HAL
open science

Etude de la dynamique de l'3He liquide et de l'4He superfluide par diffusion inélastique de neutrons

Ketty Beauvois

To cite this version:

Ketty Beauvois. Etude de la dynamique de l'3He liquide et de l'4He superfluide par diffusion inélastique de neutrons. Physique Quantique [quant-ph]. Université Grenoble Alpes, 2016. Français. NNT : 2016GREAY094 . tel-01694041

HAL Id: tel-01694041

https://theses.hal.science/tel-01694041v1

Submitted on 26 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 de la matière condensée et du rayonnement**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Ketty Beauvois

Thèse dirigée par **Henri Godfrin**
et codirigée par **Björn Fåk et Jacques Ollivier**

préparée au sein **de l'Institut Laue Langevin et de l'Institut Néel-CNRS**
et de **l'Ecole Doctorale de Physique, Grenoble**

Etude de la dynamique de l'^{3}He liquide et de l'^{4}He superfluide par diffusion inélastique de neutrons

Thèse soutenue publiquement le **16 décembre 2016**,
devant le jury composé de :

Mme. Virginie Simonet
Directrice de recherche, Institut Néel-CNRS (Grenoble, France), Présidente
Mr. Jordi Boronat
Professeur, Université Polytechnique de Catalogne (Espagne), Rapporteur
Mr. Henry Glyde
Professeur émérite, Université de Delaware (Newark, USA), Rapporteur
Mr. Ken Andersen
Senior scientist, European Spallation Source ERIC (Lund, Suède), Examinateur
Mr. Christian Enss
Professeur, Université de Heidelberg (Allemagne), Examinateur
Mr. Henri Godfrin
Directeur de recherche émérite, Institut Néel (Grenoble), Directeur de thèse
Mr. Björn Fåk
Senior scientist, Institut Laue-Langevin (Grenoble), Co-Directeur de thèse

A mes parents,
A mon fiancé.

Remerciements

Il est très difficile de réaliser que l'on est enfin docteur car achever une thèse parait une épreuve insurmontable. Finalement, l'avancement de la thèse se fait grâce à l'entourage, à l'aide reçue. Je souhaite donc remercier toutes les personnes qui ont contribué directement ou indirectement à son aboutissement (en m'excusant par avance pour les éventuels oublis).

Pour commencer, merci à mes trois encadrants de thèse :

Henri Godfrin, merci de m'avoir encadrée avec pédagogie et de m'avoir soutenue et guidée durant ces trois années. Merci pour tous les précieux conseils que tu m'as donnés. Merci aussi pour m'avoir fait voyager au sens propre avec les conférences et écoles, comme au sens figuré à travers l'aventure de la thèse.

Björn Fåk, merci de m'avoir formée avec une grande rigueur à l'analyse des données neutroniques et à la rédaction scientifique, grâce à tes critiques constructives.

Jacques Ollivier, merci pour ton aide très efficace pour la mise en fonctionnement des programmes de diffusion multiple. Merci également pour toutes les connaissances que tu as partagées avec moi sur la diffusion neutronique.

Ensuite, je tiens à remercier les membres de mon jury. Merci à **Virginie Simonet** de m'avoir fait le grand plaisir d'accepter de présider ce jury. Merci à **Jordi Boronat** et **Henry Glyde** d'avoir rédigé les rapports et exprimé leur grand intérêt pour mon travail. Merci aux examinateurs **Christian Enss** et **Ken Andersen** d'avoir accepté de faire partie du jury.

Pour le montage de la dilution, merci à tous les membres du pôle cryogénie de l'Institut Néel. En particulier, un grand merci à **Sébastien Triqueneaux**. Ce fut un réel plaisir de travailler avec toi. Merci non seulement pour tout ce que tu m'as appris mais aussi

pour les conseils généraux que tu m'as donnés sur la thèse. Un grand merci également à **Olivier Tissot**.

Pour les simulations Monte Carlo, un grand merci à **Javier Dawidowski** de m'avoir transmis son programme et d'être venu jusqu'à Grenoble afin qu'on adapte ensemble son programme pour l'hélium.

En tant qu'expérimentatrice, j'aimerais remercier vivement pour leur travail et leur soutien théorique constant pendant cette thèse, **Eckhard Krotscheck** et **Thomas Lichtenegger**.

Merci aux directeurs de l'Institut Laue Langevin **Bill Stirling**, **Helmut Schober** et **Charles Simon** et aux directeurs successifs de l'Institut Néel **Alain Schuhl** et **Etienne Bustarret** de m'avoir accueillie dans leur laboratoire. Merci à l'ancien directeur du département MCBT de l'Institut Néel **Pierre-Etienne Wolf**, pour son très bon suivi des doctorants avec les entretiens annuels. Je tiens à remercier aussi tout le personnel technique et administratif de ces deux laboratoires. Merci à l'Institut Laue Langevin d'avoir financer cette thèse.

Merci à tous les (ex)-membres de l'équipe ultra-basse température pour votre très grande sympathie. Merci à **Eddy**, **Andrew**, **Olivier**, **Martial** et **Ana**. Un grand merci à mon prédécesseur **Ahmad** pour ton aide majeure et ton grand soutien apporté durant ma première année de thèse.

Je remercie toutes les personnes que j'ai côtoyées à l'Institut Laue Langevin. Merci à **Hannu** pour prendre si bien soin des thésards. Merci à **Serge** pour tes jolis clichés. Merci aux (ex)-thésards **Marco**, **Romain**, **Diane**, **Ana-Carolina**, **Frédéric**, **Lidia**, **Tanya**, **Tatiana**... Remerciement spécial à mes colocataires de bureau successives **Chiara** et **Barbara**, pour votre soutien et votre extrême gentillesse.

Je remercie toutes les personnes avec lesquelles j'ai interagi à l'Institut Néel, soit aux bâtiments E et K, soit au H2. Merci à **Thierry**, **Christophe**, **Josef**, **Hervé**, **Florence** pour m'avoir donné l'envie de faire une thèse. Bravo pour la superbe ambiance qui règne dans votre équipe dans laquelle j'ai adoré travailler en stages de master 1 et 2. Merci à **David**, **Edouard**, **Valérie**, **Benjamin**, **Rafik**, **Virginie**, **Elsa**... Merci aux (ex)-thésards **Emilie**, **Elodie**, **Gogo**, **Yannou**, **Marine**, **Alexis**, **Beatrix**, **Sylvain**, **Alex**,

Nicolas, **Pauline**, **Elie**, **Céline**, **Laure**, **Quentin**, **Ioan**, **Ovidiu**, **Laura**, **Valentin**, **Marlon**, **Hadrien**, **Bastien**... sans oublier bien sûr **José Ioan Mangelavoine**. Merci à mes colocataires de bureau **Mathias** et **Eduardo**, pour votre soutien et pour les nombreuses discussions distrayantes. Merci à bon nombre d'entre vous pour votre participation au basket.

Grâce aux écoles et conférences, j'ai rencontré pendant la thèse des personnes formidables que j'aimerais remercier pour les très bons moments passés ensemble. Merci à **Zuzka**, **Armelle**, **Silvia**, **Matteo**, **Manila**, **Samuli**, **Harriet**...

J'aimerais remercier aussi tous mes amis qui m'ont toujours soutenue, ainsi que mes professeurs. Merci à **Marine** et **Maxime**, **Mina**, **Thomas**, **Pauline**, **Yvrin**, **Jean-François Bernard**, **Bab** et **Mat**, **Lazare** et **Nadejda**, **Jimmy**, **Laurence**, **Pania** et **Farzad**...

Merci à ma grande famille. En particulier, un grand merci à mes parents pour m'avoir toujours encouragée et fait confiance. Un grand merci également à mes beaux-parents.

Je garde le meilleur pour la fin. Merci au plus beau de tous, mon fiancé **Karim** pour m'avoir toujours encouragée malgré mes très nombreux doutes. Merci pour l'immense aide que tu m'as apportée durant la thèse, notamment pour m'avoir initiée à Mathematica et pour les nombreux dépannages. Merci aussi pour toutes tes explications très claires et très imagées qui m'ont permis de mieux comprendre la physique et la théorie. Sans toi, c'est sûr, je ne serais jamais parvenue au bout de cette thèse ! Mille fois merci.

Table des matières

Introduction générale **1**

1 Introduction **3**

1.1 L'hélium 3

1.2 État de l'art des excitations dans l'^{4}He superfluide 5

1.2.1 Les excitations élémentaires 5

1.2.2 Les multi-excitations 7

1.3 État de l'art des excitations dans l'^{3}He liquide normal 9

1.3.1 Les excitations dans un gaz de Fermi 9

1.3.2 Théorie phénoménologique de Landau des liquides de Fermi . . . 9

1.3.3 Modèle approximation de la phase aléatoire 10

2 Diffusion inélastique de neutrons **15**

2.1 Diffusion de neutrons 15

2.1.1 Le neutron : une sonde idéale 15

2.1.2 Section efficace de diffusion 16

2.1.3 Facteur de structure dynamique 21

2.2 Spectroscopie temps de vol 23

2.2.1 Principe 23

2.2.2 Spectromètre temps de vol IN5 25

3 Calcul de la diffusion multiple par Monte Carlo **31**

3.1 Introduction 31

3.1.1 Définition 32

3.1.2 État de l'art 32

3.2 Calcul Monte Carlo 33

3.3 Validation croisée de trois programmes Monte Carlo 35

3.3.1 Paramètres d'entrée 35

3.3.2 MScat 36
3.3.3 McStas 42
3.3.4 Programme de Dawidowski 44
3.3.5 Conclusion : avantages et inconvénients de chaque programme . . 46

4 Dynamique de l'^{4}He superfluide au delà des excitations à une particule 47
4.1 Introduction 47
4.2 Description de l'expérience 47
4.3 Traitement des données 48
4.3.1 Soustraction de la diffusion de la cellule 48
4.3.2 Correction de l'efficacité des détecteurs 50
4.3.3 Transformation du temps de vol en énergie de transfert 53
4.3.4 Transformation de l'angle de diffusion en vecteur d'onde de transfert 53
4.3.5 Normalisation 54
4.4 Cartographie des données 54
4.4.1 Résultats à la pression de vapeur saturante 55
4.4.2 Résultats à P=24 bars 56
4.5 Détermination du facteur de structure 57
4.5.1 A la pression de vapeur saturante 57
4.5.2 A P=24 bars 59

5 Identification des multi-excitations 61
5.1 Introduction 61
5.2 Estimation rapide de la fraction de diffusions multiples 62
5.3 Simulation Monte Carlo 63
5.3.1 Méthode 1 : Entrée S(Q,ω) = courbe phonon-maxon-roton expérimentale 63
5.3.2 Méthode 2 : Entrée S(Q,ω) = Données expérimentales brutes combinant deux longueurs d'onde 69
5.3.3 Bilan : programme utilisé et méthode retenue 73
5.3.4 Dépendance des diffusions multiples avec la longueur d'onde . . . 73
5.4 Identification des multi-excitations 74
5.5 Conclusion 75

6 Comparaison directe de l'expérience avec la théorie dynamique à N-corps 79
6.1 Introduction 79

6.2 Description de la théorie 79
6.3 Comparaison de la théorie avec l'expérience 81
6.3.1 A la pression de vapeur saturante 81
6.3.2 Sous pression 87
6.4 Conclusion 92

7 Interactions entre quasi-particules dans l'^{4}He superfluide 93
7.1 Introduction 93
7.2 Détermination de ϵ_Q, Z_Q et W_Q 93
7.2.1 Ajustements 94
7.2.2 Résultats 98
7.3 Paramètres Δ_R, Q_R et μ_R du roton 100
7.3.1 Ajustements 100
7.3.2 Résultats 104
7.3.3 Comparaison avec la littérature 104
7.4 Vitesse du son C_0 et mise en évidence de la dispersion anormale 107
7.4.1 Ajustement 107
7.4.2 Vitesse du son C_0 109
7.4.3 Dispersion anormale 110
7.5 Détermination du coefficient A d'interaction roton-phonon 112
7.5.1 Relation pression-masse volumique 113
7.5.2 Détermination de Δ''_R 114
7.5.3 Détermination de Q'_R 115
7.5.4 Calcul du coefficient d'interaction roton-phonon A 117
7.6 Interaction maxon-deux rotons à P=24 bars 119
7.6.1 Ajustements 119
7.6.2 Résultats 119
7.7 Interactions à quatre rotons et à trois phonons 124
7.8 Conclusions et perspectives 127

8 Dynamique de l'^{3}He liquide normal 129
8.1 Introduction 129
8.2 Description de l'expérience 129
8.3 La cellule expérimentale pour l'^{3}He 130
8.3.1 Conception 130
8.3.2 Réalisation 133
8.3.3 Orientation par rapport au faisceau incident 138

8.3.4 Condensation de l'hélium 139
8.4 Traitement des données expérimentales 140
8.4.1 Diffusion de la cellule vide 140
8.4.2 Lissage de la cellule vide 141
8.4.3 Correction de l'atténuation 142
8.4.4 Normalisation 143
8.5 Résultats préliminaires 143
8.5.1 Carte du facteur de structure dynamique de l'^{3}He liquide normal . 143
8.5.2 Comparaison de l'expérience avec la théorie dynamique à N-corps 147
8.6 Conclusion 152
8.7 Perspectives 152

Conclusion générale **153**

Références **155**

Annexes **167**

A Réduction des données dans Lamp **167**

B Modèle McStas **169**

C Calcul de l'écrantage par le cadmium **173**

D Calcul de l'atténuation dans l'échantillon **175**

E Cryostat adapté aux instruments temps de vol **177**

Introduction générale

La compréhension de la dynamique des systèmes quantiques à N-corps est un challenge pour la physique moderne. Expérimentalement, le problème peut être abordé par l'étude des fluides quantiques comme l'^{4}He superfluide (bosons) et l'^{3}He liquide (fermions) à très basse température. Parce qu'ils peuvent être obtenus très purs, l'^{4}He et l'^{3}He liquide sont des systèmes modèles et servent à l'étude des systèmes fortement corrélés des particules bosoniques et fermioniques. Par exemple, la physique de l'^{3}He liquide est similaire à celle des métaux.

L'objectif de cette thèse est de montrer que les interactions jouent un rôle majeur sur la dynamique de l'hélium. Pour cela, est étudiée la réponse de l'hélium à une perturbation extérieure. Pour calculer cette réponse, de nombreuses théories prennent en compte des fluctuations à une particule, mais les théories les plus récentes montrent que ce n'est pas suffisant pour décrire le spectre réel des excitations et obtenir des résultats quantitatifs. Il est nécessaire de prendre en compte des fluctuations dynamiques à deux voire trois particules ce qui complexifie beaucoup le problème.

La motivation principale de cette thèse est d'obtenir une signature expérimentale inédite de ces interactions grâce à la nouvelle performance de l'instrument IN5 à l'Institut Laue Langevin.

Nous ferons d'abord un état de l'art des excitations dans l'^{4}He superfluide et l'^{3}He liquide puis nous expliquerons la technique expérimentale de diffusion inélastique des neutrons qui permet de sonder ces excitations. Un chapitre est ensuite consacré au problème de la diffusion multiple dans le contexte général de la diffusion neutronique.

Nous montrerons ensuite les résultats des mesures de haute précision du facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide à la pression de vapeur saturante et sous pression (jusqu'à la pression de solidification). Les résultats seront comparés à un calcul dynamique à N-corps de la même quantité physique.

On étudiera ensuite les interactions entre quasi-particules dans l'^{4}He superfluide, à partir de l'analyse fine des excitations élémentaires et en utilisant des théories phénoménologiques

et des modèles simples. On regardera l'effet de la pression (densité) sur les excitations. L'étude sous pression est intéressante car les corrélations augmentent avec la pression, et les excitations reflètent ce changement.

Enfin, nous présenterons les résultats préliminaires expérimentaux sur la dynamique de l'^{3}He liquide à basse pression et ferons une comparaison avec les prédictions de la théorie dynamique à N-corps. Nous parlerons de la cellule expérimentale spécifique qu'il a fallu construire pour réaliser les mesures dont la difficulté réside dans la grande section efficace d'absorption des neutrons par l'^{3}He.

Chapitre 1

Introduction

Avec son Hamiltonien simple et son potentiel d'interaction très bien connu, l'hélium est un système modèle en physique de la matière condensée et sert notamment au test et au développement des théories à N-corps [1–4]. Celles-ci ont été développées pour décrire les systèmes de bosons et de fermions en interaction, et ont permis de nourrir progressivement leur compréhension. D'énormes progrès expérimentaux ont été apportés en même temps pour sonder leur dynamique, notamment en diffusion neutronique. Leur haut degré de corrélations fait de ces systèmes un sujet intensément étudié encore aujourd'hui. Ceci concerne des systèmes massifs [5], mais aussi à deux [6, 7], voire une dimension [8]. L'hélium est aussi un sujet actuel car il présente beaucoup d'applications. Un exemple est la production de neutrons ultra-froids à partir de processus de diffusion des excitations élémentaires ou des multi-excitations dans l'^{4}He superfluide [9]. L'hélium a aussi des applications en physiques des particules. Un article est paru cette année sur la détection de la matière noire grâce aux processus à deux excitations dans l'^{4}He superfluide [10].

1.1 L'hélium

L'hélium est, après l'hydrogène, le second élément le plus abondant et le plus léger de l'univers. Il possède deux isotopes stables ; l'^{4}He qui est l'élément le plus courant et l'^{3}He qui est très rare. Ces deux isotopes sont étudiés depuis très longtemps car ils présentent des propriétés physiques très intéressantes, en commençant par leurs diagrammes de phases atypiques, montrés en Figure 1.1. Contrairement aux liquides classiques qui deviennent solides lorsque la température décroît, l'hélium est le seul élément à rester liquide jusqu'à T=0 K. L'énergie de point zéro des atomes est trop élevée par rapport à l'énergie potentielle de Van der Waals pour permettre la solidification. Pour atteindre

l'état solide à T=0 K, il faut augmenter la pression à P=25 bars pour l'^{4}He et à P=34 bars pour l'^{3}He.

Les diagrammes de phases de l'^{4}He et l'^{3}He se ressemblent qualitativement, mais les transitions de phase ont lieu à des températures et pressions différentes. Ces différences sont liées en partie à la différence de masse atomique, mais surtout à la nature bosonique de l'^{4}He (qui a un spin total nul) et fermionique de l'^{3}He (qui a spin nucléaire 1/2). L'^{4}He se liquéfie en dessous de T=4.2 K à la pression atmosphérique et devient superfluide à T=2.17 K. Les transitions dans l'^{3}He ont lieu à des températures plus basses. L'^{3}He ne se liquéfie qu'en dessous de T=3.3 K et devient superfluide à une très basse température d'environ 1 mK.

L'^{4}He et l'^{3}He liquides sont appelés des fluides quantiques car leur longueur d'onde thermique de de Broglie $\lambda_T = \sqrt{2\pi\hbar^2/Mk_BT}$ devient égale ou supérieure aux distances inter-atomiques à basse température, dû à la faible masse M des atomes d'hélium. L'^{4}He obéit à la statistique quantique de Bose-Einstein et l'^{3}He à la statistique quantique de Fermi-Dirac. Une manifestation macroscopique de leur nature quantique est la superfluidité. Alors que dans l'^{4}He la superfluidité résulte d'une condensation de Bose-Einstein, le mécanisme de superfluidité dans l'^{3}He résulte de la formation de paires de Cooper, comme pour la supraconductivité.

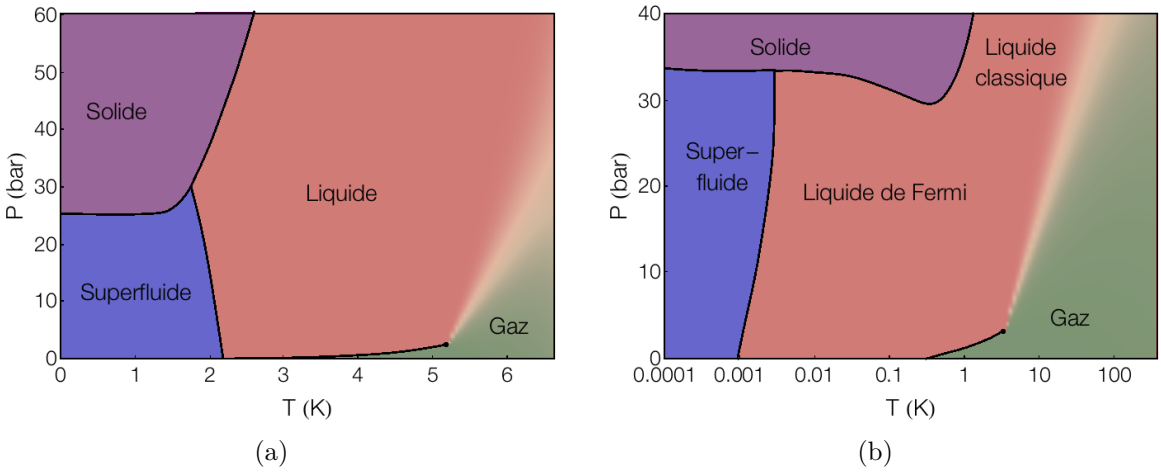


Figure 1.1: Diagrammes de phases pression-température de (a) l'^{4}He et (b) l'^{3}He.

1.2 État de l'art des excitations dans l'^{4}He superfluide

1.2.1 Les excitations élémentaires

Un unique mode phonon-maxon-roton de fluctuations de la densité

Pour connaître le développement des idées sur les excitations dans l'^{4}He superfluide, on peut se référer aux livres de Pines et Nozières [1], Glyde [5], et Griffin [11]. Les excitations élémentaires d'un fluide de Bose ont tout d'abord été décrites par Landau. En 1941, il proposa deux types d'excitations [12]. Le premier est appelée phonon et correspond à des fluctuations collectives de la densité. A bas vecteur d'onde, sa relation de dispersion est donnée par :

$$\epsilon_Q = C_0 \hbar Q, \tag{1.1}$$

où C_0 est la vitesse du son. Le second type d'excitation est appelée roton car suivant la première interprétation de Landau, il correspond à des rotations macroscopiques du fluide. Ces excitations rotationnelles ont un gap en énergie Δ_R, à $Q = 0$:

$$\epsilon_Q = \Delta_R + \frac{\hbar^2 Q^2}{2m^*}, \tag{1.2}$$

où m^* est la masse effective qui décrit la courbure du roton. Landau s'est ensuite aperçu en 1947 que sa définition du roton n'était pas appropriée [13]. Les excitations jusqu'à $Q \simeq 3$ Å^{-1} sont en fait un seul type d'excitations de fluctuations de la densité, avec le phonon qui est un mode de longue portée et le roton, un mode de courte portée. Il a rejoint les segments du phonon et du roton dans une unique relation de dispersion montrée en Figure 1.2. Le maximum de la relation de dispersion est appelé maxon. Le minimum est le roton qui est déplacé de $Q = 0$ à un vecteur d'onde fini Q_R :

$$\epsilon_Q = \Delta_R + \frac{\hbar^2 (Q - Q_R)^2}{2m^*}. \tag{1.3}$$

En 1954, Feynman a proposé une première description microscopique de la théorie des excitations dans l'^{4}He liquide en interaction forte [14]. Il a obtenu une équation variationnelle pour la fonction d'onde des états excités qui a pour valeur propre minimale en énergie :

$$\epsilon_Q = \frac{\hbar^2 Q^2}{2mS(Q)}, \tag{1.4}$$

où $S(Q)$ est le facteur de structure. Dans cette approche, le minimum du roton correspond au maximum de $S(Q)$. Le roton émerge d'atomes confinés dans une cage de rayon égal à la distance inter-atomique. A tous les vecteurs d'onde, les excitations suivent comme l'a proposé Landau une courbe de dispersion unique. En 1956, Feynman et Cohen ont amélioré la fonction d'onde en introduisant des corrélations dans les positions des atomes pour autoriser le « reflux » (backflow en anglais) des atomes voisins de l'atome excité. Cela a permis d'abaisser l'énergie du roton, qui était trop élevée avec la fonction d'onde précédente [voir la Figure 1.2]. On verra en **6.3** que le minimum du roton peut être encore abaissé en incluant des interactions entre les excitations, en utilisant par exemple les méthodes des fonctions de bases corrélées (Correlated Basis Functions (CBF) en anglais), qui sont une extension des théories de Feynman et Feynman et Cohen. Pour conclure sur l'origine physique du minimum du roton, une récente interprétation est donnée par Nozières qui argumente qu'il correspond à la localisation naissante des particules en interaction [15]. Des excitations similaires au roton ont été proposées dans les gaz d'atomes froids [16] et dans l'^{4}He unidimensionnel [8].

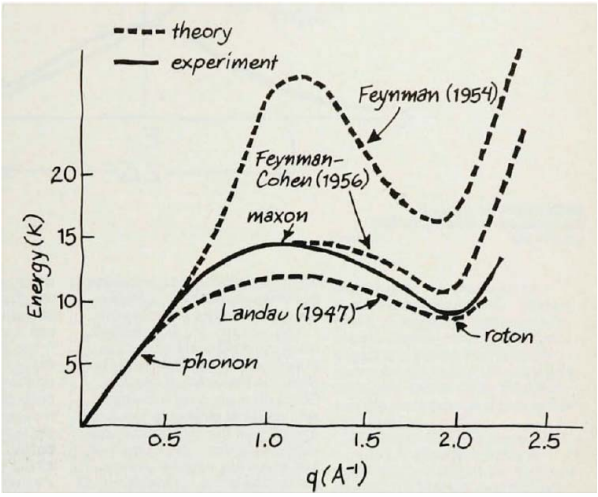


Figure 1.2: Relations de dispersion de l'^{4}He superfluide. Comparaison de l'expérience (ligne continue) avec les différentes théories (lignes pointillées). Image extraite de l'article de Pines de 1981 [17].

Lien entre les excitations du superfluide et le condensat

Une autre approche théorique pour décrire les excitations dans l'^{4}He superfluide consiste à étudier la fonction de réponse du fluide à une perturbation extérieure (comme le neutron).

Selon le modèle de Gavoret et Nozières de 1964, la fonction de réponse, donnée par la susceptibilité dynamique $\chi(Q,\omega)$, se décompose en deux parties [18] :

$$\chi(Q,\omega) = \Lambda(Q,\omega)G_1(Q,\omega)\Lambda(Q,\omega) + \chi_R(Q,\omega). \tag{1.5}$$

La première composante contient tous les termes qui impliquent les atomes dans le condensat de Bose Einstein et $\chi_R(Q,\omega)$ implique seulement les atomes en dehors du condensat. $G_1(Q,\omega)$ est la fonction de Green des excitations à une particule, et Λ est la fonction de vertex de la brisure de symétrie de Bose qui couple les excitations à une particule aux fluctuations de densité et qui décroît avec n_0, la fraction de condensat [1]. Cette théorie, qui prend en compte le condensat, montre que les excitations collectives dans le superfluide proviennent du condensat de Bose. En effet, dans l'^{4}He normal où il n'y a pas de condensat, il n'y a pas de phonon-maxon-roton, excepté à bas Q où de l'intensité provient de $\chi_R(Q,\omega)$.

1.2.2 Les multi-excitations

Miller et al [19] ont montré que la fonction d'onde de Feynman et Cohen contient la création à la fois des excitations à une particule et de paires. En considérant ceci et en s'appuyant sur des théories qui montrent qu'il est possible de rajouter des composantes additionnelles à la fonction de Green $G_1(Q,\omega)$ des excitations à une particule, ils ont proposé que le spectre total des excitations, donnée par la fonction de diffusion $S(Q,\omega)$ qui se mesure par diffusion inélastique de neutrons, peut s'écrire sous la forme :

$$S(Q,\omega) = S_1(Q,\omega) + S_m(Q,\omega) = Z_Q[\delta(\omega-\omega_Q) - \delta(\omega+\omega_Q)] + S_m(Q,\omega), \tag{1.6}$$

où $S_1(Q,\omega)$ correspond à la partie excitation élémentaire, c'est-à-dire à la courbe phonon-maxon-roton, avec Z_Q le poids des excitations à une particule et ω_Q leur énergie. Le premier terme de $S_1(Q,\omega)$ correspond à la création d'une excitation ($\omega = \omega_Q$) et le second terme correspond à l'absorption d'une excitation par le neutron ($\omega = -\omega_Q$). A T=0 K, seul le premier terme est non nul car il n'y a pas d'excitations thermiques. $S_m(Q,\omega)$ est la composante qui décrit les multi-excitations, c'est-à-dire la création ou destruction de deux ou plusieurs fluctuations de densité simultanément. L'hybridation possible entre les excitations élémentaires et les multi-excitations n'est pas prise en compte.

[1] La fraction de condensat à été déterminée par des théories et vérifiée par des mesures de diffusion neutronique difficiles et est approximativement de 10 % à la pression de vapeur saturante et à basse température.

La relation (1.6) a permis d'analyser les résultats expérimentaux. Les premières mesures qui montrent les deux contributions de $S(Q,\omega)$ ont été faites par Cowley et Woods [20]. Les résultats sont présentés en Figure 1.3. Pour la contribution des excitations élémentaires, on observe le mode très fin phonon-maxon-roton. On remarque que la dispersion au delà du roton ne va pas rejoindre l'énergie des particules indépendantes, mais elle rejoint ce que l'on appelle le plateau de Pitaevskii [21]. Ce plateau est issu de l'hybridation entre les excitations à une particule et les excitations à deux-particules et peut être décrit en combinant les théories de Gavoret et Nozières et de Zawadowski, Ruvalds et Solana (ZRS) [22, 23], comme ce qui est fait dans les articles [24–26]. Ensuite, au dessus de la courbe des excitations élémentaires est observé un large signal provenant de la contribution des multi-excitations. On retrouve ces multi-excitations dans beaucoup d'autres systèmes sous la forme de multi-phonons ou multi-magnons. Souvent, en diffusion inélastique de neutrons, elles constituent un signal parasite pour le signal détecté, comme c'est le cas par exemple pour l'eau, où il est nécessaire de soustraire les multi-phonons pour bien distinguer les excitations élémentaires qui sont déjà très larges [27]. En revanche, par spectroscopie Raman, il est possible de distinguer dans le graphène des pics pour les multi-phonons [28].

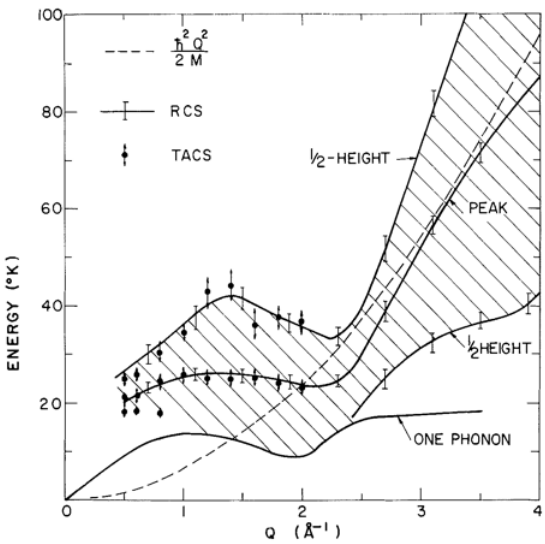


Figure 1.3: Spectre de la dépendance en énergie et vecteur d'onde des excitations à T=1 K, obtenu par diffusion inélastique de neutrons, par Cowley et Woods [20]. On observe à basse énergie la courbe de dispersion phonon-maxon-roton. A énergie intermédiaire, est montré le pic d'intensité des multi-excitations ainsi que les énergies basse et haute correspondant à la moitié de l'intensité du pic. Est représentée aussi l'énergie des atomes sans interaction $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M}$.

1.3 État de l'art des excitations dans l'^{3}He liquide normal

1.3.1 Les excitations dans un gaz de Fermi

Avant de décrire les excitations dans l'^{3}He liquide normal, considérons tout d'abord les excitations dans un gaz de fermions sans interaction. A cause du Principe d'exclusion de Pauli, on peut associer au plus deux atomes de spin opposé +1/2 et -1/2 à chaque vecteur d'onde $\vec{k}$. Le volume de l'espace des $\vec{k}$ occupés par l'ensemble des atomes correspond à une sphère de rayon k_f, où k_f est appelé le vecteur d'onde de Fermi. Ce dernier ne dépend que de la densité atomique n, $k_f = (3\pi^2 n)^{1/3}$ et a pour valeur dans l'^{3}He, k_f=0.785 Å^{-1}, à P=0 bar. L'existence de la sphère de Fermi implique des excitations de type particule-trou. Ces dernières sont produites lorsqu'une particule est propulsée de son état à l'intérieur de la sphère de Fermi vers un état vide à l'extérieur, laissant un trou à la place. L'énergie de telles excitations est donnée par :

$$\omega_Q = \epsilon_{\vec{k}+\vec{Q}} - \epsilon_{\vec{k}} = \frac{\hbar^2}{2m}(Q^2 + 2\vec{k}\cdot\vec{Q}). \tag{1.7}$$

L'ensemble des excitations particule-trou forme la bande particule-trou qui a une largeur $2k_f$ en vecteur d'onde [voir la Figure 1.4 (a)].

1.3.2 Théorie phénoménologique de Landau des liquides de Fermi

L'^{3}He liquide normal est un liquide de Fermi. Ce dernier peut être décrit comme une collection de quasi-particules fermioniques baignant dans un champ auto-cohérent provenant des autres fermions. L'image des quasi-particules est la base de la théorie phénoménologique de Landau des liquides de Fermi [1, 5, 29, 30]. La plupart de l'interaction entre les particules de Fermi peut être incorporée dans le champ auto-cohérent. Ce champ est représenté en assignant une masse effective m^* aux particules et en les appelant quasi-particules. La masse effective déterminée par Landau pour décrire les mesures thermodynamiques et de transport de l'^{3}He liquide est m^*=2.8M_3, avec M_3 la masse de l'atome d'^{3}He. L'origine de la masse effective dans l'^{3}He liquide de Fermi est l'interaction entre les quasi-particules, via les fluctuations de densité et de densité de spin. Des paramètres empiriques, notés $F^{s,a}_{0,1}$ et appelés paramètre de Landau, sont pris en compte pour décrire cette interaction.

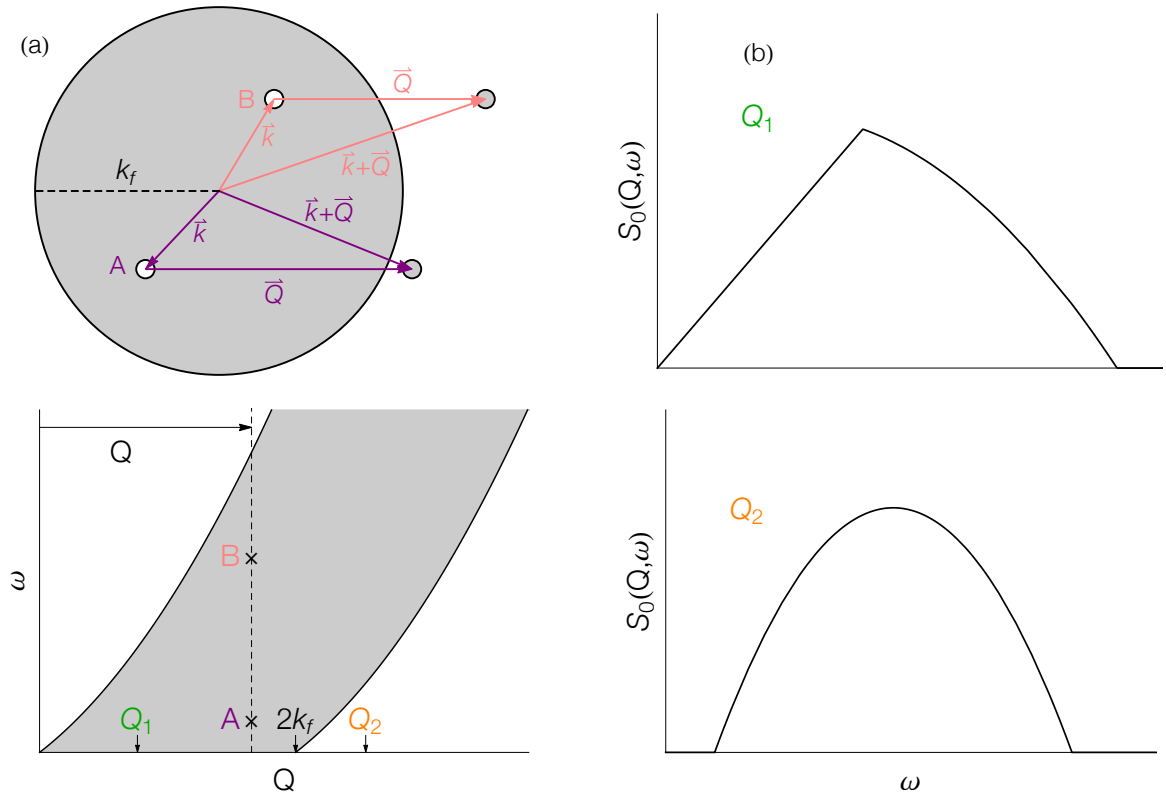


Figure 1.4: (a) Surface de Fermi de rayon k_f avec des excitations particule-trou A et B et la bande des états particule-trou autorisés. (b) $S_0(Q,\omega)$ en fonction de ω à un vecteur d'onde inférieur à $2k_f$ ($Q_1 = 0.8$ Å^{-1}) et supérieur à $2k_f$ ($Q_2 = 2$ Å^{-1}), dans l'^{3}He liquide normal. Figure s'appuyant sur la Figure 14.4 du livre de Glyde [5].

1.3.3 Modèle approximation de la phase aléatoire

Le modèle utilisé pour décrire la dynamique de l'^{3}He liquide de Fermi est l'approximation de la phase aléatoire (Random Phase Approximation (RPA) en anglais) [1, 2, 5]. Dans ce modèle, la susceptibilité dynamique $\chi(Q,\omega)$ est donnée par :

$$\chi(Q,\omega)_{c,I} = \frac{\chi_0(Q,\omega)}{1 - \tilde{V}_{s,a}(Q,\omega)\chi_0(Q,\omega)} \tag{1.8}$$

où $\chi_0(Q,\omega)$ est la fonction de réponse non-interagissante (pour un gaz de fermions) appelée fonction de Lindhard et $\tilde{V}_{s,a}(Q,\omega)$ le potentiel approprié pour définir les interactions particule-trou du liquide de Fermi. χ_c est la composante de fluctuations de la densité et est liée à $\tilde{V}_s$ qui représente l'interaction particule-trou de spin symétrique. χ_I est

la composante de fluctuations de spin et est liée à $\tilde{V}_a$ qui correspond à l'interaction particule-trou de spin antisymétrique.

Sans interaction

La fonction $\chi_0(Q,\omega)$ est donnée par :

$$\chi_0(Q,\omega) = \frac{2}{V}\sum_k \frac{n_{\vec{k}} - n_{\vec{k}+\vec{Q}}}{\omega + i\eta - (\epsilon_{\vec{k}+\vec{Q}} - \epsilon_{\vec{k}})} \tag{1.9}$$

où $n_{\vec{k}} = n^0_{\vec{k}}$ est la fonction de Fermi sans interaction et V est le volume. Le facteur 2 est lié à la dégénérescence de spin. L'énergie $\epsilon_k = \epsilon^0_k$ avec ϵ^0_k l'énergie des particules libres $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M_3}$.

La bande particule-trou

Les pôles de la fonction $\chi_0(Q,\omega)$ sont situés à l'énergie $\omega = (\epsilon_{\vec{k}+\vec{Q}} - \epsilon_{\vec{k}})$, correspondant à l'énergie des excitations de la bande particule-trou. La Figure 1.4 (b) montre l'intensité des excitations particule-trou $S_0(Q,\omega) \propto \Im[\chi_0(Q,\omega)]$ en fonction de ω. $S_0(Q,\omega)$ est donné pour un vecteur d'onde $Q_1 < 2k_f$ et pour un vecteur d'onde $Q_2 > 2k_f$. Pour $Q < 2k_f$, l'intensité $S_0(Q,\omega)$ augmente d'abord linéairement avec l'énergie puis décroît. Pour $Q > 2k_f$, $S_0(Q,\omega)$ est une simple parabole centrée à l'énergie de recul E_r.

Avec interaction

Le potentiel d'interaction $\tilde{V}_{s,a}(Q,\omega)$ est représenté à l'aide des paramètres empiriques de Landau $F^{s,a}_{0,1}$:

$$\left(\frac{dn}{d\epsilon}\right)\tilde{V}_{s,a}(Q,\omega) = F^{s,a}_0 + \frac{F^{s,a}_1}{1 + F^{s,a}_1/3}\left(\frac{\omega}{v_F Q}\right)^2 \tag{1.10}$$

où $dn/d\epsilon = m^* k_f/\hbar\pi^2$ est la densité d'états par unité de volume pour les deux états de spin à la surface de Fermi et la masse effective est $m^* = m(1 + F^s_1/3)$.

Le zéro son

Dû à la répulsion de cœur dur entre les atomes d'hélium, l'interaction $\tilde{V}_s(Q,\omega)$ est suffisamment forte pour créer un pôle dans la fonction de réponse, ce qui induit un mode collectif de fluctuations de la densité appelé zéro-son. Ce dernier a une dispersion linéaire à bas vecteur d'onde ; il est l'analogue du phonon. Il a ensuite une courbure négative à des vecteurs d'onde intermédiaires et entre finalement dans la bande particule-trou

où il décroît en excitant des excitations particules-trous, produisant ce qui est appelé l'amortissement de Landau [voir la Figure 1.5].

Le paramagnon

L'interaction d'échange de spin $\tilde{V}_a(Q,\omega)$ est trop faible pour créer un pôle ; elle créée néanmoins une résonance avec la bande particule-trou induisant un mode de fluctuations de spin, lié aux corrélations entre les spin nucléaires. Ce mode est appelé paramagnon en analogie avec les systèmes magnétiques. Il est situé plus précisément à basses énergies et domine le spectre à bas vecteurs d'onde [voir la Figure 1.5].

Modèle $m^*(k)$

De l'idée établie que la masse effective est maximale à la surface de Fermi, $m^*(k_f) = 2.8$, et proche de $m^* = 1$ loin de la surface de Fermi, Glyde et Fåk ont développé un modèle de la RPA où la masse effective varie en fonction de k [31]. L'énergie à une particule de la fonction $\chi_0(Q,\omega)$ est calculée à partir d'un modèle pour la masse effective $m^*(k)$:

$$\frac{d\epsilon_k}{dk} = \frac{\hbar}{M_3}\frac{k}{m^*(k)} \tag{1.11}$$

avec $m^*(k)$ donnée en unité de la masse M_3 :

$$m^*(k) = m_0 + \frac{(m^* - m_0)}{2}\left[1 + \cos\left\{\frac{(k-k_f)\pi}{fk_f}\right\}\right] \tag{1.12}$$

où les paramètres f et m_0 sont des paramètres ajustables. Le paramètre f détermine la gamme en énergie pour laquelle m^* décroît de 2.8 à m_0. Les valeurs de ces paramètres ont été déterminées par Fåk *et al* à partir de mesures neutroniques et sont de $f = 0.35$ et $m_0 = 1.7$. La Figure 1.6 compare l'intensité $S_0(Q,\omega)$ obtenue avec le modèle $m^*(k)$ avec celle obtenue en prenant en compte l'énergie des particules libres $\epsilon_k = \epsilon_k^0$ et une masse effective $m^* = 1$ puis $m^* = 2.8$. Le maximum d'intensité avec $m^* = 2.8$ est 2.8 fois plus grand qu'avec $m^* = 1$ et également $S_0(Q,\omega)$ est localisé à une énergie plus basse d'un facteur de 2.8. Avec le modèle $m^*(k)$, on observe un fort décalage vers les basses énergies et une augmentation du maximum de l'intensité reflétant le fait que $m^*(k_f) = 2.8$, mais également une queue en énergie plus importante après le maximum. Ce dernier modèle avec la prise en compte d'une dépendance en Q des paramètres de Landau $F^{s,a}_{0,1}(Q)$, reproduit très bien les résultats expérimentaux [32–34] jusqu'à Q=1 Å^{-1}, à T=0.1 K et permet d'expliquer la dépendance en température de la chaleur spécifique [34].

Au delà de Q=1 Å^{-1}, il est nécessaire d'inclure des états à deux particules dans la théorie car les processus de multi-excitations sont importants. Nous verrons en **8.5.2** que l'inclusion d'états deux-particules-deux-trous [3] permet un accord avec nos nouveaux résultats expérimentaux sur une large gamme du spectre des excitations.

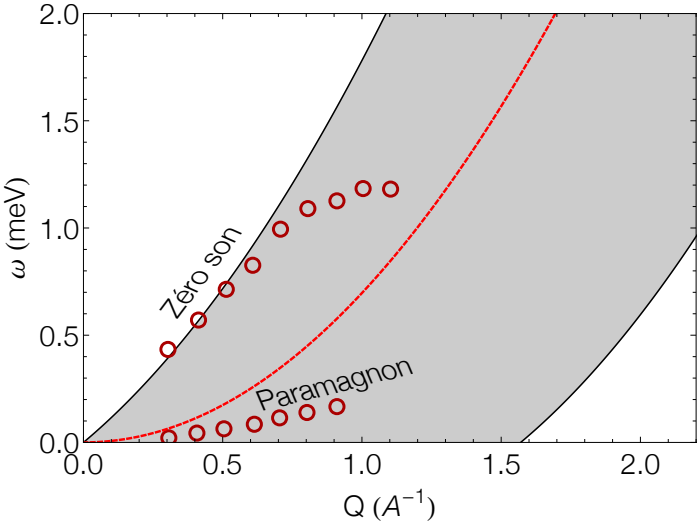


Figure 1.5: Les excitations dans l'^{3}He liquide normal. Les points en rouge correspondent aux mesures effectuées par Sköld *et al* [35]. La ligne rouge en pointillées représente l'énergie des atomes d'^{3}He sans interaction, $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M_3}$. Est représentée aussi la bande des états particule-trou autorisés d'un gaz de Fermi.

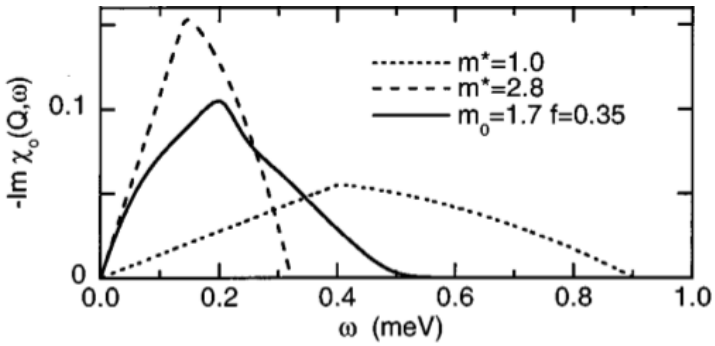


Figure 1.6: Comparaison de l'intensité $S_0(Q,\omega) \propto \Im[\chi_0(Q,\omega)]$ à $Q = 0.6$ Å^{-1} calculée avec le modèle $m^*(k)$ de Fåk *et al* [31], avec l'intensité obtenue en prenant en compte l'énergie des particules libres et une masse effective $m^* = 1$ puis $m^* = 2.8$.

Chapitre 2

Diffusion inélastique de neutrons

La diffusion neutronique est un outil formidable pour l'étude de nombreuses propriétés de la matière condensée. Dans cette thèse, nous souhaitons sonder la dynamique de l'hélium liquide par la diffusion inélastique de neutrons, en utilisant les méthodes neutroniques qui sont décrites notamment dans les ouvrages de Squires [36] et de Schober [37].

2.1 Diffusion de neutrons

2.1.1 Le neutron : une sonde idéale

Bertram Brockhouse, prix Nobel de physique en 1994 a dit : « if the neutron did not exist, it would need to be invented». Le neutron, particule découverte par Chadwick en 1932, présente des propriétés uniques [voir la colonne de gauche du tableau de la Figure 2.1 a)] qui en font une sonde de haute précision. Tout d'abord, le neutron possède une charge nulle. Il n'est donc pas diffusé via la force électromagnétique de Coulomb mais principalement via les interactions nucléaires fortes et les interactions magnétiques. Il peut ainsi pénétrer en profondeur dans la matière et sonder le volume de l'échantillon contrairement aux rayons-X par exemple, qui ne sondent que la surface. Ensuite, le neutron possède un spin 1/2.

A l'ILL, les neutrons sont produits par fission de l'^{235}U dans un réacteur nucléaire. En sortie du réacteur, les neutrons ont une très grande énergie, de l'ordre du MeV. Ils sont ralentis par l'eau lourde qui joue le rôle de modérateur. A proximité immédiate du réacteur, l'ILL dispose de trois sources permettant de produire des neutrons de différentes énergies, des neutrons épithermiques aux neutrons ultra-froids [1] [voir la Figure 2.1 b)].

[1] Une application de l'hélium est qu'il est utilisé dans la production de la nouvelle source de neutrons ultra-froids à l'ILL. En effet, dans la nouvelle source, des neutrons froids sont projetés à 450 mètres par

Ces neutrons peuvent être décrits par des ondes planes de longueur d'onde λ et de vecteur d'onde $\vec{k}$ [voir la colonne de droite du tableau de la Figure 2.1 a)]. Les neutrons thermiques à la température ambiante T = 300 K ont une vitesse v = 2200 m.s^{-1}, une longueur d'onde λ = 1.8 Å et une énergie E = 25 meV. Une autre caractéristique du neutron est que la longueur d'onde des neutrons thermiques, du fait de la masse des neutrons, est de l'ordre de grandeur des distances interatomiques dans les liquides et les solides, c'est-à-dire de l'ordre de l'Ångström. Cela induit des effets d'interférences permettant de sonder les corrélations entre les positions des atomes.

Enfin, les neutrons choisis pour nos expériences sont les neutrons froids, dont l'énergie est comprise entre 1 et 10 meV, du même ordre de grandeur que l'énergie des excitations de l'hélium, ce qui fait du neutron une sonde idéale pour notre étude.

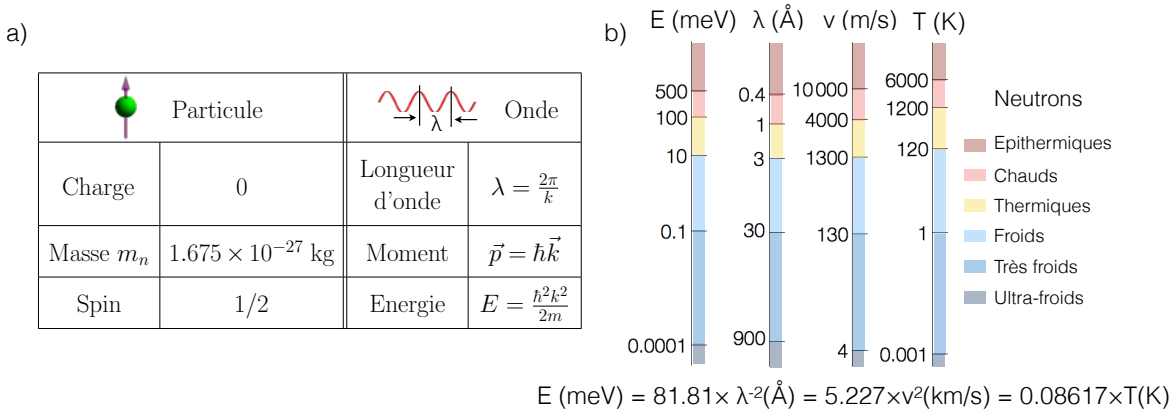


Figure 2.1: a) Propriétés du neutron et relations reliant la longueur d'onde λ, l'énergie E et le vecteur d'onde $\vec{k}$ du neutron, qui est à la fois une particule et une onde.
b) Classification des neutrons avec l'équivalence entre l'énergie E, la longueur d'onde λ, la norme de la vitesse v et la température T.

2.1.2 Section efficace de diffusion

Lors d'une expérience de diffusion neutronique, un neutron incident de vecteur d'onde $\vec{k}_i$ et d'énergie E_i est diffusé par une cible composée de noyau d'atomes dans un angle solide $d\Omega$ et a dans son état final un vecteur d'onde $\vec{k}_f$ et une énergie E_f [voir le schéma a) de la Figure 2.2]. La quantité mesurée dans les détecteurs est la double section efficace

seconde dans de l'^{4}He superfluide, pour qu'ils créent des phonons, leur faisant perdre une grande partie de leur énergie cinétique et les rendant ainsi ultra-froids.

différentielle partielle $\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}$. Cette dernière a la dimension d'une surface divisée par une énergie et s'exprime :

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f} = \text{(nombre de neutrons diffusés par seconde dans un petit angle solide } d\Omega\text{, dans la direction } (\phi,\varphi) \text{ et avec une énergie comprise entre } E_f \text{ et } E_f + dE_f) \,/\, (\phi_n d\Omega dE_f) \tag{2.1}$$

où ϕ_n est le flux de neutrons incident, c'est-à-dire le nombre de neutrons incidents par unité d'aire et par seconde. On peut définir à partir de $\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}$ une section efficace totale de diffusion σ_{tot} par :

$$\sigma_{tot} = \int\int \frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f} d\Omega dE_f. \tag{2.2}$$

Cette section efficace totale se mesure en barn et correspond à la surface que perçoit l'onde incidente. Dans le cas d'une diffusion par une sphère dure de rayon r_0, on obtient $\sigma_{tot} = 4\pi r_0^2$. Classiquement, on aurait eu $\sigma_{tot} = \pi r_0^2$, ce qui montre l'aspect ondulatoire.

Interaction neutron-noyau [2]

Lors du processus de diffusion, l'état du neutron change de $|\vec{k}_i\rangle$ à $|\vec{k}_f\rangle$ et l'état du système diffusé change de $|\lambda_i\rangle$ à $|\lambda_f\rangle$. Il y a conservation de l'énergie : $E_f - E_i = E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}$. La probabilité de transition d'un état $|\vec{k}_i, \lambda_i\rangle$ a un état $|\vec{k}_f, \lambda_f\rangle$ est donnée par la règle d'or de Fermi.

$$\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{\lambda_i\to\lambda_f} = \frac{k_f}{k_i}\left(\frac{m_n}{2\pi\hbar^2}\right)^2 |\langle\lambda_f, \vec{k}_f|V|\lambda_i, \vec{k}_i\rangle|^2 \delta(E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f} + E_i - E_f). \tag{2.3}$$

Cette équation est appelée équation maîtresse de la neutronique. Le delta de Dirac symbolise la conservation de l'énergie. V est le potentiel d'interaction du neutron avec le système diffusé. Pour évaluer l'élément de matrice de l'équation (2.3), il faut tout d'abord donner une forme au potentiel. Comme vu ci-dessus, le neutron interagit avec le noyau des atomes par l'intermédiaire des forces nucléaires dont la portée est courte, de l'ordre du femtomètre. Cette distance d'interaction est petite devant la longueur d'onde des neutrons thermiques. Résultant de la théorie de la diffusion, cela implique que celle-ci est isotrope. Fermi suggéra que dans ces conditions, on peut remplacer le

[2] Il existe aussi une interaction magnétique qui ne sera pas décrite dans cette thèse.

potentiel interatomique par un pseudo-potentiel qui s'exprime dans le cas de la diffusion par un seul noyau j situé à l'origine :

$$V_j(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} b_j \delta(\vec{r}), \tag{2.4}$$

où $\vec{r}$ est la coordonnée du neutron et b est la longueur de diffusion du potentiel qui permet de décrire la force de l'interaction. Cette longueur de diffusion est une constante qui a la dimension d'une longueur. Elle est réelle dans la plupart des cas (complexe si le système absorbe fortement les neutrons) et peut être positive ou négative suivant que l'interaction neutron-noyau soit répulsive ou attractive. Le potentiel pour le système entier de diffusion composé de N noyaux s'écrit :

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \sum_{j=1}^{N} b_j \delta(\vec{r} - \vec{R}_j), \tag{2.5}$$

où $\vec{R}_j$ est l'opérateur de position du noyau j. Maintenant que l'on a une forme pour le potentiel, l'évaluation de l'élément de matrice se fait par intégration par rapport à $\vec{r}$. Enfin, pour déterminer $\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}$, il faut sommer sur tous les états finaux $|\lambda_f\rangle$ en gardant l'état initial $|\lambda_i\rangle$ fixe et ensuite faire la moyenne statistique sur tous les $|\lambda_i\rangle$. On obtient ainsi :

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}(\vec{Q},\omega) = \frac{k_f}{k_i}\frac{1}{2\pi\hbar}\sum_{j,j'} b_j b_{j'}^* \int_{-\infty}^{\infty} \langle e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{R}_{j'}(0)} \times e^{i\vec{Q}\cdot\vec{R}_j(t)}\rangle\, e^{-i\omega t} dt, \tag{2.6}$$

avec $\vec{Q} = \vec{k_i} - \vec{k_f}$ est le vecteur d'onde transféré du neutron à la cible. Les trois vecteurs $\vec{Q}$, $\vec{k_i}$ et $\vec{k_f}$ forment ce que l'on appelle le triangle de diffusion [voir le schéma b) de la Figure 2.2]. L'énergie transférée est $\hbar\omega = E_i - E_f$. Pour simplifier les notations, on omet $\hbar$ et elle sera notée par la suite ω.

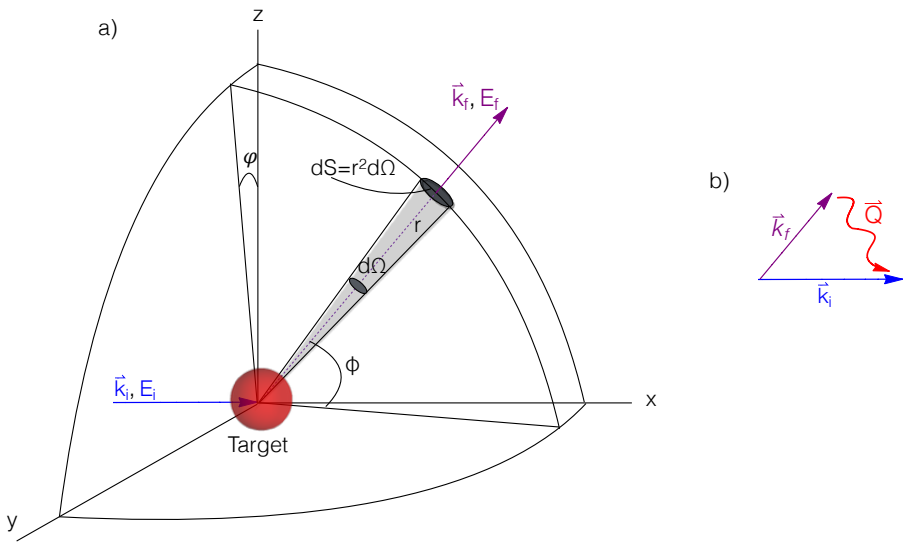


Figure 2.2: a) Schéma de la diffusion d'un faisceau de neutrons par un échantillon. b) Triangle de diffusion.

