre. Pour l'^{4}He, nous avons calculé la quantité scellée dans la capsule à partir de la pression et de la température de remplissage (300 K, 15.5 bar) ; sa chaleur spécifique a été calculée à l'aide du logiciel HePak (Cryodata Inc). Nous constatons que la chaleur spécifique du YbGG correspond au moins à 98 % de la chaleur spécifique de la capsule pour T < 1.2 K. Ce chiffre tombe à 80 % à 2 K et à 75 % à 4.2 K.

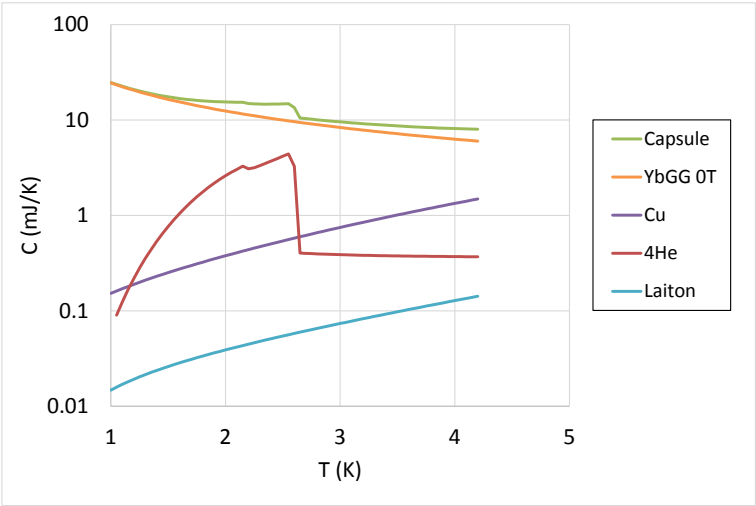


FIGURE 3.22 – Calcul de la chaleur spécifique totale de la capsule. Voir texte pour les références.

3.3.2.2 Banc de mesure

Le montage expérimental utilisé est affiché dans la figure ci-dessous. La capsule, positionnée à l'intérieur de la bobine, est thermiquement liée à la plaque froide par un

interrupteur thermique à gaz d'échange (^{3}He). L'interrupteur thermique permet lorsqu'il est en position ON de thermaliser la capsule pendant son aimantation. Pour cette caractérisation, il est important que les pertes OFF soit les plus faibles possibles pour garantir une bonne précision des mesures. L'interrupteur thermique utilisé est similaire à celui décrit dans le chapitre 4. La plaque froide est maintenue soit à 4.2 K par un bain d'hélium liquide à 1 bar soit à 1.2 K par un bain d'hélium pompé.

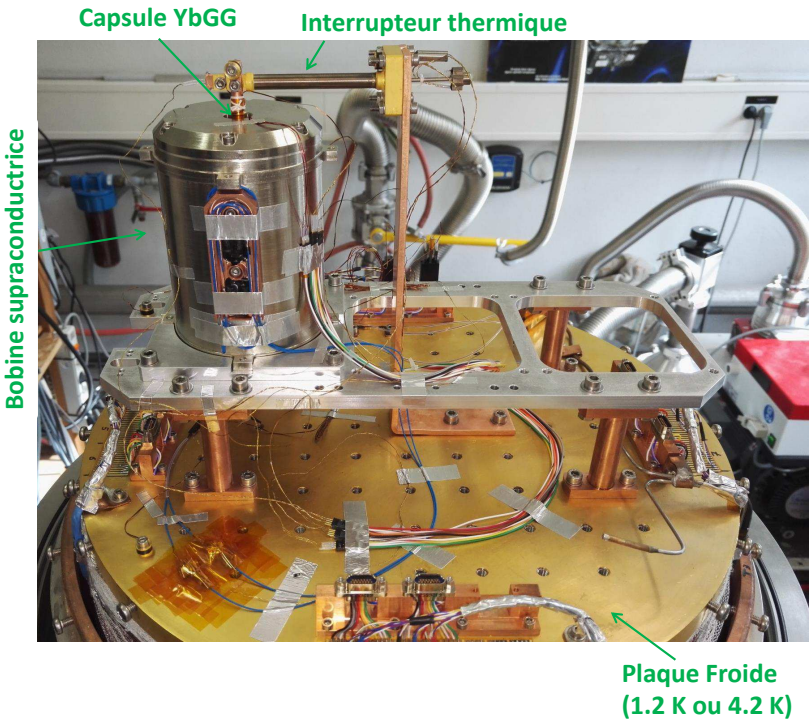


FIGURE 3.23 – Montage expérimental pour la caractérisation de la capsule de YbGG.

3.3.3 Pertes parasites

3.3.3.1 Principe

Les pertes parasites sont composées par celles de l'interrupteur thermique en position OFF et par le rayonnement de l'environnement, soit à 1.2 K soit à 4.2 K. Nos calculs montrent que les pertes par rayonnement thermique sont plusieurs ordres de grandeur inférieures aux pertes par conduction et sont ainsi négligeables.

Les mesures des pertes parasites sont faites à partir de l'évolution de la température de la capsule en fonction du temps. L'équation suivante donne le lien entre les pentes de température et la puissance totale transmise à la capsule.

$$\mathrm{P_{tot}} = \mathrm{P_{app}} + \mathrm{P_{pertes}} = \mathrm{C_P}\frac{d\mathrm{T}}{d\mathrm{t}} \tag{3.3}$$

Pour une faible variation de température, la chaleur spécifique peut être considérée

constante. Ainsi, la mesure des pentes de température pour deux puissances appliquées P_1 et P_2 permet l'obtention des pertes parasites :

$$\frac{P_1 + P_{pertes}}{P_2 + P_{pertes}} = \frac{a_1}{a_2} = r \tag{3.4}$$

a_1 et a_2 sont les pentes respectives de température, comme représenté sur la figure 3.24. En pratique, $P_1 = 0$ ou $P_2 = 0$ pour la précision des mesures, car la pente due aux pertes est mesurée directement au lieu d'être « cachée » par l'action d'une puissance externe. Afin de simplifier la notation, notamment dans les section suivantes, nous appelons la puissance appliquée non nulle P_{chauff}.

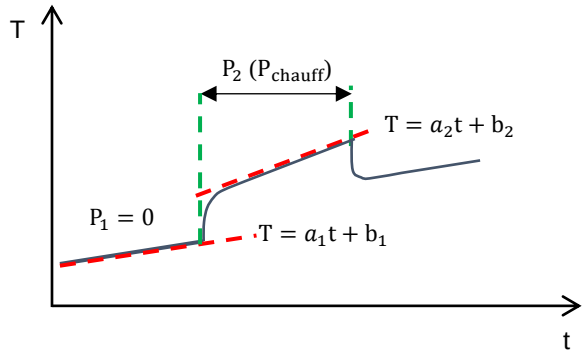


FIGURE 3.24 – Schéma des mesures des pertes parasites par l'application d'un pulse de chaleur.

3.3.3.2 Résultats

Les mesures de pertes données par l'expression 3.4 sont détaillées sur le tableau 3.4. Les variations de la chaleur spécifique, selon les mesures présentées dans la section 3.2.4, sont les suivantes :

— Plaque froide à 1.2 K : les variations de température pendant les mesures (ΔT_{pertes}) sont comprises entre 10 mK et 20 mK, ce qui correspond à une variation du $C_P <$ 10 % ;

— Plaque froide à 4.2 K : les ΔT_{pertes} se limitent à 0.5 K, ce qui correspond à une variation du $C_P <$ 15 %. ;

Le tableau 3.5 montre un résumé des ces mesures avec un calcul des pertes apportées par l'interrupteur thermique à travers de son enveloppe en paroi mince (100 µm) en titane (alliage Ta6Al4V). Les différences entre les pertes mesurées et les pertes calculées présentes dans ce tableau sont expliquées par cette variation du C_P ainsi que par les facteurs évoqués dans la section 4.6.2 (tolérances sur l'épaisseur du tube, conduction des brasures, ...).

Plaque froide (K)	$T_{capsule}$ (K)	P_1 (μW)	P_2 (μW)	a_1 (K/min)	a_2 (K/min)	r	Pertes mesurées (μW)
4.21	1	0	20.89	6.95E-02	1.17E-01	0.59	30
	2	0	20.89	6.52E-02	1.16E-01	0.56	27
		0	20.92	1.11E-02	2.06E-02	0.54	24
		20.92	0	2.06E-02	1.20E-02	1.71	30
	3	0	20.89	6.09E-02	1.42E-01	0.43	16
1.22	0.4	0	1.03	5.71E-04	9.88E-04	0.58	1.4
		1.03	0	9.97E-04	5.39E-04	1.85	1.2
		0	1.03	5.37E-04	9.61E-04	0.56	1.3
		1.03	0	9.35E-04	5.15E-04	1.81	1.3
	0.8	1.03	0	7.73E-04	4.31E-04	1.79	1.3
		0	1.03	4.43E-04	7.73E-04	0.57	1.4

TABLE 3.4 – Mesures des pertes parasites sur la capsule de YbGG.

Plaque froide (K)	$T_{capsule}$ (K)	Pertes mesurées (μW)	Conduction Ta6Al4V (μW)
4.21	1	30	23
	2	27	20
	3	16	12
1.22	0.3	1.7	1.2
	0.4	1.3	1.1
	0.8	1.3	0.8

TABLE 3.5 – Pertes moyennes sur la capsule de YbGG.

Dans la suite de cette section, les pertes ont été calculées à partir de l'interpolation linéaire des mesures présentées sur le tableau 3.5.

3.3.4 Conductance thermique

3.3.4.1 Principe

Lors du chauffage de la capsule, un gradient thermique apparaît entre l'extrémité du bus thermique où le thermomètre est monté et le paramagnétique. Ce gradient est dû à la résistance thermique du bus en cuivre, aux résistances de contact (entre bus-gaz et gaz-composé paramagnétique en absence de condensation ou bus-gaz, gaz-liquide et liquide-composé paramagnétique) et finalement à la résistance thermique du composé paramagnétique. Lors de la formation d'un film de Rollin, la situation devient plus compliquée à cause du déplacement du ^{4}He superfluide entre la surface du bus et du composé paramagnétique. La figure 3.25 montre le profil de température à l'extrémité du bus ther-

mique lorsque le chauffage cesse : elle baisse de $\Delta T_{découplage}$ car les différentes parties de la capsule (*i.e.* bus thermique et paramagnétique) tendent vers un équilibre thermique.

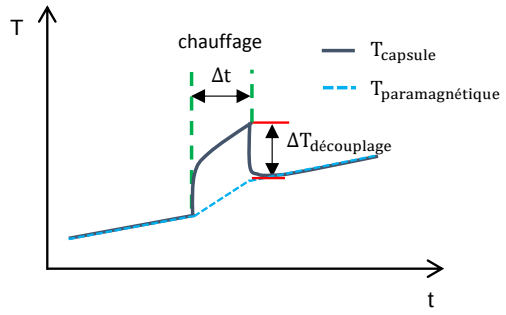


FIGURE 3.25 – Méthode de mesure de la conductance thermique de la capsule par l'application d'un pulse de chaleur.

Si la chaleur spécifique du bus thermique est négligeable par rapport au restant de la capsule, $\Delta T_{découplage}$ correspond au gradient thermique entre l'extrémité bus thermique où le thermomètre est placé et le paramagnétique. Ainsi, la température moyenne de ce dernier pendant le chauffage est donnée par $\bar{T}_{paramagnétique} = T_{capsule} - \Delta T_{découplage}$. Cette hypothèse est valide pour la capsule de YbGG (section 3.3.2.1 figure 3.22).

3.3.4.2 Résultats

Les mesures de la conductance thermique de la capsule en fonction de sa température moyenne sont affichées sur la figure 3.26. Les conditions expérimentales sont listées ci-dessous.

— Le temps d'application du chauffage Δt est de l'ordre de la minute ;
— Plaque froide à 1.2 K : la puissance de chauffage varie de 10 µW vers 200 mK à 200 µW vers 1 K pour assurer des ΔT entre 10 mK et 50 mK ;
— Plaque froide à 4.2 K : des fortes puissances injectées à 2 K et à 3 K (1 mW et 2 mW) ont généré des écarts de température $\Delta T_{découplage}$ négligeables ;

La précision de nos mesures nous permet de considérer un couplage idéal (*i.e.* $\Delta T_{découplage} \sim 0$) entre le cristal et le bus thermique pour des températures supérieures à 2 K.

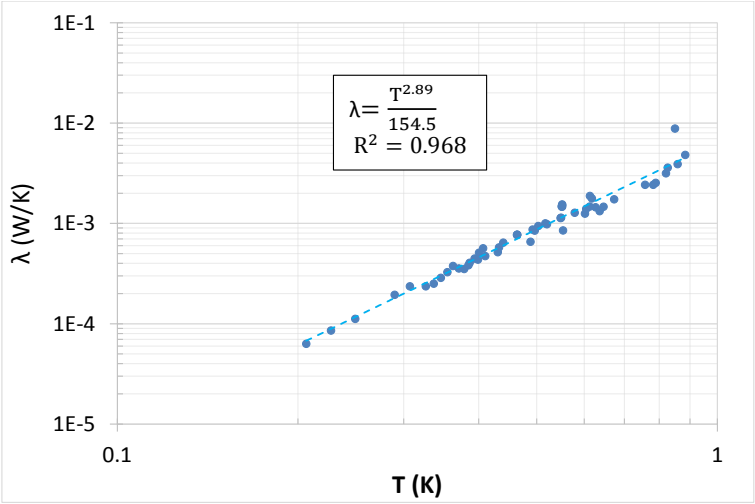


FIGURE 3.26 – Conductance thermique de la capsule de YbGG en fonction de sa température moyenne.

L'expression $\Delta T_{\text{découplage}} = 154.5PT^{-2.89}$ (T en K et P en W) donne une bonne estimation du découplage thermique pour 0.2 K < T < 1 K.

3.3.5 Chaleur spécifique

3.3.5.1 Principe

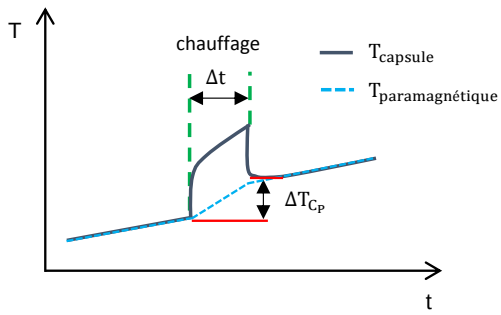


FIGURE 3.27 – Méthode de mesure de la chaleur spécifique de la capsule par l'application d'un pulse de chaleur.

Cette propriété peut être mesurée à partir de la variation de température ΔT_{C_p} créée par l'apport de chaleur $\delta Q = P_{tot}\Delta t$, où la puissance totale $P_{tot} = P_{chauff} + P_{pertes}$ et Δt est la durée de l'application du chauffage P_{chauff}. Cette méthode est illustrée dans la figure 3.27. La chaleur spécifique est ainsi donnée par :

$$C_{capsule} = \frac{P_{tot}\Delta t}{\Delta T_{C_P}} \tag{3.5}$$

3.3.5.2 Résultats

Pour la précision des mesures, il est préférable que le terme de pertes reste faible par rapport au terme mieux maîtrisé de puissance appliquée. La puissance appliquée a été choisie de façon à limiter les pertes à moins de 10 % de la puissance totale de la capsule sur toute la gamme de température pour les mesures de C_P à champ nul. Pour les mesures de C_P sous champ, les pertes sont limitées à 5 %. Les mesures de la chaleur spécifique de la capsule ont été faites dans les conditions suivantes :

— Plaque froide à 1.2 K ;
— Δt de l'ordre de la minute ;
— À 0 T, de 0.18 K à 0.5 K : 10 µW $< P_{chauff} <$ 50 µW, ce qui assure le rapport $10 < P_{chauff}/P_{pertes} < 50$ et des variations de températures 5 mK $< \Delta T <$ 50 mK ;
— À 0.5 T et 1 T, de 0.3 K à 1.1 K : 20 µW $< P_{chauff} <$ 200 µW, $20 < P_{chauff}/P_{pertes} < 200$, 30 mK $< \Delta T <$ 150 mK ;

Les mesures de la chaleur spécifique sous champ de la capsule son affichées sur la figure 3.28, ainsi que les celles réalisées dans un PPMS (section 3.2.4). Un bon accord est trouvé entre ces deux mesures. Cela confirme que la chaleur spécifique parasite de la capsule est négligeable par rapport à celle du cristal de YbGG.

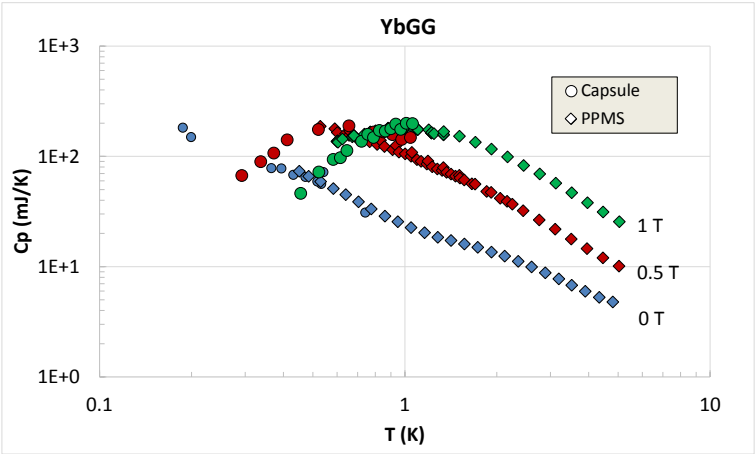


FIGURE 3.28 – Chaleur spécifique de la capsule (cercles) et du YbGG (losanges) sous champ.

3.3.6 Énergie disponible à température constante

3.3.6.1 Principe

Ces mesures visent à déterminer la quantité de chaleur Q que le composé paramagnétique peut recevoir à température constante en fonction du champ magnétique appliqué. En condition isotherme $dE_{disp} = \delta Q$. L'apport de chaleur à la capsule est fait par un

chauffage électrique P_{chauff} et par les pertes parasites. Ainsi, l'énergie disponible est donnée par :

$$dE_{disp} = (P_{pertes} + P_{chauff})\, dt \tag{3.6}$$

$$E_{disp}(T,\, B) = \int_0^B (P_{pertes} + P_{chauff})\, dt \tag{3.7}$$

Ces mesures, réalisées à température constante, sont faiblement affectées par la chaleur spécifique parasite de la capsule. La figure 3.29 montre l'énergie disponible associée au couple (B, T) dans un diagramme d'entropie. Comme l'échange de chaleur est réalisée à température constante, l'expression $E_{disp} = T\Delta S$ est valable et donne la relation entre l'énergie disponible et la variation d'entropie qui en résulte.

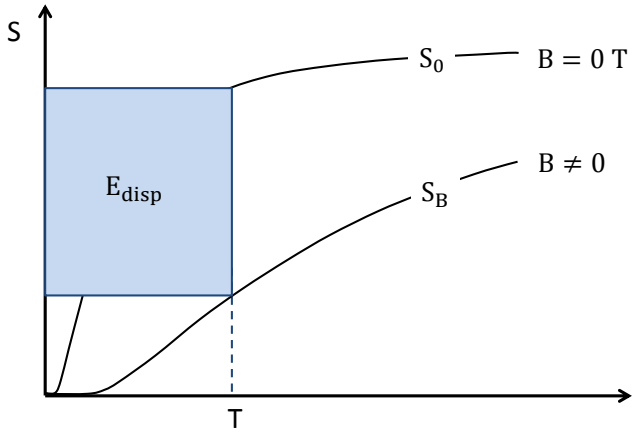


FIGURE 3.29 – Énergie disponible à température constante associée au couple (T, B).

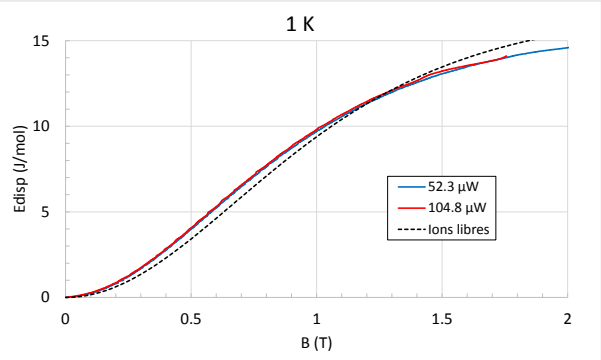
3.3.6.2 Résultats

Ces mesures ont été réalisées de 0.4 K à 1 K pour la configuration où la plaque froide était maintenue à 1.2 K et de 2 K à 4 K pour la plaque froide à 4.2 K. Les conditions expérimentales des mesures sont affichées sur le tableau 3.6.

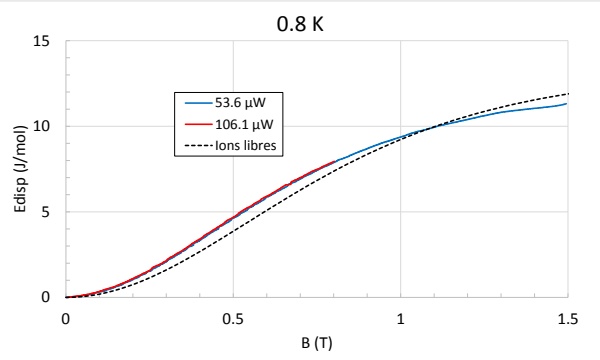
Plaque froide (K)	T_{para} (K)	$\frac{\Delta T_{découplage}}{T_{para}}$ (%)	$P_{chauffage}$ (μW)	Pertes (μW)
	4		105 & 157	négligeables
	3.5		157	9
4.21	3	négligeable	105 & 157	16
	2.5		105	21
	2		105 & 157	27
	1	0.8 & 1.5	52.3 & 104.8	négligeables
	0.8	1.8 & 3.6	52.3 & 104.8	1.3
1.21	0.6	5.6	52.3	1.3
	0.4	8.2 & 10.9	15.7 & 20.9	1.3
	0.3	8.3	5.2	1.7

TABLE 3.6 – Conditions expérimentales retrouvées lors des mesures de l'énergie disponible de la capsule de YbGG. La température de contrôle de la capsule correspond à $T_{contrôle} = T_{YbGG} + \Delta T_{découplage}$. Voir section 3.3.3.2 pour plus de détails sur le calcul des pertes thermiques.

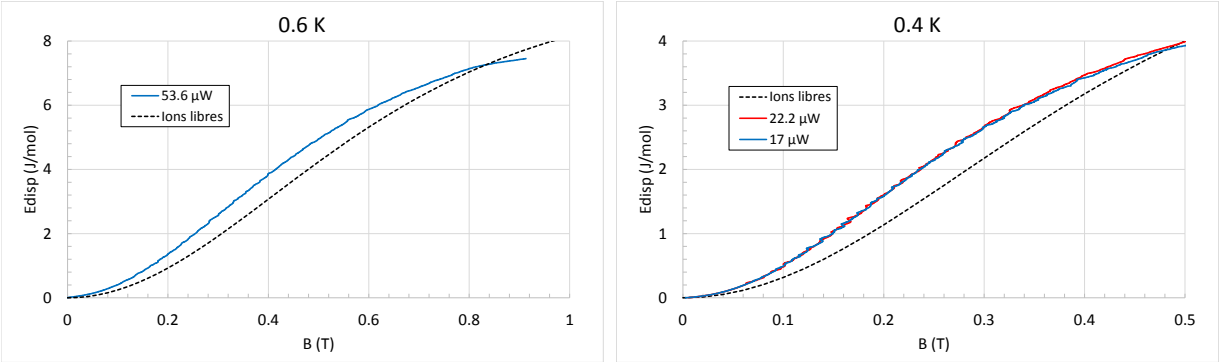
Les résultats des mesures réalisées avec la configuration où la plaque est maintenue à 1.2 K sont affichées sur les figures de 3.30(a) à 3.30(e). D'après nos mesures, les pertes parasites sont limitées à moins de 3 % des puissances de chauffage appliquées à 1 K, 0.8 K et 0.6 K. Ces valeurs montent à 9 % pour les mesures à 0.4 K. Pour une température donnée (1 K, 0.8 K et 0.4 K), un bon accord est retrouvé entre les courbes réalisées avec différentes puissances. Cela montre que les pertes et les gradients thermiques ont été correctement estimés ($\Delta T_{découplage} = 154PT^{-2.89}$, voir graphique 3.26).



(a)



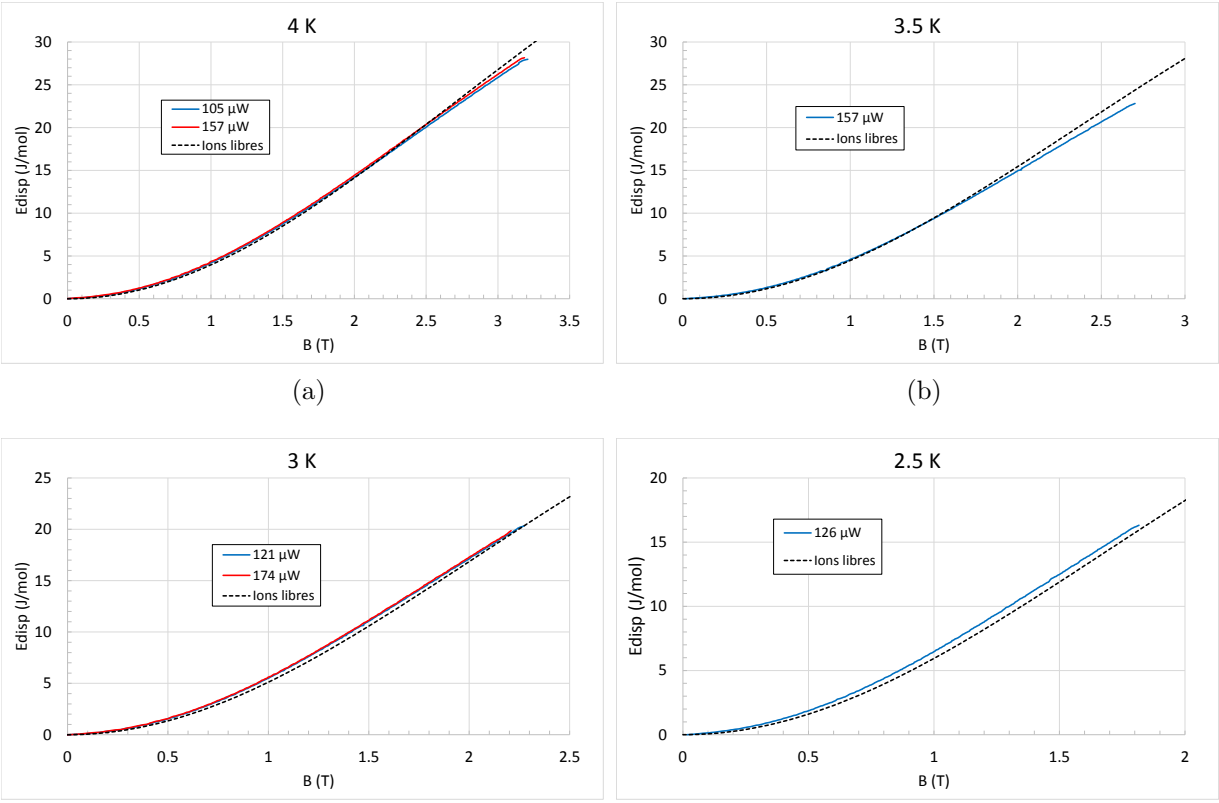
(b)



(c) (d)

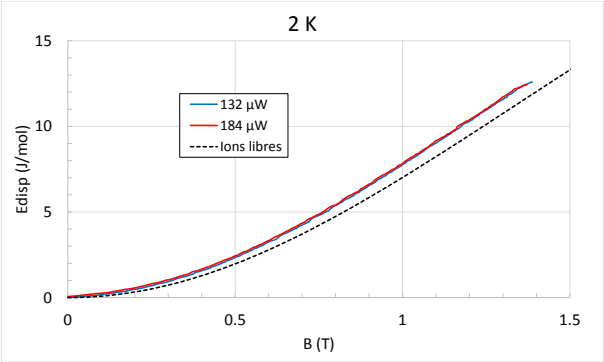
FIGURE 3.30 – Mesures d'énergie disponible de la capsule de YbGG pour la configuration où la plaque froide est maintenue à 1.2 K. Les légendes indiquent la puissance totale sur la capsule.

Pour les mesures faites avec la configuration plaque froide à 4.2 K, nous estimons à partir de nos mesures des pertes parasites que celles-ci sont limitées à moins de 3 % des puissances de chauffage utilisées à 4 K et 3.5 K. Ces valeurs varient de 10 % à 30 % pour les mesures à 3 K, 2.5 K et 2 K, correspondant ainsi à des corrections non négligeables sur la puissance totale apportée à la capsule. Selon les mesures de conductance thermique, $\Delta T_{\text{découplage}}$ de la capsule est négligeable pour les puissances de chauffage employées (variant de $\sim$ 100 µW à $\sim$ 150 µW).



(a) (b)

(c) (d)



(e)

FIGURE 3.31 – Mesures d'énergie disponible de la capsule de YbGG pour la configuration où la plaque froide est maintenue à 4.2 K. Les légendes indiquent la puissance totale sur la capsule.

L'énergie disponible calculée avec le modèle des ions libres a été tracée dans les graphiques en complément des mesures expérimentales (de 4 K à 0.3 K). Cette comparaison valide l'ordre de grandeur du modèle des ions libres, mais montre aussi des divergences d'autant plus importantes que l'on est à basse température. Filippi *et al.* (1980b) ont constaté la validité de ce modèle pour T > 0.38 K lors de mesures d'aimantation. Pour des températures inférieures à 0.38 K, les différences entre le modèle et les mesures sont expliquées par l'hypothèse de l'apparition d'un ordre magnétique de courte distance. Cet ordre se montre présent dans les mesures de chaleur spécifique réalisées par les mêmes auteurs sous la forme d'une bosse de C_P centrée vers 180 mK (figure 3.18). À ce jour, nous ne connaissons pas le(s) phénomène(s) à l'origine de cet écart prématuré entre le modèle des ions libres et nos mesures d'énergie disponible.

3.3.7 Désaimantation adiabatique

3.3.7.1 Principe

Les mesures d'énergie disponible à température constante permettent de déterminer l'énergie dont dispose un matériau lors d'un cycle ADR. Cela à condition de connaître le champ magnétique B_{froid} au début de la phase froide (point C sur la figure 3.32). Les mesures du couple (T, B) en condition adiabatique permettent de déterminer ce champ B_{froid}.

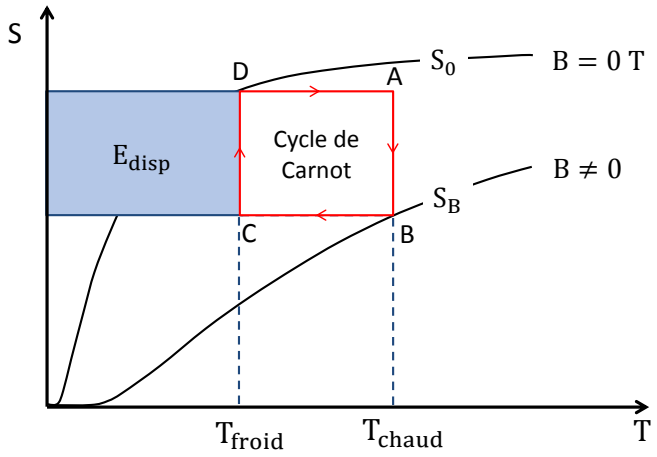


FIGURE 3.32 – Cycle thermodynamique idéal d'une ADR.

Les courbes de B = f (T) dépendent non seulement des caractéristiques du composé paramagnétique mais de l'ensemble de la capsule et de la qualité de son isolation thermique. Le champ B obtenu à une température T est d'autant plus faible que la chaleur spécifique parasite de la capsule et les pertes parasites sont importantes.

3.3.7.2 Résultats

Ces mesures sont réalisées avec l'interrupteur thermique en position OFF pour avoir une condition quasi adiabatique. Ces mesures sont faites en conditions statiques (*i.e.* après une variation de champ, le couple (T, B) est mesuré une fois que la température devient stable). Ce temps de stabilisation de la température est de l'ordre de quelques secondes à 1 K, 10 s à 0.5 K et 40 s à 0.3 K. L'absence de puissance de chauffage et le caractère statique de la mesure impliquent $T_{capsule} = T_{YbGG}$ aux pertes près. Nos calculs montrent que le champ magnétique sur la capsule varie entre 86 % et 96 % du champ au centre de la bobine pour I = 5 A et se situe proche de 96 % pour I = 1 A.

Les résultats des nos mesures sont affichés sur la figue 3.33, où chaque ligne correspond à une désaimantation dans une condition quasi-adiabatique. La figure 3.34 montre les mesures du couple (T, B) lorsqu'une désaimantation est suivie d'une aimantation. L'écart entre les courbes d'aimantation et de désaimantation met en évidence le caractère quasi-adiabatique des transformations dû d'une part aux pertes thermiques sur la capsule à travers l'interrupteur thermique et d'autre part aux transferts de chaleur entre le matériau paramagnétique et son conteneur.

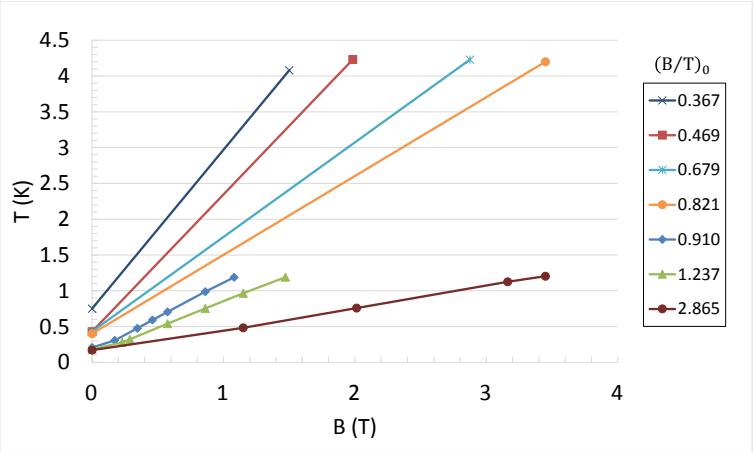


FIGURE 3.33 – Courbes de désaimantation adiabatique. Le rapport B/T du point de départ est indiqué sur la légende.

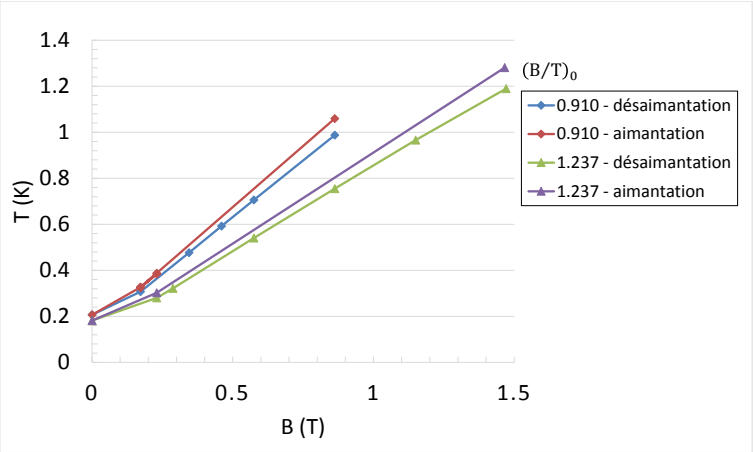


FIGURE 3.34 – Courbes de désaimantation suivie d'une aimantation adiabatique. Le rapport B/T du point de départ est indiqué sur la légende.

Le couple (T, B) lors d'une désaimantation adiabatique peut être estimé en fonction du couple de départ (T_0, B_0) à partir de l'expression ci-dessous selon le modèle des ions libres.

$$\frac{{B_0}^2 + B_{int}^2}{{T_0}^2} = \frac{{B_{il}}^2 + {B_{int}}^2}{T^2} \tag{3.8}$$

La figure 3.35 montre l'écart entre le champ magnétique expérimental B_{exp} et le champ B_{il} calculé à partir du modèle des ions libres , lequel est donné par $\frac{B_{exp} - B_{il}}{B_{il}}$. Nous constatons que B_{exp} est toujours inférieur à B_{il} dans les conditions expérimentales utilisées, l'écart relatif variant de 2 % à 25 % entre 1.2 K et 0.3 K. Cet écart doit être pris en compte afin de corriger les calculs de l'énergie disponible d'un cycle ADR à partir du modèle des ions libres.

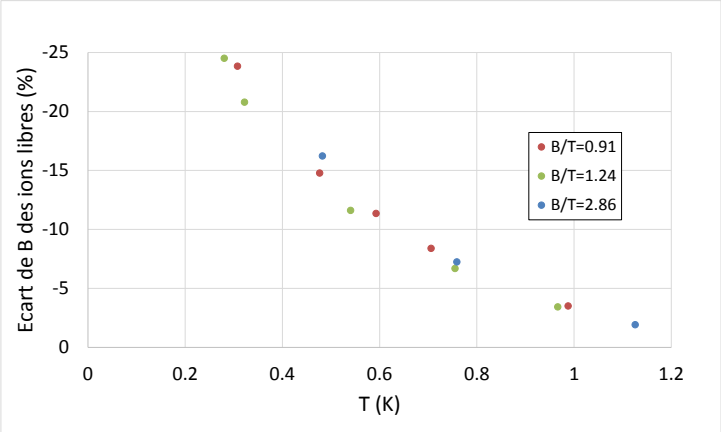


FIGURE 3.35 – Écart entre le champ magnétique expérimental et le champ magnétique calculé avec le modèle des ions libres pour différentes conditions de départ.

3.4 Conclusions

Des échantillons de DGG et de YbGG ont été réalisés avec la technique de croissance de fusion de zone verticale dans un four à image. Le diagramme d'entropie de ces matériaux a été caractérisé par mesures de chaleur spécifique associées aux courbes d'aimantation isotherme. Le DGG est un matériau classique dont les propriétés magnétocaloriques disponibles dans littérature ont été utilisées pour comparaison et validation de notre méthode expérimentale. Nous avons caractérisé une capsule magnétique de YbGG. On peut aussi mentionner que la même méthode de caractérisation de cette capsule a été utilisée lors de la caractérisation d'une capsule de CCA, réalisée au début de cette thèse, dont les résultats ont été présentés à la conférence ICC19 (Paixao Brasiliano *et al.*, 2016). L'intérêt du sel CCA est fondé sur le fait de présenter des performances magnétocaloriques semblables au CPA dans la zone subkelvin, avec l'avantage d'avoir une plus haute stabilité chimique quand réchauffé.

Lors de deux types de caractérisation du YbGG, nous avons montré que le modèle des ions libres avec un champ interne de 0.17 T fournit des bonnes estimations tant de son entropie à champ nul que de l'effet magnétocalorique dans la gamme de température $\sim$ 0.4 K - 4 K, ce qui nous permet d'estimer l'énergie disponible de ce matériau lors d'un cycle ADR. Ce résultat confirme les prévisions du chapitre 2 et nous permet de conclure que le YbGG est un réfrigérant magnétique significativement plus efficace que le CPA pour la gamme de travail $\sim$ 0.4 K - 1.5 K. Son utilisation peut permettre des réductions de la masse d'un étage ADR d'environ 50 %. Ainsi comme le CPA, l'utilisation du YbGG requiert le développement d'un bus thermique afin de compenser sa faible conductivité thermique dans la gamme de température citée.

Chapitre 4

Étude des effets transitoires parasites dans les interrupteurs à gaz

Ce chapitre est dédié à la présentation du fonctionnement des interrupteurs à gaz d'échange utilisés dans notre système ADR. Ces interrupteurs thermiques sont bien maîtrisés au SBT depuis plusieurs années (Duband, 1995). Ils ont notamment été utilisés pour le refroidisseur du satellite Herschel (Duband *et al.*, 2008). Toutefois, les conditions dans lesquelles ils sont utilisés dans notre prototype sont différentes des conditions habituelles. Si la conduction ON et OFF est bien maîtrisée, des phénomènes transitoires peuvent être problématiques. Nous proposons des modifications de l'interrupteur « standard », afin de résoudre/réduire les effets négatifs dus à ces phénomènes transitoires.

4.1 Fonctionnement d'un interrupteur à gaz d'échange

Un interrupteur thermique permet soit d'isoler thermiquement, soit de coupler ses deux extrémités. Il doit avoir une grande conduction thermique en position ON afin d'assurer des échanges efficaces (*i.e.* échanges rapides avec faibles gradients thermiques), ainsi qu'être un mauvais conducteur thermique en position OFF pour isoler ses extrémités.

La configuration de nos interrupteurs à gaz est affichée sur la figure 4.1. Il est constitué par un volume scellé, rempli de gaz. Deux pièces en cuivre de haute conductance thermique sont placées en regard sans contact direct. Un tube à paroi mince ($\sim$ 100 µm) d'un mauvais conducteur thermique, typiquement de l'inox ou du titane (alliage Ti6Al4V), assure à la fois l'étanchéité et la tenue mécanique de ces deux pièces conductrices, on l'appelle enveloppe. Une mini-pompe (MP), constituée d'un grain de charbon actif dont la température peut varier par l'action d'un chauffage, permet soit d'adsorber le gaz d'échange, soit au contraire de le désorber. Quand la MP est froide, le gaz est adsorbé et l'interrupteur est vide, ses deux extrémités sont isolées par l'enveloppe, c'est la position OFF. Une

bonne connexion thermique entre les deux extrémités est créée lorsque l'interrupteur est rempli par le gaz, c'est la position ON, obtenue avec une MP plus chaude (typiquement $\sim$ 15 K).

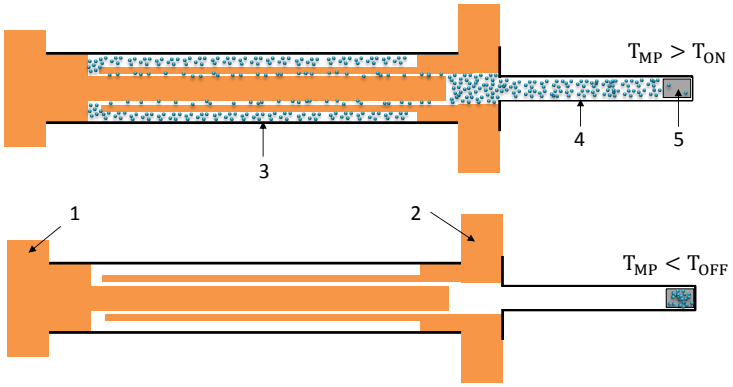


FIGURE 4.1 – Schémas d'un interrupteur thermique en position ON (en haut) et OFF. 1 et 2 - extrémités en cuivre, 3 - enveloppe, 4 - tube de pompage, 5 - mini-pompe.

La MP est connectée au corps principal de l'interrupteur par un tube de pompage qui isole thermiquement la MP du corps principal. L'isolation est nécessaire car la MP est relativement chaude en position ON, vers 15 K, tandis que le corps principal de l'interrupteur fait des échanges thermiques au-dessous de 4 K. Le matériau isolant employé est l'inox et la géométrie du tube doit privilégier des faible épaisseurs, faibles diamètres internes et des longueurs importantes pour l'isolation thermique.

4.1.1 Conductance ON et OFF

Nous déterminons ici les conductances dans les états ON et OFF en considérant les états extrêmes : volume interne complètement vide (OFF) ou volume interne rempli de gaz d'échange (ON). La transition entre ces états sera étudiée ensuite.

En position OFF, la conductance parasite de l'interrupteur est donnée par celle de son enveloppe extérieure. Le flux thermique à travers l'enveloppe $P_{\text{enveloppe}}$ est donné par la loi de Fourier :

$$P_{\text{enveloppe}} = \frac{\mathrm{A}}{\mathrm{L}} \int_{\mathrm{T}_2}^{\mathrm{T}_2} k\,(\mathrm{T})\, d\mathrm{T} \tag{4.1}$$

Où $k\,(\mathrm{T})$ est la conductivité thermique de l'enveloppe ($\mathrm{W\,m^{-1}\,K^{-1}}$), T_1 et T_2 les températures des extrémités de l'interrupteur, A et L la section et la longueur de l'enveloppe isolante. Dans notre interrupteur, $\mathrm{A} = 2.23\ \mathrm{mm}^2$ et $\mathrm{L} = 50$ mm.

En position ON, la conductance de l'interrupteur thermique dépend principalement de celle du gaz. Pour cette raison, le gap entre les extrémités en cuivre en regard doit être

minimisé car k_{gaz} (T) $\propto$ A/e avec A la section des extrémités en regard et e le gap. Nos interrupteurs ont une surface en regard d'environ 665 mm^2 et un gap de 100 µm.

Pour des températures inférieures à 4 K, seul les isotopes 3 et 4 de l'hélium peuvent être utilisés. Nos interrupteurs emploient de l'^{3}He pour deux raisons principales : cet isotope permet d'obtenir une plus grande conductance thermique ; la pression de vapeur saturante de l'^{3}He est plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle de l'^{4}He (figure 4.2), ce qui est avantageux afin d'éviter la condensation de liquide.

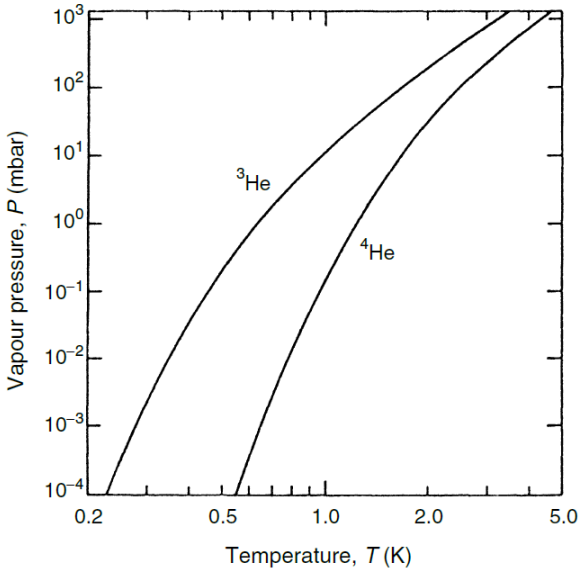


FIGURE 4.2 – Pression de vapeur saturante du gaz de remplissage de nos interrupteurs thermiques, le ^{3}He. La courbe du ^{4}He a été représentée pour référence(Pobell, 2007).

4.1.2 Transition ON-OFF

La mini-pompe, initialement chaude, adsorbe du gaz au fur et à mesure de son refroidissement. Pendant cette phase, la pression chute et le régime de conduction du gaz passe du régime visqueux (conductivité thermique indépendante de la pression) au régime intermédiaire puis moléculaire. Dans ces deux derniers régimes, la conductivité du gaz chute avec la pression (Atta, 1965). La figure 4.3 montre les courbes de pression en fonction de la température qui délimitent les régimes retrouvés dans l'espace annulaire de nos interrupteurs thermiques. Le critère utilisé pour délimiter les différents régimes est présenté dans l'annexe.

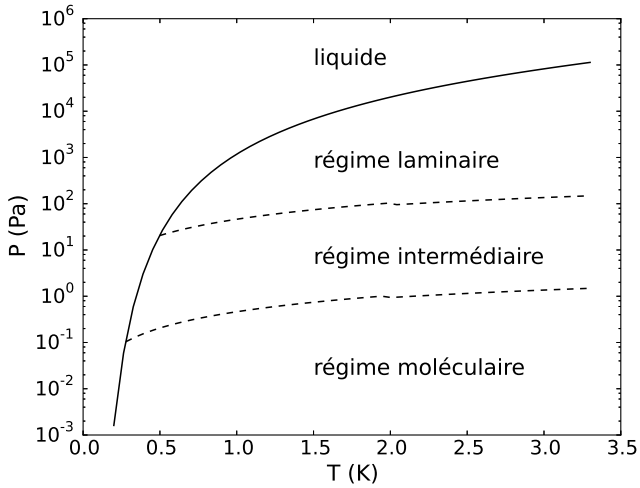


FIGURE 4.3 – Régimes retrouvés dans l'espace annulaire de l'interrupteur thermique en fonction de la pression et de la température. La courbe continue correspond à la pression de vapeur saturante du ^{3}He (Pobell, 2007).

Une courbe typique de la conductance d'un interrupteur thermique en fonction de la température de la mini-pompe est affichée sur la figure 4.4, ainsi que les températures qui délimitent les états ON et OFF.Ces températures T_{ON} et T_{OFF} sont arbitrairement définies. T_{ON} est la température à partir de laquelle la conductance thermique de l'interrupteur est supérieur à 95 % de sa conductance maximum et T_{OFF} la température au-dessous de laquelle la conductance thermique parasite est inférieure à 1 % de la conductance maximum.

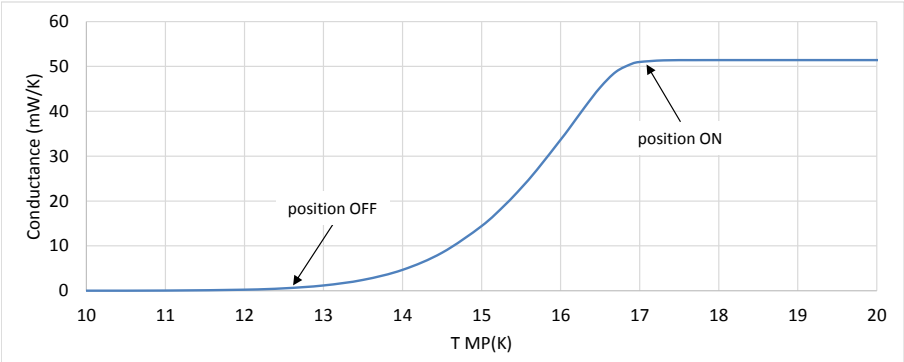


FIGURE 4.4 – Conductance de l'interrupteur thermique à 4 K en fonction de la température de la mini-pompe.

4.2 Les phénomènes de transition

Quelques phénomènes transitoires peuvent gêner le passage en position OFF d'un interrupteur à gaz, notamment la condensation de liquide et la désorption de gaz dans l'espace annulaire. Les conséquences de ces phénomènes sont l'apparition de courts-circuits

thermiques temporaires qui dégradent la capacité d'isolation d'un interrupteur à gaz. Cette section est dédiée à la présentation de cette problématique ainsi qu'à la proposition de solutions.

4.2.1 Temps de coupure

Lorsque l'interrupteur est utilisé à très basse température (typiquement < 0.5 K), la pression de vapeur saturante de l'hélium devient tellement faible (figure 4.2) que du liquide peut se former en position ON. Dans cette position, la présence de liquide n'est pas gênante, mais elle pose problème dans le passage à la position OFF : le temps de coupure peut varier de typiquement quelques minutes à 1 h pour les raisons suivantes :

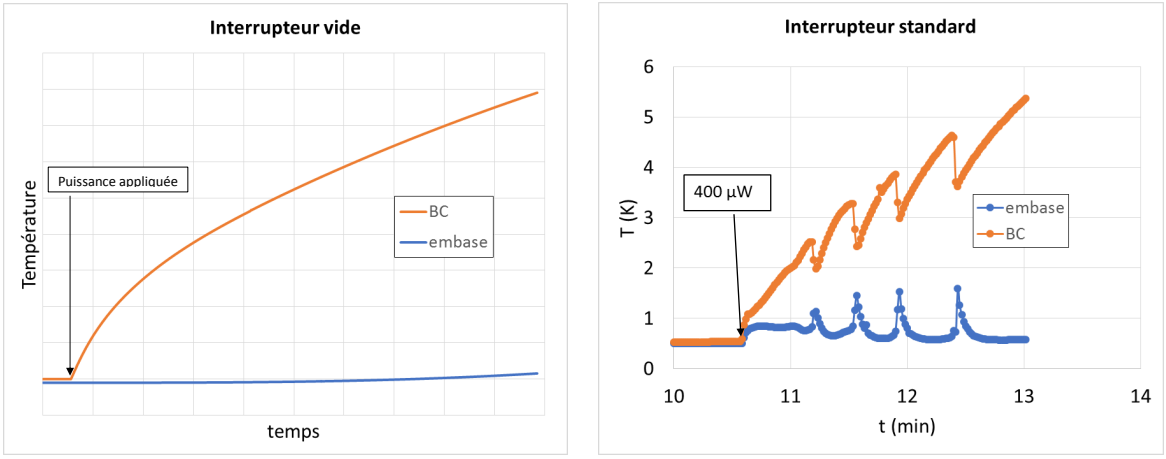
— La présence d'une goutte de liquide dans l'espace annulaire impose localement la pression de saturation du gaz. Les extrémités de l'interrupteur sont ainsi thermiquement couplées jusqu'à l'évaporation de tout le liquide ;

— à l'augmentation de la quantité d'hélium à évacuer, laquelle peut monter d'un ordre de grandeur lors de la condensation de liquide ;

La formation de liquide dans l'interrupteur peut être évitée en contrôlant la quantité de gaz libéré par la MP (*i.e.* il faut limiter la température de chauffage de la mini-pompe). Cependant ce contrôle devient de plus en plus délicat lorsque la température de travail de l'interrupteur baisse. Il faut donc disposer d'un moyen de vérifier la présence de liquide ou de maîtriser les conditions de fonctionnement afin d'éviter sa présence.

4.2.2 Connexions thermiques intermittentes

Même en absence de liquide, des connexions thermiques transitoires peuvent apparaître après le passage de l'interrupteur thermique en position OFF nominale (*i.e.* $T_{MP} < T_{OFF}$). Cette problématique est illustrée sur la figure 4.5, où les températures des deux extrémités d'un interrupteur thermique sont présentées. Par habitude, elles sont appelées « embase » et « bout chaud » (BC). L'interrupteur est initialement en position OFF. Ensuite, son bout chaud est réchauffé. La figure 4.5(a) montre le comportement attendu d'un interrupteur idéal. Cependant, comme on le voit sur la figure 4.5(b), des courts-circuits transitoires ont lieu et les températures des extrémités oscillent.



(a) Comportement idéal.

(b) Mesures observées.

FIGURE 4.5 – Connexions thermiques intermittentes lors du chauffage d'une extrémité de l'interrupteur thermique. Température initiale des extrémités avant activation du chauffage placé sur le bout chaud : 0.5 K.

Nous attribuons ce comportement au phénomène de piégeage de molécules en paroi. Ce phénomène, spontané et exothermique, est favorisée aux faibles températures et aux fortes pressions (Keesom and Schweers, 1941). L'adsorption désigne l'augmentation nette de la quantité de molécules piégées et la désorption, le phénomène inverse.

Toute réduction de pression interne ou augmentation de la température peut engendrer une désorption de gaz dans l'interrupteur. Une désorption de gaz peut être problématique lorsqu'elle se produit pendant que l'interrupteur est en position OFF : du gaz désorbé pourra créer des courts-circuits thermiques transitoires. C'est ce phénomène observé sur la figure 4.5.

4.2.2.1 Conductance hydraulique

Les courts-circuits transitoires dégradent l'isolation thermique de l'interrupteur. En conséquence, l'augmentation des pertes a un impact négatif sur le dimensionnement des étages connectés aux interrupteurs. Les fluctuations thermiques perturbent aussi le contrôle de température de ces étages.

Afin de réduire ces oscillations et ces courts-circuits thermiques, deux solutions sont envisageables. La première consiste à limiter la quantité de gaz adsorbé sur les parois de l'espace annulaire par un choix de surface ou de matériaux adaptés. Par exemple, des métaux alcalins utilisés dans l'étude du pré-mouillage de l'hélium 4 ont été rapportés comme étant des faibles adsorbants (Phillips *et al.*, 1998). Cette solution nous semble très compliquée et incertaine puisque qu'elle nécessiterait de trouver un matériau compatible avec nos contraintes thermiques et cryogéniques. La seconde solution, que l'on étudie ici

est de faciliter - ou d'accélérer - l'évacuation du gaz désorbé. Les difficultés de passage en position OFF dues à la désorption peuvent êtres résolues par l'augmentation de la conductance hydraulique de l'interrupteur, laquelle est définie par :

$$C = \frac{\dot{n}}{\Delta P} \tag{4.2}$$

où ΔP est la différence de pression nécessaire pour imposer un débit molaire $\dot{n}$ (mol/s). Augmenter C permet de limiter la montée en pression et donc la création de courts-circuits intermittents lors d'une désorption. Les expressions permettant le calcul de la conductance d'un tube circulaire et d'un espace annulaire en régime visqueux ou moléculaire sont présentées dans l'annexe.

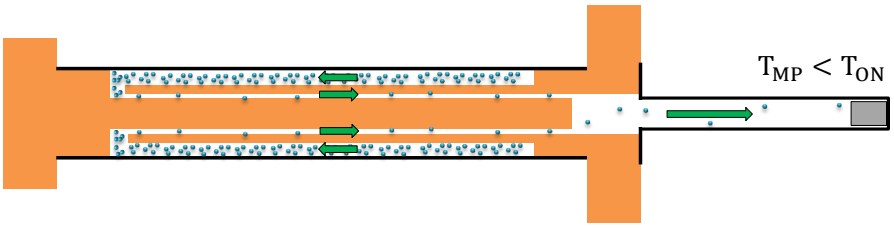


FIGURE 4.6 – Évacuation du gaz lorsque la MP est refroidie.

Comme affiché sur la figure 4.6, le circuit complet d'évacuation du gaz est principalement composé par deux zones : le circuit à l'intérieur de l'interrupteur lui-même (espace annulaire délimité par l'enveloppe isolante et la pièce en cuivre adjacente - espace annulaire 1 - et espace annulaire délimité par les deux pièces en cuivre - espace annulaire 2) et le tube de pompage de section circulaire qui relie le corps principal de l'interrupteur à la MP.

La géométrie du tube de pompage peut être modifiée pour limiter ses pertes de charge, mais il faut également limiter les pertes thermiques provenant de la MP. Puisque les pertes de charge sont au premier ordre proportionnelle au diamètre à la puissance 3 ou 4 selon le régime (moléculaire ou visqueux), alors que les pertes thermiques sont proportionnelles au diamètre, il est possible de ne pas augmenter les pertes thermiques tout en diminuant les pertes de charge, le coût étant la difficulté d'intégration d'un tube plus long et plus gros.

La modification de la géométrie des espaces annulaires de l'interrupteur lui-même est beaucoup plus délicate. L'augmentation des sections hydrauliques (*i.e.* le gap) ou la réduction de la longueur implique une baisse de la conductance thermique en position ON et une augmentation des pertes en position OFF.

4.2.2.2 Solution proposée : ajout d'orifices de pompage

La conductance totale de l'interrupteur peut être significativement améliorée si les espaces annulaires 1 et 2 sont connectés par des orifice de pompage, en les mettant ainsi

en parallèle, comme indiqué sur la figure 4.7. Le diamètre de ceux orifices est faible. Leur introduction a ainsi un impact thermique négligeable.

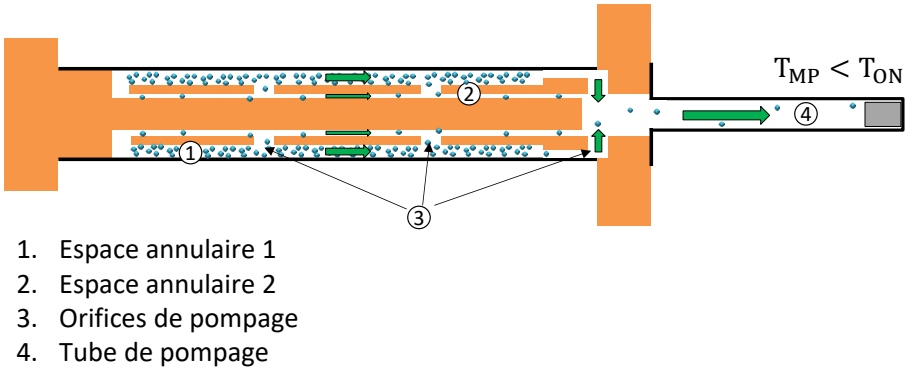


FIGURE 4.7 – Schéma de l'interrupteur thermique percé.

4.3 Vérification expérimentale

Nous avons conçu une expérience afin de pouvoir déterminer :

1. L'effet de la présence de liquide sur la dynamique du passage ON/OFF ;
2. Les paramètres dont dépend l'apparition et la dynamique des courts-circuits thermiques transitoires dus à la désorption de gaz dans l'espace annulaire ;
3. L'effet du diamètre des tubes de pompage ;
4. L'effet de l'ajout d'orifices de pompage sur la conductance hydraulique totale de l'interrupteur ;

Cette expérience nous permet ainsi de mesurer l'influence des paramètres clefs pour le fonctionnement des interrupteurs thermiques dans des conditions proches des conditions réelles de fonctionnement.

4.3.1 Configurations

Au total, 4 configurations d'interrupteur ont été utilisées, correspondant à la combinaison de deux corps principaux (percé et non percé) et deux tubes de pompage.

	D_1 (mm)	D_2 (mm)	L (mm)
Espace annulaire 1	6.4	7.2	50
Espace annulaire 2	4.3	4.5	50

TABLE 4.1 – Dimensions caractéristiques de l'interrupteur.

Les dimensions principales des interrupteurs sont résumées sur le tableau 4.1 (voir figure 4.7). Les tubes de pompage utilisés sont de même longueur, 180 mm, l'un de diamètre interne ϕ 2.5 mm et l'autre ϕ 3 mm. Le rapport des diamètres internes permet de changer la conductance hydraulique du tube de pompage d'un facteur 2.1 et 1.7 (voir annexe) pour un écoulement visqueux et moléculaire, respectivement.

La position des orifices sur la coque cylindrique qui sépare l'espace annulaire 1 et 2 de l'interrupteur percé est affichée sur la figure 4.8 : il y a une série de 3 trous passants de ϕ 0.7 mm à chaque tiers de la pièce, y inclus le perçage de l'embase.

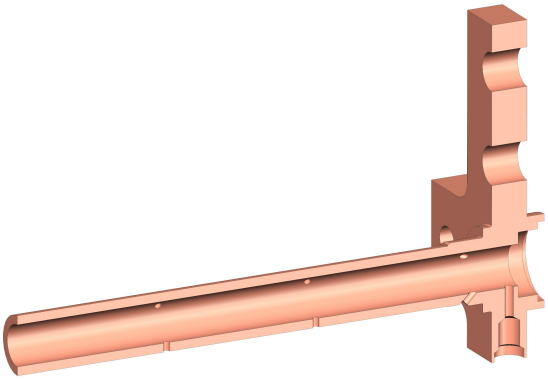


FIGURE 4.8 – Distribution des orifices de pompage dans l'interrupteur percé.

4.3.2 Mise en œuvre expérimentale

Chaque interrupteur a été instrumenté avec un thermomètre et un chauffage sur le bout chaud, l'embase, l'intercept de la MP et la MP elle-même. Ces chauffages permettent un contrôle autonome de la température à l'endroit où ils sont installés. Une source froide à 1.2 K (bain d'hélium pompé) a été employée pour refroidir la MP pendant qu'une source à environ 270 mK (réfrigérateur à adsorption d'^{3}He) a été utilisée pour refroidir l'embase et le bout chaud de chaque interrupteur. Un schéma du montage utilisé est affiché sur la figure 4.9. Un lien thermique connecte la zone du tube de pompage appelé « intercept » à la source froide à 1.2 K. Cela permet l'évacuation de la chaleur afin de contrôler la température de cet intercept. Une photo du montage expérimental est affichée sur la figure 4.10.

L'acquisition de mesures de température, le pilotage des chauffages et l'automatisation des essais a été réalisé par un programme LabVIEW.

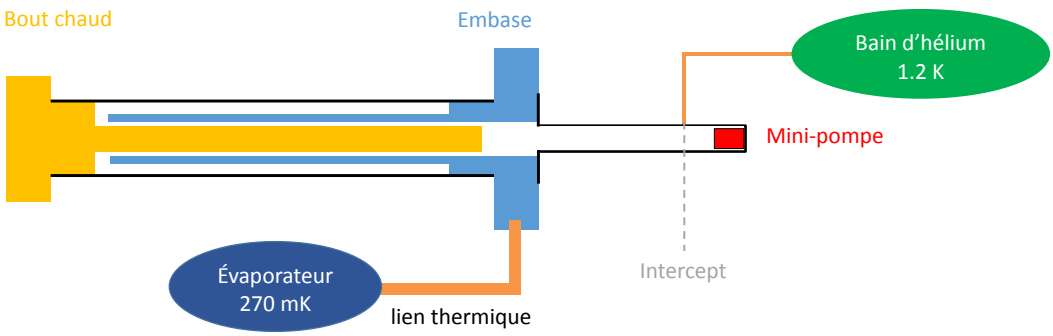


FIGURE 4.9 – Schéma du montage utilisé.

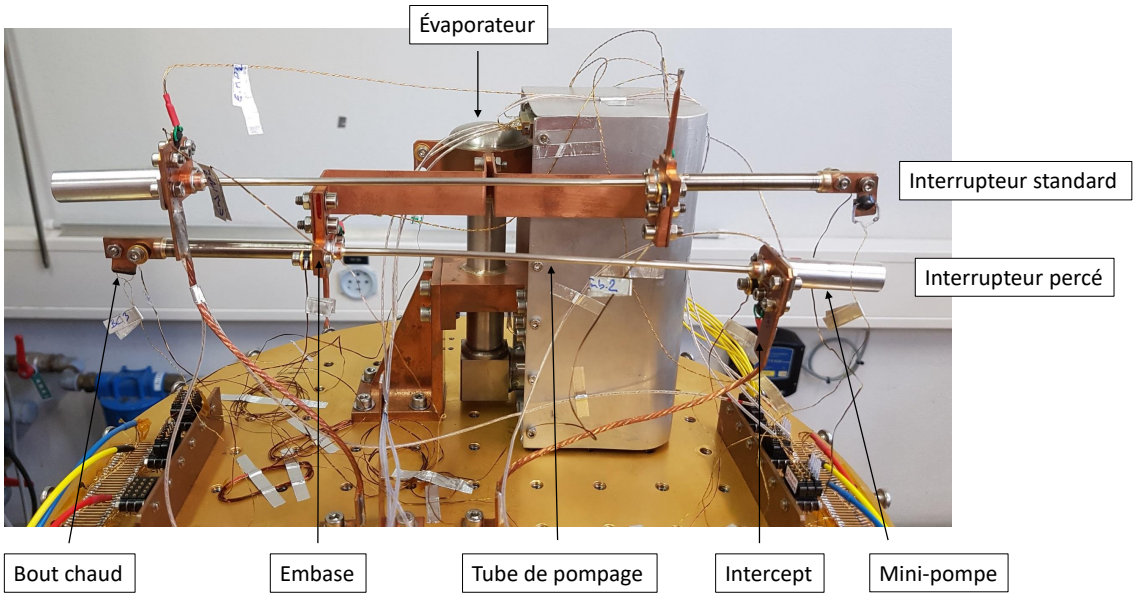


FIGURE 4.10 – Montage expérimental des essais des interrupteurs thermiques.

À chaque mise en froid du cryostat, deux configurations ont été testées (figure 4.10) : l'interrupteur percé et le non-percé, tous les deux montés avec un tube de pompage identique.

4.3.3 Remplissage des interrupteurs

Les interrupteurs thermiques ont été remplis avec de l'^{3}He à 1.2 bar autour de 300 K, ce qui correspond à une quantité d'environ 80 µmol. Chaque MP a été équipée d'un grain de charbon actif d'environ 0.08 g. Ce choix de pression de remplissage et de masse de charbon actif permet d'avoir un interrupteur thermique dont la température de coupure (*i.e.* température de la MP au-dessous de laquelle l'interrupteur est OFF) est autour de 10 K et dont la température ON est autour de 16 K.

4.4 Expériences en présence de liquide

Nous présentons ici des expériences pour lesquelles du liquide s'est formé dans l'interrupteur. La première étape est de vérifier expérimentalement la présence de ce liquide, à partir des données de température dont nous disposons. Ensuite, nous utilisons ces expériences pour mettre en évidence les paramètres ayant une forte influence sur les vitesses de pompage.

4.4.1 Mise en évidence de la présence de liquide

Nous avons réalisé des échanges thermiques à « haute » et « basse » températures pour mettre en évidence la présence de liquide à l'intérieur de l'interrupteur. Pour cela, nous avons utilisé la procédure suivante en 4 étapes :

1. Condition de départ : $T_{MP} < 4$ K, température des extrémités de l'interrupteur d'environ 0.3 K.
2. Chauffage puis maintien de la MP à 16 K (position ON) pendant 15 minutes ; en parallèle : contrôle de l'embase de l'interrupteur à la consigne T^c_{embase} par un algorithme PID.
3. Refroidissement de la MP.
4. Application d'une puissance de chauffage constante sur le bout chaud de l'interrupteur.

L'intercept de la MP est contrôlé à $T_{intercept}$ pendant toute la durée des essais.