Diffusion cohérente et incohérente

La double section efficace différentielle de diffusion peut se décomposer en deux termes :

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f} = \left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{coh} + \left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{I}, \tag{2.7}$$

avec

$$\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{coh} = \frac{\sigma_{coh}}{4\pi}\frac{k_f}{k_i}\frac{1}{2\pi\hbar}\sum_{j,j'}\int_{-\infty}^{\infty}\langle j',j\rangle\, e^{-i\omega t}dt \tag{2.8}$$

et

$$\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{I} = \frac{\sigma_{inc}}{4\pi}\frac{k_f}{k_i}\frac{1}{2\pi\hbar}\sum_{j,j'}\int_{-\infty}^{\infty}\left\langle\frac{1}{I(I+1)}\hat{I}_j\cdot\hat{I}_{j'}\; j',j\right\rangle e^{-i\omega t}dt. \tag{2.9}$$

On a posé $\langle j',j\rangle = \langle e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{R}_{j'}(0)} \times e^{i\vec{Q}\cdot\vec{R}_j(t)}\rangle$. $\hat{I}_j$ est l'opérateur de spin du noyaux j. Le terme $\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{coh}$ correspond à la diffusion que l'on nomme « cohérente» et le terme $\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{I}$ à la diffusion dépendante du spin nucléaire I. A ces grandeurs, sont associées les sections efficaces cohérente σ_{coh} et incohérente σ_{inc} que nous allons expliciter plus bas. En l'absence de corrélations entre les spins nucléaires, le deuxième terme s'écrit :

$$\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{inc} = \frac{\sigma_{inc}}{4\pi}\frac{k_f}{k_i}\frac{1}{2\pi\hbar}\sum_{j}\int_{-\infty}^{\infty}\langle j,j\rangle\, e^{-i\omega t}dt. \tag{2.10}$$

où $\left(\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}\right)_{inc}$ correspond à la diffusion dite « incohérente». Dans le cas de la diffusion cohérente, les ondes sphériques des neutrons diffusées par différents noyaux j et $j' \neq j$ interfèrent entre elles. Dans le cas de la diffusion incohérente, les intensités diffusées par chaque noyau s'ajoutent indépendamment. Les diffusions cohérente ou incohérente peuvent être élastique ou inélastique. La diffusion cohérente élastique renseigne sur la structure du système (décrite par les pics de Bragg). Celle inélastique informe sur les mouvements collectifs des atomes (comme les phonons par exemple). En ce qui concerne la diffusion incohérente, celle élastique constitue souvent un bruit de fond. Celle inélastique traduit les comportements individuels (comme ceux résultant de la diffusion atomique ou encore de la vibration des molécules). Enfin, la diffusion quasi-élastique permet d'étudier par exemple la relaxation dans les liquides visqueux.

La diffusion cohérente ou incohérente est dictée par la composition isotopique du système. En effet, pour un réseau monoatomique, les sections efficaces de diffusion cohérente et incohérente s'expriment [3] :

$$\sigma_{coh} = 4\pi\bar{b}^2 \tag{2.11}$$

et

$$\sigma_{inc} = 4\pi(\overline{b^2} - \bar{b}^2). \tag{2.12}$$

Elles dépendent de la longueur de diffusion b qui varie suivant le noyau, donc l'isotope et aussi suivant l'état de spin du système noyau-neutron. La section efficace cohérente dépend de $\bar{b}$ qui est la longueur de diffusion moyenne. Celle incohérente résulte des fluctuations de b par rapport à $\bar{b}$. L'élément qui nous intéresse dans cette thèse est l'hélium qui possède deux isotopes : l'^{3}He et l'^{4}He, dont les valeurs de σ_{coh} et σ_{inc} sont données dans le Tableau 2.1. L'atome d'^{4}He a un spin nul et a donc une section efficace incohérente nulle contrairement à l'atome d'^{3}He qui lui possède un spin 1/2. Dans le Tableau 2.1, sont également indiquées les valeurs pour d'autres éléments présents dans nos expériences : ce sont l'aluminium, le vanadium et le cadmium. En complément, est donnée en dernière colonne la section efficace d'absorption qui, loin d'une résonance, dépend de la vitesse des neutrons incidents :

$$\sigma_{abs}(v_i) = \sigma_{abs}^{2200}\frac{2200\ m/s}{v_i}, \tag{2.13}$$

avec σ_{abs}^{2200} est la section efficace d'absorption de référence.

[3] Ces sections efficaces sont souvent appelés section efficace des atomes liés car elles sont définies dans le cas où le noyau est fortement lié au système diffuseur par comparaison avec la section efficace des atomes libres où le noyau est libre de reculer pendant la collision.

	σ_{coh}	σ_{inc}	σ_{abs}^{2200}
^{4}He	1.34	0	0
^{3}He	4.42	1.1-1.6	5333
Al	1.495	0.0082	0.231
V	0.0184	5.08	5.08
Cd	3.04	3.46	2520

Tableau 2.1: Sections efficaces de diffusion et d'absorption en barn [38].

2.1.3 Facteur de structure dynamique

La double section efficace différentielle est donnée par :

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f} = \frac{1}{4\pi}\frac{k_f}{k_i}N[\sigma_{coh}S_{coh}(\vec{Q},\omega) + \sigma_{inc}S_I(\vec{Q},\omega)] \tag{2.14}$$

et s'écrit plus généralement :

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f} = \frac{\sigma}{4\pi}\frac{k_f}{k_i}NS(\vec{Q},\omega) \tag{2.15}$$

où N est le nombre d'atomes dans le système diffusé. S_{coh} et S_I sont respectivement le facteur de structure dynamique cohérent et le facteur de structure dynamique dépendant du spin. La grandeur $S(\vec{Q},\omega)$ est appelée fonction de diffusion. Elle représente le nombre d'excitations (de vecteur d'onde $\vec{Q}$ et d'énergie ω) dans le système à une température T par unité d'énergie. L'objectif d'une expérience de diffusion neutronique est d'extraire cette grandeur physique, qui dépend uniquement de l'échantillon et pas de la sonde.

Lien avec la théorie de la réponse linéaire

Le neutron génère dans l'échantillon une faible perturbation externe qui induit des fluctuations, comme des fluctuations de densité ou de spin. Cet effet est traitable avec la théorie de la réponse linéaire comme expliqué dans plusieurs livres sur la physique à N corps, comme celui de Pines et Nozières [1]. La fonction de réponse calculée avec cette théorie est appelée susceptibilité dynamique $\chi(Q,\omega)$. Elle est reliée à la fonction de diffusion par la relation :

$$S(Q,\omega) = \frac{1}{\pi}(n_B(\omega)+1)\Im[\chi(Q,\omega)]. \tag{2.16}$$

où n_B est la fonction de Bose et $n_B(\omega)+1 = [1-e^{-\omega/k_BT}]^{-1}$.

Diffusion par un liquide

Le liquide étant un système isotrope, sa fonction de diffusion s'exprime :

$$S(\vec{Q},\omega) = S(Q,\omega). \tag{2.17}$$

La diffusion élastique est impossible dans un liquide. En effet, le liquide ayant une densité uniforme, il est possible de montrer que la diffusion élastique n'est permise que si $\vec{Q} = 0$, ce qui implique que $\vec{k_i} = \vec{k_f}$. Mais dans ce cas le neutron n'a pas été diffusé, il a juste suivi la même direction.

Bilan détaillé

La fonction de réponse $\chi(Q,\omega)$ est une fonction impaire de ω pour un système isotrope. Il suit donc la relation suivante, appelée la relation du bilan détaillé :

$$S(Q,-\omega) = e^{-\frac{\omega}{k_B T}} S(Q,\omega) \tag{2.18}$$

où $e^{-\frac{\omega}{k_B T}}$ désigne le taux d'occupation des états de départ de la cible en énergie. Cette occupation définit la probabilité d'avoir des cas où le neutron cède de l'énergie ($\omega > 0$); ce sont les processus dits Stokes. Le cas où le neutron gagne de l'énergie ($\omega < 0$) correspond à des processus dits anti-Stokes. A T=0 K, il n'y a pas d'excitations thermiques. Le terme anti-Stokes est donc nul.

Facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide

La fonction de diffusion de l'^{4}He superfluide est totalement cohérente :

$$S(Q,\omega) = S_{coh}(Q,\omega). \tag{2.19}$$

Facteur de structure dynamique de l'^{3}He liquide

Comme l'^{3}He a un spin nucléaire 1/2, le facteur de structure dynamique s'exprime par la somme d'une composante cohérente et d'une composante dépendante du spin :

$$S(Q,\omega) = S_{coh}(Q,\omega) + \frac{\sigma_{inc}}{\sigma_{coh}} S_I(Q,\omega). \tag{2.20}$$

Le premier terme désigne les fluctuations de densité et le deuxième les fluctuations de spin.

Moments de la fonction de diffusion

La fonction de diffusion satisfait les règles de somme suivantes, aussi appelées moments en fréquence. Le moment d'ordre 0 s'exprime :

$$\langle \omega_0 \rangle = \int S(Q,\omega) d\omega = S(Q) \tag{2.21}$$

où S(Q) est le facteur de structure. Dans le cas de la diffusion incohérente, S(Q)=1 partout. Le moment d'ordre 1 s'exprime :

$$\langle \omega_1 \rangle = \int \omega S(Q,\omega) d\omega = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M}. \tag{2.22}$$

où M est la masse de l'atome. Le moment d'ordre 1 représente l'énergie moyenne transférée du neutron au noyau.

2.2 Spectroscopie temps de vol

De nouvelles mesures du facteur de structure dynamique de l'hélium liquide ont été effectuées, grâce aux nouvelles performances du spectromètre temps de vol IN5 à l'Institut Laue Langevin. Nous allons d'abord décrire le principe général de la spectroscopie temps de vol [39] pour montrer ensuite les spécificités de l'instrument IN5 [40, 41].

2.2.1 Principe

Le principe de la spectroscopie temps de vol repose sur le fait que la vitesse des neutrons thermiques autorise la mesure de leur temps de parcours sur des distances de quelques mètres avec une précision suffisante pour en déduire un spectre en énergie. Le schéma d'un spectromètre temps de vol est montré en Figure 2.3. Un faisceau de neutrons monochromatique incident d'énergie E_i et de vecteur d'onde $\vec{k_i}$ diffuse sur l'échantillon avec un angle $\phi = 2\theta$ et a dans son état final une énergie E_f et un vecteur d'onde $\vec{k_f}$. On a :

$$E_i = \frac{\hbar^2 k_i^2}{2m_n},\ E_f = \frac{\hbar^2 k_f^2}{2m_n} \tag{2.23}$$

$$k_i = \frac{2\pi}{\lambda},\ k_f = \frac{2\pi}{\lambda_f} \tag{2.24}$$

Lors de la diffusion, il y a conservation en énergie et en vecteur d'onde :

$$E_i - E_f = \omega \tag{2.25}$$
$$\vec{k_i} - \vec{k_f} = \vec{Q} \tag{2.26}$$

où ω et $\vec{Q}$ correspondent respectivement à l'énergie et au vecteur d'onde perdu par le neutron, ou encore à l'énergie et au vecteur d'onde gagné par l'échantillon pour créer une excitation. Les relations de conservation fournissent la relation suivante :

$$Q^2 = 2\left(\frac{2\pi}{\lambda_i}\right)^2 \left[\left(1 - \frac{\omega}{2E_i}\right) - \sqrt{(1 - \frac{\omega}{E_i})}\cos\phi\right]. \tag{2.27}$$

Ce qui est mesurée en spectroscopie temps de vol est pour chaque détecteur (pour un angle de diffusion ϕ) l'intensité diffusée dans des canaux n (dans le cas de nos mesures, on avait 1024 ou 512 canaux) de temps de vol t, $t = n\Delta\tau$ où $\Delta\tau$ est l'échantillonnage en temps. Ce dernier a pour valeur typique la dizaine de microsecondes. Le spectre temps de vol $\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial t}$ peut s'écrire en fonction du spectre en énergie $\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}$:

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial t} = \left(\frac{\partial E_f}{\partial t}\right)\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial E_f}. \tag{2.28}$$

En considérant $E_f = \frac{1}{2}m_n v_f^2 = 1/2m_n\left(\frac{L}{t}\right)^2$ où m_n est la masse du neutron et t est le temps de parcours du neutron sur la distance connue L échantillon-détecteur, et à l'aide des relations (2.15), (2.23) et (2.28), on obtient :

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial t} = N\frac{\sigma}{4\pi}\frac{(m_n)^{3/2}}{\hbar\sqrt{2E_i}}\frac{L^3}{t^4}S(\vec{Q},\omega). \tag{2.29}$$

Le spectre en temps de vol est donc directement lié au facteur de structure $S(\vec{Q},\omega)$. Le spectre $S(\vec{Q},\omega)$ décrit la probabilité d'un échange d'énergie entre le neutron et l'échantillon et le temps t est induit par un étalement temporel des neutrons sur la distance échantillon-détecteur. Les neutrons ayant gagné de l'énergie arrivent les premiers au niveau du détecteur, suivis des neutrons diffusés élastiquement qui arrivent dans le canal élastique. Enfin les neutrons ayant cédé de l'énergie à l'échantillon arrivent les derniers.

La résolution en énergie d'un spectromètre temps de vol de type IN5 est donnée par :

$$\delta\omega[\mathrm{meV}] = \frac{0.6472}{L[\mathrm{m}]\lambda_f^3[\mathrm{Å}^3]}\delta t[\mathrm{s}] \tag{2.30}$$

où δt est la somme des incertitudes sur le temps de vol dues à la dispersion en longueur d'onde incidente et de l'incertitude sur la distance échantillon-détecteur. En effet, cette dernière varie suivant l'endroit où le neutron est diffusé dans l'échantillon et la position de la capture du neutron dans le détecteur. La variation en λ_f^{-3} montre que pour avoir une meilleure résolution, il faut augmenter la longueur d'onde du faisceau incident.

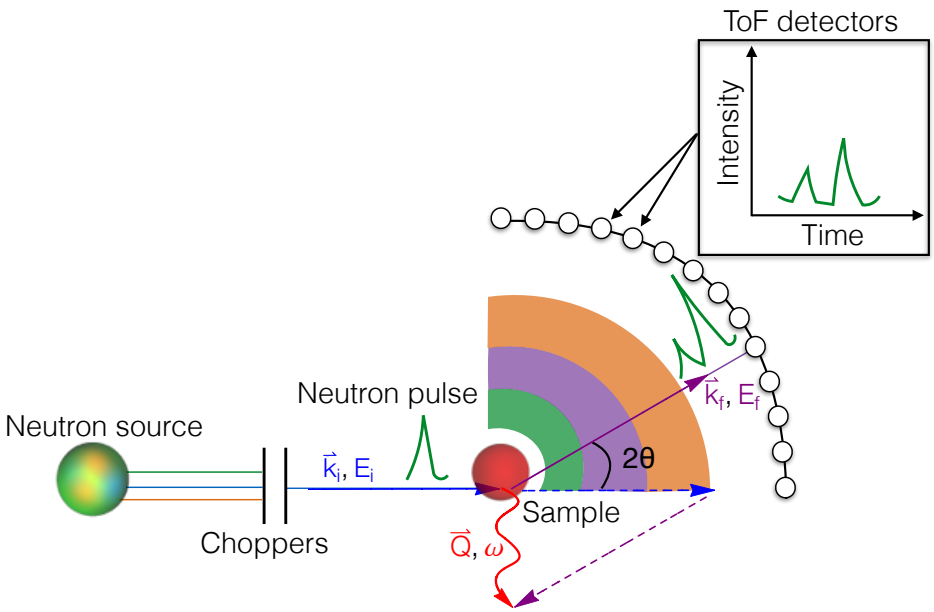


Figure 2.3: Schéma d'un spectromètre temps de vol.

2.2.2 Spectromètre temps de vol IN5

Nous allons décrire dans ce paragraphe les améliorations dont a été pourvu récemment l'instrument temps de vol IN5 [40, 41] et expliquer ensuite pourquoi ce spectromètre a été choisi pour nos expériences. Pour suivre la discussion, un schéma de l'instrument et la description de ses composantes sont donnés respectivement en Figure 2.4 et dans le Tableau 2.2.

Sélection en énergie incidente par les choppers

Le faisceau monochromatique pulsé incident est obtenu à l'aide de deux groupes de deux choppers. Des améliorations ont été apportées au système de choppers afin d'augmenter le flux et la gamme accessible en longueur d'onde. Les choppers sont des disques en aluminium munis d'une paire de fentes placées symétriquement. Une partie de la surface des disques est recouverte avec de l'oxyde de gadolinium, un absorbant pour les neutrons. Au sein d'une paire de choppers, les deux disques sont très proches et tournent dans des sens opposés avec des vitesses égales. Ils sont équivalents à un seul chopper tournant deux fois plus vite et permettent donc d'avoir des pulses plus courts. Ils permettent aussi de symétriser la structure temporelle du pulse. Grâce à cette configuration, la fonction de résolution est simple ; elle s'apparente à une gaussienne de largeur à mi-hauteur $\delta\omega$. Le premier groupe de choppers partitionne le faisceau incident en pulses temporels blancs. Le deuxième groupe identique au premier tourne à la même fréquence ν_c mais déphasé d'un angle δ. Seuls les neutrons qui ont la vitesse requise par le déphasage imposé entre les deux groupes de choppers poursuivent leur chemin et sortent du sélecteur, ce qui permet de sélectionner la longueur d'onde incidente :

$$\lambda = \frac{h}{m_n}\frac{1}{L}\frac{\delta}{2\pi\nu_c}. \tag{2.31}$$

L'instant de passage du faisceau par le dernier groupe de choppers définit une référence des temps de la mesure.

Enregistrement du spectre temps vol par les détecteurs de type PSD

Les nouvelles performances de l'instrument IN5 sont principalement liées à une nouvelle matrice de détecteurs qui collecte les neutrons après diffusion. La matrice est placée à l'intérieur d'une chambre temps de vol immense de 85 m^3. Cette dernière est sous vide, évitant le signal parasite que l'on observe avec des instruments munis d'une chambre contenant un gaz inerte. Les détecteurs sont constitués de tubes à localisation. Ils sont dits de type PSD (Position Sensitive Detector en anglais). Les tubes sont remplis de gaz d'^{3}He (très bon absorbeur pour les neutrons) et de gaz de CF_4. Les principales caractéristiques de ces détecteurs sont données dans le Tableau 2.3. La résolution spatiale des détecteurs de 26×26 mm^2 est remarquable et comparable aux instruments trois-axes. La surface totale de détection est de l'ordre de 30 m^2 ; elle est six fois plus grande qu'avant. Elle permet d'avoir un taux de détection de neutrons également six fois plus grand. Enfin, un blindage autour de la chambre de vol permet d'empêcher le signal

parasite provenant des neutrons thermiques du réacteur et a permis d'obtenir un rapport signal sur bruit 2.5 fois meilleur que celui de l'ancien instrument.

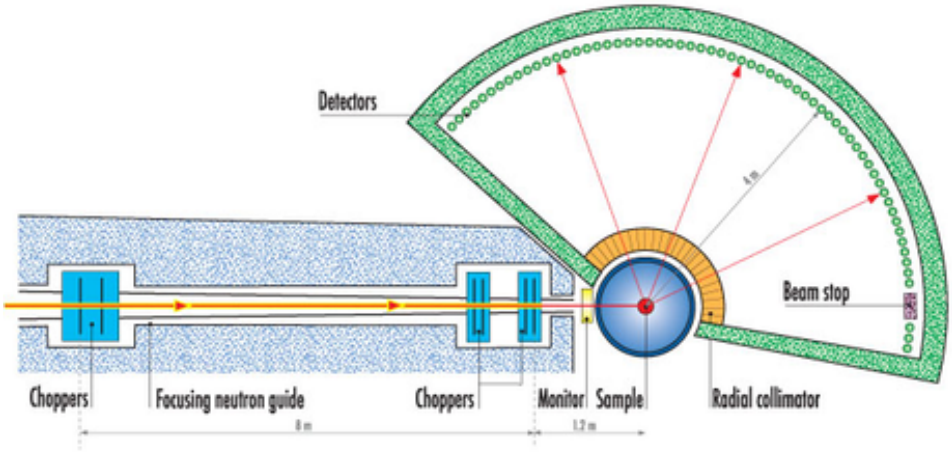


Figure 2.4: Schéma du spectromètre temps de vol IN5.

Un instrument adapté pour nos expériences

De nouvelles mesures du facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide et de l'^{3}He liquide ont été effectuées dans l'objectif de comparer quantitativement les résultats expérimentaux aux nouveaux résultats théoriques dans une large gamme (Q,ω). Pour cela, par rapport aux travaux précédents, il fallait une meilleure résolution en énergie et en vecteur d'onde, et éventuellement une statistique plus grande. Les nouvelles performances de l'instrument IN5 décrites ci-dessus fournissaient l'unique possibilité de réaliser ces mesures.

Avec une longueur d'onde incidente λ =4.8 Å (E_i=3.55 meV), l'instrument IN5 est particulièrement adapté à nos mesures, car il permet de sonder les parties les plus significatives du spectre d'excitations de l'hélium liquide. En effet, cette longueur d'onde nous a permis de sonder des excitations de vecteurs d'onde Q compris entre 0.15 et 2.4 Å^{-1}, et d'énergies ω comprises entre 0 et 2.22 meV [voir la Figure 2.5]. Le flux incident de neutrons et la résolution en énergie dépendent de λ, de la vitesse des choppers et du rapport R des vitesses entre le chopper d'anti-recouvrement et les autres [voir Tableau 2.2]. Pour $\lambda = 4.8$ Å, une vitesse de choppers typique de 15000 tr/min et un rapport R=1/4, le flux est grand, de l'ordre de $\phi_n = 2 \times 10^5$ neutrons/cm^2.s. La résolution en énergie est très bonne, égale environ à 70 μeV, correspondant à une incertitude relative de 0.07/3.55=2 %.

Un autre objectif était de pouvoir déterminer les excitations de l'hélium dans une gamme plus grande d'énergie et de vecteur d'onde, afin d'obtenir une vision complète. Pour cela, il a fallu utiliser des longueurs d'onde de travail plus petites, permises par la haute flexibilité de l'instrument IN5.

3 groupes de 2 choppers	Le 1er groupe et le 3ème servent à sélectionner l'énergie incidente. L'un des deux choppers du 2ème groupe sert à éviter les longueurs d'onde harmoniques. L'autre ajuste sa vitesse pour assurer l'anti-recouvrement des pulses au niveau des détecteurs, c'est-à-dire que les neutrons les plus lents d'un pulse (ceux qui ont perdus le plus d'énergie par diffusion par l'échantillon), ne soient pas doublés par les neutrons les plus rapides du pulse suivant.
Moniteur	Détecteur de faible efficacité qui mesure le flux de neutrons incidents. Lors du traitement des données, le signal physique doit être normalisé par rapport au signal du moniteur car l'activité du réacteur peut changer au cours du temps.
Collimateurs radiaux	Ils permettent de limiter la diffusion par l'environnement autour de l'échantillon, comme la diffusion par le cryostat.
Détecteurs	Ils sont de type PSD. Leurs principales caractéristiques sont données dans le tableau ci-dessous.

Tableau 2.2: Composantes du spectromètre temps de vol IN5.

Aire total de détection	30 m^2
Nombre de tubes des détecteurs	384
Hauteur des tubes	3 m
Diamètre des tubes	25.4 mm (1")
Couverture en angle solide	1.8 sr (0.6π)
Résolution spatiale	26×26 mm^2 ($\sim 10^5$ pixels)
Résolution angulaire	0.37° (22')
Gamme d'angles de diffusion	-12° à 135°
Tolérance verticale	±20.55°
Min de transfert d'impulsion [$Å^{-1}$]	$0.22/\lambda_i$[Å]
Max de transfert d'impulsion [$Å^{-1}$]	$11.61/\lambda_i$[Å]
Distance de vol	4 m
Volume (pression atm.)	3000 l ^{3}He + 570 l CF_4
Pression	4.75 bar ^{3}He + 1.25 bar CF_4

Tableau 2.3: Principales caractéristiques des détecteurs de type PSD d'IN5. Tableau issu des références [40, 41].

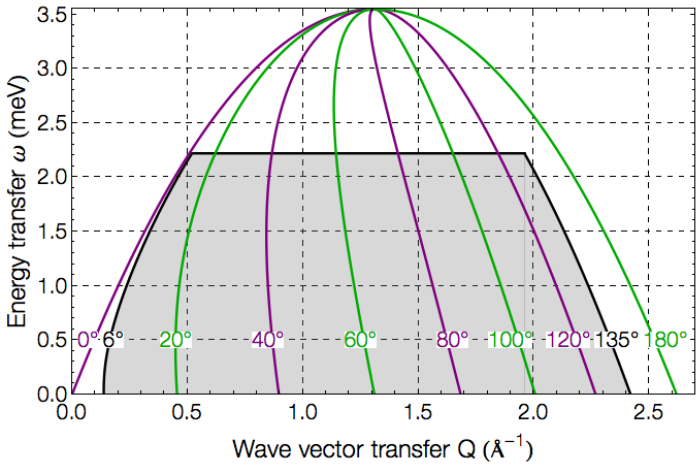


Figure 2.5: Représentation de l'espace (Q,ω) accessible pour une longueur d'onde incidente λ = 4.8 Å, déterminé à partir de l'équation (2.27). Les lignes pleines symbolisent des lignes à angle de diffusion constant pour quelques valeurs comprises entre 0° et 180°. En gris, est représenté l'espace des excitations que l'on a effectivement sondé avec nos mesures.

Chapitre 3

Calcul de la diffusion multiple par Monte Carlo

3.1 Introduction

Dans les expériences de neutrons, il est nécessaire d'avoir un volume d'échantillon assez grand pour que le nombre de neutrons diffusés soit significatif. Par conséquent, une fraction de neutrons est diffusée plusieurs fois dans l'échantillon ; c'est ce que l'on appelle la diffusion multiple. Ce processus est un artefact pour le signal à une diffusion qui ne peut pas être mesuré indépendamment du signal total. Dans les cristaux, le signal S(Q,ω) d'un phonon par exemple, est piqué et bien distinguable du fond diffus de faible intensité que constitue la diffusion multiple. La correction de cette dernière n'est donc pas effectuée et serait très difficile car la diffusion par un cristal est anisotrope, c'est-à-dire que l'intensité diffusée dépend de la direction du vecteur d'onde Q. Par contre, dans les liquides et les solides amorphes, le calcul et la soustraction de la diffusion multiple est souvent nécessaire, car les excitations sont plus larges et elle peut ainsi affecter le signal. En particulier, nous verrons dans le chapitre 5 que son calcul est nécessaire à l'identification des multi-excitations dans l'^{4}He superfluide.

Après avoir défini ce qu'est la diffusion multiple et effectué un rapide état de l'art, nous allons décrire les trois programmes Monte Carlo différents qui ont été utilisés pour son calcul. Nous allons expliquer leur fonctionnement puis les tester afin de mettre en exergue les avantages et inconvénients de chacun. Il est possible avec ces programmes de simuler la diffusion multiple dans le système échantillon+cellule, mais nous considérons dans ce chapitre entier l'échantillon seul.

3.1.1 Définition

On a vu en **1.2** qu'il existe dans l'^{4}He superfluide deux processus physiques pour la diffusion inélastique ; la diffusion simple (courbe phonon-maxon-roton) et la multi-excitation. Il en existe en fait un troisième qui est un artefact expérimental dépendant du volume de l'échantillon. Il s'agit du processus de diffusion multiple, où un neutron de vecteur d'onde incident $\vec{k}_i$ est diffusé une première fois par l'échantillon créant une excitation de vecteur d'onde de transfert $\vec{Q}_1$ et plus loin dans l'échantillon le même neutron est diffusé une seconde fois, créant une nouvelle excitation de vecteur d'onde de transfert $\vec{Q} - \vec{Q}_1$. Le neutron peut ensuite être diffusé une troisième fois etc, mais la probabilité de diffusion diminue avec l'ordre et devient négligeable au delà de deux diffusions. Dans notre calcul, nous ne retiendrons donc que la première rediffusion. Le vecteur d'onde final du neutron est $\vec{k}_f$. Le processus de diffusion multiple est à distinguer de celui de multi-excitation où deux excitations sont créées simultanément [voir le schéma de la Figure 3.1].

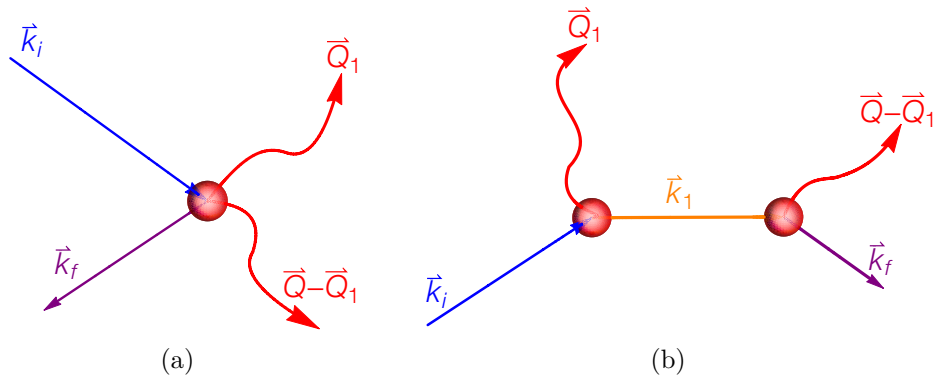


Figure 3.1: Schéma des processus (a) de multi-excitation et (b) de diffusion double.

3.1.2 État de l'art

Le premier physicien à développer une méthode pour le calcul de la diffusion multiple de neutrons est Vineyard dans les années cinquante [42]. Elle est basée sur la théorie du transport des neutrons. Son travail était restreint à de la diffusion élastique dans un échantillon plat et le détail des calculs était donné seulement dans l'approximation quasi-isotropique, où on a $S(Q,\omega) = \delta(\omega)$. Vingt ans plus tard, Sears [43] a défini une fonction de diffusion effective $s(\vec{k_0}, \vec{k})$, qui dépend de la taille et de la forme de l'échantillon contrairement à S(Q,ω) qui est une grandeur volumique. Il a montré qu'avec

l'approximation quasi-isotropique, il est possible de connaître aisément la dépendance des diffusions multiples avec la taille et la forme de l'échantillon pour des géométries simples, comme on le verra en **5.2**. Des calculs supplémentaires sont nécessaires pour connaître leur dépendance avec la forme de S(Q,ω). Par une méthode semi-analytique, il a calculé les diffusions multiples dans l'^{4}He liquide [44], en faisant des approximations permettant de réduire la dimension de l'intégrale et en simplifiant la forme de S(Q,ω). Sa méthode a l'avantage qu'elle permet de bien comprendre la physique, mais elle nécessite de faire des approximations si l'on souhaite rendre les calculs accessibles.

Le moyen le plus efficace permettant actuellement le calcul des diffusions multiples est d'utiliser des méthodes Monte Carlo. Le calcul de la double diffusion demande l'évaluation d'une intégrale à sept dimensions. En effet, il faut trois degrés de liberté pour spécifier la position de la première collision et trois autres pour la seconde. Après avoir considéré cela, la direction du vecteur intermédiaire $\vec{k_1}$ [voir le schéma de la Figure 3.1] est déterminée de telle sorte que seule son amplitude reste à spécifier ; ce qui donne un total de sept degrés de liberté. Des techniques Monte Carlo permettent la résolution approchée d'intégrales de haute dimension, car leur vitesse de convergence est indépendante de la dimension de l'intégrale. Il est ainsi possible de calculer notre intégrale à sept dimensions, mais il faut néanmoins utiliser une fonction de diffusion S(Q,ω) approchée. Un code Monte Carlo développé récemment, permettant le calcul de cette intégrale, est présenté dans l'article de la référence [45]. Enfin, une méthode Monte Carlo consiste à suivre le chemin du neutron dans l'échantillon et permet le calcul de la diffusion multiple directement à partir de la fonction de diffusion S(Q,ω) des données expérimentales brutes. C'est cette méthode que nous avons retenue et nous décrivons ci-dessous son algorithme.

3.2 Calcul Monte Carlo

L'algorithme choisi consiste à simuler « l'histoire » de neutrons. Un événement de diffusion est forcé à avoir lieu le long d'une trajectoire droite dans l'échantillon, et les nouvelles énergie et direction du neutron qui émerge, sont choisies à partir de distributions de probabilité construites à partir de la loi de diffusion S(Q,ω). Le long du nouveau chemin, une seconde diffusion est considérée, etc, jusqu'à ce que le neutron quitte l'échantillon pour aller dans un détecteur.

Boucle Monte Carlo

L'objectif de la boucle Monte Carlo est de simuler l'histoire du neutron. La longueur de la trajectoire du neutron est gouvernée par la section efficace totale $\sigma_{tot}(E_i)$ du matériau

traversé, qui dépend de l'énergie incidente du neutron E_i et qui se décompose en deux termes :

$$\sigma_{tot}(E_i) = \sigma_{abs}(E_i) + \sigma_D(E_i), \tag{3.1}$$

avec $\sigma_{abs}(E_i)$, la section efficace d'absorption et $\sigma_D(E_i)$, la section efficace totale de diffusion qui s'exprime à partir de la double section efficace différentielle :

$$\sigma_D(E_i) = \int\int \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} d\Omega dE_f. \tag{3.2}$$

On définit la section efficace macroscopique totale ayant les dimensions d'une atténuation linéique :

$$\Sigma_{tot}(E_i) = n\sigma_{tot}(E_i), \tag{3.3}$$

où n est le nombre d'atomes par unité de volume. Son amplitude décrit l'aspect macroscopique des interactions du neutron avec l'échantillon. La probabilité pour le neutron d'interagir après avoir traversé une distance x dans l'échantillon est donnée par :

$$p(E_i, x) = \Sigma_{tot}(E_i)e^{-\Sigma_{tot}(E_i)x}. \tag{3.4}$$

La fraction de neutrons qui n'ont pas interagi avec l'échantillon, c'est-à-dire de neutrons transmis, est, dans le cas d'une plaque d'épaisseur d :

$$t(E_i) = e^{-\Sigma_{tot}(E_i)d}, \tag{3.5}$$

où t est appelé facteur de transmission. Pour réduire le temps de calcul et avoir une bonne statistique de neutrons diffusés, une technique de réduction de la variance est employée. Chaque neutron est forcé à être diffusé une ou plusieurs fois avant d'aller dans un détecteur. Pour prendre en compte la transmission, le neutron possède un poids qui vaut initialement 1 et qui est multiplié lors de son parcours par 1-t. De même, pour les échantillons qui ont une section efficace d'absorption non nulle, pour prendre en compte l'absorption sans perdre de neutrons, le poids du neutron est multiplié à chaque collision par $\frac{\sigma_D(E_i)}{\sigma_{tot}(E_i)}$. L'histoire du neutron est finie quand le poids du neutron devient inférieur à une valeur de coupure. Le choix du vecteur d'onde de transfert Q (ou de l'angle de diffusion ϕ) et de l'énergie de transfert ω, après une collision, est fait à partir de distributions de probabilité. Ces dernières sont construites à partir de la loi de la diffusion S(Q,ω) pour favoriser les régions (Q,ω) où l'intensité S(Q,ω) est grande [1]. Le

[1] Dans l'^{4}He superfluide, le neutron est donc diffusé préférentiellement sur le mode phonon-maxon-roton, de grand poids spectral.

choix de Q et ω doit par ailleurs respecter les règles de conservation en vecteur d'onde et en énergie.

Comptage

Le temps de vol de chaque neutron en fonction de l'angle de diffusion est enregistré dans le banc des détecteurs. Après un grand nombre d'histoires de neutrons, le spectre total des diffusions est obtenu et l'intérêt de la simulation est que l'on a accès séparément à la contribution de la diffusion simple et à la contribution de la diffusion multiple.

3.3 Validation croisée de trois programmes Monte Carlo

N'existant pas de programme spécifique au calcul de la diffusion multiple dans des échantillons purement cohérents et inélastiques comme l'hélium, trois programmes Monte Carlo différents ont été utilisés afin de faire une validation croisée. Le programme le plus connu par la communauté neutronique s'appelle MScat ; il a été écrit par Copley en 1974 [46, 47]. Il a été testé et validé pour des échantillons quasi-élastiques cohérents et incohérents. Ensuite, nous avons travaillé avec Emmanuel Fahri à l'ILL, pour simuler l'échantillon d'hélium au sein d'un spectromètre temps de vol, via le programme McStas [48, 49]. Enfin, nous avons aussi travaillé avec Javier Dawidowski, du Centre Atomique de Bariloche (Argentine), qui possède un programme de calcul de la diffusion multiple pour les relaxations dans les système moléculaires [27]. Les trois programmes sont faits dans le but de simuler aussi précisément que possible l'expérience réelle, afin de prendre en compte non seulement la diffusion multiple mais aussi l'atténuation du faisceau, l'efficacité des détecteurs et la diffusion à partir d'une cellule. On rappelle que l'on a choisi ici de ne pas simuler la cellule. Ce choix a été fait car l'efficacité des programmes est d'autant meilleure que l'on rentre un S(Q,ω) le plus corrigé possible.

3.3.1 Paramètres d'entrée

La principale entrée des trois programmes Monte Carlo est le facteur de structure dynamique qui représente, mis à part un facteur de normalisation, la probabilité qu'un neutron soit diffusé dans l'échantillon avec une certaine énergie de transfert ω et un certain vecteur d'onde de transfert Q. Le calcul est restreint à des échantillons isotropes (liquides ou solides amorphes), c'est à dire que le facteur de structure dynamique doit être de la forme $S(\vec{Q},\omega) = S(||\vec{Q}||,\omega)$. Il faut également renseigner la section efficace

totale de l'échantillon. La diffusion multiple dépendant du volume et de la forme de la cellule, il faut aussi rentrer la géométrie de la cellule. Concernant notre sonde, le neutron, il faut connaître sa longueur d'onde incidente λ (ou son énergie incidente E_i). Pour la source, il faut rentrer la largeur L et la hauteur H du faisceau. Enfin, il faut connaître la distance échantillon-détecteur D pour calculer le temps de vol. Les valeurs que l'on a choisies pour les paramètres d'entrée des trois programmes Monte Carlo sont données dans le Tableau 3.1 ci-dessous. Comme l'intérêt principal de ce chapitre sur la diffusion multiple sera de calculer dans le chapitre **5** sa contribution dans l'^{4}He superfluide, les valeurs correspondent à celles de notre expérience effectuée dans l'^{4}He superfluide avec le spectromètre temps de vol IN5. La section efficace totale de l'^{4}He est égale à sa section efficace cohérente σ_{coh}, car ses sections efficaces incohérente et d'absorption sont nulles [voir le Tableau 2.1]. La cellule utilisée pour nos mesures dans l'^{4}He superfluide était un cylindre de rayon r et d'une hauteur d.

λ	E_i	σ_{coh}	r	d	L	H	D
4.8 Å	3.55 meV	1.34 b	0.75 cm	1 cm	1.5 cm	1 cm	4 m

Tableau 3.1: Valeurs des paramètres d'entrée des trois programmes Monte Carlo.

3.3.2 MScat

Le premier programme testé est MScat (Multiple Scattering). La première version a été écrite en 1974 par Copley [46] et est basée sur MSC de Bischoff [50], puis une version améliorée a été écrite en 1986 [47]. Le programme a été refactorisé en Fortran 90 par nos soins (le langage initial est du Fortran 77). La diffusion par un matériau dans MScat est divisée en trois parties : la diffusion inélastique (IS), la diffusion élastique continue (CES) qui inclut à la fois des contributions cohérente et incohérente, et la diffusion élastique discrète (DES) avec seulement une contribution cohérente. Le programme est structuré autour de la routine mcscat85. Cette dernière est divisée en sous-routines qui sont organisées en groupe. Chaque groupe appelle un certain nombre de sous-routines [voir la Figure 1 de la référence [47] pour la structure complète]. La routine mcscat85 appelle la sous-routine mcs2 qui se divise en trois parties : l'entrée, la boucle Monte Carlo et la sortie.

Fonctionnement

A l'intérieur du code Monte Carlo, des variables sans dimension, dépendantes de la température, sont utilisées :

$$\alpha_i = \frac{\hbar^2 Q_i^2}{2m_n k_B T} = aQ_i^2 \tag{3.6}$$

et

$$\beta_i = \frac{\hbar\omega_i}{k_B T} = b\omega_i. \tag{3.7}$$

En entrée du programme, le facteur de structure dynamique S(Q,ω) doit être donné. Le code, comme il est écrit, ne permet d'entrer qu'une fonction S(Q,ω) analytique dans la sous-routine appelée sinput. La fonction S(Q,ω) doit être donnée sans dimension :

$$S(\alpha,\beta) = S(Q,\omega)\frac{k_B T}{\hbar} \tag{3.8}$$

avec $S(Q,\omega)$ en picoseconde (ps) et $\frac{k_B T}{\hbar}$ en ps^{-1}. Ce qu'il faut finalement rentrer dans sinput est une fonction de diffusion sans dimension symétrisée de la forme :

$$\tilde{S}(\alpha,\beta) = S(\alpha,\beta)\exp(-\beta/2).^{2} \tag{3.9}$$

Il faut également créer un fichier comprenant tous les paramètres d'entrée. Le programme initialement limité à 16 angles de diffusion ϕ, et 50 énergies de transfert ω, a été modifié pour simuler 400 ϕ et 400 ω. Lorsqu'une simulation avec un tel nombre de ϕ et de ω est effectuée, le calcul est interrompu si on excède environ NN=1000 neutrons. Pour augmenter la statistique, il faut faire une première exécution du programme mcscat85 en utilisant les options IEXIST=0 et NN=1000, puis faire une seconde exécution avec IEXIST=1 (permet de continuer la simulation précédente) et NN=2000 etc... Une limitation du programme est que les variables sans dimensions α et β, dépendantes de la température, introduisent des erreurs de calcul si la température TEMP est inférieure à 3 K pour une énergie incidente $E_i = 3.55$ meV et des énergies de transfert minimale et maximale typiques $E_{min} = 0$ meV et $E_{max} = 3$ meV.

En sortie du programme, est donnée pour chaque angle de diffusion ϕ, la fonction de diffusion symétrisée $\tilde{S}(\phi,\omega)$ en ps, en fonction de l'énergie de transfert ω. Pour obtenir finalement S(Q,ω) en meV^{-1}, il faut multiplier $\tilde{S}(\phi,\omega)$ par $1.519\times\exp(\beta/2)$ et transformer $S(\phi,\omega)$ en S(Q,ω). Le facteur 1.519 vient de la conversion E[meV]=1.519 ω[ps^{-1}].

[2]Cette fonction de diffusion est dite symétrisée car, en appliquant le bilan détaillé, on a $\tilde{S}(\alpha,-\beta) = \exp(\beta)S(\alpha,\beta)\exp(-\beta/2) = \tilde{S}(\alpha,\beta)$.

Test avec un échantillon plat inélastique

Pour vérifier le bon fonctionnement de MScat, le programme a d'abord été testé avec un échantillon simple, incohérent plat. De plus, le programme MScat séparant et calculant différemment la contribution inélastique (IS) de celles élastiques (CES et DES) et le facteur de structure dynamique $S(Q,\omega)$ de l'^{4}He superfluide ayant seulement une contribution (IS), l'échantillon est inélastique, avec une intensité constante $Z = 1$ à l'énergie $\epsilon = 1$. Pour prendre en compte la fonction de résolution gaussienne du spectromètre temps de vol IN5, la fonction de diffusion $S(Q,\omega)$ est convoluée par une gaussienne de largeur $W = 0.07$ meV, et s'exprime donc pour cet échantillon test :

$$S(Q,\omega) = \frac{Z}{W\sqrt{\pi/\ln 16}} \exp\left[-\ln 16 \left(\frac{\omega-\epsilon}{W}\right)^2\right]. \tag{3.10}$$

Les résultats de la simulation sont présentés en Figures 3.2 et 3.3. Pour la contribution de la diffusion simple de $S(Q,\omega)$, de l'intensité est présente à $\omega = 1$ meV, comme attendu [voir la Figure 3.2 de gauche]. La diffusion double correspond à la probabilité de créer une première excitation avec une énergie $\omega = 1$ meV, puis une seconde plus loin dans l'échantillon avec toujours une énergie $\omega = 1$ meV. Donc, de l'intensité est attendue en $\omega = 2$ meV, qui correspond à l'énergie totale perdue par le neutron ou à la somme des énergies des deux excitations créées. Pour la contribution de la diffusion double, l'intensité est bien présente en $\omega = 2$ meV [voir la Figure 3.2 de droite]. Le programme MScat semble donc fonctionner correctement. Cependant, lorsqu'on compare la fonction d'entrée $S(Q,\omega)$ du programme avec celle de la sortie, on observe un élargissement avec une largeur W en sortie de MScat égale à 0.1 meV au lieu de 0.07 meV [voir la Figure 3.3]. Il est également observé une baisse de l'intensité intégrée avec $Z = 0.8$ au lieu de 1. MScat a aussi été testé en rentrant une fonction $S(Q,\omega)$ avec une dispersion, et des décalages en énergie ont aussi été observés.

Nous nous sommes intéressés à l'effet du volume de l'échantillon sur la diffusion multiple. Pour cela, nous avons calculé le rapport de la diffusion simple sur la diffusion multiple. Ce dernier est de 2.1 % pour une hauteur de cellule $d = 1$ cm. Un test a également été effectué avec un échantillon quasi-bidimensionnel d'une hauteur $d = 0.01$ cm et le rapport est cette fois-ci de 0.12 %. L'effet de la diffusion multiple augmente donc très fortement avec la taille de l'échantillon. Ainsi, pour les limiter, un moyen souvent utilisé consiste à partitionner l'échantillon en mettant des espaceurs absorbants parallèles au plan de diffusion.

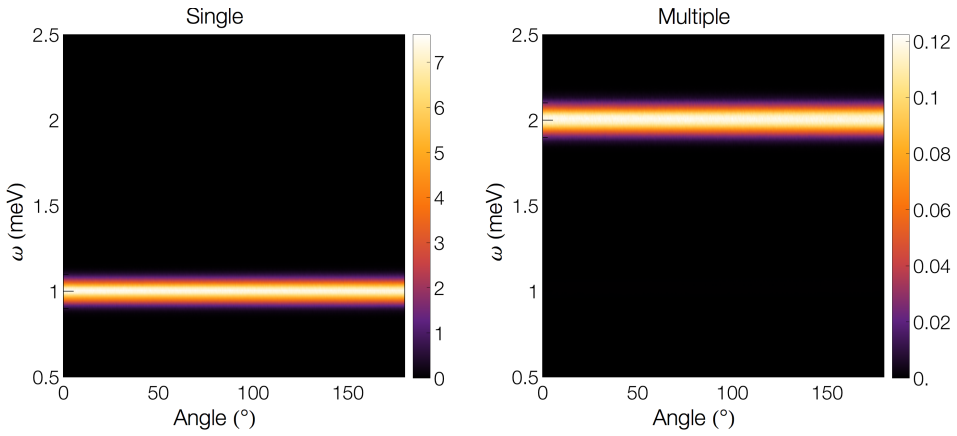


Figure 3.2: $S(\phi, \omega)$ de l'échantillon plat inélastique, calculé à partir de MScat, montrant la contribution de la diffusion simple (à gauche) et de la diffusion multiple (à droite).

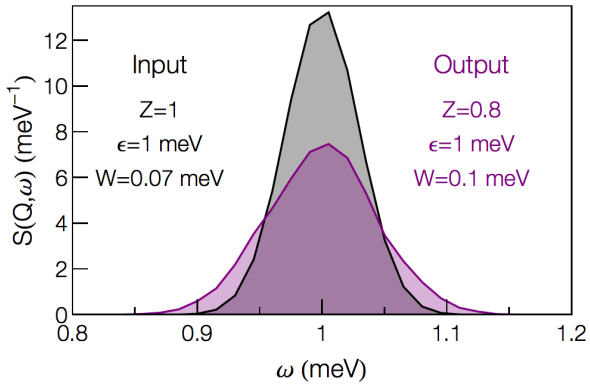


Figure 3.3: $S(Q, \omega)$ pour un vecteur d'onde Q donné. Comparaison de l'entrée (Input) du programme en noir avec la sortie (Output) en violet.

Test avec un échantillon point

Afin de bien comprendre le processus de diffusion multiple, un autre test a été effectué toujours avec un échantillon idéal. Il s'agit d'un échantillon bidimensionnel d'une hauteur d=0.01 cm et avec cette fois-ci une dépendance en vecteur d'onde Q pour les diffusions. Nous l'avons appelé échantillon « point », car il présente une intensité $Z = 1$ en un point situé à $\epsilon = 0.5$ meV et $Q_0 = 0.7$ Å^{-1}, avec une largeur W=0.1 meV. Sa fonction de diffusion s'écrit :

$$S(Q,\omega) = \frac{Z}{W\sqrt{\pi/\ln 16}} \exp\left[-\ln 16\left(\frac{\omega-\epsilon}{W}\right)^2\right] \exp\left[-\ln 16\left(\frac{Q-Q_0}{W}\right)^2\right]. \tag{3.11}$$

Les résultats de la simulation sont présentés en Figures 3.4 et 3.5, sous la forme de $S(\phi,\omega)$. Comme attendu, $S(\phi,\omega)$ présente de l'intensité en $\omega = 0.5$ meV pour la diffusion simple, et en $\omega = 1$ meV pour la diffusion double. En utilisant la relation (2.27) liant Q^2 à $\cos\phi$, le vecteur d'onde de transfert $Q = 0.7$ Å^{-1} correspond à un angle de diffusion $\phi = 30°$ ou $\phi = -30°$. Des pics sont ainsi présents pour la contribution de la diffusion simple au niveau de ces deux angles de diffusion. Un schéma du processus de diffusion double est représenté en Figure 3.5 pour mieux suivre la description ci-dessous. Lors de la seconde diffusion, le neutron peut à nouveau être diffusé en $\phi = 30°$ ou $\phi = -30°$. Des pics d'intensité sont donc attendus en ϕ=-60°, 0° et 60 °, avec un pic plus grand à 0°, car la probabilité pour le neutron d'être diffusé en 0° est deux fois plus grande qu'en -60° et 60°. C'est bien ce que l'on observe sur la Figure 3.5. Un fond diffus de faible intensité est également visible pour tous les angles entre -60° et 60°. Il s'explique par le fait que l'échantillon n'est pas parfaitement bidimensionnel, ainsi la diffusion ne se passe uniquement dans un plan comme présenté sur le schéma mais aussi dans un cône. Enfin, on remarque sur la Figure 3.4 de droite, de l'intensité en $\omega = 0$ meV pour la contribution de la diffusion multiple. Cette dernière provient de la température, qui vaut T=3 K et qui introduit des processus anti-Stokes. Ces processus sont faibles car la température est relativement basse, mais engendrent tout de même de l'intensité pour la diffusion simple en $\omega = -0.5$ meV, pouvant ainsi créer de l'intensité pour la diffusion double en $\omega = 0$ meV.

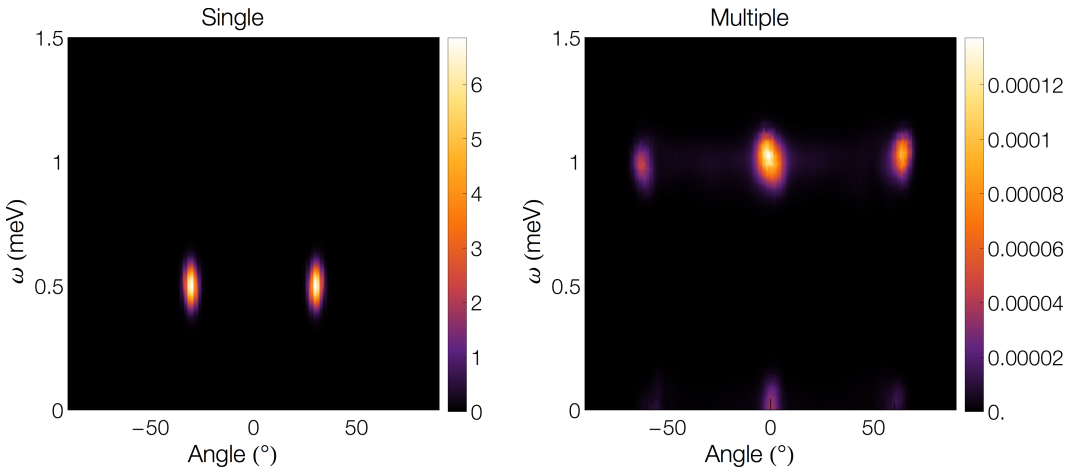


Figure 3.4: $S(\phi, \omega)$ de l'échantillon point, calculé à partir de MScat, montrant la contribution de la diffusion simple (à gauche) et de la diffusion multiple (à droite).

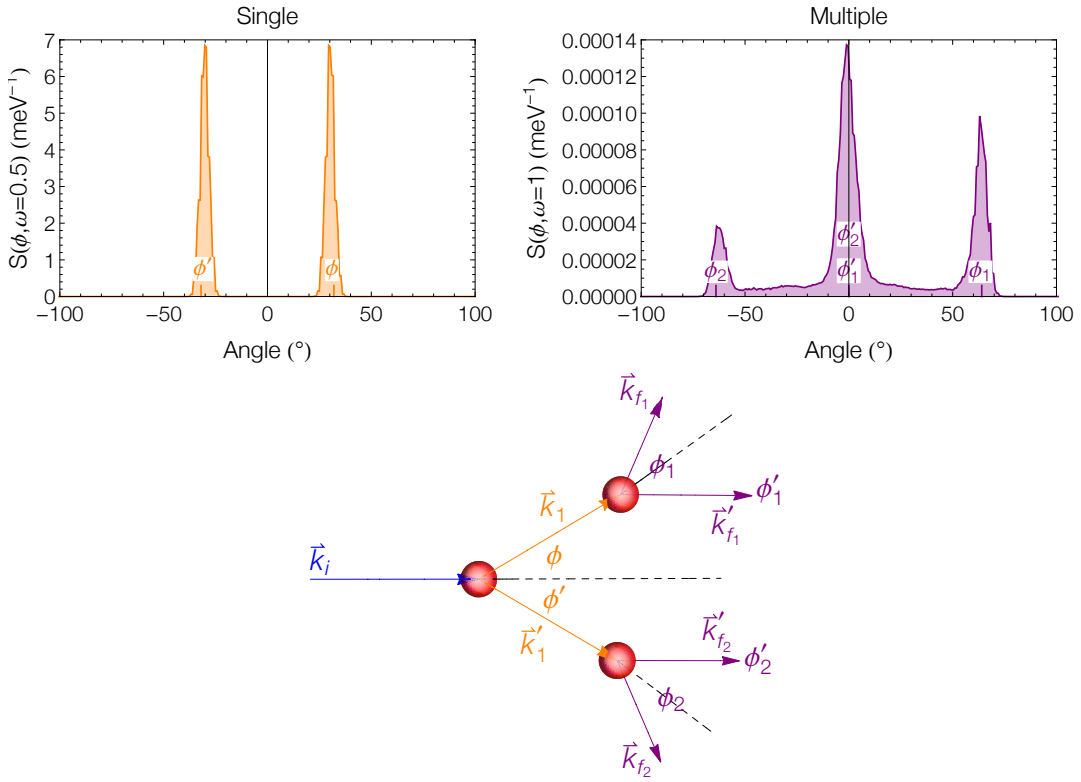


Figure 3.5: En haut : $S(\phi, \omega)$ en fonction de l'angle de diffusion ϕ à une énergie constante de $\omega = 0.5$ meV pour la diffusion simple (à gauche) et $\omega = 1$ meV pour la diffusion multiple (à droite). En bas : schéma du processus de diffusion double.

3.3.3 McStas

Le second programme testé est McStas (Monte Carlo Simulation of Triple Axis Spectrometers) [49]. Il s'agit d'un progiciel dédié en premier lieu à la simulation des instruments de diffusion de neutrons. Il est possible d'insérer un échantillon au sein de l'instrument et de simuler une expérience virtuelle avec la source, l'échantillon et les détecteurs. Le programme Monte Carlo est écrit en langage C. Le code source utilisé est celui basé sur le modèle d'instrument, templateTOF, d'Emmanuel Farhi [48] [voir l'Annexe B]. L'échantillon est décrit à l'aide de la composante Isotropic_Sqw. La diffusion par un matériau est divisée en deux parties : la diffusion cohérente et la diffusion incohérente.

Fonctionnement

McStas dispose d'une interface graphique mcgui (il est possible aussi d'utiliser des lignes de commande avec mcrun) à partir de laquelle on compile puis lance les calculs (il est possible d'en lancer plusieurs en parallèle avec MPI). Pour déboguer ou visualiser la simulation graphiquement, on peut choisir l'option Trace à la place de Simulate. Une fenêtre s'ouvre alors avec le schéma de l'instrument et on peut voir le tracé de la trajectoire de chaque neutron. En sortie de McStas, est donnée l'intensité des excitations S(ϕ,E_f) en fonction de l'angle de diffusion ϕ et de l'énergie finale du neutron E_f. Après avoir calculée l'énergie de transfert ω à partir de la loi de conservation de l'énergie $\omega = E_i - E_f$, la fonction de diffusion S(ϕ,ω) est transformée en S(Q,ω).

Test avec un échantillon plat élastique

Pour démarrer avec McStas, un modèle simple a tout d'abord été testé. Il s'agit d'un échantillon plat incohérent élastique. En sortie de McStas, l'intégration de l'intensité sur toutes les énergies révèle une intensité anormalement non constante en fonction de l'angle de diffusion [voir la Figure 3.6]. Comme sur IN5, les détecteurs de la simulation sont orientés selon des cônes de Debye-Scherrer. Ce problème d'intensité provient probablement de la mauvaise intégration de l'intensité sur les anneaux de Debye-Scherrer. Pour le corriger, les données ont été renormalisées en les divisant par l'intensité intégrée pour chaque énergie. La sortie de McStas avant et après renormalisation est représentée en Figure 3.7. Cette renormalisation sera aussi à appliquer pour l'^{4}He superfluide. Même en appliquant cette correction, des problèmes d'intensité, pour la diffusion simple, ont été observés avec McStas lorsque l'on a essayé de rentrer une fonction de diffusion S(Q,ω) avec une dispersion, comme le phonon par exemple. Ces problèmes ont été transmis à des développeurs de McStas, mais n'ont pour le moment pas été résolus. Malgré ces

problèmes d'intensité pour la diffusion simple, les résultats obtenus pour la diffusion multiple sont en accord avec les deux autres programmes.