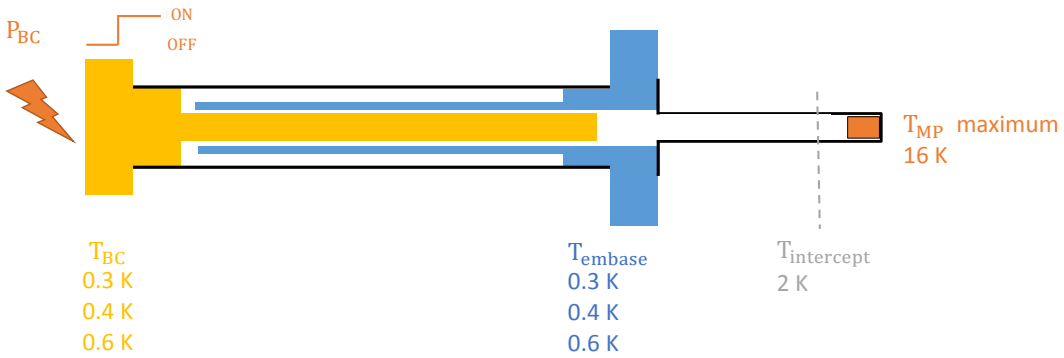


FIGURE 4.11 – Paramètres des essais.

La figure 4.11 résume les valeurs utilisées dans cette procédure. Pendant l'étape 2, les deux extrémités de l'interrupteur sont en équilibre thermique car la MP est ON. Dans les étapes 2 et 3, la condition $T_{embase} > T^c_{embase}$ - 5 mK est toujours respectée. Ceci est important car la condensation de liquide dépend de la valeur minimum de T_{embase} pendant cette étape.

La figure 4.12 montre plusieurs profils de température pendant le refroidissement de la MP (étapes 3 et 4) lorsque $T_{embase} = 0.6$ K. À partir de ~ 3 minutes, la température du bout chaud de l'interrupteur s'écarte de celle de l'embase sans qu'aucune puissance ne soit appliquée. C'est l'indication que l'interrupteur est en position OFF, le bout chaud monte en température à cause des pertes parasites (*i.e.* par rayonnement des pièces thermalisées à 1.2 K). Le découplage des extrémités de l'interrupteur se passe lorsque $T_{MP} \lesssim 9$ K. Les courbes du même essai fait avec l'interrupteur percé sont quasi superposables et n'ont pas été représentées ici.

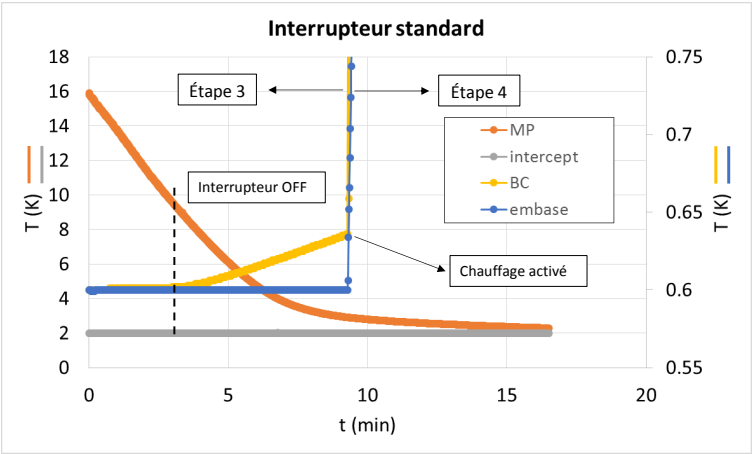


FIGURE 4.12 – Étude du passage ON - OFF de l'interrupteur standard. $T^c_{embase} = 0.6$ K. Tube de pompage : ϕ 2.5 mm.

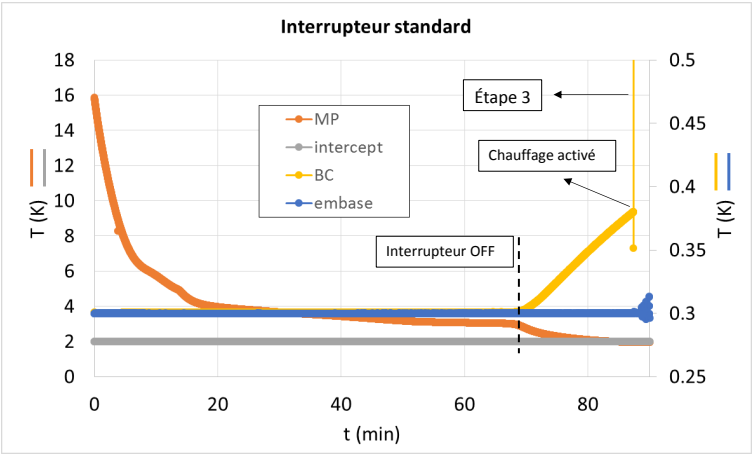


FIGURE 4.13 – Étude du passage ON - OFF de l'interrupteur standard. $T^c_{embase} = 0.3$ K. Tube de pompage : ϕ 2.5 mm.

La figure 4.13 montre les résultats obtenus pour les essais réalisés à $T_{embase} = 0.3$ K. Deux grandes différences sont remarquées :

1. l'échelle de temps pour le passage en position OFF a complètement changée, de 3 min pour $T_{embase} = 0.6$ K contre 70 min pour $T_{embase} = 0.3$ K.

2. la thermalisation de la MP s'est fait beaucoup plus lentement lorsque $T_{embase} = 0.3$ K ($\sim$ 80 min au lieu de $\sim$ 15 min), tandis que la température de son intercept a été maintenue constante (2 K). Le profil de température de la MP est aussi devenu plus compliqué, avec des changements de pente brusques autour de 5 K et 3 K.

Ces deux constatations indiquent que la quantité d'^{3}He que la MP a dû évacuer avant que l'interrupteur soit OFF est largement supérieure pour $T_{embase} = 0.3$ K. La quantité de l'hélium à l'intérieur de l'interrupteur est fonction des propriétés d'adsorption de la MP et dépendent de sa température et pression (Roubeau, Der Nigohossian, and Avenel, 1969). Plus sa température (pression) est importante (faible), plus d'hélium est injecté dans l'interrupteur. Ainsi, on propose les hypothèses suivantes pour expliquer l'augmentation de la quantité d'^{3}He injecté dans l'interrupteur :

1. Augmentation de la densité du gaz dû à la température plus faible ;
2. Augmentation de la quantité d'hélium adsorbée sur les parois internes ;
3. Condensation de liquide ;

Nous avons donc proposé une mesure permettant de mettre en évidence des comportements très différents. *A priori* nous attribuons ces différents comportements à la présence ou non de liquide, mais il est nécessaire d'analyser plus en profondeur les résultats pour le prouver. C'est l'objet de la partie suivante.

4.4.1.1 Preuve de la présence de liquide

L'hypothèse 1 toute seule ne peut pas justifier l'augmentation du temps de pompage : la quantité de gaz présent à l'intérieur de l'interrupteur est à peu près 2 fois plus importante à 0.3 K que à 0.6 K (rapport de températures).

L'effet de la présence de liquide peut être estimé par un calcul théorique : la quantité de gaz désorbé est fonction d'un équilibre imposé par les propriétés d'adsorption de la MP, celles-ci étant fonction de sa température et pression. Nos calculs montrent que la quantité de gaz injecté par la MP, une fois que la pression de vapeur saturante est atteinte, augmente très vite : une faible élévation de température de la MP (*e.g.* 100 mK) peut augmenter la quantité d'hélium injecté d'un ordre de grandeur.

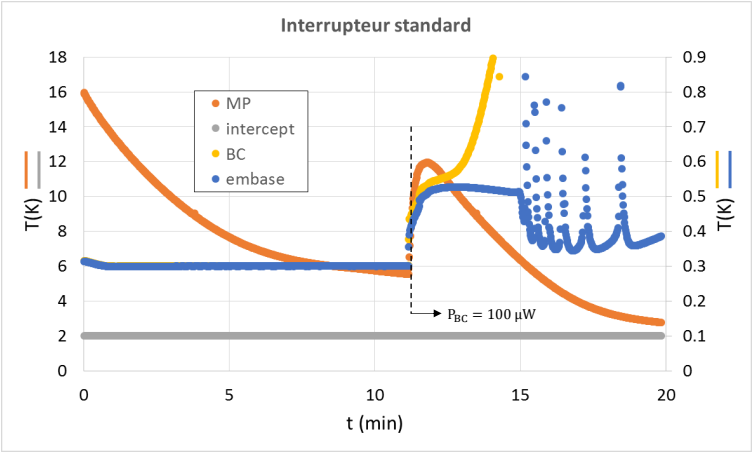


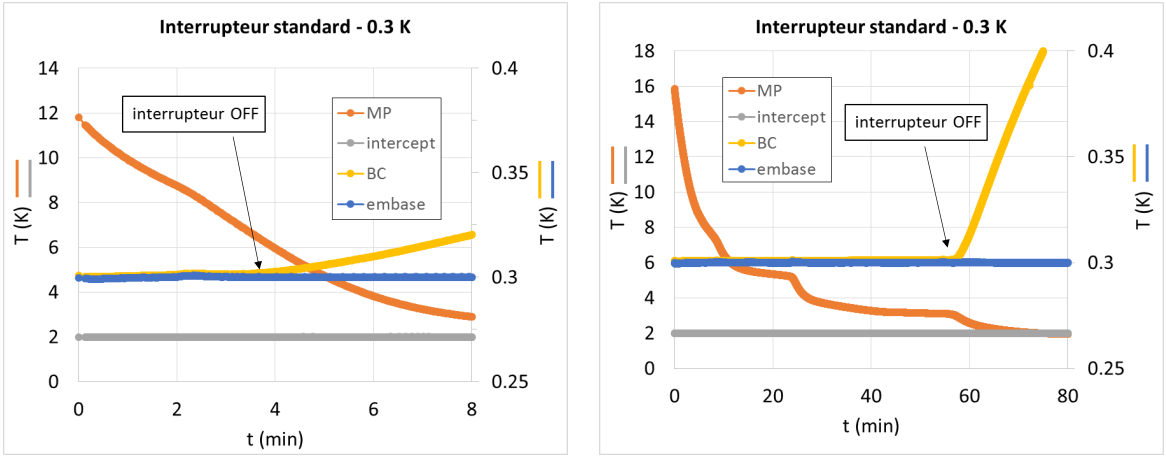
FIGURE 4.14 – Montée en température de la mini-pompe en conséquence de l'application de P_{BC} = 100 µW avant que l'interrupteur passe OFF. Tube de pompage : ϕ 2.5 mm.

Pour vérifier l'hypothèse de présence de liquide, nous avons répété l'expérience en changeant le moment où la puissance est appliquée sur le bout chaud : après que la température de la MP soit suffisamment inférieure à sa température de coupure nominale ($<$ 9 K) mais avant que les extrémités de l'interrupteur soient découplées. Le résultat est affiché sur la figure 4.14 : au moment où la puissance est appliquée au bout chaud de l'interrupteur, la MP est réchauffée brusquement (monte de 6 K à 12 K en $\sim$ 10 s), ce qui indique une intense adsorption d'hélium sur le charbon actif. Cela confirme la présence de liquide à l'intérieur de l'interrupteur : la montée en température de ses extrémités provoque une évaporation soudaine du liquide, la pression interne de l'interrupteur augmente et, par conséquent, aussi le débit d'hélium vers la MP.

4.4.1.2 Effet de la température maximum de la mini-pompe

L'essai décrit au début de la section 4.4.1 a été refait afin de mettre en évidence l'effet de la température de contrôle de la MP quand l'interrupteur thermique est en position ON (phase 2). Les figures 4.15(a) et (b) montrent le résultat du passage en positon OFF de l'interrupteur standard lorsque la température maximum de la MP (T^{MP}_{max}) est 12 K et 16 K, respectivement. Le temps de passage en position OFF est très variable : 4 min pour T^{MP}_{max} = 12 K contre 58 min pour T^{MP}_{max} = 16 K. Le profil de température de la MP est aussi beaucoup plus simple lorsque T^{MP}_{max} = 12 K.

Cette variation montre qu'une quantité beaucoup plus faible d'^{3}He a été injectée dans l'interrupteur lorsque T^{MP}_{max} = 12 K, ce qui est une indication de l'absence de liquide. La réduction de T^{MP}_{max} suffit pour éviter la condensation de liquide.



(a) Mini-pompe contrôlée à 12 K en phase ON. (b) Mini-pompe contrôlée à 16 K en phase ON.

FIGURE 4.15 – Passage en position OFF en absence (a) et en présence (b) de liquide à 0.3 K. Tube de pompage de ϕ 3 mm.

4.4.2 Effet de la conductance hydraulique

Nous avons montré, dans la partie précédente, quelques conditions permettant ou non la formation de liquide. La condensation de liquide doit être évitée lors du fonctionnement nominal de nos interrupteurs. Cependant, dans les essais rapportés dans cette section, nous travaillons dans des conditions où du liquide est présent afin d'étudier l'évacuation de l'^{3}He.

Nous avons vu dans les essais précédents faits sur l'interrupteur standard qu'en présence de liquide, la cinétique de l'interrupteur était déterminée par la quantité d'hélium à évacuer au lieu d'être imposée par l'état de la MP. Ce fait nous permet de comparer le temps de passage en position OFF des différents interrupteurs et ainsi d'avoir une mesure indirecte de leur conductance hydraulique.

Dans cette partie, pour interpréter les résultats, nous supposons que la quantité d'hélium désorbée par la MP est identique pour l'interrupteur standard et l'interrupteur percé avec des tubes de pompage identiques.

4.4.2.1 Effet des orifices de pompage

La figure 4.16 montre une comparaison entre le temps de passage en position OFF pour l'interrupteur standard et celui percé à partir du moment où la MP commence à être refroidie : 70 min pour l'interrupteur standard contre 30 min pour l'interrupteur percé. L'introduction des orifices de pompage a un impact important sur la conductance totale de l'interrupteur : le débit moyen d'hélium dans l'interrupteur percé est au moins 2 fois supérieur à celui dans l'interrupteur standard. On peut supposer que le temps de

pompage est alors limité par les pertes de charge du tube de pompage. C'est ce que nous allons vérifier maintenant.

Pour un ordre de grandeur, la quantité de gaz désorbée par la MP à 16 K est estimée à 40 µmol, ce qui résulte en un débit moyen de 9 nmol/s pour l'interrupteur standard et 22 nmol/s pour celui percé.

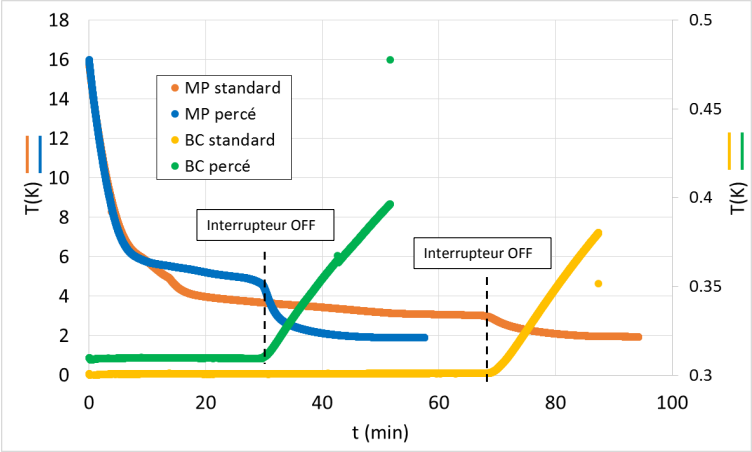
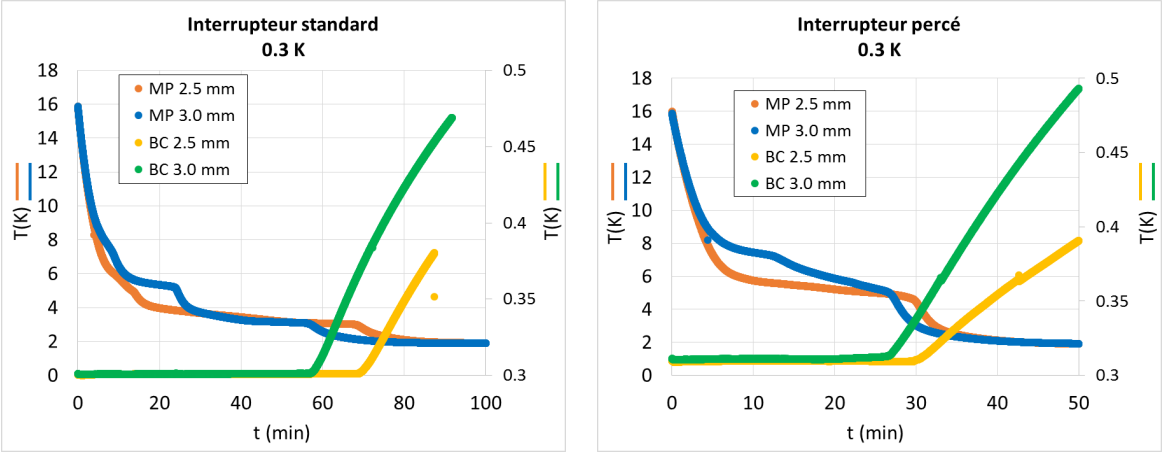


FIGURE 4.16 – Étude du temps de passage en position OFF de l'interrupteur standard et de celui percé. Tube de pompage ϕ 2.5 mm

4.4.2.2 Impact du diamètre du tube de pompage

Les expériences avec du liquide à 0.3 K ont été réalisées avec deux diamètres de tube de pompage, 2.5 et 3 mm, afin de vérifier l'impact du changement de la conductance de cet élément sur l'évacuation du liquide. D'après nos calculs de conduction hydraulique, cette augmentation de diamètre multiplie la conductance du tube de pompage entre 1.7 et 2 selon le régime d'écoulement (voir annexe).



(a) (b)

FIGURE 4.17 – Comparaison des profils de température pendant le passage en position OFF pour deux diamètres du tube de pompage : 2.5 mm et 3 mm.

Les profils de température du bout chaud et de la MP sont affichés sur la figure 4.17 pour les deux tubes de pompage utilisés. On peut noter les différences de comportements que l'on se propose d'expliquer :

1. Pour les deux interrupteurs, les courbes de refroidissement de la MP ont des profils différents en dessous de 10 K même si la température de l'intercept a été maintenue constante. Ce changement indique une activité d'adsorption plus intense dans la MP, laquelle est attribuée à l'augmentation de la conductance hydraulique du tube de pompage ;
2. La conductance thermique parasite est inversement proportionnelle à la pente de température α (en K/min) du bout chaud. La pression dans l'espace annulaire est d'autant plus importante que cette conductance parasite est forte. α_{standard} n'a pas été affecté par le changement de diamètre. Ceci indique que la conductance hydraulique limitant le pompage de l'interrupteur standard est celle de son espace annulaire. Dans le cas de l'interrupteur percé, α est 1.9 fois plus important lorsque ϕ 3 mm. Ceci montre que sa conductance hydraulique totale est limitée par celle du tube de pompage ;
3. L'augmentation du diamètre du tube de pompage a eu un faible impact sur le temps de passage en position OFF des deux interrupteurs. Nous ne retrouvons donc pas le facteur proche de 2 mis en évidence sur le point 2 dans le cas de l'interrupteur percé. Nous attribuons cette différence à la dynamique de l'évaporation (*i.e.* la vitesse d'évaporation de l'hélium est dans ce cas limitée par les pertes par rayonnement qui arrivent sur l'interrupteur) ;

Ces expériences ont permis de mettre en évidence l'amélioration de la conductance hy-

draulique totale de l'interrupteur avec l'introduction de orifices de pompage dans l'espace annulaire.

4.5 Oscillations et courts-circuits thermiques

L'objet de cette section est l'étude expérimentale des oscillations thermiques transitoires dues au couplage de la désorption d'^{3}He des parois de l'espace annulaire avec les vitesses de pompage.

4.5.1 Paramètres

Les paramètres identifiés comme importants pour cette étude sont la température des extrémités en phase ON, la vitesse de montée en température du bout chaud, la température maximum de la mini-pompe et la température de l'intercept du tube de pompage.

Température des extrémités en phase ON et vitesse de montée en température du bout chaud

La quantité de gaz adsorbé dans l'espace annulaire $n_a = f(T_1, T_2)$, où T_1 et T_2 sont les températures de ses extrémités. Le débit de gaz désorbé $\dot{n}_d = - \dot{n}_a$ est donc fonction de T_1 et T_2 ainsi que de leur dérivée (*i.e.* vitesse de montée en température du bout chaud dans cette étude).

Température maximum de la mini-pompe

La quantité de gaz adsorbé sur les parois de l'espace annulaire est d'autant plus élevée que la pression interne est importante, laquelle est contrôlée par la température de la MP (Roubeau, Der Nigohossian, and Avenel, 1969). Si le temps caractéristique de désorption est du même ordre de grandeur que le temps de passage en position OFF (*i.e.* temps de refroidissement de la MP), l'historique de pression de l'interrupteur peut affecter les courts-circuits thermiques.

Température de l'intercept du tube de pompage

La température de l'intercept peut influencer l'apparition et l'intensité des courts-circuits thermiques par deux mécanismes. Le premier est associé au fait que la conductance hydraulique du tube de pompage dépend directement de sa température (annexe). Le second mécanisme est lié à l'effusion thermique (annexe), laquelle est fonction du gradient de température.

4.5.2 Procédure expérimentale

La procédure de mesure utilisée pour la majorité de ces expériences est décrite ici :

1. Condition de départ : $T_{MP} < 4$ K, température des extrémités de l'interrupteur d'environ 0.3 K ;
2. Maintien de la MP à T_{MP}^{max} (position ON) durant 15 minutes ; en parallèle : maintien de l'embase de l'interrupteur à la consigne T_{embase}^{c} avec un algorithme PID ;
3. Coupure du chauffage et refroidissement de la MP ;
4. Désactivation du contrôle PID de la température de l'embase lorsque $T_{MP} < T_{OFF}$. Le chauffage de l'embase est remplacé par une valeur constante donnée par la moyenne temporelle du chauffage avant la désactivation du PID ;
5. Application d'une puissance de chauffage P_{BC} constante sur le bout chaud de l'interrupteur ;

L'intercept de la MP est contrôlé à $T_{intercept}$ (2 K ou 4 K) pendant toute la durée des essais. La désactivation du contrôle PID dans l'étape 4 assure que les oscillations observées à l'embase de l'interrupteur sont uniquement créées par les connections thermiques entre les extrémités de l'interrupteur. L'application de la puissance constante en remplacement du contrôle PID empêche que l'embase, thermiquement couplée à l'évaporateur, soit refroidie et condense du liquide.

Avant de démarrer l'étape 5, nous nous assurons que la température du bout chaud soit découplée de celle de l'embase. Ce mode opératoire assure qu'aucun liquide n'est présent dans l'interrupteur lors de la montée en température du bout chaud. En pratique, cette condition est toujours vérifiée pour $T_{MP} < 9$ K lorsque $T_{embase} \geqslant 0.39$ K.

4.5.3 Cas typique d'observation des oscillations

Les conditions expérimentales de température de ces essais sont affichées sur la figure 4.18. En position OFF, la vitesse de montée en température de l'extrémité de l'interrupteur est imposée par l'intensité du chauffage utilisé.

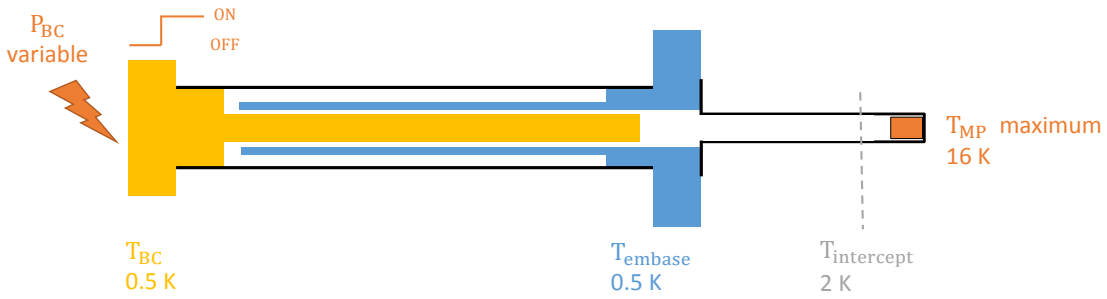


FIGURE 4.18 – Paramètres de l'expérience.

Le comportement d'un interrupteur en position OFF est affiché sur la figure 4.19 : la température du bout chaud augmente asymptotiquement jusqu'à $T_{max} = f(P_{BC})$ pendant que l'embase, thermiquement isolée de cette extrémité, reste à température constante (figure 4.19(b)). Cet essai a été réalisé avec $T^c_{embase} = 0.5$ K et $P_{BC} = 100$ µW. Comme précisé dans la section précédente, le fait que la température du bout chaud soit découplée de celle de l'embase uniquement à cause des pertes parasites (*i.e.* lorsque $P_{BC} = 0$) assure l'absence de liquide dans l'interrupteur lorsque P_{BC} est appliqué au bout chaud.

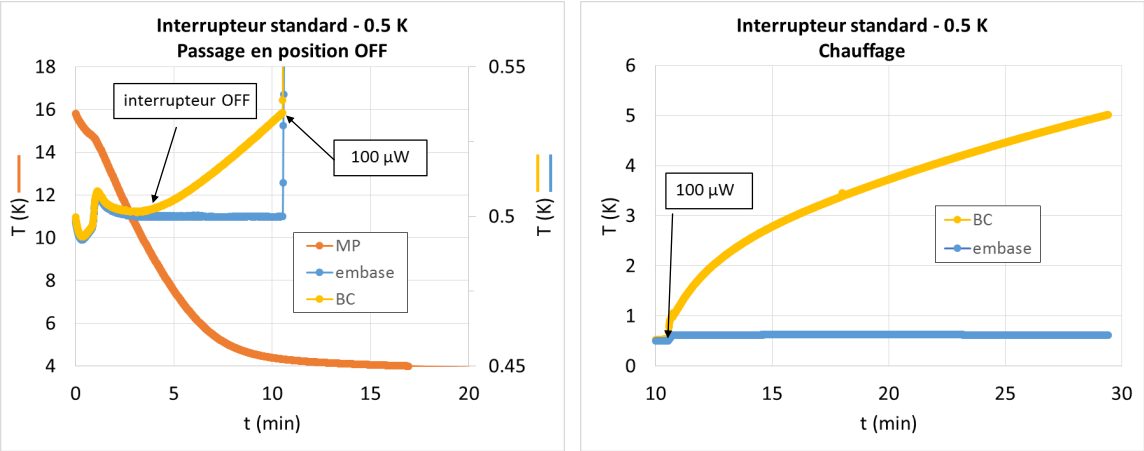


FIGURE 4.19 – Chauffage du bout chaud de l'interrupteur. Puissance de chauffage : 100 µW.

Le comportement typique d'un interrupteur qui présente des oscillations thermiques est affiché sur la figure 4.20 : au contraire du cas précédent, des oscillations de température apparaissent pendant pendant la montée en température du bout chaud. Ces oscillations sont accompagnées par des oscillations sur l'embase. Ceci met en évidence l'apparition de courts-circuits thermiques temporaires entre les deux extrémités de l'interrupteur.

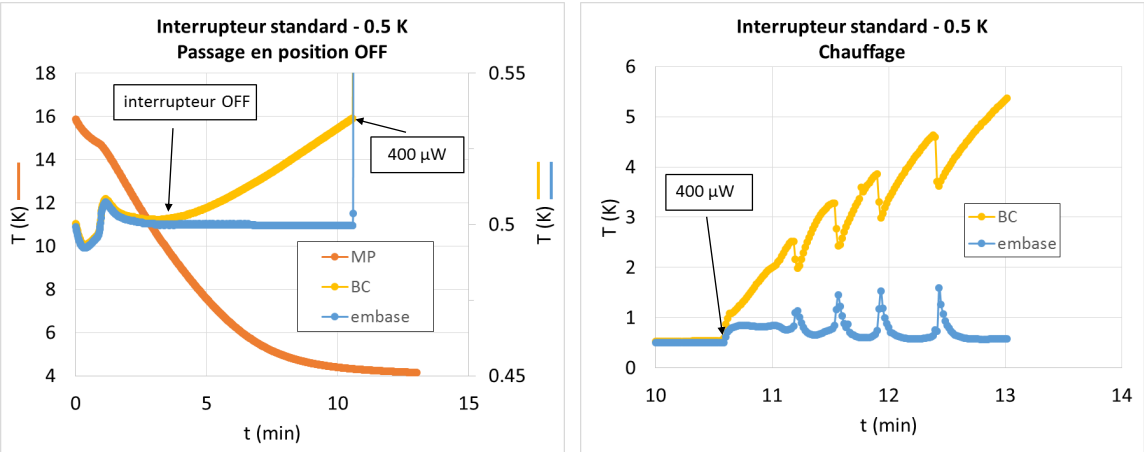


FIGURE 4.20 – Chauffage du bout chaud de l'interrupteur. Puissance de chauffage : 400 µW

Ces deux essais montrent des régimes de fonctionnement très différents du même in-

terrupteur thermique dans des conditions expérimentales similaires. Notamment, la seule différence entre ces cas est la puissance appliquée. Nous nous intéressons dans la suite à déterminer les facteurs qui affectent l'apparition et la dynamique des courts-circuits thermiques.

Afin de pouvoir comparer les différentes courbes pendant la phase de réchauffement, l'échelle temporelle peut être remplacée par un paramètre intrinsèque du système. Un diagramme (T_{embase}, T_{BC}) est le choix naturel et présente certains avantages par rapport à la représentation temporelle. D'abord, les courbes d'un interrupteur en position complètement OFF sont représentées par des droites (*i.e.* T_{BC} augmente continuellement tandis que T_{embase} est quasi constante, ce qui facilite l'identification des oscillations de faible intensité. En fait, T_{embase} remonte en température doucement à cause de la puissance limitée de la source froide ainsi que du lien thermique entre l'embase et cette source. Ensuite, ce diagramme permet de mettre en évidence la température d'apparition des oscillations ainsi que leur amplitude. Finalement, cela facilite la comparaison de la performance des interrupteurs sous différentes conditions expérimentales. Le résultat du changement des coordonnées est affiché sur la figure 4.21.

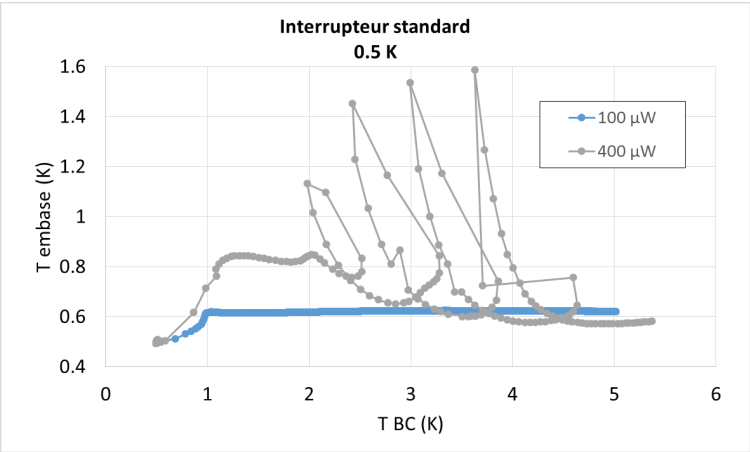


FIGURE 4.21 – Diagramme (T_{embase}, T_{BC}) d'un interrupteur en cas d'absence (100 µW et de présence (400 µW) de courts-circuits thermiques transitoires.

4.6 Étude expérimentale des oscillations thermiques

4.6.1 Température des extrémités en phase ON

Dans ces expériences, nous avons étudié l'effet de la température des extrémités de l'interrupteur sur l'apparition des courts-circuits thermiques parasites. La figure 4.22 résume les configurations utilisées.

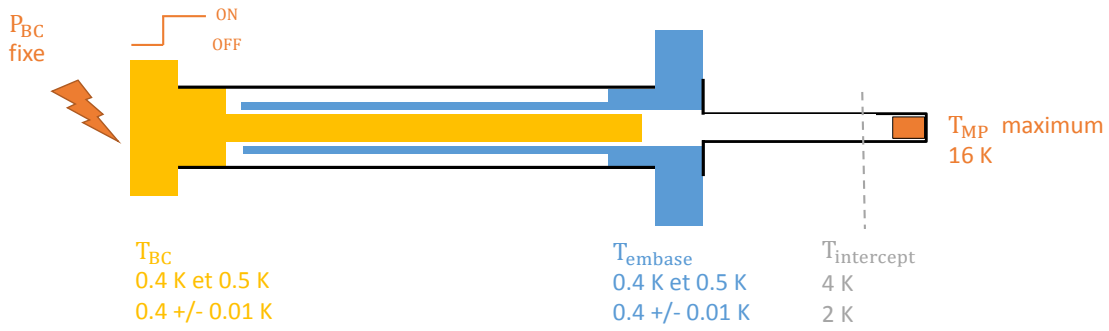


FIGURE 4.22 – Paramètres de l'expérience.

La figure 4.23 montre le diagramme (T_{embase}, T_{BC}) pour les essais réalisés à 0.4 K et 0.5 K pour les deux types d'interrupteur. Nous constatons, sur les deux interrupteurs, une forte atténuation des oscillations à 0.5 K par rapport à celles présentes à 0.4 K.

L'augmentation de la température des extrémités en phase ON a pour effet :

1. La réduction de la quantité de gaz adsorbé ;
2. La réduction de la conductance hydraulique des espaces annulaires ;

L'effet 1 favorise la disparition des courts-circuits thermiques transitoires tandis que le 2, l'inverse. Nos résultats expérimentaux montrent que l'effet 1 est plus important.

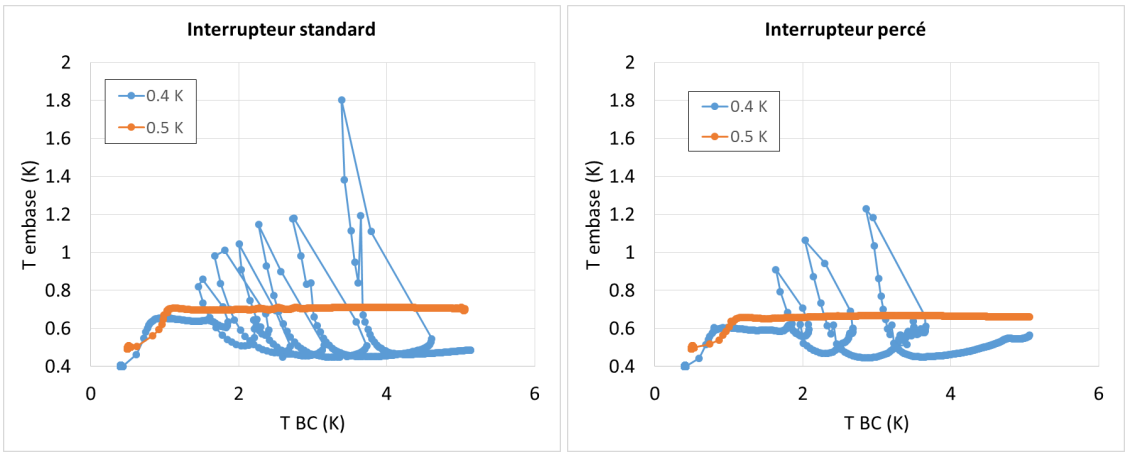


FIGURE 4.23 – Diagrammes T_{embase} x T_{BC}. Tube de pompage de ϕ 2.5 mm. $P_{BC} = 200$ µW. $T_{intercept} = 4$ K.

Les essais réalisés à 0.4 K montrent que l'interrupteur percé est plus performant que l'interrupteur standard pour limiter l'intensité et la fréquence des oscillations thermiques. La seule différence importante entre ces interrupteurs est leur conductance hydraulique. Ainsi, la meilleur performance de l'interrupteur percé est attribuée à sa conductance hydraulique plus importante.

Encore sur la figure 4.23, nous observons qu'une différence de 100 mK aux extrémités en phase ON provoque le changement du régime des oscillations. Il reste cependant à comprendre pourquoi les oscillations thermiques apparaissent si tardivement par rapport à T_{BC}. Pour les essais réalisés à 0.4 K par exemple elles apparaissent lorsque T_{BC} est autour de 1.8 K.

Des mesures ont été faites autour de 0.4 K sur l'interrupteur standard afin de vérifier la sensibilité de l'apparition des liens thermiques temporaires à la variation de la température d'échange. La figure 4.24 montre les résultats des essais réalisés à 0.39 K, 0.4 K et 0.41 K, lesquels sont étonnants. Un changement brusque du régime d'oscillation est observé lorsque la température du bout chaud s'approche de 1.8 K : on constate la présence d'une forte oscillation à 0.39 K de forme spirale, des faibles oscillations en forme de vague à 0.4 K jusqu'à leur disparition à 0.41 K. Les raisons générant ce type de comportement restent encore à élucider.

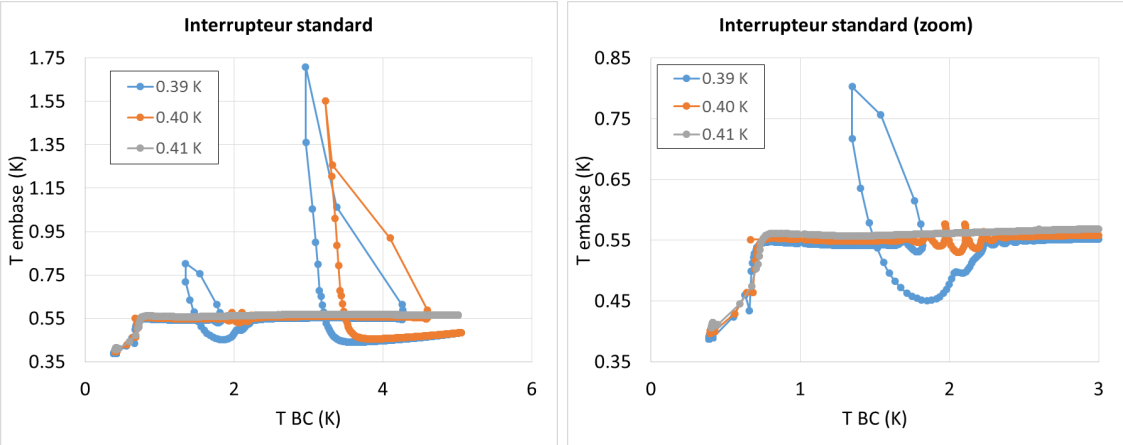


FIGURE 4.24 – Diagramme (T_{embase}, T_{BC}) de l'interrupteur standard. Tube de pompage de ϕ 2.5 mm. P_{BC} = 100 µW. $T_{intercept}$ = 2 K.

4.6.2 Vitesse de montée en température

Dans ces expériences, nous avons mesuré l'effet de la vitesse de montée en température du bout chaud de l'interrupteur sur l'apparition des courts-circuits thermiques.

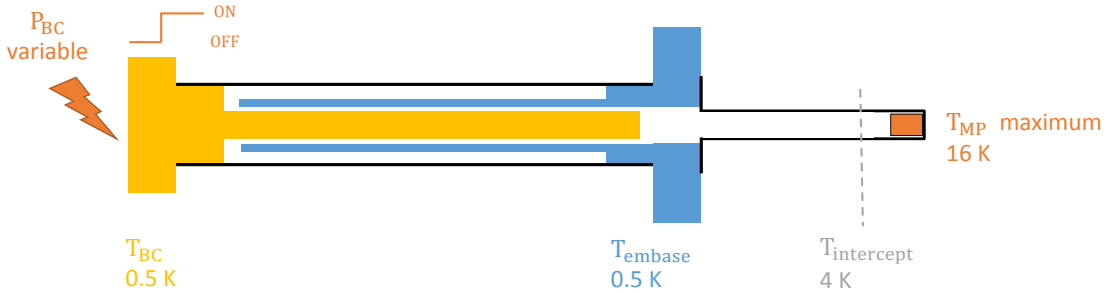


FIGURE 4.25 – Paramètres de l'expérience.

Les conditions expérimentales de température sont affichées sur la figure 4.25. En position OFF, la vitesse de montée en température du bout chaud est imposée par la puissance de chauffage utilisé (P_{BC}). Un essai préliminaire permet de déterminer le rapport entre les puissances appliquées sur chaque interrupteur afin d'avoir la même vitesse de montée en température du bout chaud. Nous avons trouvé qu'en absence de forts courts-circuits thermiques, cela est obtenu avec $P_{BC}^{percé} = 0.8P_{BC}^{standard}$. Cette différence pourrait être expliquée par de faibles variations sur la conductance des interrupteurs (tolérances sur l'épaisseur du tube, conduction des brasures, ...). Ainsi, on doit appliquer 80 µW sur le bout chaud de l'interrupteur percé pour avoir une vitesse de montée en température similaire à celle obtenue par l'application de 100 µW sur le bout chaud de l'interrupteur standard. Afin de simplifier la comparaison des deux interrupteurs thermiques, nous adoptons la notation $\sim$ 100 µW pour indiquer $P_{BC}^{percé} = 80$ µW.

À cause des résultats décrits dans la section 4.6.1, nous nous sommes éloigné de la zone de température sensible autour de 0.4 K. Les essais réalisés à 0.5 K pour différentes puissances de chauffage sont rapportés sur la figure 4.26. Pour les deux interrupteurs, nous remarquons un changement du régime des oscillations au fur et à mesure que cette puissance augmente. Les oscillations sont cependant bien moins intenses dans l'interrupteur percé. Cet effet est mis en évidence dans le cas à 400 µW, dans lequel l'amplitude maximum des oscillations est de seulement 0.08 K dans l'interrupteur percé contre 1 K dans le standard.

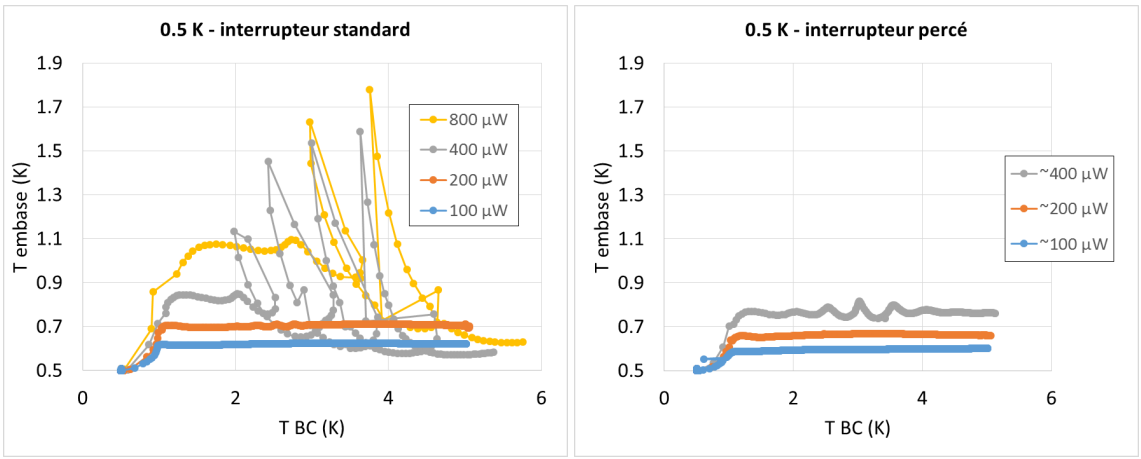


FIGURE 4.26 – Diagramme (T_{embase}, T_{BC}) des interrupteurs avec un tube de pompage de ϕ 2.5 mm.

Les oscillations de température sont créées par une augmentation de la pression interne dans l'espace annulaire due à la désorption de l'^{3}He. L'amplitude d'une oscillation est liée à l'intensité du court-circuit thermique créé. Le fait que l'amplitude des oscillations augmente en fonction de la vitesse de montée en température du bout chaud montre que la quantité de gaz désorbé est sensible à la vitesse de montée en température des surfaces

adsorbantes.

4.6.3 Température de l'intercept du tube de pompage

Dans ces expériences, nous avons mesuré l'effet de la température de l'intercept sur les courts-circuits thermiques transitoires. La figure 4.27 résume les configurations utilisées.

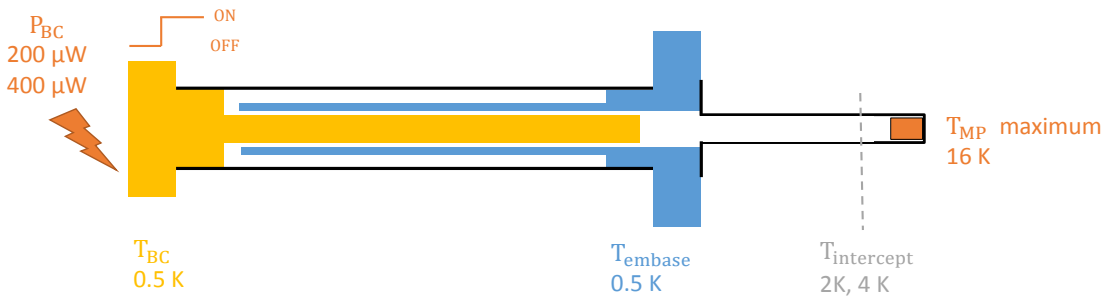


FIGURE 4.27 – Paramètres de l'expérience.

L'effet de la température de l'intercept est mis en évidence sur la figure 4.28, où les diagrammes (T_{embase}, T_{BC}) de l'interrupteur percé sont représentés pour un essai réalisé à 0.5 K. Une augmentation de cette température de 2 K à 4 K a créé des forts courts-circuits thermiques. Cela est expliqué par le fait que la conductance hydraulique du tube de pompage, tant en régime moléculaire qu'en régime visqueux, diminue lorsque la température augmente.

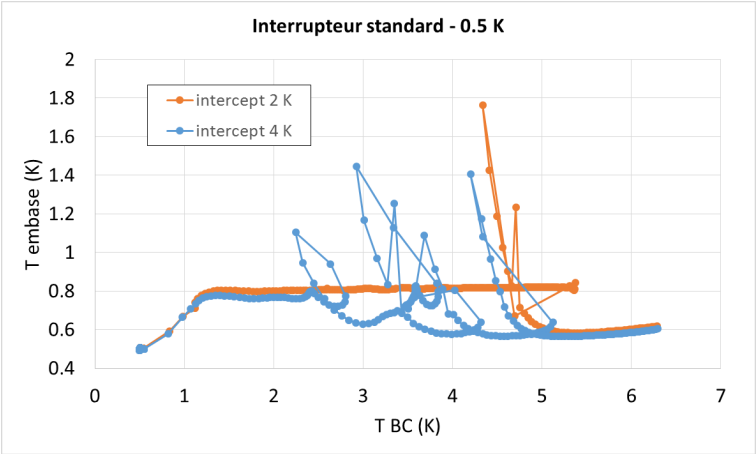


FIGURE 4.28 – Diagrammes T_{embase} x T_{BC}. Tube de pompage de ϕ 3 mm. P_{BC} = 400 µW.

4.6.4 Température maximum de la mini-pompe

Cette expérience a pour objectif de vérifier si l'historique de pression de l'interrupteur pendant la phase ON peut affecter les courts-circuits thermiques transitoires quand le bout chaud de l'interrupteur, déjà en position OFF, est réchauffé.

Les conditions expérimentales utilisées dans ces mesures sont affichées sur la figure 4.29 : en phase ON, la MP a été contrôlée à T_{MP}^{max} pendant 15 min, avec T_{MP}^{max} variant de 12 K à 25 K.

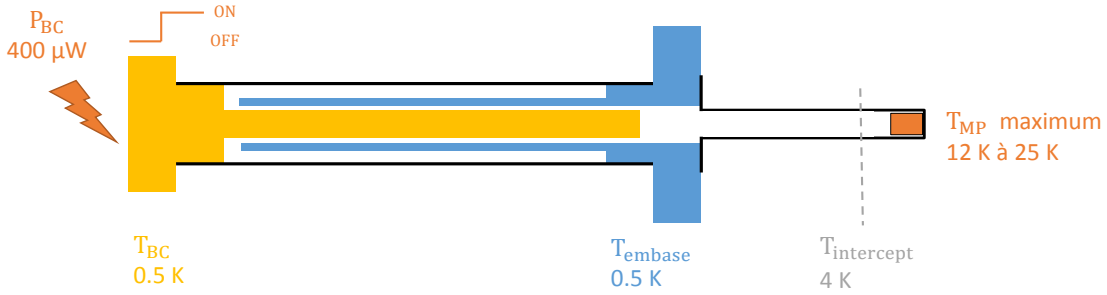


FIGURE 4.29 – Paramètres de l'expérience.

La figure 4.30.montre les résultats des expériences faites à 0.5 K avec un tube pompage de 3.0 mm. La température de la maximum de la MP (T_{MP}^{max}) n'a quasiment aucun effet visible sur les résultats. On peut en déduire qu'au premier ordre, la pression de gaz dans le corps de l'interrupteur pendant la phase ON n'a pas d'impact sur les problèmes de désorption. Aussi, cet essai montre que ce n'est pas en jouant sur ce paramètre, qui a pourtant un effet important pour éviter la présence de liquide, que l'on pourra éliminer ces problèmes d'oscillation.

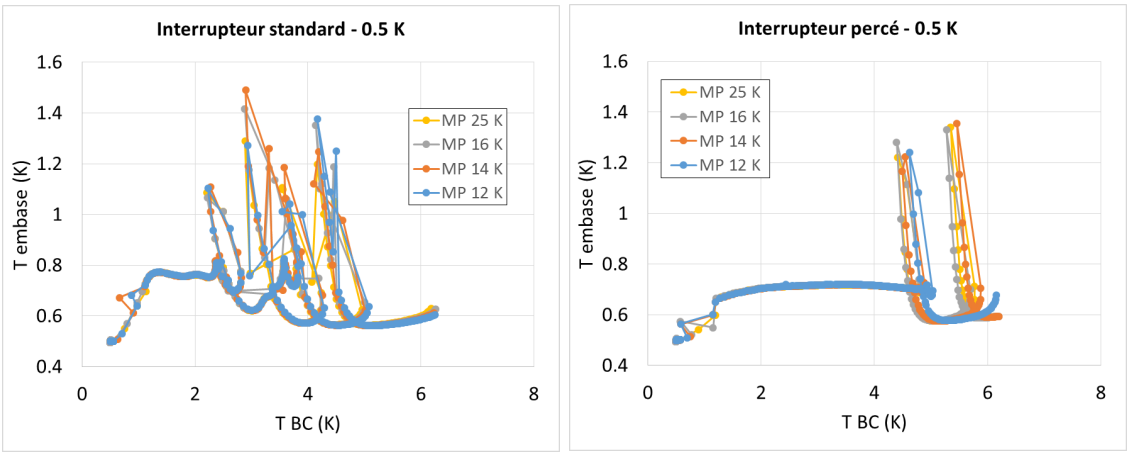


FIGURE 4.30 – Diagrammes T_{embase} x T_{BC}. Tube de pompage de ϕ 3 mm. P_{BC} = 400 µW. Intercept à 4 K.

4.6.5 Conclusions

Ces expériences, réalisées en absence de liquide, nous ont permis d'une part de mettre en avance le rôle de la désorption de gaz par les parois métalliques de l'interrupteur dans la dégradation de son isolation thermique en position OFF lorsqu'une de ses extrémités est chauffée. D'autre part, nous avons déterminé les paramètres dont dépendent l'apparition et l'intensité des courts-circuits thermiques engendrés par la désorption :

1. Température des extrémités en phase ON : plus la température est basse (et notamment critique vers 0.4 K), plus les oscillations sont importantes ;
2. Vitesse de montée en température : plus la vitesse est élevée, plus les oscillations sont importantes ;
3. Température de l'intercept : plus sa température est haute et plus les oscillations sont fortes ;
4. Température maximum de la MP : très peu d'impact sur les oscillations observées ;

Nous avons surtout pu montrer que l'ajout d'orifices de pompage dans l'espace annulaire évite l'apparition des oscillations thermiques parasites dans de nombreuses conditions. Même dans les cas où ces oscillations se produisent quand même elle sont largement atténuées. La conductance hydraulique dans l'interrupteur est un facteur clef.

4.7 Expériences en conditions isothermes

En conditions nominales de fonctionnement du cryoréfrigérateur ADR, la phase de montée en température du bout chaud est suivie d'une phase isotherme. Cette section est dédiée à l'étude de l'isolation thermique de l'interrupteur pendant cette phase.

Les extrémités de l'interrupteur sont thermiquement mieux découplées à la suite d'une forte connexion thermique. Ceci est observé sur la figure 4.31 : la température de l'embase redescend à des niveaux de plus en plus bas après les connexions thermiques. Cette observation expérimentale, couplée à la connaissance du phénomène à son origine, la désorption d'^{3}He, nous font anticiper qu'un comportement semblable de découplage thermique aura lieu lorsque le bout chaud est maintenu à température constante après être réchauffé.

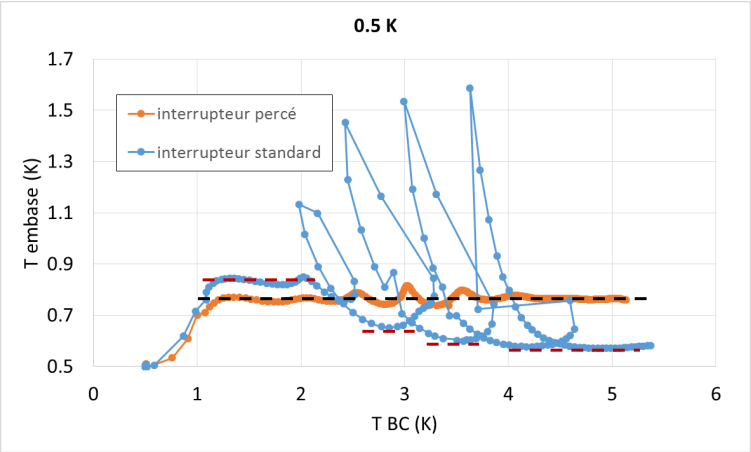


FIGURE 4.31 – Diagramme (T_{embase}, T_{BC}). Tube de pompage de ϕ 2.5 mm.

4.7.1 Procédure expérimentale

La procédure expérimentale utilisée dans les expériences en conditions isothermes est décrite ici. Elle est identique à la procédure présentée dans la section 4.5.2, à part son étape supplémentaire, l'étape 6 :

1. Condition de départ : $T_{MP} < 4$ K, température des extrémités de l'interrupteur d'environ 0.3 K ;
2. Maintien de la MP à T_{max}^{MP} (position ON) durant 15 minutes ; en parallèle : maintien de l'embase de l'interrupteur à T_{embase}^{c} avec un algorithme PID ;
3. Coupure du chauffage et refroidissement de la MP ;
4. Désactivation du contrôle PID de la température de l'embase lorsque $T_{MP} < T_{OFF}$. Le chauffage de l'embase est remplacé par une valeur constante donnée par la moyenne temporelle du chauffage avant la désactivation du PID ;
5. Application d'une puissance de chauffage P_{BC} constante sur le bout chaud de l'interrupteur jusqu'à $T_{BC} = T_{consigne}$;
6. Ensuite, le bout chaud est maintenu à $T_{consigne}$ par un algorithme PID.

4.7.2 Résultats expérimentaux

La figure 4.32 montre les conditions expérimentales utilisées.

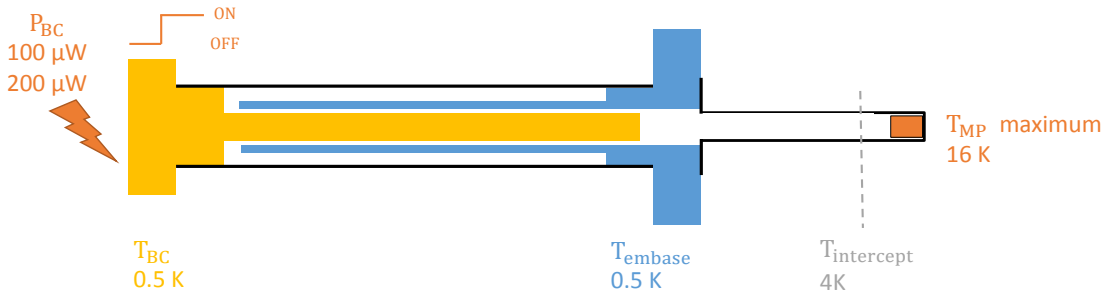
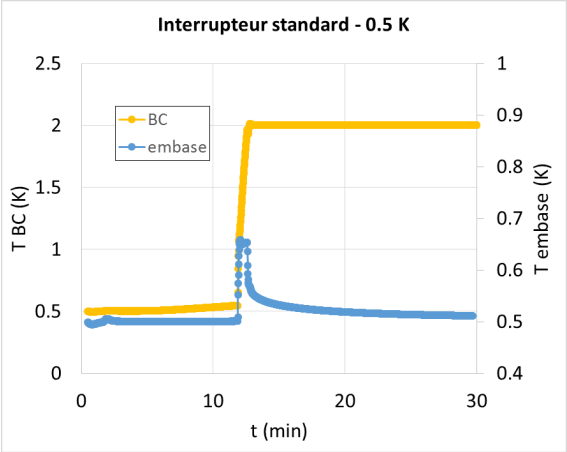


FIGURE 4.32 – Paramètres de l'expérience.

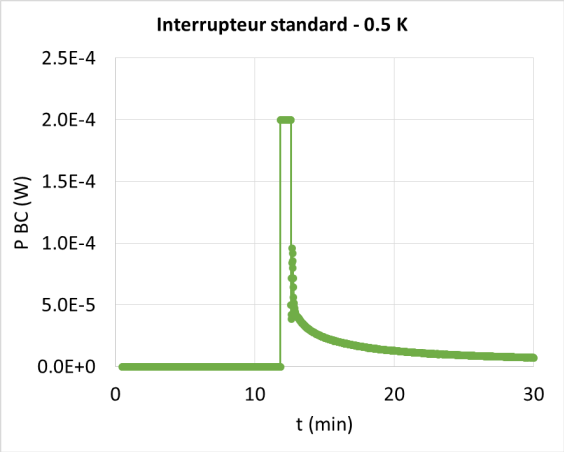
Les mesures réalisées à 0.5 K sont affichées sur les figures 4.33 et 4.34 pour les deux interrupteur, standard et percé. Comme précisé dans la section 4.6.2, la relation $P_{BC}^{percé} = 0.8\ P_{BC}^{standard}$ est utilisée pour assurer la même vitesse de montée en température aux deux types d'interrupteur. Pendant l'étape isotherme, le bout chaud est maintenu à 2 K.

Nous remarquons que la température d'équilibre de l'embase de l'interrupteur est significativement différente entre l'étape de montée en température et l'étape isotherme. Quand T_{BC} atteint la consigne à 2 K, il y a une phase de stabilisation de P_{BC} d'environ

30 s, suivie de la réduction progressive et importante de cette puissance de 50 µW à une valeur d'équilibre de $4-5$ µW. Un comportement semblable est retrouvé dans le cas de l'interrupteur percé.

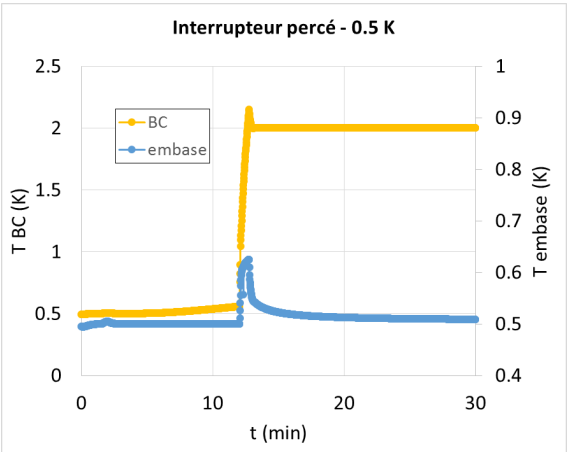


(a) Profil de température de l'embase et du bout chaud de l'interrupteur thermique standard.

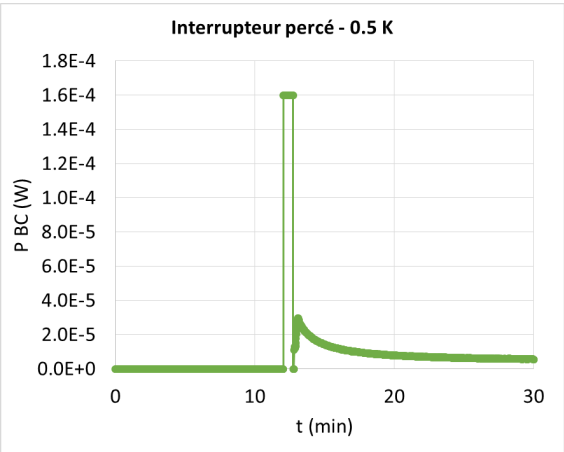


(b) Évolution de la puissance appliquée sur le bout chaud.

FIGURE 4.33 – Expérience avec phase isotherme. $P_{BC} = 200$ µW pendant de montée en température.Tube de pompage de ϕ 3 mm.



(a) Profil de température de l'embase et du bout chaud de l'interrupteur thermique percé.



(b) Évolution de la puissance appliquée sur le bout chaud.

FIGURE 4.34 – Expérience avec phase isotherme. $P_{BC} = \sim 200$ µW pendant de montée en température.Tube de pompage de ϕ 3 mm.

Un calcul prenant en compte les températures d'équilibre des extrémités de l'interrupteur permet d'estimer les pertes à travers l'enveloppe $P_{enveloppe} \simeq 4.5$ µW. Ainsi, $P_{BC} \rightarrow P_{enveloppe}$ pendant la phase isotherme.

Dans l'étape isotherme : T_{BC} constant $\Rightarrow P_{OFF} + P_{BC} = 0$, où P_{OFF} sont les pertes totales de l'interrupteur. $P_{OFF} = P_{enveloppe} + P_{gaz}$, ce dernier terme correspond aux pertes

parasites dues à la pression résiduelle du gaz désorbé dans l'espace annulaire. Comme $P_{enveloppe}$ est constant, $\Delta P_{BC} = \Delta P_{gaz}$. La réduction des P_{OFF} d'environ un ordre de grandeur pendant l'étape isotherme est ainsi attribuée à la baisse progressive de la pression résiduelle dans l'espace annulaire due au piégeage de gaz par la MP.

Dans la suite de cette section, nous regardons l'influence de la vitesse de montée en température du bout chaud dans l'espace annulaire sur l'évolution de P_{BC} dans les phases isothermes.

4.7.2.1 Vitesse de montée en température

Les conditions expérimentales des essais sont rappelées sur la figure 4.35.

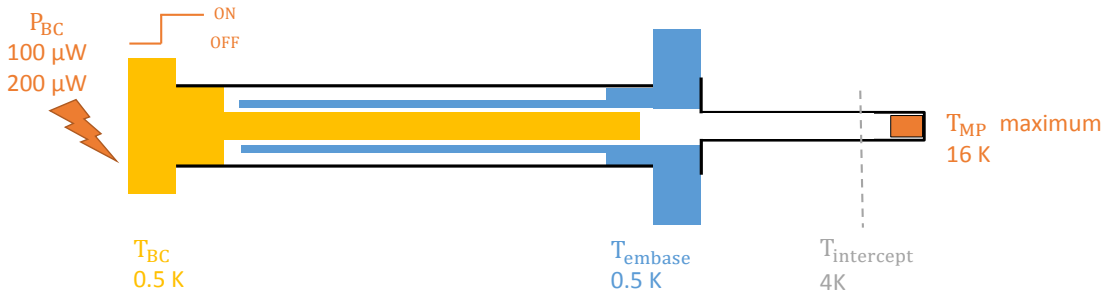
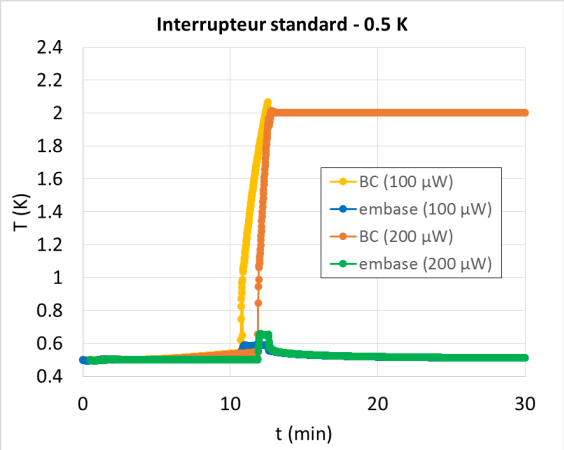
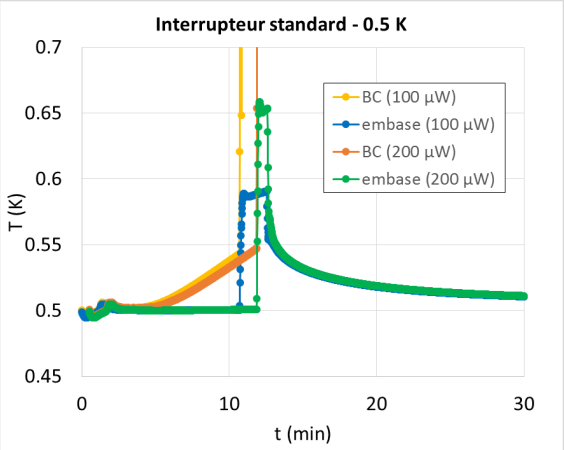


FIGURE 4.35 – Paramètres de l'expérience.

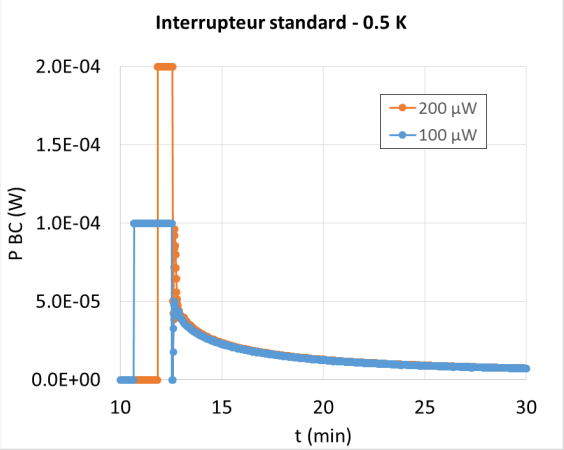
Les figures 4.36 et 4.37 montrent les profils de température et de P_{BC} pour les essais réalisés avec les interrupteurs standard et percé pour deux vitesses de réchauffement du bout chaud. Dans l'étape isotherme de l'interrupteur standard, le profil de température de l'embase pour les différentes vitesses de chauffage sont quasi identiques, la seule différence étant due au fait que l'embase initialement réchauffée à 200 µW se refroidit à partir d'une température de départ plus haute que celle réchauffée à 100 µW. Le même comportement est retrouvé dans le cas des profils de P_{BC} en fonction des différentes vitesses de réchauffement. Le comportement de l'interrupteur percé face au changement de la puissance de chauffage est semblable à celui de l'interrupteur standard.



(a)

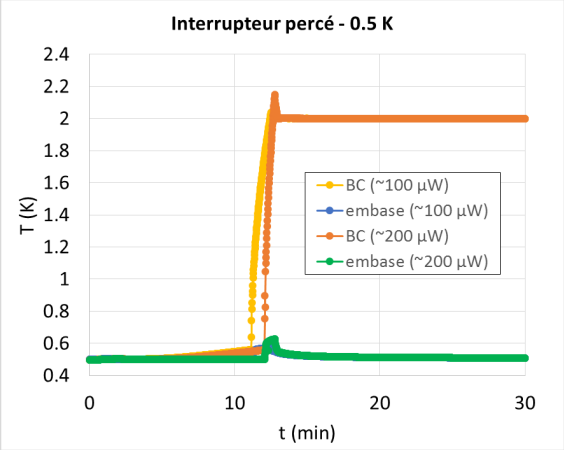


(b)

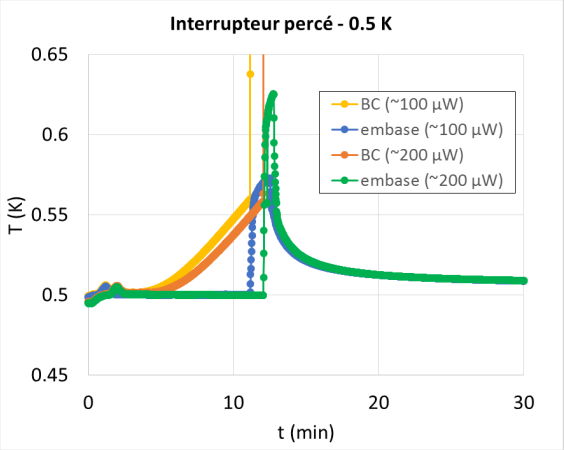


(c)

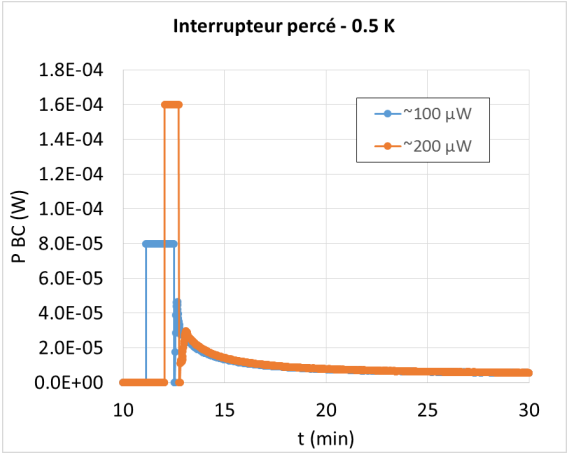
FIGURE 4.36 – Comparaison des profils de température et de puissance pour différentes vitesses de monté en température du bout chaud.