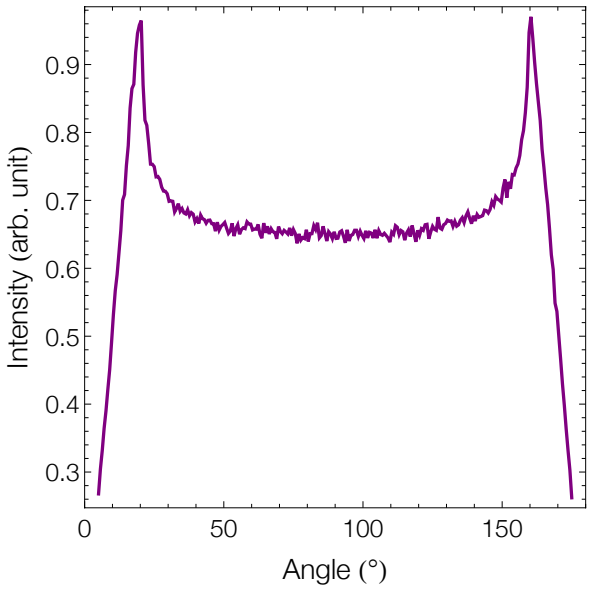


Figure 3.6: Intensité intégrée sur toutes les énergies en fonction de l'angle de diffusion.

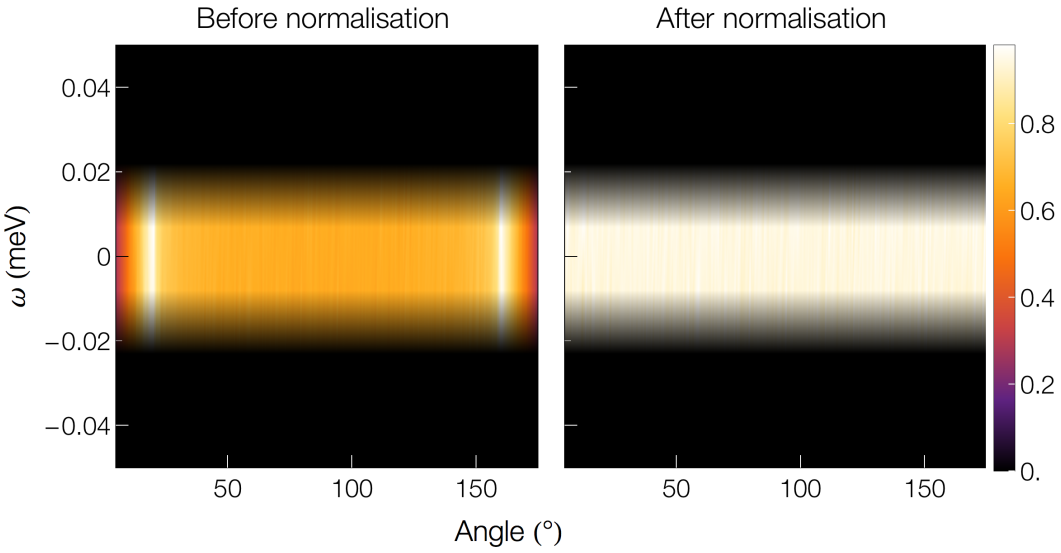


Figure 3.7: $S(\phi, \omega)$ de l'échantillon plat élastique, calculé à partir de McStas, avant (à gauche) et après (à droite) la renormalisation par l'intensité intégrée.

3.3.4 Programme de Dawidowski

Enfin, le dernier programme testé pour le calcul de la diffusion multiple est celui de Javier Dawidowski. Son travail et celui de ses collaborateurs a été motivé par la demande de calculs pour la physique des réacteurs. Le programme a été testé et validé pour l'analyse de systèmes moléculaires, comme par exemple l'eau [27]. Nous avons travaillé avec Dawidowski pour l'adapter et le faire fonctionner pour l'hélium. Le programme est écrit majoritairement en Fortran 95.

Fonctionnement

Une particularité de ce programme est qu'il faut donner en entrée non seulement la fonction de diffusion S(Q,ω), mais également les valeurs de la section efficace totale inélastique $\sigma_D(E_i)$ en fonction de l'énergie incidente E_i. On rappelle que cette dernière permet de choisir la longueur du trajet du neutron dans l'échantillon. Dans MScat et McStas, cette grandeur est calculée à l'intérieur de la boucle Monte Carlo à partir de la fonction de diffusion. Dawidowski et ses collaborateurs prennent en compte le modèle du gaz idéal de particules pour déterminer $\sigma_D(E_i)$ [51]. Mais ce modèle est très approximatif pour les énergies incidentes faibles, de l'ordre du meV. Il est aussi possible de mesurer directement la section efficace par transmission, mais il n'existe que des données assez pauvres de $\sigma_D(E_i)$ pour l'hélium, obtenues par Sommers *et al* [52]. Finalement, nous avons choisi de calculer $\sigma_D(E_i)$ à partir de nos données expérimentales S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide. En utilisant les relations (3.2), (2.14) et en effectuant un changement de variable en utilisant la relation (2.27) et la relation d'angle solide $\Omega = 2\pi(1 - cos\phi)$, on en déduit :

$$\sigma_D(E_i) = \frac{N\sigma_{coh}}{2k_i^2} \int QdQ \int S(Q,\omega)d\omega. \tag{3.12}$$

L'intégration porte sur tout l'espace accessible en énergie et en vecteur d'onde. Nous avons donc utilisé nos données mesurées à l'énergie incidente qui couvre le maximum d'espace (20.45 meV soit $\lambda = 2$ Å). Le résultat est montré en Figure 3.8 et comparé avec les mesures de Sommers *et al.* On observe un saut assez abrupt qui démarre à l'énergie incidente nécessaire pour créer un roton. L'intensité du roton étant très grande, on peut dire que la section efficace totale inélastique de l'^{4}He superfluide correspond en fait à la probabilité de créer un roton. A haute énergie, la section efficace tend vers la section efficace des atomes libres. Un écart est constaté au niveau du saut par rapport aux mesures de Sommers *et al* et provient sans doute du fait que ces dernières ont été faites à une température plus haute, T=1.25 K.

Une autre particularité de ce programme est qu'il est itératif. Le $S(Q,\omega)$ mesuré est utilisé pour la première exécution et est noté $S^{(0)}(Q,\omega)$. A la fin de chaque itération i, les données expérimentales sont corrigées de la manière suivante :

$$S^{(i+1)}(Q,\omega) = \frac{f_{DM}^{(i)}(Q,\omega)S^{(0)}(Q,\omega)}{H^{(i)}(Q,\omega)}. \tag{3.13}$$

A la prochaine exécution, $S^{(i+1)}(Q,\omega)$ est utilisé comme entrée. La correction à la fin d'une exécution s'effectue quant à elle toujours sur les données brutes $S^{(0)}(Q,\omega)$. Le processus converge rapidement, c'est-à-dire que l'on n'observe plus de variation pour la contribution de la diffusion multiple, après seulement six itérations. Le facteur $f_{DM}(Q,\omega)$ est le facteur de diffusions multiples qui correspond au rapport de l'intensité de la diffusion simple sur l'intensité de la diffusion totale. Le facteur $H(Q,\omega)$ est le facteur d'atténuation (il s'agit du même que celui de Sears [43]) qui correspond au rapport des diffusions simples détectées sur toutes les diffusions simples. Une fraction de diffusions simples est en effet perdue à cause de l'absorption, des diffusions multiples et de l'efficacité des détecteurs.

En sortie du programme, la fonction de diffusion $S(Q,\omega)$ est obtenue directement, contrairement aux autres programmes MScat et McStas qui donnent $S(\phi,\omega)$.

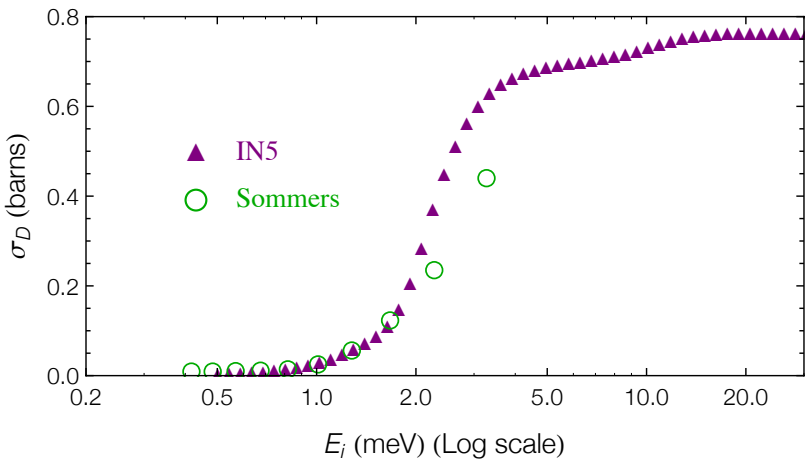


Figure 3.8: Section efficace totale inélastique σ_D de l'^{4}He superfluide en fonction de l'énergie incidente E_i. En violet, valeurs calculées à partir de nos données expérimentales et en vert celles mesurées par Sommers *et al* [52]. Pour des énergies supérieures à 20 meV, nous avons supposé que σ_D ne varie plus.

Test

Le programme a été testé directement avec comme entrée l'^{4}He superfluide. Les résultats sont présentés dans le chapitre 5. Contrairement à MScat et McStas, la sortie redonne exactement l'entrée pour la contribution de la diffusion simple.

3.3.5 Conclusion : avantages et inconvénients de chaque programme

Pour conclure, les résultats du calcul de la diffusion multiple sont assez convaincants pour les trois programmes Monte Carlo, même si certains problèmes ont été montrés. MScat introduit en sortie pour la diffusion simple, un élargissement systématique en énergie et également un décalage en énergie si on entre une fonction avec une dispersion. Ces problèmes peuvent être reliés à la dépendance en température des variables sans dimension, qui engendre des arrondis non corrects dans les calculs. McStas pose des problèmes d'intensité si on entre une fonction de diffusion avec une dispersion. Enfin, le programme de Dawidowski a l'avantage par rapport aux deux autres programmes que la sortie redonne exactement l'entrée pour la diffusion simple. Malgré les problèmes cités, les trois programmes donnent des résultats cohérents pour le calcul de la diffusion multiple et une fraction de diffusion multiple proche de 1 %, en accord avec l'estimation de Sears donnée au paragraphe 5.2. Pour résumer, nous listons dans le tableau ci-dessous les avantages et inconvénients de chaque programme.

	MScat	McStas	Dawidowski
Avantages	-Validé par la communauté neutronique	-Combiner des échantillons -Interface graphique -Grande rapidité de calcul	-Aucun problème en sortie pour la diffusion simple -Code simple
Inconvénients	-Variables dépendantes de la température -T_{min}=3 K -Élargissement -Décalage en énergie	-Problème d'intensité si entrée avec une dispersion	

Tableau 3.2: Avantages et inconvénients de chaque programme.

Chapitre 4

Dynamique de l'^{4}He superfluide au delà des excitations à une particule

4.1 Introduction

De nouvelles mesures du facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide ont été effectuées par diffusion inélastique de neutrons. Nous présentons dans ce chapitre une cartographie complète des excitations, obtenue à partir de ces mesures à la pression de vapeur saturante ainsi qu'à la plus haute pression mesurée, 24 bars. Nous commencerons par décrire l'expérience, pour ensuite discuter du traitement des données et enfin pouvoir présenter les nouvelles cartes des excitations. Pour finir, les facteurs de structure seront déterminés à P=0 et 24 bars, à partir de nos nouveaux ensembles de données.

4.2 Description de l'expérience

Les mesures ont été effectuées à l'Institut Laue Langevin avec le spectromètre temps de vol IN5. L'échantillon d'^{4}He superfluide, de grande pureté (99.999 %), était contenu dans une cellule d'aluminium cylindrique d'une faible épaisseur de 1 mm et de diamètre intérieur égal à 15 mm. Des plaques de cadmium de 0.5 mm d'épaisseur ont été placées dans la cellule tous les centimètres pour limiter les diffusions multiples, un important artefact expérimental discuté dans les chapitres **4** et **6**. La cellule était connectée à la boîte à mélange d'un réfrigérateur à dilution, via une pièce en cuivre équipée avec un échangeur en poudre d'argent frittée. Le bon contact thermique assuré par ce dispositif a permis de faire des mesures à très basses températures, en dessous de T=100 mK. Des mesures ont été réalisées à la pression de vapeur saturante (0 bar) et également

sous pression, à P=0.5, 1, 2, 5 et 10 bars, jusqu'à la pression de 24 bars, c'est-à-dire juste avant la solidification de l'hélium. Les pressions dans le système étaient mesurées à l'aide d'une jauge Digiquartz très sensible, située en dehors du cryostat, permettant d'obtenir des mesures dans la gamme 0-60 bars avec une précision de 6 mbar, donnant une précision de 20 mbar pour les pressions dans la cellule. Enfin, différentes énergies (longueurs d'onde) incidentes ont été utilisées pour obtenir la carte complète du facteur de structure dynamique. A P=0 et 24 bars, des mesures ont été effectuées aux énergies incidentes E_i=3.55, 5.11, 8 et 20.45 meV (λ=4.8, 4, 3.2 et 2 Å) et pour les pressions intermédiaires, elles ont été faites à E_i=3.55 meV (λ = 4.8 Å). Cette dernière est l'énergie incidente choisie comme compromis pour avoir en même temps peu de bruit de fond, un haut flux de neutrons, une grande gamme cinétique et une bonne résolution en énergie. Pour celle-ci, la résolution en énergie au voisinage de l'énergie de transfert élastique était de 70 μeV, comme montré ci-dessous en Figure 4.4. Pour les autres énergies incidentes, les résolutions sont de 0.12 meV à E_i=5.11 meV, 0.23 meV à E_i=8 meV et 0.92 meV à E_i=20.45 meV.

4.3 Traitement des données

Afin d'obtenir les facteurs de structure dynamique de l'^{4}He superfluide aux différentes longueurs d'onde et pressions à partir des spectres de données brutes, un traitement a été effectué à l'aide des routines standard du logiciel Lamp de l'ILL [53]. Un exemple de fichier Lamp est donné en Annexe A. Nous décrivons ci-dessous les différentes corrections effectuées.

4.3.1 Soustraction de la diffusion de la cellule

Diffusion de la cellule vide

Une mesure de la cellule vide a été effectuée avant d'introduire l'échantillon d'hélium. L'aluminium est le matériau choisi pour la cellule car il est quasi-transparent, en d'autres termes il diffuse peu (se référer au Tableau 2.1 pour les valeurs de ses section efficaces). On voit en effet sur le spectre S(Q,ω) représentée en Figure 4.1 que l'intensité liée à la diffusion élastique incohérente (en violet) est faible. Pour une longueur incidente λ = 4.8 Å, la diffusion est uniquement incohérente. En revanche, en dessous de λ = 4.66 Å, des pics de Bragg (en blanc) apparaissent, contribuant à l'intensification du bruit de fond.

Remarque : sur la Figure 4.1, à bas vecteur d'onde de transfert Q, le bruit (en orange) provient probablement de la rediffusion des pics de Bragg sur les écrans du cryostat.

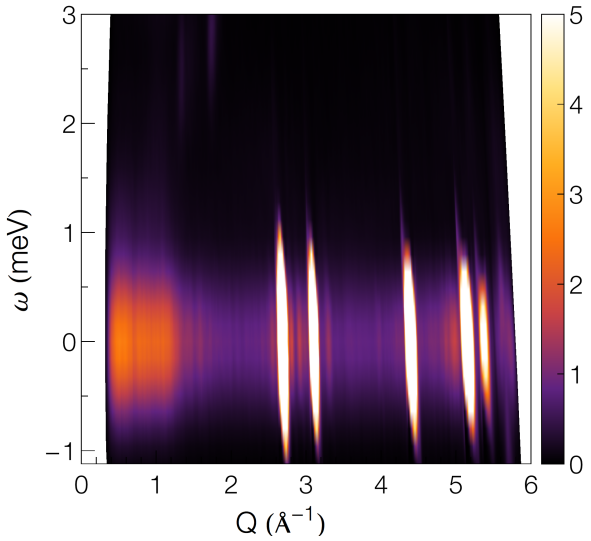


Figure 4.1: Spectre S(Q,ω) du bruit de fond de la cellule vide à $\lambda = 2$ Å, la longueur d'onde la plus petite mesurée et pour laquelle le bruit de fond est le plus grand.

Diffusion multiple Cellule+He

Une fois l'hélium introduit dans la cellule, des événements de diffusion multiple impliquant à la fois la cellule et l'hélium (He+Cellule ou Cellule+He) se produisent. Les rotons, de par leur densité d'états très importante, dominent ces processus; cette contribution n'est donc significative qu'à l'énergie du roton (ω=0.74 meV). En effet, on peut voir sur la Figure 4.2 que la correction de la diffusion multiple cellule+hélium (expliquée ci-dessous) n'est importante qu'entre $\omega \simeq 0.7$ et $\omega \simeq 1$ meV .

Remarque : Des diffusions multiples ont également lieu dans l'hélium (He+He), mais leur correction, plus difficile, est traitée spécifiquement dans les chapitres **4** et **6**.

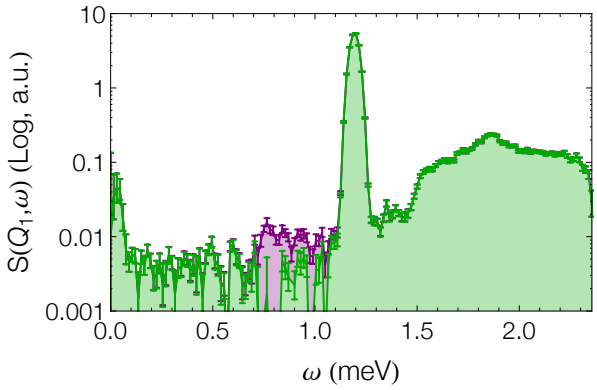


Figure 4.2: Spectre S(Q,ω) de l'hélium à Q constant $Q_1 = 1$ Å^{-1} en fonction de ω à $\lambda = 4.8$ Å et P=0 bar. En violet est représenté le spectre avant correction de la diffusion cellule+hélium et en vert le spectre après correction.

Correction de la diffusion de la cellule

La correction de la diffusion de l'hélium plus la cellule $I_{He+Cellule}$ est faite par soustraction de la cellule vide $I_{Cellule}$ et par soustraction des diffusions hélium+cellule. Ces dernières sont essentiellement indépendantes du vecteur d'onde et ne dépendent que de l'énergie de transfert ω. Elles sont donc soustraites de l'intensité intégrée en vecteur d'onde $S(\omega)$ multipliée par une constante qui est très faible, ces processus n'étant pas nombreux. Le spectre de l'hélium I_{He} est ainsi obtenu par :

$$I_{He} = I_{He+Cellule} - t \times I_{Celule} - cste \times S(\omega). \tag{4.1}$$

Le facteur t devant I_{Celule} est le facteur d'atténuation des neutrons dans l'échantillon ($t < 1$) [1]. Aux longueurs d'onde $\lambda = 4$ et 3.2 Å, la diffusion hélium+cellule présentait une dépendance non négligeable en vecteur d'onde de transfert Q, corrigée en faisant une somme sur les énergies, puis en ajustant la dépendance en Q par un polynôme qui a finalement été soustrait aux données.

4.3.2 Correction de l'efficacité des détecteurs

L'instrument IN5 possède 384 détecteurs d'^{3}He. Certains des pixels de ces détecteurs ne sont pas exploitables, ce sont principalement ceux à bas angles atteints par le faisceau direct. Les détecteurs ont de très légères variations en efficacité suivant la pression du

[1] Dû à sa faible section efficace de diffusion et à sa section efficace d'absorption nulle, le facteur t est très proche de 1 pour l'^{4}He.

gaz ou parce qu'il sont masqués partiellement et présentent donc une dépendance en angle ϕ. Pour corriger cet effet, un diffuseur isotrope est utilisé : il s'agit du vanadium. Les données d'hélium $E(\phi, t')$ où $t' = t - t_0$ avec t_0 la référence en temps du pic élastique, sont normalisées par division par le vanadium intégré en temps $V(\phi)$ au niveau du pic élastique [2]. L'obtention du spectre normalisé $S(\phi, t')$ se fait ainsi par :

$$S(\phi, t') = \frac{E(\phi, t')}{V(\phi)} \eta(\omega_{t'}), \tag{4.2}$$

où $\eta(\omega_{t'})$ est la dépendance de l'efficacité des détecteurs avec l'énergie des neutrons qui sont diffusés par l'échantillon. Sur la figure 4.3 est représentée le spectre du vanadium avant (à gauche) et après (à droite) normalisation. Nous voyons sur la figure de gauche que l'intensité des pics n'est pas la même pour tous les détecteurs (angles ϕ), et que ceci est bien corrigé sur la figure de droite.

Remarque 1 : Le vanadium sert aussi à déterminer la position en temps de vol du pic de diffusion élastique, nécessaire à la transformation du temps en énergie des données d'hélium. Dans les spectres avec l'hélium seul, le programme de traitement a tendance à confondre le pic élastique avec celui du roton, de très forte intensité.

Remarque 2 : L'intensité du vanadium intégrée en angle (ou vecteur d'onde) donne la résolution en énergie à une énergie de transfert élastique [voir la Figure 4.4]. Nous trouvons une résolution pour la largeur à mi-hauteur W de 70 μeV à $\lambda = 4.8$ Å. Les résolutions en énergie des autres longueurs d'onde ont été déterminées de la même manière.

[2] Les données du vanadium sont par ailleurs corrigées de la dépendance en Q du facteur de Debye-Waller, en prenant en compte la température du vanadium.

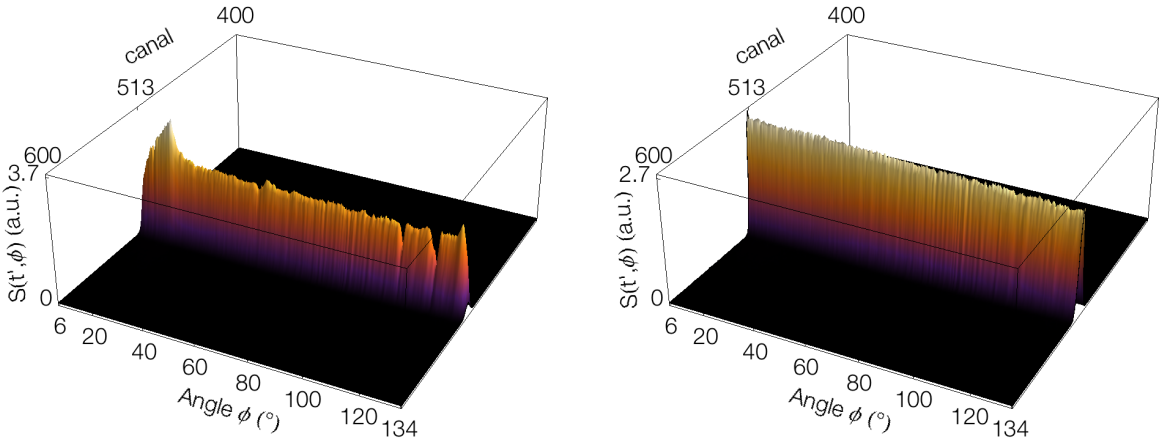


Figure 4.3: Spectre 3D $S(\phi, t')$ du vanadium avant et après normalisation à $\lambda = 4.8$ Å. Le canal de temps de vol correspondant au pic élastique est le numéro 513.

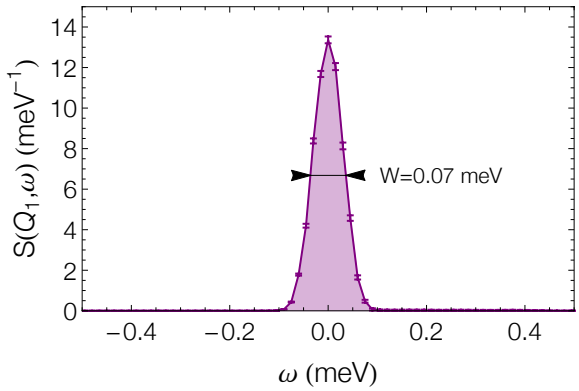


Figure 4.4: S(Q,ω) du vanadium à Q constant $Q_1 = 1$ Å^{-1} en fonction de ω à $\lambda = 4.8$ Å.

4.3.3 Transformation du temps de vol en énergie de transfert

La transformation du spectre en temps de vol en spectre en énergie fait intervenir un facteur t^4 d'après l'équation (2.29). Le pas en énergie décroît avec l'énergie de transfert, et la statistique se détériore. Pour ces raisons, les données ont été regroupées avec un pas en énergie constant. Le pas est choisi pour qu'il y ait un nombre de points raisonnable dans les pics élastiques ainsi que dans les pics des excitations.

Correction de l'énergie

Il est difficile de déterminer précisément l'énergie de transfert en unités absolues. En effet, d'une part, lors de la transformation du temps de vol en énergie, le facteur t^4 de l'équation (2.29) nécessite une connaissance précise de la position du pic élastique de référence. D'autre part, avec un spectromètre temps de vol, la transformation du temps en énergie absolue passe par le calcul de la vitesse et donc par une connaissance précise de la distance échantillon-détecteur. Or cette distance n'est pas évidente à déterminer, comme montré dans l'article de Stunault et al [54] qui ont réalisé des mesures pour estimer les chemins de vol entre l'échantillon et les différents détecteurs, sur l'instrument IN6. Même dans l'éventualité où la distance est bien calibrée (connaissance parfaite de la position de l'échantillon et des détecteurs), elle peut varier suivant l'angle de diffusion et l'énergie incidente (avec une grande énergie incidente le neutron ira plus loin dans le détecteur ^{3}He qu'avec une petite énergie incidente).

Pour déterminer avec précision l'énergie, nous avons cherché à retrouver à partir de nos mesures et avec l'analyse qui sera décrite en **7.4**, la valeur bien connue de la vitesse du son à P=0 bar, $C_0 = 238.3$ m/s. Pour cela, il a fallu soustraire à nos données à P=0 bar une énergie de 9.22 μeV. Cette même énergie a été soustraite également aux données sous pression. Comme on le verra en **7.3**, la correction de l'énergie nous a permis d'obtenir des valeurs pour le gap en énergie du roton Δ_R, en accord avec la littérature pour toutes les pressions. A noter que la valeur de 9.22 μeV est très faible devant les énergies typiques des excitations, de l'ordre du meV. Elle correspond finalement à l'incertitude sur la position en temps de vol du pic élastique.

4.3.4 Transformation de l'angle de diffusion en vecteur d'onde de transfert

Pour la transformation de l'angle de diffusion en vecteur d'onde de transfert (la relation entre les deux est donnée par l'équation (2.27)), différents angles ont été regroupés en

des vecteurs d'onde Q constants avec un pas de 0.01 Å^{-1}. Ce pas a été choisi afin d'avoir une résolution convenable en Q tout en ayant une bonne statistique.

4.3.5 Normalisation

Finalement, pour obtenir les facteurs de structure dynamique en unités absolues de l'^{4}He superfluide pour les différentes pressions et longueurs d'ondes, il a été choisi de diviser toutes les données par l'intensité intégrée en énergie au niveau du roton (à $Q_2 = 2$ Å^{-1}), et ensuite de les multiplier par le poids Z=0.93 à Q_2, donné par des travaux antérieurs [4, 5, 55]. Après normalisation, l'intensité intégrée en énergie, correspondant à l'aire en violet de la Figure 4.5, vaut ainsi Z=0.93.

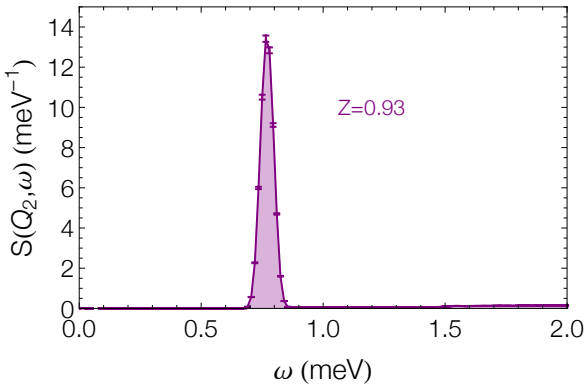


Figure 4.5: S(Q,ω) en unités absolues de l'hélium à Q constant $Q_2 = 2$ Å^{-1} en fonction de ω à $\lambda = 4.8$ Å et P=0 bar.

4.4 Cartographie des données

Après avoir effectué le traitement des données, nous sommes en mesure de présenter les nouvelles cartes expérimentales du facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide, allant environ jusqu'à ω=15 meV en énergie et environ Q=5 Å^{-1} en vecteur d'onde, gamme cinétique comparable avec la Figure 1.3 de Cowley et Woods présentée dans le paragraphe **1.2.2** [20]. Nous décrivons par la suite les résultats à la pression de vapeur saturante, puis ceux à la plus haute pression, de 24 bars.

4.4.1 Résultats à la pression de vapeur saturante

Disposant de données à quatre longueurs d'onde différentes à P=0 bar, nous pouvons utiliser pour chaque domaine en énergie-impulsion celles qui présentent la meilleure résolution afin de construire une carte optimisée du facteur de structure dynamique S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide.

La Figure 4.6 présente les résultats du facteur de structure dynamique combinant ces quatre longueurs d'onde. Lorsque la longueur d'onde diminue, la résolution instrumentale se dégrade. Ainsi, tout le spectre à λ=4.8 Å est d'abord représenté. En dehors de sa gamme cinétique, les données à λ=4 Å ont été ajoutées. Ont ensuite également été ajoutées les données à λ=3.2 Å et enfin celles à λ=2 Å. La Figure 4.6 montre que les différents spectres se raccordent correctement. L'effet de la résolution instrumentale est cependant visible au niveau du plateau de Pitaevskii à $Q \simeq 2.8$ Å^{-1} et $\omega \simeq 1.5$ meV entre λ=4 et λ=3.2 Å où on passe de manière discontinue de la couleur rouge à la jaune, mais ceci s'explique facilement par l'augmentation de la largeur instrumentale. A plus haute énergie, où la largeur physique des excitations est bien plus grande que la largeur instrumentale, il n'y a pas de problème de raccord.

La soustraction de la diffusion de la cellule (discutée en **4.3.1**) a été faite de manière satisfaisante. En effet, il n'y a pas d'intensité en dessous de la courbe phonon-maxon-roton. Il reste seulement un léger bruit de fond à ω proche de 0 provenant de la cellule d'aluminium. Une bande blanche est visible à l'énergie de transfert du roton. Elle est due à la difficulté de soustraire le bruit de fond correspondant à des processus de diffusion cellule+roton.

Au dessus de la courbe très intense en rouge du phonon-maxon-roton, des contributions au facteur de structure dynamique de faible intensité, déjà observées dans des expériences précédentes [20, 56–58], sont visibles. Ces structures, appelées multi-excitations, sont très bien définies à partir de nos nouvelles mesures et seront analysées en détail dans les chapitres **6** et **7**. Enfin, à grand vecteur d'onde de transfert, au dessus de $Q \simeq 3.5$ Å^{-1}, les excitations consistent en un signal large, centré approximativement à l'énergie des atomes libres d'^{4}He, $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M_4}$.

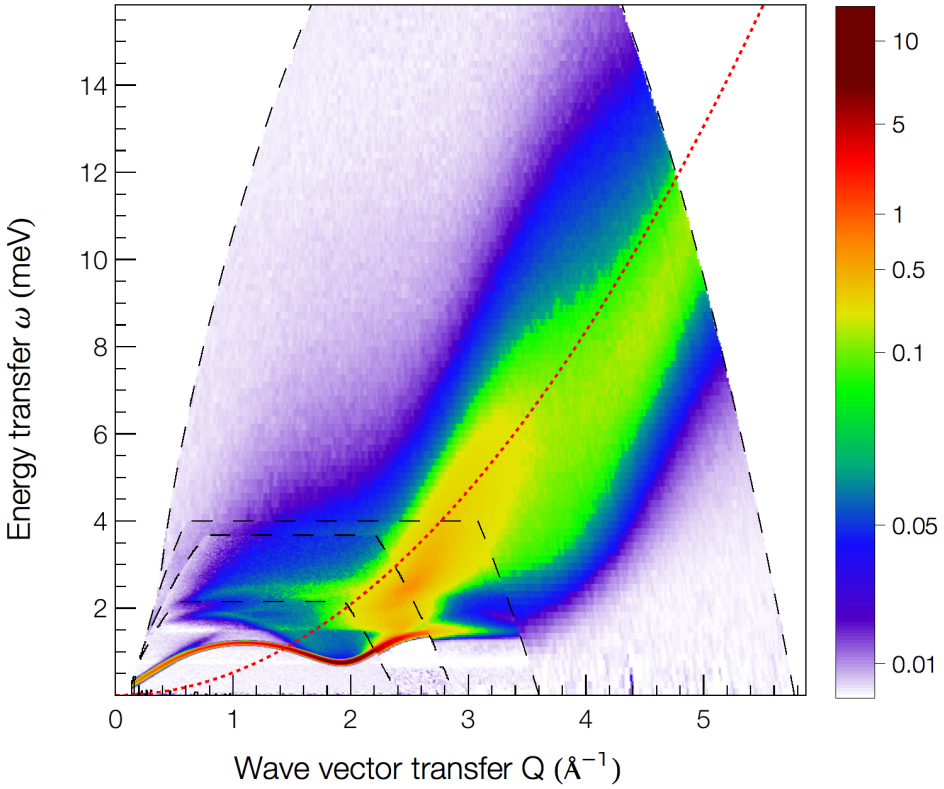


Figure 4.6: Facteur de structure dynamique S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide à la pression de vapeur saturante, mesuré en combinant quatre longueurs d'onde : λ=4.8, 4, 3.2 et 2 Å. Les lignes en pointillé noir symbolisent les limites des gammes cinétiques de ces différentes longueurs d'onde. La courbe en pointillé rouge est l'énergie $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M_4}$ des atomes libres d'^{4}He. L'unité de l'intensité absolue S(Q,ω) est en meV^{-1}.

4.4.2 Résultats à P=24 bars

Tout comme à P=0 bar, disposant de données à quatre différentes longueurs d'onde à P=24 bars, une combinaison de données a été effectuée pour représenter le facteur de structure dynamique [voir la Figure 4.7]. Des cartes à très haute pression ont également été réalisées précédemment [58, 59]. Tout le traitement concernant les mesures à P=0 bar est également valable à P=24 bars. La dépendance en pression des excitations sera décrite en **6.3.2** et analysée en détail dans le chapitre **7**.

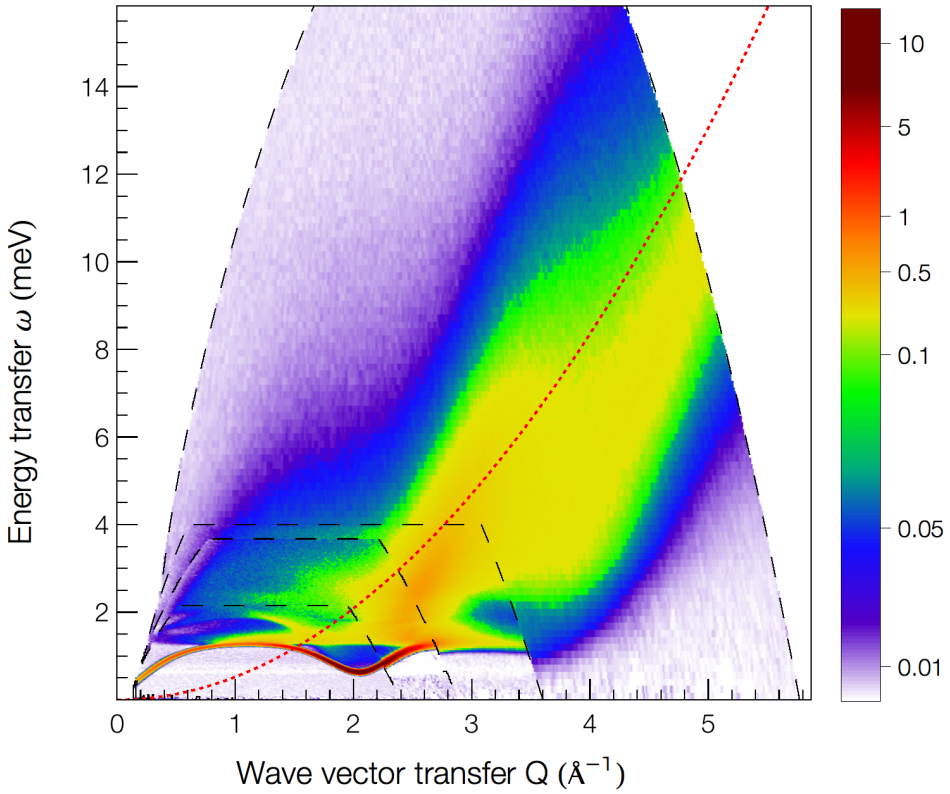


Figure 4.7: Facteur de structure dynamique S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide à la pression de 24 bars, déterminé en combinant quatre longueurs d'onde : λ=4.8, 4, 3.2 et 2 Å. Les lignes en pointillé noir symbolisent les limites des gammes cinétiques de ces différentes longueurs d'onde. La courbe en pointillé rouge est l'énergie $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M_4}$ des atomes libres d'^{4}He. L'unité de l'intensité absolue S(Q,ω) est en meV^{-1}.

4.5 Détermination du facteur de structure

Le facteur de structure S(Q) peut être obtenu en intégrant le facteur de structure dynamique S(Q,ω) sur toutes les énergies. Le facteur de structure déterminé à partir des données d'IN5 présentées ci-dessus, est calculé dans cette section, tout d'abord à la pression de vapeur de saturante, puis à la plus haute pression de 24 bars. Les résultats permettent par ailleurs d'effectuer des vérifications importantes de la qualité des données.

4.5.1 A la pression de vapeur saturante

Le résultat à P=0 bar est présenté en Figure 4.8 pour les données combinant les quatre longueurs d'onde. S(Q) possède un pic à $Q \simeq 2$ Å^{-1}. Ce dernier révèle l'ordre de courte

portée dans le liquide. S(Q) doit tendre normalement vers 1 à plus haut Q, le résultat attendu pour un diffuseur incohérent, car à ces hauts vecteurs d'onde, le neutron interagit individuellement avec les atomes.

Notre résultat pour S(Q) est comparé à celui de Woods et Cowley [20], déterminé en combinant des données obtenues avec des spectromètres trois-axes et temps de vol, et également à celui de Svensson *et al* [60], qui ont fait des mesures de diffraction de neutrons, puis à celui de Wirth et Hallock [61], obtenu par mesures de rayons X à P=3.2 bars. L'ensemble des mesures est comparé aux résultats de Boronat [62, 63], calculés par Diffusion Monte Carlo (DMC). La première observation que l'on peut faire est que notre S(Q) ne tend pas vers 1 à haut Q, l'intensité est trop basse d'environ 18 %. L'explication est que l'on n'intègre pas assez loin en énergie pour prendre en compte toute l'intensité provenant de la largeur du signal des excitations de particules indépendantes. Par comparaison avec la théorie de Boronat, nous voyons que nous n'obtenons pas un meilleur résultat que les rayons X, qui utilisent une énergie incidente beaucoup plus grande et permettent donc d'aller beaucoup plus haut en transfert d'énergie. En revanche, notre S(Q) est très bon et semble meilleur que les anciennes mesures neutroniques jusqu'à $Q \simeq 2.4$ Å^{-1}, montrant que le traitement des données a été fait correctement. La détermination du facteur de structure a aussi été faite pour chaque longueur d'onde mesurée [voir l'encart de droite de la Figure 4.8] pour voir la contribution de chacune. A la longueur d'onde de 4.8 Å qui couvre le moins d'espace (Q,ω), à bas Q, au niveau du phonon, la courbe du facteur de structure suit celle des autres longueurs d'onde. Par contre, à plus haut Q, au niveau du maxon, dû au poids des multi-excitations, elle passe en dessous de celle des autres. Elle rejoint finalement à nouveau les autres longueurs d'onde au niveau du roton car ce dernier domine en intensité par rapport aux multi-excitations. Après le pic de S(Q), plus la longueur d'onde est grande et plus le facteur de structure est coupé à bas Q. Enfin, il a été vérifié que le facteur de structure à λ=2 Å se superpose avec celui déterminé à partir des longueurs d'onde combinées, excepté au niveau du roton, à cause de la résolution à λ=2 Å qui n'intègre pas toute l'intensité du roton, car une partie de son intensité est dans les énergies négatives.

Pour finir, dans l'encart de gauche de la Figure 4.8, est représentée le moment en énergie d'ordre 1, $\langle\omega^1\rangle$. Comme pour le facteur de structure, le moment déterminé expérimentalement s'écarte de la valeur attendue $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M}$ pour $Q \simeq 2.4$ Å^{-1}, ce qui confirme que l'intégration n'est pas portée jusqu'à assez haute énergie.

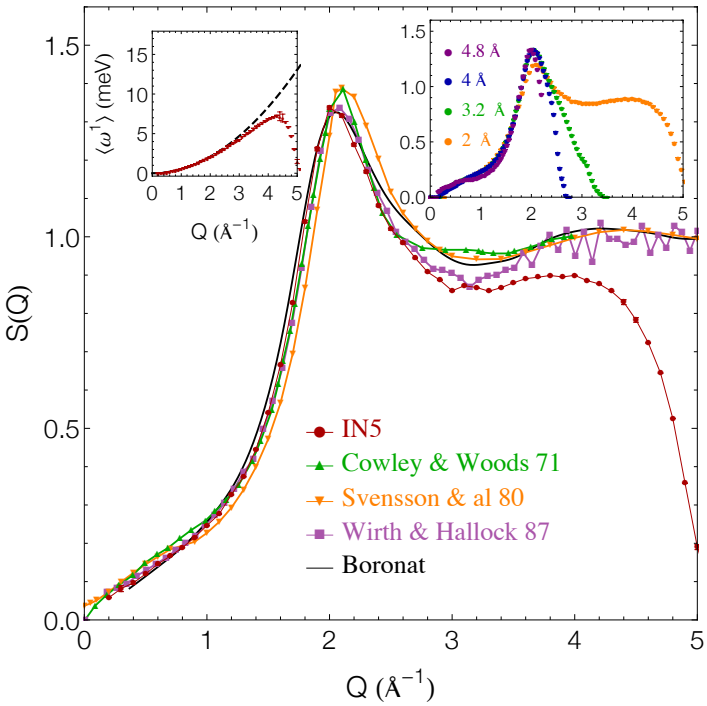


Figure 4.8: Comparaison du facteur de structure S(Q) à P=0 bar, déterminé à partir des données d'IN5 combinant quatre longueurs d'onde λ=4.8, 4, 3.2 et 2 Å, avec ceux déterminés à partir de mesures par Woods et Cowley [20], Svensson *et al* [60], Wirth et Hallock [61] (à 3.2 bars) et celui calculé par Boronat [62, 63]. En encart, à gauche, est représenté en rouge le moment en énergie d'ordre 1 $\langle\omega^1\rangle$ déterminé à partir des données d'IN5 combinant les quatre longueurs d'onde et la courbe en pointillé noir est la parabole $E_r = \frac{\hbar Q^2}{2M}$. En encart, à droite, est représenté S(Q) déterminé à partir de nos données d'IN5 pour chaque longueur d'onde. Dans cette figure, toutes les données d'IN5 ont été normalisées par rapport au S(Q) de Wirth et Hallock.

4.5.2 A P=24 bars

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats du facteur de structure à P=24 bars [voir la Figure 4.9]. Tout le traitement concernant le facteur de structure à P=0 bar est également valable à P=24 bars. Le maximum de S(Q) est plus haut à P=24 bars qu'à P=0 bar car avec la pression, les corrélations augmentent.

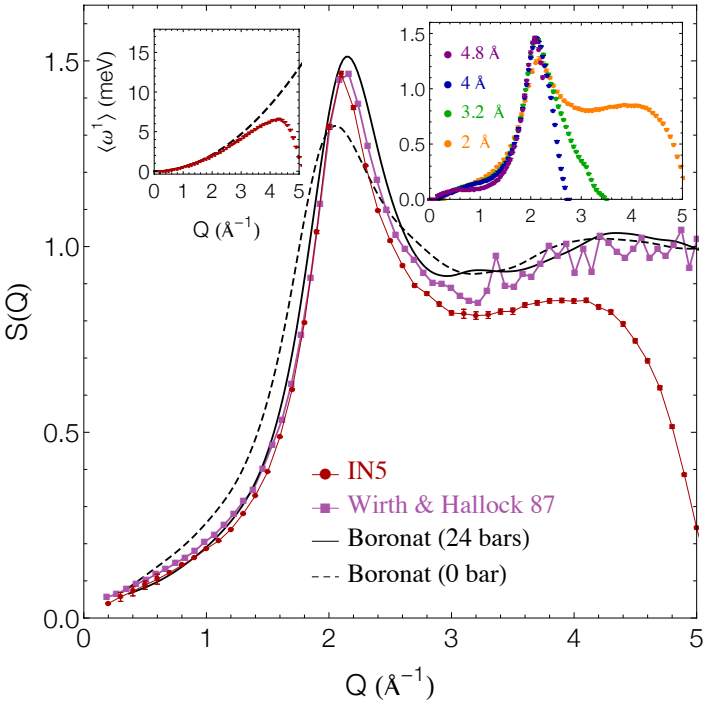


Figure 4.9: Comparaison du facteur de structure S(Q) à P=24 bars, déterminé à partir des données d'IN5 combinant quatre longueurs d'onde λ=4.8, 4, 3.2 et 2 Å, avec celui déterminé à partir de mesures par Wirth et Hallock à P=23.3 bars [61] et celui calculé par Boronat à P=0 et 24 bars [62, 63]. En encart, à droite, est représenté en rouge le moment en énergie d'ordre 1 $\langle\omega^1\rangle$ déterminé à partir des données d'IN5 combinant les quatre longueurs d'onde et la courbe en pointillé noir est la parabole $E_r = \frac{\hbar Q^2}{2M}$. En encart, à gauche, est représenté le S(Q) déterminé à partir de nos données d'IN5 pour chaque longueur d'onde. Dans cette figure, toutes les données d'IN5 ont été normalisées par rapport au S(Q) de Wirth et Hallock.

Chapitre 5

Identification des multi-excitations

5.1 Introduction

Notre objectif ici est d'identifier les structures bien définies que l'on observe dans le facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide au dessus de la courbe phonon-maxon-roton. Celles-ci, appelées multi-excitations, ont été montrées dans les spectres du chapitre précédent ; elles sont étudiées en détail dans ce chapitre et dans le suivant. Pour identifier correctement les multi-excitations, il est nécessaire de les distinguer des diffusions multiples, un artefact expérimental, dont nous avons discuté dans le chapitre **3**. En effet, les deux processus ont principalement lieu aux mêmes énergies et ont des contributions comparables en intensité ; la soustraction des diffusions multiples est donc essentielle quand on traite la région des multi-excitations. Nous avons vu dans le chapitre **3** qu'il est possible de calculer les diffusions multiples, en faisant des simulations avec des programmes Monte Carlo. Trois programmes, MScat [46, 47], McStas [49] et celui de Dawidowski [27] ont été utilisés, et nous allons présenter ici les résultats de l'ensemble des simulations. Les calculs ne concernent que la simulation de la diffusion multiple dans l'échantillon d'hélium. En effet, la soustraction de la contribution de la cellule d'aluminium ainsi que la correction de la diffusion multiple hélium+cellule ont été faites au préalable avec le logiciel Lamp [voir le chapitre précédent]. Deux méthodes avec deux entrées $S(Q, \omega)$ différentes seront testées pour les simulations. La première entrée est construite à partir de la courbe phonon-maxon-roton expérimentale, et la deuxième est constituée des données expérimentales brutes combinant deux longueurs d'onde. Nous expliquerons dans ce chapitre quelle entrée et quel programme ont été retenus pour faire la correction des diffusions multiples. Après cette procédure, nous serons finalement en mesure d'identifier les multi-excitations. Toutes les données expérimentales dans ce chapitre correspondent à des mesures à la pression de vapeur saturante. Toutes les

données simulées ont été normalisées de la même manière que les données expérimentales, décrite en **4.3.5**.

5.2 Estimation rapide de la fraction de diffusions multiples

Avant de présenter les résultats des simulations, nous allons tout d'abord estimer la fraction de diffusions multiples, c'est-à-dire le rapport de l'intensité des diffusions multiples sur l'intensité totale, à partir d'un calcul développé par Sears [44]. Le calcul prend en compte la géométrie de la cellule (taille et forme) ainsi que le nombre d'atomes par unité de volume et la section efficace totale. Ces deux dernières grandeurs servent à calculer la section efficace macroscopique. La cellule utilisée est cylindrique avec un rayon $r = 0.75$ cm et une hauteur totale de 6 cm. On a discuté en 3.3.2 de l'effet des diffusions multiples, qui diminue lorsque la hauteur de la cellule diminue. Ainsi, pour les limiter, des plaques de cadmium absorbantes pour les neutrons ont été placées tous les 1 cm dans le plan de diffusion. La hauteur considérée pour le calcul est donc $d = 1$ cm. Le nombre d'atomes par unité de volume à une pression P=0 bar vaut $n = 2.18 \times 10^{22}$ atm/cm^3 [voir le Tableau 7.5]. Contrairement à Sears, nous ne prenons pas pour la section efficace totale, la section efficace cohérente $\sigma_{coh} = 1.34$ barns, mais la section efficace totale de diffusion déterminé en **3.3.4** à E_i=3.55 meV, $\sigma_D(E_i = 3.55) \simeq 0.64$ barns (1 barn=1×10^{-24} cm^2). Finalement, la section efficace macroscopique vaut $\Sigma = n\sigma_{coh} = 0.014$ cm^{-1}, ce qui donne $\Sigma d = 0.014$ et $\Sigma r = 0.01$ et le libre parcours moyen du neutron vaut $l = \Sigma^{-1} = 72$ cm. Les dimensions de l'échantillon représentent donc seulement quelques pourcents du libre parcours moyen du neutron. La fraction de neutrons transmis par l'échantillon est donc grande. On peut l'estimer par la formule :

$$F(\vec{k_0}) = 1 - \frac{1}{2}\pi\Sigma r + \frac{4}{3}(\Sigma r)^2 - ... = 0.984. \tag{5.1}$$

Avec les dimensions choisies pour l'échantillon, seulement 1.6 % de neutrons sont diffusés, ce qui limite la diffusion multiple. On peut désormais calculer l'amplitude de la diffusion multiple qui est caractérisée par une grandeur δ et qui s'exprime dans le cas où $\Sigma d << 1$ et $\Sigma r << 1$ par :

$$\delta = \frac{1}{2}\Sigma d \ln\left\{\frac{[(2r)^2 + d^2]^{1/2}}{d}\right\} + \frac{8}{3\pi}\Sigma r \arctan\left(\frac{d}{2r}\right) = 0.0093. \tag{5.2}$$

En négligeant les diffusions au delà de l'ordre deux, la fraction de diffusion simple vaut :

$$\frac{1}{1+\delta} = 99.1\ \% \tag{5.3}$$

et celle de diffusion double :

$$\frac{\delta}{1+\delta} = 0.93\ \%. \tag{5.4}$$

Cette fraction de 0.93 % est non négligeable car elle est du même ordre de grandeur que celle des multi-excitations.

5.3 Simulation Monte Carlo

5.3.1 Méthode 1 : Entrée S(Q,ω) = courbe phonon-maxon-roton expérimentale

Données d'entrée

Pour le calcul des diffusions multiples dans l'^{4}He superfluide, la première entrée S(Q,ω) utilisée est construite à partir de la courbe phonon-maxon-roton déterminée à partir de nos données expérimentales. On rappelle que le facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide s'écrit :

$$S(Q,\omega) = S_1(Q,\omega) + S_m(Q,\omega) = Z_Q\delta(\omega - \omega_Q) + S_m(Q,\omega), \tag{5.5}$$

où $S_1(Q,\omega)$ correspond à la contribution des excitations élémentaires, c'est-à-dire à la courbe phonon-maxon-roton, avec Z_Q le poids des excitations et ω_Q leur énergie. $S_m(Q,\omega)$ décrit la contribution des multi-excitations. On choisit ici de ne prendre comme données d'entrée pour les simulations que la partie $S_1(Q,\omega)$, convoluée avec la résolution instrumentale en Q et ω [voir la Figure 5.1], car elle représente environ 99 % du signal total et donne quasiment toute l'intensité des diffusions multiples. Cela permet de s'affranchir du bruit de fond résiduel expérimental. De plus, MScat ne permet pas d'entrer directement une matrice S(Q,ω) ; par contre il a été facile de créer une fonction à partir de $S_1(Q,\omega)$. La courbe phonon-maxon-roton a été obtenue à partir de nos données expérimentales combinant deux longueurs d'onde $\lambda = 4.8$ Å et $\lambda = 4$ Å pour avoir accès à la totalité de la région autour du roton, c'est-à-dire aux données jusqu'à Q=2.6 Å^{-1}. Il est important de prendre en compte cette région car la probabilité de produire des diffusions multiples roton+roton est très forte, ce mode étant de très grande intensité.

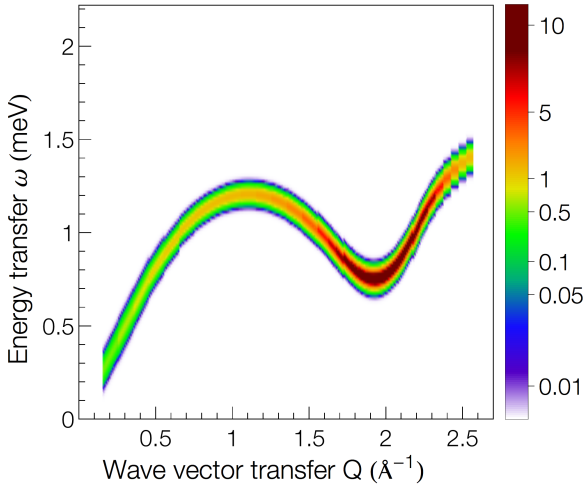


Figure 5.1: Fonction d'entrée $S(Q,\omega)$ construite à partir de la courbe phonon-maxon-roton déterminée à partir de nos données expérimentales.

Résultats

Les résultats des simulations réalisées avec les trois programmes sont présentés en Figure 5.2 avec des spectres 2D et en Figures 5.3 et 5.4 sous la forme de coupes à Q constant. Pour la contribution de la diffusion simple de S(Q,ω) [voir la Figure 5.2 de gauche et la Figure 5.3], avec MScat, il y a un élargissement en énergie comme observé en **3.3.2** mais également un décalage en énergie avant et après le minimum du roton (Q=1.9 Å^{-1}), que l'on voit très bien sur la Figure 5.3 (en violet) à Q=1.6 Å^{-1} et Q=2.1 Å^{-1}. Avec McStas, il y a une trop forte intensité dans la région du phonon, à bas vecteur d'onde, que l'on voit ostensiblement sur la Figure 5.3 (en vert) à Q=0.3 Å^{-1}. La correction des cônes de Debye-Scherrer décrite en **3.3.3** a pourtant été effectuée. Ce problème n'a pas été rencontré lors de calculs de contrôle en utilisant un échantillon « plat » avec des excitations à énergie finie non dispersives, donc nous pensons qu'il est associé à la pente du phonon. Le programme de Dawidowski donne quant à lui exactement la même sortie que l'entrée pour la diffusion simple. En effet les courbes rouges et bleues de la Figure 5.3 sont parfaitement superposées.

Pour la contribution de la diffusion multiple [voir la Figure 5.2 de droite et la Figure 5.4], McStas et le programme de Dawidowski donnent la même structure. Pour avoir la même intensité absolue, il faut diviser celle de McStas par un facteur d'environ 4.6. En effet, nous pouvons voir sur la Figure 5.4, que les courbes bleu et verte sont alors parfaitement superposées. Avec MScat, est observée une structure ressemblante mais

qui présente des différences significatives. Pour les trois programmes, on observe que la contribution de la diffusion multiple est particulièrement importante à bas vecteur d'onde Q. En effet, sur la Figure 5.4 où sont aussi représentées les données expérimentales brutes de l'^{4}He superfluide (non soustraites des diffusions multiples), on voit qu'à Q=0.5 Å^{-1}, l'intensité des diffusions multiples représente la moitié de celle des multi-excitations. Cela confirme qu'il est nécessaire de bien calculer les diffusions multiples pour ensuite extraire leur contribution du signal des multi-excitations. Dans le Tableau 5.1 ci-dessous, est donnée la fraction totale de diffusions multiples obtenue pour chacun des trois programmes. Les valeurs sont à comparer avec l'estimation faite dans le paragraphe **5.2** à partir d'un calcul de Sears, qui donne une valeur de 0.9 %. Le programme de Dawidowski est proche de cette valeur, MScat a une valeur un peu plus haute et la fraction déduite de McStas est nettement trop haute.

	MScat	McStas	Dawidowski
Fraction (%)	1.4	4.4	0.85

Tableau 5.1: Fraction de diffusions multiples pour les trois programmes.

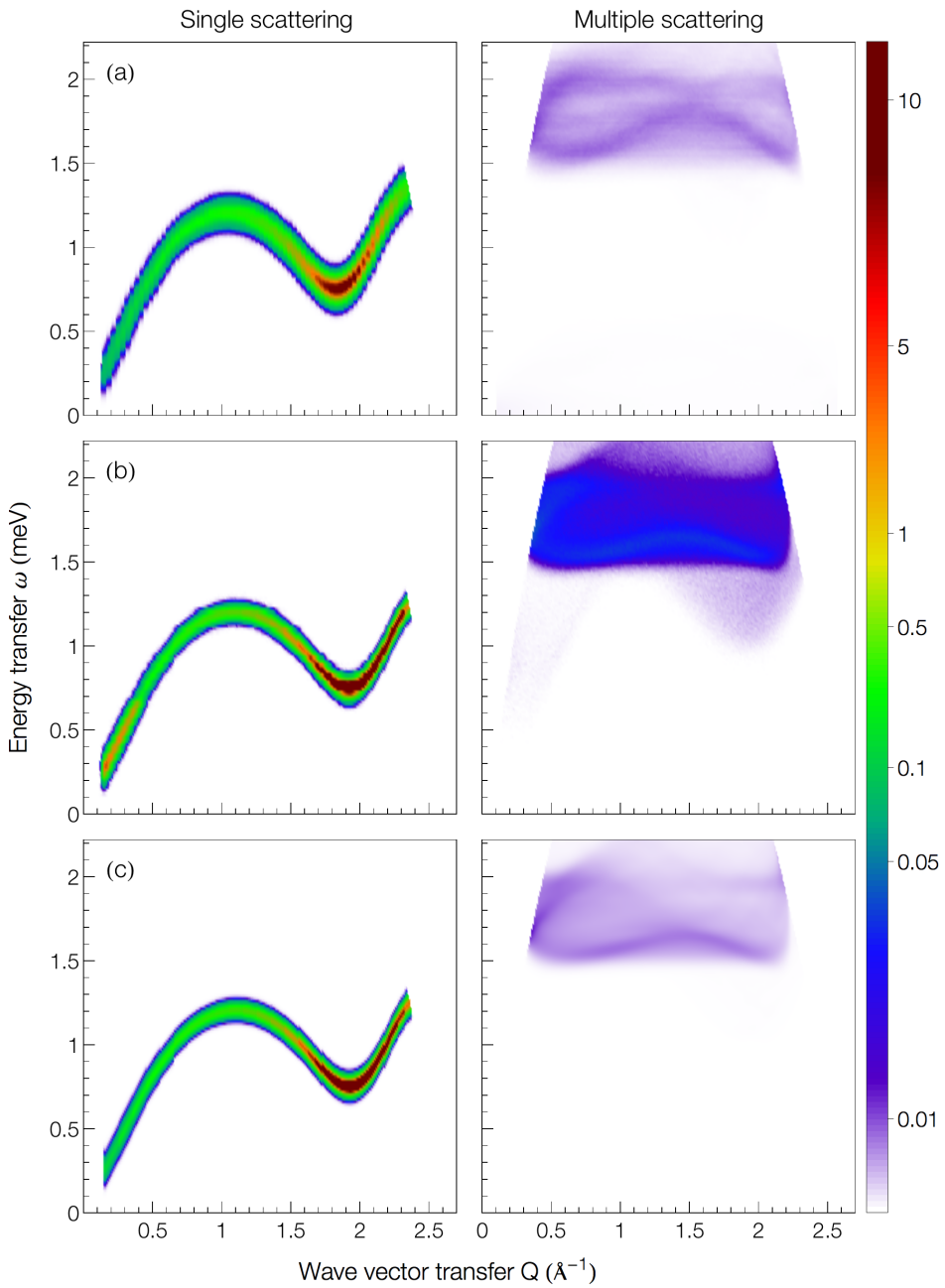


Figure 5.2: S(Q,ω) calculé à partir des trois programmes Monte Carlo pour une longueur d'onde $\lambda = 4.8$ Å, montrant les contributions de la diffusion simple (à gauche) et de la diffusion multiple (à droite) (a) MScat, (b) McStas et (c) programme de Dawidowski.