(a)



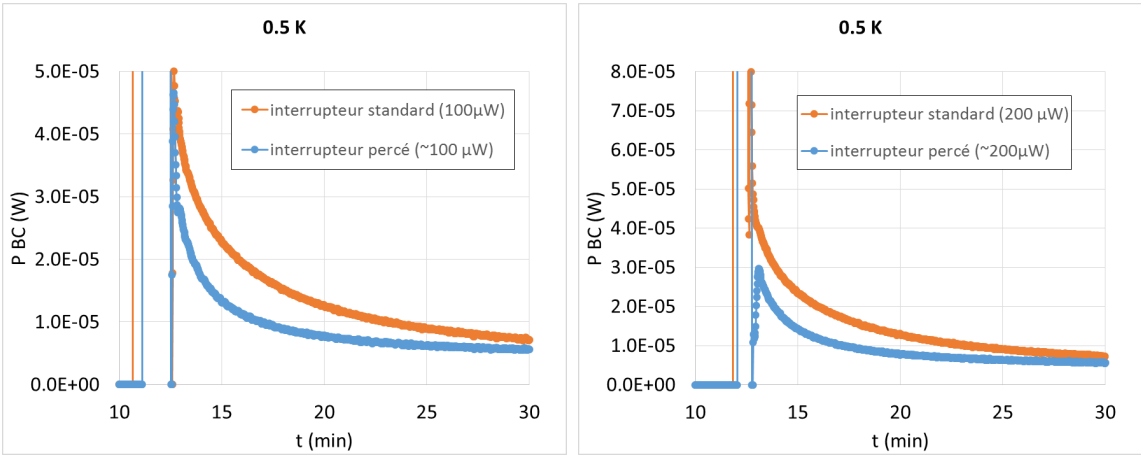
(b)



(c)

FIGURE 4.37 – Comparaison des profils de température et de puissance pour différentes vitesses de monté en température du bout chaud.

Les essais présentés ci-dessus permettent aussi de comparer la performance des interrupteurs standard et percé dans les mêmes conditions expérimentales. La figure 4.38 montre une comparaison entre l'évolution de P_{BC} des interrupteurs pour différentes vitesses de chauffage. Pour les deux vitesses de chauffage utilisées, P_{BC} est entre 40 % et 50 % moins importante dans le cas de l'interrupteur percé que dans le cas de l'interrupteur standard au début de l'étape isotherme. Cette meilleure performance est attribuée à un pompage plus efficace du gaz désorbé du au perçage de l'espace annulaire.



(a) (b)

FIGURE 4.38 – Évolution de P_{BC} dans l'étape de contrôle isotherme du bout chaud à 2 K.

4.7.2.2 Énergie due aux pertes parasites

L'énergie transférée due aux pertes (E_{pertes}) entre les extrémités chaque interrupteur thermique peut être calculée à partir de l'intégrale des courbes de la figure 4.38. $E_{désorp} = E_{pertes} - E_{enveloppe}$ est l'excès d'énergie transférée à cause de la désorption. Elle

est représentée sur la figure 4.39. $E_{enveloppe} = P_{enveloppe}\Delta t$, avec $P_{enveloppe} = 4.35\ \mu W$ (conduction entre 4 K - 0.5 K).

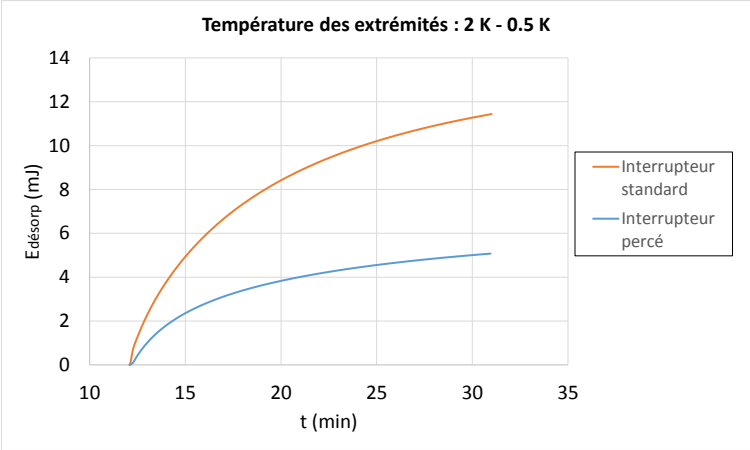


FIGURE 4.39 – Énergie transférée entre les extrémités des interrupteurs thermiques due à la désorption. Les mesures sont basées sur les données de la figure 4.38.

La durée de la phase isotherme est environ 19 min. Dans cet intervalle, $E_{enveloppe} = 5$ mJ. L'énergie due à la désorption est $E_{désorp}^{standard} = 14.4$ mJ et $E_{désorp}^{percé} = 5.1$ mJ. Les pertes par désorption sont 2.8 fois plus faibles dans le cas de l'interrupteur percé par rapport au standard.

Pour conclure, les mesures réalisées dans cette section ont permis d'identifier et de quantifier la réduction des pertes parasites de nos interrupteurs thermiques due à la désorption de gaz en phase OFF. Les pertes thermiques dues à cette désorption sont bien moins importantes dans le cas de l'interrupteur percé que de celui standard. En considérant qu'un étage ADR soumis aux conditions thermiques réalisées dans cette section dispose d'une énergie totale de l'ordre de 500 mJ pour une autonomie de 24 h (chapitre 5), l'impact des pertes en position OFF est limité à moins de 5 % de cette énergie. Ces pertes supplémentaires deviennent cependant beaucoup plus importantes dans le cas d'une ADR dont le fonctionnement est continu pour lesquels la durée des cycles est plus courte, de l'ordre d'un ordre de grandeur.

4.8 Conclusions

Notre banc expérimental nous a permis de mettre en évidence les facteurs clefs associés aux phénomènes transitoires qui ont lieu lorsqu'un interrupteur thermique passe de la position ON à OFF. Deux phénomènes majeurs ont été distingués, la condensation de liquide et la désorption de gaz par les parois internes. La présence de liquide peut être évitée avec le contrôle de la quantité de gaz désorbé par la mini-pompe en position ON.

Nous avons étudié en détails les effets dus à la désorption. Bien qu'elle soit toujours présente dans les conditions décrites dans la section 4.2.2, son effet nuisible peut être réduit.

Nous avons vérifié que la présence et l'intensité des courts-circuits thermiques dépendent de la température des extrémités de l'interrupteur en phase ON, de la vitesse de montée en température d'une de ces extrémités, de la température de l'intercept du tube de pompage. Les court-circuits sont peu affectés par température maximum de la mini-pompe.

Nous avons montré que l'introduction d'orifices de pompage améliore grandement les problèmes associés aux oscillations thermiques transitoires. Avec ces orifices, leur intensité et fréquence sont sont significativement moins importantes.

Chapitre 5

Étude et dimensionnement du prototype 4 K - 50 mK

Dans ce chapitre, nous nous appuyons sur les travaux réalisés dans les chapitres précédents sur les matériaux paramagnétiques et les interrupteurs thermiques pour concevoir un prototype de cryoréfrigérateur ADR.

Ce prototype doit être capable de répondre aux besoins de réfrigération des futures missions spatiales. La température et les puissances froides sont disponibles de façon intermittente due au recyclage du système. Le temps de recyclage doit être minimisé afin d'augmenter le temps utile d'observation des instruments. L'objectif est d'avoir un système de masse optimisée capable de fournir une température de 50 mK à partir d'une source chaude à 4 K. La puissance et l'autonomie du système sont du même ordre que les spécifications des instruments SPICA/SAFARI et ATHENA/X-IFU (0.5 µW à 50 mK pendant 24 h). L'objectif est de limiter la masse du système à 10 kg environ. Le système doit aussi fournir une puissance froide à une température intermédiaire nécessaire au refroidissement des harnais des instruments.

Dans ce chapitre, nous exposons les paramètres clés pour le dimensionnement des éléments de base d'une ADR. Ensuite, nous présentons la configuration du système multi-étagé proposé ainsi que la problématique et le choix du mode de fonctionnement. Après, nous exposons des outils de simulation pour pré-dimensionner notre système. Finalement, nous présentons le dimensionnement final détaillé du prototype.

5.1 Paramètres clés de chaque élément du système

Cette section est dédiée à la présentation des principes qui guident le dimensionnement d'un étage ADR ainsi que de ses composants élémentaires, à savoir le matériau parama-

gnétique, l'interrupteur thermique et le système magnétique, représentés sur la figure 5.1. Nous présentons aussi les hypothèses simplificatrices qui ont été adoptées afin de simuler le comportement magnéto-thermique de ces éléments.

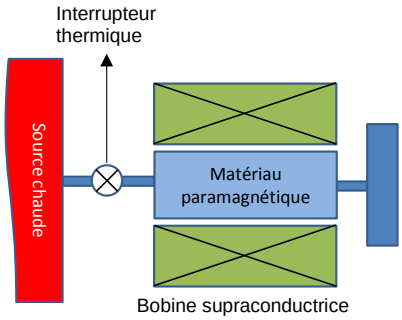


FIGURE 5.1 – Schéma d'un étage ADR.

5.1.1 Principes du dimensionnement d'un étage

Un étage est dimensionné selon ses températures de fonctionnement chaude et froide, le matériau paramagnétique employé et la quantité de chaleur totale E_{froid} dont il doit disposer à T_{froid}. Le choix du paramagnétique est directement lié à la gamme de température de travail et a été discuté en détails dans le chapitre 2. E_{froid} est composé de l'énergie apportée par les pertes thermiques et de l'énergie utile. Elle est donnée par :

$$E_{froid} = (P_{utile} + \Sigma P_{pertes})\Delta t_{froid} + E_{autres} \tag{5.1}$$

Où Δt_{froid} est l'autonomie de l'ADR, aussi appelé temps à froid. $P_{utile} = E_{utile}/\Delta t_{froid}$, où P_{utile} est la puissance utile à T_{froid}. Les pertes thermiques correspondent principalement aux charges apportées par les supports de la capsule et par l'interrupteur thermique. E_{autres} correspond à l'énergie associée à d'autres contraintes ou spécifications (e.g. les besoins de la phase de recyclage).

Le dimensionnement consiste à déterminer le champ magnétique maximum utilisé et le volume de paramagnétique. Pour une énergie froide donnée, plus le champ magnétique est élevée moins le volume de paramagnétique est important. Il existe un optimum de ces quantités qui permet de limiter la masse totale du système comme on le verra dans la section 5.3.

5.1.2 Composés paramagnétiques

Le comportement magnétocalorique des matériaux est calculé à partir du modèle des ions libres avec champ interne. C'est le modèle principal du chapitre 2, dont l'expression

permettant le calcul du diagramme d'entropie est rappelée ci-dessous. Les propriétés des paramagnétiques considérés dans ce chapitre sont rappelées dans le tableau 5.1.

$$\frac{\mathrm{S}}{n\mathrm{R}} = \ln\left\{\frac{\sinh\left[(\mathrm{J}+1/2)x\right]}{\sinh\left(x/2\right)}\right\} - x\left[(\mathrm{J}+1/2)\coth\left[(\mathrm{J}+1/2)\,x\right] - \frac{1}{2}\coth(x/2)\right] \tag{5.2}$$

$$x = \frac{g\mu_\mathrm{B}\left(\mathrm{B}^2+\mathrm{B}_\mathrm{int}^2\right)^{1/2}}{k_\mathrm{B}\mathrm{T}}$$

Dans le cas du GGG et du CPA, le modèle des ions libres est ajusté sur des mesures d'énergie disponible réalisées au SBT.

Matériau	J	g	B_int (T)	Références
CPA	3/2	2		Hagmann, Benford, and Richards (1994)
DGG	1/2	8	0.16	Filippi *et al.* (1977), chapitre 2
GGG	7/2	2	0.48	Shirron *et al.* (2000)
YbGG	1/2	3.43	0.17	Filippi *et al.* (1980b), chapitre 2
GLF	7/2	2	0.38	Shirron (2014)

Table 5.1 – Propriétés des matériaux magnétocaloriques.

5.1.3 Interrupteurs thermiques

L'interrupteur à gaz d'échange présenté en détails dans le chapitre 4 est celui qui intègrera notre prototype. Il a les dimensions des interrupteurs du type Herschel, qui assurent des performances en position ON et OFF compatibles avec les besoins de notre prototype. Le schéma de cet interrupteur thermique est rappelé sur la figure 5.2.

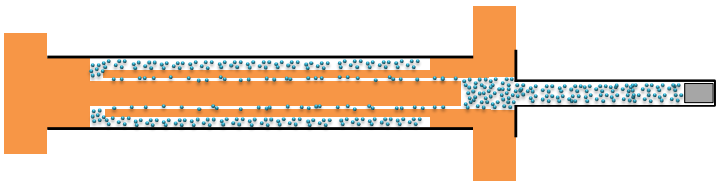


Figure 5.2 – Schéma d'un interrupteur thermique à gaz d'échange.

Les phénomènes transitoires discutés dans le chapitre 4 ne sont pas considérés dans nos simulations car leur impact sur l'énergie totale des étages est limité à 5 %. Seuls les états ON et OFF le sont. On s'intéresse à la conductance parasite en position OFF afin de déterminer les pertes parasites ainsi qu'à la conductance en position ON pour déterminer les temps de recyclage de l'ADR.

5.1.4 Systèmes magnétiques

Dans cette section, nous décrivons plus en détails le système magnétique. Il est constitué d'une bobine supraconductrice et d'un écrantage ferromagnétique. Un schéma d'un système magnétique est affiché sur la figure 5.3. La bobine est constituée d'un fil en NbTi bobiné sur le mandrin. Elle est équipée d'un système de protection en cas de quench, fondé sur un système de diodes et de résistances, pour éviter sa destruction. Le système de suspentes affiché sur la figure 5.3 tient mécaniquement la capsule. Ce système sert également à isoler la capsule du système magnétique.

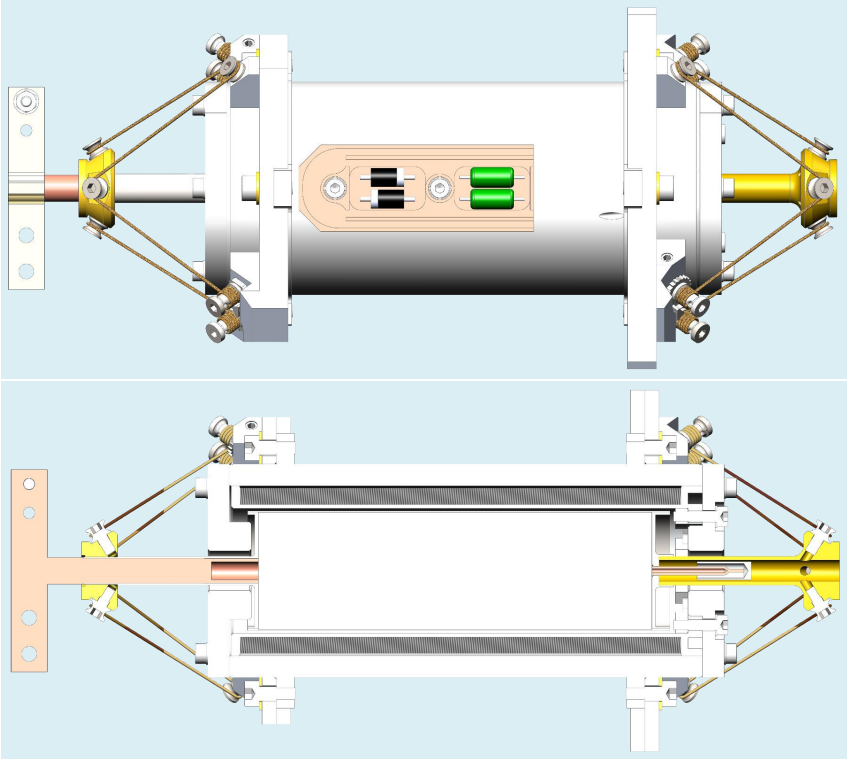


FIGURE 5.3 – Schéma du système magnétique. La capsule et son système de suspension sont aussi représentés.

5.1.4.1 Contraintes d'écrantage

Les contraintes d'écrantage sont différentes pour la phase froide et la phase de recyclage de l'ADR. Pendant la phase froide, le champ magnétique sur les détecteurs doit être limité à quelques µT pour garantir leur sensibilité. Pendant le recyclage, les détecteurs sont inactifs et la contrainte d'écrantage est relâchée à quelques mT. Bien que les contraintes d'écrantage soient plus strictes pendant la phase froide, les champs magnétiques à écranter sont significativement plus faibles que pendant la phase de recyclage. En général, et dans notre cas en spécifique, ce sont les contraintes d'écrantage pendant le recyclage qui déterminent la taille des écrans.

Dans ce travail, les écrans ont été dimensionnés pour assurer un champ résiduel inférieur à 1 mT à une distance de 10 cm par rapport à l'axe de la bobine lorsque son courant (champ) est maximum. Ce sont les mêmes contraintes adoptées pour les instruments ATHENA/X-IFU et SPICA/SAFARI.

5.1.4.2 Modélisation magnétique

L'objectif de ce modèle est d'avoir un moyen d'estimer la masse des systèmes magnétiques sans avoir besoin de passer par les logiciels de simulation par éléments finis. La figure 5.4 montre le système magnétique simplifié. Les hypothèses du modèle sont :

— Le champ est homogène au cœur de la bobine et sa valeur est celle d'un solénoïde infini : $B = \mu_0 NI$, $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$ T · m/A est la perméabilité magnétique du vide, N le nombre de tours par longueur de bobine et I le courant d'alimentation ;

— L'ensemble du champ écranté est canalisé dans l'écran ferromagnétique ;

— Le champ magnétique dans l'écran est homogène et égal à la valeur à saturation (à un facteur 1.3 déterminé par des simulations éléments finis) ;

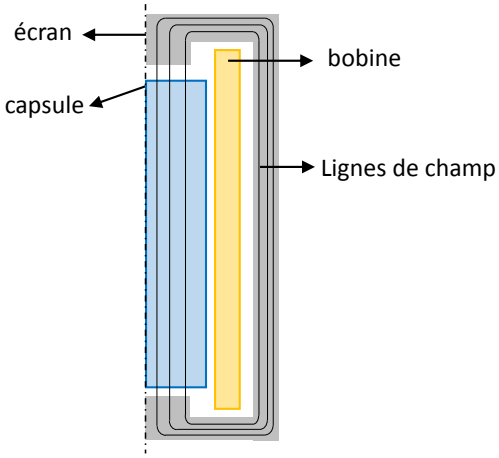


FIGURE 5.4 – Modèle simplifié du système magnétique.

On utilise les caractéristiques géométriques suivantes pour définir les dimensions de la bobine, lesquelles dépendent des dimensions de la capsule. Le système magnétique est conçu d'une part pour satisfaire à la meilleur homogénéité du champ sur la capsule et à la réduction de la masse totale.

— $L_{bobine} = (L + D)_{capsule}$.

— $(L/D)_{capsule} \geqslant 2.5$.

On note que l'on peut réécrire le champ au cœur du solénoïde à partir de l'épaisseur du bobinage e, du diamètre des fils d et de la densité de courant J (A/m^2) en supposant que les fils sont rangés de façon que leur centre forme une grille carrée :

$$B = \mu_0 \frac{e}{d^2} I \text{ ou } B = \mu_0 e J \tag{5.3}$$

Avec $J=I/d^2$ la densité moyenne de courant.

Ce modèle permet d'estimer la section du bobinage et d'écran nécessaire. Il nous permet de calculer des systèmes magnétiques à environ 20 % en excès d'un calcul par éléments finis. Notons que la principale source d'incertitude est la courbe d'aimantation du matériau de l'écran, mal connue à basse température.

5.1.4.3 Densité de courant maximum

Le choix du courant maximum et du diamètre de fil doit se faire en prenant en compte plusieurs contraintes. Tout d'abord, l'intensité du courant maximum est restreinte afin de limiter les pertes thermiques le long des amenées de courant par effet Joule et conduction. Dans les cas de SPICA et de ATHENA, le courant nominal est limité à 2 ampères.

Le diamètre du fil choisi est de 100 µm, ce qui amène à une densité moyenne de courant de 200 MA/m^2. Ce diamètre est suffisamment grand pour la maitrise du processus de bobinage. Il permet aussi d'avoir une densité de courant inférieure à la valeur critique afin d'éviter que des transitions soudaines de l'état supraconducteur à l'état normal perturbent l'environnement thermique. À 3 T par exemple, la densité moyenne de courant est environ 60 % à la valeur critique.

5.2 Étude du système complet

Cette section est dédiée à la présentation de la configuration du système multi-étagé proposé et de son fonctionnement. Nous introduisons les possibilités de recyclage en fonction de deux conditions de départ diamétralement opposées, le départ à froid (cycle de base) et le départ à chaud (cycle initial), ainsi que l'impact du choix du mode de recyclage sur le dimensionnement du système.

Le départ à froid correspond à la configuration du système à la fin d'une phase froide : les étages sont à leur respective T_{froid} à champ nul. Le départ à chaud correspond au cycle initial où les étages sont à la température de la source chaude.

Bien qu'un système ADR mono-étagé soit attractif dû à sa simplicité, il n'est pas adapté pour la large gamme de température ciblée (4 K - 50 mK). Cela est dû, d'une part, aux limitations des performances des matériaux paramagnétiques (discuté en détails dans le chapitre 2), et d'autre part aux limitations d'efficacité : les pertes thermiques sur l'étage sont trop importantes par rapport à la puissance utile (les pertes à travers l'enveloppe de l'interrupteur sont de l'ordre de 25 µW entre 4 K et 50 mK contre 0.5 µW

de puissance utile à 50 mK) et aux mauvais rendements thermodynamiques dus aux transferts thermiques réalisés avec des forts gradients thermiques.

5.2.1 Configuration

L'association des étages en série est adoptée car, comme discuté dans le chapitre 1, elle permet, au contraire de la configuration en parallèle, de limiter la gamme de températures des étages. Un schéma de l'arrangement des étages en série est présenté sur la figure 5.5.

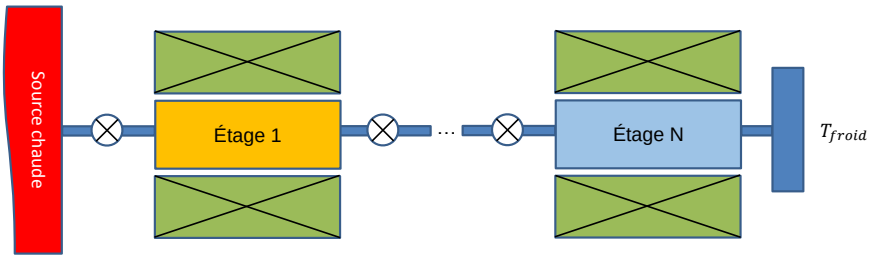


FIGURE 5.5 – Système avec N étages en série.

Le schéma de la figure 5.6 montre comment un système en série arrive à couvrir une gamme de température plus large que celles des étages individuels : l'étage 1 est utilisé comme source thermique pour l'étage 2.

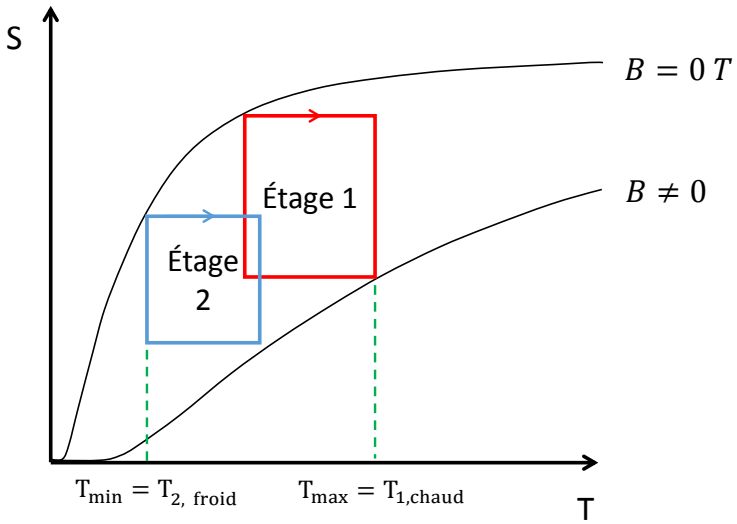


FIGURE 5.6 – Diagramme d'entropie d'un système avec 2 étages en série. Cette configuration permet au système de couvrir une gamme de température plus large que les gammes des étages individuels.

5.2.2 Cycle de base

Le fonctionnement nominal du système consiste en l'enchaînement consécutif d'une phase de recyclage et d'une phase froide. Chaque étage travaille entre ses températures

T_{chaud} et T_{froid}.

5.2.2.1 Cycle à simple recyclage

La procédure de recyclage consiste à ré-aimanter les étages et extraire la chaleur vers la source chaude. La figure 5.7 montre comment cela peut être réalisé pour un cas à deux étages avec un transfert de chaleur en cascade.

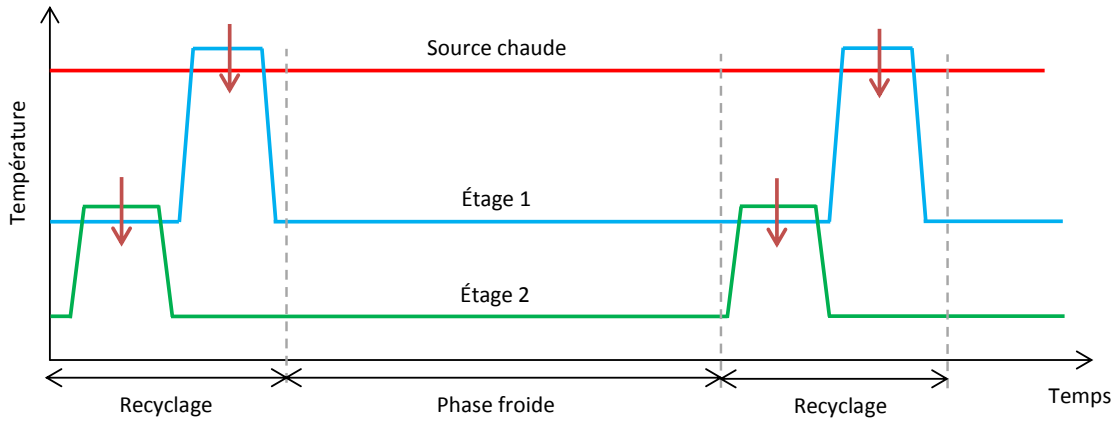


FIGURE 5.7 – Recyclage de deux étages en cascade. L'étage 2 utilise l'étage 1 comme source thermique.

Le besoin d'énergie froide de l'étage 2 est déterminé par l'énergie totale $E_{2,pf}$ qu'il doit absorber pendant la phase froide. Pour l'étage 1, à $E_{1,pf}$ s'ajoute le besoin d'énergie froide correspondant à la chaleur d'aimantation $E_{2,chaud}$ qu'il doit absorber pendant le recyclage de l'étage 2. Ainsi $E_{1,froid} = E_{1,pf} + E_{2,chaud}$. Pour un système avec N étages, cette condition devient :

$$E_{n,froid} = E_{n,pf} + E_{n+1,chaud} \tag{5.4}$$

Comme les transferts de chaleur sont réalisés de manière isotherme (cycle de Carnot), la chaleur d'aimantation et l'énergie froide d'un étage sont liées par le rapport des températures auquelles les transferts sont réalisés :

$$E_{n,chaud} = \frac{T_{n,chaud}}{T_{n,froid}} E_{n,froid} \tag{5.5}$$

5.2.2.2 Cycle à double recyclage

Une modification du cycle schématisé sur la figure 5.7 permet de réduire le besoin d'énergie froide de l'étage 1. Elle consiste à recycler l'étage 1 avant de l'utiliser pour recycler l'étage 2. Cette opération est illustrée sur la figure 5.8. De cette façon, le besoin d'énergie froide de l'étage 1 est la valeur la plus grande entre les énergies $E_{1,pf}$ et $E_{2,chaud}$. Pour un système avec N étages, cela est exprimé par :

$$E_{n,froid} = \max\{E_{n,pf},\ E_{n+1,chaud}\} \tag{5.6}$$

Le coût associé à cette modification est l'augmentation de la durée et de la complexité du recyclage. En contrepartie, la taille du système est réduite.

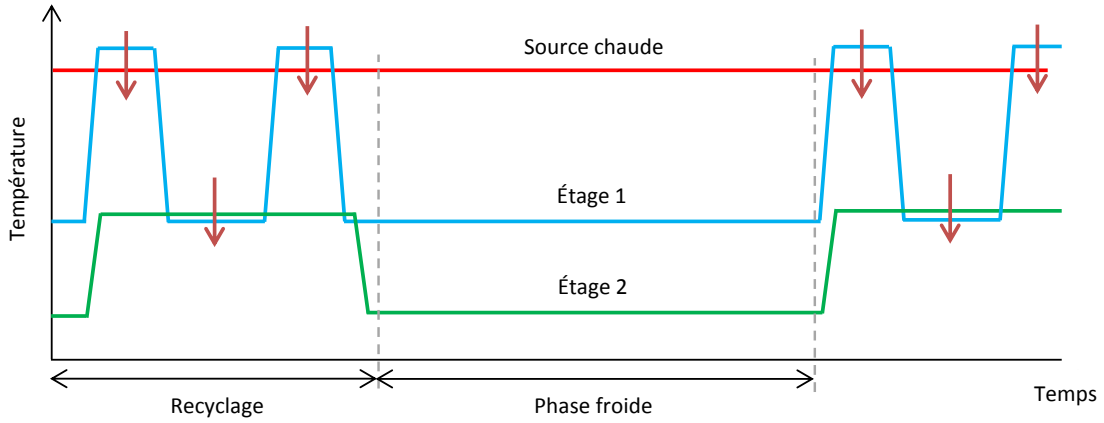


FIGURE 5.8 – Recyclage de deux étages en cascade. L'étage 1 est recyclé deux fois afin de réduire son besoin d'énergie froide par rapport à la solution de la figure 5.7.

5.2.3 Cycle initial

Lors du premier démarrage du système, les étages sont à la température de la source chaude. Ils sont ainsi à une température plus élevée que leur température chaude nominale, à l'exception de l'étage 1. Cette condition de départ est moins favorable que le départ à froid et rend les contraintes sur le dimensionnement du système plus sévères : soit le système est bien adapté pour ce départ et devient ainsi plus lourd, soit le temps de recyclage augmente ou un mélange de deux conditions est trouvé.

Nous présentons 3 alternatives pour réaliser le recyclage lors du départ à chaud, en partant de la plus simple à réaliser du point de vue opérationnel mais inefficace pour limiter la masse jusqu'à l'alternative qui permet de minimiser la masse aux dépens du temps de recyclage.

5.2.3.1 Démarrage à chaud direct

La première alternative, le démarrage à chaud direct, est affichée sur la figure 5.9. Un système dimensionné pour ce fonctionnement est sur-dimensionné par rapport à un système dimensionné pour le départ à froid. En effet, on retrouve l'un des inconvénients majeurs d'un système mono-étagé car la gamme de température du dernier étage n'est pas réduite par la présence de l'étage 1. Cette solution n'est pas viable pour la large gamme de température ciblée ici.

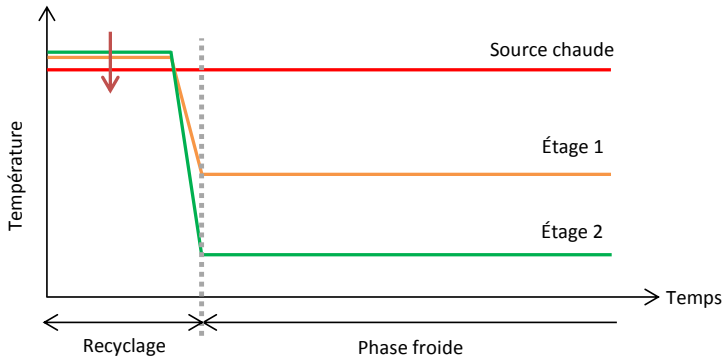


FIGURE 5.9 – Schéma du démarrage à chaud direct. Après la désaimantation indépendante des étages, le système est prêt pour commencer la phase froide.

5.2.3.2 Démarrage à chaud direct avec pré-refroidissement

La procédure de démarrage précédente peut être modifiée afin de limiter la gamme de température de l'étage 2. Pour cela, l'étage 1 est utilisé pour pré-refroidir l'étage 2, comme affiché sur la figure 5.10. Suite au pré-refroidissement, l'étage 2 est désaimanté à sa température froide et la phase froide du réfrigérateur peut commencer.

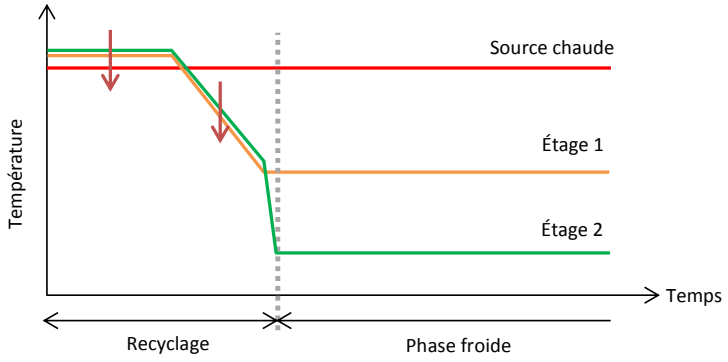


FIGURE 5.10 – Schéma du démarrage à chaud direct avec pré-refroidissement.

Le pré-refroidissement implique à la fois la réduction de taille de l'étage 2 (plage de température réduite) et l'augmentation de taille de l'étage 1. Comme l'étage 1 est plus efficace dans la gamme de température de départ, la masse totale du système est réduite par rapport à la configuration précédente.

Les deux grandes limitations du cas mono-étagé sont résolues avec ce cycle de démarrage : chaque étage travaille dans une gamme de température moins importante que celle du système ; l'étage à plus haute température intercepte et ainsi permet la réduction des pertes de l'étage à plus basse température.

5.2.3.3 Démarrage à chaud avec pré-refroidissement

La taille de l'étage 1 peut être encore réduite s'il est recyclé avant de commencer la phase froide, comme affiché sur la figure 5.11. Son dimensionnement sera ainsi déterminé par l'étape la plus exigeante, le pré-refroidissement de l'étage 2 ou le besoin d'énergie de la phase froide.

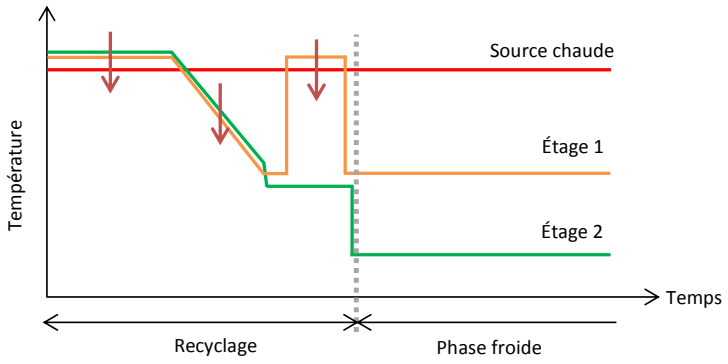


FIGURE 5.11 – Schéma du démarrage à chaud avec pré-refroidissement. L'étage 1 est recyclé après avoir pré-refroidi l'étage 2.

L'étape supplémentaire de recyclage de l'étage 1 implique l'augmentation de la durée du recyclage du système. En contrepartie, la masse globale est allégée.

Il est possible d'imaginer de nombreuses stratégies de démarrage de plus en plus évoluées, conduisant cependant à un temps de recyclage plus long et des réductions de masse de plus en plus petits. Par exemple, l'alternative présentée sur la figure 5.12 permet d'assurer la mise en froid d'un système qui a été dimensionné selon les besoins d'énergie de la phase froide bien que l'étape de pré-refroidissement soit la plus exigeante.

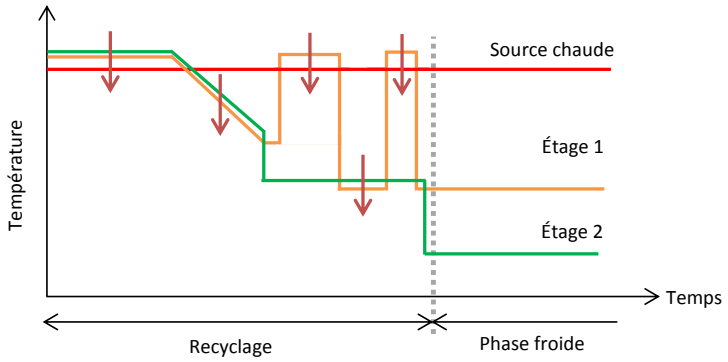


FIGURE 5.12 – Alternative au démarrage à chaud avec pré-refroidissement. L'étage 2 est pré-refroidi par l'étage 1. Un transfert de chaleur en cascade finalise le recyclage du système.

5.2.4 Choix

Le dimensionnement que nous faisons vise à minimiser la masse du système. Il est fait dans le cas optimum du départ à froid avec des procédures de recyclage avancées pour le départ à chaud. Le temps de recyclage n'est pas favorisé par rapport à la masse. Les procédures de recyclage sont celles représentées sur les figures 5.8 et 5.12.

Le nombre important de paramètres à déterminer (listés section 5.3.2) exige un dimensionnement réalisé de façon itérative. Nous avons ainsi développé des outils de simulation afin de pouvoir comparer différentes configurations.

5.3 Pré-dimensionnement

Nous nous appuyons sur les hypothèses présentées dans la section 5.1 pour mettre en œuvre des outils de simulation qui serviront de support au dimensionnement de notre système multi-étagé. Nous présentons d'abord la structure du code pour le calcul d'un étage ADR avec une application numérique. Ensuite, nous montrons comment ce code de base est structuré pour le calcul d'un système ADR multi-étagé. Cet outil nous permettra finalement de comparer plusieurs configurations d'ADR et ainsi de pré-dimensionner notre système.

5.3.1 Calcul d'un étage

5.3.1.1 Calcul de base d'un étage

Le déroulement du calcul pour un étage est schématisé sur la figure 5.13. Les données d'entrée sont le matériau paramagnétique, sa gamme de température de travail ainsi que l'énergie froide dont il doit disposer. Ce calcul permet, pour un champ magnétique B donné, de déterminer la taille du matériau paramagnétique nécessaire ainsi que les dimensions du système magnétique (bobine et écran). Il utilise les expressions de l'entropie et le modèle magnétique analytique des sections 5.1.2 et 5.1.4.

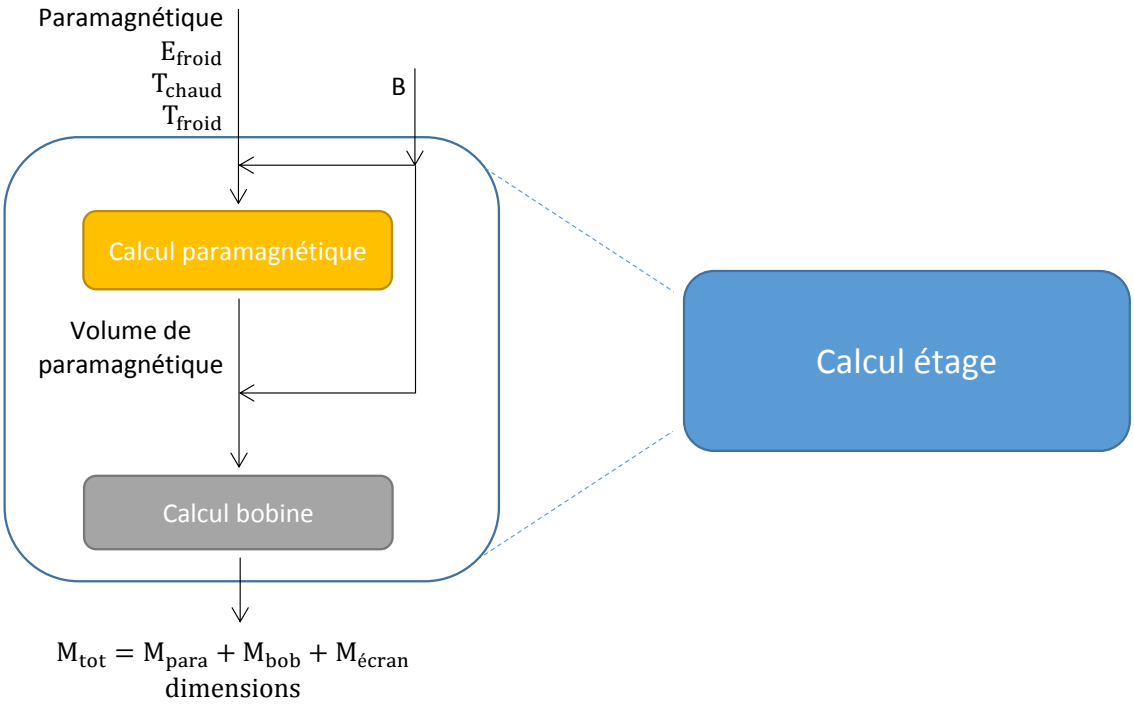


FIGURE 5.13 – Schéma du calcul de base d'un étage ADR détaillé (à gauche) et condensé (à droite).

5.3.1.2 Calcul de l'énergie froide

Le calcul des besoins d'énergie froide est affiché sur la figure 5.14. Les données d'entrée du calcul sont la gamme de température de travail, les pertes P^*_{pertes}, la puissance disponible et la durée Δt_{froid} de la phase froide de l'étage. L'énergie froide est $E_{froid} = P_{froid}\Delta t_{froid}$. P_{froid} est composé par les pertes thermiques et par la puissance utile de l'étage. Les pertes thermiques sont composées par $P_{pertes} = P_{enveloppe} + P^*_{pertes}$. Les pertes dues à l'enveloppe de l'interrupteur thermique sont calculées à partir de la température de la source chaude $T_{source\ chaude} = T_{chaud}$, de laquelle l'étage est isolé, et de sa température froide T_{froid}. $P^*_{pertes} = P_{suspentes} + P_{tube\ de\ pompage} + P_{intercepts}$ est une donnée d'entrée estimée pour chaque étage.

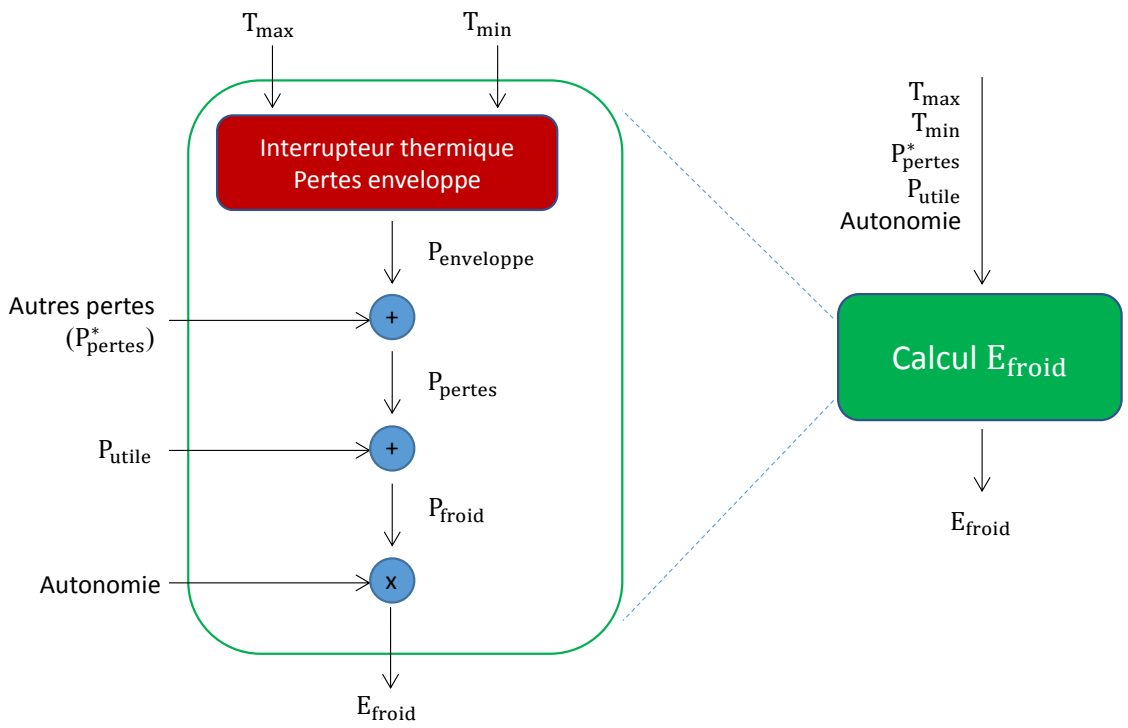


FIGURE 5.14 – Schéma détaillé (à gauche) et condensé (à droite) du calcul de l'énergie froide de l'étage.

5.3.1.3 Calcul d'un étage optimisé

La structure présentée sur la figure 5.15 montre comment le calcul des besoins de E_{froid} est intégré au calcul de l'étage.

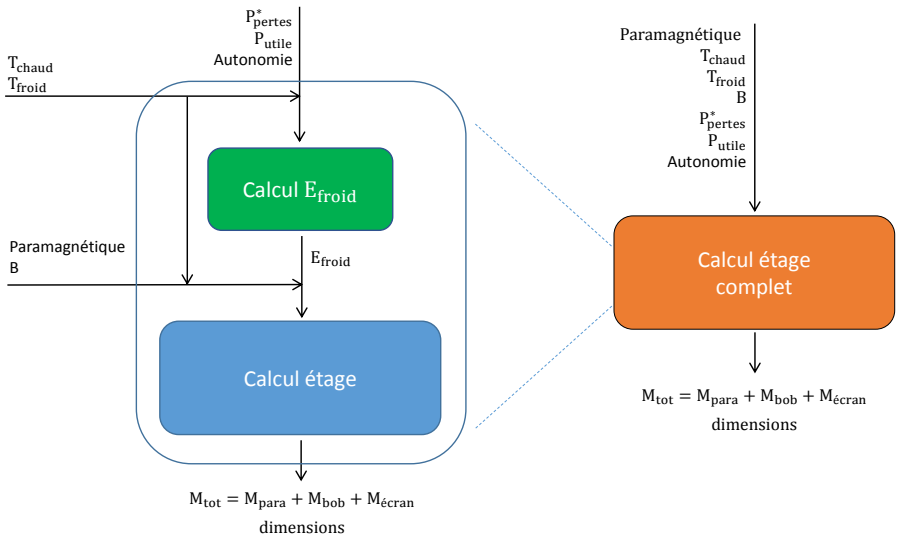


FIGURE 5.15 – Schéma permettant le calcul complet de l'étage.

La figure 5.16 montre l'intégration d'une boucle d'optimisation permettant de déterminer le champ magnétique optimum qui minimise la masse totale de l'étage. Nous avons vérifié que les résultats de l'optimisation dépendent peu de l'algorithme utilisé.

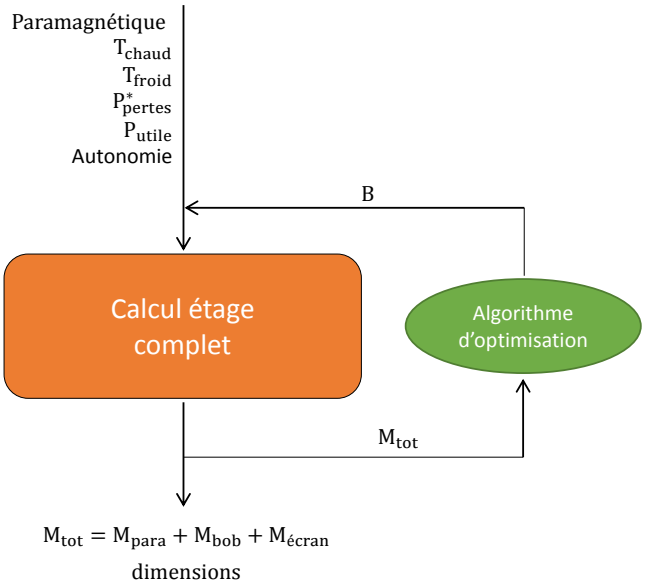


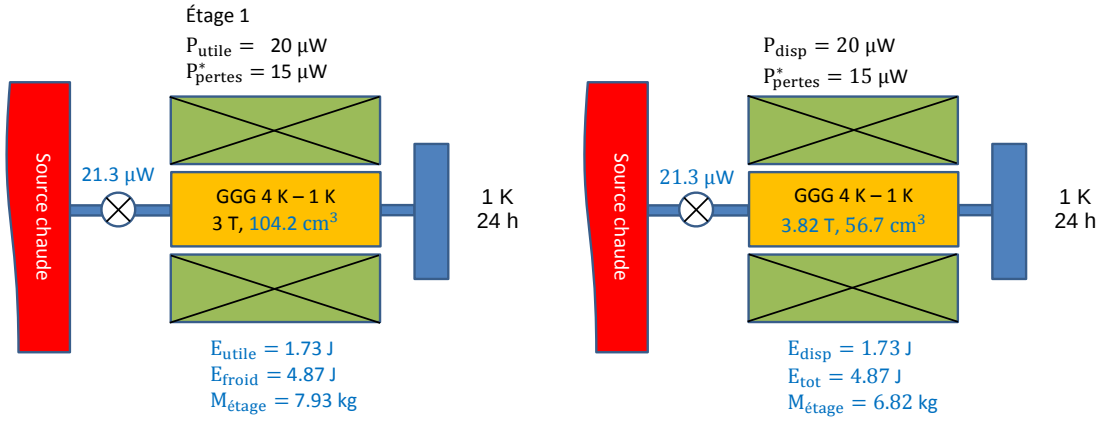
FIGURE 5.16 – Schéma du calcul permettant de déterminer le champ magnétique qui minimise la masse totale de l'étage.

5.3.1.4 Application numérique

Une application numérique du code de calcul présenté dans cette section est affichée sur la figure 5.17. Sur chaque étage il est indiqué sa puissance utile, sa gamme de température de travail, son champ magnétique maximum, le volume de paramagnétique, son énergie disponible et son énergie froide ainsi que sa masse (*i.e.* système magnétique avec capsule). Le flux indiqué sur l'interrupteur correspond aux pertes thermiques en position OFF dues à son enveloppe. Les données d'entrée sont les suivantes :

— Gamme de température : 4 K - 1 K ;
— Matériau paramagnétique : GGG ;
— Puissance disponible à 1 K : 20 µW ;
— Pertes parasites à 1 K : $P^*_{pertes} = 15$ µW ;
— Autonomie ou $\Delta t_{froid} = 24$ h ;

La première itération du calcul de l'étage optimisé est affiché sur la figure 5.17(a), où un champ de départ de 3 T a été utilisé. Dans ce cas, le volume de GGG nécessaire à l'étage est 104.2 cm^3. La masse totale de l'étage est de 7.93 kg, ce qui correspond à 744 g de GGG et 7.19 kg pour le système magnétique. L'étage de masse optimisée - 5.17(b) - utilise 56.7 cm^3 de GGG pour un champ optimum de 3.87 T. Il a une masse totale de 6.82 kg, laquelle est environ 14 % inférieure à celle de la première itération.



(a) Première itération du calcul de l'étage avec un champ de départ de 3 T.

(b) Étage de masse optimisée. Le champ magnétique optimum a été calculé par une méthode d'optimisation déterministe.

FIGURE 5.17 – Résultats de la simulation. Les données en noir correspondent aux données d'entrée et ceux en bleu sont le résultats des calculs.

Pour mettre en évidence l'importance de choisir un matériau bien adapté à la gamme de température de l'étage, nous présentons dans la figure 5.18 le dimensionnement du même étage où le GGG a été remplacé par le CPA. Cela conduit à un étage 4 fois plus lourd.

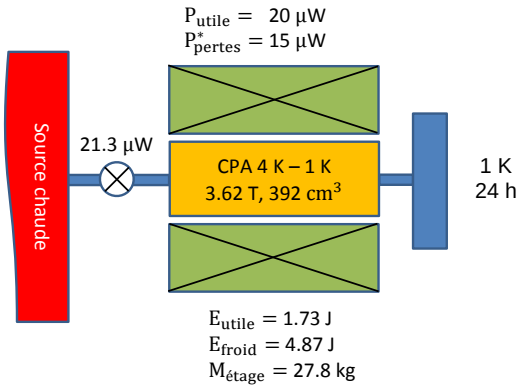


FIGURE 5.18 – Résultat de l'étage optimisé si le CPA est utilisé au lieu du GGG.

5.3.1.5 Estimation de l'erreur

L'erreur commise sur les masses des écrans est quasi-identique pour tous les étages et permet ainsi la comparaison relative des masses. La masse supplémentaire des éléments non considérés dans le calcul, comme les supports mécaniques, les éléments de fixation, l'électronique de contrôle entre autres est proportionnelle au nombre d'étages et permet aussi la comparaison. Nous estimons que l'erreur induite sur le calcul de l'énergie froide des composés est de l'ordre de 20 %.

5.3.2 Calcul d'une ADR multi-étagée

Les schémas numériques permettant le calcul d'un étage ADR complet (figure 5.15) sont rangés comme affiché sur la figure 5.19 pour le calcul d'un système multi-étagé.

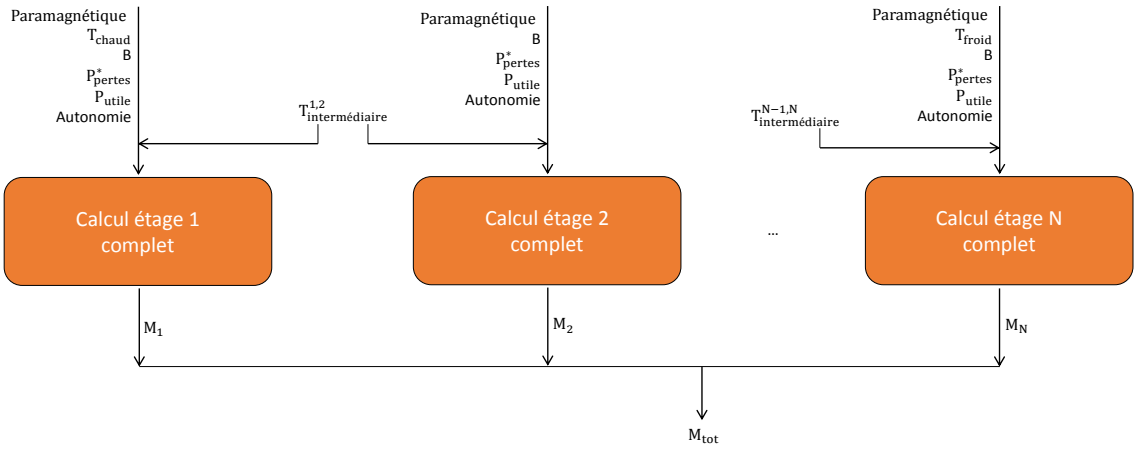


FIGURE 5.19 – Schéma du calcul d'un système ADR multi-étagé. Les températures intermédiaires correspondent à $T^{n,n+1}_{intermédiaire} = T_{n,froid} = T_{n+1,chaud}$.

Un algorithme d'optimisation multivariable est intégré au calcul de base d'un système ADR multi-étagé. Cela permet de déterminer les températures intermédiaires de travail et les champs magnétiques qui minimisent la masse totale du système. Le schéma de ce calcul est présenté sur la figure 5.20.

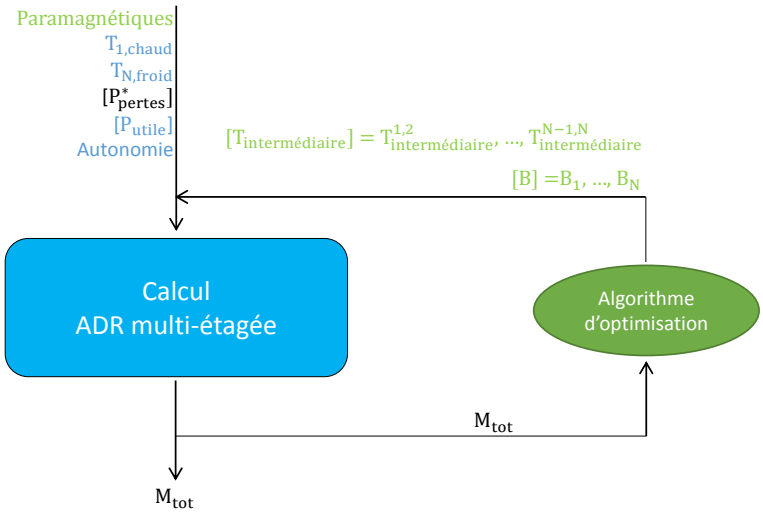


FIGURE 5.20 – Schéma d'optimisation des températures intermédiaires et des champs magnétiques afin de minimiser la masse totale du système.

5.3.3 Optimisation du nombre d'étages

Nous utilisons les composés paramagnétiques classiques GGG et CPA dans cette étude. Comme précisé dans la section 5.1.2, cela permet d'être plus précis sur la comparaison

des masses car leur modèle a été ajusté par des mesures réalisées dans notre laboratoire.

Le résultat du dimensionnement pour 2, 3 et 4 étages est affiché sur les figures 5.21, 5.22 et 5.23. Bien que le calcul des pertes P^*_{pertes} indiquées sur ces figures se soit pas détaillé ici, elles ont été calculées comme décrit dans la section 5.4.

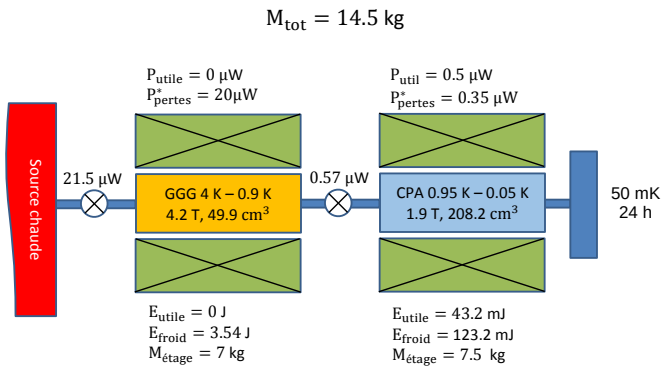


FIGURE 5.21 – Dimensionnement pour 2 étages.

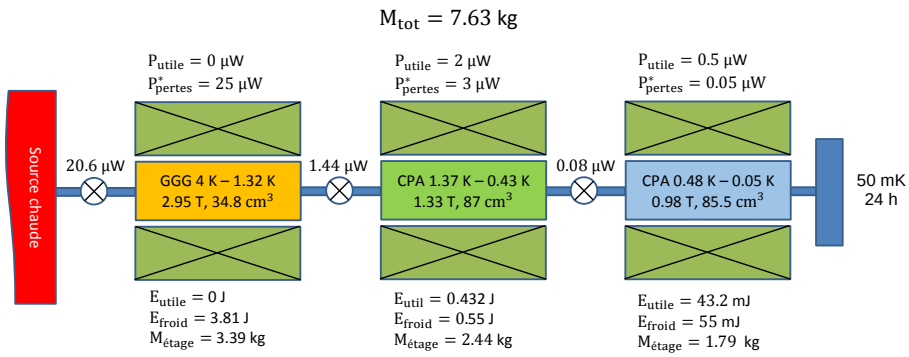


FIGURE 5.22 – Dimensionnement pour 3 étages.

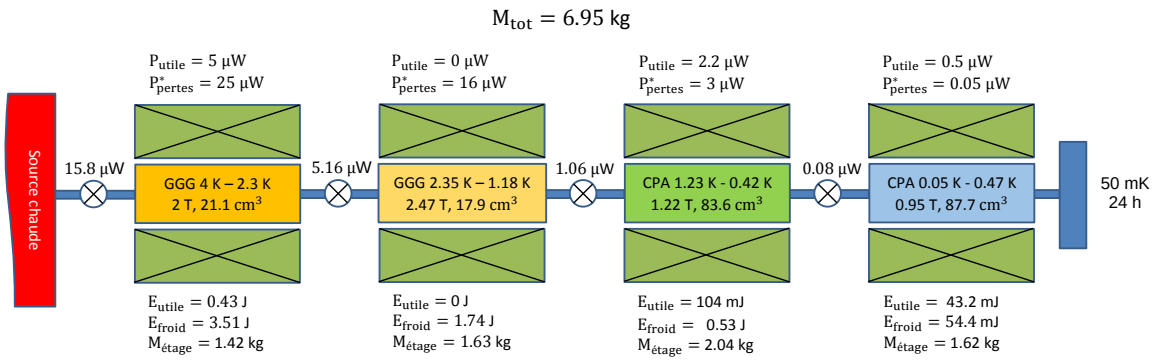


FIGURE 5.23 – Dimensionnement pour 4 étages.

Un grand changement de masse est observé lorsque le nombre d'étage augmente de 2 à 3. M_{tot} tombe de 14.5 kg à 7.6 kg, ce qui équivaut à une réduction de 50 % environ.

Cela est lié à la réduction du rapport de température de travail des étages, principalement celui de l'étage 50 mK. La configuration à 3 étages permet de réduire par 7 les pertes qui arrivent sur l'étage le plus froid grâce à la réduction du gradient thermique sur son interrupteur.

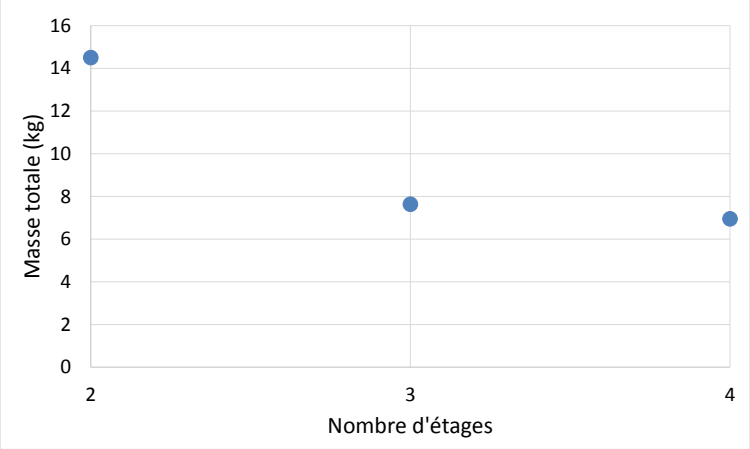


FIGURE 5.24 – Masse totale du système en fonction du nombre d'étages.

Le changement de masse est bien moins important lorsque le nombre d'étages monte de 3 à 4, comme affiché sur la figure 5.24. La configuration avec 4 étages est environ 9 % plus légère que celle avec 3, la différence de masse étant de 0.7 kg. Cette variation devient marginale lorsque la masse des éléments non considérés dans ce calcul sont tenues en compte, comme la masse des supports mécaniques et des éléments de fixation.

Nous avons sélectionné une configuration avec 3 étages pour notre prototype. L'ajout des étages augmente la complexité du système, du point de vue de la gestion d'un plus grand nombre de composants et de l'électronique de contrôle. Néanmoins, l'utilisation d'une configuration avec 4 étages peut devenir avantageuse dans le cas où de plus fortes puissances sont demandées dans les étages intermédiaires ou en cas de besoin d'une plus grande flexibilité quant au fonctionnement.

5.3.4 Influence des composés

Nous avons refait le même calcul présenté dans la section précédente (5.3.3) afin d'estimer l'impact de l'utilisation de différents matériaux. Les résultats sont affichés sur le tableau 5.2.

Configuration	Étage 1	Étage 2	Étage 3	Masse totale
1	GGG	CPA	CPA	7.5 kg
2	GLF	CPA	CPA	6.3 kg
3	ErLF	CPA	CPA	6.0 kg
4	GGG	YbGG	CPA	5.6 kg
5	GLF	YbGG/GLF	CPA	4.8 kg
6	ErLF	YbGG	CPA	4.7 kg
7	ErLF	ErLF	CPA	4.2 kg

Table 5.2 – Masse de l'ADR à trois étages en fonction des matériaux paramagnétiques.

Nous remarquons que le changement du composé paramagnétique de l'étage 1 (GGG, GLF ou ErLF) a un impact sur la masse totale du système entre 15 et 20 % lorsque le GGG est remplacé par le GLF ou par le ErLF.

Le remplacement du CPA de l'étage 2 par le YbGG engendre une réduction de M_{tot} qui varie entre 20 et 25 %.

Une réduction de la masse totale du système de 45 % est trouvée entre la configuration la plus lourde, la 1, et la plus légère, la 7.

Le choix des matériaux paramagnétiques permettant de minimiser la masse, selon le tableau 5.2, se porterait sur le ErLF et le CPA. Le ErLF a cependant besoin d'être caractérisé expérimentalement afin de confirmer son potentiel. Le GLF pour l'étage 1 et le YbGG pour l'étage 2 ont déjà été caractérisés expérimentalement (Numazawa *et al.*, 2006, chapitre 3) mais ne sont pas encore disponibles dans les quantités requises. Pour cette raison, nous avons choisi de dimensionner notre prototype avec les matériaux classiques GGG et CPA.

5.4 Dimensionnement du prototype

5.4.1 Configuration

Notre prototype ADR a été en principe dimensionné pour fournir une puissance utile de 0.5 µW à 50 mK à partir d'une source thermique à 4 K pendant 24 h. Le résultat de ce dimensionnement est affiché sur le tableau 5.3.

	Étage 1 - GGG	Étage 2 - CPA	Étage 3 - CPA
Résultat optimisé	2.8 T, 35 cm^3 4 K - 1.55 K P_{utile} = 15 µW	1.5 T, 90 cm^3 1.6 K - 0.5 K P_{utile} = 1.2 µW	1.1 T, 87 cm^3 0.55 K - 0.05 K P_{utile} = 0.45 µW
Réalisé	3 T, 70 cm^3 4 K - 1.2 K P_{utile} = 20 µW	1.1 T, 90 cm^3 1.25 K - 0.4 K P_{utile} = 2 µW	1.1 T, 90 cm^3 0.45 K - 0.05 K P_{utile} = 0.5 µW
Commentaires	Volume plus grand pour permettre caractérisation future d'une capsule de ErLF	Adapté modèle de bobine SAFARI	

Table 5.3 – Détails du dimensionnement.

Par rapport à ce premier dimensionnement, nous proposons deux modifications en plus pour des questions pratiques (tableau 5.3). D'une part, le champ et le volume interne du système magnétique du premier étage doit être compatible avec l'utilisation d'autres matériaux tels que le ErLF. D'autre part, on remarque que la taille des étages 2 et 3 est similaire et d'autant plus proche de celle que l'on utilise au SBT dans le cryoréfrigérateur hybride modèle SAFARI (Duband, Duval, and Luchier, 2014) : des bobines de 1.1 T de volume interne d'environ 90 cm^3. On choisit ainsi d'utiliser 2 fois le même étage. Cette uniformisation des étages 2 et 3 vise aussi à simplifier le dimensionnement, la fabrication et le montage du prototype.

Les prévisions de performance du tableau 5.3 correspondent aux résultats de l'outil de calcul présenté dans la section 5.3. Compte-tenu de ses limitations, nous nous attendons à des performances mesurées moins bonnes, de l'ordre de 20 %. Notre objectif reste cependant d'avoir une autonomie de 24 h. Pour l'assurer, nous avons de la marge quant au champ maximum appliqué par les systèmes magnétiques. La puissance utile est aussi un paramètre qui pourra être modifié. Bien que l'ordre de grandeur de P_{util} des trois étages soit compatible avec les besoins des missions, leur valeur exacte n'est pas encore définie.

La masse totale par étage est affichée sur le tableau 5.4. Elle inclut la masse du système magnétique ainsi que la capsule. La masse totale du prototype est aussi affichée, laquelle inclue tous les éléments présentés dans la section 5.4.3.

Étage 1	Étages 2 et 3	Totale (avec structure)
5.16 kg	2 x 2.40 kg	11.55 kg

Table 5.4 – Masse du prototype réalisé.

5.4.2 Recyclage

Nous avons simulé le recyclage de notre prototype pour les deux conditions de départ présentées dans les sections 5.2.2 et 5.2.3, c'est-à-dire, le départ à chaud et le départ à froid. La procédure de recyclage ainsi que l'estimation de sa durée sont affichés sur les figures 5.25 et 5.26. Le *duty cycle* du cycle de base (départ à froid) est estimé à 89 %. L'énergie à transférer à la source chaude pendant le recyclage est 20 J.