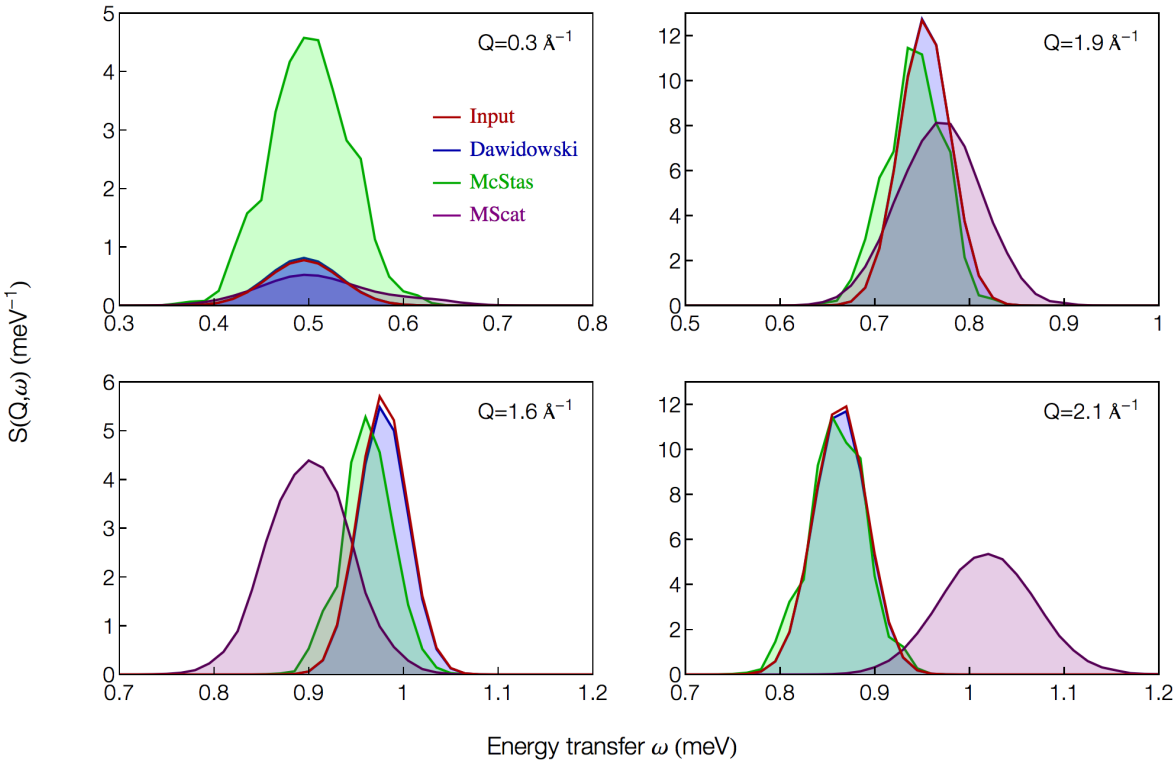


Figure 5.3: $S(Q,\omega)$ à différentes valeurs de Q montrant les excitations élémentaires. En rouge est représentée l'entrée des simulations. En bleu, vert et violet sont représentés respectivement les résultats obtenus avec les programmes de Dawidowski, McStas et MScat.

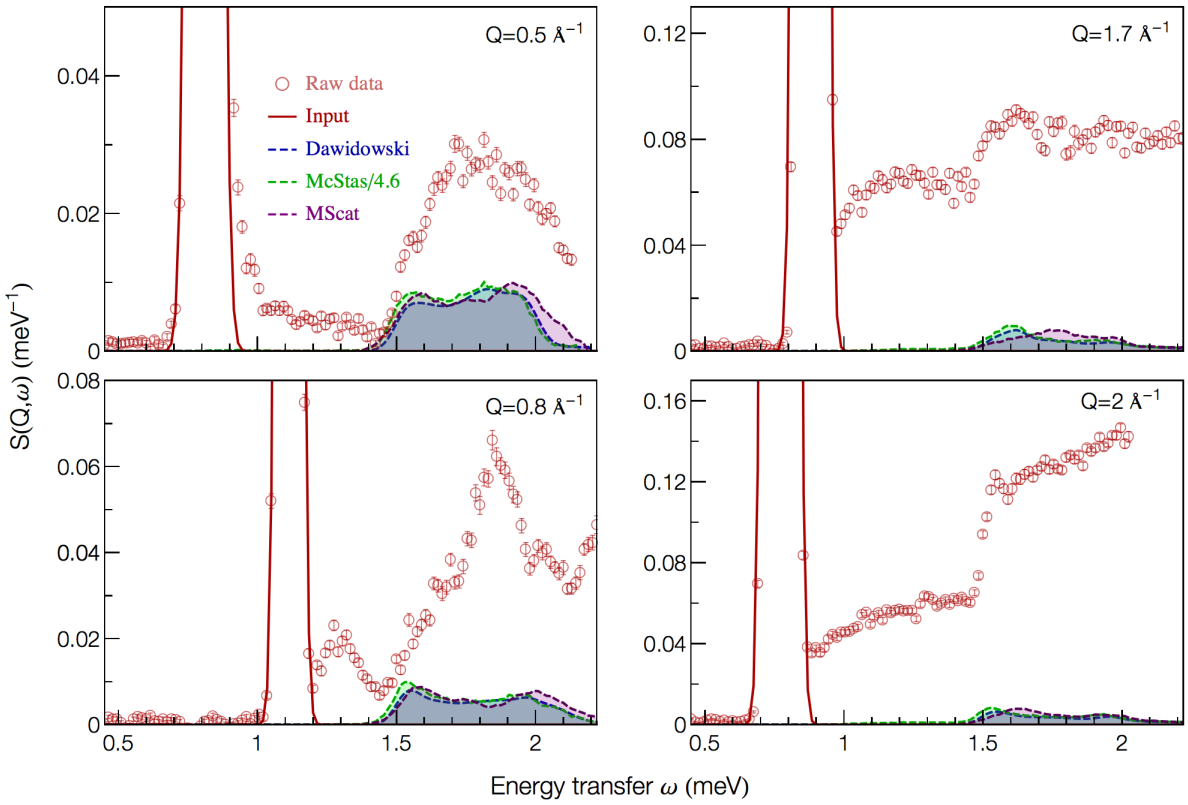


Figure 5.4: S(Q,ω) à différentes valeurs de Q. Un zoom sur les multi-excitations est effectué pour les données expérimentales brutes (en rouge) d'^{4}He superfluide à $\lambda = 4.8$ Å (données non soustraites des diffusions multiples). La ligne rouge est le pic du phonon-maxon-roton d'entrée des simulations (qui est coupé). En bleu, vert et violet sont représentés les résultats des simulations pour les diffusions multiples. L'intensité des données de McStas a été divisée par 4.6.

5.3.2 Méthode 2 : Entrée S(Q,ω) = Données expérimentales brutes combinant deux longueurs d'onde

Données d'entrée

Les données d'entrée désormais utilisées sont les données expérimentales brutes combinant deux longueurs d'onde $\lambda = 4.8$ et $\lambda = 4$ Å [voir la Figure 5.5]. C'est à nouveau pour simuler toute la région du roton qu'il a été choisi d'utiliser des données combinées. Pour les raisons discutées précédemment, seuls les programmes McStas et de Dawidowski ont été utilisés.

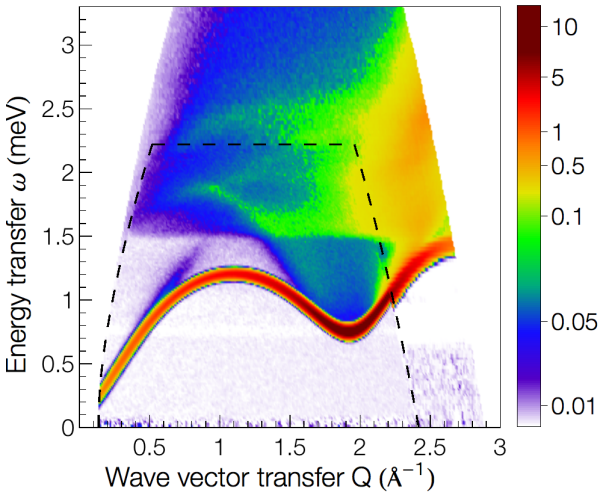


Figure 5.5: Données d'entrée S(Q,ω) combinant les données brutes expérimentales aux deux longueurs d'onde $\lambda = 4.8$ et 4 Å. La ligne noire pointillée indique les limites de la gamme cinétique pour une longueur d'onde $\lambda = 4.8$ Å (les détecteurs IN5 couvrent des angles de 5 à 135 degrés). En dehors de cette limite, des données à $\lambda = 4$ Å ont été ajoutées.

Résultats

Les résultats des simulations sont présentés en Figure 5.6 avec des spectres 2D et en Figure 5.7 avec des coupes à Q constant. Pour les contributions de la diffusion simple et des multi-excitations de S(Q,ω), McStas donne toujours un excès d'intensité dans la région du phonon. Nous pouvons voir aussi un problème de trop haute intensité dans la région des multi-excitations à $1.5 < Q < 2$ Å^{-1} et $1 < \omega < 1.2$ meV, qui provient peut-être de l'excès d'intensité dans la région du phonon, ce qui crée des artefacts pour le phonon plus maxon et le phonon plus roton [voir la Figure 5.6 (a) de gauche]. A

nouveau, le programme de Dawidowski donne exactement la même sortie que l'entrée pour la partie diffusion simple.

Sur la Figure 5.7 est représentée la contribution de la diffusion totale (simple plus multiple). L'intensité de la diffusion multiple calculée à partir du programme de Dawidowski a été multipliée par un facteur de 1.5 pour que la partie diffusion totale s'ajuste aux données expérimentales brutes là où la contribution de la diffusion multiple est la plus importante, c'est-à-dire à bas vecteur d'onde. On peut voir à nouveau que malgré les problèmes d'intensité pour la diffusion simple et les multi-excitations dans McStas, les diffusions multiples ont exactement la même structure avec les deux programmes (les lignes pointillées bleue et verte de la Figure 5.7 sont parfaitement superposées). Contrairement à la méthode précédente, la fraction de diffusions multiples donnée par McStas n'est pas aberrante ; elle est légèrement plus haute que celle de Sears. La fraction donnée avec le programme de Dawidowski est un peu plus basse que celle de Sears [voir le Tableau 5.2 ci-dessous].

	McStas	Dawidowski
Rapport (%)	1.2	0.74

Tableau 5.2: Fraction de diffusions multiples pour les deux programmes.

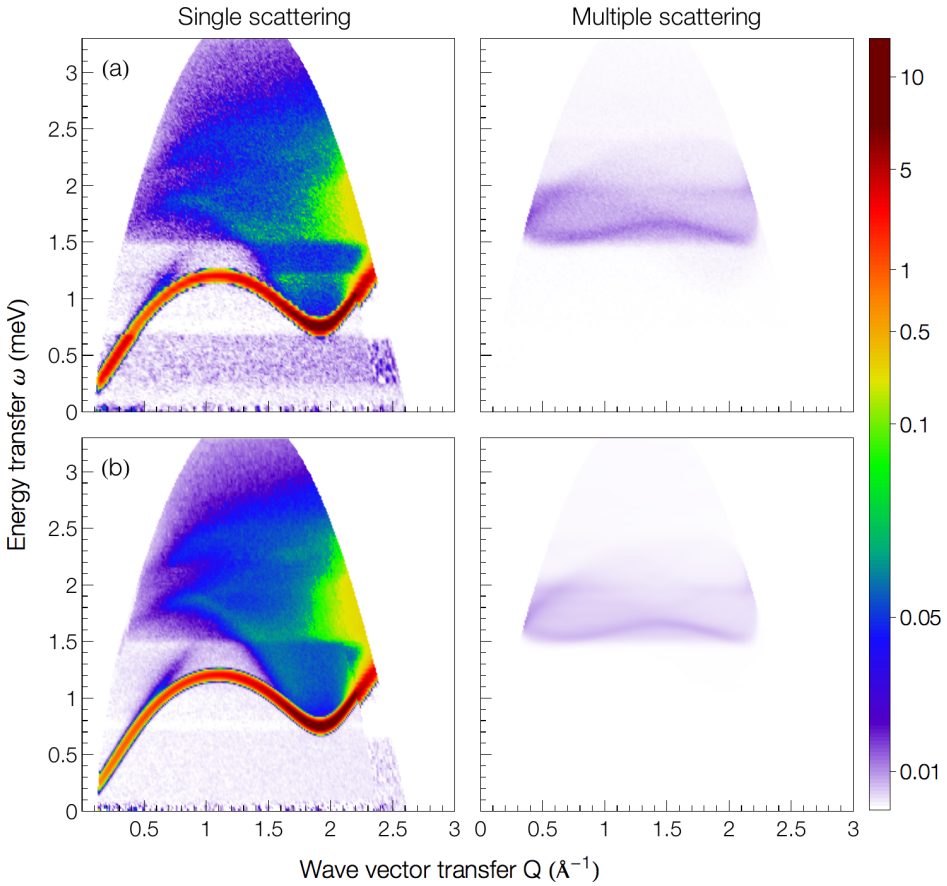


Figure 5.6: S(Q,ω) calculé à partir des deux programmes Monte Carlo pour une longueur d'onde $\lambda = 4.8$ Å, montrant les contributions de la diffusion simple (à gauche) et de la diffusion multiple (à droite). (a) McStas et (b) programme de Dawidowski.

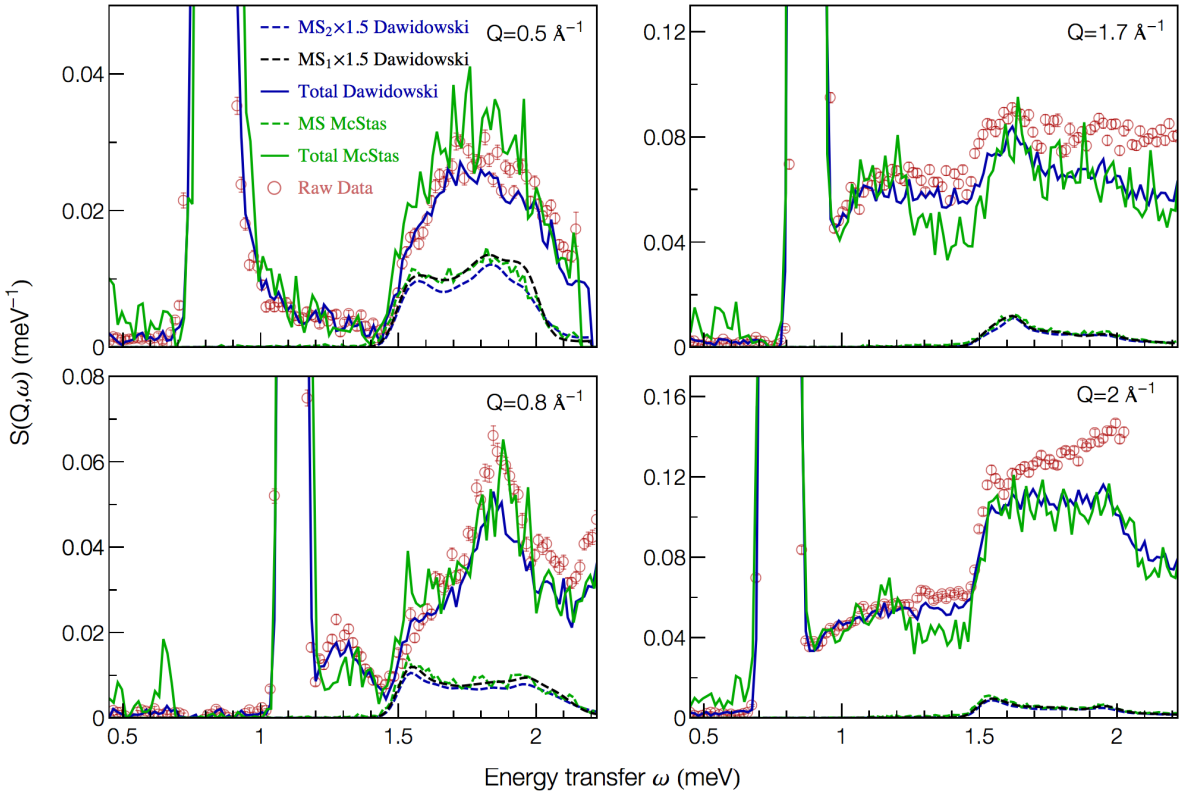


Figure 5.7: S(Q,ω) à différentes valeurs de Q avec un zoom sur la région des multi-excitations. Les données brutes (en rouge) correspondent aux données expérimentales à λ=4.8 Å. « Total Dawidowski » et « MS×1.5 Dawidowski » sont respectivement les diffusions totale (simple plus 1.5*multiple) et multiple multipliée par un facteur 1.5, simulées avec le programme de Dawidowski. L'indice 2 correspond aux diffusions multiples calculées avec la méthode 2 et l'indice 1 à celles qui avaient été calculées avec la méthode 1. « Total McStas » et « MS McStas» sont respectivement les diffusions totale et multiple simulées avec le programme McStas.

5.3.3 Bilan : programme utilisé et méthode retenue

Tout d'abord, les résultats obtenus avec les deux méthodes sont assez satisfaisants car les programmes donnent tous les trois des formes proches pour les diffusions multiples et même parfaitement semblables pour McStas et celui de Dawidowski. Un programme semble néanmoins mieux fonctionner que les autres : il s'agit de celui de Dawidowski. D'une part, la sortie redonne exactement l'entrée pour la contribution de la diffusion simple. D'autre part, ce programme est stable : il fournit une fraction de diffusion multiple et une forme similaire avec les deux méthodes (contrairement à McStas dont la fraction change). Pour la raison expliquée ci-dessus et parce que les simulations ne reproduisent pas exactement l'expérience (comme par exemple le fait que l'échantillon peut bouger au cours de l'expérience), un facteur global de normalisation de 1.5 est utilisé. Les corrections de la diffusion multiple calculées avec le programme de Dawidowski fournissent alors les résultats les plus précis pour l'ensemble de nos spectres. Ce programme a donc été retenu pour les corrections de la diffusion multiple.

Les résultats obtenus en utilisant le programme de Dawidowski sont très proches avec les deux méthodes [voir les courbes pointillées noir et bleu de la Figure 5.7 qui sont presque superposées]. Il a été choisi d'utiliser la méthode 2, c'est-à-dire de prendre comme entrée des simulations les données expérimentales brutes. Cela est en effet plus direct que la méthode 1, qui exige d'extraire pour chaque série de données la courbe phonon-maxon-roton, et de plus cela permet de prendre en compte tout le spectre, y compris les multi-excitations.

5.3.4 Dépendance des diffusions multiples avec la longueur d'onde

Les simulations présentées jusqu'à maintenant ont toutes été faites avec une longueur d'onde incidente λ=4.8 Å. Nous allons nous intéresser désormais aux résultats des simulations faites avec le programme de Dawidowski avec l'entrée de la méthode 2 pour les deux longueurs d'onde λ=4.8 et 4 Å [voir la Figure 5.8]. Comme attendu, l'intensité des diffusions multiples a pour les deux longueurs d'onde un poids significatif au-dessus de deux fois l'énergie du roton, c'est-à-dire au dessus de $\omega = 1.5$ meV, car le roton domine en intensité. Par contre, les structures ne sont pas les mêmes [1]. Ce résultat est intéressant car cela signifie que l'on pourrait éventuellement identifier les diffusions multiples en comparant les mesures aux différentes longueurs d'onde. Par ailleurs, il est important lors de la correction des données combinant les deux longueurs d'onde de soustraire indépendamment les diffusions multiples simulées à 4.8 Å des données à

[1] Les mêmes résultats ont été obtenus avec McStas.

4.8 Å, puis les diffusions multiples simulées à 4 Å des données à 4 Å, pour enfin faire la combinaison des données.

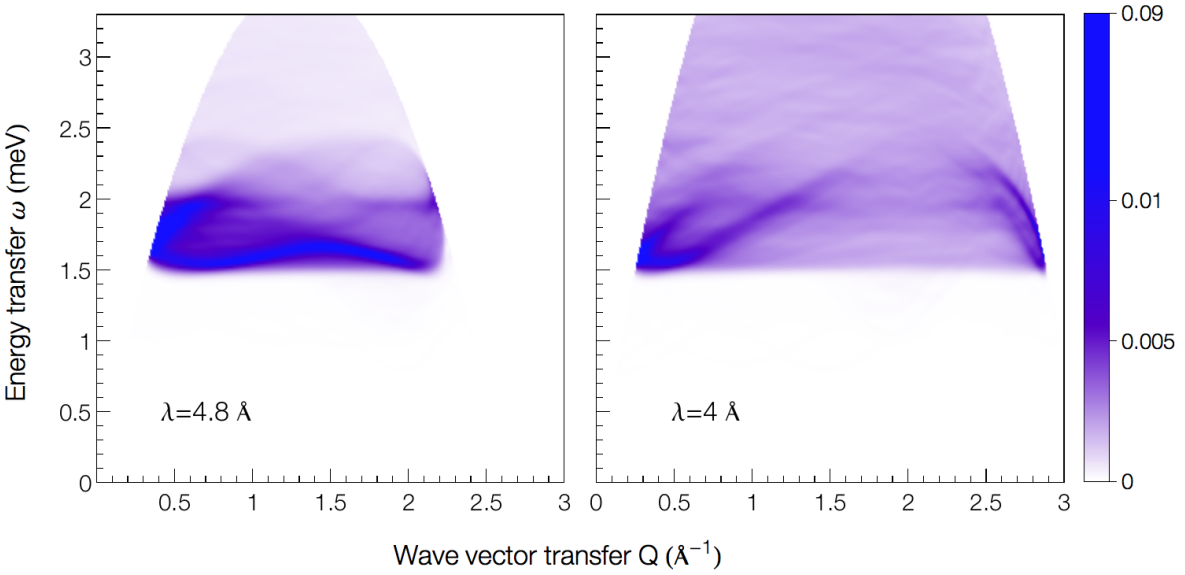


Figure 5.8: (a) Diffusions multiples obtenues à partir du programme de Dawidowski à $\lambda = 4.8$ Å (à gauche) et $\lambda = 4$ Å (à droite).

5.4 Identification des multi-excitations

Grâce à la correction des diffusions multiples, nous sommes désormais capables de bien identifier les multi-excitations [voir le spectre 2D de la Figure 5.9 et les coupes à Q constant de la Figure 5.10] :

1. Pour des vecteurs d'onde $0.6 < Q < 0.9$ Å^{-1}, une structure est pour la première fois identifiée grâce à nos nouvelles mesures : elle est appelée « phonon fantôme » car elle apparaît comme une prolongation linéaire du mode du phonon.

2. Au dessus du roton, on observe de nouvelles multi-excitations.

3. A deux fois l'énergie du maxon, une branche importante apparaît.

4. A l'énergie du maxon plus l'énergie du roton, une autre branche importante apparaît.

5. A deux fois l'énergie du roton, on distingue un seuil marqué qui se prolonge à des vecteurs d'onde plus bas que le plateau de Pitaevskii bien connu [21].

6. Enfin, sur la coupe à Q=1.7 Å^{-1} de la Figure 5.10, on peut distinguer aussi un saut à trois fois l'énergie du roton.

Ces multi-excitations sont dues à des interactions phonon-phonon, phonon-roton, maxon-roton, maxon-maxon, roton-roton et trois-rotons. A l'exception du phonon fantôme, du phonon-roton et du trois-rotons, elles avaient déjà été observées dans des expériences précédentes [20, 56–58], mais étaient assez larges et donc pas bien définies, comme on peut le voir par exemple dans le spectre de diffusion obtenu par Andersen *et al* en 1994 [voir la Figure 5.11]. Plusieurs explications de l'amélioration des résultats sont possibles. Les dernières mesures avant les nôtres avaient été faites avec l'instrument temps de vol IN6 à l'ILL. La chambre de mesure de l'instrument IN6 contient du gaz argon contrairement à celle d'IN5 qui est sous vide. Ce gaz peut générer du bruit de fond et rediffuser les neutrons diffusés par l'échantillon avant d'arriver aux détecteurs. Nos mesures ont été faites à une température de 0.1 K beaucoup plus basse que celles d'IN6 réalisées à T=1.3 K. Notre résolution en énergie est d'environ 0.07 meV alors que celle d'IN6 était d'environ 0.1 meV. Nous avons également une meilleure résolution en vecteur d'onde. L'amélioration est sans doute liée à l'une des raisons évoquées ci-dessus ou à une combinaison de ces raisons.

5.5 Conclusion

Il était particulièrement important de vérifier que les nouvelles structures observées ne sont pas causées par la diffusion multiple. Les calculs effectués par Monte Carlo nous ont permis de déterminer la contribution de la diffusion multiple et de l'éliminer des spectres expérimentaux. Nous allons pouvoir ainsi analyser en détail dans le chapitre suivant les multi-excitations pour les comparer à la théorie.

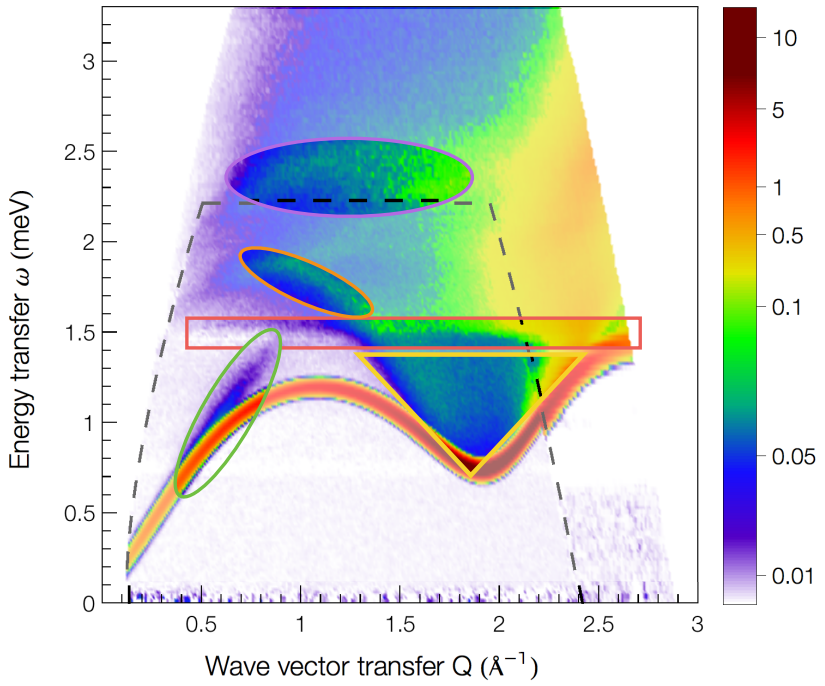


Figure 5.9: S(Q,ω) combinant des données expérimentales corrigées aux deux longueurs d'onde $\lambda = 4.8$ et 4 Å. La ligne noire en pointillés indique les limites de la gamme cinétique pour une longueur d'onde $\lambda = 4.8$ Å. Une figure de fond a été faite en légère transparence pour mettre en avant en non-transparence les muli-excitations phonon-phonon (délimité par une ellipse verte), phonon-roton (délimité par un triangle jaune), roton-roton (délimité par un rectangle rose), maxon-roton (délimité par une ellipse orange) et maxon-maxon (délimité par une ellipse violette).

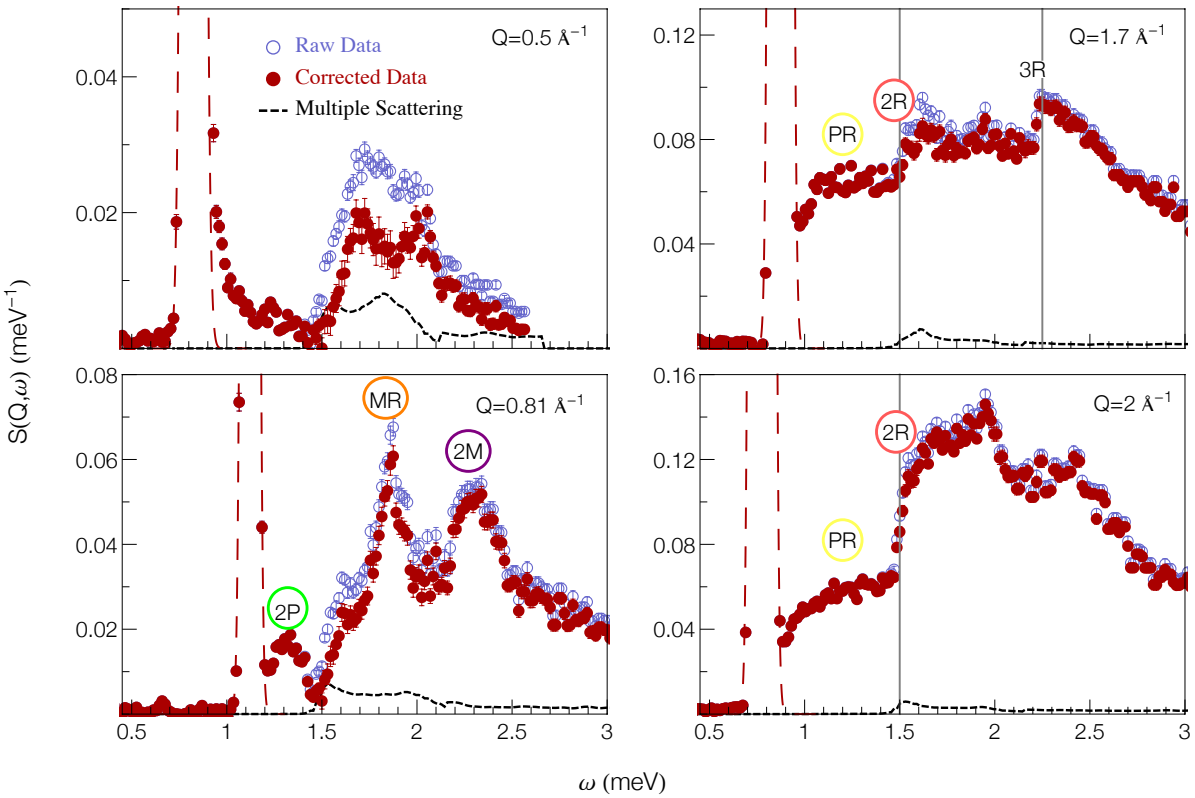


Figure 5.10: S(Q,ω) à différentes valeurs de Q avec un zoom sur la région des multi-excitations. Sont représentées, les données brutes (en bleu), et les données corrigées par soustraction des diffusions multiples (en rouge). La ligne rouge est un ajustement gaussien du pic du phonon-maxon-roton (qui est coupé). En noir, est représentée la contribution de la diffusion multiple. Sont mises en avant en couleur, de la même manière que la figure précédente, les positions en énergie des multi-excitations phonon-phonon (2P), phonon-roton (PR), maxon-roton (MR), maxon-maxon (2M), roton-roton (2R) et trois-rotons (3R).

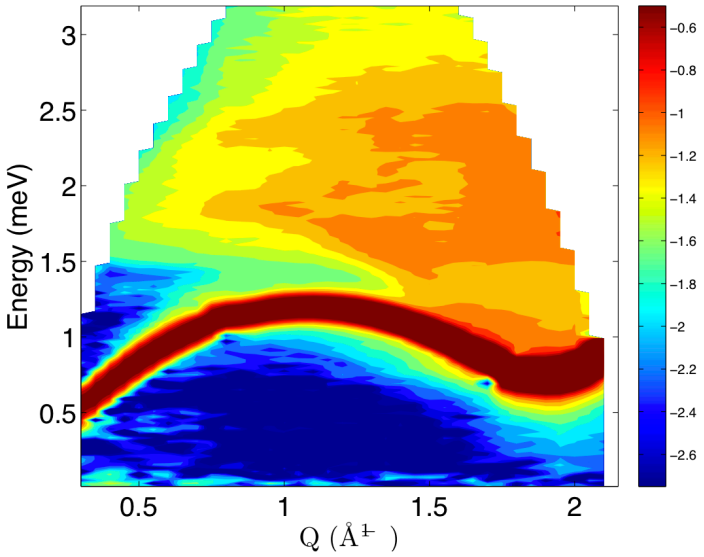


Figure 5.11: S(Q,ω) mesuré avec le spectromètre temps de vol IN6 par Andersen *et al* à P=0 bar et à T=1.3 K [57]. Cette figure a été redessinée en couleur.

Chapitre 6

Comparaison directe de l'expérience avec la théorie dynamique à N-corps

6.1 Introduction

Nous allons comparer ici les résultats expérimentaux du facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide à un calcul microscopique dynamique à N-corps de la même quantité physique. Les résultats peuvent être comparés dans un large secteur du spectre S(Q,ω), conduisant à une description précise de la dynamique de l'^{4}He superfluide. Nous allons pouvoir étudier en détail les multi-excitations identifiées dans le chapitre précédent. Nous présenterons tout d'abord les résultats à la pression de vapeur saturante, la discussion s'appuyant sur notre article [64], puis les résultats sous pression. Toutes les données expérimentales dans ce chapitre sont celles obtenues à $\lambda = 4.8$ Å.

6.2 Description de la théorie

Nos résultats expérimentaux sont comparés à une théorie dynamique à N-corps développée par Krotscheck et ses collaborateurs [4, 65]. Cette dernière permet de décrire la dynamique des systèmes de bosons en interaction, comme l'^{4}He superfluide. Le formalisme complet et les calculs détaillés ont été publiés récemment [4]. Cette théorie s'appuie sur la méthode des fonctions de bases corrélées (Correlated basis functions (CBF) en anglais) [66–68] qui est adaptée pour prendre en compte les corrélations, comme son nom l'indique. La méthode CBF est une extension de la théorie de Feynman et Cohen. L'idée de cette théorie est de tout d'abord faire une description précise de l'état fondamental en prenant en compte les corrélations de courte portée entre particules en introduisant le

potentiel inter-atomique de coeur dur fortement répulsif. Les état excités sont ensuite obtenus en introduisant un opérateur d'excitation.

L'interaction à N-corps est d'abord décrite par un Hamiltonien phénoménologique :

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2M}\sum_i \nabla_i^2 + \sum_i U_{ext}(\vec{r_i}) + \sum_{i<j} V_{int}(\vec{r_i} - \vec{r_j}) \tag{6.1}$$

où U_{ext} est un potentiel extérieur quelconque et V_{int} est l'interaction entre les particules. Pour décrire les interactions fortes, la théorie CBF est utilisée. Elle fait tout d'abord intervenir une fonction d'onde à plusieurs corps de l'état fondamental, qui est de la forme Jastrow-Feenberg [66] :

$$|\psi_0\rangle = \frac{F\,|\phi_0\rangle}{\langle\phi_0|\,F^\dagger F\,|\phi_0\rangle^{1/2}} \tag{6.2}$$

où $|\phi_0\rangle$ est un état non ou faiblement interagissant. F est un opérateur de corrélation qui s'exprime :

$$F(1,...,N) = \exp\frac{1}{2}\left[\sum_i u^{(1)}(\vec{r_i}) + \sum_{i<j} u^{(2)}(\vec{r_i},\vec{r_j}) + ...\right] \tag{6.3}$$

où $u^{(n)}$ sont les fonctions de corrélation. Pour décrire l'état perturbé, la fonction d'onde de Jastrow-Feenberg est rendue dépendante du temps :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_0t/\hbar}\frac{Fe^{\frac{1}{2}\delta U(t)|\phi_0\rangle}}{\langle\phi_0|\,e^{\frac{1}{2}\delta U^\dagger(t)}F^\dagger F e^{\frac{1}{2}\delta U(t)}\,|\phi_0\rangle^{1/2}} \tag{6.4}$$

où E_0 est l'énergie de l'état fondamental. $\delta U(t)$ est l'opérateur d'excitation. Il prend en compte pour les systèmes bosoniques les fluctuations entre particules dépendantes du temps :

$$\delta U(t) = \sum_i \delta u^{(1)}(\vec{r_i};t) + \sum_{i<j}\delta u^{(2)}(\vec{r_i},\vec{r_j};t) + ... \tag{6.5}$$

Cet opérateur d'excitation peut aussi être utilisé pour les système fermioniques en introduisant des fluctuations particule-trou (particle-hole (ph) en anglais) :

$$\delta U(t) = \sum_{p,h}\delta u^{(1)}_{p,h}(t)a_p^\dagger a_h + \frac{1}{2}\sum_{p,h,p',h'}\delta u^{(2)}_{p,h,p',h'}(t)a_p^\dagger a_{p'}^\dagger a_h a_{h'} + ... \tag{6.6}$$

Pour obtenir un résultat quantitatif de l'intensité des excitations gouvernées par les interactions, le calcul de Krotscheck et ses collaborateurs inclut des fluctuations dynamiques

de paires particule-trou pour les fermions et des fluctuations dynamiques à trois corps pour les bosons. Cela revient à aller dans le développement de $\delta U(t)$ jusqu'à l'ordre n=2 pour les fermions et jusqu'à l'ordre n=3 pour les bosons. A noter qu'à l'ordre n=1, c'est-à-dire dans le cas où les fluctuations à deux corps et plus sont négligées, on retrouve l'énergie de Feynman (1.4) pour les bosons.

Le lien entre la théorie dynamique à N-corps et le facteur de structure dynamique $S(Q,\omega)$ se fait via la réponse linéaire. $S(Q,\omega)$ est calculé à partir de la susceptibilité dynamique $\chi(Q,\omega)$ [voir l'équation (2.16)], c'est-à-dire la réponse du système à une perturbation. Cette fonction de réponse densité-densité s'écrit :

$$\chi(Q,\omega) = \frac{S(Q)}{\omega - \Sigma(Q,\omega) + i\eta} + \frac{S(Q)}{-\omega - \Sigma^*(Q,-\omega) + i\eta}. \tag{6.7}$$

La partie de gauche de l'équation correspond à la création de particules et la partie de droite à l'annihilation. S(Q) est le facteur de structure qu'il est possible de déterminer à partir de données expérimentales ou à partir de l'état fondamental. Le terme $\Sigma(Q,\omega)$ est appelé énergie auto-cohérente et a la forme :

$$\Sigma(Q,\omega) = \epsilon_0(Q) + \frac{1}{2}\int \frac{d^3p d^3k}{(2\pi)^3 n}\delta(\vec{Q}-\vec{p}-\vec{k})\frac{|V^{(3)}(\vec{Q};\vec{p},\vec{k})|^2}{\omega - \Sigma[p,\omega-\epsilon(k)] - \Sigma[k,\omega-\epsilon(k)]} \tag{6.8}$$

où $\epsilon_0(Q)$ est l'énergie de Feynman, c'est-à-dire l'énergie des excitations d'ordre 0. Le dirac symbolise la conservation de la quantité de mouvement. $V^{(3)}$ est l'élément de matrice de couplage à trois particules. $V^{(3)}$ est proportionnel à $\tilde{u}^{(3)}$, la transformée de Fourier de la fonction de corrélation à trois corps $u^{(3)}$ qui apparaît dans l'équation (6.3). Si l'énergie auto-cohérente $\Sigma(Q,\omega)$ est réelle, le pôle de $\chi(Q,\omega)$ détermine le poids Z(Q) des excitations à une particule. La partie imaginaire de $\Sigma(Q,\omega)$ caractérise quant à elle le continuum des multi-excitations. La théorie effectue des calculs à une densité d'atomes n donnée. La correspondance entre les densités d'atomes n et les pressions expérimentales P est donnée dans le Tableau 7.5.

6.3 Comparaison de la théorie avec l'expérience

6.3.1 A la pression de vapeur saturante

Le facteur de structure dynamique mesuré à P=0 bar, à très basse température, et celui calculé par Krotscheck et ses collaborateurs à la densité correspondant à ces conditions,

$n = 0.022$ Å^{-3}, sont montrés en Figure 6.1. On observe tout de suite que les spectres fournis par la théorie et l'expérience sont très similaires. Le S(Q,ω) calculé montre les mêmes structures fines qui avaient été révélées par notre expérience de haute précision. En effet, nous observons aussi bien dans la théorie que dans l'expérience, les processus d'interaction phonon-phonon, roton-roton et maxon-roton. L'origine physique des ces multi-excitations est une somme d'excitations élémentaires, qui peut être déterminée par simple combinaison des excitations à une particule, et dont l'intensité (ou l'existence) dépend de l'interaction entre ces particules. Ces processus doivent satisfaire la conservation en énergie et en quantité de mouvement, mais l'obtention des structures fines nécessite un calcul quantitatif des couplages de mode. Le défi imposé à la théorie par les données présentes est d'obtenir l'amplitude des éléments de matrice correspondants. Les calculs théoriques basés sur les versions antérieures de la méthode CBF [69, 70] donnaient aussi une région des multi-excitations très structurée [voir la Figure 6.2]. En revanche, le facteur de structure dynamique, que ce soit pour la contribution des excitations élémentaires ou celle des multi-excitations, était seulement reproduit qualitativement. En particulier, la théorie prévoyait une décroissance des multi-excitations en modes de Feynman qui sont trop haut en énergie par rapport aux vraies excitations à une particule (comme on l'a vu en Figure 1.2), laissant des gaps dans le spectre. De plus, les calculs prédisaient des structures additionnelles à hautes énergies non présentes dans l'expérience.

Nous allons décrire chacun des nouveaux modes (pour comprendre leur situation cinétique, se référer à l'article [4]). Un mode de vecteur d'onde Q peut être la combinaison de deux phonons parallèles à ce vecteur d'onde. Ce type de processus crée un mode jamais vu dans les expériences précédentes, le "phonon fantôme". Il s'étend jusqu'à deux fois le vecteur d'onde pour laquelle la relation de dispersion est essentiellement linéaire. Cela peut être montré explicitement par le calcul d'interaction à trois phonons [4]. La Figure 6.3 montre que l'expérience est très bien reproduite par le calcul. En effet, l'énergie, la forme et l'intensité du phonon fantôme calculé, sont en très bon accord avec l'expérience.

Ensuite, le mode au-dessus du maxon, à l'énergie du roton plus du maxon et au vecteur d'onde proche du maxon, provient d'interactions entre rotons et maxons.

Enfin, on observe une extension du plateau de Pitaevskii [21] à de faibles vecteurs d'onde, que ce soit dans la théorie ou dans l'expérience, qui s'explique par la combinaison de deux rotons avec l'angle qui augmente entre eux.

Une comparaison plus quantitative peut être faite grâce aux coupes de S(Q,ω) à des vecteurs d'onde de transfert constants, montrées en Figure 6.4. Il a été choisi d'effectuer

ces coupes pour mettre en avant les différences entre la théorie et l'expérience qui ne sont pas bien lisibles sur la Figure 6.1. Le spectre expérimental à Q=0.5 $Å^{-1}$ est assez proche de son analogue théorique. Cependant, aux plus grands vecteurs d'onde, seul le côté basse énergie du spectre expérimental est reproduit par la théorie. En particulier, l'expérience a une réponse considérable au dessus de l'énergie du roton, pour des énergies comprises entre 0.75 et 1.5 meV et pour des vecteurs d'onde compris entre 1.5 et 2 $Å^{-1}$, qui est présente mais plus faiblement dans la théorie. Contrairement à la région du phonon, ici, le nombre de chaînes intermédiaires possibles rend les calculs particulièrement exigeants. L'accord semi-quantitatif est néanmoins déjà tout à fait satisfaisant.

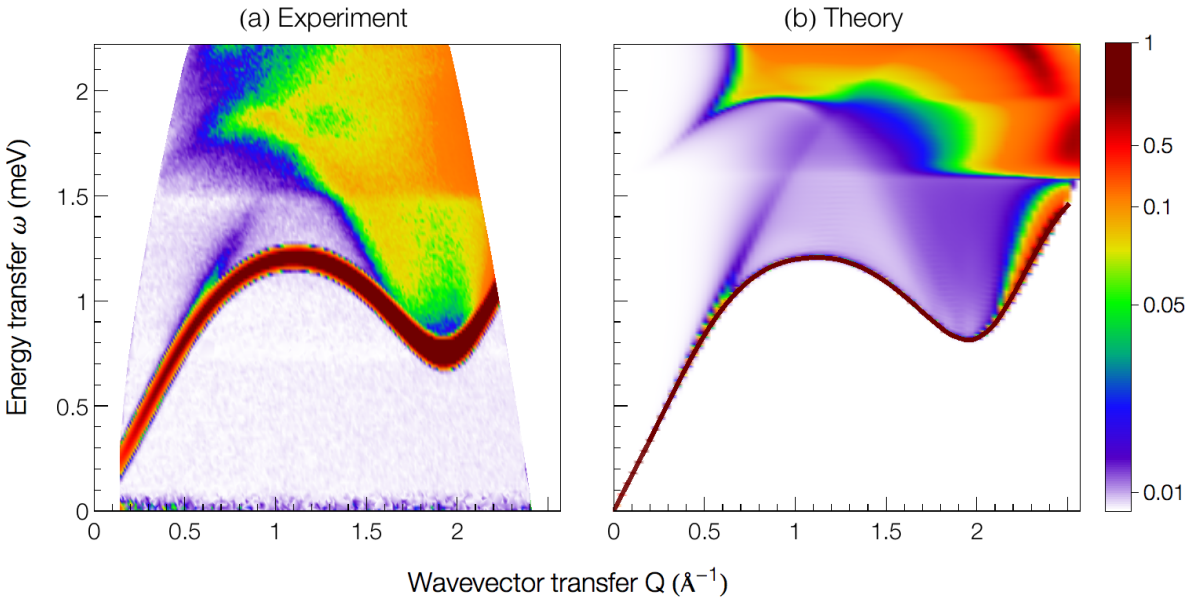


Figure 6.1: (a) S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide à P=0 bar. (a) Expérience et (b) théorie. L'intensité est coupée à 1 meV^{-1} sur la branche phonon-maxon-roton pour mettre en avant la région des multi-excitations. Pour la théorie, la ligne rouge foncée est la solution de la relation de dispersion déterminée à partir des données théoriques.

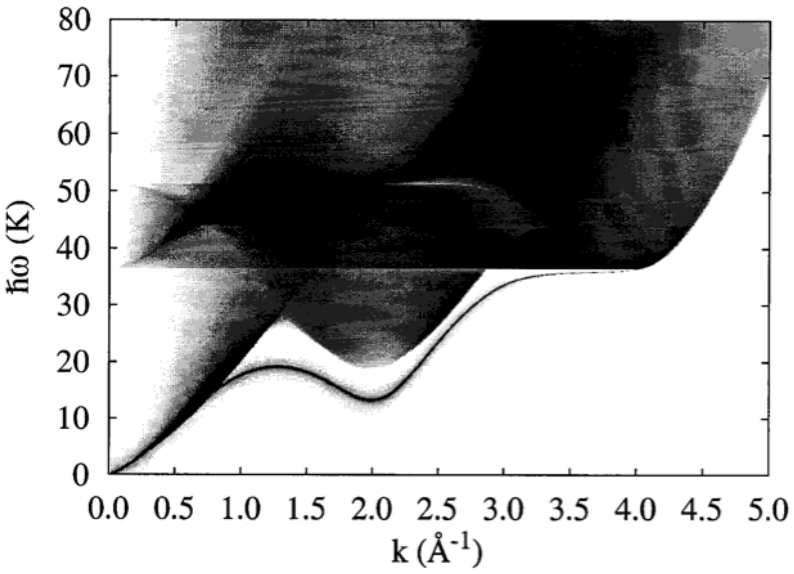


Figure 6.2: (a) S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide calculé avec une version antérieure de la méthode CBF à la densité $n = 0.022$ Å^{-3} [69].

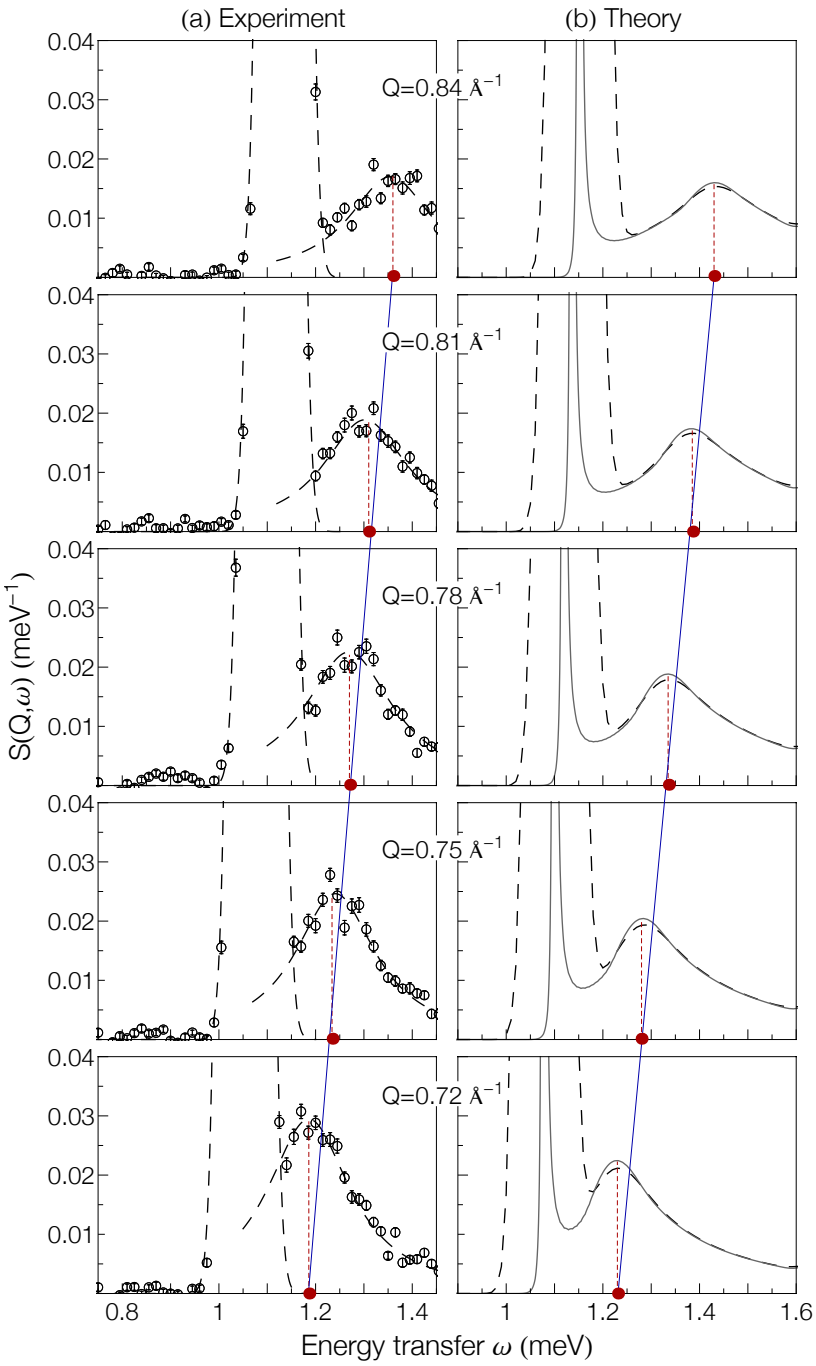


Figure 6.3: S(Q,ω) à différents vecteurs d'onde de transfert Q dans la région du phonon. (a) Expérience. Les lignes pointillées noires sont des ajustements gaussiens du pic du phonon (qui est coupé) et du plus petit pic du phonon fantôme. (b) Théorie calculée sans et avec convolution par la résolution instrumentale de 0.07 meV, montrée respectivement avec des lignes solides et pointillées. Les maximums du phonon fantôme, indiqués pour la théorie et l'expérience par des lignes pointillées verticales rouges, sont localisés sur l'extension linéaire de la dispersion du phonon (ligne solide bleue).

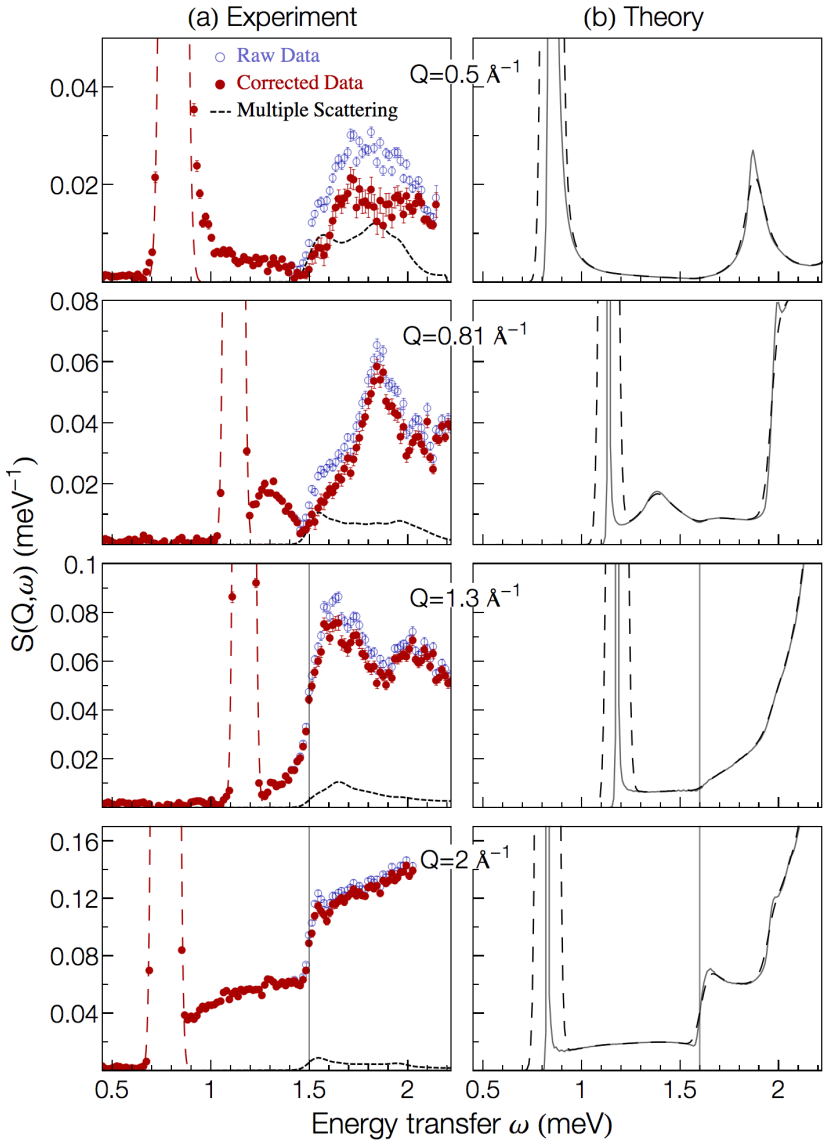


Figure 6.4: S(Q,ω) à différents vecteurs d'onde de transfert Q. (a) Expérience. Sont représentées les données brutes (en bleu), et les données corrigées par soustraction des diffusions multiples (en rouge). En noir, est représentée la contribution de la diffusion multiple. La ligne pointillée rouge est un ajustement gaussien du pic des excitations élémentaires (qui est coupé). (b) Théorie calculée sans et avec convolution par la résolution instrumentale de 0.07 meV, montrée respectivement avec des lignes solides et pointillées. Pour la théorie et l'expérience, les lignes verticales grises symbolisent la position correspond à deux fois l'énergie du roton.

6.3.2 Sous pression

Nous montrons ici les spectres S(Q,ω) expérimentaux sous pression, et les spectres théoriques à n=0.03, 0.04 et 0.06 Å^{-3} [voir la Figure 6.5]. Toutes les données expérimentales ont été corrigées des diffusions multiples. La simulation des diffusions multiples à été faite avec comme entrée les données expérimentales de S(Q,ω) aux différentes pressions, à $\lambda = 4.8$ Å[1]. Nous pouvons voir dans le Tableau 6.1 que la fraction de diffusions multiples augmente avec la pression densité), que ce soit en calculant cette fraction à partir des simulations de Dawidowski ou à partir de l'estimation de Sears.

Pressions (bars)	0	0.5	1	2	5	10	24
Fractions (a) (%)	0.79	0.8	0.78	0.8	0.84	0.91	1.06
Fractions (b) (%)	0.93	0.93	0.94	0.95	0.975	1.01	1.09

Tableau 6.1: Fractions de diffusions multiples pour les différentes pressions déterminées (a) à partir des simulations de Dawidowski et (b) de l'estimation de Sears.

Comme à P=0 bar, l'accord entre la théorie et l'expérience semble tout à fait satisfaisant sous pression. Avec la pression, la densité d'atomes augmente induisant une augmentation des corrélations entre atomes modifiant ainsi les excitations. On voit ainsi sur la Figure 6.5 que la finesse des structures est globalement réduite quand la pression augmente. Plus particulièrement, trois effets remarquables sont observés en fonction de l'augmentation de la pression :

1. L'intensité du phonon fantôme diminue et devient même nulle à haute pression. Ce mode ne devrait pas exister aux plus hautes pressions, dû à la disparition de la dispersion anormale.