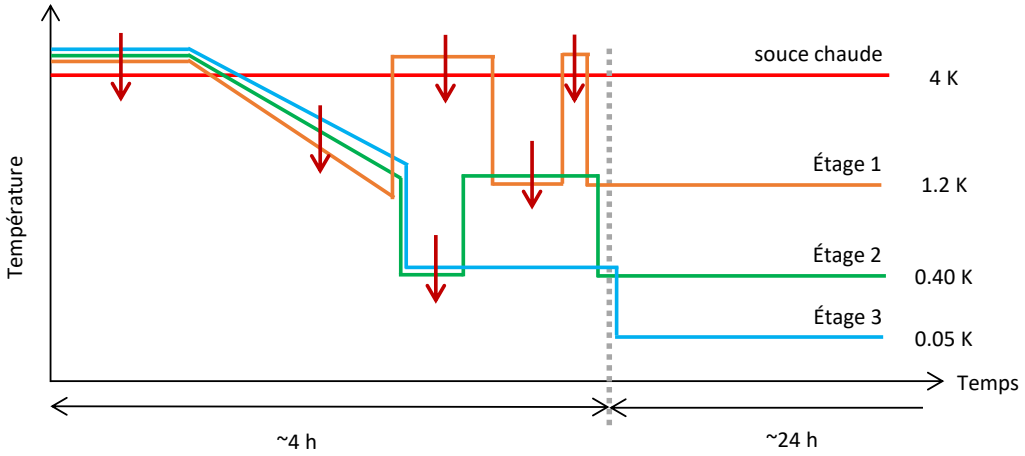


FIGURE 5.25 – Départ à chaud.

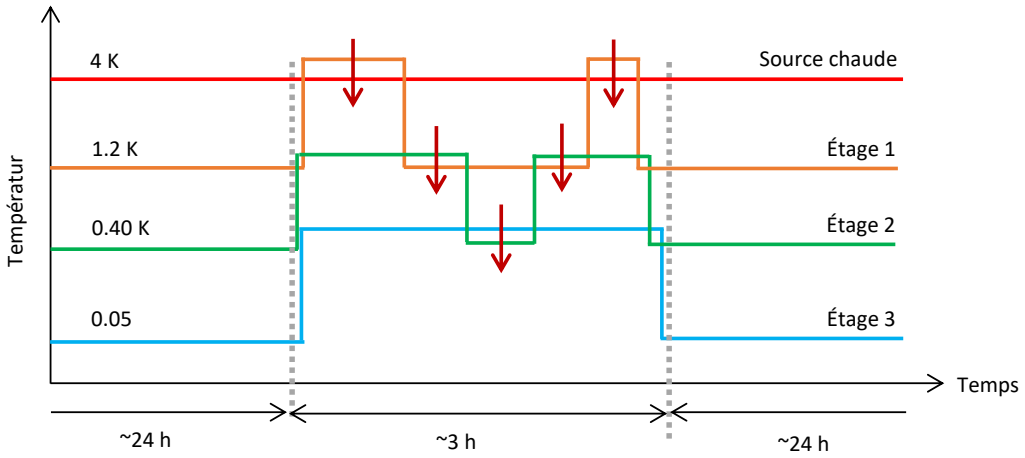
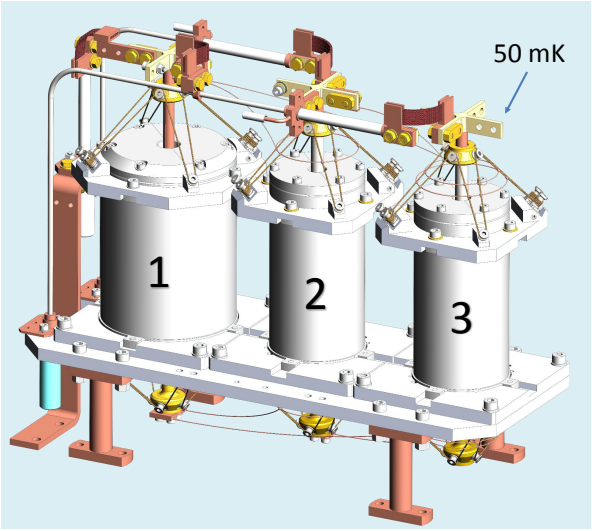


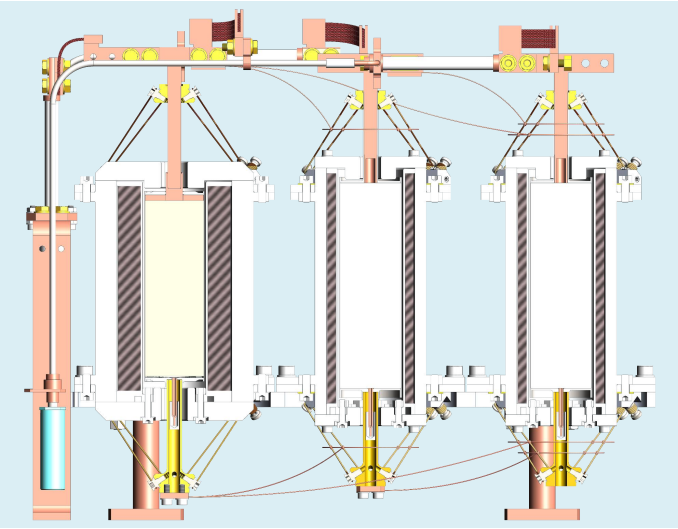
FIGURE 5.26 – Départ à froid.

5.4.3 Détails et choix de conception mécanique

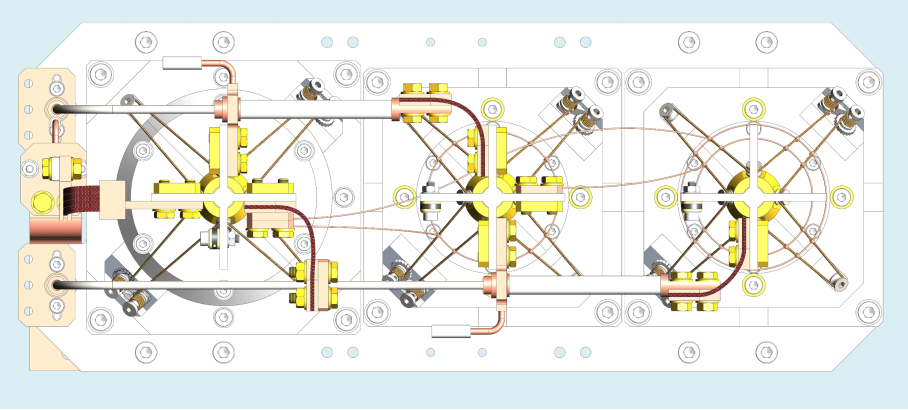
L'arrangement mécanique des étages a été choisi de façon à avoir un système compact, robuste, autoporteur et de montage simple. Pour cela, nous avons choisi la configuration affichée sur la figure 5.27.



(a) Vue en perspective.



(b) Vue en coupe.



(c) Vue de dessus.

FIGURE 5.27 – prototype.

Le système multi-étagé est monté sur une structure en aluminium. Cette structure est connectée thermiquement à la source chaude par 4 pieds et 1 strap en cuivre. Les pieds en cuivre tiennent mécaniquement tout l'ensemble et permettent l'évacuation vers la source chaude de la chaleur dissipée sur la structure, à savoir par les mini-pompes des interrupteurs 2 et 3 et par les systèmes magnétiques. Le strap de l'interrupteur 1 assure l'extraction de la chaleur d'aimantation de l'étage 1 vers la source chaude.

Le dessin des étages permet à chacun d'être monté indépendamment de la structure et d'autres étages. Cela donne aussi de la flexibilité au cas où des modifications éventuelles doivent être réalisées sur un étage. La hauteur totale des étages a été uniformisée pour faciliter le montage.

La tenue mécanique des capsules est assurée par un système de suspentes attachées d'un côté au système magnétique et de l'autre côté à son bus thermique. Nous utilisons

des suspentes en Kevlar car ce matériau présente une relation très avantageuse entre ses propriétés mécaniques et d'isolation thermique. Des intercepts thermiques sont utilisés afin de limiter les pertes thermiques des étages 2 et 3. Cela est réalisé par l'utilisation de fils en cuivre qui thermalisent les suspentes au bus thermique de l'étage utilisé. Des intercepts ont aussi été prévus pour le tube de pompage de l'interrupteur 3. La configuration et l'impact thermique de ces intercepts sont traités en détails dans la section 5.4.4.

5.4.4 Pertes thermiques

Les pertes thermiques totales de chaque étage sont composées de celles des supports en kevlar, de l'enveloppe de l'interrupteur thermique et des tubes de pompage des mini-pompes. Le calcul des pertes de l'interrupteur a été décrit dans la section 5.1.3. Les deux autres sources de pertes sont décrites en détails dans cette section.

5.4.4.1 Suspentes

Chaque capsule est suspendue par 16 fils en Kevlar (8 par extrémité), de 0.8 mm en diamètre apparent et 0.69 mm en diamètre effectif et de 50 mm de long. Ce système de suspension est affiché sur la figure 5.28, ainsi que les fils en cuivre qui composent les intercepts de chaleur des étages 2 et 3.

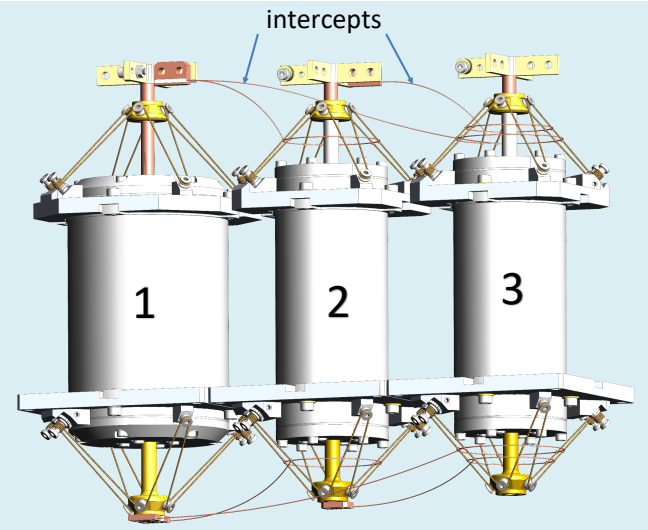


FIGURE 5.28 – Système d'interception de chaleur des suspentes des étages 2 et 3.

Les pertes thermiques par conduction apportées par les suspentes en Kevlar pendant la phase froide de l'ADR sont affichées sur la figure 5.29. Le bilan de pertes par étage est affiché sur le tableau 5.5, où l'on affiche aussi les pertes qui arriveraient sur chaque étage en absence d'intercepts de chaleur.

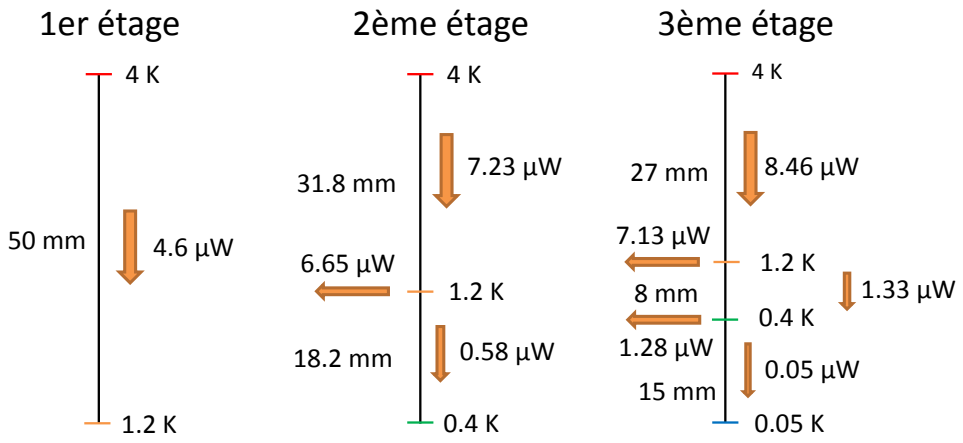


FIGURE 5.29 – Schéma des pertes thermiques apportées par les suspentes en Kevlar pendant la phase froide. Les intercepts thermiques sur les étages 2 et 3 sont indiqués, ainsi que le flux thermique extraits.

	Sans intercepts	Avec intercepts
Étage 1 (1.2 K)	4.6 µW	18.4 µW
Étage 2 (0.4 K)	4.8 µW	1.86 µW
Étage 3 (0.05 K)	4.8 µW	46 nW

TABLE 5.5 – Pertes thermiques totales apportées par les suspentes en Kevlar pendant la phase froide. Voir figure 5.29 pour plus de détails.

5.4.4.2 Tubes de pompage des mini-pompes

Pour passer en position ON, les mini-pompes doit être chauffée à environ 12 K. Pour limiter les pertes par conduction entre la base de la mini-pompe et l'embase de l'interrupteur, la première est directement installée sur la structure, à 4 K, et isolée de l'embase par un tube de pompage isolant. Ce tube assure aussi l'isolation entre ces éléments lorsque l'interrupteur est en position OFF.

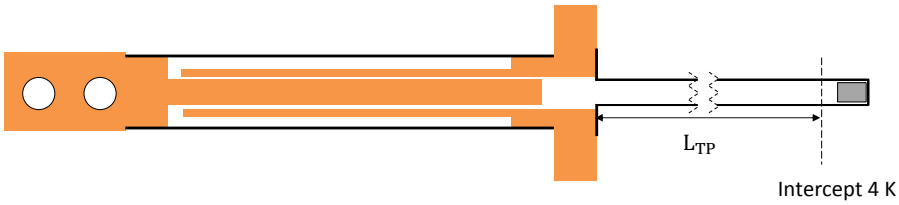


FIGURE 5.30 – Schéma de l'interrupteur thermique. La longueur du tube de pompage L_{TP} varie selon l'interrupteur.

Seul l'interrupteur 1 a sa mini-pompe installée sur son embase, tous les deux thermalisés à 4 K. Dans les cas des interrupteurs 2 et 3, un tube de pompage en inox de

section ϕ3 mm x 3.2 mm est utilisé, la longueur variant de 220 mm pour l'interrupteur 2 à 320 mm pour le 3. La figure 5.31 montre les pertes apportées par le tube de pompage de ces deux interrupteurs, ainsi que les intercepts de chaleur utilisés.

Interrupteur	1	2	3
L_{TP}	absent	220 mm	320 mm

TABLE 5.6 – Longueur du tube de pompage des interrupteurs thermiques. La mini-pompe de l'interrupteur 1 est fixée directement sur son embase. Section des tubes : ϕ3 mm x 3.2 mm.

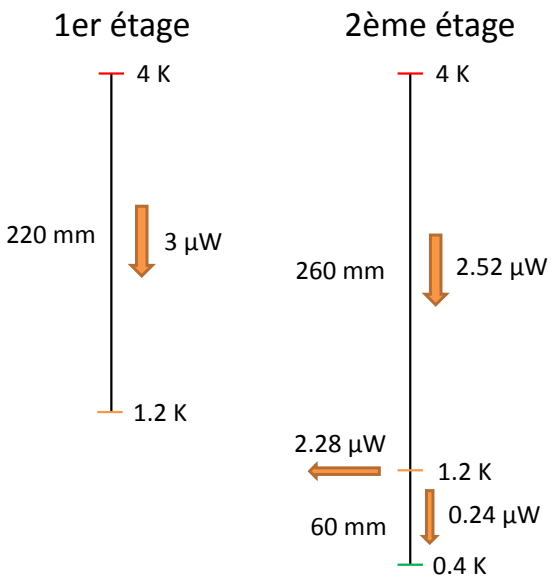


FIGURE 5.31 – Schéma des pertes thermiques apportées par les tubes de pompage des mini-pompes 2 et 3 sur les étages 1 et 2 pendant le phase froide. L'étage 1 est utilisé pour intercepter de la chaleur de l'étage 2.

	Sans intercept	Avec intercept
Étage 1 (1.2 K)	3 µW	5.28 µW
Étage 2 (0.4 K)	2.24 µW	0.24 µW

TABLE 5.7 – Pertes thermiques totales apportées par les tubes de pompage pendant la phase froide. Voir figure 5.31 pour plus de détails.

5.4.4.3 Bilan des pertes

Le tableau 5.8 résume des pertes par étage et met en évidence les résultats des thermalisations : les pertes tombent très vite de l'étage le plus chaud à l'étage le plus froid, ce qui est essentiel pour l'efficacité thermique du système.

Pertes thermiques	Étage 1 (1.2 K)	Étage 2 (0.4 K)	Étage 3 (0.05 K)
Support Kevlar	18.4 µW	1.86 µW	46 nW
Enveloppe de l'interrupteur	20.9 µW	1.12 µW	70 nW
Tube de pompage	5.28 µW	0.24 µW	~ 0
Total	44.6 µW	3.26 µW	116 nW

TABLE 5.8 – Pertes thermiques par étage.

5.4.5 Composés et capsules paramagnétiques

5.4.5.1 Capsule de GGG

Cette capsule est similaire aux capsules de DGG et d'YbGG décrites en détails dans le chapitre 3. Elle est affichée sur la figure 5.32. L'enveloppe de la capsule de GGG est cependant en inox au lieu d'être en laiton pour des raisons mécaniques. Bien que l'inox aît une chaleur spécifique plus importante que le laiton, son impact sur la performance de la capsule est faible. Le GGG est un monocristal de géométrie cylindrique produit par Saint-Gobain Cristaux. Les masses de différents matériaux qui composent la capsule sont affichés sur le tableau 5.9.

Matériau	Quantité
GGG	502 g (70 cm^3)
Inox	48.8 g
Laiton	48.1 g
Cuivre	72.6 g
Total	671.5 g

TABLE 5.9 – Répartition des masses dans la capsule.

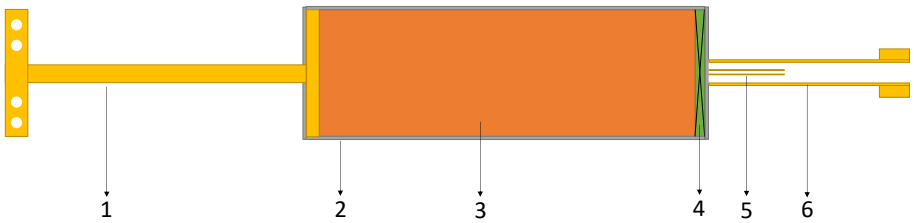


FIGURE 5.32 – Capsule du premier étage. 1. Bus thermique (cuivre) ; 2.Enveloppe (inox) ; 3. GGG ; 4. Rondelle ressort ; 5. Capillaire de remplissage ; 6. Embout (laiton).

5.4.5.2 Capsules de CPA

Le type de capsule employé dans le cas des grenats n'est pas bien adapté pour le CPA. Cela est dû au fait que ce sel présente une conductivité thermique insuffisante à

basse température même sous forme monocristalline. Elle est donnée par $k \simeq 0.05T^3$ W/cm/K autour de 0.2 K pour un monocristal. On s'attend à avoir une valeur encore plus faible dans le cas d'un polycristal dû à la dispersion des phonons dans les joints de grains (Hagmann, Benford, and Richards, 1994). Cette conductivité autour de 0.2 K est du même ordre de grandeur que celle de l'inox (Pobell, 2007). Le gradient thermique dû à la résistance de contact entre le CPA et le cuivre doit aussi être considéré et est donné, dans la gamme 20 mK - 200 mK, par $\Delta T \simeq a\ P/A/T^3$ avec $a = 3 \cdot 10^{-3}$ m^2K^4/W, P le flux thermique et A la surface de contact (Suomi, Anderson, and Holmström, 1968). La capsule doit être conçue afin de limiter les gradients de thermiques dans le sel et ainsi d'assurer un bon contact thermique entre le sel et son bus thermique.

La capsule utilisée dans le cas du CPA est affichée sur la figure 5.33 et la masse des matériaux qui la composent sur le tableau 5.10. La faible conductivité du CPA est compensée par la conductivité d'un faisceau en cuivre distribué dans le volume de CPA. Ce faisceau est ainsi une partie intégrante du bus thermique de la capsule. La croissance du CPA est réalisée directement sur son bus thermique afin d'assurer un bon contact thermique entre les deux matériaux. En pratique, on utilise typiquement de l'ordre de 5 cm^2 de surface de contact par cm^3 de CPA afin de limiter les gradients dans le CPA et à l'interface avec le faisceau. Des fils de faible diamètre (0.2 mm) sont utilisés afin de limiter les pertes par courant de Foucault.

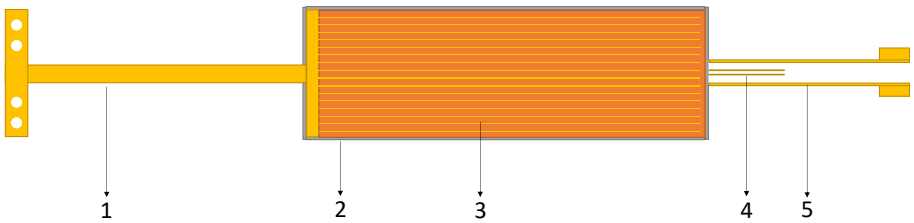


FIGURE 5.33 – Capsule du premier étage. 1. Bus thermique (cuivre) ; 2.Enveloppe (inox) ; 3. CPA ; 4. Capillaire de remplissage ; 6. Embout (laiton).

Matériau	Quantité
CPA	153 g (87.6 cm^3)
Inox	56.1 g
Laiton	45.5 g
Cuivre	50.0 g
Total	304.6 g

TABLE 5.10 – Répartition des masses dans la capsule.

5.5 Conclusions

Nous avons présenté une méthode générale pour le dimensionnement d'un système ADR multi-étagé. Elle a été appliquée au cas de la conception d'une ADR pour répondre aux besoins de refroidissement des détecteurs des prochaines missions spatiales. Ce prototype a été fabriqué et son montage, mise au point et caractérisation sont en cours de réalisation. Ce travail ne sera pas présenté dans le cadre de cette thèse. Le prototype permettra la caractérisation d'autres matériaux paramagnétiques, notamment celle d'une capsule d'YbGG de taille suffisante pour remplacer le CPA du deuxième étage est prévue suite au travail de synthèse de ce composé au INAC/PHELIQS/IMAPEC.

Conclusions et perspectives

Dans le cadre de cette thèse, nous avons identifié deux axes principaux de recherche et d'amélioration pour le développement de systèmes ADR destinés au spatial : l'axe principal a été le développement de réfrigérants paramagnétiques et le second, l'amélioration de la performance des interrupteurs thermiques vis à vis des phénomènes transitoires à l'origine des courts-circuits thermiques parasites. Finalement, ces travaux ont servi de base à la conception d'un prototype pour la gamme 4 K - 50 mK. Le 50 mK correspond aux besoins des missions spatiales les plus demandeuses en termes de cryogénie.

Nous avons étudié le comportement magnétocalorique des matériaux paramagnétiques afin d'améliorer la performance des réfrigérants actuellement utilisés dans les ADRs spatiales. Pour cela, nous avons développé une méthode de criblage décrite en détail dans le chapitre 2. Cette méthode nous a permis d'identifier des matériaux potentiels parmi un grand nombre de candidats. Parmi ces matériaux, nous avons retenu le YbGG ($Yb_3Ga_5O_{12}$). Selon nos calculs, ce composé est significativement plus performant que le composé classique, le CPA, dans la gamme $\sim$ 1.5 K - 0.4 K. La caractérisation expérimentale du YbGG a confirmé l'intérêt de ce grenat. Ces résultats sont d'autant plus encourageants que ce grenat d'ytterbium est capable de travailler efficacement dans une température faible, 400 mK environ, tout en ayant une haute concentration volumique d'ions magnétiques. Ces caractéristiques ouvrent la perspective de son utilisation sous forme diluée. Un matériau dilué peut travailler dans des températures plus faibles grâce à la réduction des interactions au dépens d'une concentration d'ions magnétiques moins importante.

Nous avons réalisé une étude phénomenologique et expérimentale des courts-circuits thermiques transitoires observés dans nos interrupteurs à gaz d'échange. Ces effets dégradent la performance thermique des interrupteurs en position OFF. Cette étude nous a permis de vérifier l'influence des paramètres du design et d'opération sur l'intensité des courts-circuits thermiques transitoires. Dans cette étude, nous avons proposé des modifications du design des interrupteurs thermiques qui intègreront notre prototype.

Lors de cette thèse, un cryoréfrigérateur ADR spatial pour la gamme 4 K – 50 mK a

été conçu et réalisé. Cette conception résulte d'un cas particulier de la méthode générale de dimensionnement présentée dans le chapitre 5.Une photo du montage du prototype, en état avancé, est présentée sur la figure 5.34. Dans la suite, des travaux en cours à INAC/PHELIQS/IMAPEC permettront la caractérisation et la comparaison des performances du prototype lorsque la capsule de CPA de son deuxième étage sera remplacée par une capsule de YbGG.

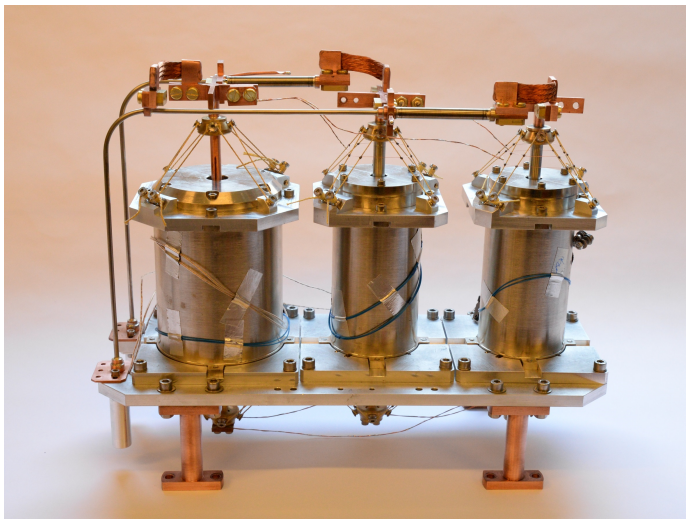


FIGURE 5.34 – Protopype ADR 3 étages.

Nos travaux sur la sélection et la caractérisation des réfrigérants magnétiques ont indiqué de nouvelles pistes pour la recherche de réfrigérants magnétiques performants. Une quantité relativement faible de matériaux constitués d'ions de terres-rares avec un moment magnétique J = 1/2 ont été considérées dans la littérature pour la gamme de température de départ ($T_{chaud} = \sim 4$ K), où les composés à base de gadolinium (J = 7/2) sont habituellement employés. L'étude systématique que nous avons réalisée a permis de montrer l'intérêt des matériaux à faible moment angulaire et grands facteurs de Landé. Nous avons remarqué que parmi ces ions, les matériaux à base d'ytterbium, d'erbium et de dysprosium sont souvent bien placés dans les différentes familles de composés analysées et représentent ainsi des pistes prometteuses d'amélioration. Les travaux sur ces matériaux sont cruciaux pour cette technologie car ils sont au cœur de la compétitivité des ADRs.

Les méthodes de sélection des matériaux et de dimensionnement du système ADR développées dans le cadre de cette thèse sont destinées au domaine spatial. Elles restent assez générales et pourront être adaptées à d'autres domaines. Par exemple, nous avons pu discuter de projets innovants qui pourraient aller jusqu'au refroidissement à très grande échelle (kW) des cavités et des bobines supraconductrices du FCC (Futur Circular Collider) du CERN : pour cette application aussi, le choix du matériau paramagnétique est critique.

Annexe

Régimes d'écoulement

Aux pression et température normales, la dynamique d'un gaz est dominée par les chocs intermoléculaires, qui sont caractérisés par le libre parcours moyen λ, la distance moyenne parcourue par une molécule entre deux collisions. Le gaz peut alors être considéré comme un milieu continu : c'est le régime visqueux (Conte, 1970).

À mesure que la pression est réduite, le libre parcours moyen augmente. La fréquence des collisions intermoléculaires diminue par rapport à celle des chocs avec les parois. Quand ceux-ci deviennent prépondérants, chaque molécule est indépendante des autres molécules : le gaz est en régime moléculaire (Conte, 1970).

Le nombre de Knudsen peut être utilisé pour déterminer le régime d'écoulement, lequel est définit comme le rapport entre le libre parcours moyen λ et une dimension caractéristique du système a (rayon pour un tube circulaire ou le gap pour un espace annulaire) :

$$\mathrm{Kn} = \frac{\lambda}{a} \tag{7}$$

L'écoulement visqueux correspond à Kn petit, le moléculaire à Kn grand. Pour les valeurs intermédiaires, nous retrouvons un régime de transition. Selon Conte (1970), les régimes sont délimités par :

$$\begin{array}{ccccccl} & & \mathrm{Kn} & < & 10^{-2} & & \text{, régime visqueux} \\ 10^{-2} & < & \mathrm{Kn} & < & 1 & & \text{, régime intermédiaire} \\ 1 & < & \mathrm{Kn} & & & & \text{, régime moléculaire} \end{array}$$

La valeur à partir de laquelle l'écoulement est entièrement moléculaire varie d'auteur par auteur selon le critère adopté pour délimiter les régions. Elle est cependant située entre 1 et 10 (Dong, 1956).

Le libre parcours moyen λ (en m) peut être calculé à partir de la pression et de la température par l'expression suivante, obtenue à partir des arguments de la théorie

cinétique des gaz (Atta, 1965) :

$$\lambda = \frac{\mu\,(\mathrm{T})}{\mathrm{P}}\sqrt{\frac{\pi \mathrm{RT}}{2\mathrm{M}}} \tag{8}$$

Où $\mu\,(\mathrm{T})$ est la viscosité dynamique du gaz (en Pa $\cdot$ s), laquelle dépend de la température, R la constante universelle des gaz parfaits et M la masse molaire (en kg/mol).

Conductance hydraulique en régime visqueux

La conductance molaire $\mathrm{C_{mol}}$ d'un espace annulaire caractérisé par un diamètre interne $\mathrm{D_1}$, diamètre externe $\mathrm{D_2}$ et longueur élémentaire δL est donnée par l'expression suivante Padet and Germain (1991) :

$$\mathrm{C_{mol}} = \frac{\dot{n}}{\Delta \mathrm{P}} = \frac{1}{32}\frac{\rho}{\mu \mathrm{M}}\frac{\mathrm{AD_h^2}}{\mathrm{G}\delta \mathrm{L}} \tag{9}$$

où le diamètre hydraulique est défini par $\mathrm{D}_h = \mathrm{D_2}$ - $\mathrm{D_1}$, A est la section et G un facteur géométrique donnée par :

$$G = \frac{(r_D - 1)^2}{1 + r_\mathrm{D}^2 - \dfrac{r_\mathrm{D}^2 - 1}{\ln r_\mathrm{D}}} \tag{10}$$

avec $r_\mathrm{D} = \mathrm{D_2/D_1}$. Lorsque $\mathrm{D_1} \to 0 \Longrightarrow \mathrm{G} \to 1$, on retrouve la conductance d'un tube :

$$\mathrm{C_{mol}} = \frac{\pi}{128}\frac{\rho}{\mu\,(\mathrm{T})\,\mathrm{M}}\frac{\mathrm{D}^4}{\delta \mathrm{L}} \tag{11}$$

La masse volumique ρ (en kg/m^3) peut être calculée à partir de l'expression des gaz parfaits :

$$\mathrm{C_{mol}} = \frac{\pi}{128}\frac{1}{\mu\,(\mathrm{T})}\frac{\mathrm{P}}{\mathrm{RT}}\frac{\mathrm{D}^4}{\delta \mathrm{L}} \tag{12}$$

Conductance hydraulique en régime moléculaire

La conductance molaire d'un tube droit isotherme de longueur δL, section transversale constante A et périmètre mouillé P_m est donnée par (Atta, 1965) :

$$\mathrm{C_{mol}} = \frac{8}{3}\frac{1}{\delta L}\frac{\mathrm{A}^2}{\mathrm{P}_m}\sqrt{\frac{2}{\pi \mathrm{MRT}}} \tag{13}$$

Le facteur géométrique $\mathrm{A}^2/\mathrm{P}_m$ est égal à $\pi \mathrm{D}^3/16$ pour un tube circulaire et $\pi \bar{\mathrm{D}} \Delta \mathrm{D}^2/8$ pour un espace annulaire, avec $\bar{\mathrm{D}}$ le diamètre moyen et $\Delta \mathrm{D} = \mathrm{D_2}$ - $\mathrm{D_1}$. En remplaçant ces valeurs sur l'expression 13, nous avons :

$$\begin{aligned} \mathrm{C_{mol}} &= \frac{1}{6}\frac{\mathrm{D}^3}{\delta \mathrm{L}}\sqrt{\frac{2\pi}{\mathrm{MRT}}} \quad \text{tube circulaire} \\ \mathrm{C_{mol}} &= \frac{1}{3}\frac{\bar{D}\Delta D^2}{\delta L}\sqrt{\frac{2\pi}{\mathrm{MRT}}} \quad \text{section annulaire} \end{aligned} \tag{14}$$

Si la température du tuyau varie, un écoulement supplémentaire dans le sens du gradient thermique a lieu dû à l'effusion thermique. Dans ce cas, le débit molaire total d'un tuyau circulaire est donné par (Perin *et al.*) :

$$\dot{n} = -\frac{1}{6}\mathrm{D}^3\sqrt{\frac{2\pi}{\mathrm{RM}}}\frac{d}{dx}\left(\frac{\mathrm{P}}{\mathrm{T}^{1/2}}\right) \tag{15}$$

Ainsi, la conductance molaire est obtenue en remplaçant l'expression précédente dans l'expression $\mathrm{C_{mol}} = \dot{n}/\Delta\mathrm{P}$.

Table des figures

1.1 Chaine cryogénique permettant un refroidissement à 50 mK. 17
1.2 Schéma d'un étage ADR avec ses éléments principaux. 19
1.3 Diagramme d'entropie du cycle de Carnot d'un matériau paramagnétique. Les transformations AB et CD sont isothermes et les transformations BC et DA sont adiabatiques. La zone hachurée correspond à l'énergie absorbée par le composé à la température froide. 20
1.4 Température et champ magnétique d'un étage ADR en fonction du temps. 21
1.5 Association de deux étages en série. 22
1.6 Fonctionnement one-shot (à gauche) et continu (à droite) possibles pour une ADR avec 2 étages en série. 23
1.7 Association de deux étages en parallèle. 23
1.8 Fonctionnement continu de deux étages ADR en parallèle. 24
1.9 Schéma de l'ADR utilisée dans le ballon-sonde MAX (Hagmann and Richards, 1995). 25
1.10 Schéma d'un interrupteur thermique à gaz. 1 - gap, 2 - extrémités en cuivre, 3 - enveloppe isolant, 4 - mini-pompe avec chauffage. 26
1.11 Schéma thermique de la chaine cryogénique de l'instrument Astro-H/SXS (Shirron *et al.*, 2012). 29
1.12 Prototype de réfrigérateur en développement au MSSL. 30
1.13 Réfrigérateur hybride ADR-adsorption développé au SBT dans le cadre des projets des instruments SPICA/SAFARI et ATHENA/X-IFU. 31

2.1 Entropie selon le modèle des ions libres pour plusieurs valeurs de J. 36
2.2 Facteur de Landé versus moment angulaire total des ions trivalents de la famille $4f$. 37
2.3 Effet magnétocalorique des ions libres de Gd^{3+} (J = 7/2, g = 2), Tb^{3+} (J = 6, g = 3/2), Dy^{3+} (J = 15/2, g = 4/3) et Ho^{3+} (J = 8, g = 5/4) pour deux champs appliqués. 37
2.4 Entropie à champ nul de plusieurs composés paramagnétiques. 39
2.5 Chaleur spécifique à champ nul de plusieurs composés paramagnétiques. . . 40

2.6 Effet magnétocalorique du GGG calculé à partir du modèle des ions libres pour $B_{int} = 0$ (paramagnétique parfait) et pour $B_{int} = 0.48$ T. 41
2.7 Schéma de l'effet d'un champ cristallin sur l'énergie de l'état fondamental d'un ion libre. 41
2.8 Diagramme d'entropie d'un paramagnétique contenant les conventions d'écritures adoptées dans ce texte. Le cycle représenté est le cycle de Carnot pour un étage de désaimantation adiabatique. La flèche en vert indique l'effet magnétocalorique, celle en bleu la réduction d'entropie à champ nul et en orange, l'entropie disponible du cycle représenté. 48
2.9 Chaleur spécifique du YbGG monocristallin en fonction de la température. Le matériau a une transition antiferromagnétique à $T_C = 54$ mK avec une anomalie du type Schottky centrée à $T \simeq 0.18$ K (Filippi *et al.*, 1977). . . . 49
2.10 Concentration d'ions paramagnétiques en fonction de la température caractéristique. Références : tableau 2.3. 50
2.11 Entropie maximum des matériaux paramagnétiques en fonction de leur température caractéristique. 51
2.12 Entropie maximum pondérée par g des matériaux paramagnétiques avec J =1/2 en fonction de leur température caractéristique. 53
2.13 Courbes d'entropie à champ nul calculées avec le modèle des ions libres. Le champ B_{int} de chaque matériau a été obtenu à partir des courbes expérimentales représentées. Les courbes d'entropie sous champ calculées sont aussi représentées. 57
2.14 Comparaison entre les diagrammes d'entropie calculés avec le modèle des ions libres et ceux obtenus expérimentalement. 58
2.15 Masse de l'étage ADR en fonction de la température froide pour $S_{disp} = 5$ J/K. La température de départ est fixée à 4 K. Le modèle des ions libres avec champ interne a été utilisé pour le calcul des diagrammes d'entropie. . . . 59
2.16 Masse de l'étage ADR en fonction de la température froide pour $S_{disp} = 5$ J/K. La température de départ est fixée à 1 K. Le modèle des ions libres avec champ interne a été utilisé pour le calcul des diagrammes d'entropie. . . . 59

3.1 Schéma de la technique de croissance de fusion de zone verticale dans un four à image. La montée progressive des miroirs permet le déplacement du front de dissolution et du front de cristallisation vers le haut. 63
3.2 Croissances du DGG dans le four à image. 65
3.3 Croissances du DGG dans le four à image. 66
3.4 Croissances du YbGG dans le four à image. 66
3.5 Diffractogramme de rayons-X sur poudre sur un échantillon de DGG. . . . 67
3.6 Diffractogramme de rayons-X sur poudre sur un échantillon de YbGG. . . 68

3.7 Cliché de diffraction Laue réalisé sur un monocristal de DGG. L'axe de mesure correspond à l'axe de croissance. 68
3.8 Cliché de diffraction Laue réalisé sur un monocristal de YbGG. L'axe de mesure correspond à l'axe de croissance. 69
3.9 Schéma de détection du SQUID. Source : manuel d'utilisation du MPMS. . 70
3.10 Échantillons de DGG (à gauche) et de YbGG (à droite) utilisés dans nos mesures d'aimantation. Papier millimétré au fond. 71
3.11 Aimantation isotherme des échantillons de DGG et de YbGG en fonction du champ magnétique μ_0H appliquée par les bobines. Le trait en pointillé montre la valeur théorique maximum (gJ) de l'état fondamental. 72
3.12 Aimantation en fonction de gB/T. 72
3.13 Dérivée de l'aimantation. Dans le cas du DGG, les traits en pointillés montrent les résultats des mesures de Numazawa *et al.* (2003). 73
3.14 Effet magnétocalorique calculé à partir des mesures d'aimantation. 73
3.15 Effet magnétocalorique calculé à partir des mesures d'aimantation et à partir du modèle des ions libres. 74
3.16 Mesure de la chaleur spécifique par la méthode d'impulsion de chaleur proposée par Hwang, Lin, and Tien (1997). 75
3.17 Chaleur spécifique à champ nul du DGG. La chaleur spécifique du réseau a été extraite. 76
3.18 Chaleur spécifique à champ nul du YbGG. La chaleur spécifique du réseau a été extraite. 76
3.19 Chaleur spécifique du YbGG en fonction de la température et du champ appliqué μ_0H. La chaleur spécifique du réseau a été extraite. 77
3.20 Schéma du montage de la capsule pour sa caractérisation. 1. Source chaude, 2. Interrupteur thermique, 3. Chauffage, 4. Thermomètre, 5. Bus thermique, 6. Bobines supraconductrices, 7. Capsule. 79
3.21 Capsule de YbGG avant et après soudure. 80
3.22 Calcul de la chaleur spécifique totale de la capsule. Voir texte pour les références. 80
3.23 Montage expérimental pour la caractérisation de la capsule de YbGG. . . . 81
3.24 Schéma des mesures des pertes parasites par l'application d'un pulse de chaleur. 82
3.25 Méthode de mesure de la conductance thermique de la capsule par l'application d'un pulse de chaleur. 84
3.26 Conductance thermique de la capsule de YbGG en fonction de sa température moyenne. 85
3.27 Méthode de mesure de la chaleur spécifique de la capsule par l'application d'un pulse de chaleur. 85

3.28 Chaleur spécifique de la capsule (cercles) et du YbGG (losanges) sous champ. 86
3.29 Énergie disponible à température constante associée au couple (T, B). . . . 87
3.30 Mesures d'énergie disponible de la capsule de YbGG pour la configuration où la plaque froide est maintenue à 1.2 K. Les légendes indiquent la puissance totale sur la capsule. 89
3.31 Mesures d'énergie disponible de la capsule de YbGG pour la configuration où la plaque froide est maintenue à 4.2 K. Les légendes indiquent la puissance totale sur la capsule. 90
3.32 Cycle thermodynamique idéal d'une ADR. 91
3.33 Courbes de désaimantation adiabatique. Le rapport B/T du point de départ est indiqué sur la légende. 92
3.34 Courbes de désaimantation suivie d'une aimantation adiabatique. Le rapport B/T du point de départ est indiqué sur la légende. 92
3.35 Écart entre le champ magnétique expérimental et le champ magnétique calculé avec le modèle des ions libres pour différentes conditions de départ. 93

4.1 Schémas d'un interrupteur thermique en position ON (en haut) et OFF. 1 et 2 - extrémités en cuivre, 3 - enveloppe, 4 - tube de pompage, 5 - mini-pompe. 96
4.2 Pression de vapeur saturante du gaz de remplissage de nos interrupteurs thermiques, le ^{3}He. La courbe du ^{4}He a été représentée pour référence(Pobell, 2007). 97
4.3 Régimes retrouvés dans l'espace annulaire de l'interrupteur thermique en fonction de la pression et de la température. La courbe continue correspond à la pression de vapeur saturante du ^{3}He (Pobell, 2007). 98
4.4 Conductance de l'interrupteur thermique à 4 K en fonction de la température de la mini-pompe. 98
4.5 Connexions thermiques intermittentes lors du chauffage d'une extrémité de l'interrupteur thermique. Température initiale des extrémités avant activation du chauffage placé sur le bout chaud : 0.5 K. 100
4.6 Évacuation du gaz lorsque la MP est refroidie. 101
4.7 Schéma de l'interrupteur thermique percé. 102
4.8 Distribution des orifices de pompage dans l'interrupteur percé. 103
4.9 Schéma du montage utilisé. 104
4.10 Montage expérimental des essais des interrupteurs thermiques. 104
4.11 Paramètres des essais. 105
4.12 Étude du passage ON - OFF de l'interrupteur standard. $T^c_{\text{embase}} = 0.6$ K. Tube de pompage : ϕ 2.5 mm. 106

4.13 Étude du passage ON - OFF de l'interrupteur standard. $T^c_{embase} = 0.3$ K. Tube de pompage : ϕ 2.5 mm. 106
4.14 Montée en température de la mini-pompe en conséquence de l'application de $P_{BC} = 100$ µW avant que l'interrupteur passe OFF. Tube de pompage : ϕ 2.5 mm. 108
4.15 Passage en position OFF en absence (a) et en présence (b) de liquide à 0.3 K. Tube de pompage de ϕ 3 mm. 109
4.16 Étude du temps de passage en position OFF de l'interrupteur standard et de celui percé. Tube de pompage ϕ 2.5 mm 110
4.17 Comparaison des profils de température pendant le passage en position OFF pour deux diamètres du tube de pompage : 2.5 mm et 3 mm. 111
4.18 Paramètres de l'expérience. 113
4.19 Chauffage du bout chaud de l'interrupteur. Puissance de chauffage : 100 µW. 114
4.20 Chauffage du bout chaud de l'interrupteur. Puissance de chauffage : 400 µW 114
4.21 Diagramme (T_{embase}, T_{BC}) d'un interrupteur en cas d'absence (100 µW et de présence (400 µW) de courts-circuits thermiques transitoires. 115
4.22 Paramètres de l'expérience. 116
4.23 Diagrammes T_{embase} x T_{BC}. Tube de pompage de ϕ 2.5 mm. $P_{BC} = 200$ µW. $T_{intercept} = 4$ K. 116
4.24 Diagramme (T_{embase}, T_{BC}) de l'interrupteur standard. Tube de pompage de ϕ 2.5 mm. $P_{BC} = 100$ µW. $T_{intercept} = 2$ K. 117
4.25 Paramètres de l'expérience. 117
4.26 Diagramme (T_{embase}, T_{BC}) des interrupteurs avec un tube de pompage de ϕ 2.5 mm. 118
4.27 Paramètres de l'expérience. 119
4.28 Diagrammes T_{embase} x T_{BC}. Tube de pompage de ϕ 3 mm. $P_{BC} = 400$ µW. 119
4.29 Paramètres de l'expérience. 120
4.30 Diagrammes T_{embase} x T_{BC}. Tube de pompage de ϕ 3 mm. $P_{BC} = 400$ µW. Intercept à 4 K. 120
4.31 Diagramme (T_{embase}, T_{BC}). Tube de pompage de ϕ 2.5 mm. 121
4.32 Paramètres de l'expérience. 122
4.33 Expérience avec phase isotherme. $P_{BC} = 200$ µW pendant de montée en température.Tube de pompage de ϕ 3 mm. 123
4.34 Expérience avec phase isotherme. $P_{BC} = \sim 200$ µW pendant de montée en température.Tube de pompage de ϕ 3 mm. 123
4.35 Paramètres de l'expérience. 124
4.36 Comparaison des profils de température et de puissance pour différentes vitesses de monté en température du bout chaud. 125

4.37 Comparaison des profils de température et de puissance pour différentes vitesses de monté en température du bout chaud. 126
4.38 Évolution de P_{BC} dans l'étape de contrôle isotherme du bout chaud à 2 K. 126
4.39 Énergie transférée entre les extrémités des interrupteurs thermiques due à la désorption. Les mesures sont basées sur les données de la figure 4.38. . . 127

5.1 Schéma d'un étage ADR. 130
5.2 Schéma d'un interrupteur thermique à gaz d'échange. 131
5.3 Schéma du système magnétique. La capsule et son système de suspension sont aussi représentés. 132
5.4 Modèle simplifié du système magnétique. 133
5.5 Système avec N étages en série. 135
5.6 Diagramme d'entropie d'un système avec 2 étages en série. Cette configuration permet au système de couvrir une gamme de température plus large que les gammes des étages individuels. 135
5.7 Recyclage de deux étages en cascade. L'étage 2 utilise l'étage 1 comme source thermique. 136
5.8 Recyclage de deux étages en cascade. L'étage 1 est recyclé deux fois afin de réduire son besoin d'énergie froide par rapport à la solution de la figure 5.7. 137
5.9 Schéma du démarrage à chaud direct. Après la désaimantation indépendante des étages, le système est prêt pour commencer la phase froide. . . . 138
5.10 Schéma du démarrage à chaud direct avec pré-refroidissement. 138
5.11 Schéma du démarrage à chaud avec pré-refroidissement. L'étage 1 est recyclé après avoir pré-refroidi l'étage 2. 139
5.12 Alternative au démarrage à chaud avec pré-refroidissement. L'étage 2 est pré-refroidi par l'étage 1. Un transfert de chaleur en cascade finalise le recyclage du système. 139
5.13 Schéma du calcul de base d'un étage ADR détaillé (à gauche) et condensé (à droite). 141
5.14 Schéma détaillé (à gauche) et condensé (à droite) du calcul de l'énergie froide de l'étage. 142
5.15 Schéma permettant le calcul complet de l'étage. 142
5.16 Schéma du calcul permettant de déterminer le champ magnétique qui minimise la masse totale de l'étage. 143
5.17 Résultats de la simulation. Les données en noir correspondent aux données d'entrée et ceux en bleu sont le résultats des calculs. 144
5.18 Résultat de l'étage optimisé si le CPA est utilisé au lieu du GGG. 144

5.19 Schéma du calcul d'un système ADR multi-étagé. Les températures intermédiaires correspondent à $T^{n,n+1}_{intermédiaire} = T_{n,froid} = T_{n+1,chaud}$. 145
5.20 Schéma d'optimisation des températures intermédiaires et des champs magnétiques afin de minimiser la masse totale du système. 145
5.21 Dimensionnement pour 2 étages. 146
5.22 Dimensionnement pour 3 étages. 146
5.23 Dimensionnement pour 4 étages. 146
5.24 Masse totale du système en fonction du nombre d'étages. 147
5.25 Départ à chaud. 150
5.26 Départ à froid. 150
5.27 prototype. 151
5.28 Système d'interception de chaleur des suspentes des étages 2 et 3. 152
5.29 Schéma des pertes thermiques apportées par les suspentes en Kevlar pendant la phase froide. Les intercepts thermiques sur les étages 2 et 3 sont indiqués, ainsi que le flux thermique extraits. 153
5.30 Schéma de l'interrupteur thermique. La longueur du tube de pompage L_{TP} varie selon l'interrupteur. 153
5.31 Schéma des pertes thermiques apportées par les tubes de pompage des mini-pompes 2 et 3 sur les étages 1 et 2 pendant le phase froide. L'étage 1 est utilisé pour intercepter de la chaleur de l'étage 2. 154
5.32 Capsule du premier étage. 1. Bus thermique (cuivre) ; 2.Enveloppe (inox) ; 3. GGG ; 4. Rondelle ressort ; 5. Capillaire de remplissage ; 6. Embout (laiton). 155
5.33 Capsule du premier étage. 1. Bus thermique (cuivre) ; 2.Enveloppe (inox) ; 3. CPA ; 4. Capillaire de remplissage ; 6. Embout (laiton). 156
5.34 Protopype ADR 3 étages. 160

Liste des tableaux

1.1 Paramètres de l'ADR à trois étages d'Astro-H (Shirron *et al.*, 2012). 29
1.2 Paramètres de l'étage ADR du réfrigérateur hybride ADR/adsorption (Luchier *et al.*, 2010). 31

2.1 Moment angulaire effectif et facteur de Landé de l'état fondamental de divers matériaux. Voir tableau 2.3 pour les références. 43
2.2 Propriétés des matériaux paramagnétiques. Voir les tableaux 2.3 et 2.4 pour les références. N_0 est la concentration volumique d'ions magnétiques. *en masse. 45
2.3 Matériaux considérés avec leurs références bibliographiques (tableau 2.4). . 46
2.4 Références bibliographiques des matériaux considérés (voir tableau 2.3). . . 47
2.5 Propriétés des composés paramagnétiques mis en évidence dans la « présélection ». 55

3.1 Échantillons utilisés dans les mesures d'aimantation. 71
3.2 Masses des échantillons utilisés dans les mesures de chaleur spécifique. . . . 75
3.3 Caractéristiques de la capsule de YbGG. La quantité d'hélium est estimée à partir de la température et pression de remplissage et du volume mort de la capsule. Le calcul du C_P en fonction de la température est donné dans la figure 3.22. 79
3.4 Mesures des pertes parasites sur la capsule de YbGG. 83
3.5 Pertes moyennes sur la capsule de YbGG. 83
3.6 Conditions expérimentales retrouvées lors des mesures de l'énergie disponible de la capsule de YbGG. La température de contrôle de la capsule correspond à $T_{\text{contrôle}} = T_{\text{YbGG}} + \Delta T_{\text{découplage}}$. Voir section 3.3.3.2 pour plus de détails sur le calcul des pertes thermiques. 88

4.1 Dimensions caractéristiques de l'interrupteur. 102

5.1 Propriétés des matériaux magnétocaloriques. 131
5.2 Masse de l'ADR à trois étages en fonction des matériaux paramagnétiques. 148
5.3 Détails du dimensionnement. 149

5.4 Masse du prototype réalisé. 149
5.5 Pertes thermiques totales apportées par les suspentes en Kevlar pendant la phase froide. Voir figure 5.29 pour plus de détails. 153
5.6 Longueur du tube de pompage des interrupteurs thermiques. La mini-pompe de l'interrupteur 1 est fixée directement sur son embase. Section des tubes : ϕ3 mm x 3.2 mm. 154
5.7 Pertes thermiques totales apportées par les tubes de pompage pendant la phase froide. Voir figure 5.31 pour plus de détails. 154
5.8 Pertes thermiques par étage. 155
5.9 Répartition des masses dans la capsule. 155
5.10 Répartition des masses dans la capsule. 156

Bibliographie

Ahlers, G., Kornblit, A., and Guggenheim, H. J., Phys. Rev. Lett. **34**, 1227 (1975).

Ashcroft, N. W. and Mermin, N. D., *Solid state physics* (Holt, Rinehart and Winston, 1976).

Atta, C. M. V., *Vacuum Science and Engineering* (McGraw-Hill, 1965).

Ball, M., Garton, G., Leask, M. J. M., Ryan, D., and Wolf, W. P., Journal of Applied Physics **32**, S267 (1961).

Barclay, J. A., Paterson, L., Bingham, D., and Moze, O., Cryogenics **18**, 535 (1978).

Barclay, J. A. and Steyert, W. A., Cryogenics **22**, 73 (1982).

Bartlett, J., Hardy, G., and Hepburn, I. D., Cryogenics **72, Part 2**, 111 (2015).

Bartlett, J., Hardy, G., Hepburn, I. D., Brockley-Blatt, C., Coker, P., Crofts, E., Winter, B., Milward, S., Stafford-Allen, R., Brownhill, M., Reed, J., Linder, M., and Rando, N., Cryogenics **50**, 582 (2010).

Belov, K. P. and Sokolov, V. I., Soviet Physics Uspekhi **20**, 149 (1977).

Bleaney, B., Gregg, J. F., Hill, R. W., Lazzouni, M., Leask, M. J. M., and Wells, M. R., Journal of Physics C: Solid State Physics **21**, 2721 (1988).

Bleaney, B., Pfeffer, J. Z., and Wells, M. R., Journal of Physics: Condensed Matter **9**, 7469 (1997).

Blote, H. W. J., Wielinga, R. F., and Huiskamp, W. J., Physica **43**, 549 (1969).

Bonrath, H., Hellwege, K., Nicolay, K., and Weber, G., Physik der kondensierten Materie **4**, 382 (1966).

Brandle, C. D. and Barns, R. L., Journal of Crystal Growth **26**, 169 (1974).

Brandle, C. D. and Valentino, A. J., Journal of Crystal Growth **12**, 3 (1972).

Bromiley, P. A., *Development of an adiabatic demagnetisation refrigerator for use in space.*, Ph.D. thesis, University College London (University of London) (2000).

Charrier, A., *Cryoréfrigérateur à tube à gaz pulsé pour applications spatiales travaillant à basses températures (4K-10K)*, Ph.D. thesis, Grenoble Alpes (2015).

Chen, Y.-C., Prokleska, J., Xu, W.-J., Liu, J.-L., Liu, J., Zhang, W.-X., Jia, J.-H., Sechovsky, V., and Tong, M.-L., J. Mater. Chem. C **3**, 12206 (2015).

Collaudin, B. and Passvogel, T., Cryogenics **39**, 157 (1999).

Conte, R. R., *Éléments de Cryogénie* (Paris, Masson & Cie, 1970).

Cook, D. C. and Cashion, J. D., Journal of Physics C: Solid State Physics **12**, 605 (1979).

Cooke, A. H., Ellis, C. J., Gehring, K. A., Leask, M. J. M., Martin, D. M., Wanklyn, B. M., Wells, M. R., and White, R. L., Solid State Communications **8**, 689 (1970).

Cooke, A. H., Martin, D. M., and Wells, M. R., J. Phys. Colloques **32**, C1 (1971).

Cooke, A. H., Swithenby, S. J., and Wells, M. R., Solid State Communications **10**, 265 (1972).

Cooke, A. H., Thorp, T. L., and Wells, M. R., Proceedings of the Physical Society **92**, 400 (1967).

Daniels, J. M. and Kurti, N., Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences **221**, 243 (1954).

Davidson, N., *Statistical Mechanics*, Dover Books on Chemistry (Dover Publications, 2003).

DiPirro, M., Canavan, E., Shirron, P., and Tuttle, J., Cryogenics **44**, 559 (2004a).

DiPirro, M. J. and Shirron, P. J., Cryogenics **62**, 172 (2014).

DiPirro, M. J., Shirron, P. J., Tuttle, J. G., and Canavan, E. R., AIP Conference Proceedings **710**, 436 (2004b).

Dong, W., *Vacuum flow of gases through channels with circular, annular and rectangular cross sections*, Ph.D. thesis, University of California, Berkeley (1956).

Duband, L., in *Cryocoolers 8*, edited by R. G. Ross (Springer US, Boston, MA, 1995) pp. 731–741.

Duband, L., Clerc, L., Ercolani, E., Guillemet, L., and Vallcorba, R., Cryogenics **48**, 95 (2008).

Duband, L., Duval, J. M., and Luchier, N., Cryogenics **64**, 213 (2014).

Duval, J.-M., Camus, P., Calvo, M., Prouvé, T., Exshaw, O., and Brasiliano, D. P., Journal of Low Temperature Physics , 1 (2016).

Filippi, J., Lasjaunias, J. C., Hébral, B., Rossat-Mignod, J., and Tchéou, F., Journal of Magnetism and Magnetic Materials **15–18, Part 1**, 527 (1980a).

Filippi, J., Lasjaunias, J. C., Hebral, B., Rossat-Mignod, J., and Tcheou, F., Journal of Physics C: Solid State Physics **13**, 1277 (1980b).

Filippi, J., Lasjaunias, J. C., Ravex, A., Tchéou, F., and Rossat-Mignod, J., Solid State Communications **23**, 613 (1977).

Filippi, J., Tcheou, F., and Rossat-Mignod, J., Solid State Communications **33**, 827 (1980).

Fisher, R. A., Hornung, E. W., Brodale, G. E., and Giauque, W. F., The Journal of Chemical Physics **58**, 5584 (1973).

Flood, D. J., Journal of Applied Physics **45**, 4041 (1974).

Fonseca, C. M. and Fleming, P. J., in *Icga*, Vol. 93 (Citeseer, 1993) pp. 416–423.

Gehring, G. A., Kahle, H. G., Nägele, W., Simon, A., and Wüchner, W., physica status solidi (b) **74**, 297 (1976).

Gondek, L., Kaczorowski, D., and Szytuła, A., Solid State Communications **150**, 368 (2010).

Goshorn, D. P., Onn, D. G., and Remeika, J. P., Phys. Rev. B **15**, 3527 (1977).

Hagmann, C., Benford, D. J., and Richards, P. L., Cryogenics **34**, 213 (1994).

Hagmann, C. and Richards, P. L., Cryogenics **35**, 303 (1995).

Hammann, J. and Manneville, P., in *Low Temperature Physics-LT 13*, edited by K. Timmerhaus, W. O'Sullivan, and E. Hammel (Springer US, 1974) pp. 328–333.

Hill, R. W., Journal of Physics C: Solid State Physics **19**, 673 (1986).

Hill, R. W., Cosier, J., and Hukin, D. A., Journal of Physics C: Solid State Physics **16**, 2871 (1982).

Holmes, L., Guggenheim, H. J., and Hull, G. W., Solid State Communications **8**, 2005 (1970).

Holmes, L. M., Hulliger, F., Guggenheim, H. J., and Maita, J. P., Physics Letters A **50**, 163 (1974).

Hornung, E. W., Fisher, R. A., Brodale, G. E., and Giauque, W. F., The Journal of Chemical Physics **61**, 282 (1974).

Hwang, J. S., Lin, K. J., and Tien, C., Review of Scientific Instruments **68**, 94 (1997).

Jang, D., Gruner, T., Steppke, A., Mitsumoto, K., Geibel, C., and Brando, M., Nat Commun **6** (2015).

Keesom, W. H. and Schweers, J., Physica **8**, 1032 (1941).

Kimura, H., Maeda, H., and Sato, M., Journal of Materials Science **23**, 809 (1988).

Kimura, S., Kitamura, K., and Shindo, I., Journal of Crystal Growth **65**, 543 (1983).

Kraemer, C., Nikseresht, N., Piatek, J. O., Tsyrulin, N., Piazza, B. D., Kiefer, K., Klemke, B., Rosenbaum, T. F., Aeppli, G., Gannarelli, C., Prokes, K., Podlesnyak, A., Strässle, T., Keller, L., Zaharko, O., Krämer, K. W., and Rønnow, H. M., Science **336**, 1416 (2012).

Krämer, K., Romstedt, H., Güdel, H.-U., Fischer, P., Murasik, A., and Fernandez-Diaz, M., European Journal of Solid State and Inorganic Chemistry **33**, 273 (1996), cited By 16.

Landau, D. P., Keen, B. E., Schneider, B., and Wolf, W. P., Phys. Rev. B **3**, 2310 (1971).

Leask, M. J. M., Wells, M. R., Ward, R. C. C., Hayden, S. M., and Jensen, J., Journal of Physics: Condensed Matter **6**, 505 (1994).

Löw, U., Zvyagin, S., Ozerov, M., Schaufuss, U., Kataev, V., Wolf, B., and Lüthi, B., The European Physical Journal B **86**, 1 (2013).

Luchier, N., "ADR/sorption cooler developments for space - Habilitation à Diriger des Recherches," (2013).

Luchier, N., Duval, J. M., Duband, L., Camus, P., Donnier-Valentin, G., and Linder, M., Cryogenics **50**, 591 (2010).

Luchier, N., Duval, J. M., Duband, L., and Tirolien, T., Cryogenics **52**, 152 (2012).

Martin, F., Vermeulen, G., Camus, P., and Benoit, A., Cryogenics **50**, 623 (2010), 2009 Space Cryogenic Workshop.

Mennenga, G., Jongh, L. J. d., and Huiskamp, W. J., Journal of Magnetism and Magnetic Materials **44**, 59 (1984).

Mennenga, G., Jongh, L. J. d., Huiskamp, W. J., and Laursen, I., Journal of Magnetism and Magnetic Materials **44**, 48 (1984).

Mnyukh, Y., ArXiv e-prints (2011).

Morrish, A. H., *The physical principles of magnetism* (2001).

Nagata, S., Sasaki, H., Suzuki, K., Kiuchi, J., and Wada, N., Journal of Physics and Chemistry of Solids **62**, 1123 (2001).

Numazawa, T., Arai, O., Hu, Q., and Noda, T., Measurement Science and Technology **12**, 2089 (2001).

Numazawa, T., Kamiya, K., Okano, T., and Matsumoto, K., Physica B: Condensed Matter **329–333, Part 2**, 1656 (2003), proceedings of the 23rd International Conference on Low Temperature Physics.

Numazawa, T., Kamiya, K., Shirron, P., DiPirro, M., and Matsumoto, K., AIP Conference Proceedings **850**, 1579 (2006).

Onn, D. G., Meyer, H., and Remeika, J. P., Phys. Rev. **156**, 663 (1967).

Orlich, E., Hüfner, S., and Grünberg, P., Zeitschrift für Physik **231**, 144 (1970).

Padet, J. P. and Germain, P., *Fluides en écoulement : méthodes et modèles* (Masson Paris, 1991).

Paixao Brasiliano, D. A., Duval, J. M., Luchier, N., D'Escrivan, S., and André, J., in *Cryocoolers 19* (S. D. Miller, R. G. Ross, Jr., 2016) pp. 479 – 485.

Palacios, E., Rodriguez-Velamazán, J. A., Evangelisti, M., McIntyre, G. J., Lorusso, G., Visser, D., de Jongh, L. J., and Boatner, L. A., Phys. Rev. B **90**, 214423 (2014).

Perin, J. P., Hadacek, N., Viargues, F., and Chartier, J., "Effusion thermique pour l'azote et l'hélium entre 300 K et 10 K - Note SBT CT 99-39," .

Phillips, J. A., Ross, D., Taborek, P., and Rutledge, J. E., Phys. Rev. B **58**, 3361 (1998).

Pobell, F., *Matter and Methods at Low Temperatures*, 3rd ed. (Springer, 2007).

Prinz, G. A., Lewis, J. F. L., and Wagner, R. J., Phys. Rev. B **10**, 2907 (1974).

Rado, G. T., Solid State Communications **8**, 1349 (1970).

Ramirez, A. P., Hayashi, A., Cava, R. J., Siddharthan, R., and Shastry, B. S., Nature **399**, 333 (1999).

Reif, F., *Fundamentals of statistical and thermal physics* (Waveland Press, 2009).

Ross, K. A., Savary, L., Gaulin, B. D., and Balents, L., Phys. Rev. X **1**, 021002 (2011).

Roubeau, P., Der Nigohossian, G., and Avenel, O., Colloquie International : Vide et Froid, Grenoble (1969).

Savary, L., Ross, K. A., Gaulin, B. D., Ruff, J. P. C., and Balents, L., Phys. Rev. Lett. **109**, 167201 (2012).

Savinkov, A. V., Korableva, S. L., Rodionov, A. A., Kurkin, I. N., Malkin, B. Z., Tagirov, M. S., Suzuki, H., Matsumoto, K., and Abe, S., Journal of Physics: Condensed Matter **20**, 485220 (2008).

Shirron, P., Canavan, E., DiPirro, M., Tuttle, J., and Yeager, C., in *Advances in Cryogenic Engineering*, edited by Q.-S. Shu (Springer US, 2000) pp. 1629–1638.

Shirron, P. J., Cryogenics **62**, 130 (2014).

Shirron, P. J., Kimball, M. O., James, B. L., Wegel, D. C., Martinez, R. M., Faulkner, R. L., Neubauer, L., and Sansebastian, M., Cryogenics **52**, 165 (2012).

Slack, G. A. and Oliver, D. W., Phys. Rev. B **4**, 592 (1971).

Sosin, S., Prozorova, L., Smirnov, A., Golov, A., Berkutov, I., Petrenko, O., Balakrishnan, G., and Zhitomirsky, M., Physical Review B **71**, 094413 (2005).

Suomi, M., Anderson, A. C., and Holmström, B., Physica **38**, 67 (1968).

Tomokiyo, A., Yayama, H., Hashimoto, T., Aomine, T., Nishida, M., and Sakaguchi, S., Cryogenics **25**, 271 (1985).

Triqueneaux, S., Sentis, L., Camus, P., Benoit, A., and Guyot, G., Cryogenics **46**, 288 (2006).

Velazquez, M. and Veber, P., "Méthodes de cristallogenèse par solidification pour l'élaboration de cristaux massifs," (2015).

Veltruský, I., Czechoslovak Journal of Physics B **37**, 30 (1987).

Vilches, O. E. and Wheatley, J. C., Phys. Rev. **148**, 509 (1966).

Walker, P. J., Progress in Crystal Growth and Characterization **3**, 103 (1980).

Wells, M. R. and Worswick, R. D., Physics Letters A **42**, 269 (1972).

Wikus, P., Burghart, G., and Figueroa-Feliciano, E., Cryogenics **51**, 555 (2011).

Wikus, P., Canavan, E., Heine, S. T., Matsumoto, K., and Numazawa, T., Cryogenics **62**, 150 (2014).

Wolf, W. P., Schneider, B., Landau, D. P., and Keen, B. E., Phys. Rev. B **5**, 4472 (1972).

Wright, J. C., Moos, H. W., Colwell, J. H., Mangum, B. W., and Thornton, D. D., Phys. Rev. B **3**, 843 (1971).

Résumé

Cette thèse porte sur la recherche et l'amélioration de cryoréfrigérateurs à désaimantation adiabatique (ADR) pour la gamme 4 K - 50 mK. Ce refroidissement à 50 mK permettra de répondre aux besoins de réfrigération des détecteurs les plus sensibles envisagés pour les instruments des missions d'astrophysique. Ce réfrigérateur doit être efficace et de masse optimisée.

Les axes clefs de ce travail sont la mise au point d'une méthode d'identification de réfrigérants magnétiques de haute performance et le perfectionnement d'interrupteurs thermiques à gaz d'échange. Parmi les matériaux étudiés, le YbGG ($Yb_3Ga_5O_{12}$) a été identifié comme un excellent réfrigérant potentiel pour la gamme 1.5 K - 0.4 K, confirmé par sa caractérisation expérimentale. Les interrupteurs thermiques à gaz d'échange peuvent présenter des court-circuits thermiques transitoires dans les conditions particulières de fonctionnement de ce cryoréfrigérateur. Ce travail a permis de supprimer cet effet ou de le réduire de façon importante. Finalement, un prototype de cryoréfrigérateur constitué de 3 étages d'ADR en série, adapté pour les besoins des futures missions spatiales, a été dimensionné et fabriqué.

Mots clefs : Cryogénie spatiale, cryoréfrigérateur, ADR, matériaux paramagnétiques, interrupteurs thermiques à gaz d'échange.

Abstract

Highly sensitive detectors required for astrophysics missions demand temperatures of about 50 mK to operate with the targeted sensitivity. This PhD work is dedicated to the research and development of Adiabatic Demagnetization Refrigerators (ADR) for space in the 4 K - 50 mK range. In particular, this cryocooler is required to be efficient with optimized mass.

The key points of this work are the development of a method that allows the identification of highly efficient paramagnetic materials and the improvement of gas-gap heat switches. Among the studied materials, YbGG ($Yb_3Ga_5O_{12}$) was identified to have a great potential as a magnetic refrigerant in the 1.5 K - 0.4 K range, which was confirmed by its characterization. Transient thermal short circuits may appear on the gas-gap heat switches under the working conditions of this cryocooler. This study allowed us to suppress or to considerably attenuate this effect. Finally, a cryocooler prototype consisting of 3 ADR stages was designed and built.

Keywords : space cryogenics, cryocoolers, ADR, paramagnetic materials, gas-gap heat switches.