2. Le plateau du deux-rotons est prononcé jusqu'à des vecteurs d'onde de plus en plus bas.

3. A très haute pression, le maxon entre dans le continuum des multi-excitations. C'est sans doute l'effet le plus spectaculaire, car il affecte fortement la branche des excitations de Landau.

[1] Il est nécessaire de spécifier aussi les densités d'atomes en entrée des simulations pour avoir accès à la section efficace totale en cm^{-1}.

Des coupes ont été effectuées à différents vecteurs d'onde de transfert Q afin de mieux voir ces effets [voir la Figure 6.6].

Au vecteur d'onde Q=0.8 Å^{-1}, l'intensité du phonon fantôme n'est bien distinguable que pour P=0 et 5 bars que ce soit pour la théorie ou pour l'expérience [voir le zoom sur la région du phonon fantôme en Figure 6.7].

Au vecteur d'onde Q=0.5 Å^{-1}, un saut au niveau de l'énergie du deux-rotons est visible à P=24 bars que ce soit pour la théorie ou pour l'expérience. Pour les autres pressions, le seuil du deux-rotons commence uniquement à des vecteurs d'onde un peu plus grands, environ au niveau de l'entrée du phonon fantôme dans le continuum des multi-excitations, comme on peut le voir sur la Figure 6.5.

Au vecteur d'onde Q=2 Å^{-1}, les énergies du roton et du deux-roton baissent avec la pression pendant qu'à Q=1.3 Å^{-1}, l'énergie du maxon augmente. On voit finalement, qu'à Q=0.8 et 1.3 Å^{-1}, de l'intensité du continuum est présente dans la queue haute énergie du pic du maxon, à P=24 bars.

Tous les effets décrits ici seront analysés en détail dans le chapitre **7**.

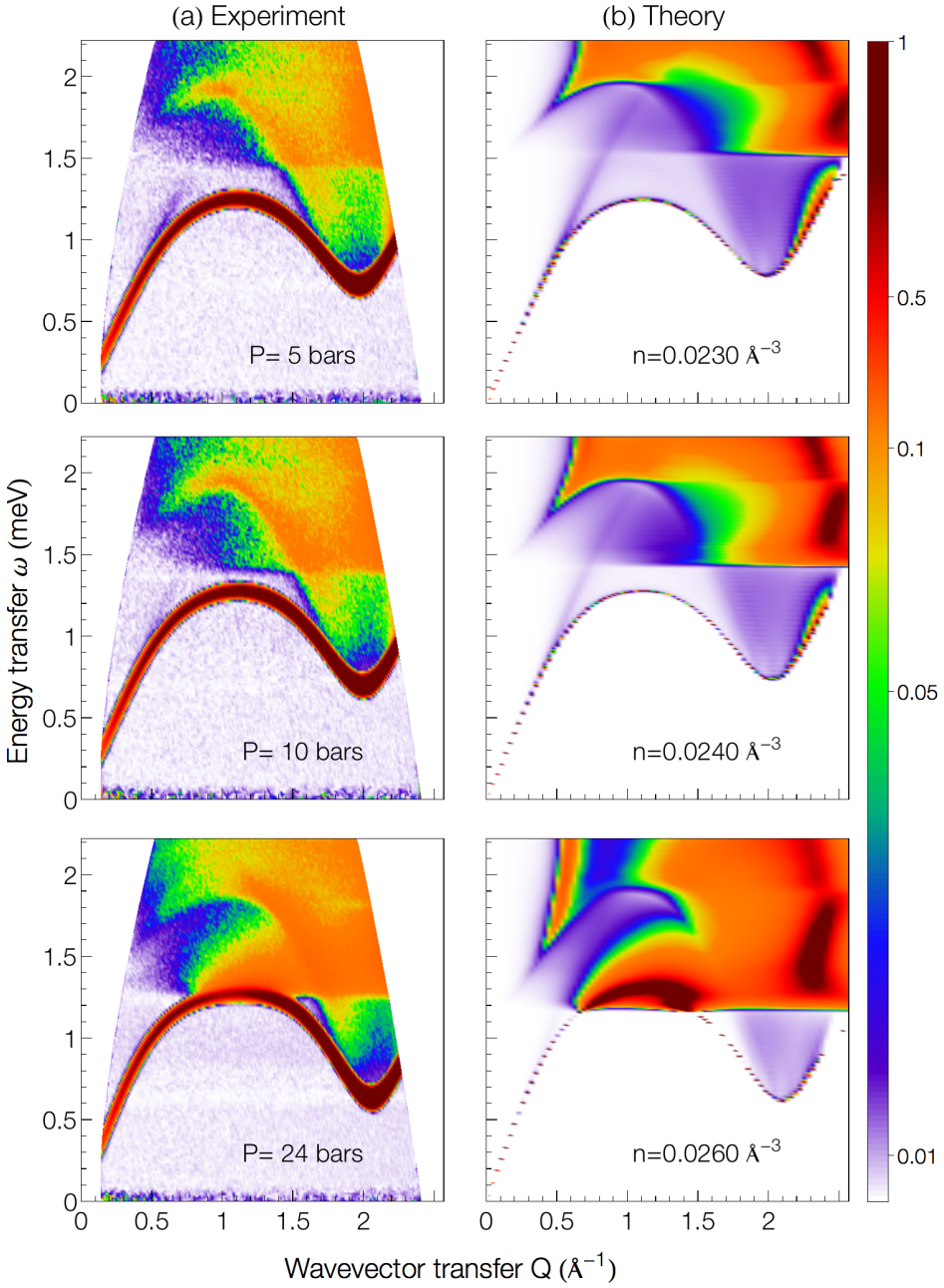


Figure 6.5: S(Q,ω) de l'^{4}He superfluide sous trois pressions, P=5, 10 et 24 bars. (a) Expérience et (b) théorie. L'intensité de la branche phonon-maxon-roton est coupée à 1 meV^{-1} pour mettre en avant la région des multi-excitations.

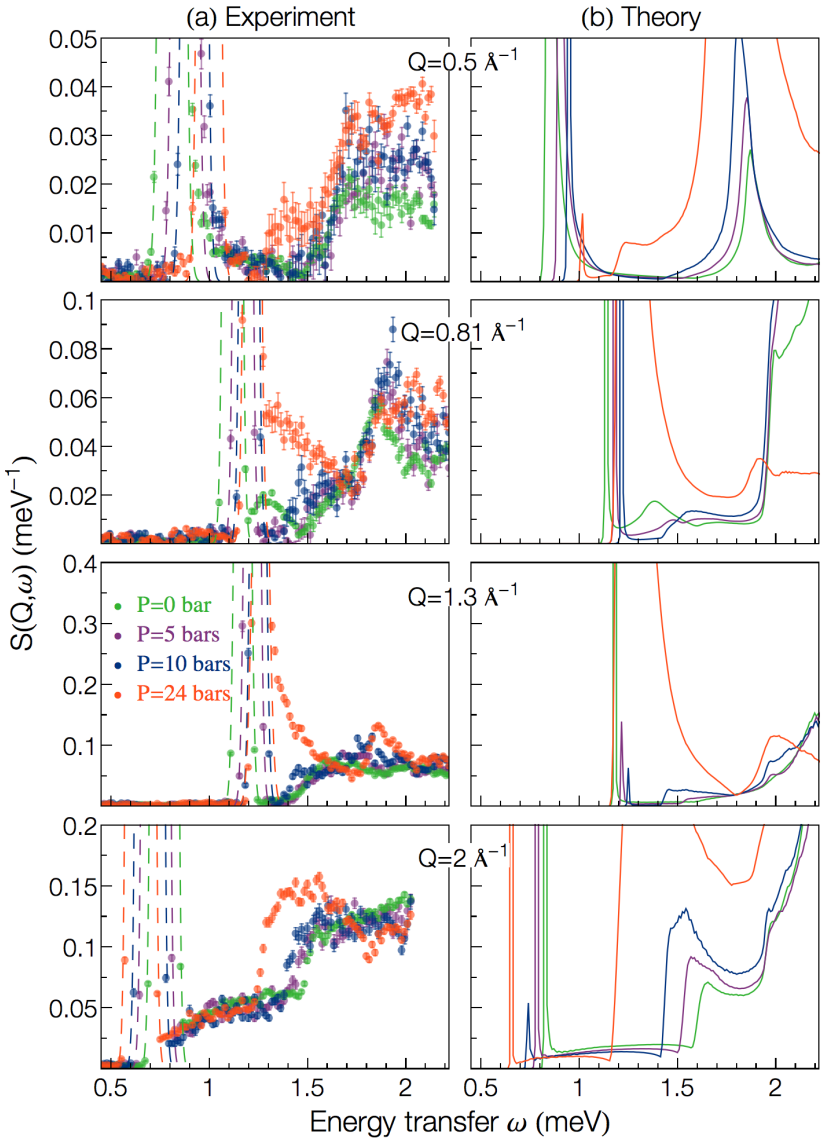


Figure 6.6: S(Q,ω) à différents vecteurs d'onde de transfert Q à quatre pressions, P=0, 5, 10 et 24 bars. (a) Expérience. Les lignes pointillées sont des ajustements gaussiens des pics des excitations élémentaires (qui sont coupés). (b) Théorie dynamique à N-corps.

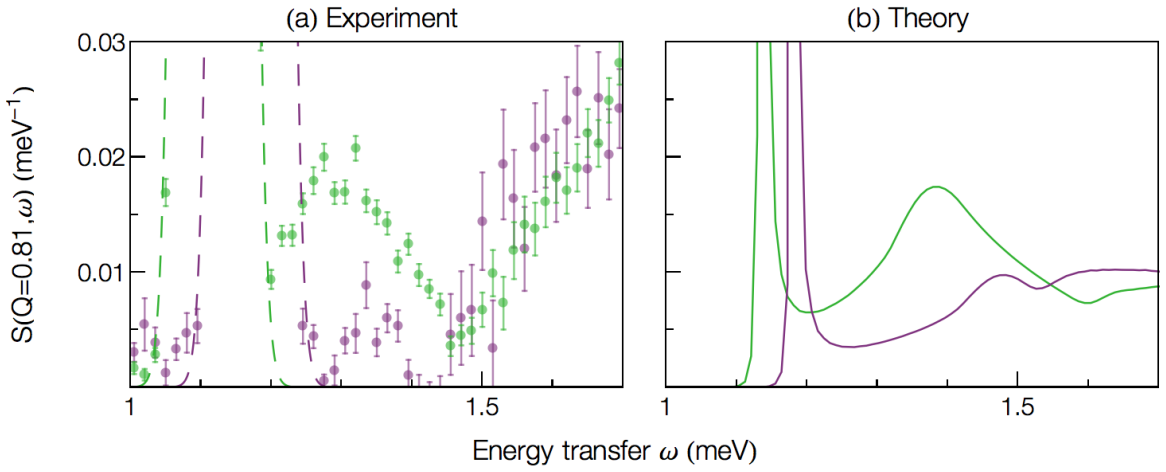


Figure 6.7: Zoom sur le phonon fantôme à Q=0.81 Å^{-1}, à P=0 et 5 bars. (a) Expérience et (b) théorie.

6.4 Conclusion

Le facteur de structure dynamique de l'^{4}He superfluide, un modèle simple pour les systèmes de bosons corrélés, montre un comportement riche à des énergies intermédiaires. Nous observons des structures fines, délimitées par des contraintes cinétiques. Les résultats sont en accord remarquable avec les calculs de la théorie dynamique à N-corps jusqu'à une énergie d'environ 2 meV. Il reste néanmoins des différences quantitatives. Il faudrait inclure dans la théorie des fluctuations à un plus grand nombre de particules, mais cela augmenterait considérablement la complexité et le temps de calcul.

Les résultats décrits dans ce chapitre, combinant la théorie et l'expérience à la pression de vapeur saturante et sous pression, apportent un progrès significatif dans la compréhension des effets de corrélation sur la dynamique des fluides quantiques.

Chapitre 7

Interactions entre quasi-particules dans l'^{4}He superfluide

7.1 Introduction

Nous allons nous intéresser dans ce chapitre aux interactions entre quasi-particules dans l'^{4}He superfluide et à leur dépendance sous pression. Nous commencerons par étudier l'interaction phonon-roton ; l'objectif sera de déterminer la nature attractive ou répulsive de cette interaction. Ensuite, nous examinerons l'interaction maxon deux-rotons à P=24 bars qui est forte, comme nous l'avons vu en **4.4.2** et **6.3.2**, où on voit le maxon interagir avec le continuum des excitations. Enfin, nous regarderons les effets de l'interaction à quatre rotons et de l'interaction à trois phonons. Cette étude sera faite à partir d'une analyse fine des excitations élémentaires. Nous allons tout d'abord déterminer avec une très grande précision les relations de dispersion aux différentes pressions à partir de nos données expérimentales à $\lambda = 4.8$ Å, pour ensuite déterminer les paramètres du roton et du maxon, la vitesse du son du phonon et le temps de vie des quasi-particules.

7.2 Détermination de ϵ_Q, Z_Q et W_Q

La plupart des études neutroniques sur l'^{4}He superfluide ont été dédiées à l'analyse des excitations élémentaires. Pour cela, la relation de dispersion phonon-maxon-roton a été largement déterminée à partir de différentes techniques de diffusion neutronique. Grâce à la très bonne qualité de nos nouvelles données expérimentales sous différentes pressions, les relations de dispersion ont été déterminées à nouveau, afin de porter à partir de

celles-ci une analyse approfondie des excitations élémentaires. On rappelle que l'on fait l'hypothèse que S(Q,ω) se décompose en deux parties, dans la limite basse température :

$$S(Q,\omega) = S_1(Q,\omega) + S_m(Q,\omega) = Z_Q\delta(\omega - \epsilon_Q) + S_m(Q,\omega) \tag{7.1}$$

où $S_1(Q,\omega)$ est la partie excitation élémentaire et $S_m(Q,\omega)$, la partie multi-excitation. Nous allons chercher à extraire de nos données seulement la partie $S_1(Q,\omega)$ pour déterminer la relation de dispersion ϵ_Q et également l'intensité Z_Q des excitations. Ce que l'on mesure est une convolution de $S(Q,\omega)$ avec la résolution instrumentale $R(Q,\omega)$:

$$\tilde{S}(Q,\omega) = S(Q,\omega) * R(Q,\omega), \tag{7.2}$$

Nos données contiennent ainsi, pour un vecteur d'onde Q donné, une largeur en énergie due à la résolution de l'instrument, qui s'exprime par une largeur à mi-hauteur FWHM (Full Width at Half Maximum), de l'ordre de 70 μeV à $\lambda = 4.8$ Å. Nos données contiennent aussi une largeur physique intrinsèque notée Γ_Q que nous exploiterons en **7.7**. Cette largeur Γ_Q est très petite à T=0.1 K, de l'ordre du neV. Nous noterons W_Q la largeur à mi-hauteur totale, physique plus instrumentale. Cette grandeur sera également déterminée à partir de nos données expérimentales.

7.2.1 Ajustements

La fonction de résolution du spectromètre temps de vol IN5 pouvant être approximée par une gaussienne, des ajustements gaussiens ont été réalisés, ayant pour expression pour un vecteur d'onde Q donné (ou pour un angle ϕ donné) :

$$S(Q(\phi),\omega) = \frac{Z}{W\sqrt{\pi/\ln 16}} \exp\left[-\ln 16 \frac{(\omega-\epsilon)^2}{W^2}\right]. \tag{7.3}$$

Une attention particulière a été portée à P=24 bars au niveau du maxon, où sans précaution particulière, la contribution des multi-excitations ajoute de l'intensité dans la queue de haute énergie de l'excitation à une particule. Pour faire face à cette difficulté, l'ajustement est effectué jusqu'à une énergie de coupure ω_{cut} [voir la Figure 7.1]. Pour vérifier la justesse de l'ajustement, le χ^2 réduit noté χ^2_r est calculé :

$$\chi^2_r = \frac{1}{N-r}\sum_{i=1}^{N} \frac{(I_i^{\text{Expérience}} - I_i^{\text{Modèle}})^2}{\sigma_i^2} \tag{7.4}$$

où N est le nombre de points considérés pour l'ajustement, r est le nombre de paramètres ajustables, $I^{\text{Expérience}}$ et $I^{\text{Modèle}}$ correspondent respectivement aux données expérimentales

d'écart type σ et aux valeurs obtenues à partir du modèle d'ajustement. Les paramètres Z, ϵ et W ont la meilleure précision avec les plus petits écarts types et le χ_r^2 proche de 1 lorsque l'énergie est coupée à ω_{cut}=1.305 meV. La Figure 7.2 montre que cette énergie de coupure permet d'obtenir des coefficients avec une bonne précision et un χ_r^2 relativement proche de 1 dans toute la région critique au niveau du maxon, de ϕ=39.1° jusqu'à ϕ=72.6°. A noter cependant que pour certains angles, les χ_r^2 sont un peu trop bas du fait qu'il y ait peu de points avec de grandes barres d'erreur à prendre en compte au niveau du pic gaussien de l'excitation élémentaire.

L'intensité Z_Q et la largueur W_Q ont été obtenues à partir du facteur de structure dynamique S(Q,ω). En revanche, comme on souhaite déterminer les relations de dispersion avec une très grande précision, l'énergie ϵ_Q a été obtenue à partir de S(ϕ,ω) et non S(Q,ω) pour éviter les erreurs pouvant être produites lors de la transformation. La transformation de ϵ_ϕ en ϵ_Q a ensuite été faite en utilisant la relation :

$$Q^2 = 2\left(\frac{2\pi}{\lambda_i}\right)^2 \left[\left(1 - \frac{\epsilon}{2E_i}\right) - \sqrt{\left(1 - \frac{\epsilon}{E_i}\right)}\cos\phi\right], \tag{7.5}$$

avec λ_i=4.8 Å et E_i=3.55 meV.

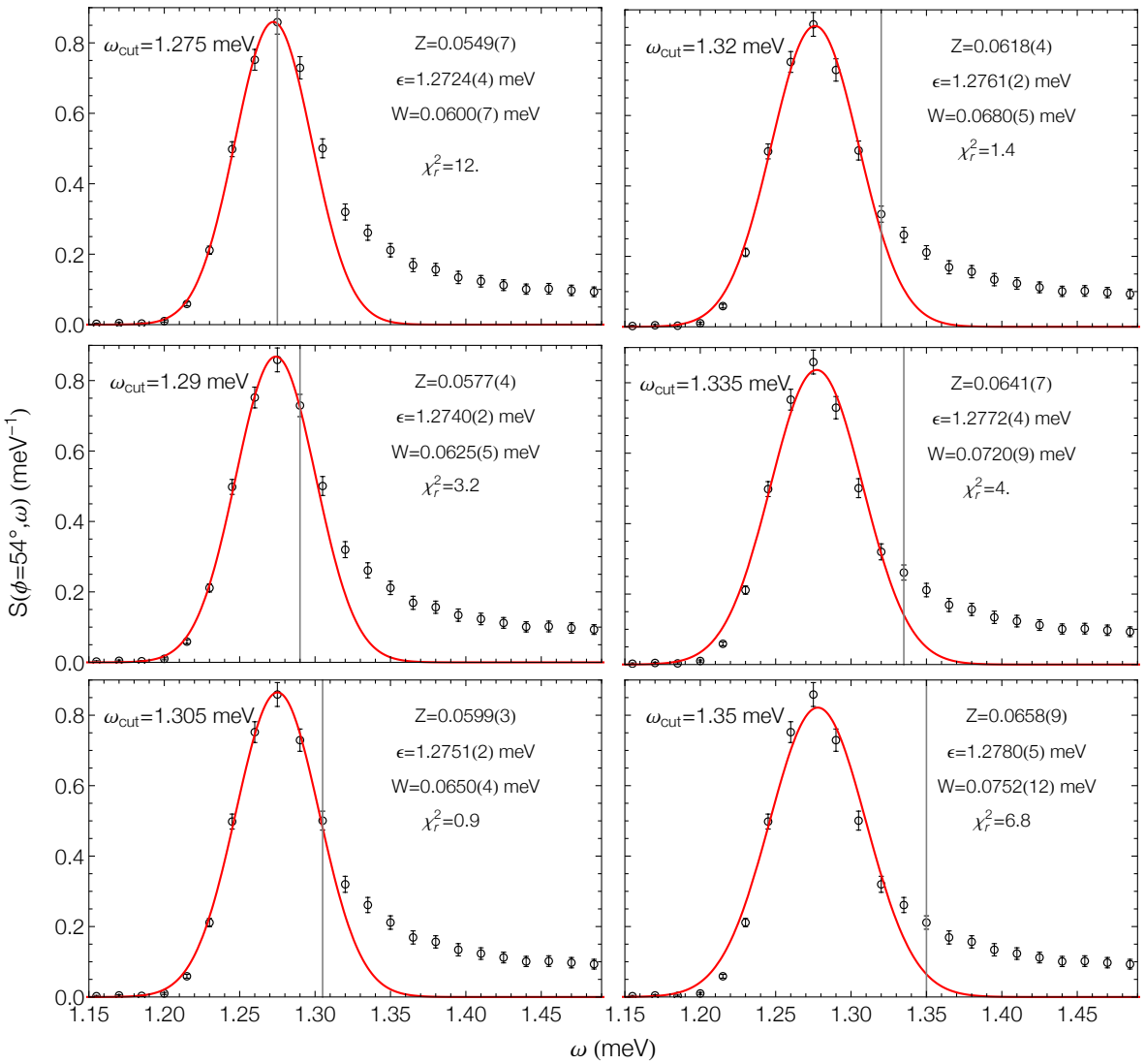


Figure 7.1: Facteur de structure dynamique S(ϕ,ω) à ϕ constant = 54° (au niveau du maxon) vs l'énergie de transfert ω, à P= 24 bars. La courbe rouge symbolise l'ajustement gaussien des données, effectué pour six différentes énergies de coupure ω_{cut} (matérialisées par un trait vertical gris).

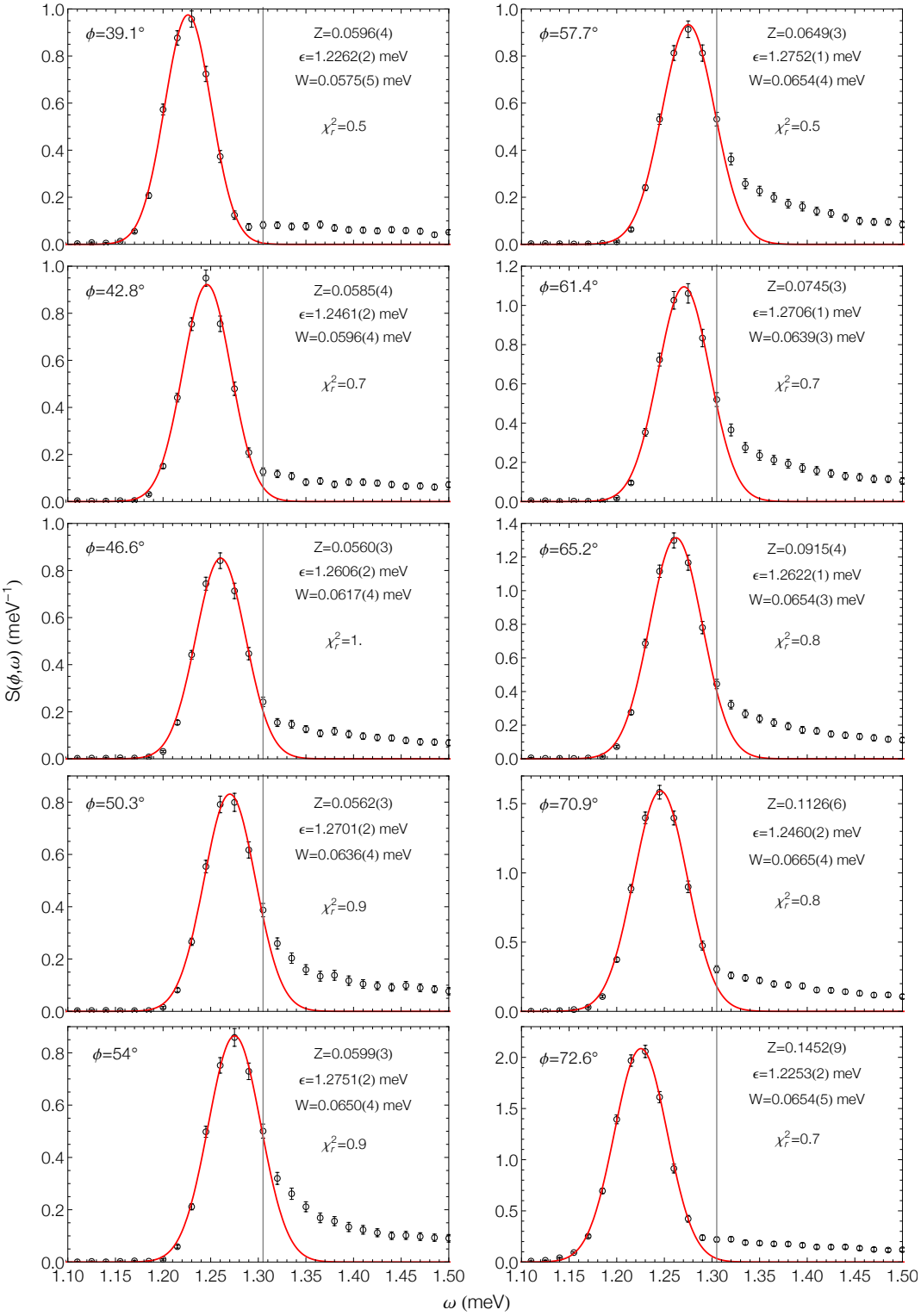


Figure 7.2: Facteur de structure dynamique S(ϕ,ω) vs l'énergie de transfert ω pour des angles ϕ allant de 39.1° jusqu'à 72.6° (au niveau du maxon), à P= 24 bars. La courbe rouge symbolise l'ajustement gaussien des données, effectué pour une énergie de coupure de 1.305 meV (matérialisée par un trait vertical gris).

7.2.2 Résultats

Les résultats des ajustements gaussiens de la relation de dispersion donnant l'énergie ϵ_Q, l'intensité Z_Q et la largueur W_Q des excitations élémentaires, sont montrés en Figure 7.3 pour quatre pressions, P=0, 5, 10 et 24 bars. En Figure 7.3 (a), on observe que l'énergie du roton décroît quand la pression augmente dû à l'intensification des corrélations, et la position en vecteur d'onde du roton se décale vers des plus grands vecteurs d'onde car la distance inter-atomique diminue. Pour ce qui est de l'énergie du maxon, elle augmente avec la pression puis semble devenir constante. Enfin, la pente du phonon croît car elle est inversement proportionnelle à la compressibilité, qui diminue avec la pression. En effet, la vitesse du son C_0 s'exprime $C_0^2 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_T = \frac{1}{\rho k_T}$ avec k_T la compressibilité isothermique. En Figure 7.3 (b), on voit l'intensité du roton qui augmente avec la pression et celle du maxon qui diminue. Si on néglige les multi-excitations et que l'on approxime donc la fonction de diffusion à S(Q,ω)=$S_1(Q,\omega)$, le moment d'ordre 1 vaut [voir l'équation (2.22)] :

$$\frac{\hbar^2 Q^2}{2M} = \int \omega Z_Q \delta(\omega - \epsilon_Q) d\omega = \epsilon_Q Z_Q. \tag{7.6}$$

Donc, comme l'énergie ϵ_Q du roton décroît avec la pression, son intensité Z_Q doit augmenter et parallèlement, comme l'énergie ϵ_Q du maxon augmente avec la pression, son intensité Z_Q doit diminuer. En Figure 7.3 (c), on observe que la largeur W_Q a une dépendance en Q. Ceci provient du fait que la courbe phonon-maxon-roton coupe la fonction de résolution instrumentale différemment suivant sa pente. On remarque par ailleurs une largeur plus grande au niveau du maxon à P=24 bars et cet effet est encore plus visible sur la Figure 7.3 (d). On verra en section **7.6** que cet élargissement est possiblement lié à des processus de décroissance d'un maxon en deux-rotons.

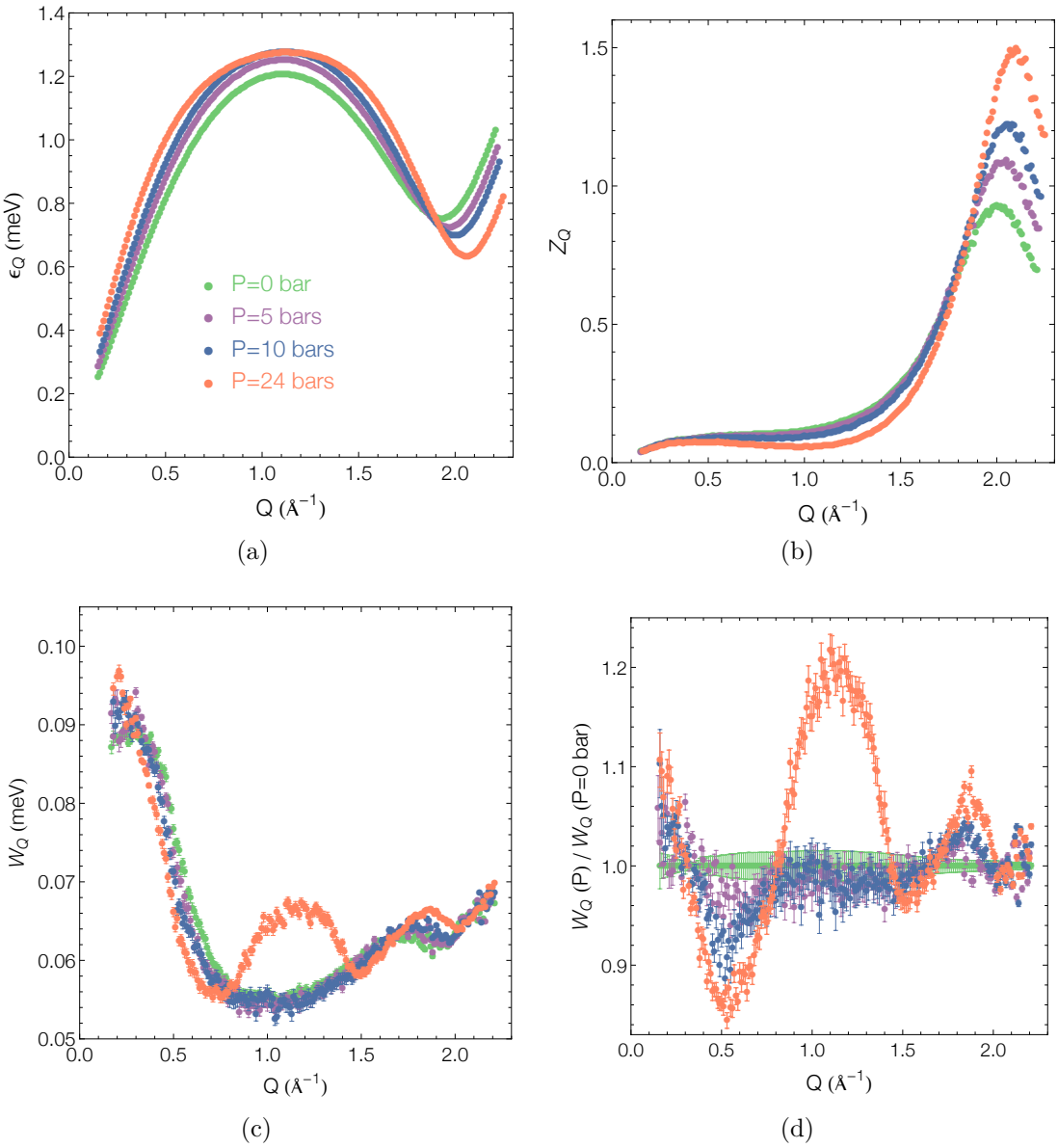


Figure 7.3: Courbes obtenues à partir des ajustements gaussiens des excitations élémentaires pour quatre pressions, P= 0, 5, 10 et 24 bars. (a) Relation de dispersion ϵ_Q. (b) Intensité des excitations élémentaires Z_Q. (c) Largeur à mi-hauteur W_Q. (d) W_Q à une pression P divisée par W_Q à P=0 bar.

7.3 Paramètres Δ_R, Q_R et μ_R du roton

A partir de la relation de dispersion ϵ_Q déterminée maintenant avec précision pour toutes les pressions, nous allons calculer les valeurs des paramètres du roton puis faire une comparaison de nos résultats avec la littérature.

7.3.1 Ajustements

Tout d'abord, est effectué pour chaque pression au niveau du roton, un ajustement quartique de ϵ_Q de la forme :

$$\epsilon_Q = \Delta_R + \frac{\hbar^2}{2m\mu_R}(Q - Q_R)^2 + b(Q - Q_R)^3 + c(Q - Q_R)^4, \tag{7.7}$$

où b, c, Δ_R, Q_R et μ_R sont des paramètres ajustables, les trois derniers étant les paramètres du roton que nous allons définir maintenant. Δ_R représente le gap en énergie au niveau du minimum du roton. Q_R est la position du minimun du roton dans l'espace réciproque. Enfin μ_R est la masse effective du roton obtenue en calculant la courbure de la dispersion ϵ_Q au niveau du roton. Les estimations de Δ_R, Q_R et μ_R dépendent de la gamme en Q, ΔQ que l'on considère pour faire l'ajustement [voir la Figure 7.4]. A P=0 bar, le meilleur ajustement, avec un bon χ_r^2 et de petits écarts types, est obtenu pour $\Delta Q = 0.47$ Å^{-1} et en prenant en compte une asymétrie avec une gamme en Q plus grande après le minimum du roton ($\Delta Q_{après} = 0.28$ Å^{-1}) qu'avant ($\Delta Q_{avant} = 0.19$ Å^{-1}). Si un ajustement parabolique et non quartique est réalisé, nous voyons en Figure 7.5 que nous obtenons des paramètres avec des écarts types et un χ_r^2 plus grands qu'avec celui quartique. L'ajustement quartique est donc meilleur et nous voyons en Figure 7.6 que la prise en compte d'une asymétrie l'améliore encore davantage. Finalement, pour toutes les pressions, l'ajustement quartique asymétrique avec $\Delta Q = 0.47$ Å^{-1} est une bonne approximation sauf à P=24 bars, où cette gamme permet d'avoir une bonne estimation de μ_R, mais il faut prendre une gamme plus petite $\Delta Q = 0.36$ Å^{-1} pour avoir une bonne précision sur Δ_R et Q_R [voir la Figure 7.7].

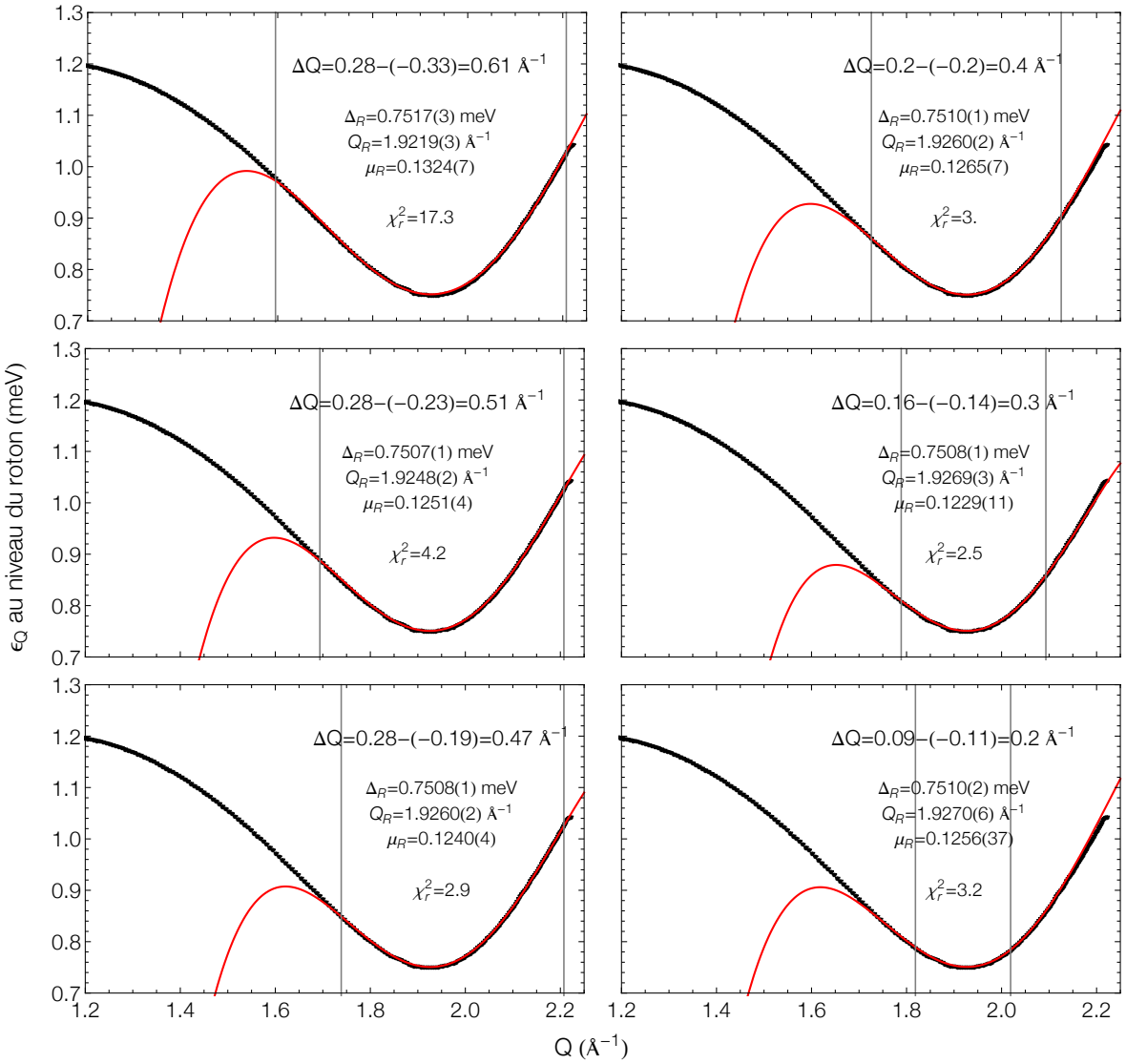


Figure 7.4: Zoom de la relation de dispersion ϵ_Q sur le roton à P=0 bar. La courbe rouge symbolise l'ajustement quartique effectué pour différentes gammes en Q, ΔQ (symbolisées par les deux traits verticaux gris) et centré en différents vecteurs d'onde Q. Il est intéressant de noter ici que la série de points noirs représentant ϵ_Q parait être une ligne continue. Ceci s'explique par le fait que nous avons 346 points de mesure en angle, ce qui est remarquable par rapport aux expériences neutroniques précédentes.

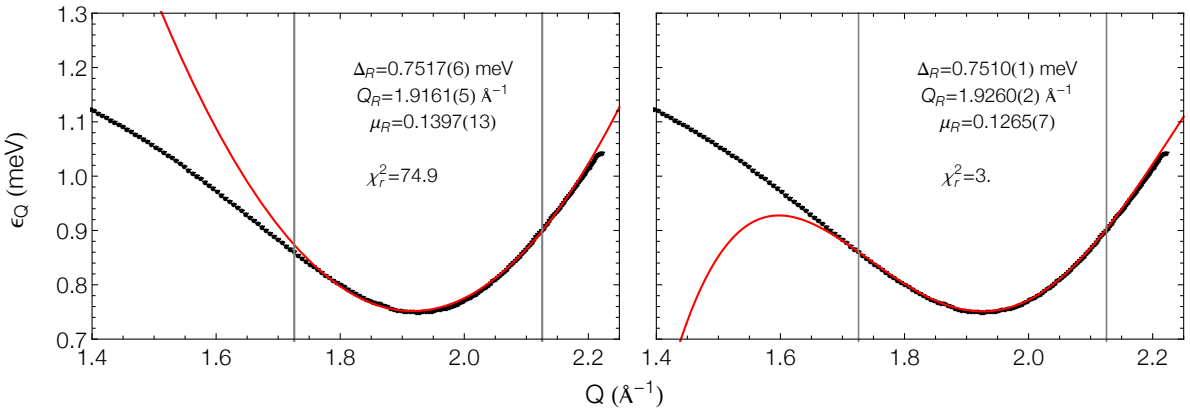


Figure 7.5: Zoom de la relation de dispersion ϵ_Q sur le roton à P=0 bar. Comparaison d'un ajustement parabolique à gauche avec un ajustement quartique à droite pour $\Delta Q = \pm 0.2$ Å^{-1}.

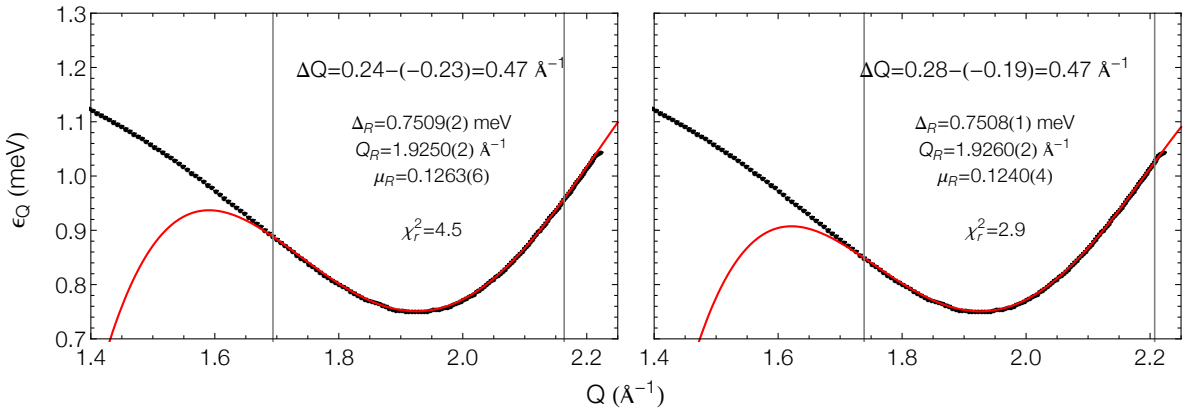


Figure 7.6: Zoom de la relation de dispersion ϵ_Q sur le roton à P=0 bar. Comparaison d'un ajustement symétrique autour du minium du roton à gauche avec un ajustement asymétrique à droite, pour $\Delta Q = 0.47$ Å^{-1}.

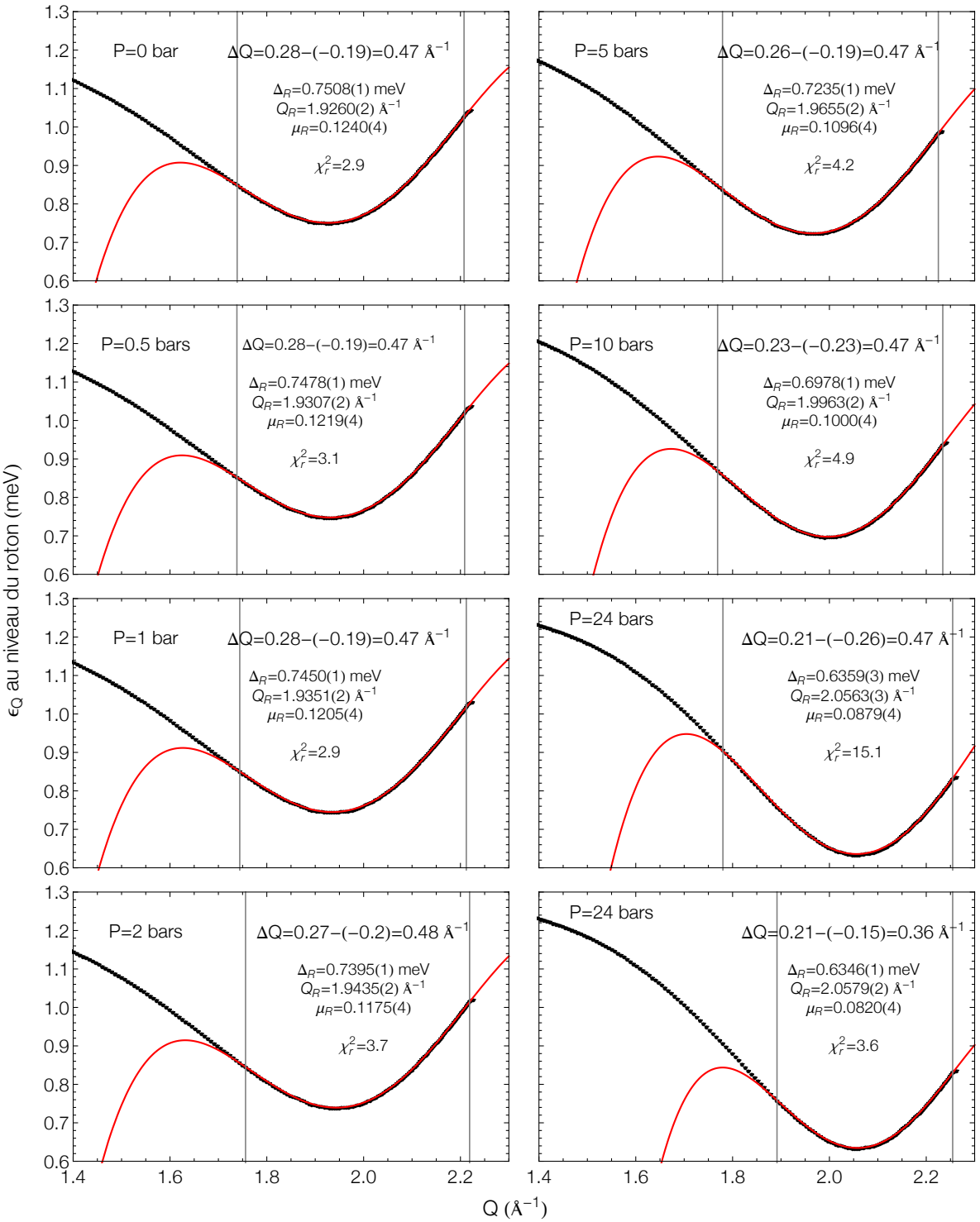


Figure 7.7: Zoom de la relation de dispersion ϵ_Q sur le roton à différentes pressions P. La courbe rouge symbolise l'ajustement asymétrique quartique effectué pour une gamme en Q, ΔQ=0.47 Å^{-1} (symbolisée par les deux traits verticaux gris). A 24 bars, est représenté aussi un graphique pour ΔQ=0.36 Å^{-1}.

7.3.2 Résultats

Les résultats des ajustements de la forme de l'équation (7.7) sont reportés dans le Tableau 7.1 ci-dessous pour les sept pressions. La précision obtenue est très bonne ; elle est de 0.001 meV pour Δ_R , de 0.0002 Å^{-1} pour Q_R et de 0.0004 pour μ_R.

P (bars)	Δ_R (meV)	Q_R (Å^{-1})	μ_R
0	0.7416(10)	1.9260(2)	0.1240(4)
0.51(2)	0.7386(10)	1.9307(2)	0.1219(4)
1.02(2)	0.7358(10)	1.9351(2)	0.1205(4)
2.01(2)	0.7303(10)	1.9435(2)	0.1175(4)
5.01(2)	0.7143(10)	1.9655(2)	0.1096(4)
10.01(2)	0.6885(10)	1.9963(2)	0.1000(4)
24.08(2)	0.6254(10)	2.0579(2)	0.0879(4)

Tableau 7.1: Valeurs du gap en énergie du roton Δ_R, du vecteur d'onde au minimum du roton Q_R et de la masse effective du roton μ_R avec leurs écarts types associés entre parenthèses.

7.3.3 Comparaison avec la littérature

Une comparaison de nos valeurs obtenues pour les paramètres du roton avec des valeurs de la littérature est présentée en Figure 7.8. On rappelle que nos mesures ont été faites avec le spectromètre temps de vol IN5 à l'ILL à T=0.1 K pour sept pressions de 0 à 24 bars avec une précision de 20 mbars et avec une résolution en énergie de 0.07 meV. Les mesures de Dietrich *et al* [71] ont été réalisées avec un spectromètre temps de vol à des températures autour de 1.3 K pour six pressions avec une précision de 0.142 bars, nettement moins bonne que celle de nos mesures. Les premières mesures de haute précision, avec de faibles erreurs systématiques, ont été effectués par Woods *et al* [55] en 1977 avec le spectromètre trois-axes IN3 à l'ILL à P=0 bar et à T=0.75 K. Plus récemment, d'autres mesures ont été réalisées avec un plus haut flux et une meilleure résolution. Il s'agit tout d'abord des mesures de haute précision de Andersen *et al* [56, 57] à P=0 bar et T=1.24 K avec le spectromètre temps de vol IN6. Des mesures ont aussi été réalisées par Stirling [72] avec le spectromètre trois-axes IN12 à l'ILL à T=50 mK à P=0 bar, et T=0.9 K à P=15.2 et 24 bars avec une précision faible de 1 bar pour ces deux dernières pressions. Les mesures les plus récentes ont été faites par Gibbs *et al* [58] avec le spectromètre temps de vol IN6 à l'ILL à T=0.5 K pour sept pressions de 0 à 24 bars avec une réso-

lution en énergie de 0.12 meV (presque deux fois plus grande que celle de nos données IN5).

En Figure 7.8, nous voyons des écarts pour les valeurs des paramètres du roton entre nos résultats et ceux de la littérature, que nous allons essayer d'interpréter maintenant. Pour les cinq séries de mesures neutroniques de la littérature, des ajustements symétriques et paraboliques de la relation de dispersion ϵ_Q ont été effectués, avec ΔQ de l'ordre de 0.4 Å^{-1} (sauf celui de Woods *et al* qui a été effectué sur une très petite gamme $\Delta Q = 0.06$ Å^{-1}). On a tenté également de réaliser un ajustement parabolique avec les données d'IN5 à P=0 bar, et nous voyons en Figure 7.5 que l'on tend vers une masse effective plus grande et un vecteur d'onde au minimum du roton plus petit (comme dans la littérature). Le problème de l'ajustement parabolique est qu'il ne permet pas de bien tenir compte de la forme de la relation de dispersion qui va rejoindre le plateau de Pitaevskii après le roton, contrairement à notre ajustement choisi (qui est, on le rappelle, de la forme quartique asymétrique, avec une plus grande gamme en Q après le roton). Notre détermination de Q_R et μ_R est donc plus précise. Pour ce qui de Δ_R, nos résultats sont en accord avec la littérature.

Nous pouvons conclure que nous obtenons, à partir de nos données (qui ont une bonne statistique et une haute résolution) et de notre analyse, des paramètres Q_R et μ_R avec une précision dix fois meilleure que celle de la littérature. Les valeurs obtenues après correction pour le gap en énergie du roton Δ_R présentent néanmoins une plus grande incertitude dû aux erreurs systématiques de calibration [voir **4.3.3**]. Finalement, le tableau 7.2 montre que nos valeurs sont en accord avec les mesures haute précision, pour lesquelles un travail important de calibration a été fait, de Woods *et al* et de Andersen *et al*.

	Δ_R (meV)	Q_R (Å^{-1})	μ_R
IN5	0.7416(10)	1.9260(2)	0.1240(4)
Woods	0.7430(7)	1.926(5)	0.126(30)
Andersen	0.743(1)	1.931(3)	0.144(3)

Tableau 7.2: Comparaison entre les valeurs à P=0 bar des paramètres du roton Δ_R, Q_R et μ_R obtenues avec nos mesures IN5 avec celles obtenues à partir des mesures de Woods *et al* [55] et de Andersen *et al* [56].

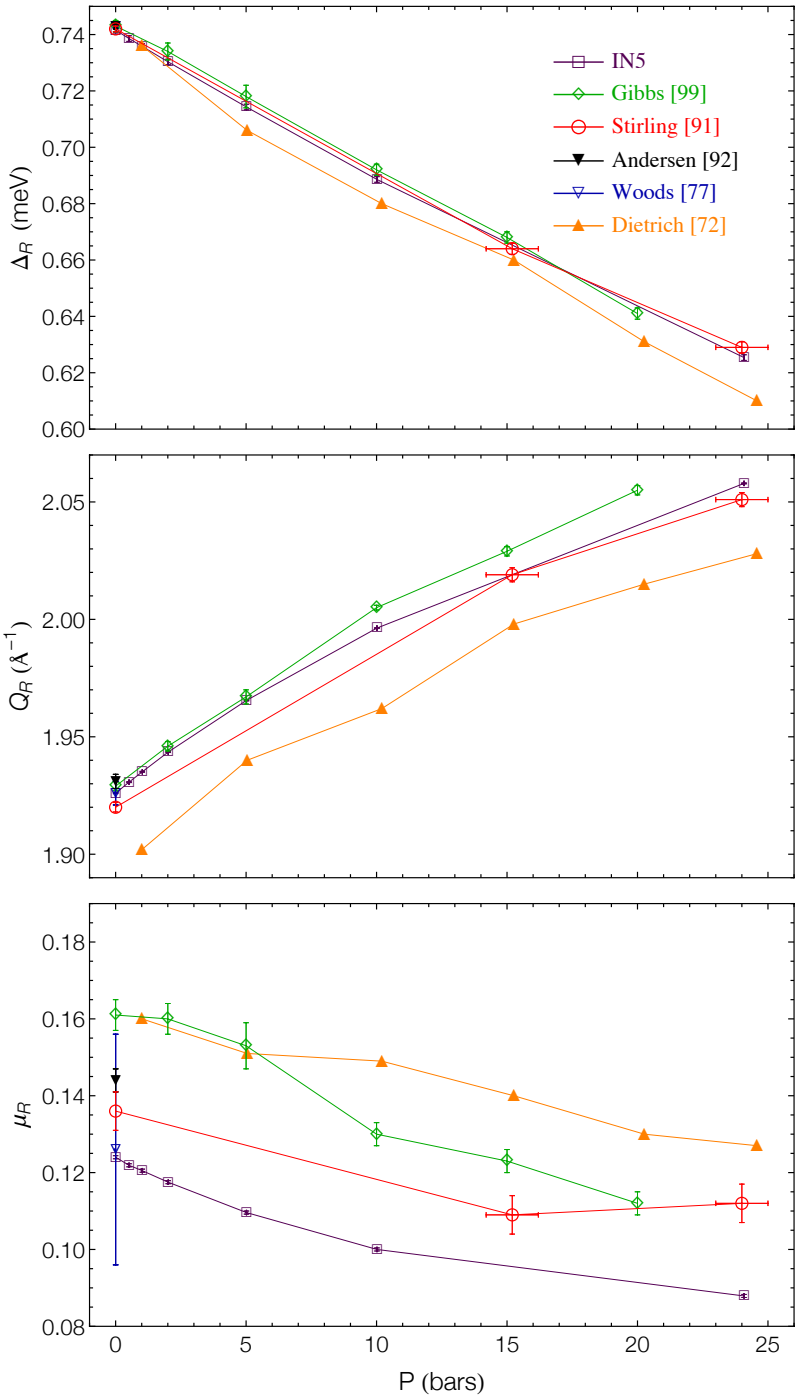


Figure 7.8: Comparaison de nos valeurs IN5 de Δ_R, Q_R et μ_R en fonction de la pression P avec des valeurs de la littérature de Gibbs *et al* [58], de Stirling [72], de Andersen *et al* [56], de Woods *et al* [55], et de Dietrich *et al* [71]. Les lignes sont des guides pour les yeux.

7.4 Vitesse du son C_0 et mise en évidence de la dispersion anormale

Nous allons chercher ici à déterminer, par une analyse au niveau du phonon, la vitesse du son C_0. Nous allons également mettre en évidence la relation de dispersion anormale et analyser sa diminution jusqu'à sa disparition en fonction de la pression.

7.4.1 Ajustement

Pour analyser le phonon, nous allons effectuer pour chaque pression un ajustement proposé par Maris [73] de la forme :

$$\epsilon_Q/\hbar Q = C_0 \left[1 + \gamma Q^2 \frac{1 - Q^2/Q_A^2}{1 + Q^2/Q_B^2}\right], \tag{7.8}$$

où Q_A, Q_B, C_0 et γ sont des paramètres ajustables, les deux derniers paramètres allant nous intéresser ici. Les différents ajustements pour chaque pression sont présentés en Figure 7.9. Nos valeurs trouvées pour la vitesse du son C_0 sont comparées avec les valeurs calculées avec l'équation (7.9) ci-dessous de Abraham *et al* [74], qui découle d'ajustements de mesures directes de la vitesse du son :

$$\frac{C_0^2}{10^2} = A_1 + 2A_2(\rho - \rho_0) + 3A_3(\rho - \rho_0)^2 \tag{7.9}$$

avec $A_1 = 5.679 \times 10^2$ bars cm^3 g^{-1}, $A_2 = 1.1115 \times 10^4$ bars cm^6 g^{-2}, $A_3 = 7.43 \times 10^4$ bar cm^9 g^{-3} et ρ_0 la masse volumique à P=0 bar. Cette expression montre comme vu en section **7.2** que la pente du phonon augmente avec la densité (pression). Les masses volumiques ρ ont été reliées aux pressions P grâce à l'équation (7.14) donnée plus bas.

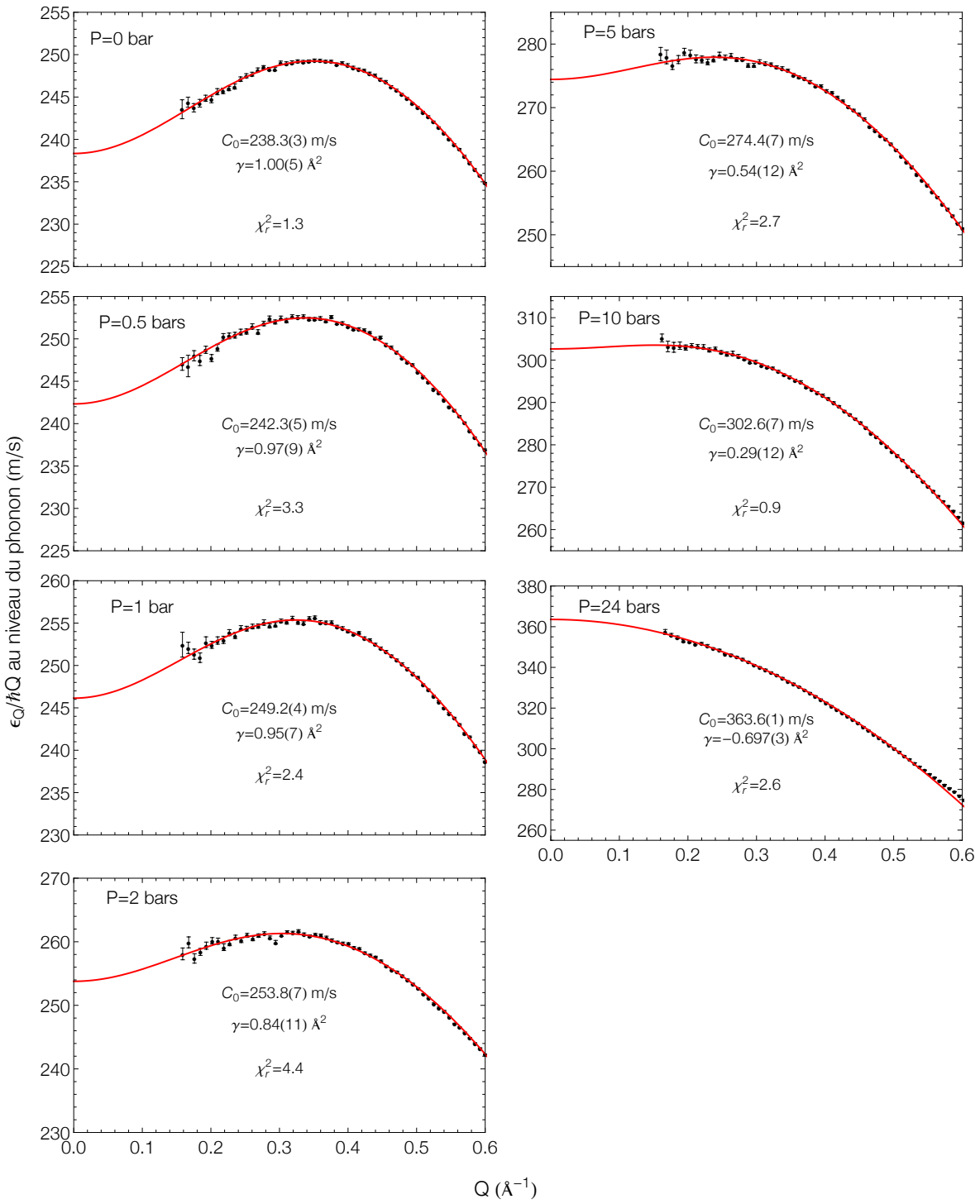


Figure 7.9: Vitesse de phase $\epsilon_Q/\hbar Q$ pour les sept pressions. La courbe rouge est un ajustement de la forme de l'équation (7.8).

7.4.2 Vitesse du son C_0

Les résultats des ajustements du phonon sont présentés dans les Tableaux 7.3 et 7.4. L'accord entre les valeurs obtenues à partir de l'ajustement de nos mesures neutroniques et les valeurs obtenues à partir de mesures directes de la vitesse du son est très bon avec de faibles écarts absolus, excepté à P=24 bars car nous n'avons pas de points de mesures neutroniques pour des vecteurs d'onde de transfert en dessous de 0.15 Å^{-1}.

Pression (bars)	C_0 (m/s)	C_0 (m/s)	Ecart absolu (m/s)	γ (Å^2)
Mesures	Neutrons	Son		Neutrons
0	238.3(3)	238.3(1)	0	1.00(5)
0.51(2)	242.3(5)	242.6(1)	0.3	0.97(9)
1.02(2)	246.1(4)	246.5(1)	0.4	0.95(7)
2.01(2)	253.8(7)	253.9(1)	0.1	0.84(11)
5.01(2)	274.4(7)	274(1)	0.4	0.54(12)
10.01(2)	302.6(7)	302.3(1)	0.3	0.29(12)
24.08(2)	363.6(1)	361.9(1)	1.7	-0.697(3)

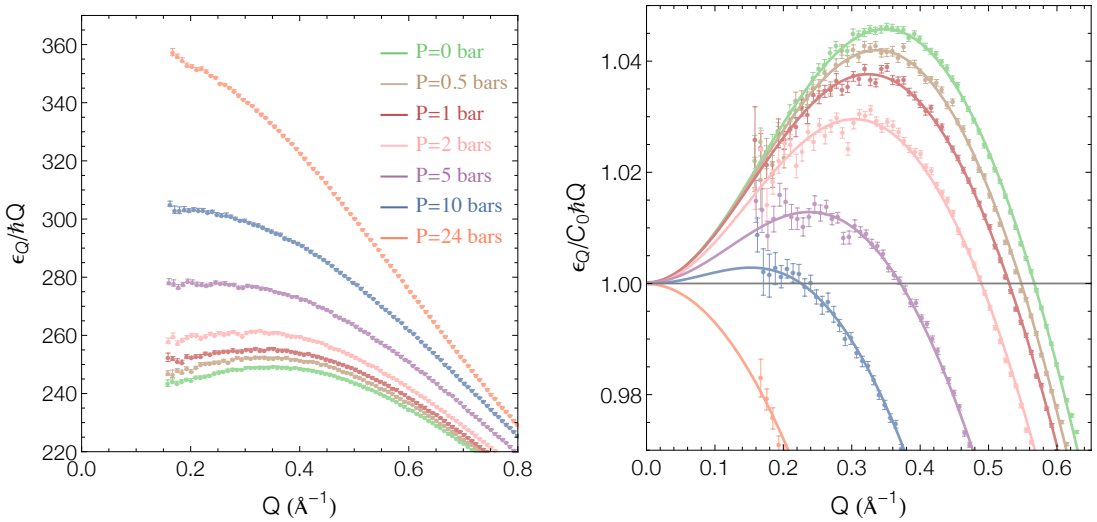
Tableau 7.3: Valeurs de la vitesse du son C_0 obtenues à partir de nos mesures neutroniques comparées avec celles obtenues à partir de mesures directes de la vitesse du son avec l'écart absolu entre les deux méthodes, en fonction de la pression. Sont également données en dernière colonne les valeurs du coefficient γ obtenues à partir de nos mesures neutroniques.

Pression (bars)	Q_A (Å^{-1})	Q_B (Å^{-1})
0	0.567(3)	0.43(1)
0.51(2)	0.548(5)	0.42(2)
1.02(2)	0.530(4)	0.39(2)
2.01(2)	0.490(8)	0.39(3)
5.01(2)	0.37(1)	0.37(3)
10.01(2)	0.23(3)	0.32(3)

Tableau 7.4: Valeurs des coefficients Q_A et Q_B obtenues à partir de nos mesures neutroniques. Il n'y a pas de valeurs à P=24 bars car la dispersion anormale a disparu à cette pression, l'ajustement du phonon prend donc une simple forme parabolique, $\epsilon_Q/\hbar Q = C_0[1 + \gamma Q^2]$.

7.4.3 Dispersion anormale

La dispersion anormale est marquée par une courbure positive de la dispersion après la partie linéaire (la courbure est négative dans le cas d'une dispersion normale). Cette courbure positive autorise la décroissance d'une excitation de haute énergie en une paire de phonons de plus basse énergie via un processus à trois particules. Elle est donc à l'origine du ghost phonon qui existe jusqu'à deux fois le vecteur d'onde pour lequel la relation de dispersion n'est plus anormale. Ce processus est interdit dans le cas où la courbure est vers le bas car l'énergie et la quantité de mouvement ne peuvent être conservées. La dispersion anormale est donc marquée par un changement de signe du coefficient γ que l'on observe entre P=10 et 24 bars [voir le Tableau 7.3]. En effet si $\gamma > 0$, la courbure est positive et si $\gamma < 0$, la courbure est négative. Nous obtenons à P=0 bar une valeur $\boxed{\gamma = 1.00 \pm 0.05 \text{ Å}^2}$, valeur en accord avec Maris [73] (qui a calculé γ à partir de mesures de chaleur spécifique de Phillips *et al* [75]) et les mesures neutroniques de Stirling [72]. A P= 24 bars, nous trouvons $\boxed{\gamma = -0.697 \pm 0.003 \text{ Å}^2}$, valeur en accord avec les mesures neutroniques de Svensson *et al* [76] qui a trouvé $\gamma = -0.62 \pm 0.06$ Å^2. La dispersion anormale peut être mise en avant par le tracé de la vitesse de phase $\epsilon_Q/\hbar Q$ divisée par la vitesse du son C_0 [voir la Figure 7.10]. Elle devient nulle en dessous de $\epsilon_Q/C_0\hbar Q = 1$. En regardant l'équation (7.8), on voit que $\epsilon_Q/C_0\hbar Q = 1$ pour $Q = Q_A$. En traçant le vecteur d'onde de coupure Q_A en fonction de ρ, nous pouvons en déduire à partir d'un ajustement linéaire la masse volumique de coupure ρ_c correspondant à la valeur de ρ en $Q_A = 0$ [voir la Figure 7.11]. Nous trouvons $\rho_c = 167.65$ kg/m^3 correspondant à une pression de coupure, $\boxed{P_c = 19 \pm 4 \text{ bars}}$. Cette valeur confirme les calculs de Aldrich *et al* [77] utilisant un potentiel de polarisation, qui donnent $P_c \sim 18$. Elle est aussi en accord avec des valeurs de la littérature obtenues par différentes techniques expérimentales. Les mesures de chaleur spécifique de Greywall [78] donnent $P_c \sim 16$ ou 20 bars suivant l'analyse, celles de dispersion angulaire d'un faisceau de phonons de Sherlock *et al* [79] donnent $P_c \sim 17$ bars, celles ultra-haute fréquence d'atténuation du son de Dynes *et al* [80] donnent $P_c \sim 20$ bars et enfin celles haute précision de la vitesse du son de Junker *et al* [81] donnent $P_c \sim 18$ bars. A noter que pour la valeur de P_c, aucune barre d'erreur n'est donnée dans la littérature.



(a) (b)

Figure 7.10: A gauche : Vitesse de phase $\epsilon_Q/\hbar Q$ pour les sept pressions. A droite : $\epsilon_Q/\hbar Q$ divisée par la vitesse du son C_0 permettant de mettre en avant la dispersion anormale, au-dessus du trait horizontal gris situé à 1. Les lignes pleines représentent les ajustements de la forme de l'équation (7.8) divisée par C_0.

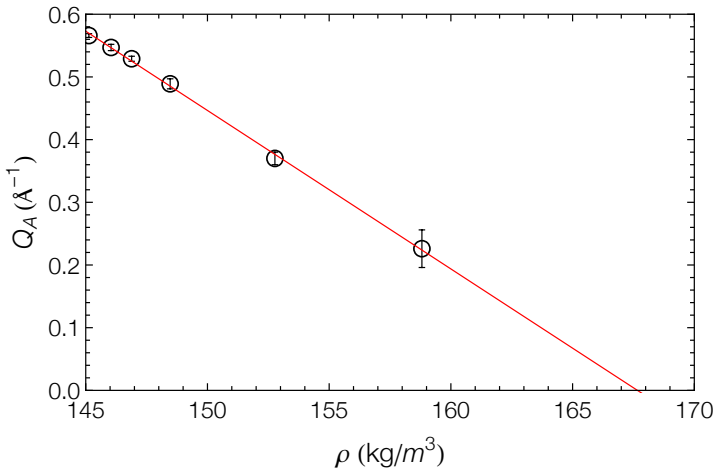


Figure 7.11: Vecteur d'onde de coupure Q_A en fonction de ρ.

7.5 Détermination du coefficient A d'interaction roton-phonon

L'article de Fåk *et al* [82] montre que l' interaction roton-phonon est la cause d'une renormalisation de l'énergie du roton dû au champ des phonons thermiquement excités à basse température, en dessous de T=1 K. Cette interaction se fait via des processus à trois et quatre particules [voir les diagrammes dans l'article de Fåk *et al*]. La dépendance en température de l'énergie du roton suggère que l'interaction roton-phonon est répulsive, contrairement à ce qui est supposé pour l'interaction roton-roton [22, 23]. Nous allons chercher à vérifier cette hypothèse en calculant le coefficient A d'interaction phonon-roton, défini par Landau et Khalatnikov et qui s'exprime dans la limite hydrodynamique quantique comme [83]:

$$A = \frac{\rho^2}{C_0 \hbar Q_R} \frac{\partial^2 \Delta_R}{\partial \rho^2} + \frac{\hbar Q_R}{C_0 \mu_R m} \left(\frac{\rho}{Q_R} \frac{\partial Q_R}{\partial \rho} \right)^2 . \tag{7.10}$$

Si le signe de ce coefficient est positif, cela signifie que l'interaction est répulsive. Les premières estimations indiquaient une valeur négative de -0.1 [84] tandis que des mesures neutroniques plus récentes donnent des valeurs pour A comprises entre -0.38 et 1.35 [58, 71]. Le principal objectif va être de déterminer A avec une bonne précision à P=0 bar et nous allons également donner une tendance pour la dépendance de A avec la pression. A noter que les mesures expérimentales ont d'abord été faites pour avoir une détermination précise de A à P=0 bar, avec quatre valeurs de pression proches de 0 bar de 0 à 2 bars suivies par trois valeurs très espacées 5, 10 et 24 bars, la large gamme de pression de 0 à 24 bars servant à la détermination de courbes de tendance. Le coefficient A peut être décomposé en deux termes :

$$A = \Delta_{R''_*} + Q_{R'_*} \tag{7.11}$$

avec

$$\Delta_{R''_*} = \frac{\rho^2}{C_0 \hbar Q_R} \frac{\partial^2 \Delta_R}{\partial^2 \rho} \tag{7.12}$$

et

$$Q_{R'_*} = \frac{\hbar Q_R}{C_0 \mu_R m} \left(\frac{\rho}{Q_R} \frac{\partial Q_R}{\partial \rho} \right)^2 . \tag{7.13}$$

Pour déterminer A, nous allons calculer ces deux termes, mais nous devons tout d'abord déterminer très précisément la relation entre la pression et la masse volumique. Nous prendrons comme valeurs pour la vitesse du son C_0 celles données en troisième colonne du Tableau 7.3, obtenues à partir de mesures directes de la vitesse du son.

7.5.1 Relation pression-masse volumique

Pour déterminer la relation pression-masse volumique, la formule de Caupin *et al* [85], suggérée par Maris [86] et basée sur des données expérimentales de Tanaka *et al* [87], est utilisée :

$$\rho(kg/m^3) = 92.9036 + \left(27 \times \frac{P(MPa) + 0.994921}{0.0137222^2}\right)^{1/3}, \tag{7.14}$$

avec $\rho = nM_4$ la masse volumique où n est le nombre d'atomes par unité de volume et $M_4 = 4.0026u = 6.6465 \times 10^{-27}$ kg est la masse atomique de l'^{4}He. On rappelle que les pressions ont été mesurées à l'aide d'une jauge (située en dehors du cryostat) et leurs valeurs (répertoriées dans le Tableau 7.5) sont données avec une précision de 6 mbars. Pour connaître la pression dans la cellule, il faut ajouter à la pression de la jauge le poids de la colonne de liquide d'hélium ρgh avec g=9.81 m/s^2, $h = 0.8 \pm 0.1$ m, ρ étant calculée à partir de l'équation (7.14). L'incertitude sur les pressions dans la cellule et de 20 mbars. A partir de la pression dans la cellule, ρ est calculée à nouveau avec l'équation (7.14) et l'erreur σ_ρ est déterminée à partir de l'erreur sur la pression et de l'écart absolu entre les valeurs de ρ mesurées par Tanaka *et al* [87] et les valeurs données par l'ajustement (7.14). La valeur à la pression de vapeur saturante est précise, égale à 145.13 kg/m^3, valeur mesurée par Kerr et Taylor [88]. Enfin, nous pouvons déduire à partir des valeurs des masses volumiques ρ, les densités d'atomes n.

P jauge (bars)	0	0.500(6)	1.007(6)	2.000(6)	5.000(6)	10.000(6)	24.066(6)
P cellule (bars)	0	0.51(2)	1.02(2)	2.01(2)	5.01(2)	10.01(2)	24.08(2)
ρ (kg/m^3)	145.13	146.04(4)	146.89(2)	148.46(2)	152.77(1)	158.81(2)	171.58(5)
n (atomes/Å^{-3})	0.0218	0.0220	0.0221	0.223	0.0230	0.0239	0.0258

Tableau 7.5: Calcul des pressions dans la cellule à partir des pressions de la jauge, puis calcul pour chaque pression de la masse volumique ρ et de la densité d'atomes n.

7.5.2 Détermination de Δ''_R

Pour déterminer le coefficient A, il faut calculer la dérivée seconde du gap en énergie du roton Δ_R par rapport à ρ, $\frac{\partial^2 \Delta_R}{\partial \rho^2} = \Delta''_R$. La courbe Δ_R en fonction de ρ est ajustée par un polynôme du second degré de la forme $a\rho^2 + b\rho + c$ [voir la Figure 7.12] en considérant d'abord toutes les pressions de 0 à 24 bars, puis de 0 à 10 bars, puis de 0 à 5 bars et enfin de 0 à 2 bars. Pour cet ajustement qui contient trois paramètres, il est nécessaire de prendre en compte les sept pressions pour avoir un χ^2_r raisonnable. Le meilleur ajustement donne $\Delta''_R = 2a = -1.33(3) \times 10^{-26}$ J.m^6/kg^2. A cause des erreurs systématiques produites par le fait que la valeur de Δ''_R change suivant le nombre de points de pression considérés, la valeur finale a une incertitude de 10×10^{-28} et non de 3×10^{-28} et vaut ainsi $\boxed{\Delta''_R = (-1.33 \pm 10) \times 10^{-26} \text{ J.m}^6/\text{kg}^2.}$

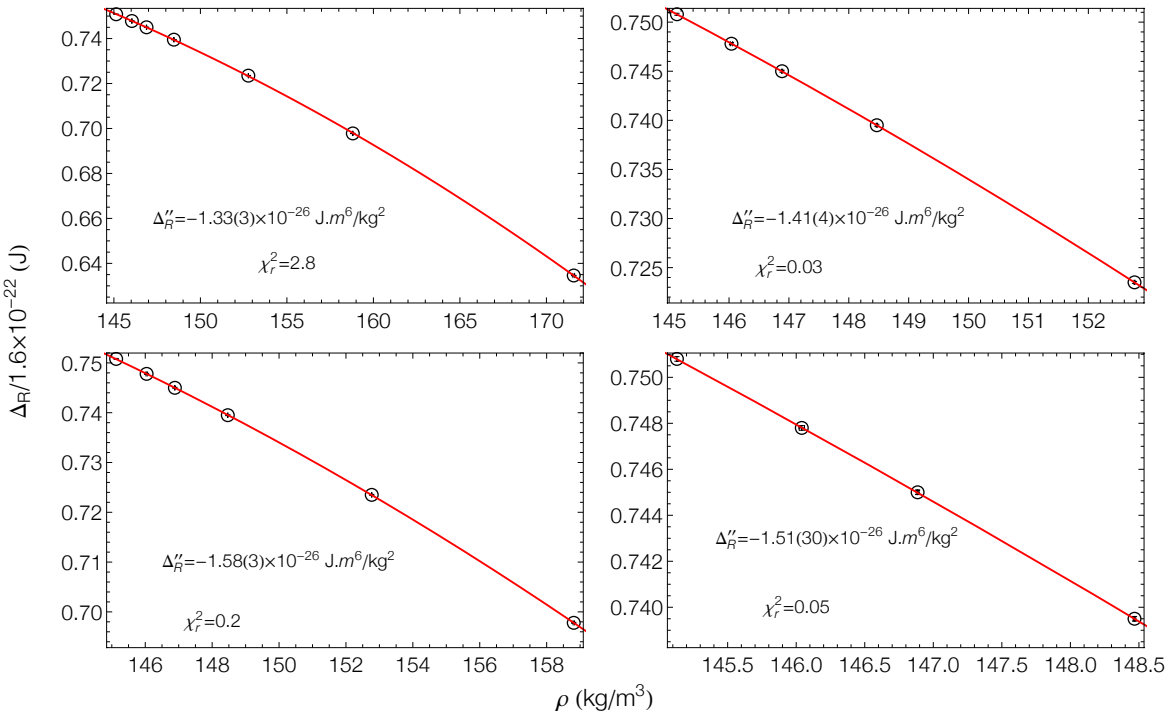


Figure 7.12: Énergie du roton Δ_R en fonction de la densité ρ. La courbe rouge symbolise l'ajustement quadratique en considérant d'abord toutes les pressions de 0 à 24 bars, puis de 0 à 10 bars, puis de 0 à 5 bars et enfin de 0 à 2 bars.

7.5.3 Détermination de Q'_R

Suivant Dietrich *et al* [71], Q_R varie comme $\rho^{1/3}$ pour toutes les pressions, indiquant que le nombre moyen de plus proches voisins reste constant (à une valeur proche de huit). En effet, en faisant l'hypothèse que le minimum du roton se situe à $2\pi/d$ avec d la distance moyenne entre particules, on obtient $2\pi/d = 2\pi/V^{1/3} \propto \rho^{1/3}$. Les mesures de Dietrich *et al* donnèrent ainsi la relation :

$$Q_R = a\rho^{1/3} \tag{7.15}$$

avec $a = 3.64$ Å^{-1}cm.g$^{-1/3}$ et plus tard Donnely *et al* [89] trouva $a = 3.673$ Å^{-1}cm.g$^{-1/3}$. Le tracé de Q_R en fonction de ρ avec nos données donne $a = 3.68$ Å^{-1}cm.g$^{-1/3}$, valeur proche de celle de Donnely *et al*. Cependant, nous voyons sur la Figure 7.13 que l'ajustement (7.15) est mauvais montrant que la relation est plus compliquée, sans doute lié au fait que les corrélations changent avec la pression.

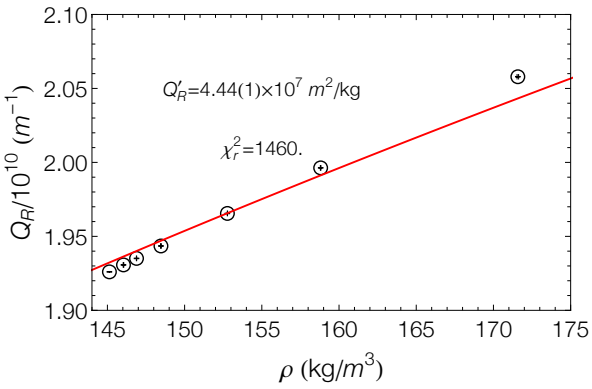


Figure 7.13: Position du roton Q_R en fonction de la masse volumique ρ. La courbe rouge symbolise un ajustement de la forme (7.15). Q'_R est la dérivée première de Q_R par rapport à ρ.

Pour déterminer la dérivée première de Q_R par rapport à ρ, $\frac{\partial Q_R}{\partial \rho} = Q'_R$, nous avons modifié légèrement l'expression (7.15) établie de Q_R en fonction ρ et effectué un ajustement de la forme :

$$Q_R = a\rho^{1/3} + b \tag{7.16}$$

en considérant toutes les pressions de 0 à 24 bars. Le paramètre important ici étant toujours a, le paramètre b n'affectant pas la physique. Pour les pressions de 0 à 10 bars, puis de 0 à 5 bars et enfin de 0 à 2 bars, un ajustement de la forme $a\rho + b$ a été effectué, le nombre de points considéré pour faire les ajustements étant faible, une forme linéaire

est aussi légitime que la forme (7.16). Le plus petit écart type avec un χ_r^2 raisonnable est obtenu pour le premier ajustement qui prend en compte sept points [voir la Figure 7.14]. Avec un tel ajustement, $Q'_R = \frac{1}{3}a\rho^{-2/3}$, avec $a = 4.37 \times 10^9$ kg$^{-1/3}$. Dans les unités précédentes, $a = 4.37$ Å^{-1}cm.g$^{-1/3}$ est plus grand que les valeurs de la littérature. A P=0 bar, Q'_R va être égal à $5.28(1) \times 10^7$ m^2/kg. Comme pour Δ''_R, en tenant compte des erreurs systématiques, nous obtenons finalement $\boxed{Q'_R = (5.28 \pm 3) \times 10^7 \text{ m}^2/\text{kg}.}$ Avec (7.15), nous obtenions $Q'_R = 4.44(1) \times 10^7$ m^2/kg, soit 16 % en dessous de la valeur obtenue avec (7.16). L'ajout du paramètre b est donc important pour le calcul de Q'_R.

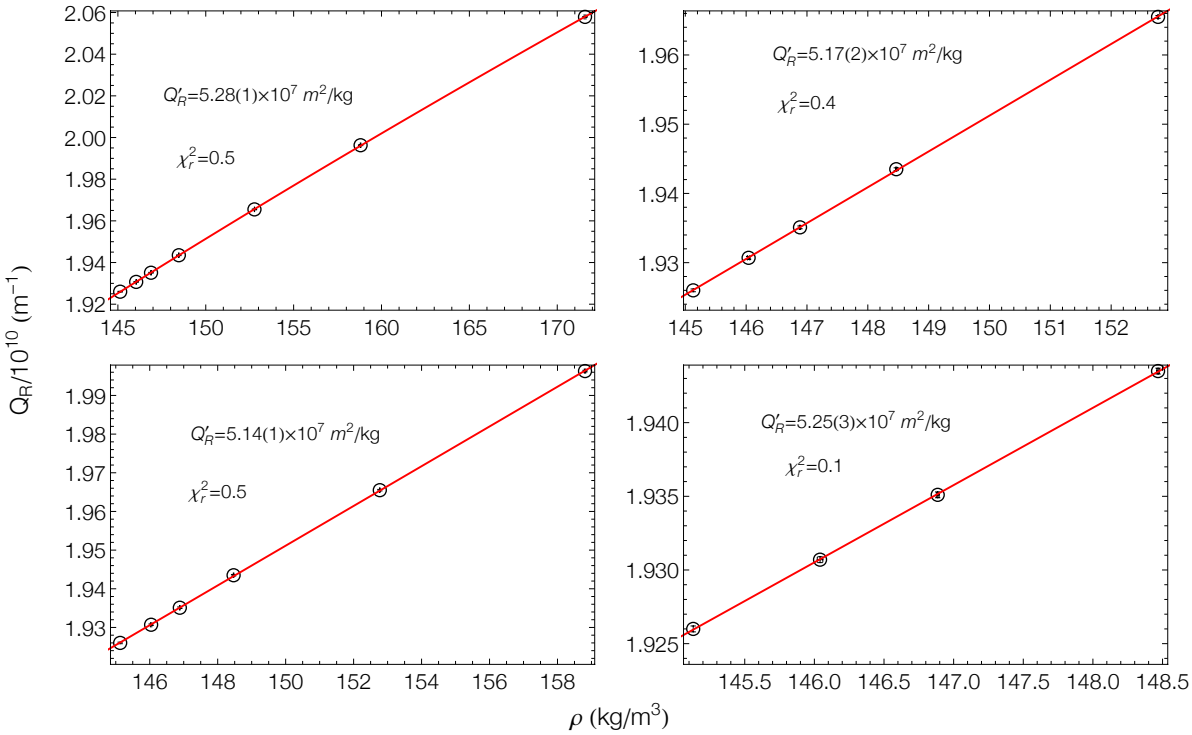


Figure 7.14: Position du roton Q_R en fonction de la masse volumique ρ. La courbe rouge symbolise les ajustements. Pour le graphique en haut à gauche qui contient tous les points de pressions de 0 à 24 bars, l'ajustement est de la forme (7.16). Pour les pressions de 0 à 10 bars, puis de 0 à 5 bars et enfin de 0 à 2 bars, un ajustement linéaire a été effectué.

7.5.4 Calcul du coefficient d'interaction roton-phonon A

Les valeurs du coefficient A avec leurs erreurs associées pour toutes les pressions sont données dans le Tableau 7.6. L'erreur sur A est donnée par :

$$\sigma_A = \sqrt{\left(\frac{\partial A}{\partial \rho}\right)^2 \sigma_\rho^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial Q_R}\right)^2 \sigma_{Q_R}^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial \mu_R}\right)^2 \sigma_{\mu_R}^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial Q'_R}\right)^2 \sigma_{Q'_R}^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial \Delta''_R}\right)^2 \sigma_{\Delta''_R}^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial C_0}\right)^2 \sigma_{C_0}^2}, \quad (7.17)$$

que l'on peut noter avec des notations simplifiées :

$$\sigma_A = \sqrt{\sigma_{A_\rho}^2 + \sigma_{A_{Q_R}}^2 + \sigma_{A_{\mu_R}}^2 + \sigma_{A_{Q'_R}}^2 + \sigma_{A_{\Delta''_R}}^2 + \sigma_{A_{C_0}}^2}. \quad (7.18)$$

D'après le Tableau 7.7, on voit que les erreurs qui dominent sont celles sur la dérivée seconde de l'énergie du roton puis sur la position en Q du minimum du roton, et enfin l'erreur sur la masse effective est elle aussi non négligeable. Mais finalement les erreur totales σ_A sont relativement faibles, de l'ordre de 5 % de A. La valeur trouvée pour le coefficient d'interaction phonon-roton à P=0 bar est $\boxed{A = 1.06 \pm 0.05.}$ Cette valeur positive du paramètre d'interaction roton-phonon implique comme on l'a dit précédemment, que l'interaction est répulsive, confirmant ainsi le résultat de Fåk *et al* de 2012 [82]. Le couplage A semble très faiblement voire peut être même ne pas varier avec la pression [voir la Figure 7.15]. Il aurait néanmoins fallu, pour avoir une meilleure précision de l'évolution de A avec la pression, avoir plus de points de pression afin de calculer des courbures locales de Δ_R en fonction de ρ.

Pression (bars)	A	σ_A	$\Delta_{R''_*}$	$Q_{R'_*}$
0	1.06	0.05	-0.58(4)	1.64(2)
0.51(2)	1.07	0.05	-0.57(4)	1.64(2)
1.02(2)	1.07	0.05	-0.57(4)	1.64(2)
2.01(2)	1.07	0.05	-0.56(4)	1.63(2)
5.01(2)	1.09	0.05	-0.55(4)	1.64(2)
10.01(2)	1.12	0.04	-0.53(4)	1.65(2)
24.08(2)	1.1	0.04	-0.5(4)	1.60(2)

Tableau 7.6: Valeurs du coefficient A avec son incertitude σ_A associée et valeurs de $\Delta_{R''_*}$ et $Q_{R'_*}$ avec leurs incertitudes associées entre parenthèses.

Pression (bars)	σ_{A_ρ}	$\sigma_{A_{Q_R}}$	$\sigma_{A_{\mu_R}}$	$\sigma_{A_{Q'_R}}$	$\sigma_{A_{\Delta''_R}}$	$\sigma_{A_{C_0}}$
0	0	0.0002	0.005	0.02	0.04	0.0007
0.51(2)	0.0009	0.0002	0.005	0.02	0.04	0.0007
1.02(2)	0.0005	0.0002	0.005	0.02	0.04	0.0007
2.01(2)	0.0004	0.0002	0.006	0.02	0.04	0.0007
5.01(2)	0.0003	0.0002	0.006	0.02	0.04	0.0006
10.01(2)	0.0006	0.0002	0.007	0.02	0.04	0.0006
24.08(2)	0.001	0.0002	0.007	0.02	0.04	0.0005

Tableau 7.7: Erreurs σ_{A_ρ} liée à l'incertitude sur ρ, $\sigma_{A_{Q_R}}$ liée à l'incertitude sur la position du roton Q_R, $\sigma_{A_{\mu_R}}$ liée à l'incertitude sur la masse effective μ_R, $\sigma_{A_{Q'_R}}$ liée à l'incertitude sur la dérivée première de la position du roton Q'_R, $\sigma_{A_{\Delta''_R}}$ liée à l'incertitude sur la dérivée seconde de l'énergie du roton Δ''_R et $\sigma_{A_{C_0}}$ liée à l'incertitude sur la vitesse du son C_0.

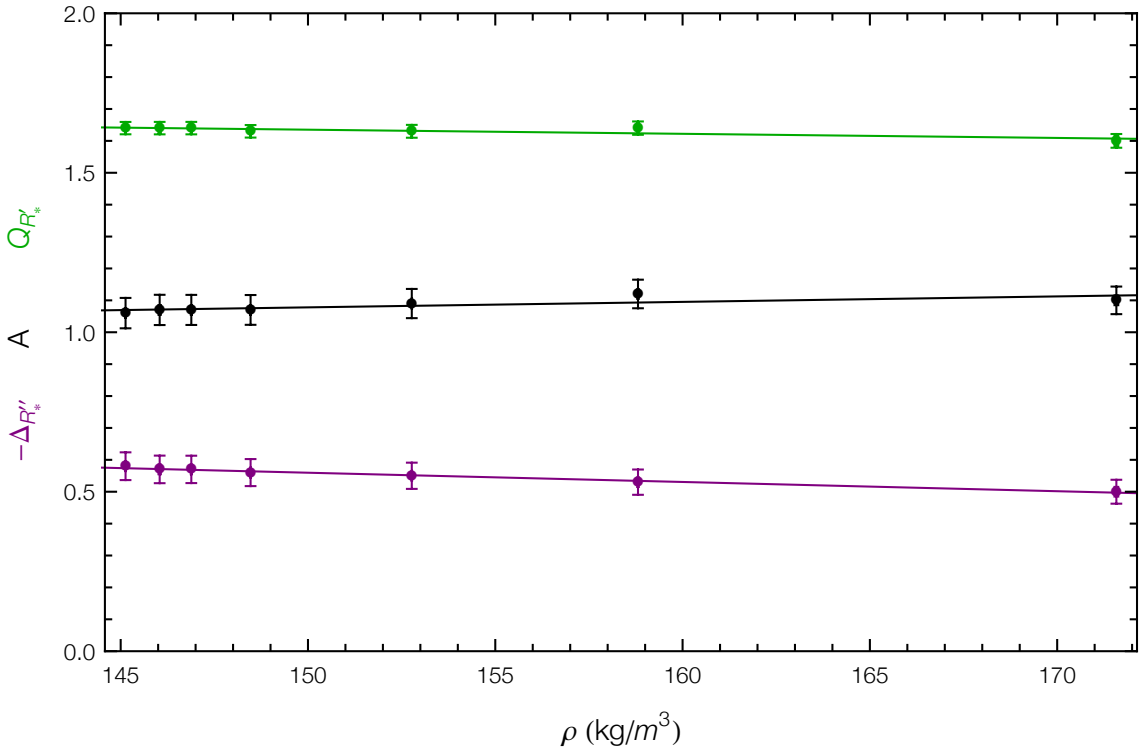


Figure 7.15: Deux termes $-\Delta_{R''_*}$ et $Q_{R'_*}$ et coefficient d'interaction roton-phonon A ($A = \Delta_{R''_*} + Q_{R'_*}$), en fonction de la masse volumique ρ. Les lignes sont des guides pour les yeux, ce sont des ajustements de la forme $ax + b$.

7.6 Interaction maxon-deux rotons à P=24 bars

Nous allons ici montrer l'hybridation forte qui existe entre le maxon et le deux-rotons à P=24 bars, que l'on a observée en **4.4.2** et **6.3.2**. Une première mise en évidence a été faite en **7.2.2**, où une largueur plus grande est observée au niveau du maxon à P=24 bars. Cette largeur plus grande se traduit par un temps de vie plus court du maxon qui décroît en des excitations à deux-rotons. Selon Pitaevskii [21], tous les processus au delà de deux fois l'énergie du roton ($2\Delta_R$) sont automatiquement élargis. Le maxon devrait ainsi cesser d'exister comme une excitation bien définie au delà de $2\Delta_R$ et l'énergie du maxon ne pourrait donc pas excéder $2\Delta_R$. Pour vérifier cette hypothèse, nous allons ici comparer l'énergie du maxon à deux fois l'énergie du roton ainsi qu'à l'énergie du deux-rotons.

7.6.1 Ajustements

Les paramètres du maxon Δ_M, Q_M et μ_M sont calculés pour toutes les pressions grâce à un ajustement de ϵ_Q au niveau du maxon de la forme [voir la Figure 7.16] :

$$\epsilon_Q = \Delta_M - \frac{\hbar^2}{2m\mu_M}(Q - Q_M)^2 + b(Q - Q_M)^3 + c(Q - Q_M)^4. \tag{7.19}$$

A noter, comme différence par rapport à l'ajustement du roton, le signe moins après Δ_M, dû à la courbure négative du maxon. A toutes les pressions, le meilleur ajustement, avec un bon χ_r^2 et de petits écarts types, est obtenu pour $\Delta Q = 0.81$ Å^{-1} et en prenant en compte une asymétrie avec une gamme en Q plus petite après le maximum du maxon ($\Delta Q_{après} = 0.32$ Å^{-1}) qu'avant ($\Delta Q_{avant} = 0.49$ Å^{-1}). A P=24 bars, la courbure du maxon est plus faible et il faut donc prendre une gamme en Q plus grande après le maximum du maxon ($\Delta Q_{après} = 0.41$ Å^{-1}).

7.6.2 Résultats

Les résultats des ajustements de la forme (7.19) sont reportés dans le Tableau 7.8 ci-dessous pour les sept pressions. On peut voir que l'on obtient, comme pour les paramètres du roton, une très bonne précision pour toutes les pressions, de l'ordre de 0.6 μeV sur Δ_M et de l'ordre de 3×10^{-4} Å^{-1} sur Q_M. Pour μ_M, la précision est un peu moins bonne, de l'ordre de 0.001. En Figure 7.17, sont tracées des coupes de S(Q,ω) qui permettent de comparer la position en énergie du maxon avec celle du deux-rotons à P=0 et 24 bars. On voit très bien qu'à P=0 bar, l'énergie du deux-rotons est positionnée bien au delà de l'énergie du maxon, alors qu'à P=24 bars, l'énergie du deux-roton est dans le pic du

maxon. Comme on l'a vu en **7.2.2**, le poids Z_Q du maxon est plus faible à P=24 qu'à 0 bar et nous voyons ici que le poids du deux-rotons augmente. En effet, le poids du pic des excitations à une particule est transmis à celui du pic des excitations à deux particules, par des processus de décroissance d'un maxon en deux-rotons.

L'évolution des valeurs des paramètres du maxon et du roton en fonction de la pression est donnée en Figure 7.18. Avec la pression, l'énergie du maxon augmente pendant que l'énergie de deux fois l'énergie du roton diminue. L'énergie du maxon augmente jusqu'à un point d'inflexion situé à $\rho_c = 169.6$ kg/m^3, soit $P_c \simeq 21.5$ bars. Ce point d'inflexion est la marque de l'interaction du maxon avec le continuum des multi-excitations à l'énergie $2\Delta_R$. Les modèles de Glyde *et al* [26, 90] prédisent $P_c \simeq 20$ bars, une valeur proche de la notre. Il nous faudrait un point de mesure supplémentaire à P=20 bars pour avoir une meilleure précision. La position en vecteur d'onde du maxon est d'abord constante en fonction de la pression puis elle augmente mais plus faiblement que celle du roton. Pour finir, la masse effective du maxon augmente fortement entre P=10 et 24 bars ou encore la courbure du maxon diminue fortement et le maxon « s'écrase » à P=24 bars, dû aux processus de décroissance.

P (bars)	Δ_M (meV)	Q_M (Å^{-1})	μ_M	$2\Delta_R$
0	1.19658(40)	1.1073(2)	0.492(1)	1.4832(2)
0.51(2)	1.20249(60)	1.1075(3)	0.496(1)	1.4772(2)
1.02(2)	1.20802(70)	1.1072(3)	0.501(2)	1.4716(2)
2.01(2)	1.21817(70)	1.1071(3)	0.511(1)	1.4606(2)
5.01(2)	1.24225(60)	1.1089(3)	0.541(1)	1.4286(2)
10.01(2)	1.26684(60)	1.1150(3)	0.614(2)	1.3777(2)
24.08(2)	1.26623(60)	1.1336(4)	0.915(3)	1.2508(2)

Tableau 7.8: Valeurs du maximum en énergie du maxon Δ_M, du vecteur d'onde au maximum du maxon Q_M et de la masse effective du maxon μ_M avec leurs écarts types associés entre parenthèses. En dernière colonne, est également donné deux fois l'énergie du roton Δ_R.

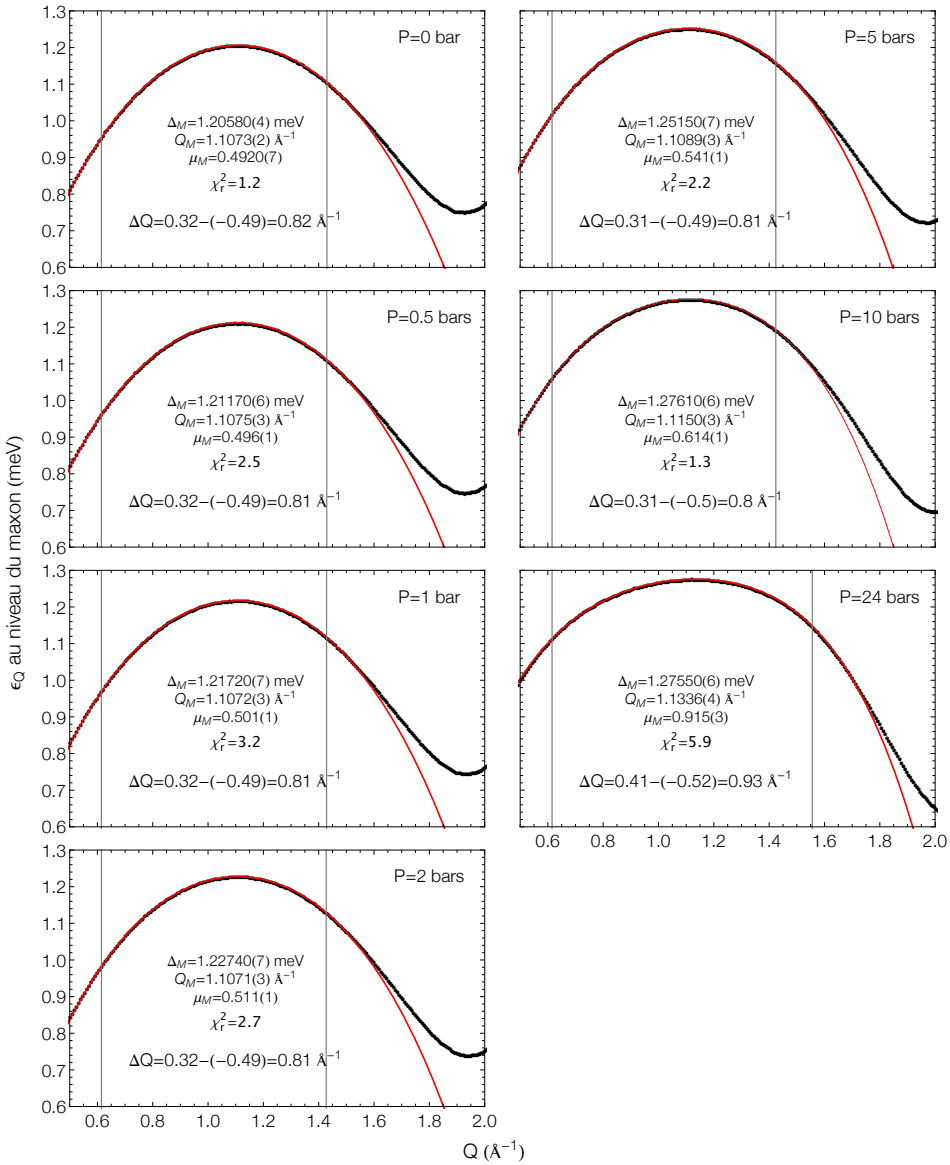


Figure 7.16: Zoom de la relation de dispersion ϵ_Q sur le maxon à différentes pressions P. La courbe rouge symbolise l'ajustement de la forme de l'équation (7.19) effectué pour une gamme en Q, ΔQ=0.81 Å^{-1} exceptée pour le dernier ajustement qui est effectuée pour ΔQ=0.93 Å^{-1} (gamme symbolisée par les deux traits verticaux gris).

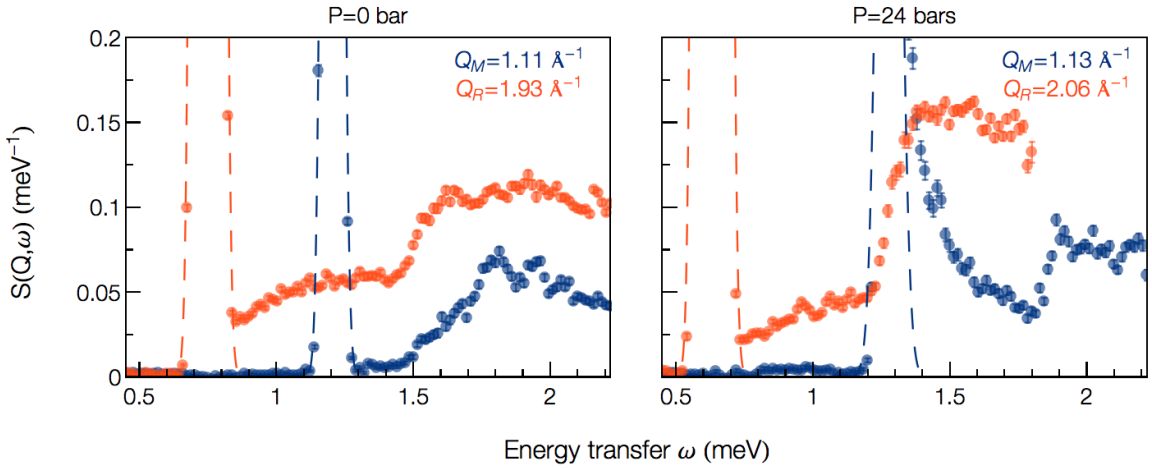


Figure 7.17: Coupes S(Q,ω) à deux vecteurs d'onde Q ; au niveau du maxon (en bleu) et au niveau du roton (en rouge), à P=0 bar (à gauche) et à P=24 bars (à droite). Les lignes pointillées sont des ajustements gaussiens des pics des excitations élémentaires (qui sont coupés).

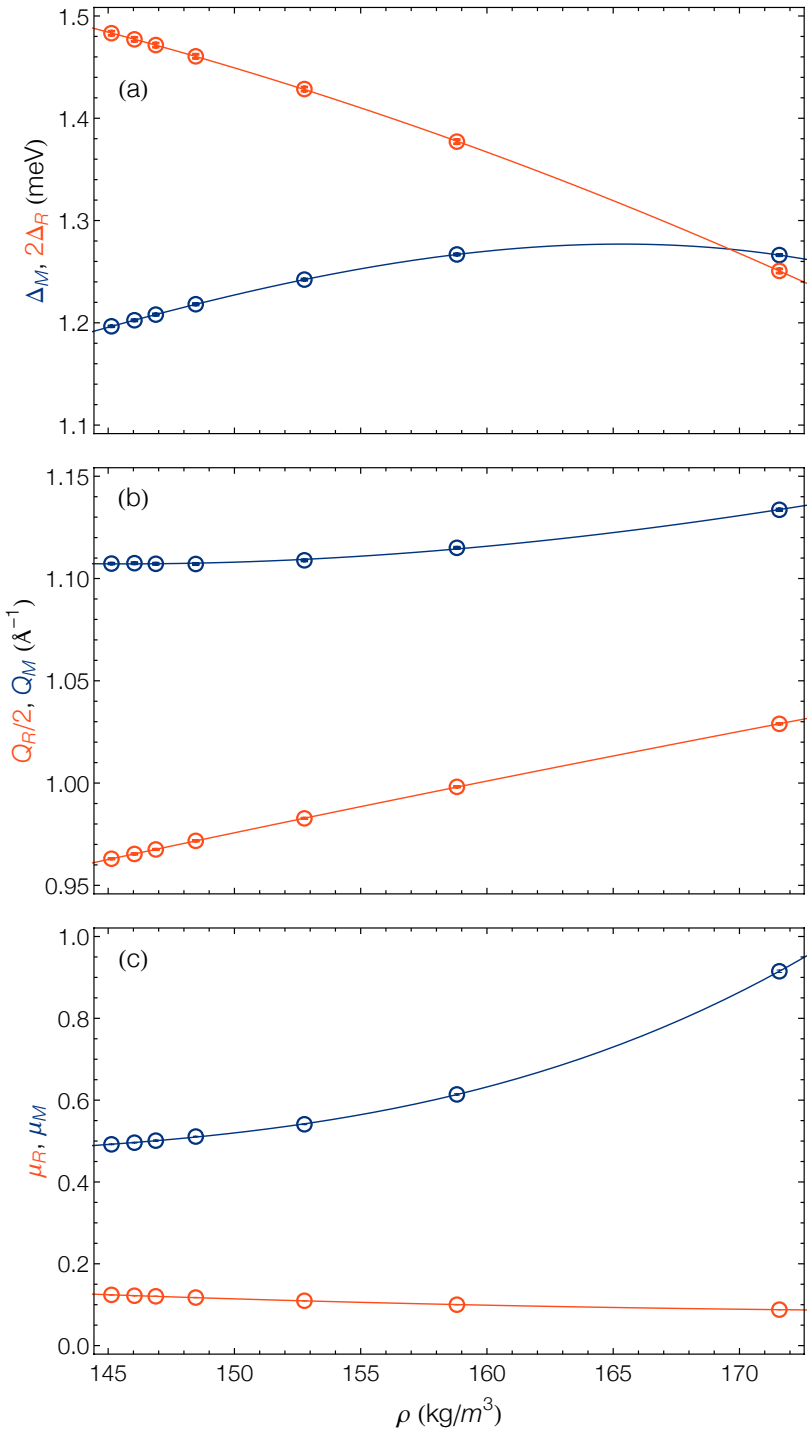


Figure 7.18: (a) Énergie du roton Δ_R multipliée par 2 et énergie du maxon Δ_M en fonction de ρ. Les lignes sont des guides pour les yeux, ce sont des fonctions de la forme quadratique pour Δ_R et cubique pour Δ_M. (b) Position du roton Q_R divisée par 2 et du maxon Q_M en fonction de ρ. Les lignes sont des guides pour les yeux, ce sont des fonctions de la forme (7.16) pour Q_R et de la forme $a\rho^{1/3} + b + c\rho^{1/6}$ pour Q_M. (c) Masse effective du roton μ_R et masse effective du maxon μ_M en fonction de ρ. Les lignes sont des guides pour les yeux, ce sont des fonctions de la forme $a\rho^{1/4} + b + c\rho^{1/8}$ pour μ_R et cubique pour μ_M.

7.7 Interactions à quatre rotons et à trois phonons

Pour finir sur l'étude des interactions entre quasi-particules, nous allons nous intéresser à leur temps de vie à P=0 bar [voir les diagrammes dans l'article de Fåk *et al* [82]]. Les interactions entre excitations qui existent à température finie induisent un temps de vie fini des excitations, qui élargit les excitations en énergie et induit aussi un décalage en énergie. Pour analyser les effets de ce temps de vie fini, nous allons comparer les données à T=0.1 K avec celles non présentées jusqu'à maintenant à T=1 K. Tout d'abord, la relation de dispersion et les valeurs du paramètres du roton ont été déterminés à T=1 K, respectivement à l'aide de l'ajustement (7.3) et de l'ajustement (7.7). La Figure 7.19 montre un zoom de la relation de dispersion au niveau du roton et donne les valeurs des paramètres du roton à T=0.1 et 1 K. Les paramètres μ_R et Q_R sont sensiblement les mêmes aux deux températures, en accord avec les mesures de Pearce *et al* [91] qui donnent ces paramètres indépendants de la température. L'énergie du roton Δ_R est très légèrement plus basse à T=1 K qu'à T=0.1 K, en accord avec les mesures de Pearse *et al* et Fåk *et al* qui montrent que l'énergie du roton diminue en fonction de la température au-dessus de T=1 K [82, 91].

Ensuite, la largeur à mi-hauteur en énergie W_Q a été extraite à T=1 K à l'aide de l'ajustement (7.3) et est comparée avec celle à T=0.1 K en Figure 7.20. Une légère augmentation de la largeur est remarquée à T=1 K, marquée principalement au niveau du roton, comme observée par Andersen *et al*, Pearce *et al* et Fåk *et al* [82, 91, 92]. L'augmentation de la largeur et la diminution de l'énergie en fonction de la température sont prédites par les théories de Landau et Khalatnikov [83], et de Bedell, Pines et Zawadowski (BPZ) [93]. Ils montrent que l'énergie et la largeur du roton sont proportionnelles à la population des rotons thermiques. La largeur des excitations dans la région du minimum du roton peut être finalement comprise en terme de processus de décroissance à quatre particules. Le roton excité par le neutron se combine à un roton thermiquement excité et décroît en deux autres rotons. A noter que Fåk *et al* [82] montrent que l'énergie du roton augmente en fonction de la température au-dessous de T=1 K, car à basse température l'énergie du roton n'est pas seulement affectée par les rotons thermiques mais aussi par l'interaction phonon-roton étudiée en **7.5**.

Enfin, nous avons tenté de calculer la largeur physique en énergie, notée Γ_Q, des excitations à T=1 K. Le phonon-maxon-roton peut être modélisé par une Lorentzienne

qui dérive rigoureusement de la fonction de Green représentant la réponse des excitations à une particule (comme montré dans l'appendice C du livre de Glyde [5]) :

$$S_1(Q,\omega) = \frac{1}{1-e^{-\omega/k_BT}}\frac{Z_Q}{\pi}\left[\frac{\Gamma_Q}{\Gamma_Q^2+[\omega-\epsilon_Q]^2} - \frac{\Gamma_Q}{\Gamma_Q^2+[\omega+\epsilon_Q]^2}\right]. \tag{7.20}$$

Pour prendre en compte la largeur instrumentale W_Q, il faut convoluer la fonction lorentzienne 7.20 à la fonction gaussienne de résolution de spectromètre. Ainsi, pour obtenir Γ_Q à T=1 K, la fonction de Voigt (convolution d'une gaussienne avec une Lorentzienne) a été utilisée comme fonction d'ajustement, dans la limite de Γ_Q faible. Les autres paramètres Z_Q, ϵ_Q et W_Q ont été déterminés au préalable par un ajustement gaussien des données à T=0.1 K. Les résultats obtenus pour Γ_Q sont donnés en Figure 7.21. Il faut faire attention ici avec l'interprétation des résultats car la largeur instrumentale W_Q est cent fois plus grande que la largeur physique Γ_Q. Néanmoins, la largeur physique obtenue au niveau du roton vaut $\Gamma_{Q_R} \simeq 0.8$ μeV, en accord avec Keller *et al* et Fåk *et al* [82, 94]. On remarque un pic assez large au niveau du phonon, observé également de manière moins bien définie par Keller *et al* [94]. Le pic est centré à $Q \simeq 0.55$ Å^{-1}, vecteur d'onde qui correspond au vecteur d'onde Q_A de disparition de la dispersion anormale à P=0 bar, déterminé en **7.4.3**. Il est ainsi sans doute lié à la dispersion anormale qui autorise la diffusion à trois particules et l'élargissement vu est peut-être lié à la décroissance d'un mode en deux phonons.

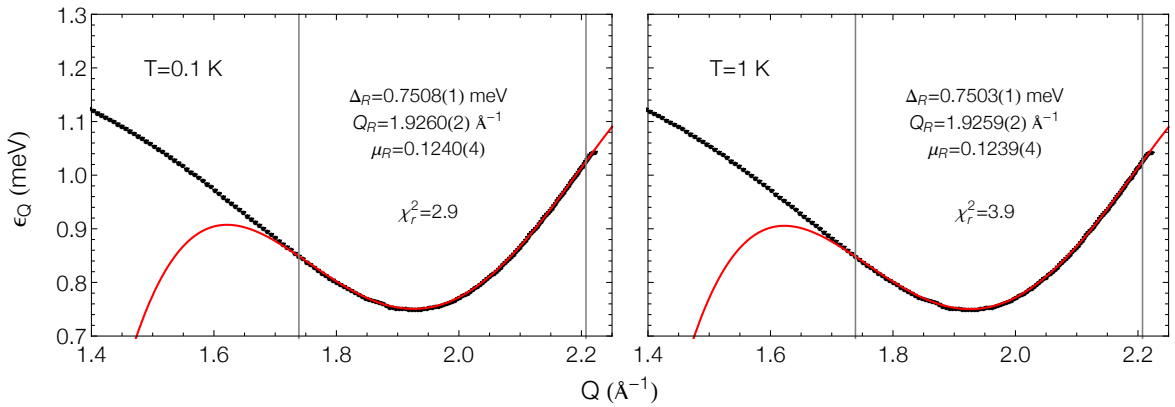


Figure 7.19: Zoom de la relation de dispersion ϵ_Q sur le roton à P=0 bar. A gauche, données à T=0.1 K et à droite, données à T=1 K. La courbe rouge symbolise l'ajustement de la forme de l'équation (7.7) effectué pour une gamme en Q, $\Delta Q = 0.28 - (-0.19) = 0.47$ Å^{-1}.

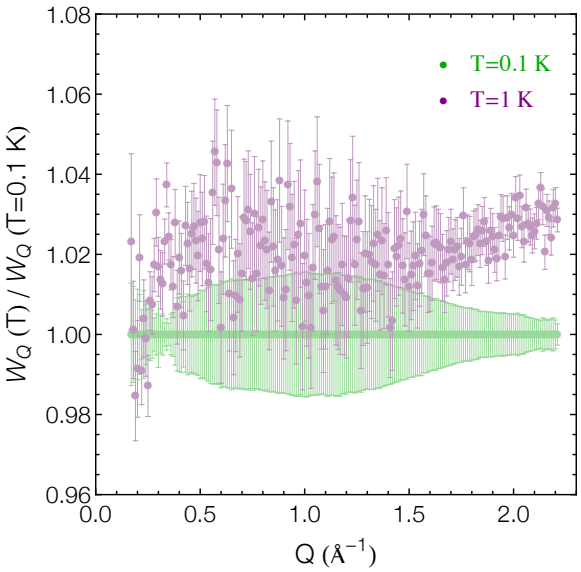


Figure 7.20: Largeur W_Q à T=0.1 et 1 K, divisée par la largeur W_Q à T=0.1 K.

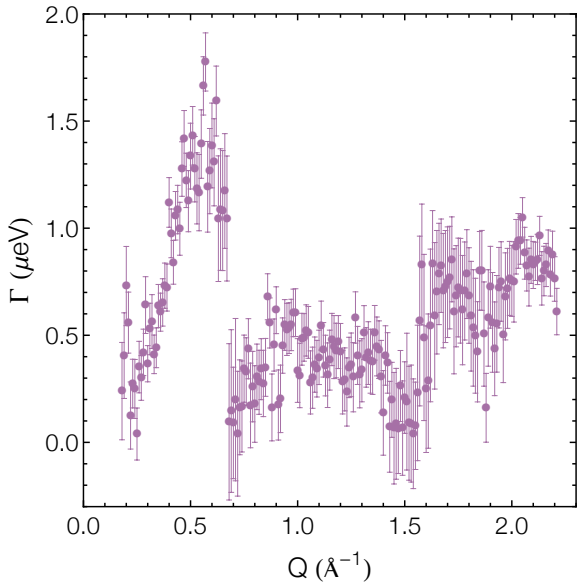


Figure 7.21: Largeur physique Γ_Q (HWHM de la Lorentzienne) à T=1 K.

7.8 Conclusions et perspectives

Grâce à une analyse détaillée des excitations élémentaires à partir de nos données expérimentales, les interactions entre quasi-particules ont pu être étudiées.

Tout d'abord, nous avons montré que l'interaction phonon-roton est répulsive avec un coefficient $A = 1.07 \pm 0.05$, à P=0 bar. Ce coefficient semble rester constant en fonction de la pression, mais il faudrait des points de mesure de pression supplémentaires pour vérifier cette tendance.

Ensuite, nous avons montré que l'interaction maxon-deux rotons à P=24 bars est forte, marquée par un élargissement de la largeur du maxon et par l'énergie du maxon qui a un point d'inflexion à $P_c \simeq 20$ bars. Cette pression de coupure pourrait être déterminée plus précisément en faisant au moins un point de mesure supplémentaire, à P=20 bars par exemple. Pour caractériser l'interaction, on pourrait utiliser la théorie de champ moyen de Zawadowski, Ruvalds et Solana (ZRS) [22, 23], qui est un traitement simplifié d'un problème très complexe à N corps. Cette théorie a été principalement utilisée pour analyser l'hybridation à l'origine de la forme de la relation de dispersion au delà de 2.3 Å^{-1}, qui ne va pas rejoindre l'énergie de recul, mais celle du plateau de Pitaevskii [24–26]. Nous pourrions l'utiliser pour déterminer au niveau du maxon, à P=24 bars, le paramètre g_3 représentant la force du couplage entre les excitations à une particule et les excitations à deux particules.

Enfin, nous avons comparé la largeur physique des excitations et les valeurs du paramètres du roton à T=0 et 1 K, et trouvé une largeur plus grande et une énergie plus petite à T=1 K qu'à T=0.1 K, en accord avec des mesures précédentes et expliqué théoriquement par l'interaction à quatre rotons. Nous avons également déterminé la largeur des excitations à T=1 K et trouvé un pic au niveau du phonon, déjà observé par des mesures d'écho de spin, mais de manière pas très bien définie [94]. Ce pic provient sans doute de l'interaction à trois phonons. De nouvelles mesures d'écho de spin, où la résolution inférieure au μeV permet de déterminer directement la largeur physique du phonon, seraient nécessaires. On pourrait également faire une description théorique de l'interaction à trois phonons à partir du travail de Fåk *et al* [82].

Chapitre 8

Dynamique de l'^{3}He liquide normal

8.1 Introduction

Dans le dernier chapitre de cette thèse, nous allons nous intéresser au deuxième isotope stable de l'hélium, l'^{3}He. Les atomes d'^{3}He sont des fermions et n'obéissent donc pas à la même statistique quantique que les atomes d'^{4}He qui sont des bosons. Ils présentent donc des comportements différents. Pourtant, en 1981, Pines fait état que le mode phonon-roton de l'^{4}He liquide et le zéro-son de l'^{3}He liquide ont pour origine commune les interactions fortes qui dominent devant la statistique quantique [17]. Dans l'analyse de nos résultats expérimentaux, nous nous appuierons sur un développement récent effectué par Krotscheck et ses collaborateurs [3] qui applique aux fermions, la théorie dynamique à N-corps. Cette théorie fournit en effet des prédictions précises du facteur de structure dynamique de l'^{3}He appelant des nouvelles données de neutrons de précision et de résolution similaires. Des résultats remarquables ont été obtenus dans l'^{3}He bidimensionnel juste avant cette thèse : un mode similaire au phonon-maxon-roton de l'^{4}He superfluide a été observé pour la première fois dans un liquide de Fermi, dans les expériences de diffusion inélastique de neutrons [6]. L'objectif ici est de refaire la même étude dans l'^{3}He liquide massif. Pour cela, de nouvelles données ont été acquises durant cette thèse. Après avoir décrit la procédure expérimentale et le traitement, nous présenterons les résultats préliminaires et comparerons ces derniers à la théorie.

8.2 Description de l'expérience

De nouvelles mesures du facteur de structure dynamique de l'^{3}He liquide massif ont été effectuées avec le spectromètre temps de vol IN5 à une pression P=0.83 bars. Comme

pour nos mesures dans l'^{4}He superfluide, une longueur d'onde incidente $\lambda = 4.8$ Å ($E_i = 3.55$ meV) a été choisie, car la partie la plus significative du spectre des excitations est accessible avec cette longueur d'onde qui fournit des données de grande qualité, avec une résolution en énergie, au voisinage de l'énergie de transfert élastique, de 0.086 meV. Pour déterminer des régions de plus haute énergie, aussi prédites par la théorie, des mesures complémentaires ont été effectuées à une plus petite longueur d'onde, $\lambda = 3$ Å ($E_i = 9$ meV), avec une résolution de 0.35 meV. Ces expériences sont difficiles à cause de la grande section efficace d'absorption de l'^{3}He [voir le Tableau 2.1]. Pour obtenir une statistique suffisante, environ 24 heures de mesure ont été nécessaires pour chaque longueur d'onde, pour la cellule vide et pour la cellule avec l'hélium. Les mesures étaient divisées en des enregistrements courts pour éviter les erreurs systématiques provenant de changements expérimentaux ou des conditions instrumentales. A cause des contraintes thermiques associées aux très basses températures, et aux contraintes neutroniques dues à l'absorption, il a fallu construire une cellule ^{3}He sophistiquée. Cette dernière a été montée dans un réfrigérateur à dilution. Le montage a permis de faire des mesures à très basses températures, en dessous de T=100 mK, une température bien inférieure à la température de Fermi d'environ 3.3 K et aussi plus petite que l'énergie des excitations, le zéro-son et le paramagnon. Les résultats peuvent alors être considérés comme correspondre aux propriétés à température nulle de l'^{3}He liquide normal. Nous allons décrire ci-dessous la cellule puis son montage dans la dilution et l'installation sur l'instrument IN5.

8.3 La cellule expérimentale pour l'^{3}He

8.3.1 Conception

La conception de la cellule expérimentale utilisée pour les expériences neutroniques sur l'^{3}He liquide tient compte de nombreuses contraintes neutroniques, mécaniques et thermiques. Sur le plan de la neutronique, la forte section efficace d'absorption de l'^{3}He (à E_i=3.55 meV, la longueur de pénétration est estimée à environ 40 μm) se traduit par un premier choix concernant la géométrie de diffusion, les mesures pouvant être réalisées soit en transmission, soit en réflexion. La première méthode est particulièrement adaptée aux mesures des excitations à faible vecteur d'onde [34], alors que la deuxième donne surtout accès à des vecteurs d'onde élevés [32]. Nous avons choisi cette deuxième solution afin d'avoir accès, grâce à la grande flexibilité de l'instrument IN5, à une gamme étendue à la fois en énergie et en vecteur d'onde.

La deuxième contrainte neutronique vient de la faiblesse du signal attendu, car les neutrons non-absorbés représentent une très faible proportion du faisceau incident, typiquement 10^{-4}. Il est donc important de maîtriser le bruit de fond. Cela implique en premier lieu que la fenêtre d'entrée de la cellule soit faite d'un matériau transparent aux neutrons (dans notre cas de l'aluminium), et d'autre part que les matériaux placés derrière l'^{3}He liquide mais dans la trajectoire du faisceau de neutrons (notamment le fritté d'argent décrit plus loin, nécessaire à la cryogénie) soient convenablement masqués. En effet, leur contribution au bruit de fond serait bien trop importante. Pour cela, nous avons masqué les parties « sales » de la cellule avec des plaques de cadmium de 0.5 mm d'épaisseur, qui absorbent les neutrons indésirables. Une description détaillée du montage est fournie plus loin.

Un troisième élément concernant la neutronique est l'optimisation de l'angle formé par la cellule avec le faisceau. Ce dernier a une section rectangulaire, avec une hauteur de 50 mm et une largeur de 15 mm au niveau de l'échantillon. La partie active de la cellule (celle où l'^{3}He est dans le flux de neutrons) a pour dimensions 40 mm de hauteur et de 71 mm de largeur. Cette dernière valeur, comparée aux 15 mm du faisceau, conduit à un angle minimal de l'ordre de 12° pour l'orientation de la cellule par rapport au faisceau. L'angle utilisé lors de l'expérience, déterminé par la méthode décrite plus loin, est de 15.5°.

La mesure des excitations au voisinage de l'état fondamental implique de refroidir le système à des températures T telles que l'énergie thermique k_BT soit très inférieure à l'énergie des excitations. Dans le cas de l'^{3}He, des températures inférieures à 100 mK sont appropriées. Le réfrigérateur à dilution utilisé lors des mesures fournit des températures inférieures à 50 mK, mais il faut tenir compte de plusieurs effets thermiques pour pouvoir garantir que l'^{3}He liquide est en effet à la température souhaitée. D'une part, il faut que le temps de refroidissement soit court devant le temps d'accès au faisceau neutronique disponible, et d'autre part, on souhaite que les gradients thermiques causés par les entrées de chaleur soient faibles devant la température.

On peut calculer la réponse thermique de la cellule en tenant compte de la dépendance en température de l'ensemble des paramètres. On considère ci-dessous le schéma thermique suivant : l'échantillon de capacité calorifique C est refroidi par un réfrigérateur à dilution dont la puissance en fonction de la température est connue. En termes de circuit thermique équivalent, le réfrigérateur à dilution est équivalent à une résistance métallique de résistance électrique de l'ordre de 1 $\mu\Omega$ [95], connecté à un bain thermique à la température T=0.

L'échantillon est en contact thermique avec le réfrigérateur à travers la résistance thermique R_m des pièces métalliques en cuivre, en série avec la résistance thermique de Kapitza R_K à l'interface entre le métal et l'^{3}He liquide. Le temps typique de refroidissement dépend de la capacité calorifique du système et des résistances thermiques, il est donné par l'expression $\tau \approx RC$ où $R=R_m + R_K$. Les gradients thermiques dépendent du couplage thermique et des entrées de chaleur : $\Delta T \approx RP$, où P est la puissance parasite.

La capacité calorifique de l'échantillon d'^{3}He d'un volume d'environ 14 cm^3 est relativement importante: pour un volume molaire de 36 cm^3, avec une chaleur spécifique molaire $C_V \approx 3RT$, la capacité calorifique est d'environ 0.1 J/K à 0.1 K. La constante de temps de refroidissement τ, estimée en utilisant la résistance thermique de Kapitza correspondant à une surface d'échange thermique d'une dizaine de cm^2 serait de 17 hs à 100 mK, ce qui est clairement inacceptable. Nous avons donc utilisé des échangeurs permettant de réduire considérablement la résistance thermique de Kapitza [96].

Les échangeurs sont réalisés en poudre d'argent frittée. La masse totale est de 11.2 g, et la surface correspondante est de l'ordre de 10 m^2. Leur résistance thermique est $R_K \approx 100/T$ (K^2/W). Pour des températures inférieures à 100 mK, $\tau \approx RC$ est indépendant de la température et de l'ordre de 15 mn, donc bien adapté à l'expérience.

Mais cela ne résout qu'une partie du problème thermique : il faut en effet que les gradients thermiques soient faibles. La puissance dissipée par les neutrons dans l'^{3}He a pour origine l'absorption des neutrons par l'^{3}He suivant la réaction $^3He + {}^1n \rightarrow {}^1_1H + {}^3_1H$ + 765 keV. Le flux neutronique de IN5 est très important, il est de l'ordre de 7×10^5 neutrons/cm^2/s, ce qui fournit une puissance de 1 μW. Ceci est comparable à la puissance frigorifique du réfrigérateur à dilution à $T \approx 10$ mK. Le faisceau incident apporte également de la chaleur sous la forme de rayonnement gamma provenant du réacteur ou des divers éléments de l'instrument. Ces gammas interagissent principalement avec les parties métalliques de la cellule. Cet apport peut être mesuré directement en vérifiant l'élévation de la température de la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution lorsque l'on ouvre le faisceau neutronique. Cet effet, qui était largement dominant dans les expériences réalisées antérieurement sur l'instrument IN6, n'est pas visible sur IN5. La puissance parasite due aux gammas est donc nettement inférieure à 1 μW dans notre expérience.

Les gradients thermiques pouvant affecter nos mesures proviennent de l'élévation de température causée par une puissance de l'ordre de 1 μW traversant l'^{3}He liquide, l'interface liquide-solide, les pièces métalliques en cuivre assurant la liaison thermique avec le réfrigérateur, et la résistance équivalente du réfrigérateur. Pour que l'écart de

température reste inférieur à 0.1 K, la résistance thermique totale doit être inférieure à 10^5 K/W.

La conduction thermique dans l'^{3}He liquide est relativement mauvaise, de l'ordre de 5×10^{-3} W/Km à des températures supérieures à 100 mK, mais elle augmente avec l'inverse de la température en refroidissant en dessous de cette valeur: $\kappa_{th} = 3.6\times10^{-4}/\mathrm{T}$ (W/m). Le découplage thermique est $\Delta T = \frac{P}{\kappa_{th}}\frac{L}{A}$, où L est la longueur sur laquelle la chaleur est conduite, et A la section correspondante. On voit aisément qu'il est important de garder la source froide (dans ce cas le fritté d'argent) proche de la surface de l'^{3}He où les neutrons sont absorbés : pour une épaisseur de 2 mm, une largeur de 5 cm et une distance de 5 cm, on atteint facilement des gradients supérieurs à 0.1 K. Nous avons donc choisi une géométrie originale où le fritté d'argent est placé dans des chicanes qui restent très proches (quelques millimètres) de la surface de la cellule, tout en étant masqué par des plaques de cadmium.

La résistance de Kapitza de $R_K \approx 100/T$ (K^2/W) avec une puissance de 1 μW donne un saut de température négligeable à 100 mK; celui-ci ne devient comparable à la température elle-même qu'en dessous de 10 mK. Quant aux gradients dans les pièces en cuivre, nous avons fait en sorte de les rendre négligeables par l'utilisation de cuivre OFHC massif, de dimensions choisies pour que la résistance électrique à basse température soit faible devant la résistance équivalente de la dilution. Ceci est également valable pour les résistances des contacts vissés. Une description des techniques correspondantes est donnée dans la référence [95].

Ainsi, l'échantillon d'^{3}He sera bien thermalisé à la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution pour des températures supérieures à 10 mK. La température de l'^{3}He sera essentiellement la température de base du réfrigérateur à dilution avec une puissance appliquée de l'ordre de 1 μW provenant de l'absorption des neutrons.

Cette étude thermique nous permet de garantir que l'échantillon d'^{3}He est effectivement à des températures inférieures à 100 mK au cours des expériences.

8.3.2 Réalisation

Les constituants de la cellule sont [voir les photos des Figure 8.1 et 8.3 et le schéma de la Figure 8.4] :

1. Le couvercle en aluminium.

   Le couvercle est la partie traversée par le faisceau de neutrons. Il est réalisé en aluminium 1050 A (A5), souvent choisi dans les expériences neutroniques car il est quasi-transparent pour les neutrons. Le couvercle doit être très fin pour minimiser la

diffusion élastique incohérente. En même temps, il doit être assez épais pour résister à la pression de l'hélium en particulier lors de la condensation. En effet, comme on fait de la diffusion de surface, il faut s'assurer que la cellule soit entièrement illuminée pour maximiser le signal et donc qu'elle ne soit pas bombée. L'épaisseur choisie est ainsi de 1 mm.

Des tests ont été effectués sous pression, à chaud, en mettant 1.5 bars dans la cellule placée dans une enceinte sous vide. Le couvercle s'est bombé de 1 mm, ce qui est satisfaisant. Nous avons ensuite redressé le couvercle mécaniquement, ce qui a contribué à sa raideur par écrouissage. Par la suite, la différence de pression a toujours été maintenue à des valeurs inférieures à 1 bar.

2. Le corps en cuivre.

   Le corps de la cellule est réalisé en cuivre OFHC, ce qui permet d'assurer la bonne conductivité thermique nécessaire au refroidissement de la cellule et de l'hélium. Le corps de la cellule présente un emplacement permettant de poser un joint en indium assurant l'étanchéité avec le couvercle. Après fermeture de la cellule en serrant les vis pour écraser l'indium, un test de fuites a été effectué au spectromètre de masses. Un taux de fuite résiduel de 5×10^{-10} mbars l/s a été mesuré, ce qui est très satisfaisant.

3. Le fritté d'argent

   Neuf plaques de poudre d'agent C8 [97] de masse totale 11.2 g ont été frittées à une température de 210° C. On peut voir en Figure 8.2 la taille des grains après frittage. Les plaques ont été ensuite collées à la poudre d'argent sur le corps en cuivre préalablement argenté, à une température de 200° C. La bonne tenue des frittés à des sollicitations mécaniques a été vérifiée.

4. Les plaques de cadmium internes

   Des plaques de cadmium de 0.5 mm d'épaisseur ont été collées à l'intérieur de la cellule, masquant les frittés d'argent. Elles sont positionnées, par rapport au faisceau incident, de telle manière qu'elles absorbent tous les neutrons transmis par le couvercle [voir le schéma de la Figure 8.4]. Les plaques ont été collées avec de la résine Stycast 2850 FT, en prenant soin de ne pas laisser de traces de colle dans la région vue par les neutrons.

5. Les plaques de cadmium externes

   Des plaques de cadmium de 0.5 mm d'épaisseur ont également été utilisées à l'extérieur de la cellule, masquant les vis en acier inoxydable et les pièces en cuivre. Elles ont été fixées à la colle néoprène, en prenant soin d'éviter de laisser des traces de colle pouvant se trouver dans le faisceau, et en s'assurant que le collage porte sur toute la surface du cadmium.

6. La pièce de raccord à la dilution

   Un support en cuivre OFHC massif a été réalisé afin d'assurer une liaison mécanique rigide et un contact thermique optimisé avec la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution. Six vis M4 en acier inoxydable assurent le contact thermique entre cette pièce et la cellule. Une vis M8 en laiton assure la fixation de la pièce de raccord au fond en cuivre de la boîte à mélange.

7. Les capillaires de remplissage

   Le remplissage de l'hélium dans la cellule peut s'effectuer par deux circuits indépendants, pour des questions de sécurité : en cas de bouchage, il est possible de récupérer l'^{3}He par le deuxième circuit. Deux capillaires de diamètre 1-1.5 mm ont été brasés sur le corps de la cellule. Ensuite, ces derniers ont été soudés a l'étain sur les capillaires de 0.5-1 mm de la dilution (un capillaire est visible sur la Figure 8.1). Ces capillaires ont été thermalisés sur les différents étages du réfrigérateur à dilution, au moyen de plots en cuivre autour desquels plusieurs tours de capillaire sont enroulés et soudés.

8. Tests de fuite

   L'ensemble a été testé à froid, en premier lieu dans de l'azote liquide. On a pu observer que l'azote cesse de bouillir rapidement après avoir plongé la cellule, du fait de la grande conductivité thermique du cuivre et de l'aluminium employés. L'étanchéité étant vérifiée après choc thermique, nous avons monté l'ensemble sur le réfrigérateur à dilution, où de nouveaux test de fuites ont été réalisés. Dans le cas des mesures sur l'^{3}He, les exigences techniques d'étanchéité seraient moins sévères que dans le cas décrit précédemment de l'^{4}He superfluide sous pression, mais le prix élevé de l'^{3}He rend des tests minutieux indispensables.

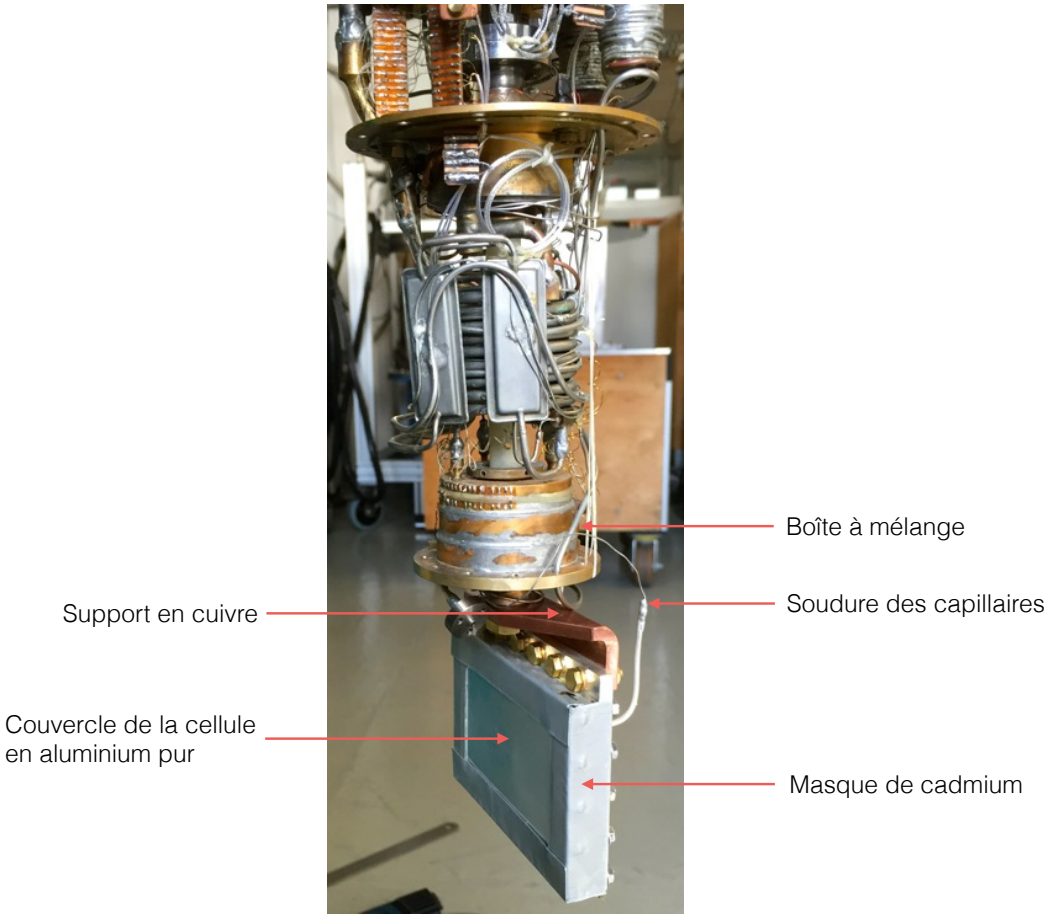


Figure 8.1: Photo de la cellule montée sur la dilution.

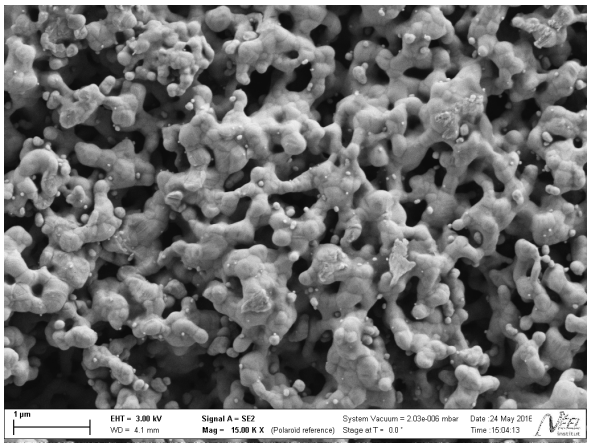


Figure 8.2: Image MEB du fritté d'argent de poudre C8 [97], obtenue au CNRS par Olivier Tissot et Sébastien Triqueneaux.

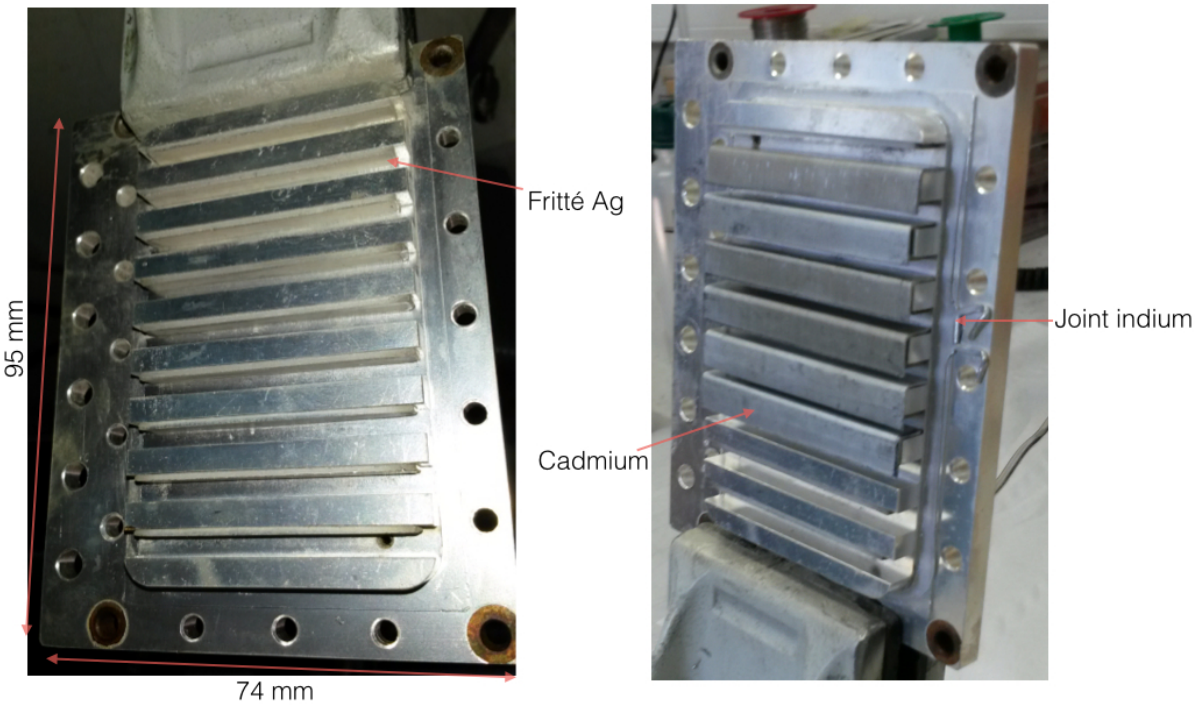


Figure 8.3: Photos du corps de la cellule en cuivre argenté avec à gauche une vue sur les plaques de fritté d'argent et à droite une vue sur les plaques de cadmium.

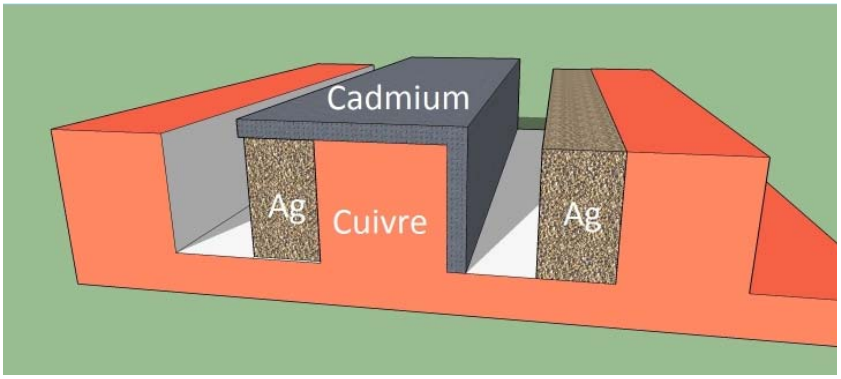


Figure 8.4: Les plaques de cadmium masquent le fritté d'argent et le fond de la cellule en cuivre pour les neutrons incidents venant du côté droit de l'image. Dans cette configuration, l'^{3}He reste très proche des frittés d'argent.

8.3.3 Orientation par rapport au faisceau incident

Lors de la mise en place de la dilution dans la chambre temps de vol, il a fallu s'assurer de la bonne orientation de la cellule par rapport au faisceau incident afin que les neutrons illuminent toute la cellule. Avec une largeur de faisceau de 15 mm, et une longueur de cellule visible par les neutrons de 71 mm, l'angle entre le faisceau et la cellule doit être $\alpha = \arcsin \frac{15}{71} = 12.2°$ [voir le schéma de la Figure 8.5]. En réalité, une partie de la cellule n'est pas illuminée car les bords du couvercle ont été recouverts de cadmium [voir la photo de la Figure 8.1]. Cet écrantage par le cadmium a un effet négligeable sur l'intensité diffusée [voir le calcul en annexe C], sauf pour les petits angles, qui ne sont pas accessibles. Pour sonder les petits angles (vecteurs d'onde), les mesures neutroniques précédentes avaient été faites en transmission [34]. Expérimentalement, il n'a pas été facile de régler l'angle de 12.2° : une caméra à scintillation a d'abord été utilisée pour aligner la cellule dans le faisceau, puis le cryostat a été tourné d'un angle d'environ 12°, en utilisant comme repère les trous de vis sur le cryostat [voir les photos de la Figure 8.6].

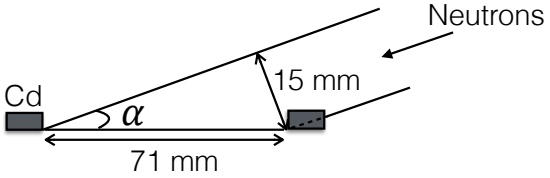


Figure 8.5: Angle α de la cellule par rapport au faisceau de neutrons incident.

Figure 8.6: A gauche, photo de l'image de la caméra lorsque le faisceau est aligné avec la cellule. La largeur de l'intensité lumineuse est alors la plus grande. A droite, photo du repère que l'on a effectué sur le cryostat grâce aux trous de vis.

8.3.4 Condensation de l'hélium

L'^{3}He utilisé lors de ces mesures est d'une grande pureté, meilleure que 99,99% (pureté du gaz à l'origine). En effet, le gaz a été purifié au préalable par plusieurs cycles d'adsorption sur des frittés de très grande surface à des températures de l'ordre de quelques mK. La condensation de l'^{3}He a été faite pendant la condensation du mélange de la dilution. Pour connaître la procédure de condensation, se référer à la thèse de Valérie Goudon [98] et voir le schéma de la Figure 8.7. Le volume disponible pour l'^{3}He liquide dans la cellule est de 13.5 cm^3. Le volume molaire de l'^{3}He liquide étant de 36 cm^3/mol et son volume molaire de gaz à température ambiante de 24 l/mol, un volume de gaz d'environ 9 litres à la pression de 1 bar est nécessaire pour remplir la cellule de liquide à basses températures. La pression initiale dans la réserve d'^{3}He pur de 76 litres était de 0.946 bars et la pression après condensation de 0.826 bars. Ainsi, 0.120 bars de gaz ont été condensés, soit environ 9.1 litres, confirmant que la cellule a bien été entièrement remplie. Les mesures ont été faites sous une faible pression de 0.83 bars, pression d'équilibre avec le gaz de la réserve.

La pressurisation de la cellule est réalisée avec un dipstick, c'est à dire un adsorbeur à charbon actif plongé dans un vase d'^{4}He. La pression appliquée est la même que celle de la réserve une fois la cellule pleine. Cela permet de maintenir la réserve ouverte pour

qu'elle serve de réservoir tampon comme sécurité en cas de réchauffement accidentel de l'expérience.

Pour mesurer la pression avec précision, deux jauges ont été utilisées : un Baratron MKS avec une tête de mesure de 100 Torrs qui sert à vérifier le bon pompage de la cellule et le début de la condensation, et une jauge haute pression Digiquartz 0-60 bars dont la précision absolue est de 6 mbars.

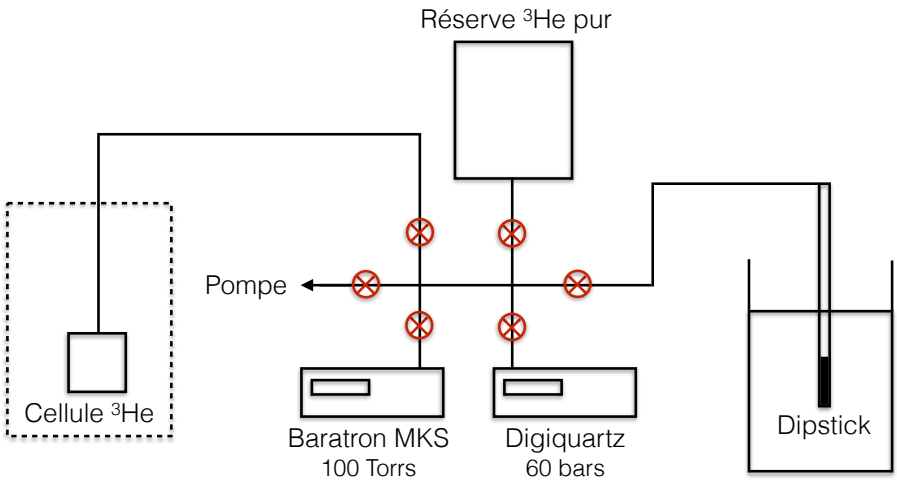


Figure 8.7: Schéma du circuit ^{3}He permettant le remplissage de la cellule puis sa pressurisation.

8.4 Traitement des données expérimentales

Les données ont été corrigées avec les routines standard de Lamp [53]. Elles ont été normalisées au taux de comptage du moniteur et à la diffusion incohérente du vanadium. La correction de l'efficacité des détecteurs qui varie suivant l'énergie a été effectuée suivant 4.3.2. La transformation du temps de vol en énergie de transfert à été effectuée comme en 4.3.3, mais sans correction apportée sur l'énergie. Différents angles ont été regroupés en des vecteurs d'onde Q constants avec un pas de 0.02 Å^{-1}. Les autres corrections spécifiques à la nouvelle cellule et à l'^{3}He sont détaillées ci-dessous.

8.4.1 Diffusion de la cellule vide

Comme pour la cellule vide utilisée pour les mesures de l'^{4}He, celle utilisée ici pour les mesures de l'^{3}He donne un signal essentiellement incohérent à $\lambda = 4.8$ Å. En revanche, il

n'y a pas seulement l'aluminium du couvercle qui diffuse mais également le cadmium à l'avant et au fond de la cellule, et ce dernier a une section efficace incohérente grande [voir le Tableau 2.1]. Le signal de diffusion est donc plus important. A $\lambda = 3$ Å, de la diffusion cohérente est aussi observée [voir la Figure 8.8]. Il y a des pics de Bragg qui viennent de l'aluminium et d'autres du cadmium. A noter que l'on ne voit pas de signal dû au cuivre (des vis et du corps de la cellule), ce qui montre qu'il a été bien masqué par le cadmium. Enfin, le signal à bas vecteur d'onde de transfert Q provient probablement de la rediffusion des pics de Bragg sur les écrans du cryostat.

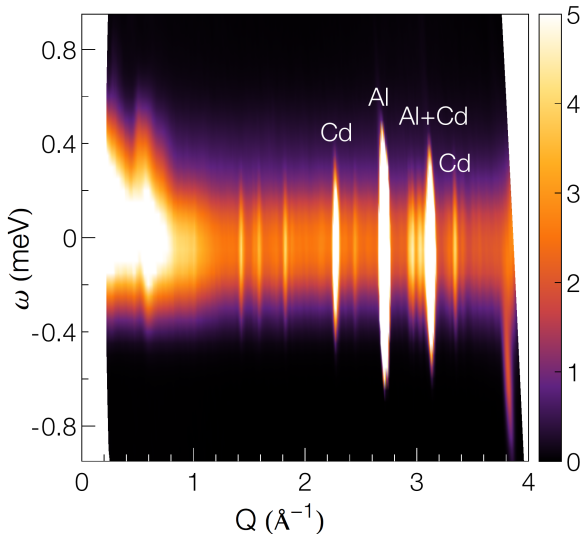


Figure 8.8: Spectre S(Q,ω) de la cellule vide à $\lambda = 3$ Å. Sont indiquées les positions des pics de Bragg, du cadmium et de l'aluminium.

8.4.2 Lissage de la cellule vide

Le spectre de diffusion de la la cellule vide représenté ci-dessus en 2D montre une très forte intensité au niveau du pic élastique. Un faible signal est aussi présent en dehors du pic élastique dû principalement au bruit électronique, non visible avec l'échelle de couleur de la figure ci-dessus. Ce dernier n'est pas négligeable car, dû à la faible diffusion de l'^{3}He, il est du même ordre de grandeur que le signal de l'^{3}He. En revanche, ce bruit de fond n'a pas de structure. Le spectre de diffusion de la cellule vide a donc été lissé pour limiter sa contribution à l'erreur statistique dans les données soustraites de la cellule vide [voir la Figure 8.9]. Le lissage de la cellule vide a été effectué en convoluant par une gaussienne les données pour chaque canal, excepté au niveau du pic élastique centré

au canal 226, pour ne pas élargir ce dernier. On a pris soin aussi de lisser avec une largeur gaussienne plus petite la structure situé au canal 335 qui est réelle et provient des neutrons rapides produits par la fission de l'uranium du moniteur. Ces neutrons rapides ne voient pas la cellule, donc il suffit de soustraire la cellule vide pour enlever leur signal. On remarque que les données sont trop lissées pour les premiers canaux de 1 à 100, mais cette partie du spectre ne nous intéresse pas. En effet, à notre très basse température de mesure, l'^{3}He ne donne un signal que du côté Stokes, c'est-à-dire au delà du canal 226.

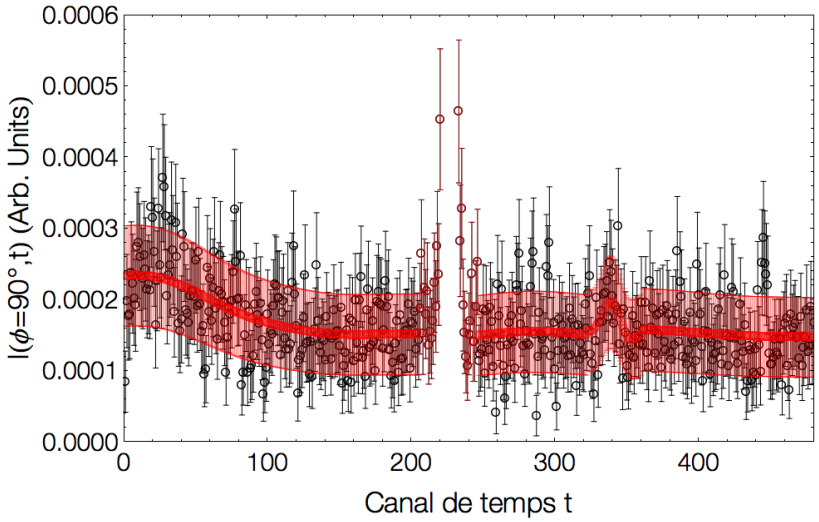


Figure 8.9: Intensité S(ϕ,t) de la cellule vide avant (en noir) et après lissage (en rouge) pour un angle de diffusion $\phi = 90$ °, en fonction du canal de temps t, à $\lambda = 4.8$ Å.

8.4.3 Correction de l'atténuation

Le faisceau de neutrons incidents est fortement atténué dû à la très grande section efficace d'absorption des neutrons par l'^{3}He. L'atténuation dépend de l'épaisseur traversée par les neutrons dans l'échantillon, qui varie suivant l'angle de diffusion [voir le calcul de cette épaisseur en Annexe D pour une plaque en géométrie réflexion]. Elle est très grande à bas angles de diffusion. Cette atténuation a été corrigée avec une routine de Lamp. Plusieurs paramètres sont à renseigner dans cette routine. Le premier est l'orientation exacte de la cellule par rapport au faisceau incident. Comme nous l'avons vu en **8.3.3**, l'angle qui permet d'illuminer toute la cellule est de 12.2°. Les spectres S(Q,ω) ont révélé que l'intensité était coupée à environ 15.5 °. Les autres paramètres à renseigner dans la routine sont : les sections efficaces d'absorption et de diffusion en barn, données dans le

Tableau 2.1, la masse volumique de l'^{3}He, $\rho = 0.083$ g/cm^3, sa masse molaire de 3.016 g/mol et l'épaisseur de la cellule.

8.4.4 Normalisation

Pour comparer quantitativement nos données à celles de la théorie, il est nécessaire d'obtenir le facteur de structure dynamique en unités absolues. Pour cela, nos données ont été normalisées en les ajustant avec les données neutroniques de Glyde *et al* [34] [voir la Figure 8.10].

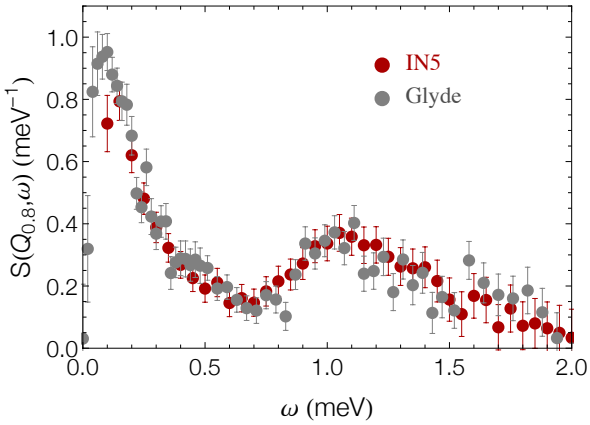


Figure 8.10: S(Q,ω) en unités absolues de l'^{3}He liquide à Q constant, $Q_{0.8} = 0.8$ Å^{-1}, en fonction de ω. Représentation de nos données IN5 et des données de Glyde *et al* [34].

8.5 Résultats préliminaires

8.5.1 Carte du facteur de structure dynamique de l'^{3}He liquide normal

La Figure 8.11 montre le facteur de structure dynamique de l'^{3}He liquide mesuré en combinant les résultats à deux longueurs d'onde, $\lambda = 4.8$ et 3 Å. La présence du très grand pic élastique de la cellule rend les données inexploitables en dessous de 0.1 meV. De plus, à cause de l'angle effectif de la cellule par rapport au faisceau incident de 15.5 °, les données ne sont pas traitables en dessous de Q=0.4 Å^{-1}. En revanche, nous disposons d'une très bonne qualité de données jusqu'à $\omega \simeq 5$ meV et $Q \simeq 3$ Å^{-1}. Les données sont néanmoins plus bruitées que celles de l'^{4}He superfluide, dû au faible signal de l'^{3}He, causé par la très grande absorption des neutrons par l'^{3}He.

A bas vecteur d'onde, jusqu'à $Q \simeq 1.2$ Å^{-1}, nous retrouvons de manière très bien définie les modes zéro-son et paramagnon décrits dans le chapitre **1**. Ces structures ont déjà été observées et analysées dans les expériences précédentes de diffusion inélastique de neutrons [32–35]. Nos données étendent la région accessible en vecteur d'onde et en énergie par rapport aux données précédentes [voir la Figure 8.12]. Ces dernières ont été essentiellement discutées jusqu'à Q=1.2 Å^{-1}, principalement parce que c'était la seule région du spectre où les théories étaient disponibles et fiables. Des mesures inélastiques de rayons-X ont également été réalisées récemment [99, 100]. Les résultats des rayons-X sont surtout utiles à fort vecteur d'onde et forte énergie, du fait de leur résolution instrumentale limitée à 1.58 meV. Les neutrons restent à priori l'outil le plus efficace d'étude des excitations dans les fluides quantiques.

Les mesures neutroniques antérieures [32] montraient une région de forte intensité à un vecteur d'onde $Q \simeq 1.8$ Å^{-1} et à une énergie $\omega \simeq 0.8$ meV, suggérant l'apparition d'une excitation à des vecteurs d'onde atomiques [voir la Figure 8.12]. Nos nouvelles données sur IN5, couvrant une plus grande région en énergie et en vecteur d'onde, montrent clairement un mode très fort présentant un minimum similaire au roton de l'^{4}He, à l'intérieur de la bande particule-trou. Dans l'^{3}He bidimensionnel, un mode similaire au roton à également été observé récemment, en dehors de la bande particule-trou [6]. Le résultat remarquable dans l'^{3}He massif est que ce mode existe de manière très bien définie, à l'intérieur même de la bande particule-trou, comme le paramagnon.

Au dessus de $Q \simeq 2.2$ Å^{-1}, un prolongement de la branche de rotons est observé. Cette branche présente une dispersion forte, et le pic d'intensité à haute énergie tend progressivement vers l'énergie attendue pour les excitations des atomes libres d'^{3}He, $E_r = \frac{\hbar^2 Q^2}{2M_3}$, avec $M_3 = 3.01603u = 5.00824 \times 10^{-27}$ kg la masse de l'atome d'^{3}He. Contrairement à l'^{4}He, cette branche est relativement étroite et démarre à plus bas vecteur d'onde dû à la plus faible densité de l'^{3}He.

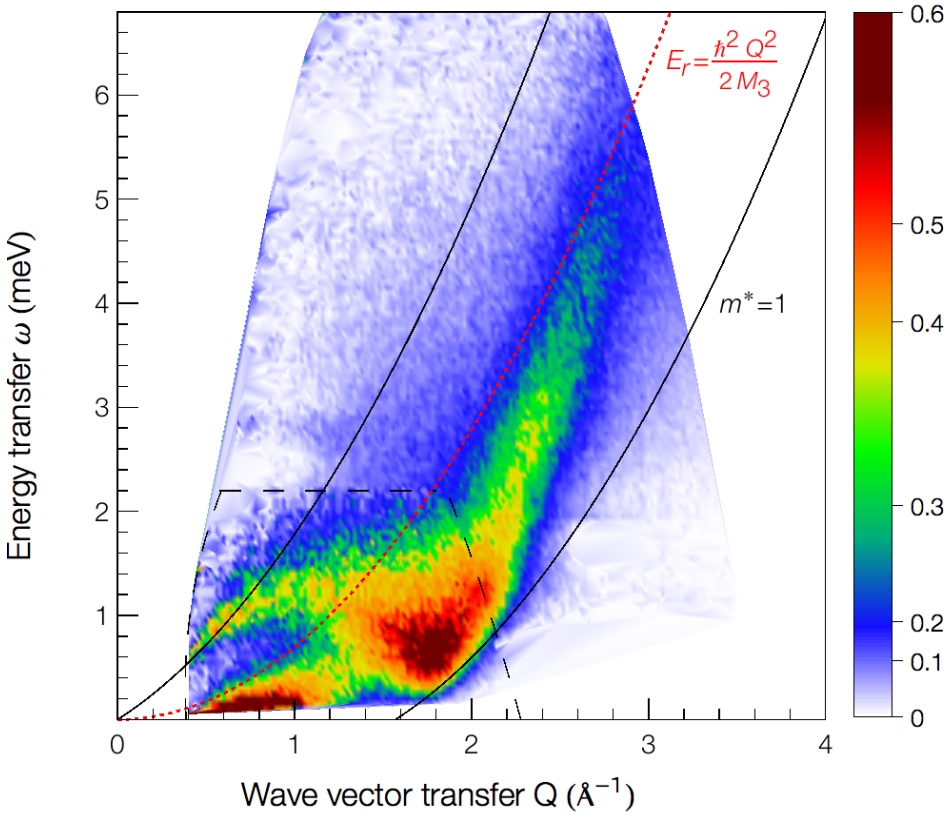


Figure 8.11: Facteur de structure dynamique S(Q,ω) de l'^{3}He liquide normal mesuré à P=0.83 bars, combinant les mesures à deux longueurs d'onde : $\lambda = 4.8$ et 3 Å. Les lignes en pointillé noir symbolisent les limites de la gamme cinétique pour $\lambda = 4.8$ Å. La courbe en pointillé rouge est la parabole des excitations de particules indépendantes. Les lignes continues noires symbolisent les limites de la bande particule-trou des particules non-interagissantes, calculée avec une masse effective m*=1. L'unité de l'intensité absolue S(Q,ω) est en meV^{-1}.

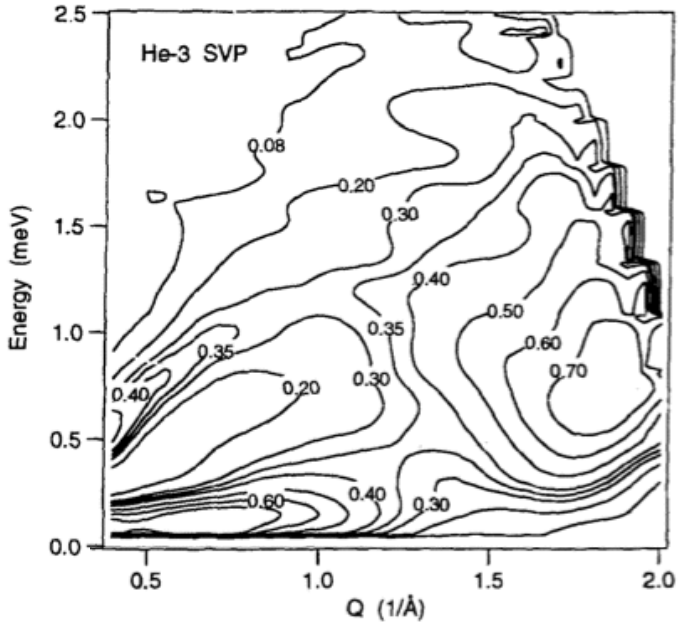


Figure 8.12: Facteur de structure dynamique S(Q,ω) de l'^{3}He liquide normal mesuré par Scherm *et al* [32, 33] à P=0 bar et à T=0.1 K.

8.5.2 Comparaison de l'expérience avec la théorie dynamique à N-corps

Description de la théorie

De l'idée que les mécanismes physiques qui déterminent le spectre aux courtes longueurs d'onde sont les mêmes dans l'^{3}He et l'^{4}He, Krotscheck et ses collaborateurs [3] ont généralisé la théorie dynamique à N-corps de Jackson, Feenberg et Campbell [101, 102] aux fermions. Pour en avoir le formalisme complet, il faut se référer à l'article de Böhm *et al* [3] et à la thèse de Lichtenegger [103]. Comme vu dans le chapitre **1**, le modèle le plus simple est obtenu en restreignant les excitations à des états une-particule-un-trou (1p1h), ce qui correspond à l'approximation de phase aléatoire (RPA). Le modèle plus sophistiqué de Krotscheck et ses collaborateurs inclut des excitations à deux-particules-deux-trous (2p2h) dépendantes du temps décrites par l'équation (6.6), ce qui résulte en des corrections de la dépendance en énergie du spectre des excitations élémentaires et du potentiel d'échange. A noter que sont prises en compte des interactions à deux-corps et non à trois-corps comme dans l'^{4}He. En effet, comme l'^{3}He a une densité plus faible, il est supposé que les interactions d'ordre plus élevé sont négligeables.

Comparaison de l'expérience avec la théorie

Le facteur de structure dynamique mesuré à P=0.83 bars et celui calculé par Krotscheck et ses collaborateurs à $n = 0.0166$ Å^{-3} (P$\simeq$0 bar) sont montrés en Figure 8.13. Il est possible de comparer nos mesures sous faible pression avec les calculs à P=0 bar, car l'effet de la pression est faible sur les excitations, comme le montrent les calculs à différentes densités [3] ou les mesures neutroniques sous pression [32]. La théorie donne séparément la réponse en densité et la réponse en spin. Pour reconstruire le spectre total, le rapport $\sigma_{inc}/\sigma_{coh}$ de l'équation (2.20) est choisi égal à 0.33. L'accord entre l'expérience et la théorie dynamique à N-corps est remarquablement bon sur l'ensemble du spectre. En effet, on retrouve dans le spectre théorique, le zéro-son donné par la fonction de réponse en densité, et le paramagnon donné par la fonction de réponse en spin. Ces modes sont décrits par la théorie de Landau des liquides de Fermi. On retrouve en plus le mode similaire au roton, très bien défini mais néanmoins un peu moins intense dans la théorie que dans l'expérience, à l'intérieur de la bande particule-trou. Les calculs de type RPA suggèrent que le facteur de structure dynamique de l'^{3}He peut être caractérisé par une superposition de modes collectifs similaire au phonon-maxon-roton dans l'^{4}He, plus une bande particule-trou qui amortit fortement ce mode. La RPA a ainsi permis d'obtenir une description qualitative. Pour le degré quantitatif, l'inclusion des fluctuations de paires

dans la théorie dynamique à N-corps a permis d'améliorer significativement l'accord avec l'expérience par rapport aux théories précédentes. En effet, comme il est expliqué et montré dans l'article [3], si seulement des états 1p1h sont pris en compte, comme c'est le cas en RPA, le facteur de structure dynamique est localisé à trop hautes énergies (en analogie avec l'énergie de Feynman pour les bosons) que ce soit pour le mode de spin ou de densité, et est trop large pour la composante de spin et trop fin pour la composante de densité. L'inclusion d'états intermédiaires 2p2h permet de corriger ces effets.

Pour une discussion sur l'accord quantitatif entre la théorie et l'expérience, des coupes de S(Q,ω) à des vecteurs d'onde constants sont montrées en Figure 8.14 et 8.15.

Pour $0.5 < Q < 1.2$ Å^{-1}, le pic à basse énergie correspond à la diffusion de fluctuations de spin et le pic à plus haute énergie au zéro-son. L'accord entre la théorie et l'expérience est remarquable que ce soit pour les positions en énergie, mais aussi pour l'intensité des excitations. Le zéro-son de la théorie est néanmoins trop intense à $Q = 0.5$ et 0.6 Å^{-1}, en dehors de la bande particule-trou. En revanche, à l'intérieur de la bande, le zéro-son s'élargit selon l'amortissement de Landau que ce soit pour la théorie ou pour l'expérience et les deux ont des largeurs comparables.

A Q=1.3 Å^{-1}, il devient difficile de séparer le mode de spin de celui de densité pour l'expérience, en revanche pour la théorie le paramagnon est encore bien distinguable.

Pour $1.4 < Q < 2.2$ Å^{-1}, on ne distingue plus qu'un seul pic pour l'expérience, celui similaire au roton. Son maximum d'intensité est localisé en vecteur d'onde à $Q \simeq 1.8$ Å^{-1} (au delà de deux fois le vecteur d'onde de Fermi $2k_f = 1.57$ Å^{-1}), et en énergie à $\omega \simeq 0.7$ meV. Il a une largeur de l'ordre de 1.5 meV. La théorie présente aussi un mode similaire au roton mais son maximum d'intensité a une valeur plus faible et est situé à bien plus haute énergie que celui de l'expérience, à $\omega \simeq 1.4$ meV.

Au dessus de $Q \simeq 2.2$ Å^{-1}, un prolongement de la branche de rotons est observée. Le maximum d'intensité s'élargit pour l'expérience alors qu'il demeure plus fin pour la théorie.

A $Q \simeq 2.4$ Å^{-1}, l'accord entre la théorie et l'expérience redevient excellent.

Finalement, on observe et calcule dans l'^{3}He un mode collectif qui ressemble à celui de l'^{4}He superfluide. Cela montre la domination des interactions devant la statistique quantique. Le mode collectif est néanmoins bien plus large dans l'^{3}He que dans l'^{4}He superfluide. En effet, la largeur physique des modes dans l'^{3}He est de l'ordre du meV alors qu'elle est de l'ordre du neV pour le phonon-maxon-roton de l'^{4}He à T=0.1 K.

Pour ce qui est des multi-excitations dont on a vu qu'elle étaient très structurées dans l'^{4}He superfluide, il en existe aussi dans l'^{3}He liquide normal. Comme pour la

décroissance d'un mode en deux phonons dans l'^{4}He, un mode peut décroître en deux zéro-son dans l'^{3}He dû à la relation de dispersion anormale du zéro-son. Cependant, à cause de la largeur physique du zéro-son, il est difficile de mettre en évidence cette décroissance. Ensuite, lorsqu'il rentre dans la bande particule-trou, le zéro-son décroît en des paires d'excitations particule-trou ; cela peut être des paires uniques ou des paires multiples.

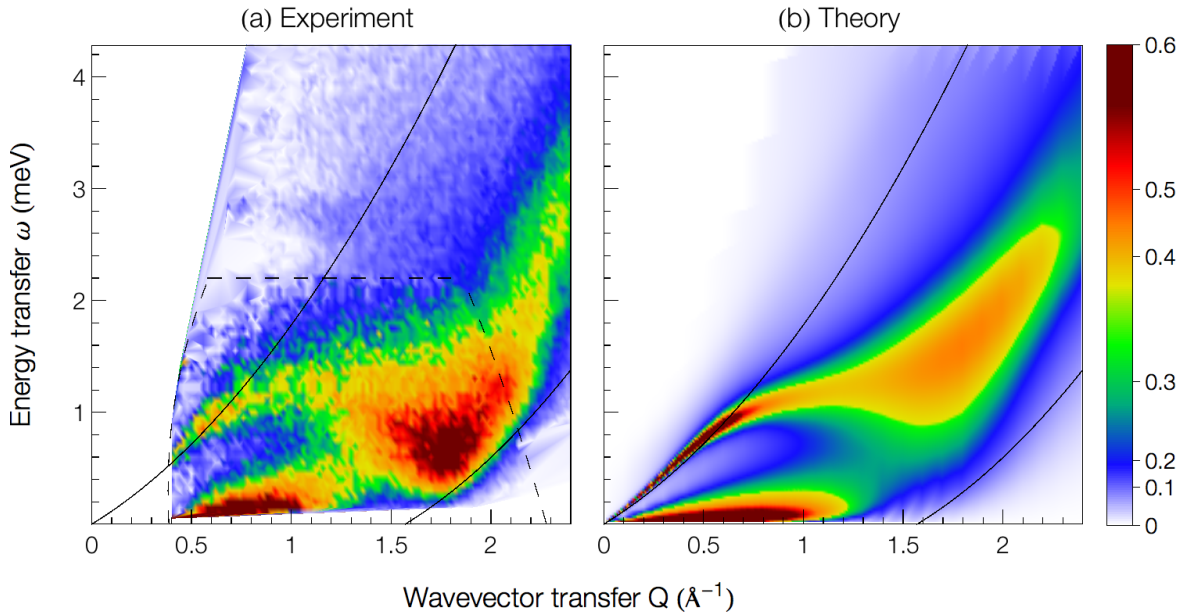


Figure 8.13: (a) S(Q,ω) de l'^{3}He liquide normal à P=0.83 bars. (a) Expérience, combinant les mesures à deux longueurs d'onde : $\lambda = 4.8$ et 3 Å. Les lignes en pointillé noir symbolisent les limites de la gamme cinétique pour $\lambda = 4.8$ Å. (b) Théorie. L'intensité est coupée à 1 meV^{-1} pour mettre en avant le mode similaire au roton. Les lignes continues noires symbolisent les limites de la bande particule-trou des particules non-interagissantes, calculée avec une masse effective m*=1.

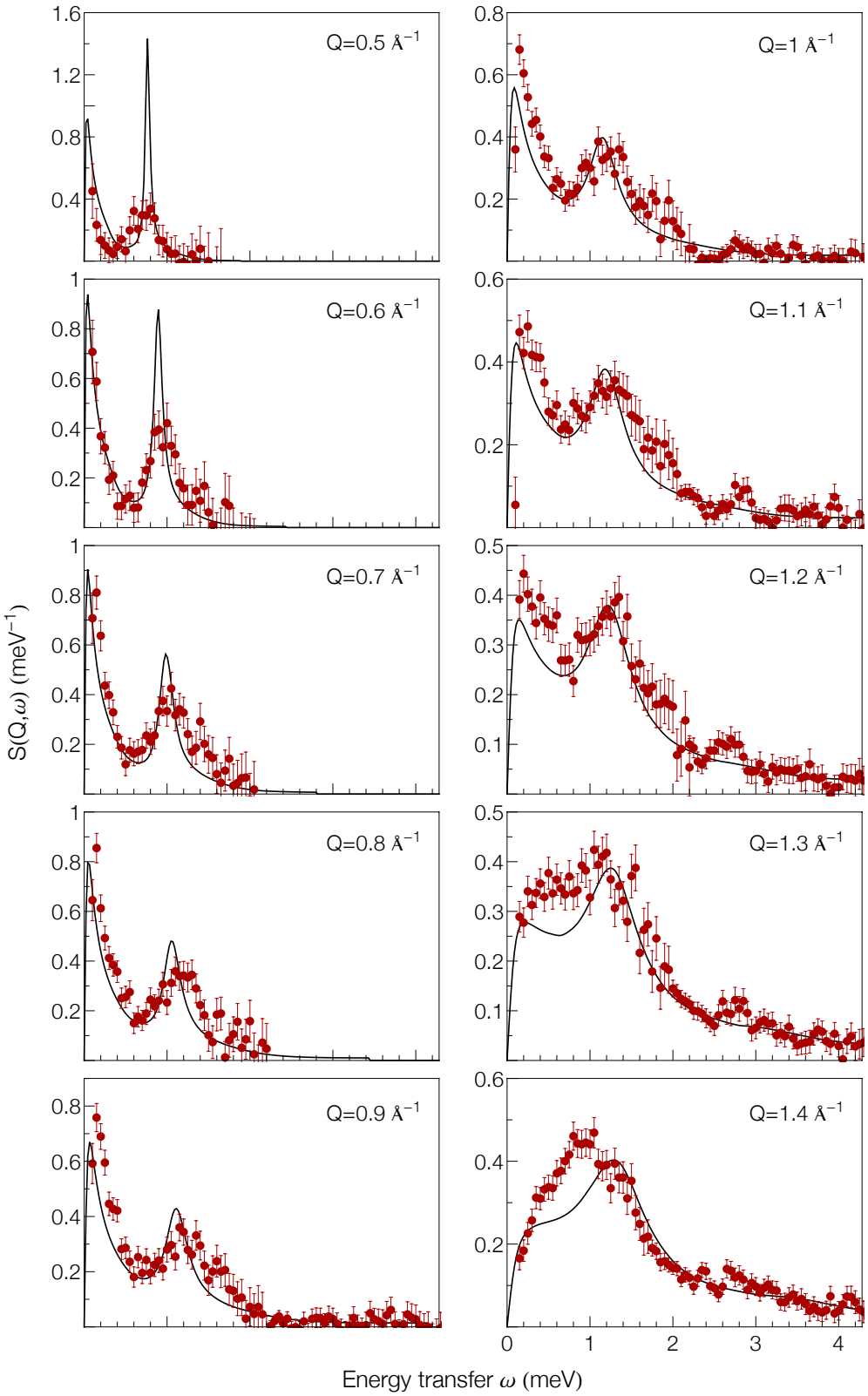


Figure 8.14: S(Q,ω) à différents vecteurs d'onde de transfert Q. En rouge, les données expérimentales combinant deux longueurs d'onde : $\lambda = 4.8$ et 3 Å. En noir, la théorie.

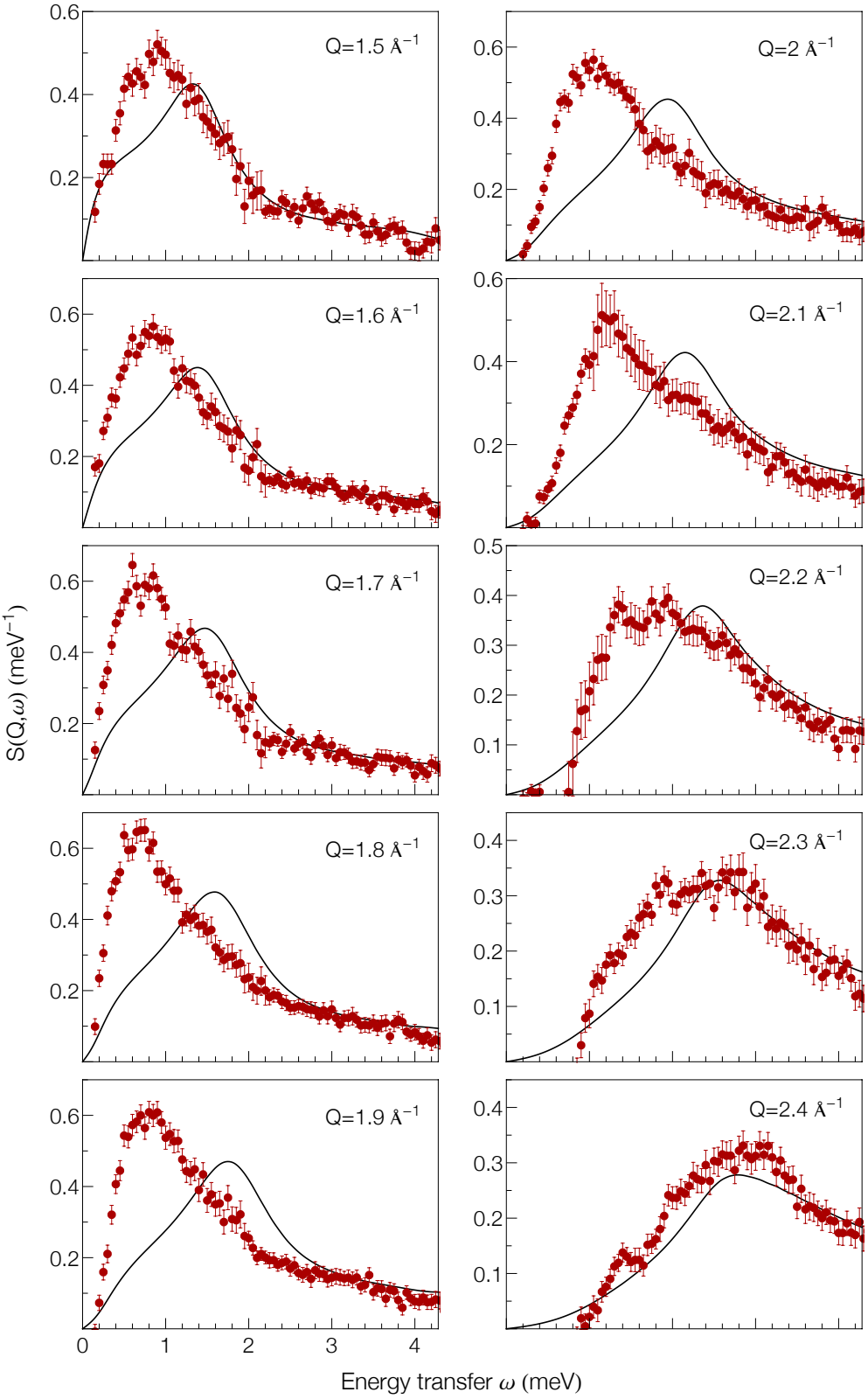


Figure 8.15: S(Q,ω) à différents vecteurs d'onde de transfert Q. En rouge, les données expérimentales combinant deux longueurs d'onde : $\lambda = 4.8$ et 3 Å. En noir, la théorie.

8.6 Conclusion

Finalement, on remarque que l'accord entre l'expérience et la théorie, mis à part des différences au niveau du mode similaire au roton, n'est pas seulement bon pour la nature des excitations et leur position en énergie, mais aussi pour leur intensité. Les nouvelles mesures de diffusion inélastique de neutrons dans l'^{3}He liquide normal, donnent accès à une description très précise de la dynamique, dans une large gamme d'énergie et de vecteur d'onde. Les résultats préliminaires vérifient les prédictions de la théorie dynamique à N-corps. On observe une dynamique similaire à l'^{4}He pour les fluctuations de densité dû aux interactions fortes, et les fluctuations de spin sont d'origine statistique, comme ce qui avait été observé dans l'^{3}He bidimensionnel. La théorie prédit néanmoins un minimum du roton qui est trop haut en énergie, mais cela était attendu, car un effet similaire est observé pour les bosons. Pour obtenir une plus grande précision, il faudrait inclure des fluctuations de plus haut ordre.

8.7 Perspectives

Les résultats des calculs théoriques de Krotscheck et ses collaborateurs dans l'^{3}He liquide, sont présentés dans l'article [3] pour différentes densités. Avec la densité, les corrélations augmentent et il est intéressant de voir si la théorie continue de prédire correctement les excitations à plus haute pression. Ainsi, les résultats de la théorie appellent à de nouvelles mesures sous pression du facteur de structure dynamique. Des mesures ont été effectuées par Hilton *et al* [104] en 1978 avec l'ancien instrument IN5 à P=0, 10 et 20 bars, dans la gamme $1 < Q < 2.4$ Å^{-1}, et par Scherm *et al* [32] en 1987 avec l'instrument IN6 à P=0, 5, 10 et 20 bars, dans la gamme $0.2 < Q < 2$ Å^{-1}. L'objectif aujourd'hui serait de refaire ces mesures dans une plus large région (Q, ω), avec les nouvelles performances de l'instrument IN5 pour obtenir des résultats similaires à ceux présentés dans ce chapitre.

Plusieurs améliorations pourraient être faites par rapport aux mesures présentées ici. Dû au faible diamètre du calorimètre de la dilution de l'ILL, les dimensions de la cellule étaient limitées et elles ont été choisies pour que la cellule puisse rentrer tout juste. Or, une cellule plus large permettrait d'utiliser un angle plus rasant pour avoir accès aux petits vecteurs d'onde. Le deuxième inconvénient du cryostat utilisé est que la partie en aluminium dans le faisceau n'est pas optimisée pour les temps de vol car elle diffuse beaucoup et apporte beaucoup de signal dans les spectres neutroniques. Pour faire face à ces problèmes de la dilution de l'ILL, un cryostat, adapté aux instruments temps de vol, est en cours de construction à l'Institut Néel [voir l'annexe E].

Conclusion générale

Cette thèse a mené à une compréhension approfondie des interactions dans les fluides quantiques. L'étude a été possible grâce aux mesures neutroniques des fluctuations de la densité (et de spin), réalisées avec les nouvelles performances de l'instrument IN5.

Dans l'^{4}He superfluide, de nouveaux modes de multi-excitations ont été distingués de manière très bien définie au dessus de la courbe bien connue phonon-maxon-roton. En particulier, les mesures de diffusion inélastique de haute précision ont permis d'identifier le phonon fantôme associée au couplage phonon-phonon, prédit par la théorie dynamique à N-corps. Les calculs sont en accord remarquable avec les résultats expérimentaux jusqu'à une énergie d'environ 2 meV.

Les interactions entre modes font émerger d'une part des nouveaux modes d'excitations et d'autre part les modèles simples montrent qu'elles renormalisent aussi directement les excitations élémentaires (temps de vie et énergie des quasi-particules). Les interactions sont en particulier fortement modifiées sous pression (densité) avec comme effet le plus remarquable, l'entrée du maxon dans le continuum des multi-excitations à P=24 bars. Il est possible de caractériser physiquement les interactions avec des théories phénoménologiques. Nous avons ainsi par exemple pu montrer que l'interaction phonon-roton est répulsive.

Les mesures inélastiques de l'^{3}He liquide ont permis de déterminer avec une grande précision les modes zéro-son de densité et paramagnon de spin. Un accord quantitatif est obtenu avec la théorie dynamique à N-corps. Au delà de deux fois le vecteur d'onde de Fermi, les mesures ont permis de confirmer la présence prévue par la théorie d'une excitation de type rotonique dans l'^{3}He liquide massif. Ce mode reste ici confiné dans la bande particule-trou, contrairement au cas de l'^{3}He bidimensionnel. La similarité entre les fluctuations collectives de la densité du système fermionique de l'^{3}He liquide, et celles du système bosonique de l'^{4}He superfluide, montre que les interactions dominent devant la statistique quantique.

La présence de corrélations induites par les interactions entre particules complique fortement la compréhension des propriétés de la matière d'une grande diversité de systèmes. Elle est surtout à l'origine de problématiques actuelles telles que : la supraconductivité à haute T_c, le magnétisme frustré, l'existence des supersolides, etc. La complexité du problème liée à la nécessité de décrire simultanément des quasi-particules corrélées croît extrêmement vite avec leur nombre, rendant les calculs théoriques vite fastidieux, voire inabordables. L'étude des fluides quantiques constitue donc une aubaine puisqu'elle permet d'outrepasser ces limitations techniques en fournissant un système modèle de grande pureté expérimentale et conceptuelle, et apporte ainsi des réponses à ces questions transcendant le domaine des fluides quantiques.

Références

[1] D. Pines and P. Nozières. *The theory of Quantum Liquids.* Benjamin, N.Y., 1966.

[2] D. J. Thouless. *The quantum Mechanics of Many-body Systems.* 2nd ed. Academic Press, N.Y., 1972.

[3] H. M. Böhm, R. Holler, E. Krotscheck, and M. Panholzer. Dynamic many-body theory: Dynamics of strongly correlated Fermi fluids. *Phys. Rev. B*, 82:224505, 2010.

[4] C. E. Campbell, E. Krotscheck, and T. Lichtenegger. Dynamic many-body theory: multiparticle fluctuations and the dynamic structure of ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 91:184510, 2015.

[5] H. R. Glyde. *Excitations in liquid and solid helium.* Clarendon Press Oxford, 1994.

[6] H. Godfrin, M. Meschke, H. J. Lauter, A. Sultan, H. M. Böhm, E. Krotscheck, and Panholzer M. Roton collective mode observed in a two-dimensional Fermi liquid. *Nature*, 483:576, 2012.

[7] M. C. Gordillo and J. Boronat. Liquid and solid phases of ^{3}He on graphite. *Phys. Rev. Lett.*, 116:145301, 2016.

[8] G. Bertaina, M. Motta, M. Rossi, E. Vitali, and D. E. Galli. One-dimensional liquid ^{4}He: Dynamical properties beyond Luttinger-liquid theory. *Phys. Rev. Lett.*, 116:135302, 2016.

[9] P. Schmidt-Wellenburg, K.H. Andersen, and O. Zimmer. Ultra cold neutron production by multiphonon processes in superfluid helium under pressure. *Nucl. Instrum. Meth. A*, 611:259–262, 2009.

[10] Katelin Schutz and Kathryn M. Zurek. On the detectability of light dark matter with superfluid helium. *Phys. Rev. Lett.*, 117:121302, 2016.

[11] A. Griffin. *Excitations in a Bose-Condensed liquid.* Cambridge University Press, N.Y., 1993.

[12] L. Landau. Theory of the superfluidity of helium II. *Phys. Rev.*, 60:356–358, 1941.

[13] L.D. Landau. On the theory of superfluidity of helium II. *J. Phys. Moscow*, 11:91, 1947.

[14] R. P. Feynman. Atomic theory of the two-fluid model of liquid helium. *Phys. Rev.*, 94:262–277, 1954.

[15] P. Nozières. Dynamic many-body theory: Pair fluctuations in bulk ^{4}He. *J. Low Temp. Phys.*, 137:45–67, 2004.

[16] A. Macia, D. Hufnagl, F. Mazzanti, J. Boronat, and R. E. Zillich. Excitations and stripe phase formation in a two-dimensional dipolar Bose gas with tilted polarization. *Phys. Rev. Lett.*, 109:235307, 2012.

[17] D. Pines. Elementary excitations in quantum liquids. *Phys. Today*, 34:106–131, 1981.

[18] J. Gavoret and P. Nozières. Structure of the perturbation expansion for the Bose liquid at zero temperature. *Ann. Phys. (N.Y.)*, 28(3):349–399, 1964.

[19] A. Miller, D. Pines, and P. Nozières. Elementary excitations in liquid helium. *Phys. Rev.*, 127:1452–1464, 1962.

[20] R. A. Cowley and A. D. B. Woods. Inelastic scattering of thermal neutrons from liquid helium. *Can. J. Phys.*, 49(2):177–200, 1971.

[21] P. Pitaevskii. Properties of the spectrum of elementary excitations near the disintegration threshold of the excitations. *Sov. Phys. JETP*, 9:830, 1959.

[22] J. Ruvalds and A. Zawadowski. Theory of structure in the superfluid helium spectrum considering roton-roton resonances. *Phys. Rev. Lett.*, 25:333–337, 1970.

[23] A. Zawadowski, J. Ruvalds, and J. Solana. Bound roton pairs in superfluid helium. *Phys. Rev. A*, 5:399–421, 1972.

[24] K. J. Juge and A. Griffin. Theory of neutron scattering from the two-roton, two-maxon and maxon-roton states in superfluid ^{4}He. *J. Low Temp. Phys.*, 97(1):105–143, 1994.

[25] B. Fåk and J. Bossy. Temperature dependence of S(Q,E) in liquid ^{4}He beyond the roton. *Phys. Rev. Lett.*, 112(1), 1998.

[26] A. R. Sakhek and H. R. Glyde. Excitations and Bose-Einstein condensation in liquid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 70:144511, 2004.

[27] J. Dawidowski, F. J. Bermejo, and J. R. Granada. Efficient procedure for the evaluation of multiple scattering and multiphonon corrections in inelastic neutron-scattering experiments. *Phys. Rev. B*, 58:706–715, 1998.

[28] R. Rao, D. Tishler, J. Katoch, and M. Ishigami. Multi-phonon Raman scattering in graphene. *Phys. Rev. B*, 84:113406, 2011.

[29] L.D. Landau. The theory of a Fermi liquid. *Sov. Phys. JETP*, 3:920, 1957.

[30] P. Nozières. *Theory of interacting Fermi Systems.* Benjamin, N.Y., 1964.

[31] B. Fåk and H. R. Glyde. Density and spin-density excitations in normal-liquid ^{3}He. *Phys. Rev. B*, 55:5651–5654, 1997.

[32] R. Scherm, K. Guckelsberger, B. Fåk, K. Sköld, A. J. Dianoux, H. Godfrin, and W. G. Stirling. Pressure dependence of elementary excitations in normal liquid helium-3. *Phys. Rev. Lett.*, 59:217–220, 1987.

[33] B. Fåk, K. Guckelsberger, R. Scherm, and A. Stunault. Spin fluctuations and zero-sound in normal liquid ^{3}He studied by neutron scattering. *J. Low Temp. Phys.*, 97:445–487, 1994.

[34] H. R. Glyde, B. Fåk, N. H. van Dijk, H. Godfrin, K. Guckelsberger, and R. Scherm. Effective mass, spin fluctuations, and zero sound in liquid ^{3}He. *Phys. Rev. B*, 61:224505, 2000.

[35] K. Sköld, C. A. Pelizzari, R. Kleb, and G. E. Ostrowski. Neutron scattering study of elementary excitations in liquid helium-3. *Phys. Rev. Lett.*, 37:842–845, 1976.

[36] G. L. Squires. *Introduction to the theory of thermal neutron scattering.* Cambridge University Press, 1978.

[37] H. Schober. Diffusion des neutrons par la matière cristalline ou amorphe non-magnétique. *Collection SFN*, 10:159–336, 2010.

[38] NIST, https://www.ncnr.nist.gov/resources/n-lengths/elements/he.html.

[39] J. Ollivier and J.-M Zanotti. Diffusion inélastique des neutrons par temps de vol. *Collection SFN*, 10:379–423, 2008.

[40] J. Ollivier, H Mutka, and L. Didier. The new cold neutron time-of-flight spectrometer IN5. *Neutron News*, 21(2):22–25, 2010.

[41] J. Ollivier and H. Mutka. IN5 cold neutron time-of-flight spectrometer, prepared to tackle single crystal spectroscopy. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 80:SB003, 2011.

[42] George H. Vineyard. Scattering of slow neutrons by a liquid. *Phys. Rev.*, 110:999–1010, 1958.

[43] V. F. Sears. Slow-neutron multiple scattering. *Adv. Phys.*, 24:1–45, 1975.

[44] V. F. Sears. Slow-neutron multiple scattering in liquid helium. *Nucl. Instrum. Meth.*, 123:521–527, 1975.

[45] A. de Francesco, U. Bafile, F. Formisano, and E. Guarini. Efficient implementation of multiple scattering Monte Carlo estimates in time-of-flight neutron spectrometry exploiting wide-area detectors. *J. Phys.: Conference Series*, 340:012024, 2012.

[46] J. R. D. Copley. Monte Carlo calculation of multiple scattering effects in thermal neutron scattering experiments. *Compu. Phys. Commun.*, 7(6):289–317, 1974.

[47] J. R. D. Copley, P. Verkerk, A. A. van Well, and H. Frederikze. Monte Carlo calculation of multiple scattering effects in thermal neutron scattering experiments. *Compu. Phys. Commun.*, 40(2):337–357, 1986.

[48] E. Farhi, V. Hugouvieux, M.R. Johnson, and W. Kob. Virtual experiments: Combining realistic neutron scattering instrument and sample simulations. *J. Compu. Phys.*, 228(14):5251–5261, 2009.

[49] K. Lefmann and K. Nielsen. McStas, a general software package for neutron ray-tracing simulations. *Neutron news*, 10(3):20–23, 1999. http://www.mcstas.org.

[50] F. G. Bischoff. Monte Carlo evaluation of multiple scattering and resolution effects in double-differential neutron scattering cross-section measurements. *Nucl. Sci Eng.*, 48:266–280, 1972.

[51] J. R. Granada. Slow-neutron scattering by molecular gases: A synthetic scattering function. *Phys. Rev. B*, 31:4167–4177, 1985.

[52] H. S. Sommers, J. G. Dash, and L. Goldstein. Transmission of slow neutrons by liquid helium. *Phys. Rev.*, 97(4):855–862, 1955.

[53] LAMP, https://www.ill.eu/instruments-support/computing-for-science/cs-software/all-software/lamp/.

[54] A. Stunault, K. H. Andersen, Y. Blanc, B. Fåk, H. Godfrin, K. Guckelsberger, and R. Scherm. Time-of-flight spectroscopy : energy calibration and consistency check. *Physica B*, 180 & 181:926–928, 1992.

[55] A. D. B. Woods, P. A. Hilton, R. Scherm, and W. G. Stirling. A new determination of the roton energy in superfluid liquid helium. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 10(3):45–49, 1977.

[56] K. H. Andersen, W. G. Stirling, R. Scherm, A. Stunault, B. Fåk, H. Godfrin, and A. J. Dianoux. Precision determination of S(Q,ω) of liquid ^{4}He as a function of temperature. *Physica B: Condensed Matter*, 180:851–853, 1992.

[57] K. H. Andersen, W. G. Stirling, R. Scherm, A. Stunault, B. Fåk, H. Godfrin, and A. J. Dianoux. Collective excitations in liquid ^{4}He: I. Experiment and presentation of data. *J. Phys. : Condens. Matter*, 6(4):821, 1994.

[58] M. R. Gibbs, K. H. Andersen, W. G. Stirling, and H. Schober. The collective excitations of normal and superfluid ^{4}He: the dependence on pressure and temperature. *J. Phys. : Condens. Matter*, 11:603–628, 1999.

[59] J. V. Pearce, R. T. Azuah, B. Fåk, A. R. Sakhel, H. R. Glyde, and W. G. Stirling. High-resolution measurements of excitations in superfluid ^{4}He beyond the roton. *J. Phys. : Condens. Matter*, 13(20):4421, 2001.

[60] E. C. Svensson, V. F. Sears, A. D. B. Woods, and P. Martel. Neutron-diffraction study of the static structure factor and pair correlations in liquid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 21:3638–3651, 1980.

[61] F. H. Wirth and R. B. Hallock. X-ray determinations of the liquid-structure factor and pair-correlation function of ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 35:89–105, 1987.

[62] J. Boronat and J. Casulleras. Monte Carlo analysis of an interatomic potential for He. *Phys. Rev. B*, 49:8920–8930, 1994.

[63] J. Boronat, J. Casulleras, F. Dalfovo, S. Moroni, and S. Stringari. Bounds for the phonon-roton dispersion in superfluid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 52:1236–1241, 1995.

[64] K. Beauvois, C. E. Campbell, J. Dawidowski, B. Fåk, H. Godfrin, E. Krotscheck, H. J. Lauter, T. Lichtenegger, J. Ollivier, and A. Sultan. Superfluid ^{4}He dynamics beyond quasiparticle excitations. *Phys. Rev. B*, 94:024504, 2016.

[65] C. E. Campbell and E. Krotscheck. Dynamic many-body theory: Pair fluctuations in bulk ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 80:174501, 2009.

[66] E. Feenberg. *Theory of quantum fluids.* Academic Press, New York, 1969.

[67] J. W. Clark, L. R. Mead, E. Krotscheck, K. E. Kürten, and M. L. Ristig. Studies in the method of correlated basis functions. (I). A general survey. *Nucl. Phys. A*, 328:45–72, 1979.

[68] E. Krotscheck and J. W. Clark. Studies in the method of correlated basis functions. (II). Graphical analysis and integral equation methods. *Nucl. Phys. A*, 328:73–103, 1979.

[69] M. Saarela. Introduction to modern methods of quantum many-body theory ant their applications. In A. Fabrocini, S. Fantoni, and K. Krotscheck, editors, *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids*, pages 205–264. Advances in Quantum Many-Body Theory Vol. 7 (World Scientific, Singapore), 1991.

[70] M. Saarela. Elementary excitations in quantum Bose fluids: Application to liquid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 33:4596–4603, 1986.

[71] O. W. Dietrich, E. H. Graf, C. H. Huang, and L. Passell. Neutron scattering by rotons in liquid helium. *Phys. Rev. A*, 5:1377–1391, 1972.

[72] W. G. Stirling. Recent high-resolution neutron scattering studies of liquid ^{4}He. In A. F. G. Wyatt and H. J. Lauter, editors, *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids*, pages 25–46. Springer US, 1991.

[73] H. J. Maris. Hydrodynamics of superfluid helium below 0.6 °K. I. Viscosity of the normal fluid. *Phys. Rev. A*, 8:1980–1987, 1973.

[74] B. M. Abraham, Y. Eckstein, J. B. Ketterson, M. Kuchnir, and P. R. Roach. Velocity of sound, density, and Grüneisen constant in liquid ^{4}He. *Phys. Rev. A*, 1:250–257, 1970.

[75] Norman E. Phillips, C. G. Waterfield, and J. K. Hoffer. Calorimetric evidence for positive phonon dispersion in liquid helium-4. *Phys. Rev. Lett.*, 25:1260–1262, 1970.

[76] E. C. Svensson, A. D. B. Woods, and P. Martel. Phonon dispersion in liquid helium under pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 29:1148–1149, 1972.

[77] C. H. Aldrich, C. J. Pethick, and D. Pines. Phonon dispersion in He II at long wavelengths and low temperatures. *J. Low Temp. Phys.*, 25(5):691–697, 1976.

[78] Dennis S. Greywall. Specific heat and phonon dispersion of liquid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 18:2127–2144, 1978.

[79] R. A. Sherlock, N. G. Mills, and A. F. G. Wyatt. The angular spreading of phonon beams in liquid ^{4}He: upward phonon dispersion. *J. of Phys. C: Solid State Phys.*, 8(16):2575, 1975.

[80] R. C. Dynes and V. Narayanamurti. Measurement of anomalous dispersion and the excitation spectrum of He II. *Phys. Rev. B*, 12:1720–1730, 1975.

[81] W. R. Junker and C. Elbaum. Pressure dependence of the low-momentum phonon dispersion relation in liquid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 15:162–172, 1977.

[82] B. Fåk, T. Keller, M. E. Zhitomirsky, and A. L. Chernyshev. Roton-phonon interactions in superfluid ^{4}He. *Phys. Rev. Lett.*, 109:155305, 2012.

[83] L. D. Landau and I. M. Khalatnikov. The theory of the viscosity of helium II. I. Collisions of elementary excitations in helium II. *Zh. Eksp. Teor. Fiz*, 19:637, 1949. Collected Papers of L. D. Landau, edited by D. ter Haar (Pergamon, Oxford, 1965).

[84] I. M. Khalatnikov and D. M. Chernikova. Dispersion of first and second sound in superfluid helium. *Sov. Phys. JETP*, 23(2):274, 1966.

[85] F. Caupin, J. Boronat, and K. H. Andersen. Static structure factor and static response function of superfluid helium 4: a comparative analysis. *J. Low Temp. Phys.*, 152:108, 2008.

[86] H. J. Maris. Critical phenomena in ^{3}He and ^{4}He at T =0 K. *Phys. Rev. Lett.*, 66:45–47, 1991.

[87] E. Tanaka, K. Hatakeyama, S. Noma, and T. Satoh. Molar volume of pure liquid ^{4}He: dependence on temperature (50-1000 mK) and pressure (0-1.57 MPa). *Cryogenics*, 40:365–377, 2000.

[88] E. C. Kerr and R. D. Taylor. The molar volume and expansion coefficient of liquid He4. *Ann. Phys.*, 26(2):292–306, 1964.

[89] R. J. Donnelly, J. A. Donnely, and R.N. Hills. Specific heat and dispersion curve for helium II. *J. Low Temp. Phys.*, 44(5):471–489, 1981.

[90] J. V. Pearce and H. R. Glyde. Pressure dependence of excitations of liquid ^{4}He. *J. Low Temp. Phys.*, 138(1):37–42, 2005.

[91] J. V. Pearce, R. T. Azuah, W. G. Stirling, R. M. Dimeo, P. E. Sokol, and M. A. Adams. High resolution measurements of the temperature dependence of the roton energy of superfluid ^{4}He. *J. Low Temp. Phys.*, 124:573–586, 2001.

[92] K. H. Andersen, J. Bossy, J. C. Cook, O. G. Randl, and J.-L. Ragazzoni. High-resolution measurements of rotons in ^{4}He. *Phys. Rev. Lett.*, 77:4043–4045, 1996.

[93] K. Bedell, D. Pines, and A. Zawadowski. Pseudopotential theory of interacting roton pairs in superfluid ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 29:102–122, 1984.

[94] T. Keller, K. Habicht, R. Golub, and F. Mezei. Roton and phonon linewidths in superfluid ^{4}He. *Europhys. Lett.*, 67(5):773, 2004.

[95] F. Blondelle, A. Sultan, E. Collin, and H. Godfrin. Electrical conductance of bolted copper joints for cryogenic applications. *J. Low Temp. Phys.*, 175(5):877–887, 2014.

[96] H. Franco, J. Bossy, and H. Godfrin. Properties of sintered silver powders and their application in heat exchangers at millikelvin temperatures. *Cryogenics*, 24(9):477–483, 1984.

[97] Silbest C8 silver powder, Tokuriki Honten Co. Ltd.,9-12 Kajicho 2-chome, Chiyo-daku, Tokyo 101, Japan.

[98] Valérie Goudon. *Magnétisme nucléaire de l'^{3}He liquide : nouvelle détermination du paramètre de Landau F_0^a*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2006.

[99] F. Albergamo, R. Verbeni, S. Huotari, G. Vankó, and G. Monaco. Zero sound mode in normal liquid ^{3}He. *Phys. Rev. Lett.*, 99:205301, 2007.

[100] Alexander J. M. Schmets and Wouter Montfrooij. Comment on "zero sound mode in normal liquid ^{3}He". *Phys. Rev. Lett.*, 100:239601, 2008.

[101] H. W. Jackson. Perturbative form of S(k,ω) for liquid ^{4}He: Basic calculation and results. *Phys. Rev. A*, 8:1529–1535, 1973.

[102] C. E. Campbell and E. Krotscheck. Dynamic many-body theory: Pair fluctuations in bulk ^{4}He. *Phys. Rev. B*, 80:174501, 2009.

[103] Thomas Lichtenegger. *Spin-density fluctuations in liquid ^{3}He.* PhD thesis, Johannes Kepler University. Linz., 2013.

[104] A. Hilton, Cowley R. A., W. G. Stirling, and R. Scherm. Neutron scattering from liquid helium three at elevated pressure. *Phys. B.*, 30:107–110, 1978.

[105] Cryomech, http://www.cryomech.com/products/cryorefregerators-pulse-tube/pt405/.

[106] Ahmad Sultan. *Dynamique dans les fluides quantiques : étude des excitations collectives dans un liquide de Fermi 2D.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2012.

[107] Thomas Prouvé. *Développement d'un réfrigérateur à dilution prérefroidi par un tube à gaz pulsé.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2007.

[108] R. R. Conte. *Eléments de cryogénie.* Masson, Paris, 1970.

Annexes

Annexe A

Réduction des données dans Lamp

```
RDSET,inst = "IN5"
RDSET,base = "Current Path"

    ; Input files

A = 'cell.hdf'
B = 'helium.hdf'
C = 'vanadium.hdf'

    ; Data settings

D ='1-15,362'; Bad detectors
t = 0.982; Sample transmission
V = 308; Vanadium temperature
E = 513; Elastic pic position
R = 0.015; Energy bin
U = 0.01; Wave vector bin

    ;———- Load empty cell, λ = 4.8 Å, T = 0.1 K———-

w1 = rdrun(A)
w1 = in5_remove_spectra(w1, badSpectra=D, /verbose)

    ;———- Load sample, P = 0 bar, λ = 4.8 Å, T = 0.1 K ———-

w2 = rdrun(B)
w2 = in5_remove_spectra(w2, badSpectra=D, /verbose)
```

```
;———- Cell subtraction ———-

w3 = w2 - t*w1 & e3 = sqrt(e2^2+(t*e1)^2)

;———- Load vanadium ———-

w4 = rdrun(C)
w4 = in5_remove_spectra(w4, badSpectra=D, /verbose)

;———- Self-shielding vanadium correction ———-

; Parameters:

; Cylinder inner radius (mm): 0
; Cylinder outer radius (mm): 15
; Absorption cross section (barn): 5.08
; Total scattering cross section (barn): 5.1
; Density (g/cm3): 5.8
; Atomic mass (g/mol): 50.94

w5 = in5_safcorr_new(w4, Rin=0, Rout=6.0, sigma_a=5.08,
sigma_s=5.1, rho=5.8, Mass=50.94, /verbose)
p5(11) = V

;———- Normalize to the elastic pic of the vanadium ———-

w6 = in5_vnorm(w3, w5, /verbose)

;———- Correction for detector energy efficiency ———-

w7= in5_corrtof(w6, /deteff, /psd, elp=E, /verbose)
```

Annexe B

Modèle McStas

```
DEFINE INSTRUMENT templateTOF(
lambda=4.8, dlambda=0.005, dt=6.4e-6, string coh="Superfluid4He.sqw", thickness=0,
yheight=0.01, radius=0.0075, container=NULL)
```

DECLARE

```
%{
double vi;
char flag_single;    /* Diffusion simple */
char flag_multi;     /* Diffusion multiple */
char op[256];
double dt0, E0;
%}
```

INITIALIZE

```
%{
E0 = 81.805/lambda/lambda;
vi=SE2V*sqrt(E0);
double ki=V2K*vi;
double t0=1.25/vi; // Temps de vol de l'échantillon au détecteur.
double lambda=2*PI/ki;
sprintf(op, "angle limits=[0 180] bins=256, energy limits=[0 7.1161] bins=474,
banana, parallel", 0.*E0, 2*E0);
printf("%s: lambda=%g [Angs], k=%g [Angs-1], v=%g [m/s], E=%g [meV],
Time=[%g %g %g]\n", NAME_CURRENT_COMP, lambda,ki,vi, E0, t0*.75, t0, t0*1.5);
printf("%s: sample is %s, with %s%s geometry.\n", NAME_CURRENT_COMP,
```

```
coh, thickness ? "hollow " : "", yheight ? "cylindrical" : "spherical");
dt0=dt;
%}
```

TRACE

```
COMPONENT a1=Progress_bar(percent=5)
AT (0,0,0) ABSOLUTE
EXTEND
%{
flag_single=flag_multi=0;
%}
```

/* Source */

```
COMPONENT csource=Source_gen(
dist=2.88, focus_xw=2*radius, focus_yh=yheight, lambda0=lambda, dlambda=dlambda,
yheight= yheight,  xwidth= 2*radius, verbose=1)
AT (0, 0, 0) RELATIVE a1

COMPONENT SampleIn=Arm()
AT (0,0,2.88) RELATIVE a1
```

/* Echantillon */

```
COMPONENT Sample_in=Isotropic_Sqw(
radius=radius, thickness=thickness, yheight=yheight, Sqw_coh=coh,  p_interact=0.9,
classical=0, verbose=2)
AT (0, 0, 0) RELATIVE SampleIn
EXTEND
%{
if(SCATTERED == 1) flag_single=(VarSqw.type == 'c' ? 1 : 2);
else if (SCATTERED >  1) flag_multi =(VarSqw.type == 'c' ? 1 : 2);
else
flag_multi =flag_single=0;
t = randtriangle()*2*dt0;
%}
```

```
COMPONENT SampleOut = Arm()
AT (0, 0, 0) RELATIVE SampleIn


/* Détecteurs */

COMPONENT M_total=Monitor_nD(
xwidth=2*4, yheight=3, restore_neutron=1, options=op, filename="M_total.dat",)
WHEN (flag_single || flag_multi)
AT (0,0,0) RELATIVE SampleOut

COMPONENT M_single_coh=Monitor_nD(
xwidth=2*4, yheight=3, restore_neutron=1, options=op, filename="M_singlecoh.dat",)
WHEN (flag_single == 1)
AT (0,0,0) RELATIVE SampleOut

COMPONENT M_multi=Monitor_nD(
xwidth=2*4, yheight=3, restore_neutron=1, options=op, filename="M_multi.dat",)
WHEN (flag_multi)
AT (0,0,0) RELATIVE SampleOut

END
```

Annexe C

Calcul de l'écrantage par le cadmium

Le cadmium à l'avant de la cellule peut donner lieu à des effets d'écrantage, comme on peut le voir sur le schéma de la Figure C.1. On considère le cas d'un échantillon fortement absorbant, comme l'^{3}He, où toute la diffusion a lieu à la surface de l'échantillon. On introduit les variables suivantes :

α Angle entre le faisceau incident et la surface de l'échantillon

ϕ Angle de diffusion

L Longueur totale de la surface

L' Longueur de la surface illuminée

l Longueur de la surface invisible à bas ϕ

d Épaisseur du cadmium, qui inclut les ondulations et la colle

La longueur de l'échantillon illuminé L' est déterminée par :

$$\tan\alpha = \frac{d}{L - L'} \qquad \Rightarrow \qquad L' = L - \frac{d}{\tan\alpha} \tag{C.1}$$

et la longueur du coin invisible l est donnée par :

$$\tan(\phi - \alpha) = \frac{d}{l} \qquad \Rightarrow \qquad l = \frac{d}{\tan(\phi - \alpha)}. \tag{C.2}$$

L'intensité diffusée I est proportionnelle à la longueur de la surface visible :

$$I \propto \begin{cases} 0 & \text{si } \phi < \phi_{min} \\ L' - l & \text{si } \phi_{min} < \phi < \alpha + \frac{\pi}{2} \\ L' & \text{si } \alpha + \frac{\pi}{2} < \phi < \phi_{max} \end{cases}$$

où

$$\phi_{min} = \alpha + \arctan\left(\frac{d}{L'}\right) \quad \text{et} \quad \phi_{max} = \pi + \alpha - \arctan\left(\frac{l}{d}\right). \tag{C.3}$$

La longueur de la surface visible de l'échantillon en fonction de l'angle de diffusion est représentée sur le graphique de la Figure C.1. On voit que l'effet d'écrantage est négligeable avec les valeurs des paramètres L, α, et d de la cellule utilisée pour les mesures de l'^{3}He liquide.

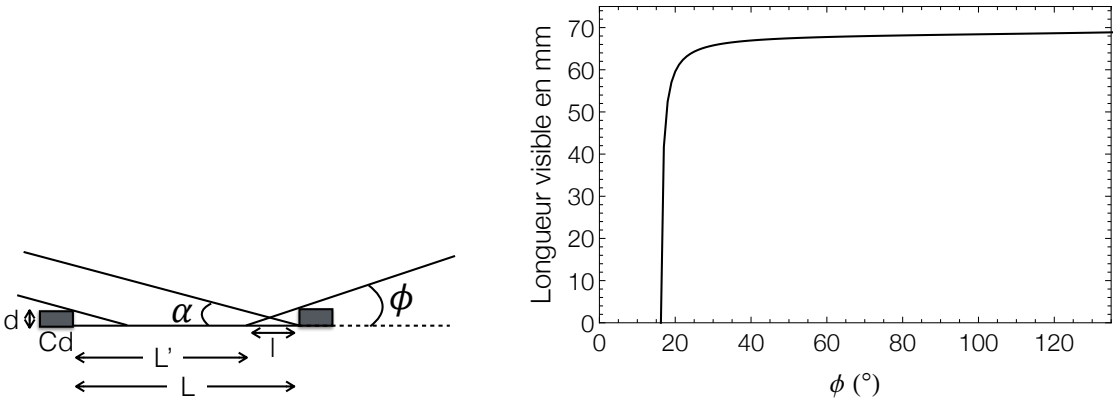


Figure C.1: A gauche, schéma de la plaque en géométrie réflexion. A droite, longueur de la surface visible en fonction de l'angle de diffusion ϕ avec $L = 71$ mm, α=15.5 ° et $d = 0.7$ mm.

Annexe D

Calcul de l'atténuation dans l'échantillon

Pour un faisceau de neutrons qui arrivent avec un angle α par rapport à la surface d'une longue plaque d'épaisseur d et qui sont diffusés avec un angle ϕ par rapport au faisceau incident, l'épaisseur traversée dans l'échantillon d_{eff} est [voir la Figure D.1] :

$$d_{eff} = \int_0^{d/\sin\alpha} dx e^{-\Sigma_i x} e^{-\Sigma_f y(x)} = \int_0^{d/\sin\alpha} dx e^{-\Sigma_{eff} x} = \frac{1 - e^{-\Sigma_{eff} d/\sin\alpha}}{\Sigma_{eff}}, \tag{D.1}$$

où x et $y(x)$ sont les chemins parcourus respectivement avant et après diffusion. $\Sigma_i = n\sigma_{abs}(E_i) + n\sigma_D$ est la section efficace macroscopique totale pour le faisceau de neutrons qui arrivent avec une énergie E_i et $\Sigma_f = n\sigma_{abs}(E) + n\sigma_D$ est celle pour les neutrons qui sont diffusés avec une énergie E. On rappelle que n est la densité d'atomes. On a posé :

$$\Sigma_{eff} = \Sigma_i + \Sigma_f \frac{\sin\alpha}{\sin(\phi - \alpha)}, \tag{D.2}$$

car à partir de la Figure D.1, on voit que $y/x = \sin\alpha/\sin(\phi - \alpha)$. On note les deux cas limites suivants :

1. Si il n'y a pas d'atténuation, $\Sigma_{eff} \to 0$ et $d_{eff} = d/\sin\alpha$.

2. Pour des échantillons qui absorbent très fortement comme l'^{3}He, $d_{eff} \to 1/\Sigma_{eff}$.

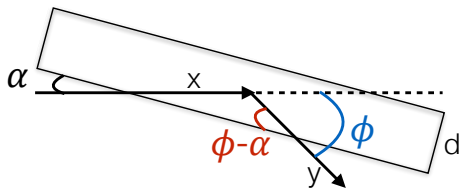


Figure D.1: Plaque en géométrie réflexion.

Annexe E

Cryostat adapté aux instruments temps de vol

Un cryostat, adapté aux instruments temps de vol, est en cours de construction à l'Institut Néel [voir la photo de la Figure E.1]. L'élaboration est notamment prise en charge par Sébastien Triqueneaux, Olivier Tissot, Gilles Pont et Cyril Bruyère. Il s'agit d'un cryostat construit en aluminium pur, de faible épaisseur. Le grand diamètre du calorimètre permettrait d'avoir une cellule plus large que celle utilisée pour les mesures ^{3}He présentées dans cette thèse. Le cryostat est un réfrigérateur à dilution pré-refroidi par un tube à gaz pulsé de type PT405 commercialisé par Cryomech [105]. Il est constitué de deux étages, le premier est à la température de T_1=30 K et le second à T_2=4 K [voir les thèses de Sultan [106] et de Prouvé [107] pour le principe de fonctionnement du tube à gaz pulsé et de la dilution]. Nous avons mesuré les puissances de refroidissement des différents étages du tube à gaz pulsé ; les résultats sont présentés plus bas. Ces tests ont été effectués dans un cryostat conçu et réalisé à cet effet. Par la suite, le tube à gaz pulsé a été installé dans le cryostat à dilution. Pour la mesure de températures, des sondes en carbone ont été installées sur la bride 4 K du cryostat et sur l'étage 4 K du tube à gaz pulsé (que l'on voit sur la photo de droite de la Figure E.1). De même, deux sondes en platine ont été posées sur l'étage 30 K. De très faibles écarts de température ont été relevés entre les étages du tube à gaz pulsé et les brides du cryostat, montrant le bon couplage thermique assurée notamment par les colliers de thermalisation en cuivre (celui à 4 K est visible sur la photo de droite de la Figure E.1). Pour ce qui concerne la partie basse de la dilution, en dessous de 4 K, le montage est actuellement en cours.

Figure E.1: Cryostat en aluminium pur, adapté pour les expériences de neutrons. A gauche, vue d'ensemble du cryostat. A droite, zoom sur la bride 4 K du cryostat et l'étage 4 K du tube à gaz pulsé, avec le collier de thermalisation assurant le couplage thermique entre les deux.

Mesure des puissances de refroidissement du tube à gaz pulsé

Un test des puissances de refroidissement pouvant être extraites sur chacun des deux étages du tube à gaz pulsé a été effectué. Le manuel de PT405 annonce qu'il descend en dessous de T_2=2.8 K et qu'il fournit une puissance P_2=0.5 W à T_2=4.2 K sur le deuxième étage avec P_1=25 W à T_1=65 K sur le premier étage.

Thermométrie et chauffages

Pour mesurer les puissances de refroidissement du tube à gaz pulsé, un thermomètre et un chauffage ont été placés sur chaque étage [voir la photo de la Figure E.2]. Sur le premier étage, la sonde de température est une résistance de platine et sur le deuxième il s'agit

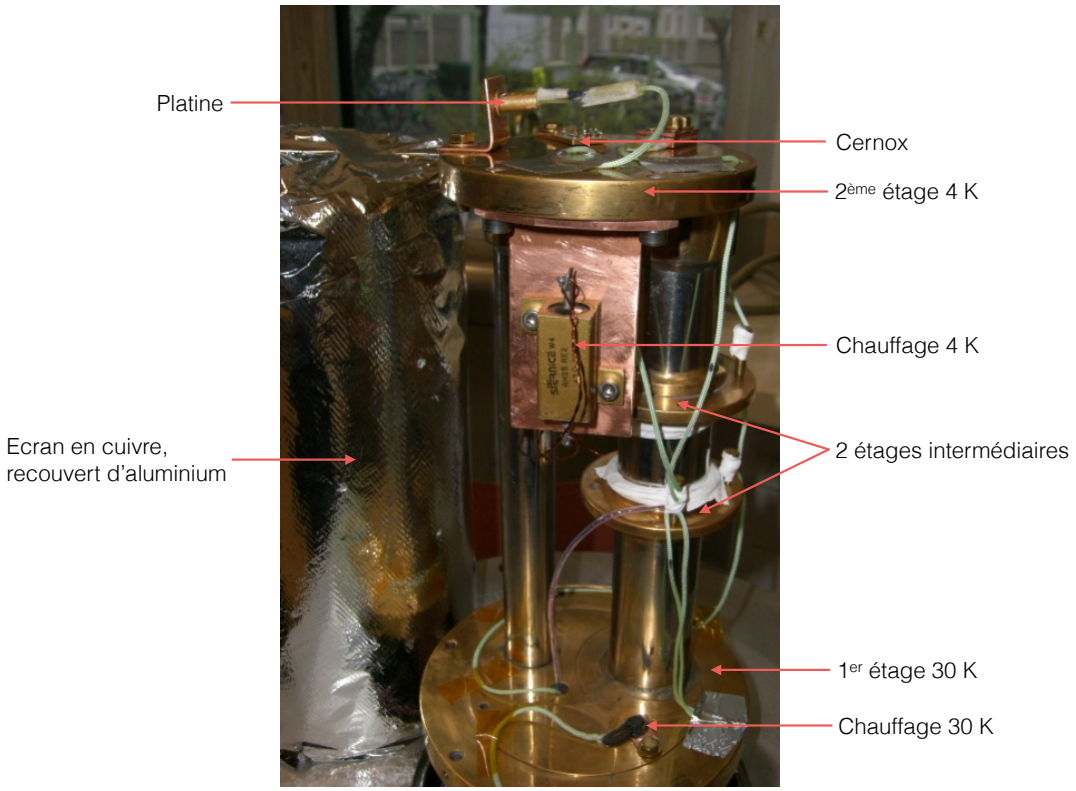


Figure E.2: Photo des deux étages du tube à gaz pulsé avec la thermométrie et les chauffages. La résistance de platine est placée ici sur le deuxième étage mais lors des mesures des puissances de refroidissement, elle était placée sur le premier étage. Les mesures ont été effectuées avec un cryostat de test.

d'une cernox. Cette dernière a été calibrée en dessous de 4 K grâce à une résistance de carbone. Toutes les mesures ont été effectuées en 4 fils pour s'affranchir de la résistance parasite liée aux fils de mesure et de contact. Toutes les paires de fils ont été torsadées pour diminuer le bruit capté inductivement. Le câblage (choix des matériaux et de leur dimensionnement) a été fait de manière à limiter l'apport de chaleur par conduction, convection, rayonnement et effet Joule.

Conduction

La puissance apportée par conduction peut être calculée à partir d'intégrales de conduction $\int_{T_1}^{T_2} \lambda(T)dT$, avec $T_1 = 4$ K. La puissance apportée par exemple entre 300 et 30 K est déterminée comme suit :

$$P_{cond\ 300\rightarrow 30K} = \frac{A}{L}\left[\int_4^{300} \lambda(T)dT - \int_4^{30} \lambda(T)dT\right]. \tag{E.1}$$

D'après cette formule, on voit que pour limiter la puissance de conduction, il faut des fils ayant une faible conductivité thermique λ et un faible diamètre (une faible section A). Pour les chauffages, des fils conducteurs sont nécessaires pour pourvoir injecter du courant : des fils de cuivre d'une longueur de 30 cm et d'un diamètre de 0.3 mm ont été choisis, ce qui correspond à une puissance de conduction de 60 mW pour les deux fils qui arrivent sur le premier étage (puissance calculée à partir des valeurs d'intégrales de conduction données dans le livre de Conte [108]). Pour limiter la conduction, il faut aussi limiter la chaleur apportée de 300 K : pour cela, tous les fils sont thermalisés sur le premier étage et les fils qui vont jusqu'au deuxième étage sont également thermalisés sur deux étages intermédiaires situés à 15 et 8 K (ces derniers constituent la spécificité de ce tube à gaz pulsé). Cela permet d'apporter par deux fils de chauffage qui vont à 4 K une puissance de conduction inférieure au mW sur le second étage (elle serait de 10 mW sans ces deux étages intermédiaires). Pour les thermomètres, des fils résistifs (de faible conductivité thermique λ) en constantan de diamètre 0.1 mm pour la cernox et 1 mm pour la platine (plus gros mais plus facile à manipuler) ont été choisis. L'apport de chaleur par conduction pour la cernox est négligeable et pour la platine, comme le fils est plus gros, la puissance apportée par conduction sur le premier étage est de 30 mW avec une longueur de fil de 30 cm.

Toutes les puissances de conduction calculées sont en faite négligeables devant la puissance frigorifique du tube à gaz pulsé, qui est de l'ordre de 20 W sur le premier étage et 500 mW sur le second.

Effet Joule

Pour limiter l'échauffement par effet Joule, il faut choisir correctement la résistance des fils : $R = \rho\frac{L}{A}$. On remarque qu'il y a un compromis à faire pour choisir le diamètre des fils, entre des fils fins pour limiter la conduction, et des fils épais pour limiter l'effet Joule. Par ailleurs, il faut choisir des résistances de chauffage qui ne demandent pas d'injecter un courant trop fort qui pourrait endommager les fils : pour le chauffage à 30 K, la résistance choisie est de 4.7 Ω et à 4 K, elle est de 47 Ω. La puissance maximale que l'on souhaite dissiper sur le premier étage est de 22 W, ce qui correspond à un courant de 2.2 A et à une puissance dissipée par effet Joule dans le fils d'amenée de courant de 350 mW. Pour le deuxième étage, la puissance maximale que l'on souhaite dissiper est de 1.2 W, ce qui correspond à un courant de 0.14 A et à une puissance dissipée par effet Joule dans le fils d'amenée de courant de 22 mW. Pour les thermomètres, les tensions en question étant de l'ordre de 10 μV, la puissance dissipée par effet Joule dans les fils est

négligeable.

Rayonnement

Pour limiter le rayonnement provenant de 300 K, un écran en cuivre (matériau réfléchissant le rayonnement vers l'extérieur) cylindrique a été vissé sur l'étage à 30 K. L'écran a ensuite été recouvert d'une dizaine de feuilles d'aluminium pour diminuer l'émissivité et permettre ainsi à l'ensemble d'assurer une super-isolation.

Courbes de puissances

Le premier test du tube à gaz pulsé fut très satisfaisant car en environ une heure, la température du second étage était descendue en dessous de 4 K. Les valeurs de température des deux étages ont d'abord été relevées sans injecter de puissance. Puis, des courbes de puissance ont été réalisées [voir la Figure E.3]. La performance de ce tube à gaz pulsé est proche de celle prédite par le manuel car il fournit une puissance de 500 mW à 4.4 K avec 22 W à 55 K sur le second étage. Une observation intéressante est que les deux sources froides ne sont pas indépendantes. A puissance constante sur le premier étage, quand on augmente la puissance sur le second étage, la température sur le premier étage augmente et réciproquement.

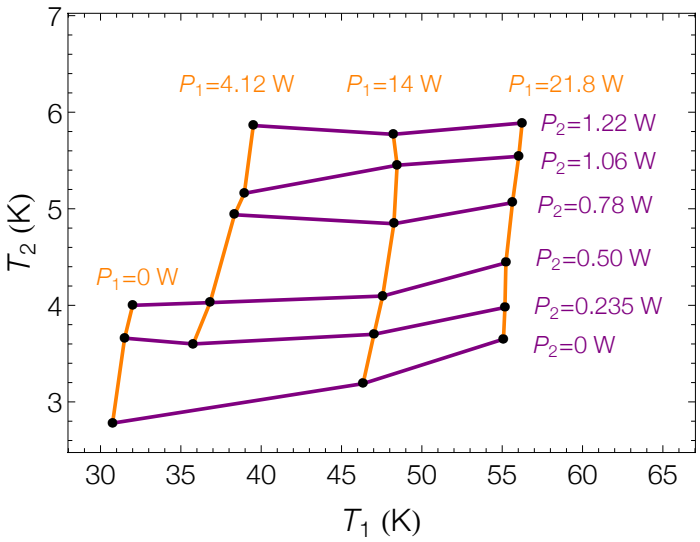


Figure E.3: Courbes des puissances de refroidissement du tube à gaz pulsé, obtenue avec le cryostat de test. P_1 est la puissance sur le premier étage et P_2 la puissance sur le second. Ces tests de puissance ont été aussi réalisés précédemment par Thomas Prouvé [107] puis par Ahmad Sultan [106] durant leurs thèses.

Résumé

L'étude des corrélations dans les fluides quantiques est abordée dans cette thèse par le biais de mesures neutroniques de leurs excitations élémentaires. Nos recherches sont motivées par les théories récentes qui permettent désormais de décrire ces excitations jusqu'à des vecteurs d'onde atomiques. Par ailleurs, les nouvelles performances du spectromètre temps de vol IN5 de l'ILL offrent la possibilité de réaliser des mesures précises dans une large gamme d'énergie et de vecteur d'onde. Dans le cas de l'^{4}He, l'isotope bosonique, les mesures de diffusion inélastique ont été réalisées à très basse température, de la pression de vapeur saturante jusqu'à la solidification. Les relations de dispersion des excitations élémentaires correspondantes ont été obtenues avec une grande précision. A des énergies supérieures, nous avons observé dans le facteur de structure dynamique une réponse de multi-excitations très fortement structurée, caractérisée par des seuils correspondant à l'interaction entre les modes élémentaires. En particulier, nous avons observé un phonon « fantôme » associé à l'interaction phonon-phonon. Nos mesures dans l'^{4}He superfluide confirment qualitativement les prédictions de la théorie dynamique à N-corps (2015) et même quantitativement jusqu'à une énergie de 2 meV. Les études effectuées dans le cas de l'^{3}He ont été menées jusqu'à des températures bien inférieures à 100 mK dans une cellule spécialement conçue. Les mesures inélastiques sur cet isotope fermionique ont permis de déterminer avec une grande précision les modes zéro-son de densité et paramagnon de densité de spin. Couvrant une région encore jamais explorée, elles nous ont permis de confirmer la présence prévue par la théorie d'une excitation de type rotonique dans l'^{3}He liquide massif. Ce mode reste ici confiné dans la bande particule-trou, contrairement au cas de l'^{3}He bidimensionnel. L'ensemble de nos mesures apporte une vision complète du facteur de structure dynamique de ces systèmes modèles pour les bosons et les fermions en interaction, depuis le régime de quasi-particules de Landau et des multi-excitations, jusqu'à la limite des hautes énergies où la dynamique rejoint celle des particules indépendantes.

Mots-clés : fluides quantiques, hélium, ^{4}He, ^{3}He, dynamique, diffusion inélastique de neutrons, très basses températures

Abstract

The effect of correlations in quantum fluids is investigated in the present work by inelastic neutron scattering measurements of their elementary excitations. Recent theories provide us with a detailed description of the dynamics up to atomic wave vectors. In addition, the recent improvement of the time-of-flight IN5 spectrometer at the ILL opens new experimental possibilities in terms of neutron flux and resolution, as well as accessible energy and wave vector ranges. In the case of ^{4}He, the bosonic isotope, the neutron measurements have been performed at very low temperatures, from the saturated vapor pressure up to the melting curve. The dispersion relations of the corresponding elementary excitations have been accurately determined. At higher energies, we observe in the dynamic structure factor a highly structured multi-excitation response, characterized by sharp thresholds due to the coupling of elementary excitations. In particular, we observe a ghost phonon related to phonon-phonon coupling. Our measurements on superfluid ^{4}He confirm the predictions of the dynamic many body theory (2015), the agreement being quantitative up to an energy of 2 meV. The investigations on normal liquid ^{3}He were carried out at temperatures well below 100 mK in a cell specially designed for this purpose. Our measurements on this fermionic isotope yield a high precision determination of the zero-sound and paramagnon modes. Since they also cover an unexplored region, we were able to confirm the theoretical prediction of a roton-like excitation in bulk liquid ^{3}He. This mode remains within the particle-hole band, contrarily to the case of two-dimensional ^{3}He. A broad vision of the dynamics of interacting Bose and Fermi systems, going from the Landau quasi-particles and multi-excitations regimes up to the high-energy limit, where the independent particle dynamics is recovered, emerges from our work.

Keywords: quantum fluids, helium, ^{4}He, ^{3}He, dynamics, inelastic neutron scattering, very-low temperatures